

**Entwicklung eines
abstimmbaren Hochleistungslasersystems
für die nichtlineare Spektroskopie
im fernen Infrarot**

DISSERTATION

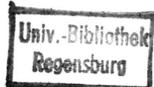
**ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES
DER NATURWISSENSCHAFTEN (DR. RER. NAT.)
DER
NATURWISSENSCHAFTLICHEN FAKULTÄT II - PHYSIK
DER UNIVERSITÄT REGENSBURG**

**VORGELEGT VON
ULRICH WERLING
AUS REGENSBURG**

1988

Di 88145

200/2H 5710 W489 - 2



6477 786

Promotionsgesuch eingereicht am : 2.2.1988
Die Arbeit wurde angeleitet von : Prof. Dr. K.F. Renk
Prüfungsausschuß : Prof. Dr. J. Keller , Vorsitzender
Prof. Dr. K.F. Renk , Erstgutachter
Prof. Dr. A. Penzkofer , Zweitgutachter
Prof. Dr. H. Hoffmann

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
I. Aufbau und Untersuchung eines Hochleistungslasersystems zur abstimmbaren Erzeugung von Ferninfrarotstrahlung mit Hilfe stimulierter Ramanemission in CH_3F	4
I.1 Der Hochdruck- CO_2 -Laser	4
1.1 Kleinsignalverstärkung eines Hochdruck- CO_2 -Lasers	5
1.1.1 Energieniveauschema eines CO_2 -Moleküls	5
1.1.2 Spektrale Breite der Laserübergänge	8
1.1.3 Temperaturmodell der Kleinsignalverstärkung	10
1.2 Anregung eines Hochdruck- CO_2 -Lasers durch elektrische Gasentladungen	14
1.2.1 Prinzip der elektrischen Gasentladung	15
1.2.2 Bedingungen für die effiziente Anregung des Lasergases in einer elektrischen Gasentladung	16
1.2.3 Vorionisierung bei selbständigen Gasentladungen	20
1.3 Aufbau des Hochdruck- CO_2 -Lasers	22
1.3.1 Elektroden	23
1.3.2 Vorionisierung	26
1.3.3 Hochspannungsversorgung	29
1.3.4 Mechanischer Aufbau	32
1.3.5 Resonatorkonfiguration	35
1.4 Eigenschaften des Hochdruck- CO_2 -Lasers	37
1.4.1 Abstimmcharakteristik	38
1.4.2 Zeitliche Struktur der Laserpulse	42
1.4.3 Breitbandemission	45
1.5 Zusammenstellung der Eigenschaften des Hochdruck- CO_2 -Lasers und Ausbaumöglichkeiten	47

I.2	Der CH_3F -Raman-Laser	50
2.1	Stimulierte Ramanemission in CH_3F	51
2.1.1	Energieniveauschema eines CH_3F -Moleküls	51
2.1.2	Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung in CH_3F	55
2.2	Aufbau des CH_3F -Raman-Lasers	63
2.3	Eigenschaften des CH_3F -Raman-Lasers	66
2.3.1	Emissionscharakteristik	67
2.3.2	Wirkungsgrad	71
2.4	Übersicht über die Eigenschaften des CH_3F -Raman-Lasers	75
I.3	Experimentelle Anordnung und Techniken für die FIR-Transmissions- spektroskopie mit Hilfe des CH_3F -Raman-Lasers	77
3.1	Optischer Aufbau	77
3.2	Meßwerterfassungssystem	80
3.3	Experimentelle Methoden zur Bestimmung des Absolutwertes der Transmission	84
II.	Nichtlineare Absorption von Ferninfrarotstrahlung durch eine resonante Band- mode in Sauerstoff-dotierten Siliziumkristallen	86
II.1	Interstitieller Sauerstoff in Siliziumkristallen	86
1.1	Bedeutung von Sauerstoff als Verunreinigung in Silizium bei der Produktion von Halbleiterbauelementen	86
1.2	Einbaulage von Sauerstoff in Siliziumkristallen	87
1.3	Infrarotabsorptionseigenschaften von Sauerstoff-dotiertem Silizium	88
1.4	Resonante Streuung akustischer Phononen an interstitiellen Sauerstoff- atomen in Silizium	93
II.2	Transmissionsspektrum von Sauerstoff-dotiertem Silizium im fernen Infrarot	98
II.3	Nichtlineare Absorption von Ferninfrarotstrahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium	103
3.1	Experimentelle Ergebnisse	103

3.2	Analyse der experimentellen Ergebnisse	107
3.2.1	Modellrechnung für die Abhängigkeit der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls von der FIR-Pulsenergie für den Fall vernachlässigbarer Dämpfung der resonanten Bandmode	109
3.2.2	Mögliche Dämpfungsmechanismen für die resonante Bandmode	116
3.2.3	Laufzeitexperimente zur Untersuchung der Ausbreitungseigen- schaften der durch die FIR-Absorption erzeugten Phononen: Hinweis auf eine räumlich-spektrale Diffusion	119
3.2.4	Erweiterung der Modellrechnung mit spektraler Diffusion der resonanten Phononen als Dämpfungsmechanismus der resonanten Bandmode	125
3.3	Ausblick	129
	Zusammenfassung	132
	Literaturverzeichnis	136

Teilergebnisse dieser Arbeit wurden veröffentlicht in:

Wan Chong-Yi, U. Werling und K.F. Renk

Study of broadband emission of an ultraviolet preionized 20-atm CO₂ laser

J. Appl. Phys. **57**, 990 (1985).

U. Werling, Wan Chong-Yi und K.F. Renk

Tuning characteristics of a UV-preionized 20-atmospheres CO₂ laser

Intern. J. Infrared and Millimeter Waves **6**, 449 (1985).

U. Werling, K.F. Renk und Wan Chong-Yi

Tuning characteristics of a high pressure CO₂ laser pumped CH₃F Raman laser

Intern. J. Infrared and Millimeter Waves **7**, 881 (1986).

U. Werling, Wan Chong-Yi und K.F. Renk

Efficiency of a high pressure CO₂ laser pumped CH₃F Raman laser

IEEE J. Quantum Electron. **QE-22**, 1024 (1986).

U. Werling und K.F. Renk

Propagation of high-frequency phonons in oxygen doped silicon

Proc. 18th Intern. Conf. on Low Temperature Physics, Kyoto 1987: Japanese J. of Appl.

Phys. **26**, 671 (1987).

Einleitung

Die nichtlineare Spektroskopie bietet die Möglichkeit, Informationen über mikroskopische Materialeigenschaften zu erhalten, die durch klassische optische Methoden nicht zugänglich sind. So können beispielsweise mit Hilfe der Zweiphotonenspektroskopie Übergänge zwischen Energiezuständen, die für elektrische Dipolstrahlung verboten sind, untersucht werden; die sättigbare Absorption ermöglicht die Bestimmung der Energierelaxationszeit T_1 angeregter Zustände, spektrales Lochbrennen liefert die homogene Linienbreite und damit die Phasenrelaxationszeit T_2 in inhomogen verbreiterten Systemen. Kohärente transiente Effekte wie freier Induktionszerfall und Photonenecho gestatten die Untersuchung der Dynamik angeregter Zustände wie z.B. Relaxations- und Energietransferprozesse.

Während sehr viele Experimente und Techniken der nichtlinearen Spektroskopie im sichtbaren Spektralbereich, im nahen und im mittleren Infrarot veröffentlicht wurden - einige Beispiele findet man in /1,2/, ist ihre Zahl im ferninfraroten (FIR) Spektralbereich (Wellenlängenbereich $100 \mu\text{m} - 1 \text{mm}$ bzw. Frequenzbereich von $10 \text{cm}^{-1} - 100 \text{cm}^{-1}$) noch sehr gering. Einige der prominentesten Arbeiten sind die Beobachtung der Zweiphotonenzyklotronresonanz und des $1s \rightarrow 2s$ Zweiphotonenübergangs an flachen Donatoren in GaAs /3/, die Sättigung von Zyklotronresonanz und Übergängen zwischen Zuständen flacher Donatoren in GaAs /4,5/ und die nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung durch die Zyklotronresonanz in einem zweidimensionalen Elektronengas in GaAs/GaAl_xAs_{1-x} Heterostrukturen /6/.

Die Ursache der spärlichen Zahl von Experimenten zur nichtlinearen Spektroskopie im fernem Infrarot ist das Fehlen geeigneter Hochleistungslaser in diesem Spektralbereich. Obwohl seit der ersten Demonstration eines optisch gepumpten FIR-Lasers im Jahre 1970 durch Chang /7/ weit über 1000 diskrete FIR-Laserlinien im Bereich von $100 \mu\text{m}$ bis 1mm gefunden wurden /8/, ist die Untersuchungsmöglichkeit eines physikalischen Problems bei einer bestimmten FIR-Frequenz immer noch an die zufällige Übereinstimmung dieser Frequenz mit einer der diskreten FIR-Laserlinien gebunden. Selbst wenn ein solcher Fall gegeben ist, erfordert eine Frequenzvariation meist den Austausch des FIR-Lasermediums, der Anregungsmethode und der Laserkonstruktion. Eine in einem weiten Bereich abstimmbare kohärente FIR-Strahlungsquelle würde daher neue Möglichkeiten für die nichtlineare Spektroskopie im ferninfraroten Spektralbereich eröffnen.

In den letzten Jahren wurden mehrere Methoden zur abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung entwickelt: Der Freie-Elektronen-Laser (FEL) benutzt einen gepulsten Strahl von relativistischen Elektronen in einem transversalen, räumlich periodischen Magnetfeld zur Verstärkung von kollinear verlaufender kohärenter Strahlung. Seine Emissionsfrequenz hängt

von der Periode des Magnetfelds und der Elektronenenergie ab und kann durch Variation der letzteren geändert werden. Ein Beispiel für einen im ferninfraroten Spektralbereich arbeitenden FEL ist der mit einem Van de Graaff-Beschleuniger ausgerüstete UCSB-FEL (University of California at Santa Barbara). Er kann FIR-Strahlung im Frequenzbereich von 20 cm^{-1} bis 80 cm^{-1} mit einer Pulsleistung von $0.1 - 1 \text{ kW}$ (Pulslänge $0.5 - 4 \mu\text{sec}$) erzeugen /5,9/. Die FIR-Emission durch heiße Ladungsträger in Halbleitern bietet eine weitere Möglichkeit, abstimmbar FIR-Strahlung zu erzeugen. Unter bestimmten Bedingungen kann beispielsweise in hochreinem p-Germanium in gekreuzten elektrischen und magnetischen Feldern eine Überbesetzung des leichten Löcherbandes gegenüber dem schweren Löcherband erreicht werden. Eine breitbandige ($\sim 30 \text{ cm}^{-1}$) stimulierte FIR-Emission, deren Zentrum von den Werten des gepulsten elektrischen und statischen magnetischen Feldes bestimmt wird, wurde von Andronov et al. /10,11/ im Wellenlängenbereich von $75 \mu\text{m}$ bis $250 \mu\text{m}$ mit Pulsleistungen von 10 W beobachtet. Durch Frequenzmischung der im sichtbaren Spektralbereich liegenden Strahlung von 2 Dylasern in LiNbO_3 wurde von Berg et al. /12/ FIR-Strahlung abstimmbar im Bereich von 20 cm^{-1} bis 200 cm^{-1} erzeugt. Da einer der beiden Dylaser Pikosekundenpulse emittierte, lagen auch die Pulsdauern der FIR-Strahlung im Pikosekundenbereich. Spitzenleistungen von $0.3 - 1 \text{ kW}$ wurden erreicht; die Bandbreite der FIR-Strahlung betrug $\sim 10 \text{ cm}^{-1}$ entsprechend der zeitlichen Dauer des Pulses.

Die eben geschilderten Methoden erlauben zwar alle eine abstimbare Erzeugung von FIR-Strahlung, erfordern aber entweder einen großen experimentellen Aufwand wie im Falle eines FEL's oder sind infolge ihrer charakteristischen Eigenschaften wie Pulsleistung oder spektrale Breite nur bedingt für die nichtlineare Spektroskopie geeignet. Es gibt jedoch noch eine weitere, relativ einfache Möglichkeit, kohärente FIR-Strahlung hoher Pulsleistung zu erzeugen, nämlich die stimulierte Ramanstreuung an molekularen Gasen. Verwendet man dafür eine abstimbare Pumpquelle, läßt sich deren Abstimmbarkeit in den ferninfraroten Spektralbereich übertragen. Die erste Demonstration dieses Verfahrens erfolgte von Frey et al. /13,14/ an gasförmigem HCl bzw. HF . Sie benutzten dabei eine relativ aufwendige Pumpquelle, nämlich die zweifach in H_2 -Gas Raman-verschobene Strahlung eines von einem Rubinlaser gepumpten abstimmbaren Dylasers und erreichten im Falle von HF -Gas eine abstimbare Erzeugung von FIR-Strahlung im Frequenzbereich von 40 cm^{-1} bis 200 cm^{-1} in einzelnen Intervallen von 5 cm^{-1} Breite. Ein experimentell einfacheres Verfahren wurde möglich, als in den letzten Jahren kontinuierlich abstimbare Hochdruck- CO_2 -Laser mit hoher Ausgangsleistung entwickelt wurden. Derartige Laser, deren Abstimmbarkeit eine Folge des Überlapps der druckverbreiterten Rotations-Schwingungs-Übergänge der CO_2 -Moleküle ist, sind eine sehr gut geeignete Pumpquelle zur abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung durch stimulierte Ramanstreuung. So fällt beispielsweise der $9R$ -Emissionsbereich eines solchen Lasers mit dem ν_3 - R -Absorptionszweig in gasförmigem Methylfluorid (CH_3F) zusammen. Theoretische Rechnungen von Biron et al. /15/ lassen in diesem Fall eine sehr

hohe Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung erwarten. Tatsächlich gelang es mehreren Gruppen (Mathieu et al. /16/, Danly et al. /17/) in ersten Experimenten, FIR-Strahlung im Frequenzbereich von 25 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} mit einer maximalen Pulsleistung von 4 kW zu erzeugen.

Auch die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung durch stimulierte Ramanstreuung in CH_3F . Mit Hilfe eines Hochdruck- CO_2 -Lasers, der mit einigen technischen Neuerungen versehen war, konnte FIR-Strahlung im Bereich von 23 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} mit maximalen Pulsleistungen von über 7 kW erzeugt werden. Gleichzeitig wird erstmals die Anwendungsmöglichkeit dieser Strahlung für die Untersuchung nichtlinearer Phänomene in Festkörpern im fernen Infrarot, und damit eine erste Nutzung in der Festkörperspektroskopie, demonstriert.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: Im ersten Abschnitt wird zunächst der Aufbau und die Funktionsweise des durch eine elektrische Gasentladung mit UV-Vorionisierung angeregten und bei einem Druck von 20 atm betriebenen Hochdruck- CO_2 -Lasers beschrieben. Insbesondere wird eine neuartige Anordnung für die UV-Vorionisierung vorgestellt, die eine besonders einfache und kompakte Laserkonstruktion ermöglichte. Die charakteristischen Eigenschaften des Lasers werden diskutiert und mit denen anderer bekannter Konstruktionen verglichen. Der zweite Teil dieses Abschnitts beschäftigt sich mit den Eigenschaften eines von dem Hochdruck- CO_2 -Laser gepumpten CH_3F -Raman-Lasers. Erstmals wird eine vollständige Emissionscharakteristik eines solchen Lasers vorgestellt. Ihre wesentlichen Eigenschaften werden besprochen, Untersuchungen des Wirkungsgrades für die Umsetzung von CO_2 -Laserstrahlung in FIR-Strahlung werden durchgeführt. Der zweite Abschnitt der Arbeit berichtet von einem Einsatz des CH_3F -Raman-Lasers in der nichtlinearen Spektroskopie. Es wurde erstmals ein nichtlineares Verhalten der Absorption von FIR-Strahlung infolge der Anregung einer Schwingungsmode im Frequenzbereich der hochfrequenten akustischen Phononen eines Festkörpers bei hohen FIR-Pulsleistungen beobachtet. Dabei wurde speziell die durch interstitiell in Silizium eingebaute Sauerstoffatome verursachte resonante Bandmode in Silizium untersucht, deren Resonanzfrequenz mit bisherigen FIR-Lasern nicht zugänglich war. Der Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit Modellrechnungen erlaubte Aussagen über mögliche Dämpfungsmechanismen der resonanten Bandmode.

I. Aufbau und Untersuchung eines Hochleistungslasersystems zur abstimmbaren Erzeugung von Ferninfrarotstrahlung mit Hilfe stimulierter Ramanemission in CH_3F

In diesem Abschnitt werden Aufbau und Funktionsweise des im Laufe der vorliegenden Arbeit entwickelten, aus einem Hochdruck- CO_2 -Laser und CH_3F -Raman-Laser bestehenden Hochleistungslasersystems zur abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung beschrieben. Die charakteristischen Eigenschaften des Lasersystems werden vorgestellt und diskutiert.

I.1. Der Hochdruck- CO_2 -Laser

1971 wurde von Bagratashvili et al. /18/ erstmals vorgeschlagen, das Emissionsspektrum von CO_2 -Lasern, das aus einer Vielzahl von diskreten Linien im Wellenlängenbereich um $9 \mu\text{m}$ bzw. $10 \mu\text{m}$ besteht, durch den Betrieb bei hohen Gasdrücken zu vergrößern. Die Verbreiterung der Emissionslinien bei genügend hohen Drücken führt zu einem Überlapp dieser Linien und ermöglicht somit einen Betrieb des Lasers auch bei Frequenzen, die zwischen den Linienzentren liegen. Kontinuierliche Erzeugung kohärenter Infrarotstrahlung im obigen Wellenlängenbereich ist möglich und wurde in den letzten Jahren auch von vielen Arbeitsgruppen demonstriert. Verschiedenste Anregungstechniken, wie z.B. optisches Pumpen /19,20/, von einem Elektronenstrahl kontrollierte nichtselbständige elektrische Gasentladungen /24-24/ bzw. durch UV-Strahlung vorionisierte selbständige Gasentladungen /16,17,25-29/ wurden erprobt. In dieser Arbeit wird ein mit dem letztgenannten Verfahren angeregter, bei einem Druck von 20 atm arbeitender Hochdruck- CO_2 -Laser präsentiert, bei dem eine neue Anordnung für die UV-Vorionisierung entwickelt wurde, die eine besonders kompakte Laserkonstruktion ermöglichte.

Es sei noch bemerkt, daß Hochdruck- CO_2 -Laser neben der Möglichkeit der Erzeugung abstimmbarer FIR-Strahlung mittels stimulierter Ramanemission, von der in dieser Arbeit berichtet wird, eine Vielzahl weiterer Anwendungsmöglichkeiten besitzen. Genannt sei als Beispiel das effiziente resonante Pumpen molekularer Gase zur Erzeugung kohärenter Strahlung im mittleren und fernen Infrarot /30,31/, die Erzeugung und Verstärkung von ultrakurzen Laserpulsen (Pulsdauer $< 100 \text{ psec}$) im Wellenlängenbereich um $9 \mu\text{m}$ bzw. $10 \mu\text{m}$ /32,33/ und die Erzeugung breitbandiger Strahlung im genannten Wellenlängenbereich, die sich be-

sonders für Intracavity-Spektroskopie /34/ oder auch für Bestimmung von gasförmigen Verunreinigungen in der Erdatmosphäre (LIDAR) /35/ verwenden läßt.

Bevor nun der Aufbau und die charakteristischen Eigenschaften des in dieser Arbeit entwickelten Hochdruck-CO₂-Lasers näher besprochen werden, seien kurz die spektroskopischen und molekularkinetischen Grundlagen, die die Kleinsignalverstärkung eines unter hohem Druck betriebenen CO₂-Lasers bestimmen, diskutiert.

1.1 Kleinsignalverstärkung eines Hochdruck-CO₂-Lasers

1.1.1 Energieniveauschema eines CO₂-Moleküls

Das Emissionsspektrum eines CO₂-Lasers liegt im Frequenzbereich von 900 cm⁻¹ bis 1100 cm⁻¹ und wird bestimmt durch Übergänge zwischen Rotations-Schwingungs-Zuständen eines CO₂-Moleküls im elektronischen Grundzustand. Als lineares dreiatomiges Molekül besitzt ein CO₂-Molekül bekanntlich 3 verschiedene Normalschwingungen, nämlich die symmetrische Streckschwingung ν_1 , die zweifach entartete Biegeschwingung ν_2 und die asymmetrische Streckschwingung ν_3 . Die Schwingungszustände eines CO₂-Moleküls lassen sich somit durch ein Tripel $|v_1, v_2^l, v_3\rangle$ charakterisieren, wobei v_1, v_2 bzw. v_3 die Schwingungsquantenzahlen der Normalschwingungen ν_1, ν_2 bzw. ν_3 sind. Da die Biegeschwingung infolge der zwei möglichen zueinander senkrechten Auslenkungsrichtungen einen zweidimensionalen Oszillator darstellt, ist zur Charakterisierung ihrer Energiezustände neben der Schwingungsquantenzahl v_2 eine weitere Quantenzahl l ($l = v_2, v_2 - 2, \dots, -v_2$) nötig, die den Winkelanteil der Eigenfunktionen beschreibt /36/. Die Energien der einzelnen Zustände sind gegeben durch

$$E_S(v_1, v_2^l, v_3) = h \left(\sum_{i=1}^3 \nu_i \left(v_i + \frac{d_i}{2} \right) + \sum_{\substack{i,k=1 \\ k \geq i}}^3 x_{ik} \left(v_i + \frac{d_i}{2} \right) \left(v_k + \frac{d_k}{2} \right) + gl^2 \right) \quad (1)$$

wobei d_i den Entartungsgrad der Normalschwingung ν_i angibt. Die Größen x_{ik} beschreiben die Wechselwirkung zwischen den Normalschwingungen aufgrund anharmonischer Anteile im Potential, die Größe g gibt eine Energiekorrektur für die Schwingungszustände v_2 der Normalmode ν_2 für verschiedene Quantenzahlen l an, die ebenfalls eine Folge der Anhar-

nizität des Potentials ist. Für die Werte dieser Größen gilt /36/:

$$\begin{aligned} \nu_1 &= 1351.2 \text{ cm}^{-1} & \nu_2 &= 672.2 \text{ cm}^{-1} & \nu_3 &= 2396.4 \text{ cm}^{-1} \\ x_{11} &= -0.3 \text{ cm}^{-1} & x_{22} &= -1.3 \text{ cm}^{-1} & x_{33} &= -12.5 \text{ cm}^{-1} \\ x_{12} &= 5.7 \text{ cm}^{-1} & x_{13} &= -21.9 \text{ cm}^{-1} & x_{23} &= -11.0 \text{ cm}^{-1} \\ & & g &= 1.7 \text{ cm}^{-1} \end{aligned}$$

Abb. 1 zeigt den für das Verständnis des Emissionsspektrums eines CO₂-Lasers nötigen Teil des Schwingungsniveauschemas. Die Laserübergänge erfolgen vom Zustand $|00^{\circ}1\rangle$ in die mit $[[10^{\circ}0]|02^{\circ}0]\rangle_{I,II}$ bezeichneten Niveaus. Diese gehen aus den Zuständen $|10^{\circ}0\rangle$ und $|02^{\circ}0\rangle$ hervor, die nach Gl.(1) nahezu gleiche Energie haben, d.h. zufällig entartet sind. Eine Wechselwirkung zwischen beiden Zuständen wiederum aufgrund anharmonischer Anteile im Potential führt zu einer Abstoßung der beiden Energiezustände; man sagt, die Zustände sind in Fermiresonanz /36/. Es bilden sich neue Eigenzustände, die Wellenfunktionen der Form $a \cdot |10^{\circ}0\rangle \pm b \cdot |02^{\circ}0\rangle$ besitzen und mit $[[10^{\circ}0]|02^{\circ}0]\rangle_{I,II}$ bezeichnet werden. Ihre Energien liegen bei $E_I = 1388.3 \text{ cm}^{-1}$ bzw. $E_{II} = 1285.5 \text{ cm}^{-1}$, gehorchen also nicht mehr Gl.(1). (Die Zustände $|10^{\circ}0\rangle$ und $|02^{\circ}0\rangle$ befinden sich nicht in Fermiresonanz, da diese nur zwischen Zuständen gleichen Symmetrietyps auftreten kann /36/). Der Einfachheit halber seien die besagten Niveaus dennoch mit $|10^{\circ}0\rangle$ und $|02^{\circ}0\rangle$ bezeichnet.

Infolge der Rotationsmöglichkeit eines CO₂-Moleküls um eine Achse senkrecht zur Molekülachse ist mit jedem Schwingungsniveau eine Unterstruktur von Rotationsniveaus, die durch die Rotationsquantenzahl J gekennzeichnet werden, verbunden. Symmetriebetrachtungen über den Austausch der Sauerstoffkerne innerhalb des CO₂-Moleküls (das Isotop ¹²C¹⁶O₂ sei vorausgesetzt!) zeigen, daß bei Schwingungszuständen, die symmetrisch bezüglich des Austausches sind (z.B. die Σ_g -Zustände $|10^{\circ}0\rangle$, $|02^{\circ}0\rangle$), nur Rotationszustände mit geradem J auftreten. Bei bezüglich des Austausches antisymmetrischen Schwingungszuständen (z.B. der Σ_u -Zustand $|00^{\circ}1\rangle$) gibt es nur Rotationszustände mit ungeradem J /36/. Die Gesamtenergie eines CO₂-Moleküls setzt sich damit aus der Schwingungsenergie E_S und der Rotationsenergie

$$E_R(J) = B J(J+1) \quad (2)$$

zusammen. B ist die Rotationskonstante; sie hängt vom Trägheitsmoment des Moleküls für die Rotation um eine Achse senkrecht zur Molekülachse ab und ist damit abhängig vom zugehörigen Schwingungszustand. Für die an den Laserübergängen beteiligten Schwingungsniveaus gilt:

$$B_{|00^{\circ}1\rangle} = 0.3866 \text{ cm}^{-1}, \quad B_{|10^{\circ}0\rangle} = 0.3897 \text{ cm}^{-1}, \quad B_{|02^{\circ}0\rangle} = 0.3899 \text{ cm}^{-1}$$

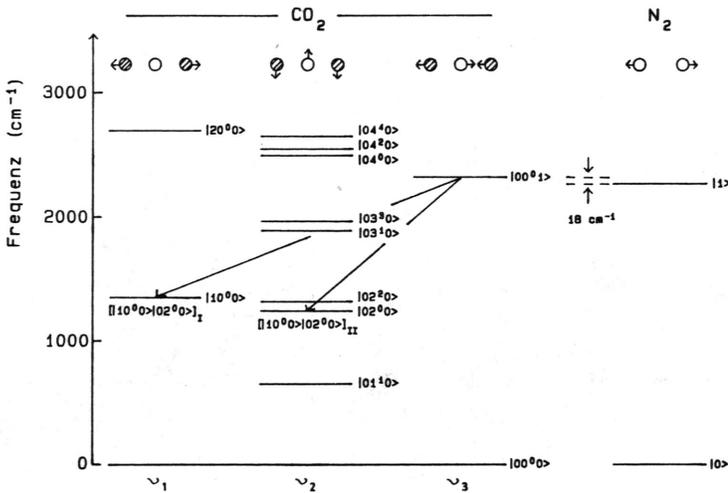


Abb. 1 Schwingungsniveauschema für CO₂- bzw. N₂-Moleküle.

Jeder der beiden Laserübergänge $|00^0 1\rangle \rightarrow |10^0 0\rangle$ bzw. $|00^0 1\rangle \rightarrow |02^0 0\rangle$ besteht somit aus einer Vielzahl einzelner Linien infolge der Unterstruktur der Schwingungsniveaus durch die der Schwingung überlagerten Rotationen. Sie werden nach der Lage ihres Linienschwerpunkts als das 10.4 μm bzw. 9.4 μm Band bezeichnet. Die gültige Auswahlregel für die Änderung der Rotationsquantenzahl ist $\Delta J = \pm 1$ ($\Delta J = 0$ ist nicht möglich, da das obere Laserniveau nur ungerade, die unteren jedoch nur gerade J besitzen). Jedes der Bänder zerfällt somit in 2 Zweige, den höherenergetischen *R*-Zweig, der aus Übergängen mit $\Delta J = +1$ besteht, sowie den niederenergetischen *P*-Zweig, der von den Übergängen $\Delta J = -1$ gebildet wird. Es ist dabei üblich, einen Übergang durch die Quantenzahlen des tieferliegenden Energiezustandes zu charakterisieren; auch die Änderung von J bezieht sich auf diesen Zustand. Beispiele für die Notation anhand von 2 Laserlinien innerhalb des 10*R*- bzw. 10*P*-Zweigs zeigt Abb. 2.

Der Abstand benachbarter Linien innerhalb der *R*-Zweigs beträgt nach Gl.(2) etwa 1.3 cm⁻¹ (39 GHz), innerhalb der *P*-Zweigs etwa 1.8 cm⁻¹ (54 GHz). Eine genaue Tabellierung der Laserlinien findet man in /37/. In Abb. 2 ist auch die relative Besetzung $\rho(J) = \frac{N_J}{N}$ der einzelnen Rotationsniveaus bezüglich der Besetzung N des zugehörigen Schwingungs-

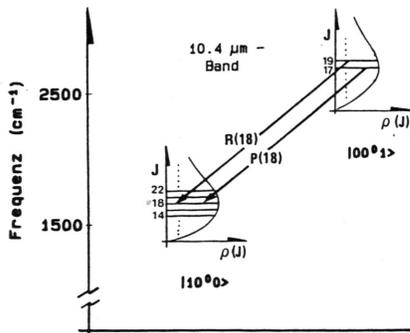


Abb. 2
Rotations-Schwingungs-Übergänge
innerhalb des 10.4 μm Bandes.

zustandes nach der Boltzmannverteilung unter Berücksichtigung des statistischen Gewichts $g_J = 2J + 1$ eines Rotationsniveaus angetragen

$$\rho(J) = \frac{N_J}{N} \sim (2J + 1) \cdot \exp\left(-\frac{E_R(J)}{kT}\right) \quad (3)$$

k ist die Boltzmannkonstante, T die Temperatur. Bei $T = 300$ K liegt das Maximum der Besetzungsverteilung etwa bei $J = 16$. Maximale Kleinsignalverstärkung ist damit für die Laserübergänge $R(16)$ bzw. $P(16)$ zu erwarten.

1.1.2 Spektrale Breite der Laserübergänge

Die Lebensdauer des angeregten Schwingungszustandes $|00^1\rangle$ gegenüber der spontanen Emission von Photonen beträgt im Falle des Übergangs $|00^1\rangle \rightarrow |00^0\rangle$ etwa 0.1 sec, für alle anderen Übergänge liegt er zwischen 0.5 sec und 5 sec /38/. Die Linienverbreiterung aufgrund der natürlichen Lebensdauer kann damit gegenüber anderen Verbreiterungsmechanismen wie Doppler- bzw. Stoßverbreiterung vernachlässigt werden. Die Dopplerverbreiterung beträgt bei 400 K etwa 150 MHz /35/ und ist der dominante Verbreiterungsmechanismus bei in Dauerstrich betriebenen Niederdruck-CO₂-Lasern, deren Betriebsdruck unter 30 Torr liegt. Bei Betriebsdrücken über 50 Torr wird die Linienbreite der Übergänge nur durch die Stoß- bzw. Druckverbreiterung bestimmt. Stoßprozesse unter den Gasmolekülen zerstören eine feste Phasenbeziehung in den Wellenfunktionen der einzelnen Moleküle innerhalb einer charakteristischen Zeit T_2 (sog. Phasenrelaxationszeit) und führen dadurch zu einer Verbreiterung der Emissionslinien. Es läßt sich zeigen, daß die Linienform im Falle der

Stoßverbreiterung durch eine Lorentzfunktion gegeben ist, für deren Halbwertsbreite $\Delta\nu$ gilt /39/:

$$\Delta\nu = \frac{1}{\pi T_2} \quad (4)$$

Die Druckverbreiterung ist für beide Emissionsbänder eines CO₂-Lasers nahezu gleich und unabhängig von der Rotationsquantenzahl $J/40,41/$. Für ein bei CO₂-Lasern übliches Lasingasgemisch aus He, N₂ und CO₂ (auf die Bedeutung von He und N₂ wird noch eingegangen!) ist die Druckverbreiterung nach Abrams /42/, der eine kritische Analyse verschiedener experimenteller Werte durchführte, gegeben durch

$$\Delta\nu = 7.58 \cdot (\psi_{CO_2} + 0.73\psi_{N_2} + 0.64\psi_{He}) \cdot p \cdot \sqrt{\frac{300}{T}} \quad (5)$$

Hierbei ist $\Delta\nu$ die Linienbreite in MHz (volle Breite bei halber Höhe [FWHM]), p der Gesamtdruck der Gasmischung in Torr und T die Temperatur in K; ψ_{CO_2} , ψ_{N_2} bzw. ψ_{He} geben den Bruchteil von CO₂, N₂ und He innerhalb der Gasmischung an. Einige Beispiele für verschiedene Gasmischungen bei verschiedenen Drücken sind in Tab. 1 angeführt ($T = 300$ K).

Gasmischung CO ₂ :N ₂ :He	Druck	Linienbreite
1:1:8	1 atm	3.9 GHz
3:1:60	10 atm	37 GHz
3:1:60	20 atm	75 GHz
3:1:60	25 atm	94 GHz

Tab. 1 Spektrale Breite der Rotations-Schwingungs-Übergänge für verschiedene Drücke und Gasmischungen.

Der erste Eintrag in der Tabelle kennzeichnet Werte, die bei gepulsten TEA-CO₂-Lasern (Transversely Excited Atmospheric Pressure Laser) üblich sind. Hier sind die Linienbreiten noch sehr viel kleiner als der Abstand benachbarter Linien in den *R*- bzw. *P*-Zweigen. Das Emissionsspektrum eines TEA-CO₂-Lasers besteht somit noch immer aus diskreten Linien. Bei 10 atm erreicht die Halbwertsbreite den Abstand benachbarter Linien in den *R*-Zweigen, jedoch noch nicht in den *P*-Zweigen. (Die angegebene Gasmischung wurde in dem in dieser Arbeit vorgestellten Hochdruck-CO₂-Laser verwendet). Bei Drücken über 20 atm tritt voller Überlapp benachbarter Linien in allen Zweigen ein. Ein kontinuierliches Emissionsspektrum ist die Folge. Es sei noch bemerkt, daß eine Berechnung des Absorptionskoeffizienten bei einer bestimmten Frequenz ν durch einfache Summation über durch ein Lorentzprofil beschriebene Absorptionslinien geringere Werte liefert als bei hohen Drücken

beobachtet wurde /43/. Nach Miller /43/ liegt die Ursache in einer Wechselwirkung zwischen benachbarten Emissionslinien infolge von Stößen, die zu von der Lorentzform abweichenden Linienformen führt und eine etwa 15% stärkere Absorption bei 20 atm zur Folge hat, als bei einer Summation über Lorentzprofile zu erwarten wäre.

1.1.3 Temperaturmodell der Kleinsignalverstärkung

Da die kinetische Translationsenergie $\frac{3}{2} k T$ der Gasmoleküle bei $T = 300$ K etwa 300 cm^{-1} beträgt, also sehr groß gegen den Abstand benachbarter Rotationszustände (Gl.(2)) ist, erfolgt durch Stöße der CO_2 -Moleküle untereinander bzw. mit den restlichen in der Gas Mischung enthaltenen Teilchen ein sehr schneller Austausch ihrer Rotationsenergie mit der Translationsenergie der Gasmoleküle (R-T-Transfer). Nach Gl.(4) und den Werten für die Druckverbreiterung in Tab.1 findet der Austausch bei einem Gasdruck von 20 atm in Zeiten von weniger als 10 psec statt. Die Temperatur innerhalb des Rotationssystems kann somit stets gleich der kinetischen Gastemperatur T angesetzt werden.

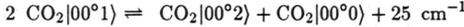
Der Austausch von Vibrationsenergie der CO_2 -Moleküle mit der Translationsenergie der Gasmoleküle (V-T-Transfer) erfolgt wesentlich langsamer, da die mittlere kinetische Energie der Gasmoleküle kleiner als der Abstand der Schwingungszustände (Gl.(1)) ist. Eine Zusammenstellung der Ratenkonstanten für den V-T-Transfer für die ν_2 - bzw. ν_3 -Normalschwingung durch Stöße der CO_2 -Moleküle untereinander bzw. mit N_2 - oder He-Teilchen ist in Tab.2 gegeben.

Stoßpartner	$\text{CO}_2 - \text{CO}_2$	$\text{CO}_2 - \text{N}_2$	$\text{CO}_2 - \text{He}$	[$\frac{1}{\text{sec atm}}$]
ν_2	$1.5 \cdot 10^5$	$1.5 \cdot 10^5$	$30.4 \cdot 10^5$	
ν_3	$2.8 \cdot 10^5$	$8.4 \cdot 10^4$	$6.5 \cdot 10^4$	

Tab. 2 Ratenkonstanten des V-T-Transfers der ν_2 - bzw. ν_3 -Normalschwingung bei Stößen mit verschiedenen Partnern /44/.

Für ein Gasgemisch von $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 3:1:60$ bei 20 atm berechnet man für den V-T-Transfer der ν_3 -Schwingung eine Relaxationszeit $\tau \simeq 700$ nsec; für die ν_2 -Schwingung gilt $\tau = 20$ nsec. Wie aus Tab. 2 ersichtlich ist, ist die schnelle Entleerung des unteren Laserniveaus eine Folge der Beimischung von He im Laser gas. (Eine weitere Bedeutung von He ist - neben seiner Wirkung als Puffer gas zur Erzeugung des hohen Drucks - auch seine Wärmeleitfähigkeit, die etwa 6 mal höher ist als die von N_2 bzw. CO_2 ; He sorgt somit beispielsweise für einen effizienten Transport der durch eine elektrische Gasentladung erzeugten Wärme an die Wandung des Lasers /37/).

Durch den Austausch von Vibrationsenergie bei Stößen zwischen CO_2 -Molekülen (sog. V-V-Transfer) stellt sich jedoch innerhalb einer jeden Normalschwingung ν_i in Zeiten, die viel kleiner sind als die Zeitkonstanten des V-T-Transfers, ein Energiegleichgewicht ein, das sich durch eine sog. Modentemperatur T_i beschreiben läßt. Beispielsweise beträgt die Rate für den Prozeß



$4 \cdot 10^9 \frac{1}{\text{sec atm}} / 45/$. Bei einem Partialdruck von 0.9 atm für CO_2 erhält man als Zeitkonstante 0.3 nsec. Ähnliches gilt für die ν_1 - bzw. ν_2 - Mode. Infolge der in Fermiresonanz befindlichen unteren Laserniveaus erfolgt ein Energieaustausch zwischen der ν_1 - und ν_2 - Normalschwingung mit einer Rate von $7.6 \cdot 10^8 \frac{1}{\text{sec atm}}$, also in einer Zeit von etwa 1.5 nsec für 0.9 atm $\text{CO}_2 / 38/$, so daß man für beide Normalschwingungen die gleiche Modentemperatur $T_1 = T_2$ hat.

Die Temperaturen T , $T_1 = T_2$ und T_3 hängen von der Art und Stärke der verwendeten Anregungsmethode ab. Im Falle einer Anregung durch eine elektrische Gasentladung, die durch die ins Gasgemisch injizierte Energiedichte ε (üblicherweise angegeben in $\frac{\text{J}}{\text{atm}}$) und durch das Verhältnis von elektrischer Feldstärke und Druck des Gasgemisches $\frac{E}{p}$ charakterisiert wird (siehe Abschnitt I.1.2), erhält man für Energiedichten $10 \frac{\text{J}}{\text{atm}} < \varepsilon < 250 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ eine kinetische Gastemperatur T zwischen 300 K und 400 K /46/. Die Modentemperaturen $T_1 = T_2$ und T_3 werden von den Größen $\frac{E}{p}$ und ε bestimmt. (Wie im folgenden Abschnitt gezeigt, bestimmt $\frac{E}{p}$ den Bruchteil der Energie, die ins Schwingungssystem der einzelnen Normalmoden injiziert wird.) Die Temperatur T_3 läßt sich aus der Kleinsignalverstärkung bei einer bestimmten Frequenz, z.B. $10P(16)$, berechnen /47/. Für ein Gasgemisch $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 1:1:18$ betragen die Temperaturen bei $\frac{E}{p} = 6 \frac{\text{kV}}{\text{cm atm}}$ und $\varepsilon \simeq 32 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ beispielsweise $T = 315 \text{ K}$, $T_1 = T_2 = 350 \text{ K}$ und $T_3 = 1250 \text{ K}$, d.h. $T_1 \ll T_3 / 47/$. Mit Hilfe der Temperaturen T , $T_1 = T_2$ und T_3 läßt sich die Besetzung der Energieniveaus innerhalb jeder Normalschwingung und damit die Kleinsignalverstärkung $\alpha(\nu)$ bestimmen. Dieses Verfahren wird als das Temperaturmodell der Kleinsignalverstärkung bezeichnet. Der Beitrag eines Rotations-Schwingungs-Übergangs zwischen einem oberen Niveau 1 und einem unteren Niveau 2 zur Kleinsignalverstärkung ist nämlich gegeben durch

$$\alpha_{12}(\nu) = \psi_{\text{CO}_2} N \sigma_{12} g(\nu - \nu_{12}) \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right) \quad (6)$$

Die Terme in Gl.(6) sind dabei wie folgt definiert:

N Anzahl der Moleküle pro Volumeneinheit

ψ_{CO_2} : Bruchteil der CO_2 -Moleküle

σ_{12} : Absorptionsquerschnitt für den Übergang vom Niveau 1 zu Niveau 2

$g(\nu - \nu_{12})$: Linienformfunktion des Übergangs.

(Sie ist in erster Näherung eine Lorentzfunktion mit einer Breite nach Gl.(5);

Abweichungen treten bei hohen Drücken durch die Wechselwirkung benachbarter Linien auf.)

g_1, g_2 : Entartungsgrad der beiden Niveaus

n_1 und n_2 sind die relativen Besetzungen in den Niveaus 1 und 2 und sind durch die Modentemperaturen T_2 bzw. T_3 gegeben:

$$n_1 \sim \exp(-h\nu_3/kT_3) \cdot \rho(J_1)$$

$$n_2 \sim \exp(-h\nu_{1,2}/kT_2) \cdot \rho(J_2)$$

$\rho(J_i)$ ist dabei die durch die kinetische Gastemperatur T bestimmte relative Besetzung des Rotationsniveaus J_i nach Gl.(3).

Summiert man über alle Rotations-Schwingungs-Übergänge, erhält man die resultierende Kleinsignalverstärkung eines CO_2 -Lasers bei der Frequenz ν . Abb.3 zeigt das Ergebnis einer von Taylor et al. /47/ auf der Basis dieses Temperaturmodells durchgeführten Rechnung für 3 verschiedene Gasdrücke (Mischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 1:1:18$) bei einer injizierten Energiedichte $\varepsilon = 32 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ und $\frac{E}{P} = 6 \frac{\text{kJ}}{\text{cm atm}}$. Die dort aufgeführten theoretischen Voraussagen zeigten gute Übereinstimmung mit von Taylor et al. gleichzeitig durchgeführten Messungen der Kleinsignalverstärkung. Man erkennt deutlich, daß für Drücke $p \leq 10$ atm noch eine Modulation der Verstärkung in allen 4 Emissionszweigen des CO_2 -Lasers besteht. Bei $p = 19$ atm jedoch zeigen die R -Zweige eine völlig glatte Kleinsignalverstärkung, nur in den P -Zweigen existiert noch eine geringfügige Welligkeit (etwa 7% Modulationstiefe). Dies ist eine Folge des erwähnten größeren Abstandes benachbarter Linien in den P -Zweigen gegenüber dem in den R -Zweigen. Auch verschiebt sich das Maximum der Verstärkung mit zunehmendem Druck vom $10P$ -Zweig in den $9R$ -Zweig, weil dort der Abstand benachbarter Linien am kleinsten ist (vgl. Gl.(2)).

Von Taylor et al. wurden bei der Berechnung der Kleinsignalverstärkung nicht nur das reguläre $9.4 \mu\text{m}$ bzw. $10.4 \mu\text{m}$ Band, sondern auch Beiträge durch die sog. 'sequence-bands' (Übergänge $|00^n\rangle \rightarrow |02^n-1\rangle, |10^n-1\rangle, n = 2, 3, 4$) und 'hot-bands' (Übergänge $|01^1 1\rangle \rightarrow |11^1 0\rangle, |01^1 2\rangle \rightarrow |11^1 1\rangle$) berücksichtigt. Denn bei Anregung durch eine elektrische Gasentladung werden die oberen Niveaus dieser Übergänge ebenfalls besetzt (siehe Kap. I.1.2). Ihre Frequenzen liegen zwischen den Linienzentren der regulären Übergänge, so daß ihr Einfluß auf die Verstärkung bei den üblichen CO_2 -Lasern, deren Betriebsdruck ≤ 1 atm ist, keine Rolle spielt. Wie in Abb.3 gezeigt, leisten sie jedoch einen wesentlichen Beitrag zur Kleinsignalverstärkung eines Hochdruck- CO_2 -Lasers.

Zum Schluß sei noch kurz auf die Bedeutung von N_2 im Gasgemisch eingegangen. Wie in Abschnitt I.1.2 gezeigt wird, erfolgt eine bevorzugte Anregung von N_2 -Schwingungen durch Stöße der freien Elektronen in einer elektrischen Gasentladung mit den N_2 -Molekülen.

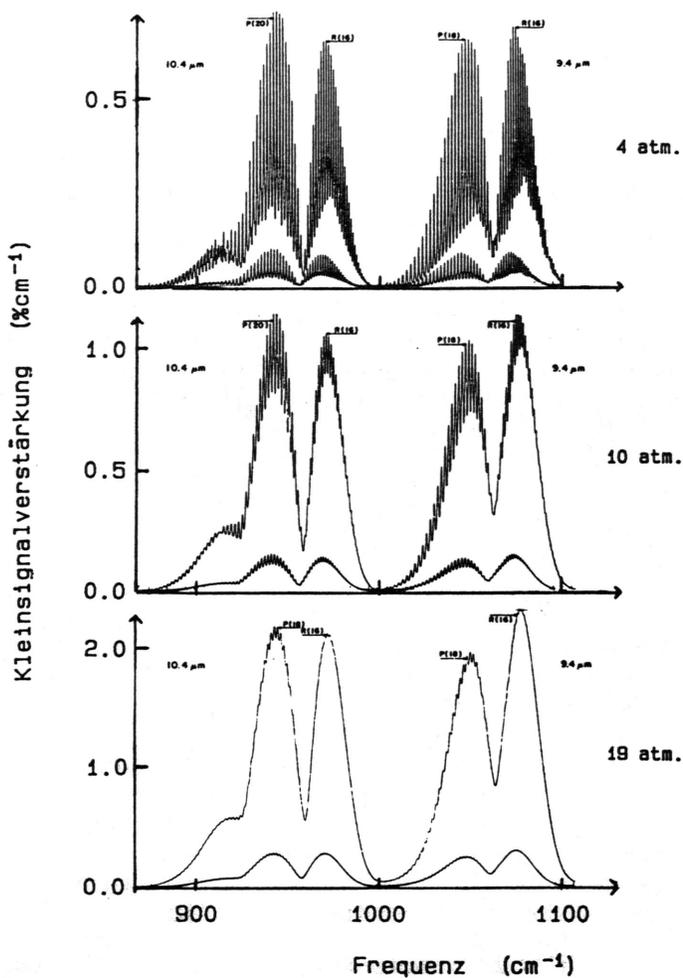
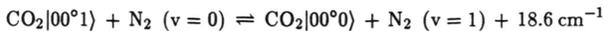


Abb.3 Kleinsignalverstärkung eines Hochdruck-CO₂-Lasers für einen Betriebsdruck von 4, 10 und 19 atm bei einer injizierten Energiedichte $\epsilon = 32 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ und $\frac{E}{p} = 6 \frac{\text{kV}}{\text{cm atm}}$ nach Taylor /47/.
(Die untere Kurve in jedem Spektrum zeigt den Beitrag der 'sequence-bands' zur gesamten Verstärkung.)

Da der erste angeregte Schwingungszustand von N_2 (siehe Abb. 1) energetisch dem $|00^{\circ}1\rangle$ -Zustand des CO_2 -Moleküls sehr nahe liegt, kommt es zu einem Energietransfer zwischen den N_2 -Schwingungen und der ν_3 -Normalschwingung von CO_2 durch Stöße der Form



Der Austausch erfolgt mit einer Rate von $14.7 \cdot 10^6 \frac{1}{\text{sec atm}} / 38/$, d.h. bei einem Partialdruck von 0.9 atm CO_2 mit einer Zeitkonstante $\tau_{N_2, CO_2} = 75 \text{ nsec}$. N_2 hat somit die wichtige Bedeutung als Energielieferant und sorgt im wesentlichen für die Besetzungsinversion des CO_2 -Lasers. In Abschnitt I.1.4.2 wird gezeigt, daß die Zeit t_{auf} , in der sich der Laserpuls nach erfolgter Anregung aufbaut, für den in dieser Arbeit entwickelten Hochdruck- CO_2 -Laser etwa 700 nsec beträgt. Da $\tau_{N_2, CO_2} \ll t_{auf}$, kann bei der Berechnung der Kleinsignalverstärkung nach dem Temperaturmodell davon ausgegangen werden, daß ein Energiegleichgewicht zwischen dem ν_3 -Schwingungssystem von CO_2 und dem N_2 -Schwingungssystem vorhanden ist und damit eine feste Temperatur T_3 existiert.

1.2 Anregung eines Hochdruck- CO_2 -Lasers durch elektrische Gasentladungen

Die Anregung durch eine elektrische Gasentladung ist die am weitesten verbreitete Anregungsmethode für Hochdruck- CO_2 -Laser und wird auch bei dem in dieser Arbeit entwickelten Laser eingesetzt. Ziel dieses Abschnitts ist es, die charakteristischen Parameter einer elektrischen Gasentladung klarzustellen und die Bedingungen zu diskutieren, die für eine effiziente Anregung des Lasergases nötig sind.

Auf eine Diskussion der anderen Anregungstechniken von Hochdruck- CO_2 -Lasern, die in den letzten Jahren erprobt wurden, sei hier verzichtet. Eine Übersicht findet man in /35/. Behandelt werden dort insbesondere durch optisches Pumpen angeregte Hochdruck- CO_2 -Laser /19,20/ und durch Hochfrequenzentladungen angeregte Wellenleiterlaser /48/. In beiden Fällen wurde eine kontinuierliche Abstimbarkeit der Laserfrequenz demonstriert. Die erzielten Ausgangspulsleistungen lagen jedoch nur im Bereich von einigen Kilowatt und sind damit, wie in Abschnitt I.2.1.2 gezeigt wird, zu gering, um stimulierte Ramanemission in CH_3F hervorzurufen. Hierfür werden Pulsleistungen im Megawattbereich benötigt. Diese können nur von durch elektrische Gasentladungen angeregten Hochdruck- CO_2 -Lasern geliefert werden.

1.2.1 Prinzip der elektrischen Gasentladung

Abb. 4 zeigt die prinzipielle Anordnung, die üblicherweise für die Anregung von Lasern durch gepulste elektrische Gasentladungen verwendet wird. Ein Kondensator C wird über einen Ladewiderstand R_L bei offenem Schalter S auf eine Spannung U_C aufgeladen, die über der Durchbruchspannung des Gasgemisches zwischen den Elektroden der Entladungsstrecke liegt. Nach Schließen des Schalters S (realisiert durch eine getriggerte Funkenstrecke) liegt schlagartig die volle Spannung U_C des Kondensators zwischen den Elektroden an. Eine anfänglich geringe Zahl freier Elektronen wächst dann durch Stoßionisationslawinenprozesse (Avalancheprozesse) exponentiell an. Der Strom in der Entladung nimmt zu, der Spannungsabfall an den Elektroden infolge des bekanntlich negativen differentiellen Widerstands der Spannungs-Strom-Charakteristik $U = U(I)$ einer Gasentladung ab. Die Stromzunahme kann jedoch nicht beliebig weit erfolgen, da die endliche Impedanz R_E des Entladekreises - sie wird gebildet aus dem ohmschen Widerstand, der Induktivität und Kapazität von Kabeln und Funkenstrecke - den Strom begrenzt. Es stellt sich ein stabiler Arbeitspunkt ein, der sich aus dem Schnittpunkt der Spannungs-Strom-Charakteristik $U = U(I)$ der Entladungsstrecke mit der Arbeitsgeraden, die von der Kondensatorspannung U_C und der Impedanz R_E bestimmt wird, ergibt (Abb. 4). Die Entladung verhält sich ab diesem Zeitpunkt wie eine Gleichstromgasentladung, wobei jedoch die angelegte Versorgungsspannung U_C infolge der Entladung des Kondensators mit der Zeit abnimmt.

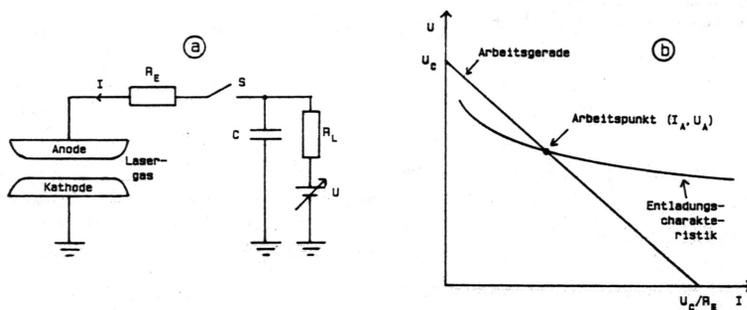


Abb. 4 a) Prinzipielle Anordnung für eine gepulste Gasentladung.
b) Gleichgewichtsbedingung für den Entladestrom I_A .

Werden während des Entladungsprozesses die Verluste an freien Elektronen innerhalb der Entladungsstrecke (z.B. durch Rekombination der Elektronen mit positiv geladenen Ionen, durch Elektroneneinfang durch neutrale Moleküle oder durch Diffusion der Elektronen aus dem Entladungsvolumen) durch die Lawinenprozesse ausgeglichen, spricht man von einer selbständigen Gasentladung (Townsend-Avalanche-Entladung). Muß dagegen der Elektronenverlust durch einen extern kontrollierten Erzeugungsprozeß von Elektronen (z.B. mit Hilfe von Elektronen-, UV- oder Röntgenstrahlung) kompensiert werden, heißt die Entladung unselbständig. Beide Entladungstypen werden für die Anregung von Hochdruck-CO₂-Lasern verwendet und sollen im folgenden kurz diskutiert werden. Dabei wird jedoch nicht auf die grundlegende Theorie von Gasentladungen eingegangen - Näheres dazu findet man in dem Buch von Nasser /49/, sondern vielmehr wird dargelegt, welche elektrischen Feldstärken bei einem gegebenen Gasgemisch CO₂:N₂:He und gegebenem Druck p für die Aufrechterhaltung einer selbständigen Gasentladung nötig sind und wie sich dann die Energie der im elektrischen Feld der Gasentladung beschleunigten Elektronen durch inelastische Stöße auf einzelne Anregungen der im Gasgemisch enthaltenen Moleküle (z.B. auf Schwingungsanregungen, auf elektronische Anregungen etc.) verteilt. Die optimalen Anregungsbedingungen lassen sich daraus ermitteln.

1.2.2 Bedingungen für die effiziente Anregung des Lasergases in einer elektrischen Gasentladung

Ausgangspunkt aller Überlegungen für die optimalen Anregungsbedingungen ist die Geschwindigkeitsverteilungsfunktion $f(v)$ der Elektronen in der Gasentladung. Sie wurde von Lowke et al. /50/ durch numerische Lösung der Boltzmannschen Transportgleichung unter Berücksichtigung von 31 inelastischen Streuprozessen der Elektronen - die wichtigsten sind aus Abb. 6 ersichtlich - für verschiedene Gasmischungen CO₂:N₂:He berechnet. Der fundamentale Parameter, von dem die Verteilungsfunktion abhängt, ist hierbei das Verhältnis $\frac{E}{N}$ von elektrischer Feldstärke innerhalb der Gasentladung und der Teilchendichte N im Gas. (Statt $\frac{E}{N}$ wird oftmals auch die Größe $\frac{E}{p}$ angegeben. Zwischen N und p (p = Gesamtdruck des Gases) gilt annähernd der Zusammenhang $N = \frac{p}{kT}$; für $T = 300$ K erhält man $N = 2.4 \cdot 10^{19} \frac{\text{cm}^{-3}}{\text{atm}} \cdot p / 44/$). Die physikalische Bedeutung der Größe $\frac{E}{N}$ wird anhand des folgenden Beispiels klar: Tritt innerhalb der Gasmischung nur ein inelastischer Stoßprozeß der Elektronen mit dem Wirkungsquerschnitt σ auf, erhält man mit Hilfe der mittleren freien Weglänge $\lambda = \frac{1}{N\sigma}$ der Elektronen die Energie W , die ein Elektron zwischen 2 Stößen aufnimmt, aus der Bedingung $W = eE\lambda = \frac{e}{\sigma} \left(\frac{E}{N} \right)$ (e = Elementarladung). Die Größe $\frac{E}{N}$ ist somit ein Maß für die mittlere Energie der stoßenden Elektronen. Kennt man die Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen (die i.a. keine Maxwell'sche Geschwindigkeits-

verteilung ist /50/) in einer gegebenen Gasmischung bei einem gegebenen Wert $\frac{E}{N}$, lassen sich daraus die wesentlichen Transportkoeffizienten berechnen, die die makroskopischen Eigenschaften der Entladung unter den gegebenen Bedingungen bestimmen. Dies sind vor allem die Driftgeschwindigkeit v_D der Elektronen, der sog. erste Townsendsche Ionisationskoeffizient α , der über $dn_e = \alpha n_e dx$ die Zunahme dn_e einer Elektronenkonzentration n_e durch Stoßionisationsprozesse längs der Wegstrecke dx beschreibt, und der sog. Einfangkoeffizient a , der die Abnahme einer Elektronenkonzentration längs einer Wegstrecke infolge des Elektroneneinfangs durch neutrale Teilchen im Gas beschreibt. (Der wichtigste Einfangprozeß für Elektronen ist der sog. dissoziative Einfang $\text{CO}_2 + e^- \rightarrow \text{CO} + \text{O}^-$ /51/; jedoch treten auch die direkten Einfänge der Form $\text{M} + e^- \rightarrow \text{M}^-$ auf, wobei M Moleküle wie CO_2 , N_2 aber auch Folgeprodukte von Dissoziationsprozessen [siehe Anmerkung am Ende dieses Abschnitts] bezeichnet). Diese Transportkoeffizienten sind durch ihre Abhängigkeit von der Geschwindigkeitsverteilungsfunktion auch eine Funktion von $\frac{E}{N}$. Nach /50/ gilt für die Elektronenkonzentration in der Entladungsstrecke die Kontinuitätsgleichung

$$\frac{dn_e}{dt} = n_e \alpha v_D - n_e a v_D - \gamma n_e^2 + S_{ext} \quad (8)$$

αv_D ist, wie bereits erwähnt, die Ionisierungsrate von neutralen Gasmolekülen durch die Elektronen, $a v_D$ die Einfangrate freier Elektronen durch neutrale Teilchen; γn_e^2 beschreibt die Rekombination von Elektronen und positiven Ionen - die Dichte von Elektronen und positiven Ionen sei als gleich angenommen! -, S_{ext} die Erzeugung von Elektronen im Gas durch externe Einflüsse (z.B. Elektronenstrahl, UV-Strahlung etc.). Im Falle eines konstanten Stromflusses in der Entladung (Arbeitspunkt!) muß aus Gründen der Ladungserhaltung gelten $\frac{dn_e}{dt} = 0$ /50/. Unter Verwendung der Stromdichte $j = n_e e v_D$ erhält man dann für den Fall $S_{ext} = 0$:

$$\frac{j}{N} = \frac{ev_D^2}{\gamma} \left(\frac{\alpha}{N} - \frac{a}{N} \right) \quad (9)$$

Damit eine selbständige Gasentladung aufrechterhalten wird, muß gelten:

$$j \geq 0, \quad \text{d.h.} \quad \frac{\alpha}{N} \geq \frac{a}{N} \quad (10)$$

In Abb. 5 sind die von Lowke et al. /50/ berechneten Größen $\frac{\alpha}{N}$ und $\frac{a}{N}$ in Abhängigkeit von $\frac{E}{N}$ für 3 verschiedene Gasmischungen aufgetragen. Bei der Bestimmung von $\frac{\alpha}{N}$ wurden die direkten Ionisationsprozesse von CO_2 und N_2 , aber auch die sog. Penningionisation /50/ durch angeregte Heliumzustände berücksichtigt. Bei $\frac{a}{N}$ wurde nur der hauptsächliche Elektroneneinfangprozeß, nämlich der dissoziative Einfang $\text{CO}_2 + e^- \rightarrow \text{CO} + \text{O}^-$ berücksichtigt.

Das für die Aufrechterhaltung einer selbständigen Entladung nötige Mindestverhältnis $\frac{E}{N}$ läßt sich damit aus Abb. 5 und Gl.(10) bestimmen. Man erhält für die dort angegebenen

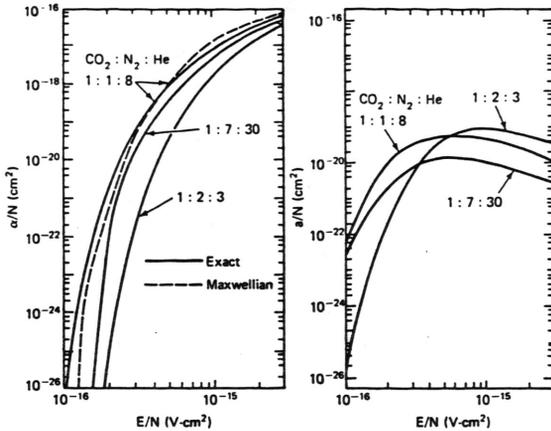


Abb. 5 Abhängigkeit des Ionisierungskoeffizienten α und des Einfangkoeffizienten a von $\frac{E}{N}$ für verschiedene Gasmischungen $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He}$ nach Lowke /50/.

Gasmischungen folgende Werte:

Mischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He}$	$\frac{E}{N}$ [10^{-16}V cm^2]
1:2: 3	4.9
1:1: 8	2.8
1:7:30	2.7

Tab. 3 Mindestverhältnis $\frac{E}{N}$ für Aufrechterhaltung einer selbständigen Gasentladung für verschiedene Gasmischungen.

Mit zunehmender He-Konzentration nimmt somit die nötige Feldstärke E bei einem gegebenen festen Gesamtdruck p ab. Ursache ist, daß die Elektronen kaum inelastische Stoßprozesse an Heliumatomen erleiden (die niederenergetischste Anregung eines He-Atoms liegt bei etwa 20 eV; für ein Gasgemisch 1:7:30 beträgt der Wert der Energieverteilungsfunktion der Elektronen bei 10 eV nur mehr 1% des Maximalwertes bei 2 eV /50/). Die Elektronen besitzen also bei einem gegebenen Gasdruck p im Falle eines hohen He-Anteils eine höhere mittlere Energie als bei geringem He-Anteil. Die Verteilungsfunktion verschiebt sich zu höheren Energien hin. Für die Gasmischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 3:1:60$, die in dem in dieser Arbeit beschriebenen Laser verwendet wurde, kann somit ein nötiges $\frac{E}{N}$ von etwa $2.5 \cdot 10^{-16} \text{V cm}^2$

abgeschätzt werden. Bei einem Druck von 20 atm und einem Elektrodenabstand von 1 cm muß daher die Spannung an den Elektroden im Arbeitspunkt etwa 120 kV betragen.

Aus der Geschwindigkeitsverteilung der Elektronen in der Gasentladung läßt sich auch berechnen, wie sich die Energie der Elektronen durch inelastische Stöße auf einzelne Anregungen der Gasmoleküle verteilt. Abb.6 zeigt das Ergebnis einer solchen Rechnung, die von Nighan et al. /52/ für eine Gasmischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 1:1:8$ durchgeführt wurde. Eingezeichnet sind nur der auf elektronische Anregungen von CO_2 und N_2 , der auf die Anregung der $|00^0 1\rangle$ bzw. $|01^1 0\rangle$ Schwingungszustände von CO_2 sowie der auf die Schwingungszustände $|v\rangle v = 1 \dots 8$ von N_2 übertragene Bruchteil der Elektronenenergie. Bei den Schwingungsanregungen von N_2 ist jeweils der Beitrag der Zustände mit $v = 1 \dots 4$ bzw. $v = 5 \dots 8$ zu einer Kurve zusammengefaßt.

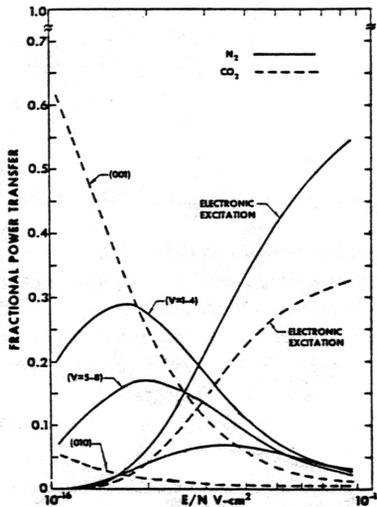


Abb. 6 Bruchteile der an verschiedene Anregungen von CO_2 - und N_2 -Molekülen übertragenen Elektronenenergie als Funktion von $\frac{E}{N}$ für eine Gasmischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 1:1:8$ nach Nighan /52/.

Für $\frac{E}{N} = 2.5 \cdot 10^{-16} \text{ V cm}^2$ werden somit etwa 35% der Elektronenenergie auf die Anregung von N_2 -Schwingungen, 15% auf die Anregung der $|00^0 1\rangle$ -Schwingung von CO_2 ver-

wandt. Für $\frac{E}{N} = 4 \cdot 10^{-16} \text{ V cm}^2$ sind dies nur mehr 20% bzw. 6%; dagegen werden in diesem Fall 55% der Elektronenenergie in elektronische Anregungen umgesetzt. Rechnungen für Gasgemische mit höheren He-Anteilen wurden von Nighan nicht durchgeführt. Da jedoch eine Erhöhung des He-Anteils bei festem Verhältnis $\frac{E}{N}$ eine Erhöhung der mittleren Elektronenenergie bewirkt, muß in diesem Fall eine Verschiebung der Kurven in Abb. 6 zu geringeren $\frac{E}{N}$ -Werten hin erfolgen. Für eine Gasmischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 3:1:60$ und einen Wert $\frac{E}{N} = 2.5 \cdot 10^{-16} \text{ V cm}^2$ läßt sich somit eine Umsetzung der Elektronenenergie in die Anregung der relevanten Schwingungszustände von CO_2 und N_2 von weniger als 20% vermuten. Berücksichtigt man zusätzlich den Quantenwirkungsgrad des CO_2 -Lasers, d.h. das Verhältnis der Anregungsenergie der $|00^0 1\rangle$ -Schwingung zur Energie der Laserübergänge, das etwa 40% beträgt, erhält man für das gegebene Beispiel einen theoretischen Energieeffizienzkoeffizienten von 8%.

Hier wird dann der Vorteil von unselbständigen Gasentladungen sichtbar. In diesem Fall ist in Gl.(8) $S_{ext} \neq 0$. Die Bedingung $\frac{dn_e}{dt} = 0$ kann dann bereits bei geringeren $\frac{E}{N}$ -Werten als bei selbständigen Gasentladungen erfüllt werden. Eine Anpassung von $\frac{E}{N}$ für die optimale Umsetzung der Elektronenenergie in die Anregung der relevanten Molekülschwingungen ist dann möglich.

1.2.3 Vorionisierung bei selbständigen Gasentladungen

Wie zu Beginn dieses Kapitels erwähnt, muß eine gewisse Konzentration freier Elektronen vor dem Zünden einer selbständigen Gasentladung vorhanden sein, damit der Entladungsprozeß nach Anlegen der Kondensatorspannung U_C an die Elektroden auch einsetzt. Ist diese Konzentration zu gering oder besteht eine inhomogene Verteilung der freien Elektronen im Entladungsvolumen, bildet sich - vor allem bei hohen Gasdrücken und dementsprechend hohen Spannungen an den Elektroden - keine homogene Entladung im gesamten Volumen zwischen den Elektroden aus, was für eine effiziente Anregung des Lasergases erforderlich wäre, sondern es kommt zur Ausbildung einer sog. Bogenentladung /53/. Die mikroskopischen Prozesse, die zum Auftreten einer solchen Bogenentladung führen, sind relativ kompliziert und sollen hier nicht näher diskutiert werden. Eine ausgezeichnete Behandlung dieser Problematik findet man in /53,54/. Es sei nur erwähnt, daß sich bei einer Bogenentladung ein eng begrenzter Kanal (mit einem typischen Durchmesser von einigen mm) aus Plasma, d.h. einem Gemisch von Elektronen und positiven Ionen, bildet, der die Elektroden kurzschließt. Die gesamte Ladung des Kondensators fließt über diesen Plasmakanal ab. Eine Anregung der Gasmoleküle erfolgt deswegen nur innerhalb des Kanals. Auch sind Bogenentladungen wegen ihrer zerstörerischen Wirkung auf die Elektroden wenig wünschenswert.

Bogenentladungen können vermieden werden, wenn vor dem Zünden der Entladung für eine

genügend große und homogen im Entladungsvolumen verteilte Konzentration von freien Elektronen gesorgt wird. Nach Karnyushiin /55/ muß für die Mindestkonzentration n_{eo} dieser Elektronen bei einem $\frac{E}{N}$ -Wert von $3 \cdot 10^{-16}$ V cm² gelten:

$$n_{eo} \geq 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ atm}^{-3} \cdot p^3 \quad (11)$$

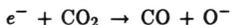
Für $p = 20$ atm ergibt dies $n_{eo} \geq 10^8 \text{ cm}^{-3}$.

Eine erprobte Methode, Elektronenkonzentrationen dieser Größenordnung zu erzeugen, ist die Vorionisierung des Gases im Raum zwischen den Elektroden mit Hilfe von UV-Strahlung. Diese kann beispielsweise durch das Zünden einer Reihe von zusätzlichen Funkenstrecken, die parallel zu den Elektroden an beiden Seiten des Entladungsvolumens angebracht sind, erzeugt werden. McKen et al. /56/ haben gezeigt, daß hierbei infolge der Rekombination von freien Elektronen mit ionisierten N₂-Molekülen in den Funkenstrecken harte UV-Strahlung im Bereich von 100 nm - 240 nm emittiert wird. Die Effizienz der Vorionisierung durch UV-Strahlung wird jedoch dadurch begrenzt, daß Strahlung der Wellenlänge ≤ 170 nm durch CO₂-Moleküle stark absorbiert wird. (Die Eindringtiefe bei einem Partialdruck von 0.9 atm für CO₂ beträgt weniger als 1 mm /57/). Nur die niederenergetischeren UV-Photonen können demnach merklich ins Entladungsvolumen eindringen. Ihre Energie reicht jedoch für die direkte Ionisierung der Moleküle im Gasgemisch nicht mehr aus /38/, die Erzeugung freier Elektronen erfolgt nunmehr über die Ionisierung von CO₂, N₂ oder He durch Zwei- oder Mehrphotonenprozesse. Erhöhen läßt sich die Ionisierungsrate jedoch, wenn man Moleküle mit geringer Ionisationsenergie dem Lasergasgemisch beimischt. Besonders geeignet sind Trimethylamin oder Tripropylamin, die durch Strahlung der Wellenlänge ≥ 170 nm bereits ionisiert werden können.

Die Methode der UV-Vorionisierung mittels Funkenstrecken wurde auch bei dem in dieser Arbeit entwickelten Hochdruck-CO₂-Laser verwendet. (Die erwähnte besondere Anordnung und ihre Vorteile gegenüber Anordnungen, wie sie z.B. von Taylor et al. /47/ beschrieben wurden, werden im folgenden Abschnitt diskutiert.) Einen Überblick über die verschiedensten technischen Ausführungen von UV-vorionisierten Hochdruck-CO₂-Lasern mit selbständiger Gasentladung findet man in /35,37,38/. Vor kurzem wurde von Wan et al. auch eine selbständige Gasentladung in Hochdruck-CO₂-Lasern mit einer Elektronenstrahlvorionisierung demonstriert /58/. Mit Elektronenstrahlvorionisierung erhält man leichter die gewünschte Konzentration freier Elektronen im Entladungsvolumen als mit UV-Vorionisierung. Absorptionsverluste, wie sie bei letzterer diskutiert wurden, treten nicht auf. Dafür steigt der technische Aufwand beträchtlich /58/. Konkrete Daten, wie beispielsweise Anordnung der UV-Vorionisierung, $\frac{E}{N}$ -Werte, injizierte Energiedichte ϵ und erzielte Ausgangspulsenergien von 3 repräsentativen Beispielen von UV-vorionisierten Hochdruck-CO₂-Lasern mit selbständiger Gasentladung sind in Abschnitt I.1.5 zu finden. Dort wird auch ein Vergleich mit den Daten des in dieser Arbeit entwickelten Lasers durchgeführt.

Auf die Diskussion der Eigenschaften, der Vor- und Nachteile von Lasern, die durch nicht-selbständige Gasentladungen angeregt werden, sei hier verzichtet. Informationen finden sich in /21-24/.

Anmerkung: Ein Problem, das bei durch elektrische Gasentladungen angeregten CO₂-Lasern auftritt, sei noch angeschnitten, nämlich das Problem der Dissoziation von CO₂-Molekülen in der elektrischen Entladung aufgrund der Prozesse



Sie machen den langfristigen Betrieb von 'sealed off' -Hochdruck-CO₂-Lasern unmöglich. Zum einen wird durch die Dissoziation die Konzentration der CO₂-Moleküle in der Gas Mischung verringert. Die Ausgangspulsenergie wird daher bei fester injizierter Energiedichte ϵ mit zunehmender Zahl der Entladungen abnehmen. Zum anderen entstehen aus den Komponenten CO und O durch Zwei- oder Dreiteilchenstöße untereinander, mit N₂-Molekülen oder Elektronen diverse Folgeprodukte wie O₂, N₂O oder NO. Der dissoziative Einfang freier Elektronen durch diese Folgeprodukte ist um einen Faktor 10 - 100 wahrscheinlicher als der dissoziative Einfang durch CO₂ /59/. Eine zunehmende Konzentration der Folgeprodukte bewirkt damit einen verstärkten Einfang der durch die UV-Vorionisierung erzeugten freien Elektronen. Die Wahrscheinlichkeit für Bogenentladungen nimmt zu. Eine Rückgewinnung von CO₂ aus CO und O₂ ist jedoch möglich, wenn man das Gasgemisch durch einen kommerziellen Platin- oder Hopkalit-Katalysator /60/, der sich innerhalb des geschlossenen Systems befindet, pumpt.

1.3 Aufbau des Hochdruck-CO₂-Lasers

Der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Hochdruck-CO₂-Laser /61,62/ enthält zwei wesentliche Neuerungen gegenüber den bisher veröffentlichten Konstruktionen von UV-vorionisierten Hochdruck-CO₂-Lasern mit selbständiger Gasentladung /17,25-29,63/.

- 1) Eine neuartige Anordnung für die UV-Vorionisierung ermöglichte eine besonders einfache und kompakte Laserkonstruktion und einen dauerhaften Betrieb ohne Bogenentladungen auch bei Gasdrücken $p \geq 20$ atm. (Dies sind - nebenbei bemerkt - die höchsten Gasdrücke, die bei UV-vorionisierten Hochdruck-CO₂-Lasern verwendet wurden. So betrug der typische Betriebsdruck von Lasern, bei denen eine kontinuierliche Abstimmöglichkeit demonstriert wurde, 10-12 atm /17,27,63/. Der höchste Betriebsdruck $p = 19$ atm wird von Taylor et al. /47/ berichtet; Emissionscharakteristiken bei diesem Druck wurden von ihnen jedoch nicht veröffentlicht.)

- 2) Die Verwendung von 2 Entladungsstrecken ergab eine deutliche Ausweitung des Abstimmereichs und eine deutliche Erhöhung der Ausgangspulsenergie bei gleichzeitiger Reduktion der Versorgungsspannung gegenüber einem Betrieb mit nur einer Entladungsstrecke, wie er bisher üblich war.

Ziel dieses Abschnitts ist es nun, die wesentlichen technischen Bauteile dieses Lasers zu beschreiben.

1.3.1 Elektroden

Eine wichtige Voraussetzung für homogene elektrische Entladungen ist neben einer genügend starken Vorionisierung natürlich eine Elektrodenform, die zu einer möglichst homogenen elektrischen Feldverteilung im Entladungsvolumen führt (sog. 'uniform field'-Elektroden). Sehr häufig wird ein Rogowski-Profil /37/ für die Elektrodenform gewählt. Dieses besitzt den Nachteil, daß die Breite der Elektroden viel größer als ihr Abstand sein muß, damit die elektrische Feldverteilung zwischen den Elektroden eine gute Homogenität besitzt /37/. Der Platzbedarf für die Elektroden wird sehr groß. Für den hier beschriebenen Laser wurde daher ein anderes Profil gewählt, das von Chang /64/ berechnet wurde und sehr kompakte Elektrodenformen gestattet.

Im folgenden mögen x, y die kartesischen Koordinaten in der Querschnittsebene der Elektroden bezeichnen, wobei der Nullpunkt in der Mitte zwischen beiden Elektroden liegen möge (vgl. Abb. 8). Wie aus der Funktionentheorie bekannt ist, erfüllen bei jeder umkehrbaren konformen Abbildung

$$f: C \rightarrow C : f(x + iy) = u(x, y) + iv(x, y)$$

die reellen Funktionen $u, v: \mathbb{R}^2 \rightarrow \mathbb{R}$ die Laplacegleichung der Elektrostatik. $v(x, y)$ läßt sich daher beispielsweise als das elektrostatische Potential am Ort (x, y) und $u(x, y)$ als die zugehörige Flußfunktion an diesem Ort interpretieren /64/. Damit wird durch die Vorgabe einer beliebigen konformen Abbildung f ein Potential und dadurch eine elektrische Feldverteilung $\vec{E}(x, y)$ in der Ebene definiert. Statt f kann man sich auch die Umkehrabbildung $x + iy = f^{-1}(u + iv)$ vorgeben.

Chang /64/ hat folgende konformale Abbildung vorgeschlagen:

$$x + iy = (u + iv) + k \sinh(u + iv) \quad k \in \mathbb{R}, k > 0 \quad (12)$$

Da die Elektrodenoberfläche eine Äquipotentialfläche ist, muß hier für sie gelten: $v(x, y) = v_0 = \text{konst.}$ Damit wird das Elektrodenprofil durch die folgende Kurve beschrieben:

$$\begin{aligned} x &= u + k \cos v_0 \sinh u \\ y &= v_0 + k \sin v_0 \cosh u \end{aligned} \quad u \in \mathbb{R} \text{ bel.} \quad (13)$$

Nach Chang muß für eine möglichst flache Verteilung des Betrags E des elektrischen Felds in der Mitte der Elektroden (d.h. bei $u = 0$) gelten: $\frac{\partial E^{-2}}{\partial u^2} \Big|_{u=0} = 0$. Da $E^{-2} = \left| \frac{\partial(x+iy)}{\partial(u+iv)} \right|^2$, erhält man die Bedingung

$$v_0 = \arccos(-k) \quad (14)$$

In Abb. 7 sind die normierten Profile im 1. Quadranten für drei verschiedene k -Werte aufgetragen. Wie man dort sieht, bestimmt der k -Wert die Ausdehnung der Elektroden. Um den k -Wert festzulegen, gibt man sich ein Intervall $[-x_m, x_m]$ (dieses entspricht eindeutig einem Intervall $[-u_m, u_m]$) um das Zentrum der Elektroden bei $x = 0$ (bzw. $u = 0$) vor, in dem die relative Änderung des Betrags des elektrischen Feldes einen gewünschten Wert δ_m nicht überschreiten darf, d.h.

$$\left| \frac{E(0) - E(u)}{E(0)} \right| \leq \delta_m \quad \forall u \in [-u_m, u_m] \quad (15)$$

Chang gibt folgende Näherungsformel an, um den k -Wert aus den gewünschten Größen x_m, δ_m und y_0 (= Höhe der Elektrode bei $x = 0$; diese entspricht dem halben gewünschten Abstand der beiden Elektroden) zu berechnen.

$$\left(\frac{\sqrt[3]{k}(1 - 0.64\sqrt[3]{k})}{1 - 0.64\sqrt[3]{k} - 0.36\sqrt[3]{k^2}} \right)^6 \left(\cosh \frac{\pi x_m}{2 y_0} - 1 \right)^2 = \frac{1}{(1 - \delta_m)^2} - 1 \quad (16)$$

Für $y_0 = 0.5$ cm, $x_m = 0.55$ cm und $\delta_m = 1\%$ erhält man $k = 0.06$. Dies entspricht der Kurve B in Abb. 7.

Ein etwas kompakteres Elektrodenprofil erhält man, wenn man statt Gl.(14) $\cos v_0 < -k$ wählt. Dann ist die Verteilung $E(u)$ nicht mehr maximal flach bei $u = 0$ und besitzt lokale Maxima bei $u_d = \pm \operatorname{arcosh} \left(-\frac{\cos v_0}{k} \right)$; bei $u = 0$ ist ein lokales Minimum. Definiert man $\delta_d = \left| \frac{E(u_d) - E(0)}{E(0)} \right|$, gilt der Zusammenhang

$$(1 + \delta_d)^2 - 1 = \frac{k + \cos v_0}{(1 - k^2)(1 - \cos^2 v_0)} \quad (17)$$

Solange $\delta_d < \delta_m$ ist, gilt nach wie vor für $|u| \leq |u_d|$ die Bedingung (15), für $\delta_d \rightarrow 0$ ergibt sich wieder (14). Um ein solches Profil zu entwerfen, muß man sich also noch δ_d vorgeben. Damit läßt sich aus (17) v_0 bestimmen. Mittels (13) erhält man das Elektrodenprofil. Im vorliegenden Fall wurde $\delta_d = 0.5\%$ gewählt. Man erhält $v_0 = 1.73$, $u_d = 1.62$ und $x_d = 0.43$ cm. Das resultierende Profil ist die gestrichelte Kurve B' in Abb. 7.

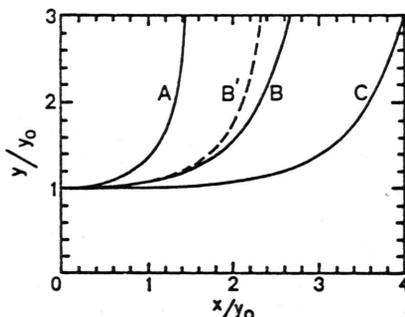


Abb. 7 Normiertes Elektrodenprofil nach Chang /64/ für 3 verschiedene k -Werte: $k = 0.2$ (A), $k = 0.06$ (B), $k = 0.01$ (C).

Die Kurve B' ist das mit $\delta_d = 0.5\%$ kompaktifizierte Profil von B.

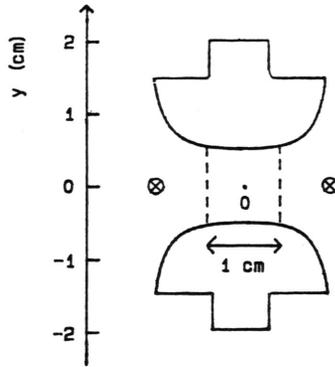
Die zur Berechnung des Elektrodenprofils verwendeten Parameter seien noch einmal kurz zusammengestellt:

$$\left. \begin{array}{l} \delta_m = 1\% \quad 2y_0 = 1 \text{ cm} \\ \delta_d = 0.5\% \quad 2x_m = 1.1 \text{ cm} \end{array} \right\} k = 0.06 \quad v_0 = 1.73 \quad 2x_d = 0.86 \text{ cm}$$

Als Elektrodenmaterial wurde Aluminium gewählt. Die mechanische Bearbeitung erfolgte mit einem speziell angefertigten, dem Elektrodenprofil entsprechenden Fräser. Die Länge der Elektroden betrug 40 cm, die Dicke 1 cm ($= 2y_0$), die entsprechende Ausdehnung in x -Richtung 1.18 cm ($= 2.36y_0$; siehe Abb. 7). An den Enden wurden die Elektroden mittels des Fräsers mit einem Radius von 1.18 cm entsprechend der Ausdehnung der Elektroden rundgefräst. (Man beachte, daß die oben skizzierte Berechnung des Elektrodenprofils ja nur das zweidimensionale Profil in der Querschnittsfläche der Elektroden war.) Sehr wichtig war es, beim Einbau eines Elektrodenpaares darauf zu achten, daß der Abstand der Elektroden auf die ganze Länge auf mindestens 0.1 mm genau war, da sonst die Wahrscheinlichkeit für Bogenentladungen zunahm. Aus dem gleichen Grund erwies es sich als vorteilhaft, die Elektroden sandzustrahlen statt zu polieren.

In Abb. 8 ist noch einmal maßstabsgerecht der Querschnitt durch ein Elektrodenpaar gezeigt. Eingezeichnet ist auch der Querschnitt des beobachteten Entladungsvolumens. Er beträgt etwa $1 \times 1 \text{ cm}^2$. Dies ist der Bereich, innerhalb dem $\left| \frac{E-E(0)}{E(0)} \right| \leq 1\%$ ist. Das gesamte Entladungsvolumen einer Entladungsstrecke, von denen zwei im Laser enthalten waren, hat somit die Größe $1 \times 1 \times 40 \text{ cm}^3$.

Abb. 8
 Querschnitt durch ein Elektrodenpaar mit
 angedeutetem Entladungsvolumen. Die
 Markierungen \otimes kennzeichnen die Posi-
 tion der Vorionisierungsfunkenstrecken.



1.3.2 Vorionisierung

Die Vorionisierung des Lasergasgemisches erfolgte mit Hilfe von Funkenstrecken, die zu beiden Seiten des Entladungsvolumens in der Mitte zwischen beiden Elektroden angebracht waren. Jede Funkenstrecke bestand aus einem Paar von zugespitzten Wolframnadeln (Länge 5 mm, \varnothing 0.5 mm) mit einem Abstand von 2 mm. Der seitliche Abstand von der Mitte des Entladungsvolumens war 1.2 cm (vgl. Abb. 8). Die Wolframnadeln wurden von Messingplättchen gehalten, die ihrerseits auf seitlich des Entladungsvolumens angebrachten Plexiglasblöcken montiert waren. Eine Prinzipskizze des Aufbaus zeigt Abb. 9. Die Anzahl der Funkenstrecken auf den beiden Seiten des Entladungsvolumens betrug 16 bzw. 17 Stück. Die beiden Reihen waren leicht zueinander versetzt, um eine möglichst homogene Ausleuchtung des Entladungsvolumens mit UV-Strahlung zu erreichen.

Das elektrische Anschlußschema zeigt Abb. 10. Alle Funkenstrecken waren parallel geschaltet und über Kondensatoren mit den Elektroden der Hauptentladungsstrecke gekoppelt. Bei den verwendeten Kondensatoren handelte es sich um Keramik Kondensatoren der Kapazität 140 pF und einer Spannungsfestigkeit von 40 kV. Da innerhalb des Kreises einer Funkenstrecke 4 seriell geschaltete Kondensatoren enthalten waren, konnten Spannungen bis maximal 160 kV an den Hauptelektroden anliegen, ohne daß die Durchschlagspannung der Kondensatoren überschritten wurde. Aufgabe der Kondensatoren war es, zu verhindern, daß eine Vorionisierungsfunkenstrecke den gesamten Entladekreis kurzschließt. Die benachbarten Nadeln von 2 nebeneinanderliegenden Funkenstrecken waren, wie aus Abb. 9 und 10 ersichtlich, auf gleichem Potential, um einen Überschlag zwischen den nebeneinanderliegen-

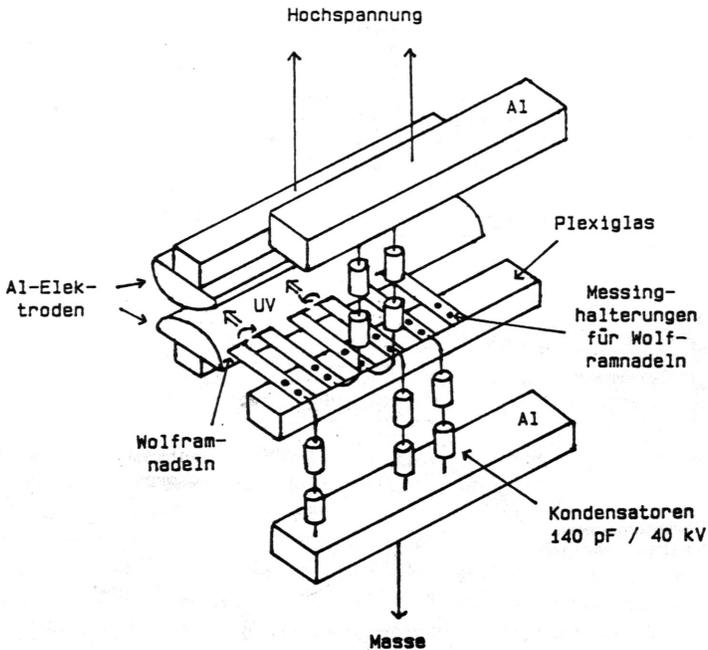


Abb. 9 Prinzipskizze für die Anordnung der Vorionisierungsfunkkenstrecken auf einer Seite des Entladungsvolumens.

den Funkenstrecken zu vermeiden.

Die Vorteile der Parallelschaltung der Funkenstrecken sind:

- 1) Die Induktivität des Vorionisierungsschaltkreises wird reduziert; man erhält kürzere und stärkere Strompulse über die Funkenstrecken und damit kürzere und intensivere UV-Strahlungspulse als bei einer seriellen Schaltung der Funkenstrecken.
- 2) Die Vorionisierung erfolgt nahezu synchron an allen Orten innerhalb des Entladungsvolumens.

Der letzte Punkt ist die Grundvoraussetzung dafür, daß der Vorionisierungskreis direkt parallel zum Hauptentladungskreis über die Elektroden gelegt werden kann. Die Ursache ist folgende: Noch während sich die Hochspannung (nach dem Zünden des im folgenden Abschnitt beschriebenen Marxgenerators) an den Hauptelektroden aufbaut, beginnen die Fun-

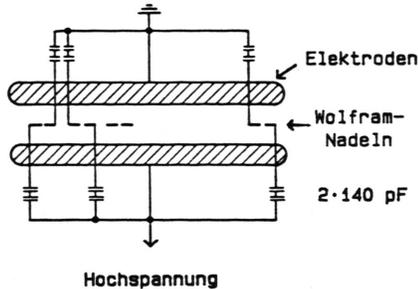


Abb. 10 Elektrisches Anschlußschema für die Vorionisierungsstrecken auf einer Seite des Entladungsvolumens.

kenstrecken für die Vorionisierung infolge des dort existierenden starken elektrischen Feldes (zugespitze Nadeln!) zu zünden. UV-Strahlung wird emittiert und sorgt für die Erzeugung freier Elektronen im Entladungsvolumen. Infolge der synchronen Erzeugung dieser Elektronen an allen Orten im Volumen zwischen den Elektroden wächst dort die Konzentration der Elektronen gleichmäßig an, bis sie genügend hoch ist, damit die Hauptentladung homogen über das ganze Volumen zündet. (Bei nichtsynchrone Erzeugung würden an einem Ort früher als an anderen Orten freie Elektronen produziert. Wie in Abschnitt I.1.2.3 diskutiert, wären Bogenentladungen die Folge.)

Dadurch, daß der gesamte Vorionisierungskreis parallel zum Hauptentladungskreis liegt, läßt er sich komplett innerhalb der Hochdruckkammer (vgl. Abschnitt I.1.3.4) unterbringen. Man erreicht damit eine sehr kompakte Laserkonstruktion, die auch nur eine Hochspannungsversorgung benötigt. Die hier beschriebene Anordnung stellt damit eine entscheidende Vereinfachung gegenüber den bisher veröffentlichten Vorionisierungsanordnungen dar /16,29,63/. Dort war nämlich die Reihe der Funkenstrecken auf jeder Seite des Entladungsvolumens generell seriell geschaltet. Die Folge war neben einer relativ hohen Induktivität des Vorionisierungskreises eine nichtsynchrone Vorionisierung der einzelnen Teile des Gasvolumens zwischen den Elektroden infolge der Laufzeit der Entladung längs der Funkenstrecken. Die Zeit, bis eine gleichmäßige Konzentration freier Elektronen aufgebaut war, mußte daher zur Vermeidung von Bogenentladungen abgewartet werden. Aus diesem Grund wurden 2 getrennte Hochspannungsversorgungskreise für die Vorionisierung und die Hauptentladung benutzt, die zeitlich gegeneinander verzögert (typisch einige $\mu\text{sec} / 16,63/$) gezündet wurden. Der experimentelle Aufwand war also bei weitem größer als bei dem hier beschriebenen Laser.

1.3.3 Hochspannungsversorgung

Die Hochspannungspulse wurden von einem zweistufigen Marxgenerator geliefert, dessen elektrische Schaltung (Spannungsverdopplerschaltung nach Marx-Goodlet) in Abb.11 gezeigt ist. Dabei sei zunächst nur eine Entladungsstrecke im Laser betrachtet. Das Grundprinzip des Marxgenerators ist leicht erklärt. Es besteht in der parallelen Aufladung der beiden Kondensatoren C über die Widerstände R auf die Spannung U , die sich dann, durch Funkenstrecken seriell geschaltet, über die Elektroden des Lasers entladen. Infolge der seriellen Schaltung der Kondensatoren liegt damit zu Beginn des Entladungsprozesses eine Spannung vom Betrag $2U$ an den Laserelektroden an.

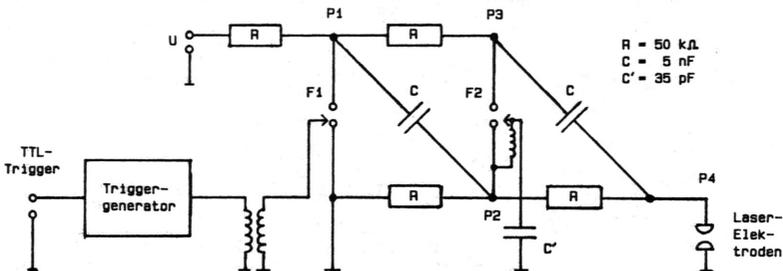


Abb.11 Schaltung des zweistufigen Marxgenerators zur Versorgung einer Entladungsstrecke.

Dieser Vorgang sei nun etwas genauer betrachtet: Vor der Zündung der Funkenstrecke $F1$, die zum Zeitpunkt t_0 erfolgen möge, hat die Spannung an den Punkten $P1$ und $P3$ den Wert U ; die Punkte $P2$ und $P4$ liegen auf Massepotential. $F1$ wird mit Hilfe eines Triggerelements (TR 050 der Fa. Tachisto Inc.) gezündet, der auf einen TTL-Triggerpuls hin einen -200 V-Puls mit einer Energie von 50 mJ und einer Anstiegszeit von 250 nsec liefert. Dieser Puls wird über Luftspulen auf -20 kV hochtransformiert und über eine Zündkerze an die Hilfelektrode der Funkenstrecke gegeben. Letztere schaltet daraufhin durch und legt den Punkt $P1$ schlagartig auf Masse. Die Spannung am Punkt $P2$ beträgt daher zum Zeitpunkt t_0 $-U$ (man vergleiche die Reaktion eines RC -Hochpasses auf das Anlegen einer Rechteckspannung /65/). Zwischen den Elektroden der Funkenstrecke $F2$ liegt somit eine Spannungsdifferenz vom Betrag $2U$. Die Durchbruchspannung U_D dieser Funkenstrecke, die durch den Gasdruck

in ihrem Inneren geregelt werden kann, ist so eingestellt, daß $U < U_D < 2U$ gilt. F2 schaltet also ebenfalls zum Zeitpunkt t_0 , so daß an der hochspannungsseitigen Elektrode des Lasers (Punkt P4) die Spannung $-2U$ anliegt. (Sie wird daher als Kathode bezeichnet.) Um ein zuverlässiges Zünden der Funkenstrecke F2 zu garantieren, war deren Hilfelektrode über einen Kondensator C' (realisiert aus 4 seriell geschalteten Keramik Kondensatoren von je 140 pF) mit Masse und über eine Spule (~ 20 Windungen, \varnothing 1.5 cm, Länge 10 cm) mit der Kathode der Funkenstrecke verbunden. Diese Schaltung hält zum Zeitpunkt t_0 die Hilfelektrode noch kurzzeitig auf Massepotential, wenn an der Kathode von F2 bereits die Spannung $-U$ anliegt. Die daraufhin erfolgende Entladung zwischen Hilfelektrode und Kathode garantiert das Durchschalten von F2.

Die Erweiterung des Marxgenerators für die Versorgung von 2 Entladungsstrecken zeigt Abb. 12. Die Verwendung gemeinsamer Funkenstrecken für die beiden Entladekreise gewährleistet ein synchrones Zünden der beiden Entladungsstrecken des Lasers.

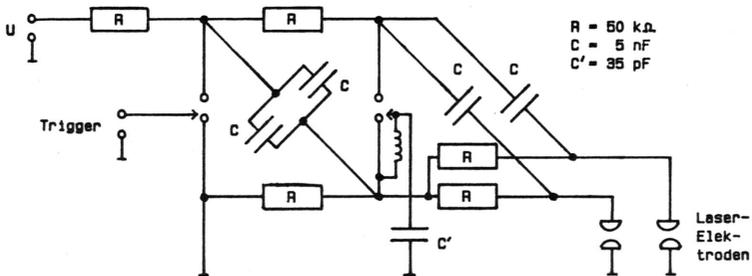


Abb. 12 Erweiterung des Marxgenerators zur Versorgung von 2 Entladungsstrecken.

Die Kapazität C der Kondensatoren betrug 5 nF. Sie wurde durch 5 parallel geschaltete 1 nF-Kondensatoren realisiert, die ihrerseits aus 2 seriell geschalteten 2 nF-Keramik Kondensatoren mit der Durchbruchspannung 40 kV bestanden. Durch die serielle Schaltung war es möglich, den Marxgenerator mit einer Spannung von 80 kV zu laden, ohne daß die Durchbruchspannung der Kondensatoren überschritten wurde. Die Widerstände R waren aus je 5 seriell geschalteten Hochspannungskohlewiderständen mit dem Wert 10 k Ω (Durchbruchspannung ebenfalls 40 kV) aufgebaut. Die Funkenstrecken (SG 501 der Fa. Tachisto Inc.) waren mit N_2 -Gas unter einem Druck von 3.5 atm gefüllt. Die Durchbruchspannung U_D betrug in diesem Fall etwa 75 kV; für ein ordnungsgemäßes Schalten war eine Mindestspannung von

30 kV zwischen den Elektroden der Funkenstrecke erforderlich. Während des Betriebs wurde der Stickstoff in den Funkenstrecken mit einer Rate von etwa 50 l/h ausgetauscht, um die Entladungsprodukte (z.B. N_2^+ -Ionen) zu entfernen.

Als Hochspannungsquelle wurde ein DC-Hochspannungsnetzgerät 0-100 kV/0-5 mA (HNC 100000 der Fa. Heinzinger) verwendet. Der maximale Strom von 5 mA, den dieses Netzteil liefern konnte, war der begrenzende Faktor für die Wiederholrate der Laserentladungen. Bei der Gesamtkapazität von 20 nF des Marxgenerators und einer Ladespannung von 60 kV dauert der Ladevorgang bei einem maximalen Strom von 5 mA etwa $\frac{1}{4}$ sec. Die maximale Wiederholrate beträgt somit 4 Hz. In der Praxis wurden jedoch maximal 2 Hz erreicht. Typische Wiederholfrequenzen lagen allerdings bei 0.5 Hz, um die Belastung der einzelnen Komponenten geringer zu halten und ein Aufheizen des Gasgemisches zu vermeiden.

Der gesamte Marxgenerator war in einem Edelstahlbehälter untergebracht, der zur elektrischen Isolation mit N_2 -Gas unter einem Druck von 6 atm gefüllt war. Bei der elektrischen Verschaltung wurde darauf geachtet, möglichst breite Bandleiter zu verwenden, um die Induktivität des Schaltkreises so gering wie möglich zu halten. Aus dem gleichen Grund bestanden die Verbindungen vom Marxgenerator zu den beiden Entladungsstrecken des Lasers aus je 4 parallel geschalteten Kabeln (vgl. Abb. 14). Als Kabel wurden dabei Koaxialkabel des Typs RG-213/U (garantierte Spannungsfestigkeit 70 kV) verwendet. Die Masseverbindung zwischen Marxgenerator und Druckkammer des Lasers erfolgte über Cu-Gewebebänder, die über die Koaxialkabel gezogen waren.

Zum Schluß sei noch bemerkt, daß der tatsächliche Betrag der Ausgangsspannung des Marxgenerators sogar höher als $2U$ ist. Die Ursache liegt in der Induktivität L des Marxgenerators bzw. der Verbindungskabel und der Kapazität C' dieser Kabel sowie der Laserentladungsstrecken selbst. Man erhält das vereinfachte Ersatzschaltbild in Abb. 13. C ist die Kapazität des Marxgenerators nach dem Zünden. Die Spannung U_K an den Kathoden des Lasers nach dem Zünden des Marxgenerators zum Zeitpunkt $t = 0$, der mit der Spannung U geladen wird, bis zum Einsetzen der Entladung läßt sich nach folgender Formel berechnen [57]:

$$U_K(t) = \frac{2U C}{C + C'} \left(1 - \cos\left(\sqrt{\frac{C + C'}{L C C'}} t\right) \right) \quad (18)$$

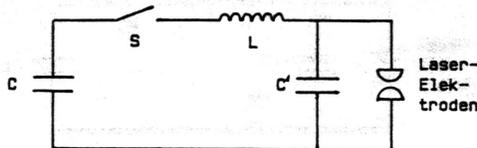


Abb. 13
Ersatzschaltbild der
Entladungsstrecke.

Die maximale Spannung beträgt somit $2U \frac{2C}{C+C'}$. C' läßt sich bei der verwendeten Anordnung zu etwa 2 nF abschätzen, so daß die maximale Spannung an den Kathoden des Lasers den Wert 2.8 U annimmt. Typische Versorgungsspannungen des Marxgenerators waren 60 kV (siehe Abschnitt I.1.4). Die Spannung an den Kathoden erreichte damit 170 kV und war nach der Diskussion in Abschnitt I.1.2.2 groß genug, um eine selbständige Gasentladung für ein Gasgemisch $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He}=3:1:60$ bei einem Druck vom 20 atm aufrechtzuerhalten. Die im Marxgenerator gespeicherte Energie betrug in diesem Fall 36 J.

1.3.4. Mechanischer Aufbau

Eine Skizze des mechanischen Aufbaus zeigt Abb.14. Die Druckkammer bestand aus 2 Edelstahlzylindern mit einem Durchmesser von 40 cm, einer Länge von 60 cm und einer Wandstärke von 9.5 mm, an deren Enden jeweils Edelstahlflansche aufgeschweißt waren. Die beiden miteinander verschraubten Zylinder waren an ihren offenen Enden mit Aluminiumplatten der Dicke 5 cm verschlossen. Alle Dichtungen erfolgten mit O-Ringen. Die so gebildete Kammer war druckfest bis über 25 atm.

Der optische Zugang zur Druckkammer wurde durch NaCl-Brewsterfenster ermöglicht. Diese Fenster aus NaCl-Einkristallen (Fa. Korth) mit einem Durchmesser von 35 mm und einer Dicke von 10 mm waren mit einem handelsüblichen Plastikkleber auf einen Aluminiumeinsatz aufgeklebt, der zur Strahlführung eine Bohrung von 1 cm Durchmesser besaß und der auswechselbar von außen auf die seitlichen Aluminiumplatten geschraubt war. Auf diese Weise war ein problemloser Fensterwechsel möglich, ohne daß die Druckkammer zerlegt werden mußte. Die Fenster waren gegen Feuchtigkeit von außen durch mit Kieselgel gefüllte Aufsätze geschützt.

Für die Hochspannungsdurchführungen (in Abb.14 sind der Übersichtlichkeit halber nur eine statt der tatsächlich jeweils vier pro Entladungsstrecke gezeichnet) wurden verschiedene Plastikmaterialien getestet: Nylon, Delrin und rotes PVC. Letzteres erwies sich als den Beanspruchungen am ehesten gewachsen. Bei den anderen Materialien traten infolge der mit den Entladungen verbundenen mechanischen Verspannungen im Laufe der Zeit Materialermüdungen auf, so daß Überschlänge der Hochspannung an die Laserwand möglich waren. Dennoch traten diese Probleme, wenn auch weit weniger häufig, auch bei rotem PVC auf.

Die Elektroden und die zugehörigen Vorionisierungsstrecken einer jeden Entladungsstrecke waren inclusive der Kopplungskondensatoren auf einen eigenen Träger montiert, der ebenfalls komplett austauschbar war. Der elektrische Kontakt zwischen den Kathoden und den Hochspannungszuführungen erfolgte über jeweils 16 gehärtete Blattfedern aus Stahl (siehe Abb.14). Das gleiche galt für den Kontakt zwischen den Anoden und der Laserwand, die

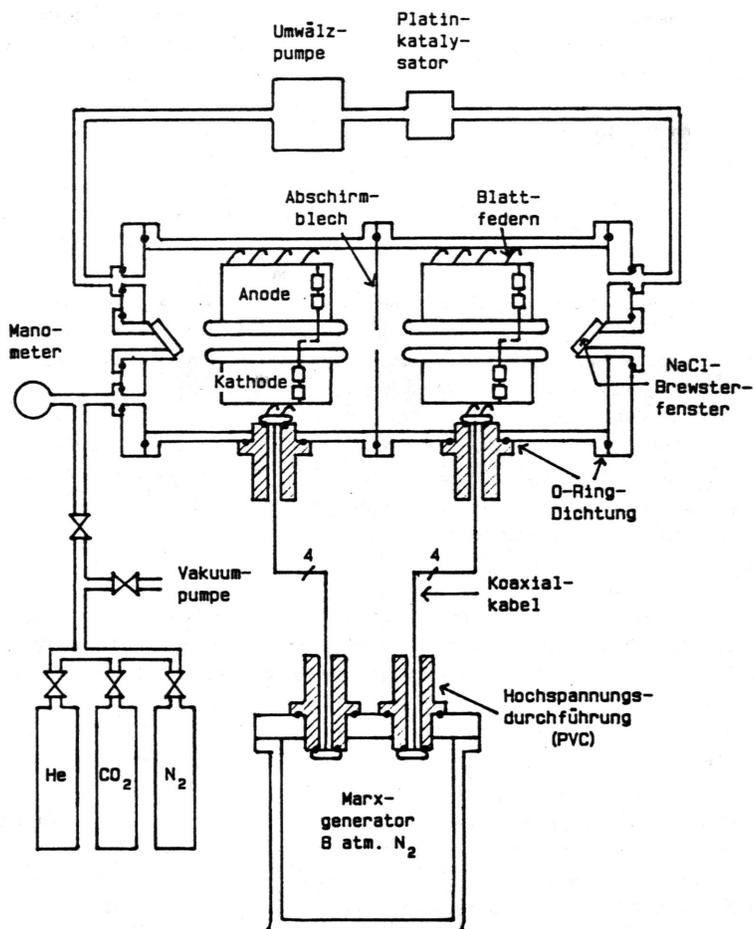


Abb.14 Mechanischer Aufbau (nicht maßstabgerecht). Der Übersichtlichkeit halber ist nur eine Hochspannungsdurchführung in jeder Laserdruckkammer statt der tatsächlich jeweils vier eingezeichnet.

Massepotential besitzt. Die beiden Entladungsstrecken wurden durch ein auf Masse liegendes Blech gegeneinander abgeschirmt; ohne diese Abschirmung kam es zu einer gegenseitigen Beeinflussung der Entladungsstrecken, was zu häufigem Auftreten von Bogenentladungen führte.

Der Laser wurde im 'sealed off'-Betrieb verwendet. Um eine bestimmte Gasmischung bei einem gegebenen Druck p einzustellen, wurde zunächst die gesamte Druckkammer mittels einer Vakuumpumpe auf 0.1 Torr evakuiert. Damit war gewährleistet, daß keine unerwünschten Gasreste, wie z.B. O_2 mehr in der Kammer vorhanden waren. Um beispielsweise ein Gasgemisch $CO_2:N_2:He = 3:1:60$ bei $p = 20$ atm zu erzeugen, wurden daraufhin der Reihe nach 900 mbar CO_2 , 300 mbar N_2 und 18.8 atm He zugegeben. Der Druck konnte mit Hilfe eines Feinmeßmanometers auf 50 mbar genau kontrolliert werden. Die Durchmischung der Gase erfolgte mit Hilfe einer Umwälzpumpe, die gemäß Abb. 14 in das System integriert war. In diesem Pumpkreis waren gleichzeitig keramische Platinkatalysatoren enthalten, um aus den bei den Entladungen entstehenden Produkten CO und O_2 wieder CO_2 zurückzugewinnen. Es sei noch erwähnt, daß die Vorionisierung durch die in Abschnitt I.1.3.2 beschriebene Anordnung eine genügend hohe Konzentration freier Elektronen im Entladungsvolumen auch ohne die Beimischung organischer Substanzen wie Trimethylamin (siehe Abschnitt I.1.2.3) ins Gasgemisch erzeugte. Auf die Zugabe dieser nicht ungefährlichen Substanzen wurde daher verzichtet, insbesondere da sie sich bei der Entladung zersetzen, polymerisieren und als Belag auf Fenstern und Elektroden niederschlagen.

Der Hochdruckbehälter war einschließlich Marxgenerator, Verbindungskabel, Hochspannungsversorgung etc. in einer Abschirmkabine aus Aluminiumblechen aufgebaut. Dies erwies sich als nötig, da die bei den elektrischen Entladungen auftretenden elektrischen Störungen die Verwendung empfindlicher Detektoren und Meßgeräte unmöglich machten. (In einer Entfernung von 3 m betragen die Störungen ohne Abschirmkabine z.B. einige Volt an einem Oszillographen mit einem Eingangswiderstand von 50Ω , aber offenem Eingang; mit Abschirmkabine waren sie geringer als 0.5 mV!). Der optische Zugang in die Abschirmkabine war möglich über Aluminiumröhrchen mit 2 cm Durchmesser und 9 cm Länge, die eine ausreichende Dämpfung für elektromagnetische Strahlung mit einer Frequenz ≤ 1 GHz aufwiesen. Die gesamte elektrische Anlage im Innern der Kabine war über ein Netzfilter (Siemens B84261 A13 B11), dessen Wechselstromdämpfung im Frequenzbereich von 100 KHz bis 30 GHz 100 dB betrug, vom externen Leitungsnetz entkoppelt. Die innerhalb der Kabine nötigen Steuersignale, wie z.B. Triggerpuls zum Zünden des Marxgenerators, Steuerspannung für das Hochspannungsnetzteil etc. wurden über Lichtleiter übertragen. Analoge Signale wurden dabei mit Hilfe von Spannungs-Frequenz-Wandlern in Rechteckpulse umgewandelt, deren Frequenz zu dem analogen Spannungssignal proportional war. Zur Demodulation wurden 'phase-locked-loop'-Schaltkreise verwendet.

1.3.5 Resonatorkonfiguration

Von den vielen getesteten Resonatorkonfigurationen sei hier diejenige diskutiert, die letztendlich zum Pumpen des CH_3F -Raman-Lasers verwendet wurde. Sie ist in Abb. 15 skizziert. Die wesentlichen Elemente des Resonators, der eine Gesamtlänge von 3.3 m besaß, waren:

- Ein konkaver Ge-Spiegel mit einem Krümmungsradius $R = 25 \text{ m}$ und einem Reflexionsvermögen von 70% für Strahlung mit der Wellenlänge $10.6 \mu\text{m}$, der als Auskoppelspiegel benutzt wurde;
- ein Strahlaufweitungsteleskop 1:3, das von einem konvexen bzw. konkaven Molybdänspiegel mit Krümmungsradius $R = 0.3 \text{ m}$ bzw. $R = 1 \text{ m}$ im Abstand von 35 cm gebildet wurde;
- ein Gitter (150 Striche/mm, Größe $5 \times 5 \text{ cm}^2$) mit einer Blazewellenlänge von $10.6 \mu\text{m}$, das als frequenzselektiver hochreflektierender Spiegel wirkt (das Reflexionsvermögen beträgt nach Herstellerangaben für Strahlung, die senkrecht zu den Gitterstrichen polarisiert ist, mehr als 95% im Wellenlängenbereich von $9 \mu\text{m}$ bis $11 \mu\text{m}$).

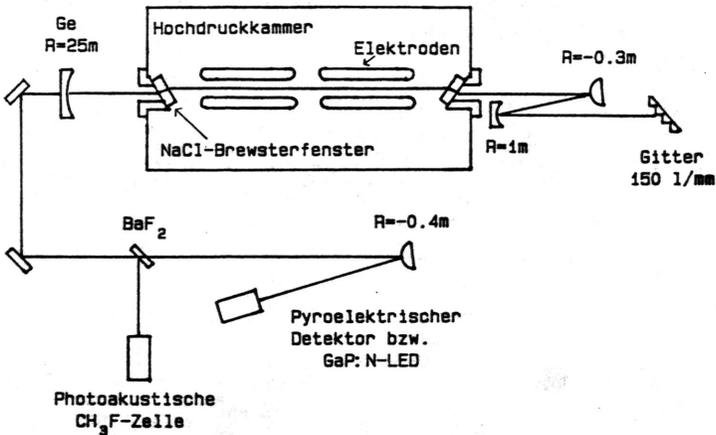


Abb. 15 Resonatorkonfiguration (alle verwendeten Spiegel waren aus Molybdän).

Das Strahlaufweitungsteleskop dient zum einen dazu, die Intensität der Laserstrahlung auf der Gitteroberfläche zu reduzieren, um eine Schädigung derselben durch Plasmadurchbrüche

zu vermeiden, die bei einer Oxidation der Oberfläche oder infolge von darauf befindlichen Staubpartikeln bei sehr hohen elektrischen Feldstärken auftreten. Zum anderen bedeutet eine volle Ausleuchtung des Gitters die bestmögliche spektrale Auflösung und somit die geringste spektrale Breite der emittierten Strahlung. Das Gitter war mit vertikalen Strichen und vertikaler Drehachse auf einem Drehtisch montiert. Die emittierte Laserstrahlung war somit horizontal polarisiert. Dementsprechend waren die NaCl-Brewsterfenster orientiert.

Der Durchmesser $2w_0$ der TEM_{00} -Resonatormode (e^{-1} -Breite der Feldstärke) würde für die Resonatorconfiguration in Abb.15 theoretisch 6 mm am Auskoppelspiegel betragen. Da der Elektrodenabstand der beiden Entladungsstrecken jedoch nur 1 cm beträgt, ist sofort einsichtig, daß die Ausbildung einer reinen TEM_{00} -Mode nicht möglich ist. Die metallischen Elektroden wirken als Wellenleiter. Um dennoch eine symmetrische Mode im Resonator zu erhalten, waren die Elektrodenpaare der beiden Entladungsstrecken um 90° gegeneinander verdreht. Die Querschnittsverteilung der Strahlung außerhalb des Resonators konnte dann annähernd mit einer Gaußschen Verteilung, wie sie eine reine TEM_{00} -Mode liefern würde, beschrieben werden. Ein besonders kritischer Parameter war dabei der Abstand der beiden Teleskopspiegel. Dieser bestimmt nämlich den Krümmungsradius der als sphärischer Spiegel wirkenden Kombination von Teleskop und Gitter. Insbesondere mußte auf einen möglichst kleinen Winkel - im vorliegenden Fall betrug er etwa 5° - in dem gefalteten Strahlengang des Teleskops geachtet werden, da sonst durch die Komausbildung starke Verzerrungen des Strahlprofils auftraten.

Die Einstellung der Emissionsfrequenz des Lasers erfolgte in zwei Schritten:

- 1) Der Drehtisch (Fa. Physik Instrumente PI) konnte durch einen Schrittmotor in Winkelschritten von $7.2''$ gedreht werden. Wird die Position der 0.ten Ordnung des in Littrow-configuration angeordneten Gitters, an der die Gitterebene senkrecht zur Resonatorachse steht, durch den Winkel $\theta = 0$ gekennzeichnet, läßt sich die Winkelposition, bei der Strahlung einer vorgegebenen Frequenz ν in sich selbst zurückreflektiert wird, anhand folgender Gleichung berechnen:

$$2a\nu \sin \theta = c \quad (19)$$

Hierbei ist $a = 6.666 \mu\text{m}$ die Gitterkonstante und c die Lichtgeschwindigkeit. Für Strahlung der Frequenz 1074.36 cm^{-1} beträgt beispielsweise $\theta = 44.33^\circ$. Das sind 22165 Winkelschritte. Statt der Position der 0.ten Ordnung läßt sich auch die Gitterstellung als Referenzposition verwenden, bei der ein He-Ne-Laserstrahl in 16.ter Ordnung in sich selbst zurückreflektiert wird. Diese Position entspricht einer Frequenz 987.65 cm^{-1} .

- 2) Da die Gitterkonstante a nur auf $\pm 0.001 \mu\text{m}$ genau bekannt war, konnte die Winkelposition des Gitters für eine gewünschte Emissionsfrequenz jedoch nicht exakt bestimmt werden. Beispielsweise kann die gesuchte Gitterposition für die Frequenz 1074.36 cm^{-1} nur auf ± 4 Winkelschritte genau angegeben werden. Um die Emissionsfrequenz des

Hochdruck-CO₂-Lasers und die Gitterstellung einander exakt zuordnen zu können, wurde ein Teil der emittierten Laserstrahlung mittels einer BaF₂-Scheibe in eine Gaszelle eingekoppelt, die CH₃F-Gas bei einem Druck von 30 Torr und ein Mikrophon enthielt (siehe Abb. 15). Absorption der Laserstrahlung im CH₃F-Gas führt zu einer Erwärmung des Gases und damit zu Druckänderungen in der Zelle, die vom Mikrophon registriert werden (photoakustischer Effekt /66/). Die Frequenzen der CH₃F-Absorptionslinien sind sehr genau bekannt (vgl. Abschnitt I.2.1.1 bzw. /63,67/) und überdecken mit einem typischen Abstand von 1-2 cm⁻¹ einen Großteil des Emissionsbereichs des CO₂-Lasers. Sie wurden daher jeweils als Referenzfrequenzen zur exakten Eichung der Gitterstellung benutzt. Die Einstellung von Emissionsfrequenzen, die zwischen den CH₃F-Absorptionslinien lagen, erfolgte durch lineare Interpolation. Eine relative Frequenzänderung der emittierten Strahlung war dabei in Schritten von 0.04 cm⁻¹ bzw. 1.2 GHz möglich. Dies folgt aus Gl.(19) unter Berücksichtigung der Schrittweite von 7.2'' des schrittmotorgetriebenen Drehtisches.

Die Messung der Pulsenergie der CO₂-Laserstrahlung erfolgte mit Hilfe eines pyroelektrischen Detektors (Gentec ED500, Empfindlichkeit $2.4 \frac{\text{V}}{\text{J}}$, Detektorfläche 5x5 cm²). Um eine Zerstörung des Detektors durch zu hohe Energiedichten zu vermeiden, wurde der Laserstrahl durch einen konvexen Molybdänspiegel aufgeweitet. Zur Beobachtung der zeitlichen Struktur der Laserpulse wurde eine als Photoleitungsdetektor wirkende, auf 4.2 K gekühlte GaP:N-Leuchtdiode verwendet, die eine Anstiegszeit von weniger als 0.5 nsec besitzt und die für Strahlung der Wellenlänge 10.6 μm bei einer angelegten Spannung von 80 V eine Empfindlichkeit von $0.3 \frac{\text{V}}{\text{W}}$ bei einem Lastwiderstand von 50 Ω besitzt /68,69/. Die von der Diode gelieferten Signale wurden mit einem schnellen Transientenrekorder (Biomation 6500, Abtastrate 500 MHz, Eingangsbandbreite 125 MHz) aufgezeichnet und mit Hilfe eines Z80-ECB-Bus-Rechners verarbeitet. Dieser Rechner übernahm dabei auch noch die komplette Steuerung des Schrittmotors für den Gitterdrehtisch (vgl. Abb. 34), die Kontrolle der Hochspannungsversorgung des Marxgenerators sowie dessen Triggerung.

1.4 Eigenschaften des Hochdruck-CO₂-Lasers

Die Eigenschaften des im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Hochdruck-CO₂-Lasers wurden bei verschiedenen Resonatorkonfigurationen sowie bei Verwendung von einer bzw. zwei Entladungstrecken untersucht. In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Ergebnisse zusammengefaßt. Insbesondere wird dabei zum ersten Mal die vollständige Emissionscharakteristik eines bei einem Druck von 20 atm betriebenen CO₂-Lasers vorgestellt.

1.4.1 Abstimmcharakteristik

Abb. 16 a zeigt die Ausgangspulsenergie des Lasers als Funktion der Emissionsfrequenz für einen Betriebsdruck von 20 atm bei einer Gasmischung $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He}$ 3:1:60 und bei Verwendung von nur einer Entladungsstrecke. Die Emissionsfrequenz wurde dabei in Schritten von 0.12 cm^{-1} variiert, die Pulsenergie über 3 aufeinanderfolgende Pulse gemittelt. Das aktive Gasvolumen betrug $1 \times 1 \times 40 \text{ cm}^3$ (eine Entladungsstrecke!); die in dieses Volumen injizierte Energie war 21 J, was einer Ladespannung $U = 65 \text{ kV}$ für den Marxgenerator entsprach. Als Entladungsenergiedichte erhält man daher $26 \frac{\text{J}}{\Gamma_{\text{atm}}}$. Die Resonatorkonfiguration war die in Abb. 15 gezeigte Konfiguration; die gesamte Resonatorlänge betrug jedoch nur 2.2 m infolge der fehlenden zweiten Entladungsstrecke.

Abb. 16 a demonstriert die Möglichkeit zur kontinuierlichen Abstimmung der Laseremissionsfrequenzen in allen 4 Emissionszweigen des Lasers. Der gesamte Abstimmbereich betrug 44 cm^{-1} ; die Abstimmbereiche in den einzelnen Zweigen sind in der 1.Spalte von Tab. 4 zusammengefaßt.

Zweig	Abstimmbereich	
	Entladungsenergie- dichte $26 \frac{\text{J}}{\Gamma_{\text{atm}}}$	Entladungsenergie- dichte $35 \frac{\text{J}}{\Gamma_{\text{atm}}}$
10 R	R(8)-R(26) 13 cm^{-1}	R(6)-R(28) 15 cm^{-1}
10 P	P(12)-P(26) 14 cm^{-1}	P(10)-P(28) 18 cm^{-1}
9 R	R(10)-R(26) 10 cm^{-1}	R(8)-R(30) 15 cm^{-1}
9 P	P(14)-P(20) 7 cm^{-1}	P(12)-P(24) 13 cm^{-1}

Tab. 4 Abstimmbereiche in den einzelnen Emissionszweigen bei Verwendung von nur einer Entladungsstrecke.

Die Emissionscharakteristik des Lasers in den beiden *R*-Zweigen ist total glatt, während in den beiden *P*-Zweigen noch eine geringfügige Welligkeit vorhanden ist. Dies ist die Folge des größeren Abstands benachbarter Rotations-Schwingungs-Übergänge in den *P*-Zweigen (1.8 cm^{-1}) gegenüber dem in den *R*-Zweigen (1.3 cm^{-1}) - siehe Abschnitt I.1.1. Der verglichen mit den anderen Zweigen geringe Abstimmbereich des 9*P*-Zweiges und die dortige geringe Ausgangspulsenergie ($\sim 30 \text{ mJ}$) sind konsistent mit den von Taylor et al. /47/ durchgeführten Berechnungen der Kleinsignalverstärkung, die im 9*P*-Zweig eine um etwa 10% geringere Verstärkung voraussagen, als sie in den restlichen Zweigen existiert (Abb. 3). Daß im vorliegenden Fall die maximale Ausgangspulsenergie im 10*R*-Zweig erhalten wurde, die nach Taylor et al. im 9*R*-Zweig erhalten werden müßte, kann eine Folge davon sein,

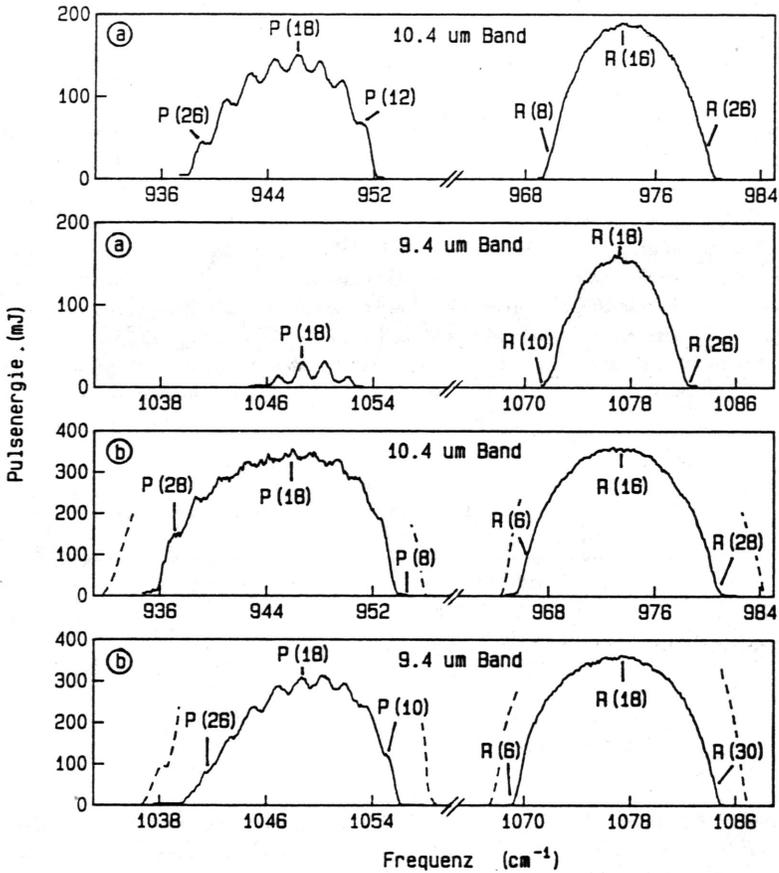


Abb. 16 Emissionscharakteristik des Hochdruck-CO₂-Lasers bei $p = 20$ atm

a) bei einer Entladungsstrecke und einer Entladungsenergieichte $\epsilon = 26 \frac{\text{J}}{\text{l atm}}$,

b) bei zwei Entladungsstrecken und einer Entladungsenergieichte $\epsilon = 21 \frac{\text{J}}{\text{l atm}}$ in den R-Zweigen bzw. $\epsilon = 26 \frac{\text{J}}{\text{l atm}}$ in den P-Zweigen.

Die gestrichelten Kurven zeigen die Ausweitung des Abstimmereichs bei einer Entladungsenergieichte $\epsilon = 30 \frac{\text{J}}{\text{l atm}}$.

daß die Justierung des Resonators im $9R$ -Zweig nicht optimal war (man vergleiche auch die Ergebnisse bei der Verwendung von 2 Entladungsstrecken in Abb. 16 b).

Die maximale Ausgangspulsenergie im $10R$ -Zweig betrug 180 mJ. Da hierbei eine Energie von 21 J in die Entladung injiziert wurde, erhält man somit einen Energiekonversionskoeffizienten von etwa 1% im Zentrum des $10R$ -Zweiges. Der maximal erreichbare Konversionskoeffizient beträgt etwa 8%. Dies wurde in Abschnitt I.1.2.2 für die hier verwendete Gasmischung und einen $\frac{E}{N}$ -Wert von $2.5 \cdot 10^{-16} \text{ V cm}^2$ - ein solcher entspricht gerade der angegebenen Versorgungsspannung $U = 65 \text{ kV}$ für den Marxgenerator - abgeschätzt.

Eine Ausweitung des Abstimmbereichs war möglich durch eine Erhöhung der Entladungsenergiedichte auf $35 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$. Die Ergebnisse sind in Tab. 4, Spalte 2 angegeben. Man findet insbesondere eine deutliche Erhöhung des Abstimmbereichs im $9P$ -Zweig. Maximale Ausgangspulsenergien von 150 mJ wurden dort erreicht. Der komplette Abstimmbereich betrug 62 cm^{-1} . Die angegebene Energiedichte entspricht einer Ladespannung von 75 kV für den Marxgenerator. Ein längerer Betrieb unter solchen Bedingungen führte jedoch zu einem starken Verschleiß der einzelnen Komponenten des Entladekreises, insbesondere der Kabel und Hochspannungsdurchführungen, so daß ein Dauerbetrieb des Lasers nicht möglich war.

Zweig	Abstimmbereich	
	Entladungsenergiedichte $21 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ (R -Zweig), $26 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ (P -Zweig)	Entladungsenergiedichte $30 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$
10 R	$R(6)-R(28) 15 \text{ cm}^{-1}$	$R(4)-R(34) 20 \text{ cm}^{-1}$
10 P	$P(8)-P(28) 18 \text{ cm}^{-1}$	$P(6)-P(32) 24 \text{ cm}^{-1}$
9 R	$R(6)-R(30) 16 \text{ cm}^{-1}$	$R(4)-R(34) 20 \text{ cm}^{-1}$
9 P	$P(10)-P(26) 16 \text{ cm}^{-1}$	$P(8)-P(30) 22 \text{ cm}^{-1}$

Tab. 5 Abstimmbereiche in den einzelnen Emissionszweigen bei Verwendung von zwei Entladungsstrecken.

Aus diesem Grund wurde der Laser mit einer zweiten Entladungsstrecke versehen, so daß das gesamte aktive Gasvolumen auf $1 \times 1 \times 80 \text{ cm}^3$ verdoppelt wurde. Das in diesem Fall erhaltene Emissionsspektrum des Lasers ist in Abb. 16 b gezeigt. Die Entladungsenergiedichte betrug hierbei $21 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ in den R -Zweigen (dies entspricht einer Marxgeneratorversorgungsspannung $U = 57 \text{ kV}$) und $26 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ ($U = 63 \text{ kV}$) in den P -Zweigen. Der gesamte Abstimmbereich war 65 cm^{-1} , eine Aufschlüsselung in die einzelnen Bereiche ist in Tab. 5, Spalte 1 gegeben. Man erhält somit bereits bei typischen Marxgeneratorladespannungen um 60 kV, bei denen ein problemloser Laserbetrieb möglich war, den gleichen Abstimmbereich, wie er unter den oben angegebenen extremen Bedingungen im Falle einer Entladungsstrecke erhalten wurde. Bei der Aufnahme der Emissionscharakteristik in Abb. 16 b mußte darauf geachtet werden,

daß die Pulsenergie 300 mJ nicht überschritt. Denn höhere Pulsenergien führten zu einer Schädigung der NaCl-Brewsterfenster durch Plasmadurchbrüche an ihren Oberflächen. Die gestrichelten Linien in Abb. 16 b zeigen die Ausweitung des Abstimmbereichs bei Erhöhung der Entladungsenergie dichte auf $30 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ (siehe auch Tab. 5). Die entsprechende Versorgungsspannung $U = 68 \text{ kV}$ des Marxgenerators war die maximale Spannung, die noch einen Betrieb ohne größere Probleme zuließ.

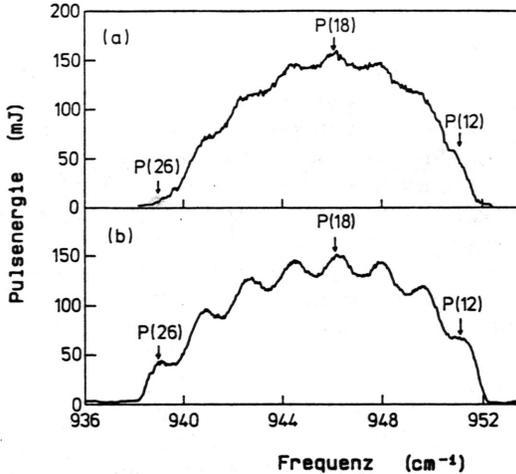


Abb. 17 Emissionscharakteristik des 10P-Zweiges bei einem Gasdruck von 25 atm (a) bzw. 20 atm (b).

(In beiden Fällen war die in die Entladung injizierte Energie 21 J.)

Um zu überprüfen, ob die Restwelligkeit der Emissionscharakteristik in den P-Zweigen durch Verwendung noch höherer Gasdrücke beseitigt werden könnte, wurde das Spektrum des 10P-Zweiges bei einem Druck von 25 atm (Gasgemisch $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 3:1:60$) aufgenommen. Abb. 17 a zeigt dieses Spektrum bei einer Entladungsenergie dichte von $21 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$. Hierbei war wiederum nur eine Entladungsstrecke im Laser vorhanden. In Abb. 17 b ist zum Vergleich noch einmal das Emissionsspektrum des 10P-Zweiges bei 20 atm aus Abb. 16 a dargestellt. Während die Modulationstiefe im Zentrum des Zweiges bei 20 atm noch etwa 15% beträgt, ist sie bei 25 atm auf die Hälfte reduziert. Da dies keine drastische Reduktion bedeutete und auch der Abstimmbereich der gleiche blieb, wurde darauf verzichtet, den Laser bei Drücken über 20 atm zu betreiben.

Die Bandbreite der emittierten Strahlung (FWHM = volle Breite bei halber Höhe) betrug im Zentrum des $10R$ -Zweiges 0.16 cm^{-1} (4.8 GHz). Sie wurde mit Hilfe eines Infrarotspektrometers ermittelt, das ein Gitter mit 150 Strichen pro mm und 13 cm Breite und damit eine Auflösung von 0.05 cm^{-1} für Frequenzen in der Umgebung von 1000 cm^{-1} besaß. Mittels dieses Spektrometers wurde auch nachgewiesen, daß kein 'frequency pulling' die kontinuierliche Abstimmbarkeit einschränkt. Von 'frequency pulling' spricht man, wenn die Frequenzen der longitudinalen Lasermoden nicht mehr durch die Resonatoreigenfrequenzen $\nu_m = \frac{m\pi c}{2L}$, $m \in \mathbb{N}$ (L ist die Resonatorlänge) gegeben sind, sondern in Richtung eines Maximums der Kleinsignalverstärkung verschoben sind. Ursache dafür ist die Frequenzabhängigkeit der komplexen Suszeptibilität des Lasermediums in der Umgebung eines solchen Maximums /39/. Mehr oder weniger starkes Auftreten von 'frequency pulling' wird in vielen Veröffentlichungen zur kontinuierlichen Abstimmung von Hochdruck- CO_2 -Lasern berichtet /58,63/, da dort stets Drücke $\leq 12 \text{ atm}$ verwendet wurden und daher noch deutliche Maxima und Minima in der Kleinsignalverstärkung existieren (vgl. Abb.3). Ein experimentelles Beispiel für 'frequency pulling' im $10R$ -Zweig, das von Wan et al. /58/ für einen $10 \text{ atm-}\text{CO}_2$ -Laser erhalten wurde, ist in Abb.18 a gezeigt. Dort ist die spektrale Verteilung der emittierten Laserstrahlung, die mit Hilfe eines Thermopapiers in der Austrittsebene des oben erwähnten Infrarotspektrometers aufgezeichnet wurde, als Funktion der theoretischen, durch die Winkelposition des Gitters eingestellten Frequenz aufgetragen. Die endliche Ausdehnung der Färbung des Thermopapiers ist ein Maß für die spektrale Breite der emittierten Strahlung. Man erkennt deutlich, daß die emittierten Laserfrequenzen stets in der Nähe der Linienzentren liegen. Als Vergleich ist in Abb.18 b der Zusammenhang zwischen emittierter und eingestellter Frequenz für einen Teil des $10P$ -Zweiges für den hier vorgestellten Laser ($p = 20 \text{ atm}$) dargestellt, der sich als absolut linear erweist. Damit ist der eindeutige Beweis erbracht, daß der Laser kontinuierlich abstimbar ist und daß die Emissionsfrequenz nur durch die Winkelposition des Gitters bestimmt wird. Dies ist die Konsequenz des nahezu glatten Profils der Kleinsignalverstärkung bei einem Gasdruck von 20 atm und zeigt, daß der Betrieb kontinuierlich abstimmbarer Hochdruck- CO_2 -Laser erst bei einem solchen Druck sinnvoll wird.

1.4.2 Zeitliche Struktur der Laserpulse

Abb.19 zeigt typische Ausgangspulse des Lasers bei einem Betrieb weit oberhalb der Laserschwelle (a) bzw. knapp an der Schwelle (b). Die Emissionsfrequenz lag für Puls (a) im Zentrum des $10R$ -Zweiges (973.5 cm^{-1}), für Puls (b) in der Flanke (968.3 cm^{-1}). Die experimentellen Bedingungen waren die gleichen wie bei der Aufnahme der Emissionscharakteristik in Abb.16 a (nur eine Entladungsstrecke, $p = 20 \text{ atm}$, Gasgemisch $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 3:1:60$, Entladungsenergiegedichte $26 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$). Die Pulsenergie betrug 180 mJ im Falle von Puls (a) und etwa 60 mJ für Puls (b). Das Einsetzen der elektrischen Störung in Abb.19 (Insets) kennzeichnet

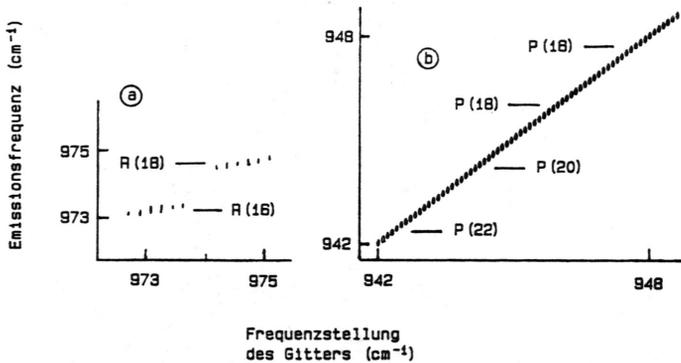


Abb. 18 Zusammenhang zwischen der Emissionsfrequenz der Laserstrahlung und der theoretischen, durch die Winkelposition des Gitters bestimmten Frequenz

- bei $p = 10$ atm nach /58/,
- bei $p = 20$ atm für den hier vorgestellten Laser.

dabei den Beginn der elektrischen Entladung (die Abschirmkabine war bei diesen Messungen nicht installiert!). Abb. 19 gestattet daher eine direkte Bestimmung der Aufbauzeit t_{auf} der Laserpulse, d.h. der Zeit, bis die Pulse nach Zünden der Entladung ihr Maximum erreichen. Man erhält für Puls (a) eine Aufbauzeit von 450 nsec und eine Pulsdauer von 130 nsec. Letztere wird bestimmt durch den Abbau der Überbesetzung durch die stimulierte Emission. Die Aufbauzeit für Puls (b) betrug 700 nsec infolge der geringeren Kleinsignalverstärkung in der Flanke des 10R-Zweiges, was auch der Grund für die längere Pulsbreite von 190 nsec ist. Zusätzlich ist zu bemerken, daß im Falle von Puls (b) die in Abschnitt I.1.1.3 erwähnte Relaxationszeit von 700 nsec für den V-T-Transfer der ν_3 -Normalschwingung bereits eine Rolle spielt.

Längere Aufbauzeiten und Pulsbreiten als bei Puls (b) können nicht mehr auftreten, da typisch 1 μ sec nach der Entladung Schockwellen auftreten, die durch die Vorionisierungsentladungen bzw. durch die Hauptentladung selbst verursacht werden. Sie führen zu einem starken Anstieg der Resonatorverluste und machen so eine Lasertätigkeit unmöglich /47/.

Mit Hilfe der Aufbauzeit und Energie der Laserpulse läßt sich eine einfache Abschätzung der Kleinsignalverstärkung durchführen /62/. Es sei dazu angenommen, daß die Verstärkung gleichzeitig für alle longitudinalen Moden, die innerhalb der spektralen Breite $\Delta\nu_L$ der emit-

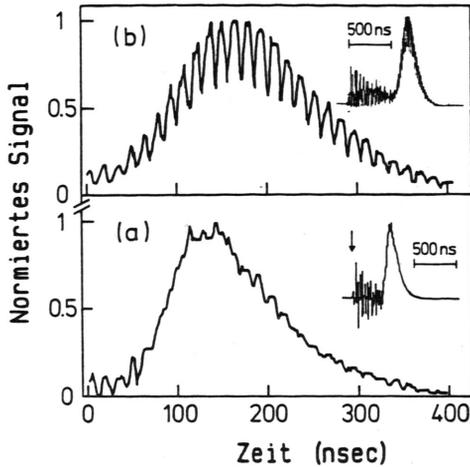


Abb. 19 Zeitliche Struktur der Laserpulse für einen Betrieb weit über der Laserschwelle (a) bzw. knapp an der Schwelle (b). Die Insets zeigen den Aufbauprozess der Laserpulse.

tierten Strahlung enthalten sind - ihre Gesamtzahl sei m -, zum Zeitpunkt der elektrischen Entladung durch spontane Emission eines Photons beginnt und nach der Aufbauzeit t_{auf} endet. Für die Zahl Z der Photonen, die in einer Mode nach der Zeit t_{auf} enthalten sind, gilt

$$Z = \exp\left((2l\alpha(\nu_L) - \beta) \cdot \frac{t_{auf}}{t_{um}}\right) \quad (20)$$

Hierbei ist l die Länge des aktiven Mediums und $\alpha(\nu_L)$ ist die Kleinsignalverstärkung bei der Emissionsfrequenz ν_L (sie kann für alle Moden als konstant angenommen werden, da sich die Verstärkung innerhalb der geringen Bandbreite $\Delta\nu_L$ nicht ändert). β bezeichne den Verlust pro Umlauf eines Photons im Resonator und t_{um} die für den Umlauf benötigte Zeit. Für die gesamte Energie des Laserpulses gilt dann

$$E = h\nu_L m Z = h\nu_L m \exp\left((2l\alpha(\nu_L) - \beta) \cdot \frac{t_{auf}}{t_{um}}\right) \quad (21)$$

Aus der Resonatorlänge von $L = 2.2$ m errechnet man eine Umlaufzeit $t_{um} = \frac{2L}{c} = 14.7$ nsec. Der Frequenzabstand der longitudinalen Moden beträgt daher 68 MHz. Innerhalb der Bandbreite $\Delta\nu_L = 4.8$ GHz sind damit $m = 70$ longitudinale Moden enthalten. Werden die

Resonatorverluste nur durch den Auskoppelspiegel mit Reflexionsvermögen 70% bestimmt, gilt $\beta = 0.3$. Im Falle des Pulses (a) ($E = 180 \text{ mJ}$, $\nu_L = 973.5 \text{ cm}^{-1}$) erhält man damit $\alpha(973.5 \text{ cm}^{-1}) \simeq 2\% \text{ cm}^{-1}$. Nimmt man an, daß bei Puls (b) nur ein Drittel der longitudinalen Moden anschwingt (diese Annahme wird in der noch folgenden Diskussion der Pulsform begründet!), folgt $\alpha(968.3 \text{ cm}^{-1}) \simeq 1.4\% \text{ cm}^{-1}$. Diese Werte sind in guter Übereinstimmung mit der von Taylor et al. /47/ berechneten Kleinsignalverstärkung (siehe Abschnitt I.1.1.3 und Abb. 3).

Zum Schluß sei noch kurz die Pulsform diskutiert: Im Gegensatz zu Puls (a), der eine nahezu glatte Form besitzt, ist die Struktur von Puls (b) durch zeitlich äquidistante Spitzen geprägt. Der zeitliche Abstand von etwa 15 nsec dieser Spitzen entspricht dabei genau der Umlaufzeit t_{um} der Photonen im Resonator. (Die Modulationstiefe von Puls (b) ist in Wirklichkeit stärker als in Abb. 19 gezeigt, da die endliche Bandbreite (125 MHz!) des zur Messung der Pulsstruktur verwendeten Transientenrekorders zu einer Verschleifung der Spitzenstruktur führt. Bei der Verwendung eines sehr schnellen Oszillographen (Tektronix 9407, Bandbreite 600 MHz) wurden auch Pulse mit nahezu 100% Modulationstiefe beobachtet!). Pulsstrukturen wie die von Puls (b) sind von TEA-CO₂-Lasern her bekannt /70/. Ursache ist eine Phasenkopplung zwischen longitudinalen Lasermoden infolge der nichtlinearen Verstärkung des aktiven Mediums bei hohen Strahlungsintensitäten ('self-mode-locking') /71/. Im allgemeinen wird dabei jedoch keine strenge Phasenkopplung zwischen allen innerhalb der Bandbreite der emittierten Strahlung enthaltenen Moden aufgebaut; vielmehr koppeln immer nur einige wenige benachbarte Moden /72/. Jede dieser Gruppen gekoppelter Moden erzeugt ihre eigene Pulsstruktur, die jedoch statistisch gegeneinander verschoben sind, so daß bei einer Vielzahl von Gruppen eine mehr oder weniger glatte Pulsstruktur entsteht. Dies ermöglicht den Schluß, daß bei einem Laserbetrieb weit oberhalb der Schwelle (Puls (a)) nahezu alle longitudinalen Moden innerhalb der Bandbreite der Laserstrahlung angeregt sind, während bei einem Betrieb nahe an der Schwelle (Puls (b)) wesentlich weniger Moden anschwngen. Es sei noch erwähnt, daß infolge der statistischen Ausbildung der Modenkopplung starke Unterschiede in der Pulsform aufeinanderfolgender Laserpulse auftraten. (Die räumliche Verteilung der Kleinsignalverstärkung im Entladungsvolumen ändert sich leicht von Entladung zu Entladung; damit sind auch die Voraussetzungen für die Kopplung der longitudinalen Moden von Puls zu Puls verschieden.) So wurde beispielsweise auch bei hoher Pulsenergie u.U. eine Struktur mit äquidistanten Spitzen beobachtet.

1.4.3 Breitbandemission

Um eine breitbandige Strahlungsemission zu erhalten, wurde die Kombination Gitter und Teleskop in Abb. 15 durch einen konkaven Molybdänspiegel mit Krümmungsradius $R = 4 \text{ m}$ ersetzt. Bei dem im folgenden berichteten Experiment beinhaltete der Laser nur wieder

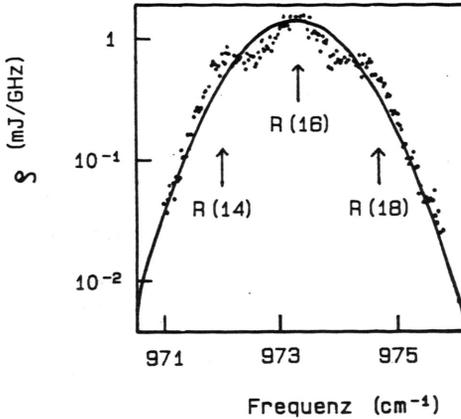


Abb. 20 Spektrale Energieverteilung der emittierten Laserstrahlung bei nichtfrequenzselektivem Resonator (Breitbandbetrieb).

eine Entladungstrecke. Die gesamte Resonatorlänge betrug dann nur mehr 1.2 m. Die verwendete Gasmischung war $\text{CO}_2:\text{N}_2:\text{He} = 2:1:80$, der Gasdruck $p = 20$ atm.

Das Emissionsspektrum des Lasers unter dieser Konfiguration wurde mit Hilfe des in Abschnitt I.1.4.1 erwähnten Monochromators (Bandbreite $\Delta\nu_M = 1.5$ GHz) ermittelt. Es zeigte sich, daß die Emission nahezu vollständig im Zentrum des 10R-Zweiges erfolgte. Abb. 20 zeigt als Beispiel die spektrale Energieverteilung eines Laserpulses der Gesamtenergie von 150 mJ. Die Entladungsenergiedichte war $15 \frac{\text{J}}{\text{l atm}}$. Die geringfügige Modulation der Energieverteilung kennzeichnet die Zentren der druckverbreiterten Rotations-Schwingungs-Übergänge. Die Energieverteilung überdeckt somit den Bereich zwischen den Übergängen R(14) und R(18), d.h. etwa 3 cm^{-1} .

Die spektrale Energieverteilung wurde in Abb. 20 logarithmisch aufgetragen und erlaubt damit einen direkten Vergleich mit der von Taylor et al. /47/ berechneten Kleinsignalverstärkungskurve $\alpha(\nu)$ in Abb. 3. Unter Verwendung von Gl.(20), die die Zahl $Z(\nu)$ der Photonen in einer longitudinalen Mode der Frequenz ν nach der Aufbauzeit t_{auf} des Laserpulses angibt, gilt nämlich für die spektrale Energieverteilung:

$$\rho(\nu) = \frac{m Z(\nu) h\nu}{\Delta\nu_M} = \frac{m h \nu}{\Delta\nu_M} \exp\left(\left(2l\alpha(\nu) - \beta\right)\frac{t_{auf}}{t_{um}}\right) \quad (22)$$

Hierbei ist m wieder die Zahl der longitudinalen Moden innerhalb der Bandbreite $\Delta\nu_M$ des Monochromators, der auf die Frequenz ν eingestellt ist, l die Länge des aktiven Volumens und β der Verlust pro Umlauf eines Photons. Nach Taylor et al. läßt sich die Kleinsignalverstärkung $\alpha(\nu)$ innerhalb des $10R$ -Zweiges annähernd durch eine Gaußsche Verteilung mit Zentrum bei 973.3 cm^{-1} ($10R(16)$) und der Halbwertsbreite von 21 cm^{-1} beschreiben (Abb. 3). Weiterhin gilt nach Taylor et al. bis zu Entladungsenergiedichten von $40 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ ein linearer Zusammenhang zwischen Kleinsignalverstärkung im Zentrum des $10R$ -Zweiges und der Entladungsenergiedichte. Aus Abb. 3 folgt somit für die maximale Kleinsignalverstärkung im $10R$ -Zweig für die hier vorliegende Entladungsenergiedichte von $15 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$ ein Wert von $0.95\% \text{cm}^{-1}$. Die anhand dieser Werte über Gl.(22) berechnete spektrale Energieverteilung ist in Abb. 20 miteingezeichnet (durchgezogene Linie). Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Die restlichen Parameter in Gl.(22) waren dabei: $t_{um} = 8 \text{ nsec}$ (Resonatorlänge 1.2 m), $t_{auf} = 650 \text{ nsec}$ (gewonnen aus Messungen der Pulsstruktur wie in Abschnitt I.1.4.2), $\beta = 0.3$, $\Delta\nu_M = 1.5 \text{ GHz}$ und $m = 12$ (Frequenzabstand der longitudinalen Moden 125 MHz). Aus Gl. (22) erhält man als Halbwertsbreite (FWHM) der spektralen Energieverteilung der im breitbandigen Laserbetrieb emittierten Strahlung, die wegen der logarithmischen Darstellung aus Abb. 20 schwer ablesbar ist, einen Wert von 2 cm^{-1} bzw. 60 GHz.

Von Untersuchungen des Breitbandbetriebs bei Verwendung von 2 Entladungsstrecken wurde abgesehen, da schon bei niederen Entladungsenergiedichten von $12.5 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$, die einer Versorgungsspannung von 45 kV für den Marxgenerator entsprachen, Ausgangspulsenergien von über 300 mJ auftraten, die eine sofortige Zerstörung der NaCl-Brewsterfenster durch Plasmadurchbrüche an ihrer Oberfläche zur Folge hatten. Geringere Entladungsenergiedichten durch Reduktion der Versorgungsspannung des Marxgenerators einzustellen, war jedoch nicht möglich, da in diesem Fall die $\frac{E}{V}$ -Werte nicht mehr groß genug waren, um eine selbständige Gasentladung im gesamten Entladungsvolumen aufrechtzuerhalten. Es kam dann zu Bogenentladungen.

1.5 Zusammenstellung der Eigenschaften des Hochdruck-CO₂-Lasers und Ausbaumöglichkeiten

In Tab. 6 sind einige wesentliche Eigenschaften des in dieser Arbeit entwickelten Hochdruck-CO₂-Lasers zusammengefaßt und mit den entsprechenden Werten anderer veröffentlichter Laserkonstruktionen verglichen. Hierbei wurden drei repräsentative Beispiele UV-vorionisierter Hochdruck-CO₂-Laser mit selbständiger Gasentladung ausgewählt. Laser mit anderen Anregungsmechanismen seien wegen des damit verbundenen technischen Aufwands nicht betrachtet. Der Vergleich zeigt, daß der hier vorgestellte Laser, insbesondere wenn man

die einfache und kompakte Konstruktion berücksichtigt, diverse Vorteile gegenüber den bisher veröffentlichten Hochdruck-CO₂-Lasern aufweist.

Als Ausblick seien noch drei Möglichkeiten angesprochen, die Effizienz des Lasers zu erhöhen:

- a) Wie bereits erwähnt, durfte die Ausgangspulsenergie 300 mJ nicht überschreiten, da andernfalls die Energiedichte der Strahlung an der Oberfläche der NaCl-Brewsterfenster so groß wurde, daß diese durch Plasmadurchbrüche beschädigt wurden. Ersetzt man jedoch das Strahlauweitungsteleskop aus Molybdänspiegeln in Abb. 15 durch zwei analoge Teleskope, die innerhalb der Hochdruckkammer jeweils zwischen Fenster und Entladungstrecke montiert sind und die ein Aufweitungsverhältnis 1:2 besitzen, lassen sich Pulsenergien > 1 J erzielen, ohne daß es zu einer Schädigung der Fenster kommt. Problematisch ist dabei jedoch, daß es nach dem Füllen der Hochdruckkammer keine Möglichkeit mehr gibt, die Justierung der einzelnen Komponenten der Teleskope zu ändern; denn wie in Abschnitt I.1.3.5 diskutiert, beeinflusst insbesondere der Abstand der Spiegel eines Teleskops drastisch die Ausbildung der transversalen Resonatormoden.
- b) Eine Erhöhung des Elektrodenabstandes auf 1.5 cm würde die Wirkung der metallischen Elektroden als Wellenleiter für die Laserstrahlung reduzieren und die Ausbildung eines reinen TEM₀₀-Mode möglich machen. Dies erfordert jedoch neue Konstruktionen für die Komponenten des Entladungskreises (z.B. 3-stufiger Marxgenerator, bessere Hochspannungsdurchführungen in die Druckkammer etc.), da die Hochspannungspulse entsprechend dem Elektrodenabstand erhöht werden müßten.
- c) Wünschenswert wäre es auch, die spektrale Breite der emittierten Strahlung soweit zu reduzieren, daß nur mehr eine longitudinale Mode darin enthalten ist (SLM-Betrieb). Dies würde zeitlich vollständig glatte Pulsstrukturen und auch eine wesentliche Verbesserung der charakteristischen Eigenschaften des CH₃F-Raman-Lasers (siehe Abschnitt I.2.3) liefern. Eine Verringerung der Bandbreite erfordert zusätzliche dispersive Elemente im Resonator. Ein Beispiel wurde von Deka et al. /29/ demonstriert. Sie erreichten für einen 10 atm-CO₂-Laser eine Bandbreite von 400 MHz mit Hilfe eines aus drei Spiegeln bestehenden Resonators (ein dritter zusätzlicher teilreflektierender Spiegel zwischen Gitter und Hochdruckkammer wirkt zusammen mit dem Gitter als ein Fabry-Perot-Interferometer). Eine andere Möglichkeit wäre der Einbau von Fabry-Perot-Etalons im Resonator. Bernard et al. /73/ erzielten mit einem Ge-Etalon bei einem TEA-CO₂-Laser eine Verringerung der Bandbreite, die üblicherweise auch 2...4 GHz beträgt, auf 200 MHz. Erste Versuche mit einem Ge-Etalon, im vorliegenden Laser eine Reduktion der Bandbreite durchzuführen, scheiterten an der relativ hohen Absorption der Laserstrahlung in dem 1.3 cm dicken Ge-Etalon - der Absorptionskoeffizient von Ge für 10.6 μ m-Strahlung beträgt $\alpha = 0.045 \text{ cm}^{-1}$ /74/. Der Einsatz von ZnSe-Etalons ($\alpha = 0.005 \text{ cm}^{-1}$ /74/) wäre daher empfehlenswert. Um einen echten SLM-Betrieb zu erhalten, müßte u.U. eine Kombination mehrerer Etalons eingebaut werden.

	Mathieu et al. /16,57/	Danly et al. /17,63/	Carman et al. /27/	Werling et al. /61,62/
Gasmischung (CO ₂ :N ₂ :He)	1:1:8	1:1:8	1:1:8	3:1:60
Druck (Durchfluß)	10-12 atm (1-2 l/min)	10-12 atm (10-15 l/min)	8-12 atm (2 l/min)	20-25 atm (sealed off)
Vorionisierungs- anordnung	seriell geschaltete Funkenstrecken eigene Hochspan- nungsversorgung 40 kV/8 J wird 0.4 µsec vor der Hauptentlad- ung gezündet	seriell geschaltete Funkenstrecken eigene Hochspan- nungsversorgung 50 kV/12 J wird 0.5 µsec vor der Hauptentlad- ung gezündet	seriell geschaltete Funkenstrecken eigene Hochspan- nungsversorgung 25 kV/16 J wird 2 µsec vor der Hauptentlad- ung gezündet	parallel geschal- tete Funkenstrecken über 70 pF - Kon- densatoren direkt an die Hauptent- ladung gekoppelt
Elektrodenform	Chang	Rogowski		Chang
aktives Volumen (H×B×L)	0.8×0.8×27 cm ³	0.7×0.64×35 cm ³	0.6×0.9×16 cm ³	1×1×80 cm ³
Spannungsver- sorgung und typ. Ladespannung	2-stufige Marx- bank 3 nF pro Stufe 70 kV	5-stufige Marx- bank 16.2 nF pro Stufe 20 kV	LC-Verdoppler- schaltung 4.8 nF pro Stufe 45 kV	2-stufige Marx- bank 10 nF pro Stufe 60 kV
typ. E/N-Wert	7 · 10 ⁻¹⁶ Vcm ²	6 · 10 ⁻¹⁶ Vcm ²	6 · 10 ⁻¹⁶ Vcm ²	2.5 · 10 ⁻¹⁶ Vcm ²
typ. Entladungs- energiedichte	100 $\frac{J}{l \cdot atm}$	100 $\frac{J}{l \cdot atm}$	140 $\frac{J}{l \cdot atm}$	22 $\frac{J}{l \cdot atm}$
Abstimm- bereich	9R(10)- 9R(32) 9P(10)- 9P(32) 10R(8)-10R(32) 10P(8)-10P(32)	abstimmbar im 9R-/10R-Zweig nicht in den P-Zweigen	10R(10)-10R(28) 10P(10)-10P(26)	9R(6)- 9R(28) 9P(8)- 9P(28) 10R(6)-10R(30) 10P(10)-10P(26)
Ausgangspuls- energie bei 10R(16)	150 mJ	80-120 mJ	60-80 mJ	300 mJ
Bandbreite (FWHM)	3.6 GHz	4 GHz	4.2 GHz	4.8 GHz
Pulsdauer	50 nsec	100 nsec	50 nsec	130 nsec
Wiederholrate	0.5 Hz	0.3-2 Hz		0.5 Hz
Auskoppel- spiegel	Ge 50% Refl.	Ge 65% Refl.	Ge 80% Refl. eben	Ge 70% Refl. R = 25 m
Gitter	150 l/mm	150 l/mm	150 l/mm	150 l/mm
Teleskop	1:3	1:2.5		1:3

Tab. 6 Vergleich der wesentlichen Eigenschaften bisher veröffentlichter Hochdruck-CO₂-Laser mit denen des in dieser Arbeit entwickelten Lasers.

I.2. Der CH₃F-Raman-Laser

Die Erzeugung kohärenter FIR-Strahlung durch optisches Pumpen von molekularen Gasen kann entweder durch stimulierte resonante Übergänge zwischen Molekülniveaus oder durch den stimulierten Ramaneffekt erfolgen. Die beiden Möglichkeiten sind in Abb. 21 skizziert. Im ersten Fall erfolgt die Erzeugung der FIR-Strahlung in zwei Schritten: durch resonante Absorption der Pumpstrahlung wird eine Überbesetzung eines Rotationszustandes in einem angeregten Schwingungszustand erzeugt. Kohärente FIR-Strahlung entsteht dann durch stimulierte Übergänge zwischen dem überbesetzten Rotationsniveau und seinem Nachbarniveau. Die Frequenz der FIR-Strahlung ist dabei durch den Energieabstand der Rotationsniveaus fest vorgegeben. Beim Ramaneffekt handelt es sich um einen Zweiphotonenprozeß: das Molekül absorbiert ein Pumpphoton und emittiert simultan ein FIR-Photon. Die Differenz der Energie der beiden Photonen wird zur Anregung des Moleküls verwendet. Bei hohen Intensitäten der Pumpstrahlung verläuft dieser Prozeß stimuliert. In diesem Fall ist keine Übereinstimmung der beiden Frequenzen mit Frequenzen resonanter Übergänge im Molekül erforderlich; nur die Differenzfrequenz entspricht einer resonanten Anregung des Moleküls. Der stimulierte Ramaneffekt erlaubt damit die abstimmbare Erzeugung kohärenter FIR-Strahlung, wenn eine abstimmbare Pumpquelle zur Verfügung steht.

Methylfluorid (CH₃F) bietet beide Möglichkeiten für die Erzeugung kohärenter FIR-Strahlung. So war der erste optisch gepumpte FIR-Laser (Chang et al. /7/) ein von einem CO₂-Laser gepumpter CH₃F-Laser des ersten Typs: die resonante Absorption der 9P(20)-Strahlung des CO₂-Lasers führt zur Emission der bekannten 496.1 μm Strahlung von CH₃F. FIR-Erzeugung durch stimulierte Ramanemission in CH₃F wurde von Biron et al. /15/ gezeigt. Obwohl sie infolge des verwendeten TEA-CO₂-Lasers die FIR-Strahlung nicht abstimmbare erzeugen konnten, war ihre Arbeit ein wichtiger Schritt für die Entwicklung abstimmbarer FIR-Laser. Sie demonstrierten erstmals, daß bei genügend starker Pumpintensität eine stimulierte Ramanstreuung in CH₃F möglich ist, auch wenn die Pumpfrequenz bis zu 30 GHz von der Frequenz eines Rotations-Schwingungs-Übergangs in CH₃F abweicht. Dies ist die größte bei FIR-Lasern bisher beobachtete Abweichung, die üblicherweise bei 2 GHz liegt /63/. Die Ergebnisse von Biron et al. wurden in den letzten Jahren von mehreren Gruppen zur Erzeugung kontinuierlicher abstimmbarer FIR-Strahlung ausgeweitet, indem ein Hochdruck-CO₂-Laser als Pumpquelle verwendet wurde. Danly et al. /17/ demonstrierten eine abstimmbare Erzeugung von FIR-Strahlung im Bereich von 33 cm^{-1} – 40 cm^{-1} , Mathieu et al. /16/ sogar im Bereich von 25 cm^{-1} – 45 cm^{-1} . Izatt et al. zeigten, daß FIR-Strahlung auch bei kürzeren Wellenlängen, nämlich in einer Reihe von Frequenzintervallen zwischen 57 cm^{-1} und 70 cm^{-1} , durch stimulierte Ramanstreuung

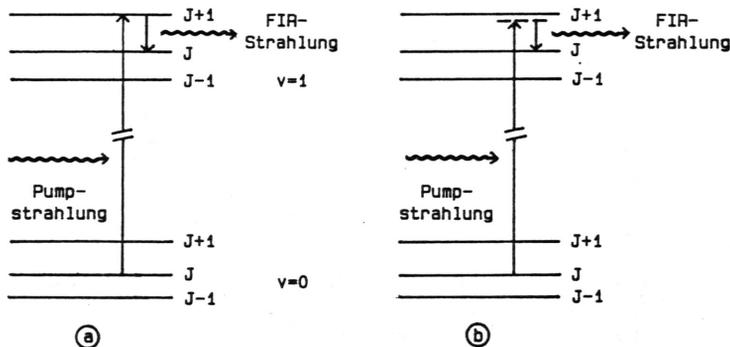


Abb. 21 Erzeugung von FIR-Strahlung durch einen resonanten Zweistufenprozess (a) und stimulierten Ramaneffekt (b).

in dem isotopischen Molekül $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ kontinuierlich erzeugt werden kann /75/. (Die Eigenschaften der von ihnen verwendeten Hochdruck- CO_2 -Laser sind in Tab. 6 zusammengefaßt.)

In diesem Kapitel wird erstmals die vollständige Emissionscharakteristik eines von einem 20 atm- CO_2 -Laser gepumpten CH_3F -Raman-Lasers vorgestellt, die von 23 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} reicht, und die Effizienz des Lasers untersucht /76,77/. Bevor nun der Aufbau des Lasers und seine charakteristischen Eigenschaften geschildert werden, seien kurz die Grundlagen der abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung durch stimulierte Ramanstreuung in CH_3F besprochen.

2.1 Stimulierte Ramanemission in CH_3F

2.1.1 Energieniveauschema eines CH_3F -Moleküls

CH_3F ist ein symmetrisches Kreiselmolekül mit C_{3v} -Symmetrie und besitzt 6 verschiedene Normalschwingungen, die alle sowohl infrarotaktiv als auch ramanaktiv sind /36/. Für die Diskussion in diesem Abschnitt ist von ihnen nur die ν_3 -Normalschwingung, die sog. C-F-Streckschwingung, die in Abb. 22 skizziert ist, relevant. Ihre Grundfrequenz beträgt $\nu_3 = 1048.62\text{ cm}^{-1}$. Das oszillierende Dipolmoment zeigt in Richtung der Figurenachse.

Zur Beschreibung der Rotationszustände eines CH_3F -Moleküls sind 3 Quantenzahlen nötig, die üblicherweise mit J , K und M bezeichnet werden. J beschreibt den Betrag des Drehim-

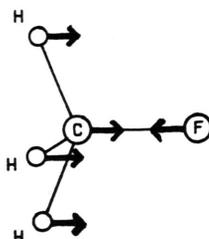


Abb. 22

ν_3 -Normalschwingung von CH_3F .

pulses, K seine Komponente in Richtung der Figurenachse. Die möglichen Werte von K sind $K = 0, 1, \dots, J$, wobei jeder Zustand mit $K \neq 0$ zweifach entartet ist entsprechend der Möglichkeit der Rotation um die Figurenachse in oder entgegen dem Uhrzeigersinn. M ($-2J \leq M \leq 2J$) bezeichnet letztendlich die verschiedenen Einstellmöglichkeiten des Gesamtdrehimpulses bezüglich einer raumfesten Achse. Solange eine solche nicht ausgezeichnet ist, ist jeder Zustand $|J, K\rangle$ $2(2J + 1)$ -fach entartet, falls $K \neq 0$ bzw. $(2J + 1)$ -fach entartet, falls $K = 0$. Die Gesamtenergie eines Rotationszustandes $|J, K\rangle$ errechnet sich nach

$$E_{JK}^v = h [B^v J(J+1) + (A^v - B^v)K^2 - D_J^v J^2(J+1)^2 - D_{JK}^v J(J+1)K^2 - D_K^v K^4] \quad (23)$$

A und B sind dabei die Rotationskonstanten; sie hängen vom Trägheitsmoment für die Rotation um die Symmetrieachse bzw. um eine Achse senkrecht dazu ab (es gilt $A - B > 0$, d.h. CH_3F ist ein prolates Molekül), die Konstanten D_J , D_{JK} und D_K berücksichtigen die Zentrifugalaufweitung. Die Kennzeichnung der Konstanten mit dem Index v berücksichtigt, daß sie für die verschiedenen Zustände $|v\rangle$ der ν_3 -Schwingung unterschiedliche Größen besitzen. Tab. 7 gibt die Werte der Konstanten für die Moleküle $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ und $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ an. Die Gesamtenergie eines Zustands $|v, J, K\rangle$ setzt sich aus Schwingungs- und Rotationsenergie zusammen: $E_{vJK} = h(v + \frac{1}{2})\nu_3 + E_{JK}^v$.

	$^{12}\text{CH}_3\text{F}$	$^{13}\text{CH}_3\text{F}$
ν_3	31436.558 GHz	30803.473 GHz
B^0	25536.15 MHz	24862.79 MHz
B^1	25197.56 MHz	24542.27 MHz
$(A^1 - B^1) - (A^0 - B^0)$	44.1 MHz	31.36 MHz
D_J^0	60.26 KHz	59.42 KHz
D_J^1	57.43 KHz	56.27 KHz
D_{JK}^0	439.46 KHz	425.18 KHz
D_{JK}^1	518.22 KHz	478.91 KHz
$(D_K^1 - D_K^0)$	-101.35 KHz	-69.46 KHz

Tab. 7 Molekülkonstanten für CH_3F nach /78/.

Die relative Besetzung $\rho_{JK}^v = \frac{N_v^K}{N^v}$ des Rotationszustandes $|J, K\rangle$ bezüglich der Besetzung N^v des zugehörigen Schwingungszustandes $|v\rangle$ errechnet sich nach der Boltzmannverteilung unter Berücksichtigung des statistischen Gewichts g_{JK} des Zustands $|J, K\rangle$:

$$\rho_{JK}^v \sim g_{JK} \exp\left(-\frac{E_{JK}^v}{kT}\right) \quad (24a)$$

Hierbei gilt:

$$g_{JK} = \begin{cases} 8(2J+1) & K \bmod 3 = 0; K \neq 0 \\ 4(2J+1) & \text{sonst} \end{cases} \quad (24b)$$

Dies folgt aus dem oben erwähnten Entartungsgrad des Niveaus $|J, K\rangle$ zusammen mit Symmetriebetrachtungen über den Austausch der drei identischen Wasserstoffkerne (Kernspin $I = \frac{1}{2}$) innerhalb des CH_3F -Moleküls /36/. Die relativen Besetzungen $\rho_{JK}^{v=0}$ sind für verschiedene festgehaltene K -Werte als Funktion von J in Abb. 23 aufgetragen für eine Temperatur $T = 300$ K. Man sieht, daß die Zustände mit $K = 3$ die größte relative Besetzung besitzen; sie werden daher den größten Beitrag zur Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung liefern. Das Maximum der einzelnen Besetzungsverteilungen liegt etwa bei $J = 11$.

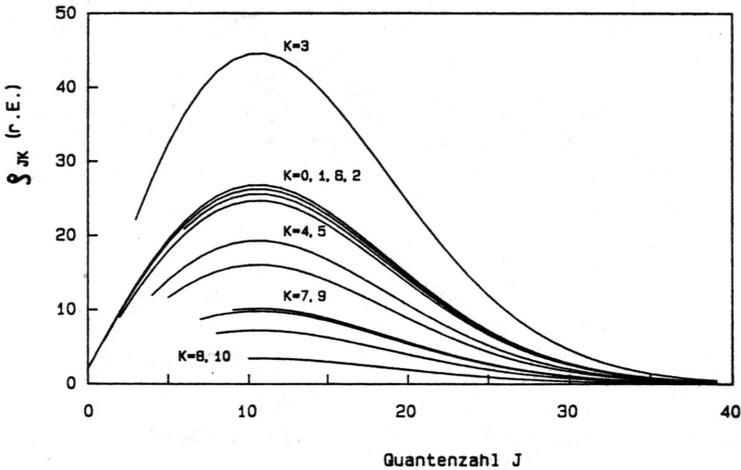


Abb. 23 Relative Besetzung der Rotationszustände des Schwingungsgrundzustandes in CH_3F .

Die Auswahlregeln für die Änderung der Rotationsquantenzahlen bei Rotations-Schwingungs-Übergängen lauten:

$$\Delta J = 0, \pm 1 \quad \Delta K = 0 \quad \text{für } K \neq 0$$

$$\Delta J = \pm 1 \quad \Delta K = 0 \quad \text{für } K = 0$$

Die Übergänge mit $\Delta J = 1$ bilden den sog. *R*-Zweig, die Übergänge mit $\Delta J = -1$ den *P*-Zweig (analog zum CO_2 -Molekül). Der zusätzliche Zweig mit $\Delta J = 0$ heißt *Q*-Zweig. Ein Übergang wird dabei wieder charakterisiert durch die Quantenzahlen des tieferliegenden Niveaus. Aus Gl.(23) errechnet man beispielsweise die Frequenz des Übergangs $|0, J, K\rangle \rightarrow |1, J+1, K\rangle$:

$$\begin{aligned} R(J, K) = & \nu_3 + K^2[(A^1 - B^1) - (A^0 - B^0)] - K^4(D_K^1 - D_K^0) \\ & + (J+1)[(B^1 + B^0) - K^2(D_{JK}^1 + D_{JK}^0)] \\ & + (J+1)^2[(B^1 - B^0) - K^2(D_{JK}^1 - D_{JK}^0) - (D_J - D_J^0)] \\ & - 2(J+1)^3[D_J^0 + D_J^1] - (J+1)^4[D_J - D_J^0] \end{aligned} \quad (25)$$

Einsetzen der Konstanten aus Tab. 7 zeigt, daß man für ein gegebenes *J* eine Vielzahl eng benachbarter Übergänge entsprechend den zu *J* gehörenden Quantenzahlen *K* erhält. Ihre Frequenzen sind alle innerhalb eines Intervalls von $\pm 0.01 \text{ cm}^{-1}$ um die Frequenz des Übergangs $R(J, 3)$ verteilt, der ja nach Abb. 23 den dominanten Beitrag aller Übergänge $R(J, K)$ liefert. In Abschnitt I.2.3.1 wird gezeigt, daß bei dem hier vorgestellten Lasersystem zur abstimmbaren FIR-Erzeugung der minimal erkennbare Frequenzunterschied 0.04 cm^{-1} beträgt. Man kann daher alle Übergänge $R(J, K)$ mit dem Übergang $R(J, 3)$ identifizieren. Dieser sei in Zukunft einfach mit $R(J)$ bezeichnet. Entsprechendes gilt für den *P*- und *Q*-Zweig. Der Überlapp von Rotations-Schwingungs-Übergängen in CH_3F und dem Emissionsbereich des im vorigen Kapitel beschriebenen Hochdruck- CO_2 -Lasers (Abb. 16 b) ist in Tab. 8 zusammengefaßt.

Emissionsbereich des Hochdruck- CO_2 -Lasers	Rotations-Schwingungs-Übergänge in CH_3F
9R: $1067 \text{ cm}^{-1} - 1087 \text{ cm}^{-1}$	R(13) - R(26) $^{12}\text{CH}_3\text{F}$
9P: $1037 \text{ cm}^{-1} - 1059 \text{ cm}^{-1}$	Q(1) - Q(30) $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ R(6) - R(20) $^{13}\text{CH}_3\text{F}$
10R: $964 \text{ cm}^{-1} - 984 \text{ cm}^{-1}$	P(32) - P(39) $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ P(23) - P(32) $^{13}\text{CH}_3\text{F}$
10P: $932 \text{ cm}^{-1} - 956 \text{ cm}^{-1}$	—

Tab. 8 Rotations-Schwingungs-Übergänge in CH_3F innerhalb des Emissionsbereichs des Hochdruck- CO_2 -Lasers.

Zum Schluß seien noch die wichtigsten Relaxationsmechanismen in CH_3F besprochen. Wie schon beim CO_2 -Molekül diskutiert, ist auch beim CH_3F -Molekül der energetische Abstand benachbarter Rotationsniveaus klein gegen die kinetische Translationsenergie der Moleküle bei einer Temperatur $T = 300$ K. Durch Stöße der Moleküle untereinander erfolgt daher ein schneller Austausch von Rotations- und Translationsenergie der Moleküle (R-T-Transfer). Die charakteristische Relaxationszeit τ_{RT} beträgt nach Trappeniérs /79/: $\tau_{RT} \cdot p = 8$ nsec \cdot torr für kleine J ($J \leq 20$). Mit zunehmendem J nimmt τ_{RT} jedoch zu. Das Energiegleichgewicht innerhalb des ν_3 -Schwingungssystems stellt sich durch den Austausch von Schwingungsenergie infolge Stöße der Moleküle untereinander (V-V-Transfer) in einer Zeit τ_{VV} ein, für die gilt: $\tau_{VV} \cdot p = 5$ μ sec \cdot torr /63/. Der Austausch von Vibrationsenergie und Translationsenergie der Moleküle durch Stöße (V-T-Transfer) erfolgt wesentlich langsamer. Die Zeitkonstante τ_{VT} für diesen Prozeß beträgt $\tau_{VT} \cdot p = 1.7$ msec \cdot torr /80/. Bei einem Betriebsdruck von $p = 17$ Torr erhält man somit die Zeiten:

$$\tau_{RT} = 0.5 \text{ nsec} \quad \tau_{VV} = 300 \text{ nsec} \quad \tau_{VT} = 100 \mu\text{sec}$$

Da die Dopplerverbreiterung in CH_3F bei $T = 300$ K nur einige MHz beträgt /39/, ist die Stoßverbreiterung der Prozeß, der die Linienbreite eines Rotations-Schwingungs-Übergangs bestimmt. Die Linienform der Übergänge ist damit durch eine Lorentzform beschreibbar. Für das obige Beispiel errechnet man aus τ_{RT} mit Hilfe von Gl.(4) eine Halbwertsbreite (FWHM) von $\Delta\nu = 0.02$ cm^{-1} für die Linien $R(J)$ mit $J \leq 20$. Für $J > 20$ nimmt die Linienbreite ab.

2.1.2 Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung in CH_3F

Bei der Ramanstreuung eines Photons (Frequenz ν_p , Wellenvektor \vec{k}_p) an einem Molekül, das einen ramanaktiven Übergang zwischen 2 Niveaus |1>, |2) (ihre Energiedifferenz sei $h\nu_{21}$) besitzt, wird dieses Photon vernichtet, während gleichzeitig ein gestreutes Photon (Frequenz ν_s , Wellenvektor \vec{k}_s) entsteht und das Molekül in den angeregten Zustand |2) übergeht. Hierbei gilt $\nu_s = \nu_p - \nu_{21}$. Läßt man Laserstrahlung der Frequenz ν_p und Intensität I_p in z -Richtung auf eine Zelle mit Volumen V , die N ramanaktive Moleküle enthalten möge, fallen, gilt für die Intensität I_s des gestreuten Lichts der Frequenz ν_s , wenn man von allen möglichen Streuprozessen nur die mit $\vec{k}_s \parallel \vec{k}_p \parallel \hat{z}$ betrachtet:

$$\frac{dI_s}{dz} = g(\nu_p) I_p \left(I_s + \frac{h\nu_s c}{V} \right) \quad /81, 82/ \quad (26)$$

c ist die Lichtgeschwindigkeit (der Brechungsindex von CH_3F kann $n = 1$ gesetzt werden!), $g(\nu_p)$ ist ein Maß für die Stärke der inelastischen Streuung von Photonen der Frequenz ν_p

am Übergang $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$. Mit Hilfe der Störungstheorie 2.Ordnung erhält man für $g(\nu_p)$ /81,82/:

$$g(\nu_p) = \frac{1}{c^2 \epsilon_0^2 \hbar^3} \frac{\nu_s}{\Delta\nu} \frac{N}{V} < \left| \frac{1}{2\pi} \sum_j \left\{ \frac{(\vec{e}_s \vec{\mu}_{2j})(\vec{e}_p \vec{\mu}_{j1})}{\nu_p - \nu_{j1}} + \frac{(\vec{e}_p \vec{\mu}_{2j})(\vec{e}_s \vec{\mu}_{j1})}{\nu_s + \nu_{j1}} \right\} \right|^2 > \quad (27)$$

Hierbei ist $\Delta\nu$ die Breite (FWHM) des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$. Die Summation erfolgt über alle möglichen Eigenzustände des Moleküls. \vec{e}_s und \vec{e}_p seien die Polarisationsrichtungen der einfallenden und der gestreuten Strahlung, $\vec{\mu}_{ab}$ bezeichne das Dipolmatrixelement für den Übergang $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ ($\nu_{ab} = \frac{1}{\hbar}(E_b - E_a)$). Die Klammern $< \dots >$ bedeuten eine Mittelung über die statistisch verteilten Orientierungen der Moleküle im Gas, die sich in den Dipolmatrixelementen widerspiegeln.

Im Falle kleiner Pumpintensitäten I_p ist die Intensität der in die Mode ν_s, \vec{k}_s gestreuten Strahlung sehr gering ($I_s \ll \frac{\hbar\nu_s c}{V}$). Gl.(26) beschreibt dann die spontane Ramanstreuung. Bei sehr starken Pumpintensitäten I_p wird jedoch auch die Intensität der gestreuten Strahlung I_s groß. Gilt $I_s \gg \frac{\hbar\nu_s c}{V}$, hat Gl.(26) die exponentielle Lösung

$$I_s(z) = I_s(z=0) e^{g(\nu_p) I_p z} \quad (28)$$

Man spricht in diesem Fall von stimulierter Ramanstreuung. Die Größe $\alpha(\nu_p) = g(\nu_p) I_p$ heißt die zugehörige Kleinsignalverstärkung. Sie ist abhängig von der Pumpintensität I_p .

Abb.24 a zeigt die schematische Darstellung für einen Ramanprozeß an einem Schwingungsübergang $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ in einem Molekül. Liegt dabei die Pumpfrequenz ν_p in der Nähe eines resonanten Übergangs, der zudem noch infrarotaktiv ist (Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$), können in Gl.(27) alle Summanden bis auf $\frac{(\vec{e}_s \vec{\mu}_{23})(\vec{e}_p \vec{\mu}_{31})}{\nu_p - \nu_{31}}$ ignoriert werden, da dieser sowohl infolge des sehr klein werdenden Nenners als auch infolge der nicht verschwindenden Dipolmatrixelemente des Zählers (auch der Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ sei als infrarotaktiv angenommen!) den dominanten Beitrag in der Summe liefert. Der Ramanprozeß wird in diesem Fall als quasiresonant bezeichnet. Für die Kleinsignalverstärkung erhält man aus (27):

$$\alpha(\nu_p) = \frac{1}{c^2 \epsilon_0^2 \hbar^3} \frac{\nu_s}{\Delta\nu} \frac{N}{V} < \left| \frac{1}{2\pi} \frac{(\vec{e}_s \vec{\mu}_{23})(\vec{e}_p \vec{\mu}_{31})}{\nu_p - \nu_{31}} \right|^2 > I_p \quad (29)$$

Sie ist somit symmetrisch um die Frequenz ν_{31} des infrarotaktiven Übergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ und nimmt $\sim \frac{1}{\delta p^2}$ ($\delta p = \nu_p - \nu_{31}$) ab. (Gl.(29) gilt natürlich nicht für $\nu_p = \nu_{31}$!).

Nahezu alle FIR-Laser, die auf der Basis der stimulierten Ramanstreuung arbeiten, können durch den quasiresonanten Ramanprozeß aus Abb.24 a beschrieben werden. Denn bei den meisten molekularen Gasen wurde eine stimulierte Ramanemission nur beobachtet, wenn die Frequenz des Pumpasers (üblicherweise ein TEA-CO₂-Laser) in unmittelbarer Nähe

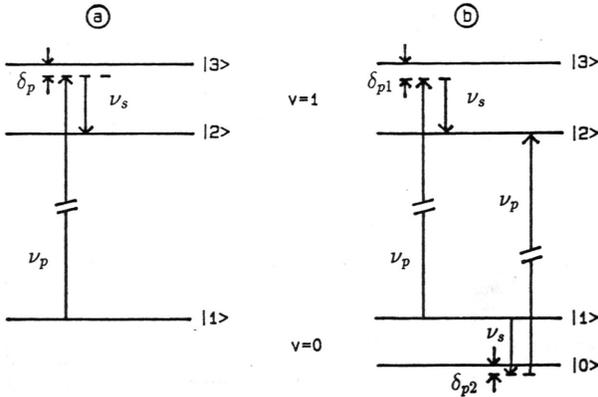


Abb. 24 Schematische Darstellung für einen einfachen und doppelten quasiresonanten Ramanprozeß an einem Schwingungsübergang in einem Molekül.

$v = 0$ bezeichne den Schwingungsgrundzustand, $v = 1$ den ersten angeregten Zustand; die Niveaus $|0\rangle, |1\rangle$ bzw. $|2\rangle, |3\rangle$ seien ein Teil der zugehörigen Rotationszustände.

eines resonanten Übergangs (Abweichungen ≤ 2 GHz /63/) lag. Die anderen Übergänge im Molekül waren dann soweit von der Pumpfrequenz entfernt, daß 3 Molekülniveaus zur Beschreibung der Lasertätigkeit ausreichten.

Bei größeren Abweichungen der Pumpfrequenz ν_p von der des resonanten Übergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, wie sie von Biron et al. /15/ in CH_3F beobachtet wurden ($\delta p \sim 30$ GHz), gilt diese Aussage nicht mehr. Dann kann nämlich für einen zusätzlichen Rotationszustand $|0\rangle$ im Schwingungsgrundzustand der Übergang $|0\rangle \rightarrow |2\rangle$ infrarotaktiv sein und eine Frequenz, die ebenfalls nahe an der Pumpfrequenz ν_p liegt, besitzen (Abb. 24 b). Ein zweiter quasiresonanter Ramanprozeß wird dann wirksam, bei dem das gestreute Photon sozusagen im Schwingungsgrundzustand emittiert wird. Da bei beiden Prozessen das Molekül vom Zustand $|1\rangle$ in den Zustand $|2\rangle$ übergeht, ist die Frequenz des gestreuten Photons in beiden Fällen die gleiche, nämlich $\nu_s = \nu_p - \nu_{21}$. Beide Prozesse tragen damit zur Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Streuung von Photonen der Frequenz ν_p in solche der Frequenz ν_s bei. Man spricht von einem doppelten quasiresonanten Ramaneffekt. Da die Wahrscheinlichkeitsamplituden für die beiden Prozesse bei der Berechnung der Kleinsignalverstärkung zu addieren

sind, erhält man

$$\alpha(\nu_p) = \frac{1}{c^2 \varepsilon_0^2 \hbar^3} \frac{\nu_s}{\Delta\nu} \frac{N}{V} < \left| \frac{1}{2\pi} \left\{ \frac{(\vec{e}_s \vec{\mu}_{23})(\vec{e}_p \vec{\mu}_{31})}{\nu_p - \nu_{31}} + \frac{(\vec{e}_p \vec{\mu}_{20})(\vec{e}_s \vec{\mu}_{01})}{\nu_{20} - \nu_p} \right\} \right|^2 > I_p \quad (30)$$

Mit $\delta p_1 = \nu_p - \nu_{31}$, $\delta p_2 = \nu_p - \nu_{20}$ und $\tau_{RT} = \frac{1}{\pi \Delta\nu}$ (R-T-Relaxationszeit) folgt

$$\alpha(\nu_p) = \frac{\pi \tau_{RT} \nu_s}{c^2 \varepsilon_0^2 \hbar^3} \frac{N}{V} < \left| \frac{1}{2\pi} \left\{ \frac{(\vec{e}_s \vec{\mu}_{23})(\vec{e}_p \vec{\mu}_{31})}{\delta p_1} - \frac{(\vec{e}_p \vec{\mu}_{20})(\vec{e}_s \vec{\mu}_{01})}{\delta p_2} \right\} \right|^2 > I_p \quad (31)$$

Die Kleinsignalverstärkung $\alpha(\nu_p)$ ist damit nicht mehr symmetrisch um die Frequenz ν_{31} bzw. ν_{20} , wie sie es beim einfachen Ramanprozeß in Abb. 24 a war, sondern zeigt durch den Interferenzterm in Gl.(31) ein wesentlich komplizierteres Verhalten. Dies soll im folgenden genauer betrachtet werden.

In CH_3F wird der Ausgangszustand $|1\rangle$ gemäß Abschnitt I.2.1.1 charakterisiert durch ein Tripel von Quantenzahlen $|1\rangle = |0, J, K\rangle$. Unter der Berücksichtigung, daß die infrarotaktiven Rotations-Schwingungs-Übergänge $|1\rangle \rightarrow |3\rangle, |0\rangle \rightarrow |2\rangle$ den Auswahlregeln $\Delta J = 0, \pm 1, \Delta K = 0$ und die infrarotaktiven reinen Rotationsübergänge $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ bzw. $|1\rangle \rightarrow |0\rangle$ der Auswahlregel $\Delta J = -1, \Delta K = 0$ gehorchen müssen, gibt es bei gegebenem Ausgangszustand $|1\rangle = |0, J, K\rangle$ 3 verschiedene Sätze für die Zustände $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$. Dies sind:

$$\begin{aligned} \Delta J = +1 & \quad |0\rangle = |0, J-1, K\rangle \quad |1\rangle = |0, J, K\rangle \quad |2\rangle = |1, J, K\rangle \quad |3\rangle = |1, J+1, K\rangle \\ \Delta J = -1 & \quad |0\rangle = |0, J-1, K\rangle \quad |1\rangle = |0, J, K\rangle \quad |2\rangle = |1, J-2, K\rangle \quad |3\rangle = |1, J-1, K\rangle \\ \Delta J = 0 & \quad |0\rangle = |0, J-1, K\rangle \quad |1\rangle = |0, J, K\rangle \quad |2\rangle = |1, J-1, K\rangle \quad |3\rangle = |1, J, K\rangle \end{aligned}$$

Je nachdem, ob die resonanten Rotations-Schwingungs-Übergänge, in deren Nähe die Pumpfrequenz ν_p liegt, der Auswahlregel $\Delta J = 1$, $\Delta J = -1$ oder $\Delta J = 0$ gehorchen, spricht man von *R-Zweig-*, *P-Zweig-* oder *Q-Zweig-Pumpen*. Die Kleinsignalverstärkung läßt sich nach Danly et al. /63/ in der folgenden Form zusammenfassen:

$$\alpha_{JK}(\nu_p) = \frac{\pi \tau_{RT} \nu_s}{c^2 \varepsilon_0^2 \hbar^3} \frac{N}{V} \rho_{JK}^0 \left(A_{JK} \frac{\mu_{IR}^2 \mu_o^2}{\delta p_1^2} + B_{JK} \frac{\mu_{IR}^2 \mu_o^2}{\delta p_2^2} - C_{JK} \frac{\mu_{IR}^2 \mu_o^2}{\delta p_1 \delta p_2} \right) \cdot I_p \quad (32)$$

Die Koeffizienten A_{JK} , B_{JK} und C_{JK} sind für jeden der erwähnten 3 Fälle verschieden. Sie beinhalten neben der Mittelung über die statistisch verteilten Orientierungen der Moleküle auch die relative Polarisation von Pumpstrahlung und gestreuter FIR-Strahlung. Nach Danly et al. /63/ erhält man maximale Verstärkung beim *R-* bzw. *P-Zweig-Pumpen*, wenn Pumpstrahlung und gestreute Strahlung parallel polarisiert sind, und beim *Q-Zweig-Pumpen*, wenn sie senkrecht zueinander polarisiert sind. Die Koeffizienten sind für diese

TABLE I
GAIN COEFFICIENTS FOR SYMMETRIC-TOP MOLECULES

	A_{JK}	B_{JK}	C_{JK}
$R(0)$	$\frac{[(J+1)^2 - K^2](4J^2 + 8J + 5)}{15(J+1)^2(2J+1)^2(2J+3)}$	$\frac{(J^2 - K^2)(4J^2 + 1)}{15J^2(2J+1)^2(2J-1)}$	$\frac{4(J^2 - K^2)[(J+1)^2 - K^2]}{15J(J+1)(2J+1)^2}$
$Q(\perp)$	$\frac{(J^2 - K^2)K^2(4J+1)}{30J^2(J+1)(2J+1)}$	$\frac{(J^2 - K^2)K^2(4J-1)}{30J^2(2J+1)(J-1)}$	$\frac{(J^2 - K^2)K^2(4J+1)}{15J^2(J-1)(2J+1)}$
$P(0)$	$\frac{2(J^2 - K^2)[(J-1)^2 - K^2]}{15J(2J+1)(J-1)(2J-1)}$	$\frac{2(J^2 - K^2)[(J-1)^2 - K^2]}{15J(2J+1)(J-1)(2J-1)}$	$\frac{4(J^2 - K^2)[(J-1)^2 - K^2]}{15J(2J+1)(J-1)(2J-1)}$

Tab. 9 Kleinsignalverstärkungskoeffizienten A_{JK} , B_{JK} und C_{JK} für R -, P - und Q -Zweig-Pumpen nach /63/.

Fälle in Tab. 9 angegeben. μ_{IR} ist das induzierte Dipolmoment, das mit der Anregung der ν_3 -Normalschwingung von CH_3F verbunden ist, μ_o das permanente Dipolmoment des Moleküls. Es gilt $\mu_{IR} = 0.205$ Debye, $\mu_o = 1.905$ Debye (1 Debye = $3.33 \cdot 10^{-30}$ Cb-m). $\frac{N}{V} \rho_J^0$ gibt die Konzentration der Moleküle an, die sich im Anfangszustand $|0, J, K\rangle$ befinden.

Die abstimmbare Erzeugung von FIR-Strahlung erfolgte in dieser Arbeit durch R -Zweig-Pumpen. Welche FIR-Frequenzen dabei erzeugt werden können, soll im folgenden anhand von Abb. 25 und 26 diskutiert werden. Abb. 25 zeigt schematisch den doppelten Ramanprozeß für das R -Zweig-Pumpen für 3 verschiedene Pumpfrequenzen, wobei das Ausgangsniveau $|1\rangle$ mit $|0, J\rangle$ bezeichnet sei. (Wie schon in Abschnitt I.2.1.1 diskutiert, wird der dominante Beitrag zur Kleinsignalverstärkung durch Zustände mit $K = 3$ geliefert, da diese die größte relative Besetzungszahl aufweisen. Für die folgende Diskussion sei daher die Abhängigkeit der Verstärkung von K ignoriert; es sei stets $K = 3$ angenommen.) Daß der Energieabstand der Rotationszustände $|0, J-1\rangle$ und $|0, J\rangle$ geringer ist als der Abstand der Zustände $|1, J\rangle$ und $|1, J+1\rangle$, wie in Abb. 25 angedeutet ist, läßt sich mit Gl.(23) nachrechnen. Die durchgezogene Linie in Abb. 26 zeigt das Ergebnis einer numerischen Berechnung der Abhängigkeit der Kleinsignalverstärkung von der Frequenz ν_p der Pumpstrahlung nach Danly et al. /63/ für den Fall des Ausgangsniveaus $|0, J = 22\rangle$. (Hierin wurden auch die Beiträge der Zustände mit $K \neq 3$ berücksichtigt!) Das Ergebnis aus Abb. 26 läßt sich folgendermaßen verstehen:

Im Falle von $R(J-1) < \nu_p < R(J)$ (Abb. 25 a bzw. Punkt ① in Abb. 26) gilt $\delta p_1 = \nu_p - R(J) > 0$ und $\delta p_2 = \nu_p - R(J-1) > 0$. Die Abweichung δp_2 der Frequenz ν_p von der Resonanzfrequenz $R(J-1)$ ist jedoch viel größer als die entsprechende Abweichung δp_1 . Der wesentliche Beitrag zur Verstärkung $\alpha(\nu_p)$ wird daher durch den ersten Summanden in Gl.(32) geliefert; es gilt also $\alpha(\nu_p) \sim \frac{1}{\delta p_1^2}$. Eine Verringerung von ν_p in Richtung der Resonanzfrequenz $R(J)$ bewirkt somit eine Zunahme der Verstärkung.

Wird ν_p soweit erniedrigt, daß $R(J-1) < \nu_p < R(J)$ gilt (Abb. 25 b bzw. Punkt ② in

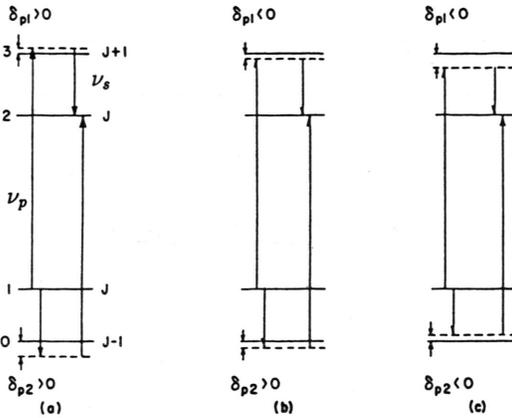


Abb. 25 Schematische Darstellung des doppelten Ramanprozesses für das R-Zweig-Pumpen für 3 verschiedene Pumpfrequenzen.

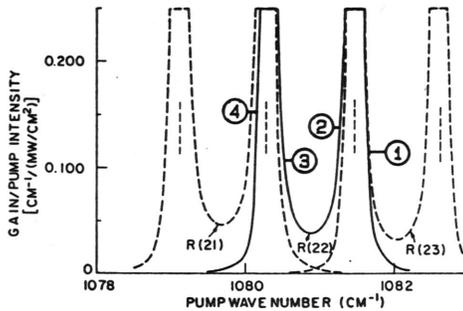


Abb. 26 Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung als Funktion der Frequenz ν_p der Pumpstrahlung (R-Zweig-Pumpen) nach /63/. Die gestrichelten senkrechten Linien geben die Lage der Resonanzfrequenzen R(20), R(21), R(22) und R(23) an. Die Erklärung der Verstärkungskurven findet sich im Text.

Abb. 26), ändert δp_1 sein Vorzeichen ($\delta p_1 < 0$), während nach wie vor $\delta p_2 > 0$ gilt. Der Interferenzterm in Gl.(32) wird positiv (Tab. 9 zeigt, daß $C_{JK} \geq 0 \forall J, K$). Die Verstärkung $\alpha(\nu_p)$ nimmt daher mit wachsendem Abstand von ν_p und $R(J)$ schwächer als $\sim \frac{1}{\delta p_1^2}$ ab. Sie ist somit bei negativen Werten von δp_1 größer als bei den entsprechenden positiven Werten und ist daher nicht mehr symmetrisch um $R(J)$, wie sie es bei einem einfachen Ramanprozeß wäre. Bei einer weiteren Reduktion von ν_p wird $\delta p_2 < |\delta p_1|$, so daß die Verstärkung wieder ansteigt (Punkt ③ in Abb. 26), da dann die Ramanemission im Grundzustand überwiegt.

Unterschreitet ν_p schließlich die Resonanzfrequenz $R(J-1)$, d.h. $\nu_p < R(J-1) < R(J)$ (Abb. 25 c bzw. Punkt ④ in Abb. 26), sind sowohl δp_1 als auch δp_2 negativ. Der dominante Beitrag zur Verstärkung wird jetzt, da $|\delta p_2| \ll |\delta p_1|$ gilt, durch den zweiten Summanden in Gl.(32) geliefert. Es gilt $\alpha(\nu_p) \sim \frac{1}{\delta p_2^2}$; die Verstärkung nimmt also mit zunehmendem Abstand von ν_p und $R(J-1)$ rasch ab.

Das Abschneiden der Verstärkungskurve $\alpha(\nu_p)$ im Bereich der Maxima bei den Resonanzfrequenzen $R(J)$ und $R(J-1)$ trägt der Tatsache Rechnung, daß Gl.(32) im Falle $\delta p_1 \rightarrow 0$ und $\delta p_2 \rightarrow 0$ nicht mehr gültig ist.

Die gestrichelten Kurven in Abb. 26 zeigen die Kleinsignalverstärkung $\alpha(\nu_p)$ für die stimulierte Ramanstreuung an den Übergängen, die von den Niveaus $|0, J-1 = 21\rangle$ bzw. $|0, J+1 = 23\rangle$ ausgehen. Für eine gegebene Frequenz ν_p erfolgt die stimulierte Ramanstreuung an dem Übergang, der für diese Frequenz die höchste Kleinsignalverstärkung zeigt. Diese Aussage ist von entscheidender Bedeutung für die Berechnung der Frequenz der gestreuten Strahlung. Für Frequenzen ν_p mit $R(J-1) < \nu_p < R(J)$ bestimmt die Ramanstreuung am Übergang $|0, J\rangle \rightarrow |1, J\rangle$ die Kleinsignalverstärkung $\alpha(\nu_p)$. Die Frequenz ν_s der gestreuten Strahlung errechnet sich gemäß dem Schema in Abb. 25 zu:

$$\nu_s = \nu_p - R(J) + \Delta(J) \quad \text{für } R(J-1) < \nu_p < R(J) \quad (33a)$$

Hierbei ist

$$h\Delta(J) = h(2J(B^1 - D_{JK}^1 K^2) - 4D_J^1 J^3) \simeq h2B^1(J+1) \quad (33b)$$

der Energieabstand der Molekülzustände $|1, J+1\rangle$ und $|1, J\rangle$. Es besteht somit in diesem Fall ein linearer Zusammenhang zwischen der Frequenz ν_p der Pumpstrahlung und der Frequenz ν_s der gestreuten Strahlung.

Wenn jedoch ν_p die Resonanzfrequenz $R(J)$ überschreitet, wird die stimulierte Ramanstreuung am Übergang $|0, J+1\rangle \rightarrow |1, J+1\rangle$ dominant. Nach Gl.(33) gilt dann für die Frequenz ν_s :

$$\nu_s = \nu_p - R(J+1) + \Delta(J+1) \quad R(J) < \nu_p < R(J+1)$$

Mit Hilfe von Gl.(23) und Tab.7 rechnet man leicht nach, daß gilt: $\Delta(J) - R(J) < \Delta(J + 1) - R(J + 1)$. Dies bedeutet, daß die Frequenz ν_s einen höheren Wert besitzt als die einfache Weiterführung von Gl.(33) über $R(J)$ hinaus liefern würde. Wenn die Frequenz ν_p der Pumpstrahlung also die Frequenz eines resonanten \bar{U} bergangs $R(J)$ in Richtung höherer Frequenzen überschreitet, tritt eine Unstetigkeitsstelle in der Abstimmkurve $\nu_s = \nu_s(\nu_p)$ auf; die Frequenz ν_s nimmt schlagartig um den Betrag $2(B^0 - B^1)(J + 1)$ zu (dieser Wert folgt aus den Gln.(23) und (33)).

Die vollständige Abstimmkurve $\nu_s = \nu_s(\nu_p)$, wenn ν_p kontinuierlich alle Frequenzen innerhalb des 9R-Emissionsbereichs des Hochdruck-CO₂-Lasers durchläuft (Abb.16), ist in Abb.27 a gezeigt. Die senkrechten Striche kennzeichnen dabei die Position der resonanten Rotations-Schwingungs- \bar{U} bergänge $R(J)$ in CH₃F, bei deren Überschreiten jeweils der diskutierte Sprung in der Frequenz ν_s der gestreuten Strahlung auftritt. Bei einer Variation der Frequenz des CO₂-Lasers zwischen 1069 cm⁻¹ und 1086 cm⁻¹ erhält man somit FIR-Strahlung im Bereich von 23 cm⁻¹ bis 45 cm⁻¹. Die tatsächlich emittierten Frequenzen überdecken dabei etwa 75% dieses Bereichs, wie man mit Hilfe der Gln.(23) und (33) leicht nachrechnet. Abb.27 b zeigt noch die Abstimmkurve, die man bei Verwendung des isotopischen ¹³CH₃F erhalten würde. In diesem Fall müssen Emissionsfrequenzen des Hochdruck-CO₂-Lasers im 9P-Emissionsbereich verwendet werden (1038 cm⁻¹ - 1058 cm⁻¹; Tab.8). Man erhält dann FIR-Strahlung im Bereich von 11 cm⁻¹ bis 34 cm⁻¹. Experimente mit ¹³CH₃F wurden jedoch in dieser Arbeit nicht durchgeführt.

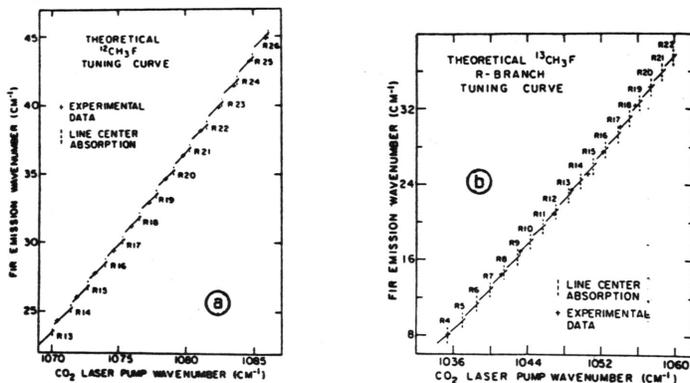


Abb.27 Abstimmkurven $\nu_s = \nu_s(\nu_p)$ für das R-Zweig-Pumpen nach /15/ in ¹²CH₃F (a) und ¹³CH₃F (b).

Wie bereits erwähnt, kann eine Erzeugung von FIR-Strahlung durch stimulierte Ramanstreuung in CH_3F auch durch *P*- bzw. *Q*-Zweig-Pumpen erfolgen. Eine ausführliche Diskussion des in diesen Fällen zu erwartenden Abstimmbereichs findet sich bei Danly et al. /63/. Beide Fälle sind jedoch in der Praxis von geringer Bedeutung, da beim *Q*-Zweig-Pumpen der tatsächliche Abstimmbereich sehr gering ist, während beim *P*-Zweig-Pumpen die Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung sehr viel geringer ist als beim *R*-Zweig-Pumpen /63/. Ursache ist, daß beim *P*-Zweig-Pumpen die Übergänge von Zuständen $|0, J\rangle$ mit $J \geq 32$ (Tab. 8) ausgehen, die eine sehr geringe relative Besetzung aufweisen (Abb. 23).

2.2 Aufbau des CH_3F -Raman-Lasers

Abb. 28 zeigt den vollständigen Aufbau des aus Hochdruck- CO_2 -Laser und CH_3F -Raman-Laser bestehenden Lasersystems zur abstimmbaren Erzeugung von FIR-Strahlung. Der CH_3F -Laser, der ähnlich dem von Mathieu et al. /16/ veröffentlichten Laser konstruiert wurde, bestand aus einem Wellenleiterrohr aus Quarzglas (Länge 1.2 m, Innendurchmesser 7 mm), das in einem Rohr aus V_2A -Stahl (Länge 1.25 m, Durchmesser 35 mm) montiert war. Als Eintrittsfenster für die CO_2 -Laserstrahlung wurde ein BaF_2 -Fenster verwendet, das Austrittsfenster für die FIR-Strahlung bestand aus einer 3 mm dicken TPX-Scheibe, die für Strahlung der Frequenz $\leq 40 \text{ cm}^{-1}$ eine Transmission von 85% besaß. Es wurde auch kristalliner Quarz als Material für das Austrittsfenster getestet, der für Strahlung aus dem 9*R*-Emissionsbereich des Hochdruck- CO_2 -Lasers ein Reflexionsvermögen von etwa 70% besitzt /16/ und somit eine bessere Ausnutzung der Pumpstrahlung erlaubt hätte. Die Absorption der restlichen nichtreflektierten Strahlung im Quarzfenster führte jedoch zu allmählichen Oberflächenschäden, insbesondere wenn die Ausbreitungsrichtung der CO_2 -Laserstrahlung von der optischen Achse abwich und so eine Fokussierung der Strahlung durch die Krümmung des Wellenleiterrohres an dessen Ende erfolgte. Dieses Problem trat bei TPX nicht auf. Da die nach dem Durchlauf durch die Ramanröhre noch übrigbleibende Strahlung des CO_2 -Lasers jedoch nicht vollständig vom TPX-Fenster absorbiert wurde, wurde sie außerhalb der Röhre durch eine Platte aus kristallinem Quarz abgeblockt. Sowohl das Eintritts- wie auch das Austrittsfenster waren mittels Federbälgen aus Edelstahl am Rohr des Raman-Lasers befestigt. Damit war eine Einjustierung der Fenster senkrecht zur optischen Achse möglich, um so die Rückkopplung für die FIR-Strahlung - sowohl BaF_2 wie TPX reflektieren einen geringen Bruchteil dieser Strahlung - zu optimieren.

Der Gasdruck im Inneren der Ramanzelle wurde mit Hilfe eines Kapselfeder-Vakuummeters (Fa. Leybold, 0-100 Torr) kontrolliert. Die typischen Drücke lagen im Bereich von 10-30 Torr. Mit Hilfe einer Kryopumpe war es möglich, das relativ teure CH_3F -Gas in einen speziellen Aufbewahrungsbehälter zu pumpen. Auf diese Weise ging kein Gas verloren, wenn Druckreduktionen erforderlich waren.

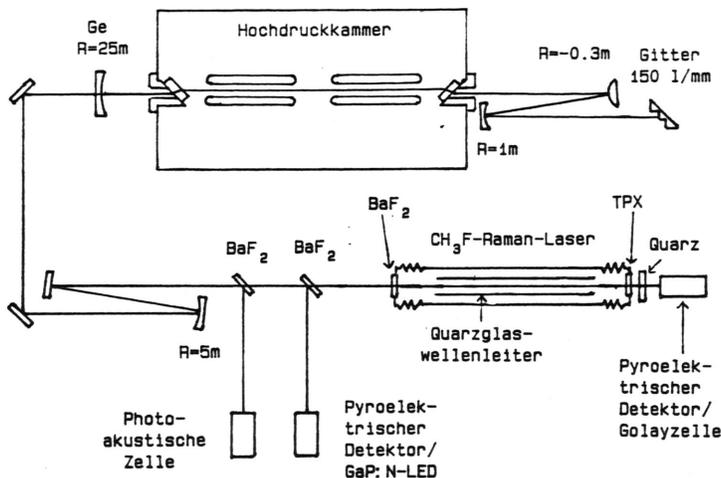


Abb. 28 Optische Anordnung des Hochdruck-CO₂-Lasers und CH₃F-Raman-Lasers.

Die Strahlung des CO₂-Lasers wurde mit Hilfe eines konkaven Molybdänspiegels auf den Eingang des Wellenleiterrohres fokussiert. Dort koppelt die Strahlung des Pumplasers, die, wie in Abschnitt I.1.3.5 diskutiert, eine annähernd Gaußsche Querschnittsverteilung wie eine sich frei ausbreitende TEM₀₀-Mode besitzt, an die Moden des Quarzglaswellenleiters. Nach Hall et al. /83/ erhält man eine maximale Kopplung, nämlich 98%, zwischen einer sich frei ausbreitenden TEM₀₀-Mode und der EH₁₁-Wellenleitermode, die die geringsten Dämpfungsverluste in einem Quarzglaswellenleiter besitzt /63/, wenn für die Brennweite des fokussierenden Hohlspiegels gilt:

$$f = 0.644 \pi \frac{aD}{2\lambda} \quad (34)$$

Hierbei ist a der Radius des Wellenleiterrohres, D die $\frac{1}{2}$ -Breite für die Querschnittsverteilung der Intensität der Pumpstrahlung. Im vorliegenden Fall galt $a = 3.5$ mm, $D \approx 8$ mm und $\lambda \approx 9.3$ μ m. Die optimale Brennweite betrug $f \approx 3$ m. Da ein Spiegel mit solcher Brennweite nicht zur Verfügung stand, wurde ein Spiegel mit $f = 2.5$ m verwendet. Die CO₂-Strahlung hatte dann einen Durchmesser ($\frac{1}{2}$ -Breite) von etwa 4 mm an der Eintrittsöffnung des Wellenleiters. Die Transmission des leeren Wellenleiters betrug 85%. Dies war einerseits eine Folge der nicht ganz optimalen Einkopplung; andererseits bewirken geringfügige

Krümmungen des Wellenleiterrohres in Längsrichtung, wie sie durch die Montage im Innern der Stahlröhre stets vorkamen, eine deutliche Erhöhung der Dämpfungsverluste /83/.

Wie in Abschnitt I.1.3.5 geschildert, wurde ein Teil der Strahlung des CO₂-Lasers mittels einer BaF₂-Scheibe in eine photoakustische Zelle mit CH₃F-Gas eingekoppelt, um die Emissionsfrequenz des Hochdruck-CO₂-Lasers überprüfen zu können. Mit einer zweiten BaF₂-Scheibe wurde ein weiterer Teil der Pumpstrahlung ausgekoppelt und auf einen Pyrodetektor (Gentec ED100, Ansprechempfindlichkeit 134 V/J) fokussiert, um die Pulsenergie des CO₂-Lasers zu kontrollieren. Der Pyrodetektor konnte wieder durch eine als Photoleitungs-detektor wirkende, auf 4.2 K gekühlte GaP:N-Leuchtdiode ersetzt werden, falls die zeitliche Struktur der in den CH₃F-Raman-Laser eintretenden Strahlung erfaßt werden sollte. Die Beobachtung der zeitlichen Struktur der FIR-Laserpulse erfolgte mit Hilfe eines schnellen Pyrodetektors (Moletron P5-01, Anstiegszeit 0.5 nsec) bzw. mit Hilfe von Schottkydioden (SD017 der Fa. Farran Technology, Sperrschichtkapazität 2.5 fF). Meßtechnische Aspekte dazu werden in Abschnitt I.3.2 behandelt. Zur Messung der Pulsenergie der FIR-Strahlung wurden eine Golayzelle mit Diamantfenster bzw. der pyroelektrische Detektor P5-01 in der Energiemeßmode verwendet. Die Golayzelle wurde nur für eine relative Messung der Pulsenergie benutzt, eine Abschätzung des Absolutwertes der Pulsenergie erfolgte mit Hilfe des Pyrodetektors. Das Verfahren dabei war wie folgt: Im Abstand von 10 cm vom Ende des Wellenleiterrohres ließ sich die Querschnittsverteilung der Energiedichte der FIR-Strahlung als eine annähernd Gaußsche Verteilung mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von $\Delta = 4.5$ mm beschreiben. Unter Energiedichte sei im folgenden der durch eine Flächeneinheit tretende Teil der gesamten Pulsenergie verstanden. Der Pyrodetektor mit einem kreisförmigen Detektorelement (Durchmesser $D_p = 1$ mm) wurde im Zentrum der Verteilung angebracht. Für die Energiedichte \dot{E}_0 der Laserstrahlung in diesem Zentrum galt dann, da $D_p \ll \Delta$ war:

$$\dot{E}_0 = \frac{4}{D_p^2 \pi} \frac{U}{R_0} \quad (35)$$

Hierbei war U die vom Pyrodetektor gelieferte Spitzenspannung und R_0 dessen Ansprechempfindlichkeit in $\frac{V}{J}$. Die Gesamtenergie E_0 des Laserpulses war dann

$$E_0 = \int_0^\infty \int_0^\infty \dot{E}_0 \exp\left(-\frac{4 \ln 2}{\Delta^2}(x^2 + y^2)\right) dx dy = \frac{1}{\ln 2} \frac{\Delta^2}{D_p^2} \frac{U}{R_0} \quad (36)$$

Die Ansprechempfindlichkeit R_0 des Pyrodetektors lag nach Herstellerangaben bei voller Absorption der auffallenden Strahlung in der Oberflächenbeschichtung des Detektorkristalls bei $5.7 \frac{mV}{\mu J}$ für eine kapazitive Last von 70 pF. (Diese war durch Kabel und Oszillograph gegeben.) Da jedoch die Beschichtung des Detektors für FIR-Strahlung ein endliches Reflexionsvermögen besaß, wirkte dieser insbesondere wegen seines hohen Brechungsindex

als Fabry-Perot-Etalon für die FIR-Strahlung. Die Reflexion des Detektorkristalls war somit wellenlängenabhängig und konnte Werte von über 80% erreichen /84/. Die tatsächliche Ansprechempfindlichkeit des Detektors ist somit eine Funktion der Frequenz ν_{FIR} der FIR-Strahlung, d.h. $R = R(\nu_{FIR})$, wobei stets gilt $R(\nu_{FIR}) \leq R_0$. Beispielsweise ergab ein Vergleich der Signale des Pyrodetektors bei einer Frequenz $\nu_{FIR} = 29.35 \text{ cm}^{-1}$ mit denen der Golayzelle, deren Ansprechempfindlichkeit -sie kann nach Herstellerangaben als unabhängig von der Frequenz der einfallenden Strahlung angenommen werden - mit Hilfe der $9.3 \text{ }\mu\text{m}$ -Strahlung des Hochdruck- CO_2 -Lasers abgeschätzt wurde, eine Ansprechempfindlichkeit des Pyrodetektors von $R(29.35 \text{ cm}^{-1}) \simeq 0.2 \dots 0.5 R_0$. Die Gesamtenergie E_0 der FIR-Laserpulse bei einer Frequenz $\nu_{FIR} = 29.35 \text{ cm}^{-1}$ ergab sich also aus Gl.(36) unter Einfügen eines multiplikativen Korrekturfaktors γ , dessen Wert zwischen 2 und 5 liegt. Durch die Auswertung der Experimente zur nichtlinearen Absorption von FIR-Strahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium, von denen in Kapitel II dieser Arbeit berichtet wird, läßt sich der Korrekturfaktor sogar auf einen Wert $\gamma \simeq 3.5$ festlegen (siehe Abschnitt II.3). (Eine Verwendung der Golayzelle als frequenzunabhängiger Detektor zur Bestimmung des Absolutwerts der Pulsenergie war nicht möglich, da sie für andere Zwecke benötigt wurde - siehe Abschnitt I.3.1.)

Die Bestimmung der Frequenz der emittierten FIR-Strahlung erfolgte mit Hilfe eines Fabry-Perot-Interferometers. Dieses bestand aus 2 auf Ringe aufgespannte metallische Kreuzgitter (Gitterkonstante $35 \text{ }\mu\text{m}$, Drahtstärke $7 \text{ }\mu\text{m}$). Eine Änderung des Abstands der beiden Gitter war mit einem schrittmotorgetriebenen Präzisionsschlitten, auf den eines der Gitter montiert war, in Einheiten von $1 \text{ }\mu\text{m}$ möglich. Detaillierte Informationen über solche Interferometer finden sich in /85,86/. Mit Hilfe der $336 \text{ }\mu\text{m}$ -Strahlung eines HCN-Lasers (Bandbreite $\sim 10 \text{ MHz}$ /87/) wurde die Finesse \mathcal{F} des Interferometers zu $\mathcal{F} = 45$ bestimmt; dies entspricht einem Reflexionsvermögen der Kreuzgitter von 93%. In der 60. Ordnung lag damit das Auflösungsvermögen bei $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 3.7 \cdot 10^{-4}$. Die maximale Transmission betrug 30%; als Detektor der durch das Fabry-Perot-Interferometer transmittierten Strahlung wurde die Golayzelle verwendet. Die Aufnahme eines Interferogramms erfolgte schrittweise in Abständen von $1 \text{ }\mu\text{m}$; der erwähnte ECB-Bus-Rechner steuerte den Schrittmotor. Das Verfahren wird in Abschnitt I.3.2 genauer geschildert; ein Beispiel eines Interferogramms findet sich im folgenden Abschnitt. Als Test wurde die resonante $496.1 \text{ }\mu\text{m}$ -Laserlinie von CH_3F vermessen, die man durch Pumpen mit der $9P(20)$ -Linie eines CO_2 -Lasers erhält. Das Resultat (496 ± 0.3) μm stimmt hervorragend mit dem tatsächlichen Wert überein.

2.3 Eigenschaften des CH_3F -Raman-Lasers

Die Erzeugung der FIR-Strahlung erfolgte durch R -Zweig-Pumpen von $^{12}\text{CH}_3\text{F}$ mit Hilfe der $9R$ -Emissionsstrahlung des Hochdruck- CO_2 -Lasers, wie in Abschnitt I.2.1.2 diskutiert. Die Resonatorkonfiguration des letzteren war die in Abb. 15 gezeigte.

2.3.1 Emissionscharakteristik

Abb. 29 zeigt die vollständige Emissionscharakteristik des CH_3F -Raman-Lasers, d.h. die Pulsenergie der emittierten Strahlung als Funktion ihrer Frequenz für einen Gasdruck von 17 Torr. Die Frequenz des CO_2 -Lasers wurde hierbei von 1069 cm^{-1} bis 1085 cm^{-1} ($9R(6) - 9R(30)$) in Schritten von 0.04 cm^{-1} variiert; seine Pulsenergie war konstant auf 180 mJ gehalten worden. Die Frequenz der FIR-Strahlung wurde nach Gl.(33) aus der Frequenz der CO_2 -Laserstrahlung berechnet, die wiederum gemäß der Diskussion in Abschnitt I.1.3.5 mit Hilfe der Winkelposition des Gitters und der photoakustischen Zelle ermittelt wurde. Als Detektor wurde die Golayzelle wegen der Unabhängigkeit ihrer Ansprechempfindlichkeit von der Frequenz verwendet. Da diese jedoch eine sehr hohe Empfindlichkeit besitzt, mußte die FIR-Strahlung über einen konvexen Spiegel aufgeweitet werden, um eine Überlastung zu vermeiden. Der Einsatz von Abschwächern verbot sich, da deren Abschwächungsfaktor durch Vielstrahlinterferenzen innerhalb und zwischen den Abschwächern frequenzabhängig war (siehe Abschnitt I.3.3). Mit Hilfe der Golayzelle konnte somit nur eine Relativmessung der Pulsenergie erfolgen. Eine absolute Energiemessung erfolgte bei einer FIR-Frequenz von 29.35 cm^{-1} mit Hilfe des Pyrodetektors gemäß dem in I.2.2 beschriebenen Verfahren (Korrekturfaktor $\gamma = 3.5$).

Das Emissionsspektrum in Abb. 29 zeigt, daß eine kontinuierliche Erzeugung von FIR-Strahlung im Frequenzbereich von 23 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} in einzelnen Intervallen möglich ist, die eine typische Breite von 1.2 cm^{-1} und untereinander einen Abstand von etwa 0.4 cm^{-1} besitzen. Der tatsächliche Abstimmbereich überdeckt somit 70% des Bereichs von 23 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} . Dies ist in ausgezeichneter Übereinstimmung mit der theoretischen Abstimmkurve, die zum Vergleich in Abb. 29 b miteingezeichnet ist.

Innerhalb der einzelnen Intervalle zeigen sich starke Variationen der FIR-Pulsenergie. So wird das scharfe Minimum, das etwa im Zentrum eines jeden Abstimmintervalls liegt, durch einen Zwei-Photonen-Absorptionsprozeß verursacht. Liegt nämlich die Frequenz ν_p des Pumplasers in der Mitte zwischen den Frequenzen von 2 benachbarten Rotations-Schwingungs-Übergängen in CH_3F , d.h. $\nu_p = \frac{1}{2}(R(J) + R(J-1))$, entspricht die Summe aus der Frequenz des CO_2 -Photons und der Frequenz $\nu_s = \nu_s(\nu_p)$ des zugehörigen FIR-Photons, wie man mittels der Gln.(23) und (33) nachrechnet, gerade der Frequenz des Übergangs $|0, J-1\rangle \rightarrow |1, J+1\rangle$. Die Position dieser Zwei-Photonen-Absorption bietet eine zusätzliche Kontrollmöglichkeit für die Emissionsfrequenz des CO_2 -Lasers. Daß die Pulsenergie der FIR-Strahlung für Frequenzen, die an den Rändern eines jeden Abstimmbereichs liegen und die damit Frequenzen des Pumplasers in der Nähe der Resonanzfrequenzen $R(J)$ entsprechen, abnimmt, widerspricht der theoretischen Berechnung der Kleinsignalverstärkung, die ja gerade für Frequenzen ν_p in der Nähe von $R(J)$ eine starke Zunahme der Kleinsignalverstärkung voraussagt (Abb. 26). Die Ursache dieses Phänomens wird in Abschnitt I.2.3.2 untersucht.

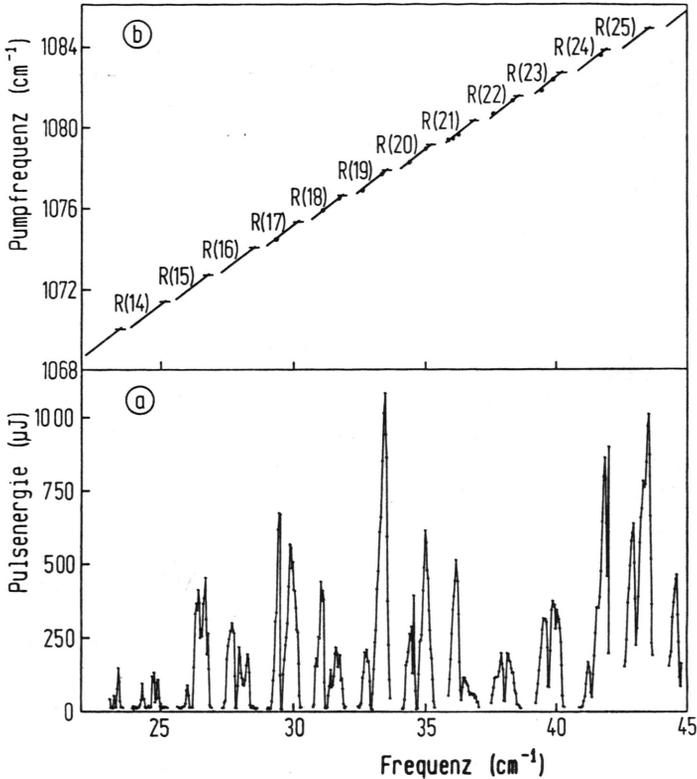


Abb. 29 Emissionscharakteristik des CH_3F -Raman-Lasers (a) mit theoretischer Abstimmkurve (b).

Die waagrechten Striche in (b) geben die Positionen der Rotations-Schwingungs-Übergänge $R(J)$ an, die Punkte zeigen Kontrollmessungen der Abstimmcharakteristik mit Hilfe eines Fabry-Perot-Interferometers.

Es sei noch erwähnt, daß wiederholte Messungen der Emissionscharakteristik des CH_3F -Raman-Lasers bei gleicher Energie des Pumpasers zwar stets in den wesentlichen Strukturen übereinstimmten, daß aber die relative Höhe der einzelnen Maxima der verschiedenen Abstimmintervalle von der Justierung des Ein- bzw. Austrittsfensters der Ramanzelle abhing.

Dies zeigt, daß die in Abschnitt I.2.2 erwähnte Rückkopplung der FIR-Strahlung bei der stimulierten Ramanemission eine Rolle spielt.

Eine Kontrolle der FIR-Frequenz wurde an vielen Stellen innerhalb der in Abb. 29 gezeigten Emissionscharakteristik mit Hilfe des im vorhergehenden Abschnitt erwähnten Fabry-Perot-Interferometers durchgeführt. Abb. 30 a zeigt das Beispiel eines Interferogramms für eine FIR-Emissionsfrequenz von 34.75 cm^{-1} , die nach der am Anfang dieses Kapitels beschriebenen Methode eingestellt worden war. Die Auswertung des Interferogramms (Maxima **A**) liefert für die Wellenlänge der emittierten Strahlung einen Wert von $287.3 \mu\text{m}$, was einer Frequenz von 34.8 cm^{-1} entspricht. Man erhält also eine sehr gute Übereinstimmung. Der Fehler von 0.05 cm^{-1} resultiert zum einen daraus, daß die Emissionsfrequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers nur auf $\pm 0.04 \text{ cm}^{-1}$ eingestellt werden konnte (dies entspricht einem Winkelschritt des schrittmotorgetriebenen Gitterdrehtisches - siehe Abschnitt I.1.3.5); zum anderen konnte auch die Abstandsänderung des Fabry-Perot-Interferometers, die für die Aufnahme der 4 aufeinanderfolgenden Maxima in Abb. 30 a nötig war, nur auf $\pm 1 \mu\text{m}$ (entsprechend der kleinstmöglichen Verschiebung des Präzisionsschlittens des Interferometers) genau angegeben werden, was einem Fehler von $\pm 0.3 \mu\text{m}$ bzw. $\pm 0.04 \text{ cm}^{-1}$ entspricht. Als Ergebnis läßt sich daher festhalten, daß die Einstellgenauigkeit der FIR-Frequenz über die Emissionsfrequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers etwa $\pm 0.05 \text{ cm}^{-1}$ beträgt. Die Punkte in Abb. 30 b geben die Resultate der analog dem obigen Beispiel durchgeführten Kontrollmessungen verschiedener FIR-Frequenzen an.

Mit Hilfe des Interferometers wurde auch die spektrale Verteilung der emittierten FIR-Strahlung untersucht. Das Interferometer wurde dabei in 60. Ordnung betrieben und besaß somit für Strahlung der Frequenz 34.8 cm^{-1} eine Auflösung von 0.013 cm^{-1} (390 MHz) (Abschnitt I.2.2). Die Auswertung der Interferogramme zeigte, daß sich die spektrale Verteilung der emittierten Strahlung ($\nu_{\text{FIR}} = 34.8 \text{ cm}^{-1}$) durch eine Gaußsche Verteilung beschreiben ließ, deren Halbwertsbreite (FWHM) etwa $\Delta\nu_L = (4 \pm 0.5) \text{ GHz}$ betrug und somit vergleichbar der Breite der Strahlung des Hochdruck- CO_2 -Lasers (4.8 GHz) war.

Das Interferogramm in Abb. 30 a zeigt, daß dort neben der (durch die Emissionsfrequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers eingestellten) Frequenz von 34.8 cm^{-1} (Maxima **A**) noch eine weitere Komponente mit der Frequenz 33.5 cm^{-1} enthalten war (Maxima **B**). Noch deutlicher ist dies in dem Interferogramm von Abb. 30 b zu sehen, das für eine Einstellung der Emissionsfrequenz des FIR-Lasers auf 36.47 cm^{-1} aufgenommen worden war. Hier beinhaltet die emittierte Strahlung 3 Frequenzkomponenten, nämlich die eingestellte Frequenz von 36.5 cm^{-1} (Maxima **A**) sowie die Frequenzen 35.2 cm^{-1} und 33.5 cm^{-1} (Maxima **B** und **C**). Der Ursprung dieser zusätzlichen Frequenzkomponenten ist den Energieniveauschemata in Abb. 30 zu entnehmen. Es handelt sich um der Ramanemission nachfolgende resonante reine Rotationsübergänge im angeregten Schwingungszustand $v = 1$. Geht ein CH_3F -Molekül beispielsweise bei der Ramanstreuung eines CO_2 -Photons vom Zustand $|0, J\rangle$ in den Zustand $|1, J\rangle$ über, so ist letzterer gegenüber dem Zustand $|1, J-1\rangle$ überbesetzt. Es

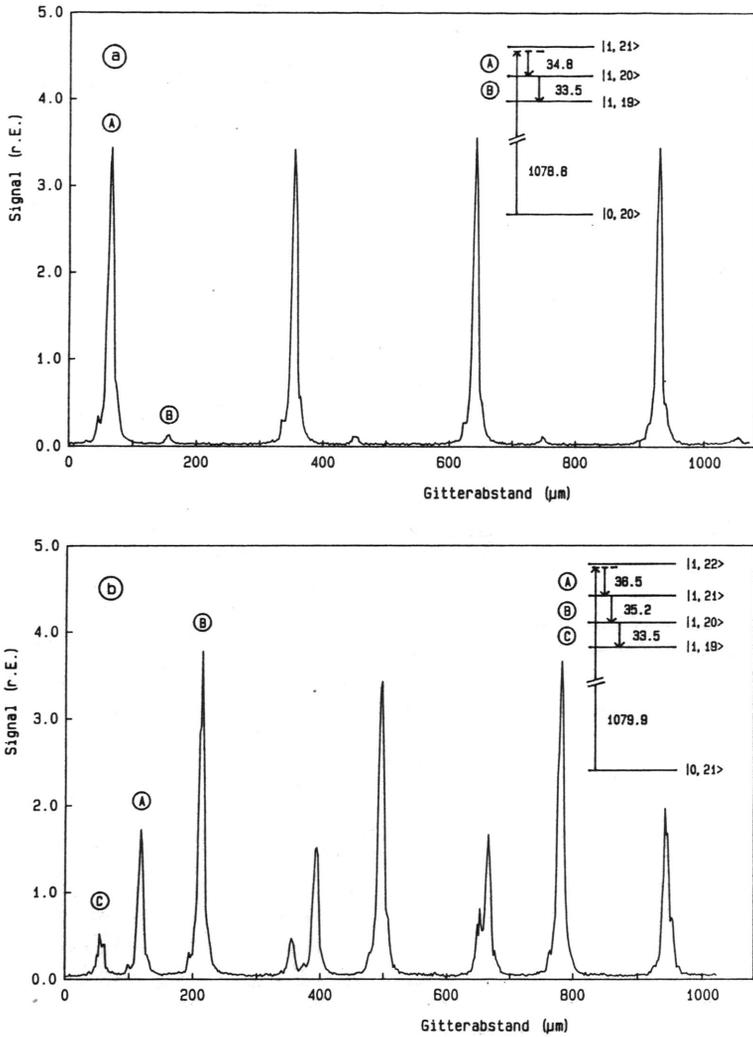


Abb. 30 Fabry-Perot-Interferogramme der emittierten FIR-Strahlung bei einer Frequenzeinstellung von 34.75 cm^{-1} (a) und 36.47 cm^{-1} (b). (Die eingezeichneten Niveauschemata werden im Text diskutiert.)

kommt zur stimulierten Emission von Strahlung der Frequenz, die dem Energieabstand der Zustände $|1, J\rangle$ und $|1, J-1\rangle$ entspricht. Dieser Prozeß setzt sich kaskadenartig zu niedrigeren Rotationszuständen fort. (Solche Übergänge wurden jüngst auch von Izatt et al. /88/ beobachtet.)

Diese Kaskadenübergänge traten nur bei sehr hohen FIR-Pulsenergien ($> 250 \mu\text{J}$) auf; denn der Aufbau einer Überbesetzung des Zustands $|1, J\rangle$ gegenüber dem Zustand $|1, J-1\rangle$ konkurriert mit dem R-T-Transfer, durch den sich in einer Zeit $\tau_{RT} \simeq 0.5 \text{ nsec}$ (CH_3F -Druck 17 Torr; siehe Abschnitt I.2.1.1) eine der Gastemperatur entsprechende Besetzungsverteilung der Rotationsniveaus im angeregten Schwingungszustand einstellt. Die Pulsenergie betrug etwa $350 \mu\text{J}$ im Falle von Abb. 30 a. Der Energieanteil der zweiten Frequenzkomponente betrug etwa 3% und konnte somit vernachlässigt werden. Dennoch konnten Situationen auftreten, wo dies nicht mehr möglich war. Ein Beispiel ist der in Abb. 30 b gezeigte Fall: Dort wurde die Ramanstrahlung (Frequenz 36.5 cm^{-1}) auf dem Weg zum Detektor durch Wasserdampf in Luft, der bei 36.6 cm^{-1} eine starke Absorptionslinie hat /89/, so stark geschwächt, daß der Detektor im wesentlichen nur mehr die Strahlung der Kaskadenübergänge, die nicht vom Wasserdampf absorbiert wurde, registrierte. Wäre es der Sinn des Experiments gewesen, den Absorptionskoeffizienten für Strahlung der Frequenz 36.5 cm^{-1} in Luft zu bestimmen, hätte das Experiment falsche Resultate geliefert. Eine sorgfältige Analyse der spektralen Verteilung der am Detektor ankommenden Strahlung ist also angebracht! Ein weiteres Beispiel dafür findet sich in Kapitel II dieser Arbeit.

2.3.2 Wirkungsgrad

Die Untersuchungen zum Wirkungsgrad des CH_3F -Raman-Lasers erfolgten für eine Emissionsfrequenz von 35.1 cm^{-1} . Die zugehörige Frequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers ($\nu_p = 1078.9 \text{ cm}^{-1}$) lag knapp (0.2 cm^{-1}) unterhalb der Frequenz des Rotations-Schwingungs-Übergangs $R(20) = 1079.1 \text{ cm}^{-1}$. Sämtliche Intensitätsangaben der CO_2 -Laserstrahlung in diesem Abschnitt beziehen sich auf die Intensität am Anfang bzw. Ende des Quarzglaswellenleiterrohres in der CH_3F -Ramanzelle. Der Durchmesser des CO_2 -Laserstrahls betrug dort etwa 4 mm (siehe Abschnitt I.2.2).

Abb. 31 zeigt zunächst die zeitliche Korrelation zwischen den CO_2 -Laserpulsen und den zugehörigen FIR-Pulsen. Beide Pulse wurden simultan mit dem in Abschnitt I.3.2 beschriebenen Verfahren aufgezeichnet. Die Struktur der CO_2 -Laserpulse ist geprägt durch die in Abschnitt I.1.4.2 besprochene Kopplung der longitudinalen Moden, die innerhalb der Bandbreite der CO_2 -Laserstrahlung enthalten sind. Der zeitliche Abstand der einzelnen Spitzen entspricht wieder der Umlaufzeit der Photonen im Resonator ($L = 3.3 \text{ m}$). Die FIR-Pulse zeigen bei schwachen Pumpintensitäten die gleiche zeitliche Struktur wie die CO_2 -Laserpulse

(Abb. 31 a). Aus Abb. 31 a liest man auch ab, daß stimulierte Ramanemission erst ab einer Schwellenintensität $I_{th} \approx 4 \frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$ der CO_2 -Laserstrahlung eintritt. Dieser Wert ist vergleichbar einem aus Abb. 26 abschätzbaren Wert: Oft wird nämlich die Schwellenintensität über die Beziehung $\alpha(\nu_p) L \approx 30$ (L = Länge der Ramanzelle) definiert. Bei dieser Bedingung erreicht die Strahlung, die am Beginn der Ramanzelle durch spontane Ramanstreuung entsteht und dort typische Intensitätswerte von $10^{-12} - 10^{-13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ besitzt, nach Durchlauf durch die Zelle experimentell detektierbare Intensitätswerte in der Größenordnung $1 - 10 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2} / 63$. Für $\nu_p = 1078.9 \text{ cm}^{-1}$ folgt aus Abb. 26 eine Schwellenintensität $I_{th} = 3.3 \frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$. Infolge der endlichen Bandbreite des Meßwerterfassungssystems (siehe Abschnitt I.3.2) ist die Modulationstiefe der CO_2 -Laserpulse in Wirklichkeit stärker als in Abb. 31 gezeigt. Die Intensität der Pumplaserstrahlung unterschreitet somit nach jeder Spitze die Schwellenintensität I_{th} ; die FIR-Leistung geht dann, wie in Abb. 31 a unten gezeigt, auf Null zurück. Auch die Halbwertsbreite der im FIR-Puls enthaltenen Spitzen ist aus Gründen der Bandbreite der Meßelektronik schmaler als in Abb. 31 a. Die gesamte Dauer des FIR-Pulses beträgt etwa 100 nsec und entspricht somit der Zeitdauer, in der die Intensität des CO_2 -Laserpulses oberhalb der Schwellenintensität I_{th} liegt.

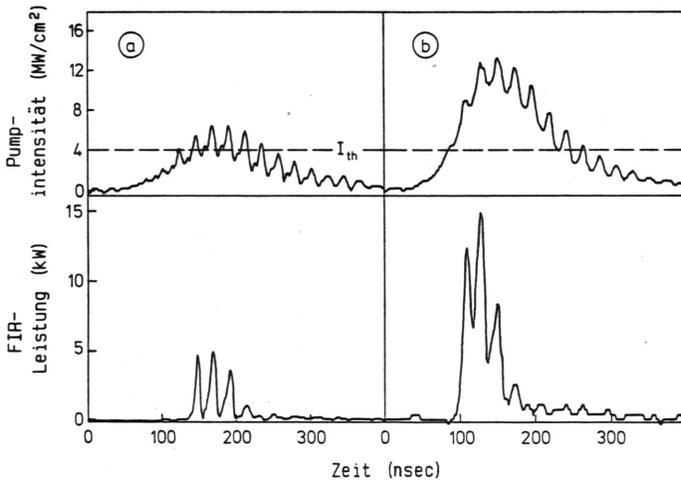


Abb. 31 CO_2 -Laserpulse (obere Kurven) und zugehörige FIR-Pulse (untere Kurven) für CO_2 -Laserpulsenergien von 100 mJ (a) und 250 mJ (b).

Bei hohen Intensitäten der CO_2 -Laserstrahlung erreicht die Leistung der FIR-Strahlung ihr

Maximum im ansteigenden Teil der CO₂-Laserpulse und nimmt bereits wieder ab, noch bevor die Intensität der Pumpstrahlung ihren Maximalwert angenommen hat. Insbesondere ist die Leistung der FIR-Strahlung bereits zu einem Zeitpunkt nahezu verschwunden, an dem die Intensität der CO₂-Laserstrahlung noch deutlich über der Schwellenintensität I_{th} liegt. Dies zeigt, daß die Kleinsignalverstärkung und damit der Wirkungsgrad für die Umsetzung der Photonen des CO₂-Lasers (Frequenz $\nu_p = 1078.9 \text{ cm}^{-1}$) in FIR-Photonen (Frequenz $\nu_{FIR} = 35.1 \text{ cm}^{-1}$) zeitabhängig ist.

Um die Ursache dieser zeitlichen Änderung der Kleinsignalverstärkung während des CO₂-Laserpulses zu ermitteln, wurde die Transmission der CH₃F-Ramanzelle für die Strahlung des CO₂-Lasers ($\nu_p = 1078.9 \text{ cm}^{-1}$) zeitaufgelöst untersucht. Dazu wurde die zeitliche Struktur der Laserpulse mit dem in Abschnitt I.3.2 beschriebenen Verfahren simultan vor und nach der Ramanzelle beobachtet. (Das Austrittsfenster aus TPX wurde in diesem Fall durch ein BaF₂-Fenster ersetzt; die Detektion der transmittierten Strahlung erfolgte wie die der einfallenden Strahlung mit einer auf 4.2 K gekühlten GaP:N-Leuchtdiode.)

Als Resultat ergab sich: Lag das Intensitätsmaximum der CO₂-Laserpulse unter der Schwellenintensität I_{th} für die stimulierte Ramanstreuung, waren die Pulsformen für die einfallende und transmittierte CO₂-Strahlung identisch; ein Teil der einfallenden Strahlung wurde jedoch im Innern der Ramanzelle absorbiert. Ein Vergleich der Transmission der Zelle mit und ohne CH₃F-Gas ergab, daß im Falle des verwendeten CH₃F-Gasdrucks von 21 Torr etwa 70% der einfallenden Strahlung absorbiert wurden. Dies entspricht einem Absorptionskoeffizienten $\alpha (1078.9 \text{ cm}^{-1}) = 0.01 \text{ cm}^{-1}$. Ein Blick auf die Linienbreite des Rotations-Schwingungs-Übergangs $R(20)$, die nach Abschnitt I.2.1.1 bei einem Druck von 21 Torr etwa 0.025 cm^{-1} beträgt, läßt den Schluß zu, daß die beobachtete Absorption der CO₂-Strahlung der Frequenz $\nu_p = 1078.9 \text{ cm}^{-1}$ der resonanten Absorption in den Flanken der Linie $R(20)$, deren Zentrum bei 1079.1 cm^{-1} liegt, zugeordnet werden kann, insbesondere da die CO₂-Strahlung eine Bandbreite von 0.16 cm^{-1} besitzt.

Bei hohen Intensitäten der CO₂-Laserpulse zeigte der transmittierte Puls eine deutlich andere zeitliche Form als der einfallende Puls (Abb. 32 a). So besaß er ein eindeutig erkennbares Minimum (Pfeil in Abb. 32 a) zu einem Zeitpunkt, an dem die Intensität des einfallenden Pulses noch zunahm. Das Minimum fällt zeitlich gesehen nahezu mit dem Emissionsmaximum der FIR-Strahlung (siehe Abb. 31 b) zusammen. Abb. 32 a erlaubt damit den Schluß, daß ein merklicher Anteil der einfallenden CO₂-Laser-Photonen durch stimulierte Ramanstreuung in FIR-Photonen umgewandelt wird. In Abb. 32 b ist die zeitliche Änderung der Transmission der Ramanzelle, die sich aus dem Verhältnis der Intensitäten der transmittierten und der einfallenden Strahlung ergibt, aufgetragen. Zu Beginn des CO₂-Laserpulses wird die Transmission ($\sim 35\%$) durch die erwähnte Resonanzabsorption der Laserstrahlung in der Flanke der $R(20)$ -Absorptionslinie bestimmt. Die Transmission durchläuft dann ein Minimum, das ein Zeichen für die starke Ramanstreuung der CO₂-Strahlung ist, und steigt anschließend

innerhalb von 50 nsec auf einen Wert von 60% an, und ist damit zum Zeitpunkt, an dem die Intensität des einfallenden Pulses ihr Maximum erreicht, deutlich höher als zu Beginn des Pulses. Dies zeigt, daß zu diesem Zeitpunkt ein großer Teil der CH_3F -Moleküle durch die Ramanstreuung bzw. die Resonanzabsorption der CO_2 -Strahlung vom Schwingungsgrundzustand in den angeregten Schwingungszustand überführt worden ist. Da die Lebensdauer des angeregten Schwingungszustands länger ist als die Dauer des CO_2 -Laserpulses (für 21 Torr beträgt $\tau_{\text{V}} = 240$ nsec, siehe Abschnitt I.2.1.1), stehen Moleküle, die sich im angeregten Zustand befinden, für Ramanprozesse im restlichen Teil des CO_2 -Laserpulses nicht mehr zur Verfügung. Die Ursache der Zeitabhängigkeit der Kleinsignalverstärkung bzw. des Wirkungsgrades ist also die Entvölkerung des Schwingungsgrundzustandes durch die genannten Prozesse.

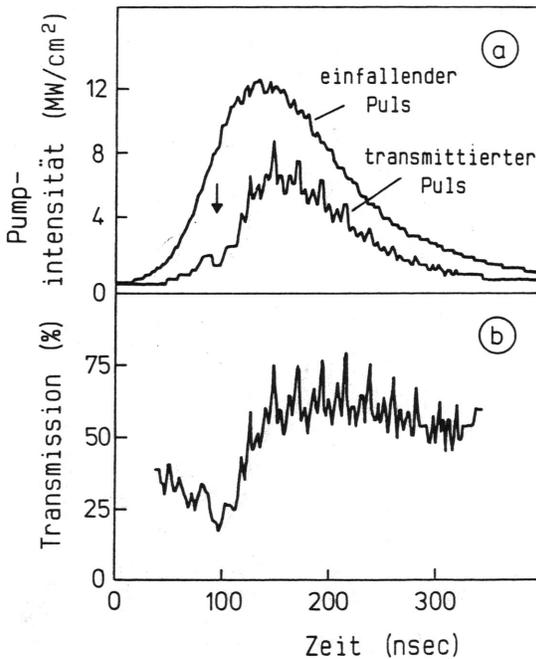


Abb. 32 Zeitliche Änderung der Transmission der CH_3F -Ramanzelle (b) für CO_2 -Strahlung der Frequenz 1078.9 cm^{-1} . (a) zeigt die zeitliche Struktur des einfallenden bzw. des transmittierten Pulses.

Die Resonanzabsorption der CO₂-Laserstrahlung, die um so stärker wird, je näher die Frequenz der Strahlung dem Zentrum eines Rotations-Schwingungs-Übergangs $R(J)$ kommt, ist auch (zusammen mit einer Reabsorption der FIR-Photonen durch reine Rotationsübergänge im Schwingungsgrundzustand /15/), die Ursache für die starke Abnahme der FIR-Pulsenergie an den Rändern der einzelnen Abstimmintervalle innerhalb der Emissionscharakteristik, die in Widerspruch zu dem theoretisch dort erwarteten Anstieg der Kleinsignalverstärkung steht.

Mit Hilfe von Abb. 32 b läßt sich auch eine Abschätzung über den Wirkungsgrad der Umwandlung von CO₂-Laser-Photonen der Frequenz 1078.9 cm⁻¹ in FIR-Photonen der Frequenz 35.1 cm⁻¹ durchführen: Durch Vergleich der Transmission im Minimum ($\sim 20\%$) und der Transmission vor und nach dem Minimum ($\sim 35\%$ bzw. $\sim 60\%$) erhält man einen Wirkungsgrad zwischen 15% und 40% bezogen auf die Dauer des FIR-Pulses. Bezieht man den Wirkungsgrad auf den gesamten CO₂-Laserpuls, beträgt er zwischen 4% und 11%. Dies impliziert bei einer Pulsenergie der CO₂-Laserstrahlung von 250 mJ eine Pulsenergie für die FIR-Strahlung, die zwischen 300 μ J und 900 μ J liegt und somit in guter Übereinstimmung mit der Abschätzung steht, die mit Hilfe des Pyrodetektors P5-01 im vorhergehenden Abschnitt ermittelt wurde. (Die Skala für die FIR-Pulse in Abb. 31 wurde über einen Wirkungsgrad von 8% berechnet.)

Es sei zum Schluß noch bemerkt, daß stark strukturierte FIR-Pulse, wie sie in Abb. 31 gezeigt sind, natürlich nur auftraten, wenn die CO₂-Laserpulse entsprechend stark strukturiert waren. Eine mehr oder weniger glatte Form der CO₂-Laserpulse, wie sie gemäß den Ergebnissen in Abschnitt I.1.4.2 meist bei hohen Pulsenergien auftraten, übertrug sich auch auf die Form der FIR-Pulse. Beispiele dafür sind in den Abschnitten I.3.2 bzw. II.3.1 zu finden.

2.4 Übersicht über die Eigenschaften des CH₃F-Raman-Lasers

Die wesentlichen Eigenschaften des CH₃F-Raman-Lasers seien hier noch einmal kurz zusammengefaßt:

- Die abstimmbare Erzeugung von FIR-Strahlung ist im Frequenzbereich von 23 cm⁻¹ bis 45 cm⁻¹ in einzelnen Intervallen möglich, die eine Breite von 1.2 cm⁻¹ und untereinander einen Abstand von 0.4 cm⁻¹ besitzen. Innerhalb der Intervalle konnte eine Frequenzvariation in Schritten von 0.04 cm⁻¹ erfolgen.
- Die Bandbreite der emittierten FIR-Strahlung (FWHM) beträgt (4 ± 0.5) GHz. Durch Nachschalten eines Fabry-Perot-Interferometers konnte sie auf 400 MHz verringert werden.
- Pulsenergien von über 500 μ J sind erreichbar.
- Die Dauer der FIR-Pulse (FWHM) beträgt typisch 70 nsec.

Der hier vorgestellte Laser erscheint somit als ein geeignetes Instrument für die frequenz- und zeitabhängige Untersuchung nichtlinearer Phänomene im ferninfraroten Spektralbereich (z.B. erreicht man bei einer Fokussierung der FIR-Strahlung auf einen Durchmesser von 2 mm, siehe Abschnitt I.3.1, für Pulse der Energie 500 μJ eine Spitzenintensität von 170 $\frac{\text{kW}}{\text{cm}^2}$!) Er bietet zudem aber auch noch die Möglichkeit zur hochauflösenden Spektroskopie im herkömmlichen Sinn, und dies insbesondere an kleinen Proben (Durchmesser < 2 mm) mit geringer Transmission ($< 1\%$), was mit handelsüblichen Fourierspektrometern nur sehr schwer möglich ist. Eine Demonstration dieser angesprochenen Möglichkeiten am Beispiel der nichtlinearen Absorption von FIR-Strahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium ist Gegenstand des II.Kapitels der vorliegenden Arbeit.

Verbesserungen der Eigenschaften des CH_3F -Raman-Lasers hängen im wesentlichen von Verbesserungen der Charakteristiken des Hochdruck- CO_2 -Lasers ab. Beispielsweise würde ein Betrieb des Hochdruck- CO_2 -Lasers auf nur einer longitudinalen Mode auch eine geringere Bandbreite der FIR-Strahlung bedingen. Dabei ist aber zu beachten, daß die Existenz verschiedener K -Zustände bei gegebener Quantenzahl J in symmetrischen Kreiselmolekülen stets zu einer Vielzahl eng benachbarter Emissionslinien führt, so daß die Reduzierungsmöglichkeiten der Bandbreite des FIR-Lasers begrenzt sind /63/. Zur Erweiterung der erzeugbaren FIR-Frequenzen wären andere molekulare Gase, wie das bereits besprochene $^{13}\text{CH}_3\text{F}$, und die vom konventionellen Laserbetrieb her bekannten Gase CD_3F , CH_3Cl , CH_3I oder NH_3 zu untersuchen.

I.3. Experimentelle Anordnung und Techniken für die FIR-Transmissionspektroskopie mit Hilfe des CH_3F -Raman-Lasers

Mit Hilfe des abstimmbaren CH_3F -Raman-Lasers wurde eine Anordnung zur Untersuchung der FIR-Transmission von Festkörpern bei tiefen Temperaturen aufgebaut. Dieser Abschnitt schildert einige wesentliche Aspekte des optischen Aufbaus, des Meßdatenerfassungssystems sowie der verwendeten experimentellen Techniken.

3.1 Optischer Aufbau

Das Ziel der optischen Anordnung, die in Abb. 33 gezeigt ist, war, eine maximale Intensität der FIR-Strahlung am Ort der Probe, die sich im Zentrum eines Heliumbad-Kryostaten befand, zu erreichen. Zu beachtende Randbedingungen waren dabei zum einen die endliche Divergenz der FIR-Strahlung, die an der Austrittsöffnung des Quarzglaswellenleiterrohres gebeugt wird, und zum anderen der Öffnungswinkel des Kryostaten, der durch den Durchmesser der Kryostatenfenster und deren Abstand von der Probe gegeben war. Diese Randbedingungen erlaubten eine Abbildung der Austrittsöffnung des Quarzglaswellenleiters auf die Probe mit einer maximalen Verkleinerung von 1:4. Die Abbildung erfolgte in zwei Schritten: Zunächst wurde mittels des konkaven Spiegels K1 ein bereits 1:4 verkleinertes Zwischenbild der Austrittsöffnung am Orte P1 erzeugt, das dann mit Hilfe des konkaven Spiegels K2 im Verhältnis 1:1 auf die Probe abgebildet wurde. Diese doppelte Abbildung war ebenso wie die zusätzliche Umlenkung durch die ebenen Spiegel E1 und E2 nötig, um die Winkel zwischen einfallenden und reflektierten Strahlen an den beiden Hohlspiegeln so gering wie möglich ($\leq 10^\circ$) zu halten. Ansonsten hätte die jeweilige Ausbildung eines Kommas, d.h. einer Verzerrung des Bildes infolge des außeraxialen Einfalls eines Teils der Strahlung auf die Hohlspiegel, eine zu starke Reduktion der Intensität der FIR-Strahlung am Orte der Probe zur Folge gehabt. (Nicht-sphärische Spiegel oder FIR-transparente Linsen, die eine direkte verkleinerte Abbildung der Austrittsöffnung auf die Probe erlaubt hätten, standen nicht zur Verfügung.) Da die Schwankungen der Pulsenergie der FIR-Strahlung, insbesondere an den Rändern der einzelnen Abstimmintervalle, relativ groß waren, war es unerlässlich, einen Teil der einfallenden FIR-Strahlung zur Kontrolle der Pulsenergie über einen Strahlteiler T1 auf einen Detektor D_{Ref} auszukoppeln. Als Strahlteiler wurde eine dünne gespannte Polyäthylenfolie (Dicke $25 \mu\text{m}$) verwendet. Die Anordnung der Strahlteilerfolie und des Referenzdetektors D_{Ref} war so gewählt, daß auch am Orte des Detektors ein scharfes, im Verhältnis 1:4 verkleinertes Bild der Austrittsöffnung des Wellenleiterrohres vorlag. Dasselbe galt für den Detektor D_{Tr} , der zur Beobachtung der transmittierten FIR-Strahlung diente; denn der Querschnitt der durch die Probe transmittierten Strahlung wurde mit Hilfe des

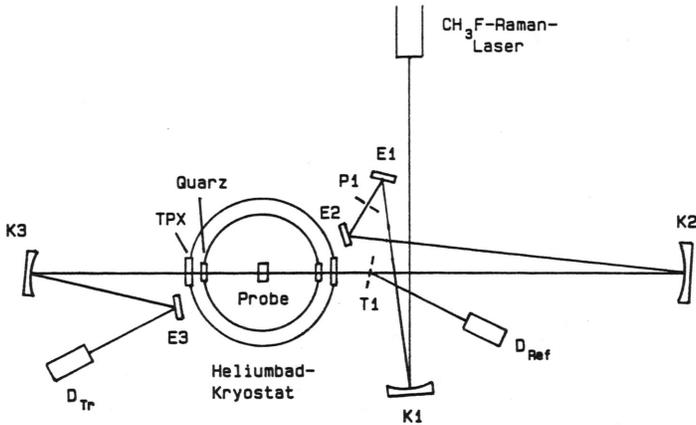


Abb. 33 Skizze des optischen Aufbaus für die Transmissionsspektroskopie mit Hilfe des CH_3F -Raman-Lasers (nicht maßstabsgerecht; Erläuterung siehe Text).

Hohlspiegels K3 wiederum im Verhältnis 1:1 auf den Detektor D_{Tr} abgebildet. Die Durchmesser sämtlicher Spiegel waren selbstverständlich dem Durchmesser der FIR-Strahlung am Orte der Spiegel angepaßt.

Die Querschnittsverteilung der Energiedichte der FIR-Strahlung am Orte der Probe (und nach der obigen Diskussion auch am Orte der Detektoren) ließ sich bei der gezeigten Anordnung annähernd durch eine Gaußsche Verteilung mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von $\Delta_p \approx 1.7$ mm beschreiben. Zur quantitativen Angabe der Energiedichteverteilung ist die Kenntnis der Verluste der FIR-Strahlung auf dem Weg vom Austrittsfenster der Ramanzelle - dort habe sie die Pulsenergie E_0 - bis zur Probe nötig. Diese wurden durch die Reflexionsverluste am Innenfenster des Kryostaten (Quarz, 3 mm dick, Transmission für Strahlung von 29.2 cm^{-1} : 70%), am Außenfenster des Kryostaten (TPX, 3 mm dick, Transmission 85%) und am Strahlteiler T1 (Polyäthylenfolie, $\sim 25 \mu\text{m}$ dick, Transmission 90%) verursacht (Absorptionsverluste in Luft können bei einer Frequenz von 29.2 cm^{-1} vernachlässigt werden). Für die Energiedichte \tilde{E} im Zentrum des Laserstrahls am Probenort gilt dann die Bedingung:

$$0.5 E_0 = \int_0^\infty \int_0^\infty \tilde{E} \exp\left(-\frac{4 \ln 2}{\Delta_p^2}(x^2 + y^2)\right) dx dy \quad (37a)$$

oder

$$\tilde{E} = \frac{2 \ln 2}{\pi} \frac{E_0}{\Delta_p^2} = \frac{2}{\pi} \frac{\Delta^2}{D_p^2 \Delta_p^2} \cdot \frac{U}{R_0} \cdot \gamma \quad (37b)$$

Die letzte Identität folgt unter Verwendung von Gl.(36). Dort sind auch die Größen Δ , D_p , U , R_0 und γ definiert. Einsetzen der Größen liefert $\tilde{E} = 0.08 \cdot \frac{U}{\sqrt{cm^2}} \cdot \gamma$. U ist die Spitzenspannung des Pyrodetektors P5-01 in der Energiemeßmode und γ der in Abschnitt I.2.2 besprochene frequenzabhängige Korrekturfaktor. Gl.(37) war die Grundlage für die Bestimmung der Energiedichteverteilung der FIR-Strahlung am Probenort bei den in Kapitel II besprochenen Experimenten.

Zur Messung der Pulsenergie von einfallender und transmittierter Strahlung wurden zwei Golayzellen verwendet. Da die als Referenzdetektor D_{ref} eingesetzte Golayzelle ein Quarzfenster besaß, konnte auf die in Abschnitt I.2.2 erwähnte Quarzscheibe, die die restliche das TPX-Austrittsfenster der Ramanzelle durchdringende CO_2 -Laserstrahlung abblocken sollte, entfernt werden. (Auch das Innenfenster des Kryostaten war aus Quarz!) Die immerhin 30% betragenden Reflexionsverluste der FIR-Strahlung an der Scheibe konnten somit vermieden werden. Der Durchmesser der Eintrittsfenster der beiden Golayzellen betrug jeweils 3 mm, so daß bei einer optimalen Justierung nahezu die gesamte auftreffende Strahlung ($\Delta_p = 1.7$ mm) von den Golayzellen erfaßt wurde.

Um die zeitliche Pulsstruktur von einfallender und transmittierter Strahlung zu untersuchen, wurden die Golayzellen durch zwei Schottkydioden (SD017 der Fa. Farran Technology) ersetzt. Da der Antennenquerschnitt dieser Detektoren, der etwa als λ_L^2 angenommen werden kann ($\lambda_L =$ Wellenlänge der FIR-Strahlung) klein gegen die Halbwertsbreite Δ_p der Intensitätsquerschnittsverteilung war, konnte mit ihnen nur die Intensität an einem Ort der Verteilung - gewählt wurde natürlich das Zentrum - beobachtet werden. Um die Detektoren nicht zu überlasten, wurden vor ihnen Abschwächer für die FIR-Strahlung angebracht.

Ein Problem, das vor allem bei der Untersuchung von Proben mit einem Durchmesser unter 3 mm auftrat, war eine starke Streuung des Verhältnisses der Signale von Transmissions- und Referenzdetektor von Puls zu Puls, die auch bei konstant gehaltener Frequenz und Pulsenergie der FIR-Strahlung bis zu 20% betragen konnte. Ursache dieses Verhaltens war eine von Puls zu Puls verschiedene Modenausbreitung im Quarzglaswellenleiter des FIR-Lasers wegen der von Puls zu Puls verschiedenen Verteilung longitudinaler Moden innerhalb der Bandbreite des CO_2 -Lasers. Die Folge waren leicht unterschiedliche Ausbreitungsrichtungen der FIR-Strahlung und damit räumliche Schwankungen des Bildes der Austrittsöffnung des Quarzglaswellenleiters am Orte der Probe bzw. der Detektoren. Bei Probendurchmessern ≤ 3 mm trat dann trotz konstanter Einfallspulsenergie eine Streuung in der Energie des transmittierten Pulses auf. Denn auch bei einer Halbwertsbreite $\Delta_p = 1.7$ mm beträgt die 10% Breite der Querschnittsverteilung der Energiedichte immerhin schon 3 mm! Natürlich trägt auch der endliche Durchmesser der Eintrittsfenster der Golayzellen (3 mm!)

zu den beobachteten Schwankungen bei. Abhilfe war möglich durch Einfügen einer Blende (Öffnungsdurchmesser 1 mm) am Orte des ersten Zwischenbildes P1 in Abb. 33. Die Ausbreitung der FIR-Strahlung nach der Blende wurde dann durch die Beugung der Strahlung an einer Blende bestimmt und war damit unabhängig von den Fluktuationen der Moden der FIR-Strahlung. Die Schwankungen des Verhältnisses der Signale der Detektoren D_T und D_{ref} waren dann typischerweise $< 3\%$. Für eine präzise Messung des Transmissionspektrums einer Probe war das Einfügen dieser Blende unerlässlich. Infolge der starken Beugung an der Blende war jedoch der Durchmesser der Spiegel nicht mehr groß genug, um die gesamte Strahlung aufzufangen. Die Energiedichte der Strahlung am Ort der Probe war geringer als nach Gl.(37) folgen würde. Bei der Untersuchung der Abhängigkeit der Transmission einer Probe von der Pulsenergie, wie sie in Kapitel II dieser Arbeit vorgestellt wird, wurde die Blende daher entfernt.

3.2 Meßwertfassungssystem

Abb. 34 zeigt eine schematische Skizze der Meßelektronik zur Bestimmung der Energietransmission einer Probe, d.h. des Verhältnisses der Energie des durch die Probe transmittierten und des auf die Probe auftreffenden FIR-Pulses. Die Prozeßsteuerung, Meßdatenerfassung und -Auswertung wurde durch einen Z80-ECB-Bus-Rechner übernommen. Der Rechner war mit 2 Floppy-Disk-Laufwerken, einem Plotter (HP 7220C), einer Graphikkarte mit Bildschirm (512x512 Pixel) und diversen Prozeßinterfaces (serielle und parallele Schnittstellen, ADC's, DAC's) ausgerüstet.

Die Reaktion einer Golayzelle auf einen einfallenden FIR-Puls ($FWHM \approx 70$ nsec) bestand in einem etwa 100 msec langen Puls negativer Polarität. Die Pulshöhe war ein Maß für die Energie des auftreffenden FIR-Pulses. Ein linearer Zusammenhang bestand in einem Bereich von 50 mV bis 7 V; der Dynamikbereich einer Golayzelle betrug also über 2 Dekaden. Die untere Grenze war durch das Rauschen der Golayzelle, das im wesentlichen durch Fluktuationen der Umgebungstemperatur verursacht wurde, bedingt. Die Aufzeichnung der von der Golayzellen gelieferten Signale erfolgte mit Hilfe eines 2-Kanal-Transientenrekorders (Data-lab DL 922). Dieser besitzt eine Amplitudenauflösung von 8 bit und eine Speichertiefe von 2 kByte pro Kanal; die Abtastrate kann von 250 Hz bis 10 MHz, die Eingangsempfindlichkeit von 100 mV bis 50 V variiert werden. Die Eingangsbandbreite beträgt 6 MHz.

Der Vorgang einer Transmissionsmessung war wie folgt: Über ein Schrittmotortreiberinterface wurde vom Rechner die gewünschte Emissionsfrequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers und damit auch des CH_3F -Raman-Lasers eingestellt (oder alternativ der Gitterabstand des in Abschnitt I.2.2 besprochenen, dem CH_3F -Raman-Laser nachgeschalteten Fabry-Perot-Interferometers verändert). Daraufhin wurde der Transientenrekorder, der in der Pretrigge-

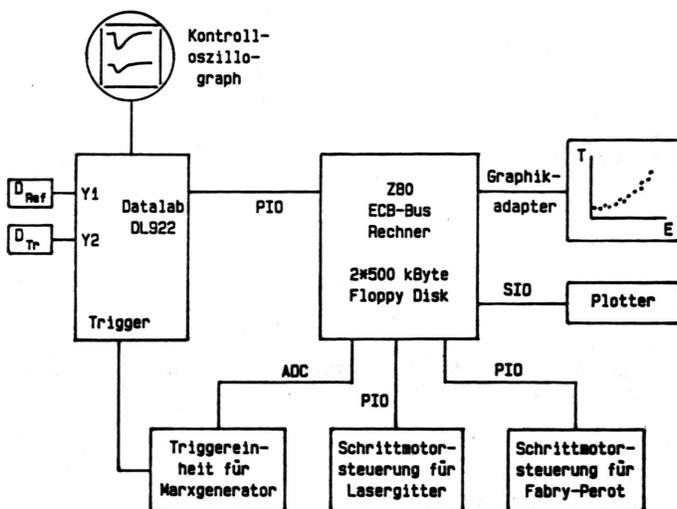


Abb.34 Prozesssteuerung, Datenerfassung und -Auswertung für Messung der Energie-
transmission.

mode betrieben wurde, um die Nulllinie vor dem Eintreffen der Golayzellensignale erfassen zu können, vom Rechner armiert und die Entladung des Hochdruck-CO₂-Lasers gezündet. Die Triggerpulse für den Transientenrekorder wurden von einem Synchronisationsausgang der Marxgeneratortriggereinheit geliefert. Nach Ende des Digitalisierungsprozesses wurde der Speicherinhalt des Transientenrekorders, der zur visuellen Kontrolle der Golayzellensignale auch auf einem Oszillographen beobachtbar war, über eine parallele Schnittstelle vom Rechner übernommen. Die Höhe der von den Golayzellen gelieferten Signale wurde ermittelt und die Transmission berechnet. (Der genaue Rechenvorgang unter Berücksichtigung der notwendigen Eichprozeduren wird in Abschnitt I.3.3 beschrieben.)

Eine Mittelung über mehrere Pulse war möglich; Mittelwert und Standardabweichung wurden automatisch berechnet. Signale, die aufgrund von Schwankungen der FIR-Pulsenergie die Eingangsverstärker des Transientenrekorders sättigten, wurden vom Rechner ignoriert. Eine Darstellung der Resultate, d.h. der Transmission der Probe als Funktion der Frequenz oder der Pulsenergie der FIR-Strahlung, war online auf dem Graphikbildschirm oder nach Beendigung einer Meßserie am Plotter möglich.

Um die zeitliche Änderung der Transmission der Probe während des FIR-Laserpulses erfassen zu können, wurden die Golayzellen durch die erwähnten Schottkydioden ersetzt.

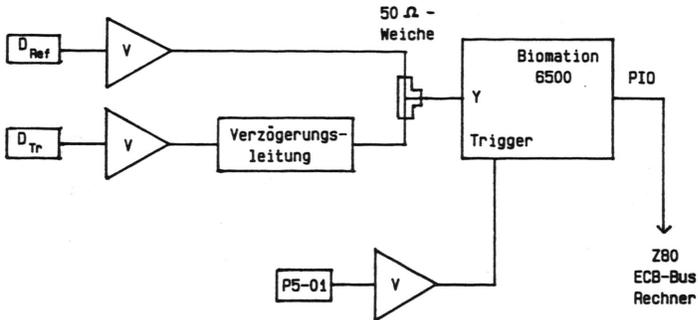


Abb. 35 Simultane Erfassung der zeitlichen Struktur des einfallenden und des transmittierten FIR-Pulses.

Statt des 2-Kanal-Transientenrekorders, der für die Aufzeichnung der Pulsstrukturen der einfallenden und transmittierten Strahlung zu langsam war, wurde ein schneller 1-Kanal-Transientenrekorder verwendet (Biomation 6500, Amplitudenauflösung 6 bit, Abtastrate 500 MHz, Eingangsbandbreite 125 MHz, Eingangsimpedanz 50Ω). Um trotzdem die Signale beider Schottkydioden während ein und desselben Laserpulses aufzeichnen zu können, wurde zu dem in Abb. 35 gezeigten Trick gegriffen: Die Signale der Schottkydioden wurden verstärkt (Verstärker: Ortec 535: Bandbreite DC-120 MHz, Ausgangsimpedanz 50Ω ; Plessey SL560: Bandbreite 100 MHz, Ausgangsimpedanz 50Ω) und über eine 50Ω -Weiche an den Eingang des Transientenrekorders angelegt. Das Signal der zur Detektion der transmittierten Strahlung verwendeten Schottkydiode wurde hierbei mit Kabeln (Wellenwiderstand 50Ω) um etwa 250 nsec verzögert. Die genaue Verzögerungszeit wurde mit einem schnellen Pulsgenerator (Philips PM 5786) ausgemessen. Ein Problem dieser Anordnung war, daß die Verzögerungsleitung zu einem Verschleifen der Signale der Schottkydiode D_{Tr} führte. Daß das Meßverfahren dennoch akzeptable Resultate lieferte, zeigt die zeitlich konstante Transmission in Abb. 36 bei einer Messung ohne Probe (die FIR-Frequenz war 29.22 cm^{-1} ; diese Messung war die Referenzmessung zu der in Abschnitt II.3.1 gezeigten Messung mit Probe).

Die eigentliche Durchführung der Messung der zeitabhängigen Transmission erfolgte ganz analog der oben beschriebenen Durchführung einer Energietransmissionsmessung. Der einzige Unterschied war, daß eine Triggerung des schnellen Transientenrekorders über den Synchronisationsausgang der Marxgeneratortriggereinheit infolge des großen zeitlichen Jitters zwischen dem Synchronisationspuls und der Emission des FIR-Pulses, der bis zu $1 \mu\text{sec}$ betragen konnte, nicht mehr möglich war. Die Erzeugung des Triggersignals erfolgte daher durch Teilauskopplung der CO_2 -Laserstrahlung auf einen pyroelektrischen Detektor (P5-01, Anstiegszeit 0.5 nsec), dessen Signale verstärkt wurden und auf den Triggereingang des

Transientenrekorders gelegt wurden.

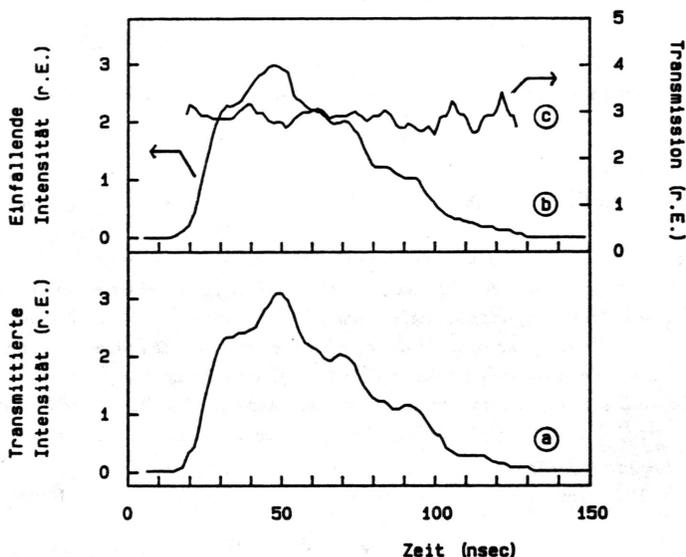


Abb. 36 Signale der Schottkydioden ((a) Referenzdiode, (b) Transmissionsdiode) und daraus bestimmte Transmission (c) für den Fall, daß sich keine Probe im Strahlengang befand ($\nu_{FIR} = 29.22 \text{ cm}^{-1}$).

Die in Abschnitt I.2.3.2 besprochenen Experimente zur Bestimmung des Wirkungsgrades des CH_3F -Raman-Lasers wurden mit entsprechend anderen Detektoren ebenfalls auf die hier beschriebene Methode durchgeführt.

Es sei noch erwähnt, daß die Programme für den Rechner in der Sprache MILAN, die eine Modifikation der Sprache PASCAL darstellt und die vom Rechenzentrum der Universität Regensburg speziell für Echtzeitanwendungen im Labor entwickelt wurde, geschrieben wurden. Die zeitkritischen und direkt auf die Hardware bezogenen Aufgaben, wie z.B. das Auslesen der Daten aus den Transientenrekordern, waren direkt in der Form von Assemblerunterprogrammen implementiert. Außerdem sei vorweggenommen, daß alle in Kapitel II dieser Arbeit vorgestellten Modellrechnungen für die nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium auf einem IBM-XT-kompatiblen Rechner (Olivetti M24) in der Programmiersprache TURBO.C durchgeführt wurden. Rechenintensive Routinen

wurden dabei durch Direktprogrammierung des Arithmetik-Coprozessors 8087 in Assembler bezüglich ihrer Geschwindigkeit optimiert.

3.3 Experimentelle Methoden zur Bestimmung des Absolutwertes der Transmission

Ein grundlegendes Problem bei Transmissionsbestimmungen im ferninfraroten Spektralbereich ist, daß jedes durchstrahlte optische Element infolge von Vielstrahlinterferenzen eine frequenzabhängige Transmission besitzt. Solche Elemente waren die Kryostatfenster, die Eintrittsfenster der Golayzellen sowie die zur Abschwächung der Strahlung verwendeten Elemente. Um den absoluten Wert der Transmission einer Probe bei einer bestimmten FIR-Frequenz ν zu ermitteln, war es nötig, zunächst die Transmission der Apparatur ohne Probe zu bestimmen. Zu diesem Zweck war der Kryostateneinsatz mit der Probenhalterung so konstruiert, daß die Probe aus dem Strahlengang entfernt und wieder reproduzierbar an die alte Position zurückbewegt werden konnte. Es wurden dann zunächst die Signale $S_{Ref}^{\circ}(\nu)$ bzw. $S_{Tr}^{\circ}(\nu)$ der Detektoren D_{Ref} bzw. D_{Tr} ohne Probe gemessen und der Eichfaktor $\mathcal{E}f(\nu) = \frac{S_{Ref}^{\circ}(\nu)}{S_{Tr}^{\circ}(\nu)}$ bestimmt. Dann wurden die entsprechenden Signale $S_{Ref}(\nu)$ bzw. $S_{Tr}(\nu)$ mit Probe ermittelt. Die Transmission $T(\nu)$ der Probe ergibt sich dann nach folgender Beziehung:

$$T(\nu) = \mathcal{E}f(\nu) \cdot \frac{S_{Tr}(\nu)}{S_{Ref}(\nu)} = \frac{S_{Ref}^{\circ}(\nu)}{S_{Tr}^{\circ}(\nu)} \frac{S_{Tr}(\nu)}{S_{Ref}(\nu)} \quad (38)$$

Bei der Aufnahme des Transmissionsspektrums einer Probe wurde diese Prozedur für jede Frequenz des CH_3F -Raman-Lasers durchgeführt. Üblicherweise wurde bei Energietransmissionsmessungen sowohl bei der Bestimmung des Eichfaktors als auch der Transmission über mehrere Pulse gemittelt. Bei Beobachtung der zeitlichen Änderung der Transmission während des FIR-Pulses war eine Mittelung wegen der sich von Puls zu Puls ändernden Struktur nicht sinnvoll.

Einige Bemerkungen zur Meßmethode, die bei Untersuchungen der nichtlinearen Energietransmission einer Probe, wie sie in Kapitel II dieser Arbeit vorgestellt werden, verwendet wurde, seien noch angeführt. Hier wurde der Eichfaktor nur zu Beginn einer Meßserie ermittelt. Die Transmission der Probe bei verschiedenen Pulsenergien wurde dann stets nach Gl.(38) berechnet. Änderungen im optischen Strahlengang, wie z.B. eine Variation der Abschwächer vor den Detektoren, durften während einer Meßserie nicht mehr erfolgen. Der maximale Änderungsbereich der Pulsenergie war damit durch den Dynamikbereich der Golayzellen (etwa 2 Dekaden) gegeben. Bei größeren Änderungen der Pulsenergie mußte eine neue Meßserie mit neuen Abschwächern vor den Detektoren und damit mit einem neuen Eichfaktor durchgeführt werden.

Es erwies sich auch als ungünstig, eine Variation der FIR-Pulsenergie durch Abschwächer nach dem Austrittsfenster des CH_3F -Raman-Lasers durchzuführen. Denn die verschiedenen Moden, die in der Bandbreite der emittierten Strahlung enthalten waren, wurden von den Abschwächern wiederum wegen Vielstrahlinterferenzen innerhalb und zwischen den Abschwächern unterschiedlich stark gedämpft. Die spektrale Energieverteilung der Laserstrahlung nach den Abschwächern war damit abhängig von ihrer Art und Anzahl. Da aber der Eichfaktor nur für eine solche spektrale Energieverteilung aufgenommen wurde, ergaben sich somit starke Streuungen im Absolutwert der Transmission. Als beste Methode für die Messung der Abhängigkeit der Proben-Transmission von der Pulsenergie erwies sich folgendes Verfahren:

Der CH_3F -Raman-Laser wurde auf maximale Pulsenergie eingestellt und damit der Eichfaktor bestimmt. Eine Reduktion der Pulsenergie ließ sich auf einfache Weise durch langsame Erhöhung des CH_3F -Gasdruckes in der Ramanzelle erreichen. Durchgeführte Tests ergaben, daß der Eichfaktor dann über den gesamten Dynamikbereich der Golayzellen tatsächlich unabhängig von der Energie der FIR-Strahlung blieb (dies war insbesondere auch ein Beweis für die Linearität der Golayzellen innerhalb ihres Dynamikbereichs). Während der Druck-erhöhung wurde dann kontinuierlich (d.h. mit der üblichen Wiederholrate für die Zündung der Entladungen des Hochdruck- CO_2 -Lasers von 0.5 Hz) die Transmission der Probe gemessen und vom Rechner als Funktion der auf die Probe fallenden Pulsenergie aufgetragen (eine Mittelung erfolgte hierbei nicht). Ein relatives Maß für die Pulsenergie war dabei das Signal der Referenzgolayzelle; eine absolute Energieeichung erfolgte durch Vergleich der Signale der Referenzgolayzelle mit denen des Pyrodetektors P5-01 in der Energiemeßmode unter Zuhilfenahme der Gln.(36) und (37).

II. Nichtlineare Absorption von Ferninfrarotstrahlung durch eine resonante Bandmode in Sauerstoff-dotierten Siliziumkristallen

Die Eignung des in den vorhergehenden Abschnitten beschriebenen Lasersystems für die Untersuchung nichtlinearer Phänomene im fernen Infrarot soll in diesem Kapitel anhand der erstmals beobachteten nichtlinearen Absorption von FIR-Strahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium (in Zukunft mit Si:O bezeichnet) demonstriert werden. Aus Absorptionsmessungen mittels Fourierspektrometern ist bekannt, daß Sauerstoff-dotiertes Silizium eine schmalbandige Resonanz bei 29.2 cm^{-1} im Frequenzbereich der akustischen Phononen besitzt, verursacht durch die Anregung einer sog. resonanten Bandmode (siehe die folgenden Abschnitte). Da diese Resonanzfrequenz in unmittelbarer Nachbarschaft eines Emissionsmaximums des CH_3F -Raman-Lasers bei 29.35 cm^{-1} liegt, ist eine Untersuchung der resonanten Bandmode bei hoher, nahezu monochromatischer Anregung durch FIR-Strahlung möglich. Untersuchungsgegenstand in dieser Arbeit war die Transmission eines Si:O-Kristalls in der Umgebung der Resonanzfrequenz bei tiefen Temperaturen, die eine starke Zunahme mit der Pulsenergie des FIR-Lasers aufwies. Ziel war es, aus einer Analyse der nichtlinearen Transmission Rückschlüsse auf mögliche Dämpfungsmechanismen für die resonante Bandmode und auf zugehörige Relaxationszeiten zu ziehen.

Bevor nun in den folgenden Abschnitten die Meßergebnisse vorgestellt und interpretiert werden, sollen zunächst das System Si:O und seine Absorptionseigenschaften im fernen Infrarot behandelt werden.

II.1 Interstitieller Sauerstoff in Siliziumkristallen

1.1 Bedeutung von Sauerstoff als Verunreinigung in Silizium bei der Produktion von Halbleiterbauelementen

Hier sei kurz erläutert, warum Sauerstoff bzw. durch Sauerstoff verursachte Defekte in Silizium seit langem Gegenstände besonderen Interesses bei der Herstellung von höchstintegrierten (VLSI) Schaltkreisen sind (detaillierte Informationen finden sich in /90,91/).

80% des in der Halbleiterindustrie verwendeten Siliziums werden nach dem Czochralski-Verfahren, d.h. aus der Schmelze gezogen und werden damit durch Reduktionsprozesse

an den dabei verwendeten Quarztiegeln mit Sauerstoff bis zu einer Konzentration von $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ verunreinigt /92/. (Zonengezogenes Silizium enthält dagegen nur eine Sauerstoffkonzentration von weniger als 10^{16} cm^{-3} .) Sauerstoffkontamination kann aber auch erfolgen, wenn teilweise mit Oxidschichten bedeckte Siliziumwafer (beispielsweise bei der Herstellung von MOS-Schaltkreisen) hohen Temperaturen ausgesetzt werden.

Wie im folgenden Abschnitt diskutiert, liegt der Sauerstoff in Silizium im wesentlichen in elektrisch inaktiver interstitieller (d.h. auf Zwischengitterplätzen eingelagerter) Form vor und zeigt keinen Einfluß auf die Funktionsweise von Bauelementen. Bei hohen Temperaturen, wie sie während des Herstellungsprozesses von VLSI-Schaltkreisen auftreten, wird der Sauerstoff jedoch beweglich und es bilden sich zusätzliche Defekte, die sich positiv wie negativ auf die Funktionsweise der Schaltkreise auswirken können. Als Beispiele seien SiO_2 -Einlagerungen (Präzipitate), die bis zu $40 \mu\text{m}$ Durchmesser erreichen können, sowie sog. thermische Donatoren /93/ genannt: SiO_2 -Einlagerungen verursachen Versetzungen und Stapelfehler. An der Oberfläche bewirken diese beispielsweise bei der Herstellung von Bipolartransistoren, wo Basisdicken von $\sim 1 \mu\text{m}$ gefordert werden, eine Verschlechterung der Transistoreigenschaften (z.B. Reduktion der Stromverstärkung infolge Störstellenanlagerung an den Versetzungen). Im Substrat sorgen sie jedoch wegen ihrer Getterwirkung für Verunreinigungen für defektfreie Oberflächen /93/. Thermische Donatoren sind Silizium-Sauerstoff-Komplexe der Form Si_mO_n , die bei hohen Temperaturen entstehen und auch nach Abkühlen erhalten bleiben. Diese Komplexe bilden Doppeldonatoren /94/ und ändern somit die Ladungsträgerkonzentration in den Schaltkreiselementen während der Produktion.

Die genannten Defekte sind jedoch nicht Gegenstand der Untersuchungen dieser Arbeit. Hier werden vielmehr elementare Eigenschaften der Ausgangsform der Defekte, nämlich der interstitiellen Form des Sauerstoffs in Siliziumkristallen, behandelt.

1.2 Einbaulage von Sauerstoff in Siliziumkristallen

Daß Sauerstoff in Siliziumkristallen nicht substitutionell, sondern interstitiell eingebaut ist, zeigten Bond und Kaiser /95/ anhand von Röntgenbeugungsmessungen (mit Sauerstoff dotierte Siliziumkristalle zeigen eine größere Gitterkonstante als undotierte) zusammen mit Dichteuntersuchungen.

Die heute allgemein anerkannte Modellvorstellung für den Einbau des interstitiellen Sauerstoffs in Siliziumkristallen ist folgende /96/: Zwei nächstbenachbarte Si-Atome in [111]-Richtung geben ihre kovalente Bindung miteinander auf und gehen statt dessen eine kovalente Bindung mit einem O-Atom ein, das in der Mitte zwischen beiden Si-Atomen, aber etwas außerhalb ihrer Verbindungslinie lokalisiert ist. Eine Illustration mit den charakteristischen Größen zeigt Abb. 37.

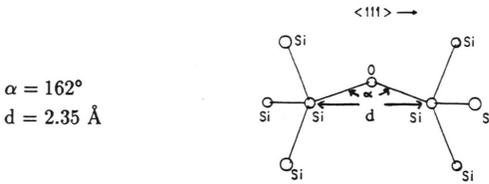
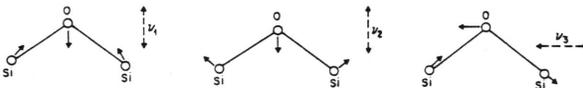


Abb. 37 Einbaulage des interstitiellen Sauerstoffs in Silizium.

1.3 Infrarotabsorptionseigenschaften von Sauerstoff-dotiertem Silizium

Die im vorigen Abschnitt beschriebene dreieckige Anordnung Si-O-Si läßt sich in erster Näherung (bei Vernachlässigung jeglicher Wechselwirkung mit dem restlichen Siliziumgitter) als ein in den Siliziumkristall eingebettetes Si_2O -Molekül betrachten, vergleichbar dem Si_2O -Komplex in gasförmigem Disiloxan $\text{H}_3\text{SiOSiH}_3$. Ein solches nichtlineares dreiatomiges Molekül besitzt bekanntlich 3 Eigenschwingungen /97/ (Abb. 38): die symmetrische Streck-schwingung (ν_1), die symmetrische Biegeschwingung (ν_2) und die antisymmetrische Streck-schwingung (ν_3), die allesamt ein nicht verschwindendes elektrisches Dipolmoment besitzen und daher infrarotaktiv sind.

Abb. 38 Normalschwingungen eines freien Si_2O -Moleküls. (Die gestrichelten Pfeile geben die Richtung des elektrischen Dipolmoments an.)

Tatsächlich werden in Sauerstoff-dotierten Siliziumkristallen 3 Absorptionsbande im mittleren Infrarot beobachtet, nämlich bei $8 \mu\text{m}$ (1203 cm^{-1}), $9 \mu\text{m}$ (1136 cm^{-1}) und bei $19 \mu\text{m}$ (517 cm^{-1}) /97/. Die Zuordnung der $9 \mu\text{m}$ -Absorption an die ν_3 -Schwingung ist konsistent mit Absorptionsmessungen an gasförmigem Disiloxan. Eine Zuordnung der Absorptionsbande bei $8 \mu\text{m}$ bzw. $19 \mu\text{m}$ an die symmetrische Streck-schwingung ν_1 bzw. die symmetrische Biegeschwingung ν_2 , die die geringste Energie haben muß, ist jedoch nicht möglich. Denn

bei Siloxanen ist die Energie der ν_1 -Schwingung stets viel geringer als die der ν_3 -Schwingung /98/. Außerdem würde die Frequenz der ν_2 -Biegeschwingung bereits unterhalb der Ramanfrequenz (519 cm^{-1} /99/) des reinen Siliziumgitters im Bereich der optischen Phononen liegen, so daß die Vorstellung eines freien Si_2O -Moleküls nicht mehr gültig ist. Auch die bei tiefen Temperaturen beobachtete komplizierte Feinstruktur der $9 \text{ }\mu\text{m}$ -Absorptionsbande ist mit dieser Vorstellung nicht erklärbar /96/.

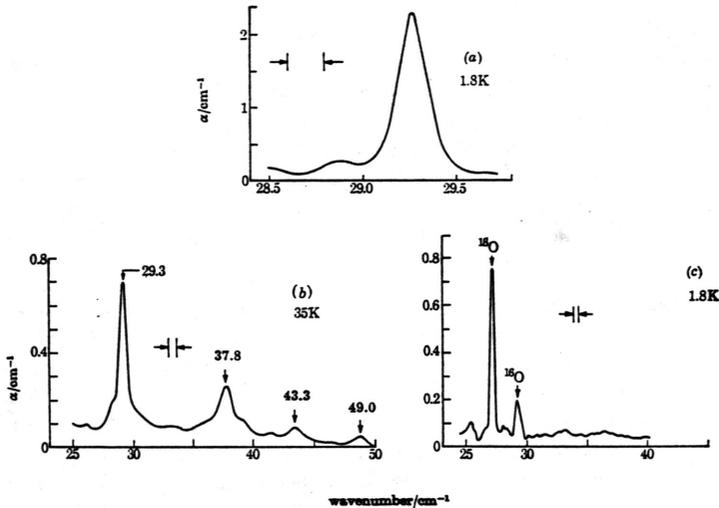


Abb. 39

- Absorptionslinie von ^{16}O (Konzentration $7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) in Silizium bei $T = 1.8 \text{ K}$.
- Absorptionsspektrum von ^{16}O ($7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) in Silizium bei $T = 35 \text{ K}$.
- Absorptionslinien von ^{18}O ($2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) und ^{16}O ($5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) in Silizium bei $T = 1.8 \text{ K}$ (nach /100/).

Ein modifiziertes Modell wurde von Bosomworth et al. /100/ aufgrund von Absorptionsmessungen im Bereich des fernen Infrarot vorgeschlagen. Denn sie fanden bei einer Temperatur von 1.8 K eine Absorptionslinie bei 29.3 cm^{-1} , zu der bei höheren Temperaturen ($> 35 \text{ K}$) noch Linien bei 37.8 cm^{-1} , 43.3 cm^{-1} und 49 cm^{-1} hinzukamen, was auf Übergänge von angeregten Zuständen in noch höhergelegene Zustände hindeutet (Abb. 39 a,b). Experimente an zusätzlich mit dem Sauerstoffisotop ^{18}O dotierten Si-Kristallen ergaben neben der Absorption bei 29.3 cm^{-1} eine weitere bei 27.2 cm^{-1} , was eindeutig auf Sauerstoff als Ursache

für die Absorptionslinien hinweist. Die Existenz dieser beiden Linien wurde auch durch Phononenspektroskopie mittels supraleitenden Tunnelkontakten bestätigt /101/. Die Breite der Absorptionslinie bei 29.3 cm^{-1} in Abb. 39 a ist nach Bosomworth durch die Auflösung des verwendeten Spektrometers ($= 0.2 \text{ cm}^{-1}$) gegeben.

Bosomworth et al. betrachteten in ihrem Modell nur eine Bewegung des interstitiellen Sauerstoffatoms in einem in erster Näherung als starr angenommenen Siliziumgitter. Das O-Atom besitzt somit 3 Freiheitsgrade für eine Schwingung gegenüber dem Siliziumgitter. Experimente, bei denen Druck längs der [111]-Richtung ausgeübt wurde, zeigten eine Aufspaltung der Absorptionslinie bei 29.3 cm^{-1} in eine einfach und eine dreifach entartete Komponente (teilweise Aufhebung der Orientierungsentartung des in [111]-Richtung orientierten Si_2O -Komplexes im kubischen Siliziumgitter), deren Verhalten bei Verwendung von polarisiertem Licht eindeutig auf eine sog. σ -Oszillation des O-Atoms hinweist, d.h. auf eine Bewegung in einer Ebene senkrecht zur Verbindungsachse der Si-Atome. Als Beispiel: Für die dreifach entartete Komponente verhält sich die absorbierte Intensität von Licht, das parallel zur Druckrichtung polarisiert ist, zu der von dazu senkrecht polarisiertem Licht wie 8:5 für einen σ -Oszillator (wie von Bosomworth beobachtet) und wie 1:4 für einen π -Oszillator (Bewegung parallel zur Defektachse) /100/.

Das Energieniveauschema einer solchen zweidimensionalen Bewegung des O-Atoms kann den Charakter einer Rotation, Libration oder Schwingung haben. Da jedoch die Energien der einzelnen Absorptionslinien grob betrachtet äquidistante Energieniveaus fordern, scheidet eine Rotationsbewegung aus. Ähnliches gilt auch für eine Librationsbewegung, d.h. eine Torsionsschwingung der Si-O-Si-Ebene, die im Si-Gitter sechs gleichberechtigte Gleichgewichtslagen hat, um eben diese. Hier sollte das Energieniveauschema infolge der Tunnelmöglichkeit zwischen den verschiedenen Lagen eine Feinstrukturaufspaltung zeigen /102/. Da eine solche nicht beobachtet wurde, schlossen Bosomworth et al. daraus, daß die Bewegung des O-Atoms im wesentlichen vibronischer Art ist und daß eine Wechselwirkung des O-Atoms mit den zweit- und drittnächsten Si-Nachbaratomen vernachlässigt werden kann. Es ist also möglich, eine axiale Symmetrie um die [111]-Achse für die Bewegung des O-Atoms anzunehmen. Die beobachteten Absorptionslinien können sehr gut mit dem Potential eines gestörten zweidimensionalen harmonischen Oszillators erklärt werden:

$$V = \frac{1}{2} M \omega_o^2 r^2 + A \exp(-q \gamma r^2) \quad (39)$$

Dabei ist M die Masse des O-Atoms, r sein radialer Abstand von der Si-Si-Verbindungsachse und $\gamma = M \omega_o / \hbar$. A , ω_o und q sind phänomenologische Konstanten, die dem Experiment zu entnehmen sind. Der Potentialberg bei $r = 0$ wurde empirisch eingeführt, um die außeraxiale Einbaulage des O-Atoms zu berücksichtigen. Die beobachteten Absorptionslinien in Abb. 39 b ergeben sich für $q = 1$, $A = 80 \text{ cm}^{-1}$ und $\omega_o = 49 \text{ cm}^{-1}$ (Einsetzen der

Isotopenmasse von ^{18}O liefert auch die in dem mit ^{18}O dotierten Kristall beobachtete zusätzliche Linie in Abb. 39 c). Das Potential und die daraus berechneten Energieniveaus zeigt Abb. 40.

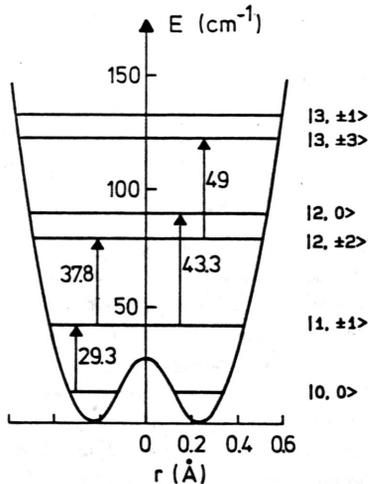


Abb. 40 Potential und daraus berechnete Energieniveaus für die Bewegung des Sauerstoffatoms senkrecht zur Si-Si-Verbindungsachse nach /100,103/.

Eine Kennzeichnung der Niveaus ist möglich mit den Quantenzahlen $|v, l\rangle$ des ungestörten zweidimensionalen harmonischen Oszillators, wobei v die Schwingungsquantenzahl angibt und l den Winkelanteil der Wellenfunktion beschreibt. Infolge der Störung des harmonischen Potentials durch den Potentialwall bei $r = 0$ erfolgt eine Aufspaltung der $(v + 1)$ -fach entarteten Energieniveaus des zweidimensionalen harmonischen Oszillators nach $|l|$: aus dem dreifach entarteten $v = 2$ Niveau entsteht ein Singulett und ein Dublett, aus dem vierfach entarteten $v = 3$ Niveau 2 Dubletts. (Zusätzlich würde die Gruppentheorie eine Aufspaltung des Niveaus $|3, \pm 3\rangle$ infolge der D_{3d} -Symmetrie des oben angegebenen Potentials im Si-Gitter erfordern. Daß eine solche in den Spektren nicht beobachtet wird, bestätigt die Annahme, daß keine oder nur eine sehr geringe Wechselwirkung des O-Atoms mit den zweit- und drittnächsten Si-Nachbaratomen stattfindet /100/.)

Mit den Auswahlregeln $\Delta v = 1$, $\Delta l = \pm 1$ für die Anregung einer σ -Oszillation erhält man die beobachteten Absorptionslinien aus Abb. 39. Im Bild der Eigenschwingungen eines freien Si_2O -Moleküls würde die eben diskutierte Bewegung des Sauerstoffatoms der

ν_2 -Biegeschwingung entsprechen. Damit besteht wieder eine qualitative Übereinstimmung mit gasförmigem Disiloxan, wo ebenfalls solche niederenergetischen Anregungen (in der Größenordnung von 60 cm^{-1}) beobachtet wurden /104/. Da alle Übergänge vom ersten angeregten Zustand $|1, \pm 1\rangle$ in weiter darüberliegende Zustände höhere Photonenergien erfordern als der Übergang $|0, 0\rangle \rightarrow |1, \pm 1\rangle$ (vgl. Abb. 39 b), kann das Niveauschema für die Sauerstoffschwingung bezüglich der Absorption von FIR-Strahlung der Frequenz 29.3 cm^{-1} als ein Zweiniveausystem betrachtet werden. Es sei noch bemerkt, daß eigene Absorptionsmessungen mit Hilfe des CH_3F -Raman-Lasers eine unwesentlich geringere Absorptionsfrequenz von $(29.2 \pm 0.05) \text{ cm}^{-1}$ ergaben. Dieser Wert soll im weiteren Verlauf dieses Kapitels verwendet werden.

Die Ergebnisse von Bosomworth et al. lassen auch sofort eine Interpretation der $8 \mu\text{m}$ - und $9 \mu\text{m}$ -Absorptionsbande zu: Absorptionsexperimente unter Druckausübung in [111]-Richtung bei Bestrahlung mit polarisiertem Licht zeigten, daß beide Absorptionsbande der Anregung von π -Oszillationen zuzuordnen sind. Eine π -Oszillation, d.h. eine Bewegung des O-Atoms parallel zur Si-Si-Verbindungsachse, entspricht der zu Beginn diskutierten antisymmetrischen Streckschwingung ν_3 . Wie aus dem erweiterten Niveauschema in Abb. 41 ersichtlich, resultieren die $8 \mu\text{m}$ - bzw. $9 \mu\text{m}$ -Absorptionsbande aus der Anregung von Kombinationsschwingungen aus den ν_2 - und ν_3 -Schwingungen unter Berücksichtigung der Auswahlregel $\Delta l = 0$ für die Anregung einer π -Oszillation. So lassen sich beispielsweise die Absorptionslinien bei 1136 cm^{-1} bzw. 1203 cm^{-1} als folgende Übergänge interpretieren:

$$1136 \text{ cm}^{-1} : |\nu_3, \nu, l\rangle = |0, 0, 0\rangle \rightarrow |1, 0, 0\rangle$$

$$1203 \text{ cm}^{-1} : |\nu_3, \nu, l\rangle = |0, 0, 0\rangle \rightarrow |1, 2, 0\rangle$$

Der ebenfalls in Abb. 41 eingezeichnete Übergang bei $19 \mu\text{m}$ (517 cm^{-1}) wird von Stavola /105/ anhand von Messungen des druckinduzierten Dichroismus in Si:O mit der Anregung der symmetrischen Streckschwingung ν_1 (bei Disiloxan: 606 cm^{-1}) verknüpft. Da ihre Frequenz, wie bereits erwähnt, unterhalb der Ramanfrequenz des ungestörten Siliziumgitters liegt, darf sie jedoch nicht auf der Basis eines freien Si_2O -Moleküls betrachtet werden, sondern muß vielmehr im Sinne einer resonanten Gittermode interpretiert werden /96,100/ (siehe folgender Abschnitt).

Als Abschluß sei noch bemerkt, daß der Absorptionskoeffizient α im Zentrum der $9 \mu\text{m}$ -Bande (gemessen bei $T = 300 \text{ K}$) üblicherweise als Maß für die Konzentration des interstitiellen Sauerstoffs $[\text{O}_I]$ in Silizium verwendet wird. Die aktuellst ermittelte Umrechnung ist:

$$[\text{O}_I] = 3.03 \cdot 10^{17} \cdot \alpha \quad [\text{cm}^{-3}] \quad /106/ \quad (40)$$

Hierbei ist α in cm^{-1} einzusetzen.

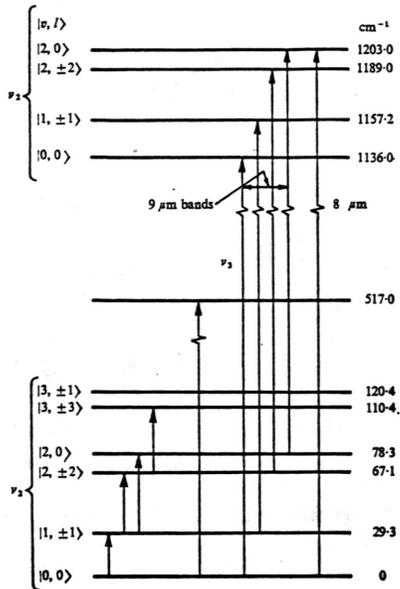


Abb. 41 Niveauschema für Sauerstoffschwingungen in Silizium mit den erlaubten Übergängen im mittleren und fernen Infrarot /100/.

1.4 Resonante Streuung akustischer Phononen an interstitiellen Sauerstoffatomen in Silizium

In der bisherigen Diskussion der Eigenschaften des Systems Si:O wurde nur eine lokale Oszillation des Sauerstoffatoms in einem als starr angenommenen Siliziumgitter betrachtet. Es stellt sich die Frage, was nun letztendlich die endliche Breite der Ferninfrarotabsorptionslinie verursacht. Da die Grundschwingungsfrequenz von interstitiellem Sauerstoff $\nu_0 = 29.2 \text{ cm}^{-1}$ ($= 876 \text{ GHz}$) im Frequenzbereich der akustischen Phononen in Silizium liegt (siehe die Phononendispersionskurven von Silizium in Abb. 42), ist die Vorstellung der isolierten Bewegung des Sauerstoffatoms im Siliziumgitter jedoch nicht haltbar.

Das dynamische Verhalten des Systems Si:O bei ν_0 ist vielmehr das einer resonanten Bandmode. Dieser Begriff sei kurz qualitativ erläutert: Der Einbau eines Punktdefekts in einen ansonsten idealen Kristall führt zum Verlust der Translationssymmetrie und damit zu einer

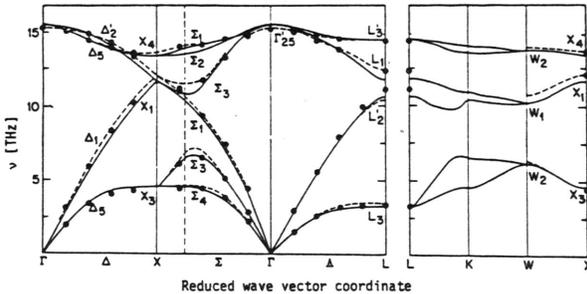


Abb. 42 Phononendispersionskurven von Silizium /107/.

Veränderung des Schwingungsspektrums des ungestörten Kristalls. Punktdefekte können dabei substitutionelle Störstellen (Isotope bzw. Fremdatome an regulären Gitterplätzen), Fehlstellen, interstitielle Störstellen oder auch molekulare Defekte sein, die zusätzliche Freiheitsgrade durch innere Schwingungen besitzen. Macht man für die Bewegung des κ -ten Atoms ($\kappa = 1 \dots r$) der l -ten Elementarzelle ($l = 1 \dots N$) in Richtung α ($\alpha = 1 \dots 3$) den Ansatz $u_\alpha(\kappa l; t) = u_\alpha(\kappa l) e^{i\omega t}$, so wird das Normalschwingungsspektrum eines gestörten Kristalls in der harmonischen Näherung beschrieben durch die Eigenwertgleichung

$$(\mathbf{D} - \omega^2 \mathbf{1} + \mathbf{\Gamma}) \mathbf{u} = \mathbf{0} \quad (41)$$

Dabei ist \mathbf{D} die $3rN$ -dimensionale dynamische Matrix des ungestörten Kristalls, ausgedrückt durch die atomaren Massen und Kraftkonstanten $D_{\alpha\beta}(l\kappa; l'\kappa') = \frac{1}{\sqrt{M_\kappa M_{\kappa'}}} \phi_{\alpha\beta}(l\kappa; l'\kappa')$. $\mathbf{\Gamma}$ ist die Störmatrix, die die Änderung der atomaren Massen und Kraftkonstanten bei Einfügen des Defekts beschreibt, d.h. $\Gamma_{\alpha\beta}(l\kappa; l'\kappa') = \frac{1}{\sqrt{M_\kappa M_{\kappa'}}} \Delta \phi_{\alpha\beta}(l\kappa; l'\kappa') - \omega^2 \frac{\Delta M_\kappa}{M_\kappa} \delta_{l\kappa; l'\kappa'}$, und die i.a. nur für Orte ($l\kappa$) in unmittelbarer Nähe des Störatoms von Null verschieden ist.

Im Gegensatz zum ungestörten Kristall (gegeben durch $\mathbf{\Gamma} = \mathbf{0}$), wo die Eigenmoden bekanntlich ebene Wellen sind, charakterisiert durch Wellenvektor \vec{k} und Frequenz $\omega_p(\vec{k})$ (p bezeichne die verschiedenen Zweige der Phononendispersionskurven), sind die Eigenmoden des gestörten Kristalls keine ebenen Wellen mehr. Wenn auch das resultierende Frequenzspektrum nahezu den gleichen Frequenzbereich und die gleiche Zustandsdichte besitzt wie das des ungestörten Kristalls, können doch (abhängig von der Störmatrix $\mathbf{\Gamma}$) einige zusätzliche Phänomene auftreten: so sind Eigenmoden möglich, deren Frequenz oberhalb der erlaubten Frequenzen im ungestörten Kristall liegt. Sie werden als lokalierte Moden bezeichnet

und sind dadurch charakterisiert, daß das Defekttom mit großer Amplitude schwingt, die Amplitude der benachbarten Atome jedoch annähernd exponentiell mit dem Abstand vom Störatom abnimmt; eine Wellenausbreitung im Gitter ist bei dieser Frequenz nicht möglich. Ein Beispiel dafür ist die antisymmetrische Streck-schwingung ν_3 des interstitiellen Sauerstoffs in Silizium, die ja mit ihrer Frequenz $\nu_3 = 1136 \text{ cm}^{-1}$ weit oberhalb der Ramanfrequenz ($519 \text{ cm}^{-1} / 99\%$) des ungestörten Si-Gitters liegt. Ähnliches gilt für Eigenmoden, deren Frequenz in eine Lücke (falls vorhanden!) im Frequenzspektrum des ungestörten Kristalls fällt (Gapmoden). Sogenannte resonante Bandmoden treten auf, wenn die Schwingungsfrequenz ν_o des Defektes in einem als starr betrachteten Gitter (auch Einstein-Oszillationsfrequenz genannt) innerhalb des erlaubten Frequenzbereichs des ungestörten Gitters liegt. Sie bezeichnen jedoch keine speziellen Eigenmoden des gestörten Kristalls, sondern vielmehr eine gemeinsame Eigenschaft vieler Eigenmoden: für alle Eigenmoden innerhalb einer Breite Γ um die Frequenz ν_o (die durch die dynamische Antwort des Gitters auf die Defektschwingung etwas verschoben werden kann) gilt, daß die Amplitude des Defekttoms bzw. seiner unmittelbaren Nachbaratome, mit denen es wechselwirkt, sehr viel größer ist als die der restlichen Gitteratome, die jedoch (im Gegensatz zu den lokalisierten Moden) im gesamten Kristall von Null verschieden ist. Daher spricht man auch von einer pseudo-lokalisierten Mode. Eine resonante Bandmode wird also charakterisiert durch eine Resonanz für die Amplitude des Störatoms bzw. seiner unmittelbaren Nachbaratome für Schwingungsfrequenzen um ν_o .

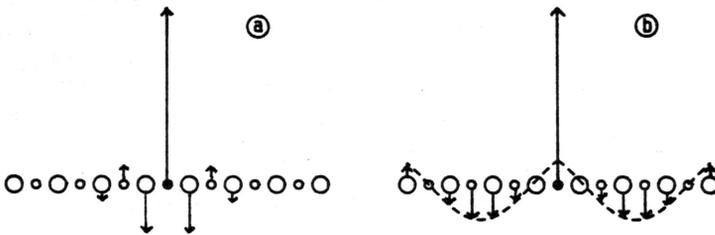


Abb. 43 Schematische Darstellung der Eigenmoden einer zweiatomigen linearen Kette in der Umgebung der Störstelle nach /108/: (a) lokalisierte Mode, (b) resonante Bandmode.

Der Einbau von Fremdatomen, auch wenn sie im freien Zustand elektrisch neutral sind, kann zu einer Veränderung der Dichteverteilung für die Valenzelektronen gegenüber der des ungestörten Kristalls führen; ist beispielsweise die Ladungsverteilung in der Umgebung des Störatoms nach dessen Einbau ausgedehnter als vorher, läßt sich das bildlich durch die

Einführung einer effektiven positiven Ladung des Störatoms und kompensierenden negativen Ladungen der umgebenden Atome ausdrücken /109/. Die zur resonanten Bandmode beitragenden Eigenmoden können somit je nach ihrer Symmetrie ein nichtverschwindendes Dipolmoment besitzen und damit infrarotaktiv sein. In diesem Fall kann die resonante Bandmode durch Absorption von FIR-Strahlung angeregt und nachgewiesen werden.

Eine ausführliche Übersicht über experimentelle Ergebnisse und Untersuchungsmethoden von lokalisierten und resonanten Moden in gestörten Kristallen, insbesondere in dotierten Alkalihalogenidkristallen, findet man in den Übersichtsartikeln von Barker et al. /110/ und Bilz et al. /111/, detaillierte theoretische Abhandlungen in den Artikeln von Maradudin /109/, Klein /112/ und Takeno /113/. Aus den genannten Arbeiten seien kurz einige wichtige Resultate, die für die Diskussion der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit nötig sind, diskutiert.

So erhält man eine spezielle Beschreibungsmöglichkeit für die Lösungen der Eigenwertgleichung (41) mit Hilfe der Streutheorie, indem man die Eigenmoden des gestörten Kristalls als Summe einer einlaufenden Welle, die eine Eigenmode des ungestörten Kristalls ist, und einer am Störatom (elastisch) gestreuten Welle ansetzt /109,114/. Eine resonante Bandmode entspricht in dieser Beschreibung einer Resonanz der Amplitude der gestreuten Welle. Somit ist der Streuquerschnitt $\sigma = \sigma(\nu)$ bzw. die Streurrate $\tau_{res}^{-1}(\nu) = N \bar{v} \sigma(\nu)$ (N = Konzentration der Störstellen, \bar{v} = mittlere Schallgeschwindigkeit) für die Phononen des ungestörten Kristalls eine geeignete Größe für die Beschreibung der dynamischen Eigenschaften eines gestörten Kristalls. ($\tau_{res}(\nu)$ gibt dann die mittlere Zeit zwischen 2 (elastischen) Streuprozessen für Phononen der Frequenz ν an). Konkrete Berechnungen des Phononenstreuquerschnitts $\sigma(\nu)$ wurden beispielsweise von Takeno bzw. Maradudin /109,113/ für isotopische Defekte in kubischen Bravaisgittern, von Wagner /115/ für substitutionelle molekulare Defekte in solchen Gittern und von Dederichs /116/ für interstitielle Störstellen kubischer Symmetrie durchgeführt. Sie alle zeigen, daß, wenn eine resonante Bandmode bei ν_0 im Frequenzbereich der akustischen Phononen des ungestörten Kristalls vorliegt, für den Streuquerschnitt (im Falle der isotropen Näherung $\omega_p(\vec{k}) = \bar{v} |\vec{k}|$) gilt:

$$\tau_{res}^{-1}(\nu) \sim \frac{\Gamma^2 \nu^2}{(\nu^2 - \nu_0^2)^2 + \Gamma^2 \nu^2} \simeq \frac{\Gamma^2/4}{(\nu - \nu_0)^2 + \Gamma^2/4} \quad (42)$$

Die letzte Näherung, gültig für den Fall $\Gamma \ll \nu_0$, ergibt eine Lorentzsche Linienform mit der Halbwertsbreite Γ für die Streurrate $\tau_{res}^{-1}(\nu)$. Daß der Absorptionskoeffizient für FIR-Strahlung (bei einer IR-aktiven resonanten Bandmode) die gleiche Frequenzabhängigkeit besitzt, zeigen Klein bzw. Maradudin in ihren Übersichtsartikeln /109,112/.

Dederichs und Zeller /116/ geben im Falle einer interstitiellen Störstelle kubischer Symmetrie

in einem einatomigen Gitter folgenden Wert für die Halbwertsbreite Γ an:

$$\frac{\Gamma}{\nu_o} = \frac{3}{16\pi^2} \nu_D^{-3} \frac{f_{eff}^{\frac{3}{2}}}{M \cdot M_{eff}^{\frac{1}{2}}} \quad \text{bzw.} \quad \Gamma = \frac{3}{2} \pi \frac{M_{eff}}{M} \frac{\nu_o^4}{\nu_D^3} \quad (43)$$

$$\text{mit } \nu_o = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{f_{eff}}{M_{eff}}}$$

Dabei ist M die Masse eines Gitteratoms und ν_D die Debyefrequenz des ungestörten Gitters. f_{eff} ist eine effektive Federkonstante, die die Bindung des interstitiellen Defekts an die umgebenden Gitteratome beschreibt, M_{eff} eine effektive Masse, die berücksichtigt, daß mit der Defektschwingung auch ein Mitschwingen der Umgebung verbunden ist (sie kann größer oder kleiner als die reale Defektmasse sein). Berechnungen für die effektiven Größen finden sich in /116/. Diese Ergebnisse zeigen, daß die Resonanz um so schärfer ist, je kleiner die effektive Bindung des Defekts ans Gitter ist bzw. je schwerer die effektive Masse ist, und damit je geringer die Resonanzfrequenz liegt.

Setzt man in Formel (43) die Werte für den interstitiellen Sauerstoff in Silizium ein, auch wenn das Sauerstoffatom an keinem Gitterplatz mit kubischer Symmetrie sitzt, und nimmt als effektive Masse die reale Masse des Sauerstoffatoms, erhält man $\Gamma \approx 0.7$ GHz. (Silizium hat die Debyefrequenz $\nu_D = 13.54$ THz /99/.) Ähnliches erhielt Brice /114/ bei numerischen Berechnungen von Γ für interstitielle Störstellen kubischer Symmetrie in Silizium. Direkte Rechnungen für den interstitiellen Sauerstoff in Silizium wurden bisher nicht durchgeführt.

Für den Wert der Streurrate im Linienzentrum gilt nach /109/

$$\tau_{res}^{-1}(\nu_o) = \frac{4N}{D(\nu_o)} \quad (44)$$

N ist die Defektkonzentration (sie sei klein genug, um eine Wechselwirkung der Defekte untereinander ausschließen zu können) und $D(\nu_o)$ die Zustandsdichte des ungestörten Kristalls bei der Resonanzfrequenz. Das gleiche Ergebnis erhält man auch aus einer Arbeit von Levinson /117/, der die Resonanzstreuung akustischer Phononen an einem elektronischen Zweiniveausystem (z.B. an dem $(\bar{E}, 2\bar{A})$ -System angeregter Cr^{3+} -Ionen in Rubin /118/) störungstheoretisch behandelt.

Zusammenfassend gelangt man zu folgender Interpretation der resonanten Bandmode bei 29.2 cm^{-1} im System Si:O: Sie läßt sich als eine (durch Ferninfrarotstrahlung anregbare) Einsteinoszillation des Sauerstoffatoms betrachten, die gekoppelt ist (und im Gleichgewicht steht) mit dem Schwingungssystem des ungestörten Siliziumkristalls infolge Emission und Reabsorption resonanter Phononen, d.h. von Phononen mit der gleichen Energie wie die

Sauerstoffschwingung. Dies entspricht der oben diskutierten Resonanzstreuung. (Unter dem Begriff Gleichgewicht mit dem Schwingungssystem des ungestörten Kristalls wird hier nicht das thermische Gleichgewicht verstanden, sondern nur das partielle Gleichgewicht mit den Phononen, die Frequenzen innerhalb der erwähnten Resonanzlinie besitzen. Eine Anregung der resonanten Bandmode bedeutet dann durchaus einen Nichtgleichgewichtszustand der resonanten Phononen bezüglich des thermischen Gleichgewichts!) Infolge der Lorentzischen Linienform für den Phononenstreuquerschnitt bzw. die Ferninfrarotabsorption kann man charakteristische Zeiten T_1 (Lebensdauer der Sauerstoffschwingung gegenüber der Emission eines resonanten Phonons) bzw. T_2 (Phasenrelaxationszeit für die Sauerstoffschwingung infolge der Streuung resonanter Phononen) definieren über die üblichen Beziehungen /119/

$$T_1 = \frac{1}{2\pi\Gamma} \quad \text{und} \quad T_2 = 2T_1 \quad , \quad (45)$$

die den Energieaustausch zwischen den Sauerstoff-Oszillationen und dem Gitterschwingungssystem des Siliziumkristalls beschreiben. Dabei ist vorausgesetzt, daß keine Energie aus dem gekoppelten System abfließt. Die Bestimmung obiger Werte aus den Ferninfrarotabsorptionsmessungen ist Gegenstand des folgenden Abschnitts.

II.2. Transmissionsspektren von Sauerstoff-dotiertem Silizium im fernen Infrarot

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Messungen der Transmission von FIR-Strahlung an Sauerstoff-dotierten Siliziumproben sollen zum einen die Möglichkeit demonstrieren, das entwickelte abstimmbare FIR-Lasersystem für die FIR-Spektroskopie zu nutzen; zum anderen sollen aus ihnen Informationen über Form und Breite der FIR-Absorptionslinie der resonanten Bandmode gewonnen werden.

Meßmethode für die folgenden Transmissionsspektren war die in Abschnitt I.3.2 beschriebene Methode der Energietransmissionsmessung. Es wurde dabei darauf geachtet, daß die auf den Kristall auftreffenden Pulsenergien des FIR-Lasers stets unter $25 \mu\text{J}$ blieben; sie waren damit - wie im folgenden Abschnitt gezeigt - genügend gering, um Nichtlinearitäten des Absorptionskoeffizienten vernachlässigen zu können. Bei den Messungen befand sich die Probe in suprafluidem Helium bei einer Temperatur $T = 1.8 \text{ K}$.

Die Punkte in Abb. 44 zeigen die gemessenen Transmissionswerte einer Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_J] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bei einer Frequenzvariation der Strahlung des CH_3F -Raman-Lasers im Bereich von 25 cm^{-1} bis 34 cm^{-1} . Die senkrechten Striche geben die mittlere quadratische Abweichung bei einer Mittelung über 5 Laserpulse an. Die Fehler in den Frequenzwerten betragen etwa $\pm 0.05 \text{ cm}^{-1}$ (vgl. Abschnitt I.2.3.1). Das Spektrum, das

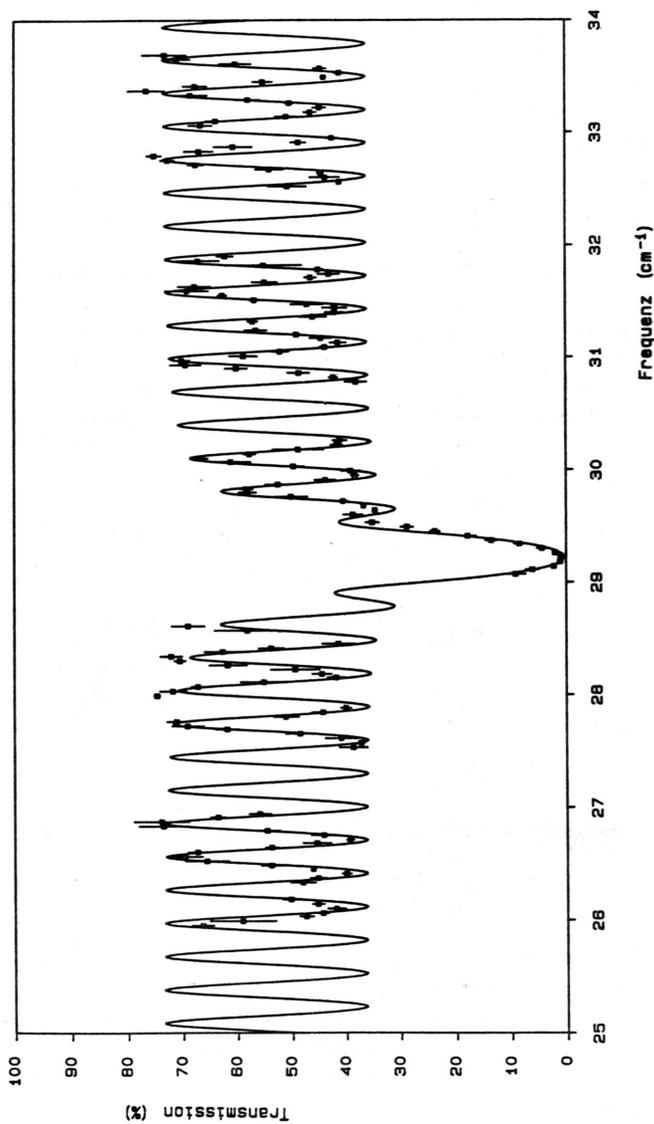


Abb. 44 Transmissionsspektrum einer 5 mm dicken Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis einer Datenanpassung an Gl.(47).

die einzelnen Abstimmintervalle des CH_3F -Raman-Lasers widerspiegelt, ist geprägt durch die Vielstrahlinterferenz der Laserstrahlung, die an den beiden parallelen Oberflächen der Siliziumprobe reflektiert wird. Denn da Silizium bei $T = 1.5 \text{ K}$ für FIR-Strahlung bei 30 cm^{-1} einen Brechungsindex von $n = 3.38$ besitzt /120/, beträgt die Reflexion pro Oberfläche $R = 30\%$. Der Vielstrahlinterferenz überlagert ist die starke Absorptionslinie mit der Zentralfrequenz bei 29.2 cm^{-1} , die die Anregung der resonanten Bandmode anzeigt.

Daß eine einfache Entnahme von Form und Breite der Absorptionslinie der resonanten Bandmode aus dem Spektrum in Abb.44 nicht möglich ist, zeigt ein Vergleich der spektralen Breite des CH_3F -Raman-Lasers ($\Delta\nu_L = (4 \pm 0.5) \text{ GHz}$; vgl. Abschnitt I.2.3.1), der erwarteten Breite Γ der Absorptionslinie ($\Gamma \leq 6 \text{ GHz}$; vgl. Abschnitt II.1.3: die von Bosomworth angegebene Breite von $0.2 \text{ cm}^{-1} = 6 \text{ GHz}$ war durch die Auflösung seines Spektrometers gegeben) und des freien Spektralbereichs FSR des als Fabry-Perot-Interferometer wirkenden Siliziumkristalls ($\text{FSR} = \frac{c}{2nd} = 8.8 \text{ GHz}$; der Kristall war auf eine Dicke $d = 5 \text{ mm}$ präpariert; c ist die Lichtgeschwindigkeit). Daher wird im folgenden eine theoretische Beschreibung der Transmission gegeben, aus der die wesentlichen Daten durch Anpassung an die experimentellen Punkte gewonnen werden sollen:

Modifiziert man die wohlbekanntere Airy-Formel für die Vielstrahlinterferenz für den Fall, daß das Medium zwischen den reflektierenden Flächen einen frequenzabhängigen Absorptionskoeffizienten $\alpha(\nu)$ besitzt, erhält man für die Transmission monochromatischer Strahlung der Frequenz ν

$$T(\nu) = \frac{e^{-\alpha(\nu)d} (1-R)^2}{1 + R^2 e^{-2\alpha(\nu)d} - 2R e^{-\alpha(\nu)d} \cos\left(\frac{4\pi n d \nu}{c}\right)}, \quad (46)$$

wobei d die Probendicke, n der Brechungsindex, R die Reflexion pro Oberfläche und c die Lichtgeschwindigkeit ist.

Ist $E(\nu) d\nu$ die auf die Probe fallende Laserenergie im Frequenzintervall $[\nu, \nu+d\nu]$, wobei $E(\nu)$ nach Abschnitt I.2.3.1 durch eine Gaußsche Verteilung der Breite $\Delta\nu_L$ mit Zentrum an der eingestellten Laserfrequenz ν_L darstellbar ist, so beträgt die gemessene effektive Transmission $T_{eff}(\nu_L)$:

$$T_{eff}(\nu_L) = \frac{\int_0^\infty E(\nu) T(\nu) d\nu}{\int_0^\infty E(\nu) d\nu} \quad (47)$$

Die Anpassung des Ausdrucks (47) an die gemessenen Transmissionswerte (durchgezogene Linie in Abb.44) erlaubt die folgenden Aussagen:

- a) Außerhalb des Frequenzbereichs der Absorption durch die Anregung der resonanten Bandmode reproduziert die berechnete Transmissionskurve (für eine spektrale Breite des Lasers $\Delta\nu_L = 3.6 \text{ GHz}$, eine Probendicke $d = 4.983 \text{ mm}$ - präpariert war auf $5 \text{ mm}!$ -, eine Reflexion $R = 30\%$ und $\alpha(\nu) = 0$) sehr gut die gemessenen Transmissionswerte.

Damit wurde bereits auf eine sehr einfach nachprüfbar Weise die Verwendbarkeit des CH_3F -Raman-Lasers (trotz seiner strukturierten Emissionscharakteristik) für absorptionspektroskopische Untersuchungen in seinem Emissionsbereich gezeigt.

- b) Für die Beschreibung der FIR-Absorption durch die Anregung der resonanten Bandmode wurde gemäß den Betrachtungen des vorhergehenden Abschnitts eine Lorentzsche Linienform für den Absorptionskoeffizienten in Gl.(46) angenommen:

$$\alpha(\nu) = \alpha_0 \frac{\Gamma^2/4}{(\nu - \nu_0)^2 + \Gamma^2/4} \quad , \quad (48)$$

wobei $\nu_0 = 29.2 \text{ cm}^{-1}$ die beobachtete Zentralfrequenz der Absorptionslinie war. Die Anpassung lieferte für den Absorptionskoeffizienten im Linienzentrum $\alpha_0 = 18.5 \text{ cm}^{-1}$ und für die Halbwertsbreite $\Gamma = 0.13 \text{ cm}^{-1}$ bzw. 4 GHz. Eine Anpassung mittels einer Gaußschen Linienform für $\alpha(\nu)$ ergab ein deutlich schlechteres Ergebnis als die in Abb. 44 gezeigte Anpassung. Analoge Messungen wurden auch an Siliziumproben mit anderen Sauerstoffkonzentrationen und Probedicken durchgeführt. (Ein Beispiel für einen 1.3 mm dicken Siliziumkristall mit einer Sauerstoffkonzentration $[\text{O}_I] = 13 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ist in Abb. 45 dargestellt. Dort beträgt $\alpha_0 = 12 \text{ cm}^{-1}$ und $\Gamma = 0.13 \text{ cm}^{-1}$). In allen Fällen erwies sich eine Anpassung mit Lorentzscher Linienform des Absorptionskoeffizienten als optimal, die Linienbreite Γ lag stets im Bereich $\Gamma = (0.13 \pm 0.01) \text{ cm}^{-1}$. Außerdem ergab sich eine lineare Abhängigkeit des Absorptionskoeffizienten α_0 von der Konzentration der Sauerstoffatome, was zeigt, daß letztere klein genug ist, um jedes Sauerstoffatom als isolierten Punktdefekt betrachten zu können. Aus der Halbwertsbreite Γ erhält man (vgl. Abschnitt II.1.4) für die Lebensdauer T_1 der Sauerstoffschwingungen gegenüber Emission resonanter Phononen $T_1 \approx 40 \text{ psec}$ bzw. für die Phasenrelaxationszeit $T_2 = 2T_1 = 80 \text{ psec}$. Diese Werte zeigen, daß während eines FIR-Laserpulses, dessen Halbwertsbreite typisch 70 nsec (vgl. Abschnitt I.2.3.2) beträgt, stets von einem (partiellen) Energiegleichgewicht zwischen den Sauerstoffschwingungen und dem Gitterschwingungssystem des Siliziumkristalls ausgegangen werden kann; denn auch wenn die FIR-Strahlung nur eine Anregung der Sauerstoffschwingungen bewirkt, erfolgt doch der Energieaustausch zwischen den beiden Systemen nach obigen Werten im Subnanosekundenbereich.

Es sei noch erwähnt, daß die gemessenen geringen Transmissionswerte im Absorptionszentrum ($T_{eff} < 1\%$) die in Abschnitt I.2.4 angesprochene Verwendbarkeit des CH_3F -Raman-Lasers zur Messung sehr kleiner Transmissionen auch an sehr kleinen Proben (der Durchmesser des Laserstrahls auf der Kristalloberfläche betrug weniger als 2 mm!) bestätigen.

Ein Demonstrationsbeispiel hochauflösender Spektroskopie mit Hilfe des CH_3F -Raman-Lasers ist in Abb. 45 zu finden. Wie bereits erwähnt, ist dort das Transmissionspektrum

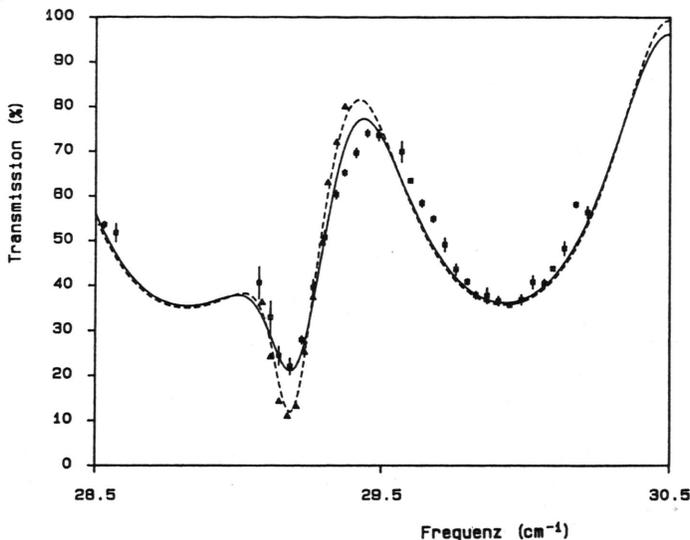


Abb. 45 Transmissionsspektrum einer Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 13 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für 2 verschiedene spektrale Breiten $\Delta\nu_L$ der Laserstrahlung: $\square \Delta\nu_L = 3.6 \text{ GHz}$; $\triangle \Delta\nu_L = 0.4 \text{ GHz}$. Die Kurven I, II sind die Ergebnisse der entsprechenden Datenanpassungen nach Gl.(47).

eines 1.3 mm dicken Siliziumkristalls mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 13 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ auszugswise dargestellt. Die Quadrate sind die Transmissionswerte bei der gleichen spektralen Breite der FIR-Strahlung wie in Abb. 44, nämlich $\Delta\nu_L = 3.6 \text{ GHz}$; die durchgezogene Linie I zeigt die Anpassung nach Ausdruck (47) mit $\alpha_o = 12 \text{ cm}^{-1}$ und $\Gamma = 0.13 \text{ cm}^{-1}$. Die Dreiecke stellen dagegen die Transmissionswerte dar, wenn die spektrale Breite der FIR-Strahlung mittels eines Fabry-Perot-Interferometers auf $\Delta\nu_L \approx 0.4 \text{ GHz}$ reduziert wird (vgl. Abschnitt I.2.3.1). Setzt man in Ausdruck (47) außer für $\Delta\nu_L$ die gleichen Parameter ein wie im Falle der durchgezogenen Kurve, erhält man die gestrichelte Kurve II. Die gute Übereinstimmung mit dem Experiment beweist die Richtigkeit der beschriebenen Auswertemethode auch im Falle der vollen spektralen Breite des CH_3F -Raman-Lasers. Im Gegensatz zu den Messungen von Bosomworth, der nur eine obere Grenze $\Gamma \leq 0.2 \text{ cm}^{-1}$ für die Halbwertsbreite der Absorptionslinie der resonanten Bandmode angeben konnte, folgt aus den

Ergebnissen dieser Arbeit: $\Gamma = (0.13 \pm 0.01) \text{ cm}^{-1}$ bzw. $(3.9 \pm 0.3) \text{ GHz}$. Dieser Wert liegt nahezu in der gleichen Größenordnung wie die Abschätzung von $\Gamma = 0.7 \text{ GHz}$ im Falle interstitieller Störstellen kubischer Symmetrie in Silizium im vorhergehenden Kapitel.

II.3. Nichtlineare Absorption von Ferninfrarotstrahlung in Sauerstoff-dotiertem Silizium

3.1 Experimentelle Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden Messungen vorgestellt, die erstmals eine nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung durch eine resonante Bandmode in gestörten Kristallen demonstrieren. Der Nachweis wurde erbracht durch Untersuchung der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls für FIR-Strahlung hoher Pulsenergie mit Frequenzen in der unmittelbaren Umgebung der Resonanzfrequenz $\nu_o = 29.2 \text{ cm}^{-1}$ der resonanten Bandmode. Der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte CH_3F -Raman-Laser lieferte die dafür nötigen Voraussetzungen.

Bevor nun die Meßresultate gezeigt werden, seien zunächst kurz die für ihre Interpretation nötigen experimentellen Bedingungen angegeben:

- Als Probenkristall wurde der mit $18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ Sauerstoffatomen dotierte Siliziumkristall verwendet, dessen Transmissionspektrum anhand von Abb. 44 diskutiert wurde.
- Der Kristall befand sich in suprafluidem Helium bei einer Temperatur $T = 1.8 \text{ K}$. Da dann $kT \ll h\nu_o$ ($k = \text{Boltzmannkonstante}$, $h = \text{Plancksches Wirkungsquantum}$) ist, kann jegliche thermische Anregung von Sauerstoffschwingungen vernachlässigt werden.
- Sämtliche Angaben der Pulsenergie der FIR-Strahlung kennzeichnen die auf die Probe treffende Energie und wurden nach Gl.(37) unter Verwendung des Korrekturfaktors $\gamma = 3.5$ bestimmt. (Eine Begründung für die Wahl dieses Korrekturfaktors wird im Laufe der folgenden Abschnitte gegeben.)
- Die Halbwertsbreite der durch ein Gaußsches Profil beschreibbaren Intensitätsverteilung der FIR-Strahlung (vgl. Abschnitt I.3.1) auf der Probenoberfläche betrug 1.7 mm . Eine Pulsenergie von $E = 100 \mu\text{J}$ ergibt somit im räumlichen Zentrum des Laserstrahls eine Energiedichte von $3 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ bzw. eine Spitzenintensität von $43 \frac{\text{kW}}{\text{cm}^2}$ bei einer Pulsdauer der FIR-Strahlung von 70 nsec .
- Die spektrale Breite der auf den Kristall treffenden Strahlung war die volle spektrale Breite des CH_3F -Raman-Lasers $\Delta\nu_L = 3.6 \text{ GHz}$.

In Abb. 46 sind die Energietransmissionswerte für einzelne FIR-Pulse mit verschiedenen Pulsenergien bis zu $200 \mu\text{J}$ bei einer Laserfrequenz $\nu_L = 29.22 \text{ cm}^{-1}$ aufgetragen. Es zeigt

sich ein deutlicher Anstieg der Transmission T_{eff} mit der FIR-Pulsenergie: ausgehend von $T_{eff} = 0.2\%$ bei geringen Pulsenergien erreicht sie einen um den Faktor 10 höheren Wert von $T_{eff} = 2\%$ bei Pulsenergien von $200 \mu\text{J}$.

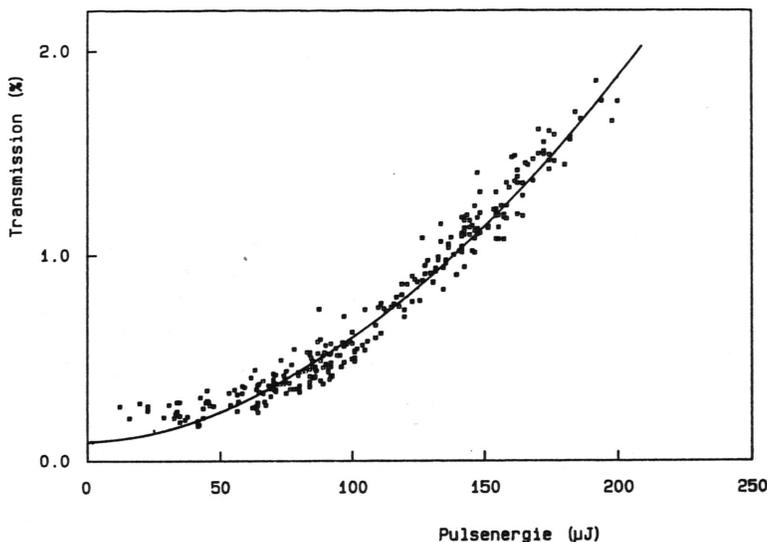


Abb. 46 Transmission einer 5 mm dicken Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ als Funktion der FIR-Pulsenergie für eine Laserfrequenz von 29.22 cm^{-1} ; die spektrale Breite des Detektors war auf 2.8 GHz eingeschränkt (siehe Text). Die durchgezogene Linie ist eine Modellrechnung gemäß Abschnitt II.3.2.4.

Die in Abb. 46 gezeigte Messung bedarf jedoch noch einer ergänzenden Bemerkung zu den experimentellen Bedingungen: Wie in Abschnitt I.2.3.1 erläutert, treten bei hohen Pulsenergien des CH_3F -Raman-Lasers im Emissionsspektrum des Lasers neben der (durch die Frequenz des Hochdruck- CO_2 -Lasers bestimmten) Frequenz der Ramanemission weitere Komponenten auf, die durch resonante, der Ramanemission nachfolgende Übergänge im Rotationsniveauschema eines CH_3F -Moleküls verursacht werden. Bei den in diesem Kapitel beschriebenen Experimenten wurde im Falle einer Laserpulsenergie größer als $250 \mu\text{J}$ - dies entspricht einer auf die Probe treffenden Energie von etwa $125 \mu\text{J}$ - neben der Frequenz der Ramanemission

auch Strahlung der Frequenz 28.5 cm^{-1} (Übergang $|1, J = 17\rangle \rightarrow |1, J = 16\rangle$) in CH_3F) beobachtet. Der Anteil dieser Strahlung in der gesamten Pulsenergie betrug zwar nur einige Prozent bei einer Laserpulsenergie von $400 \mu\text{J}$, aber da in den geschilderten Experimenten die Probe für Strahlung mit einer Frequenz in der Umgebung von ν_0 auch nur eine Transmission von einigen Prozent zeigte, konnte das Auftreten dieser zusätzlichen Strahlungskomponente, die ja im Siliziumkristall nicht absorbiert wurde, eine Nichtlinearität der Transmission vortäuschen. Aus diesem Grund wurde das in Abschnitt I.2.2 beschriebene Fabry-Perot-Interferometer (eingestellt auf die Frequenz der Ramanemission ν_L mit einer Bandbreite $\Delta\nu_{FP} = 2.8 \text{ GHz}$) zwischen Probe und Transmissionsdetektor eingefügt, um die 28.5 cm^{-1} -Strahlung zu unterdrücken. (Ein Einfügen des Fabry-Perot-Interferometers zwischen Laser und Probe war in diesem Fall infolge der hohen Energieverluste der Laserstrahlung beim Durchgang durch das Interferometer [etwa 70% - vgl. Abschnitt I.2.2] nicht sinnvoll.) Die Strahlung wurde daher nur in einer spektralen Breite von 2.8 GHz detektiert, wenngleich auch ihre spektrale Breite beim Auftreffen auf den Kristall 3.6 GHz betrug.

Wie die Energietransmission als Funktion der auf die Probe fallenden FIR-Pulsenergie für den Fall aussieht, daß kein Fabry-Perot-Interferometer die 28.5 cm^{-1} -Strahlung unterdrückt, zeigt Abb. 47 für drei verschiedene FIR-Frequenzen ($\nu_L = 29.22 \text{ cm}^{-1}$, 29.25 cm^{-1} und 29.28 cm^{-1} ; alle Frequenzangaben erfolgten durch Vergleich der Transmission bei niedriger Pulsenergie mit dem Transmissionspektrum in Abb. 44 und der daran angepaßten effektiven Transmission nach Gl.(47)). Auch hier sieht man eine deutliche Zunahme der Transmission mit der FIR-Pulsenergie. Die durchgezogenen Linien in Abb. 46 und 47 stellen das (vorweggenommene) Ergebnis einer Modellrechnung dar, deren Inhalt Gegenstand der nächsten Kapitel ist. Während die gerechnete Transmissionskurve bei Abb. 46 sehr gut mit den experimentellen Werten übereinstimmt, war bei den Experimenten ohne Interferometer in Abb. 47 eine Beschreibung der Transmissionskurven nur für Pulsenergien unter $125 \mu\text{J}$ möglich; die Abweichung oberhalb dieser Energie ist eine Folge des Einsetzens der Emission der 28.5 cm^{-1} -Strahlung. Die Ursache der Streuung der Transmissionswerte in Abb. 46 und Abb. 47 liegt darin, daß auch bei gleichbleibender Laserpulsenergie von Puls zu Puls sich sowohl die spektrale Verteilung der Laserstrahlung ändert (nur über mehrere Pulse gemittelt ergibt sich eine annähernd Gaußsche Verteilung mit der Breite $\Delta\nu_L$ und dem Zentrum bei ν_L) als auch die zeitliche Struktur der Laserpulse, die, wie in den folgenden Abschnitten gezeigt wird, Einfluß auf die Energietransmission hat. Auch die geringen Schwankungen in der Ausbreitungsrichtung der Laserstrahlung durch die von Puls zu Puls verschiedene Modenausbreitung im Wellenleiterrohr des CH_3F -Raman-Lasers spielt nach Abschnitt I.3.1 eine Rolle.

Eine wichtige Ergänzung für die Analyse der nichtlinearen Energietransmission lieferten Messungen der zeitlichen Änderung der Transmission während eines Laserpulses hoher Energie. Bei diesen Messungen wurde die zeitliche Struktur des auf die Probe fallenden FIR-

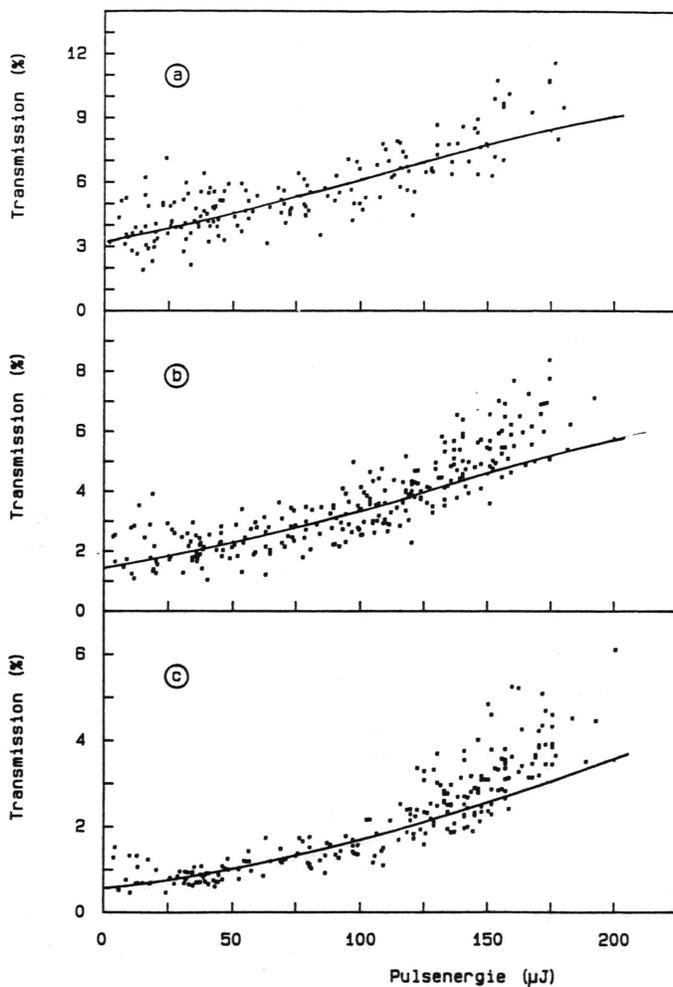


Abb. 47 Transmission einer 5 mm dicken Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ als Funktion der FIR-Pulsenergie für drei verschiedene Laserfrequenzen a) 29.28 cm^{-1} , b) 29.25 cm^{-1} , c) 29.22 cm^{-1} . Die spektrale Breite des Detektors war nicht begrenzt (siehe Text). Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis von Modellrechnungen gemäß Abschnitt II.3.2.4.

Laserpulses sowie des transmittierten Pulses simultan mittels 2 Schottkydioden gemäß der Methode in Abschnitt I.3.2 aufgezeichnet und daraus die Transmission bestimmt. Abb. 48 a) und b) zeigen als Beispiel die beiden Pulsstrukturen für einen FIR-Puls mit einer Einfallenergie von $110 \mu\text{J}$ und einer Frequenz von 29.22 cm^{-1} . (Das Fabry-Perot-Interferometer wurde hier nicht verwendet.) Aufgetragen wurden in Abb. 48 die Intensitäten der beiden Pulse im räumlichen Zentrum der FIR-Strahlung; denn da der Antennenquerschnitt der Schottkydioden (hier näherungsweise als λ_L^2 angenommen, wobei $\lambda_L = 342 \mu\text{m}$ die Wellenlänge der FIR-Strahlung kennzeichnet) klein ist gegen die Halbwertsbreite von 1.7 mm der Querschnittsverteilung der Strahlung am Ort der Detektoren, ist die Intensität, nicht die Leistung die beobachtete Meßgröße; die Berechnung ihres Absolutwertes erfolgte aus der gemessenen Pulsenergie zusammen mit der gemessenen zeitlichen Pulsstruktur unter Berücksichtigung der Verteilung der Intensität der FIR-Strahlung innerhalb ihres Strahlquerschnitts (siehe Abschnitt I.3.1).

In Abb. 48 c) ist die resultierende Transmission dargestellt, die einen starken Anstieg in der ersten Hälfte des FIR-Pulses zeigt (durchgezogene Linie; die gestrichelte Linie ist das Ergebnis der erwähnten Modellrechnung). Das zum Intensitätsmaximum des einfallenden FIR-Pulses zeitlich versetzte Maximum der Transmission sowie ihr leichter Abfall in der zweiten Hälfte des Pulses deuten bereits an, daß eine hohe Anregung der resonanten Bandmode durch Ferninfrarotabsorption zwar für Zeiten länger als die Dauer des FIR-Pulses existiert, daß aber Dämpfungsmechanismen bereits während des Laserpulses wirksam sind.

3.2 Analyse der experimentellen Ergebnisse

Ziel dieses Kapitels ist, die (bereits angedeutete) Dämpfung der durch Absorption von FIR-Strahlung stark angeregten resonanten Bandmode genauer zu analysieren. So sollen anhand der beobachteten nichtlinearen Transmission der FIR-Strahlung (und einiger zusätzlicher Experimente, die noch geschildert werden) Rückschlüsse gezogen werden, wie und innerhalb welcher Zeit die durch die FIR-Absorption injizierte Energie aus dem (durch Emission und Reabsorption resonanter Phononen) gekoppelten System von Sauerstoffschwingungen und Gitterschwingungen des Siliziumkristalls abfließt. Zu diesem Zweck wird zunächst die Abhängigkeit der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls von der FIR-Pulsenergie anhand eines einfachen Ratengleichungsmodells für den Fall berechnet, daß während des FIR-Pulses keine Energie aus dem gekoppelten System verlorengeht. Die Ergebnisse zeigen eine deutlich stärkere Zunahme der Transmission mit der FIR-Pulsenergie, als experimentell beobachtet wurde, was einen erneuten Beweis darstellt, daß eine Dämpfung der resonanten Bandmode bereits während des Laserpulses erfolgt. Mögliche Dämpfungsmechanismen werden diskutiert. Experimente zur Ausbreitung der resonanten Phononen, erzeugt durch Relaxation

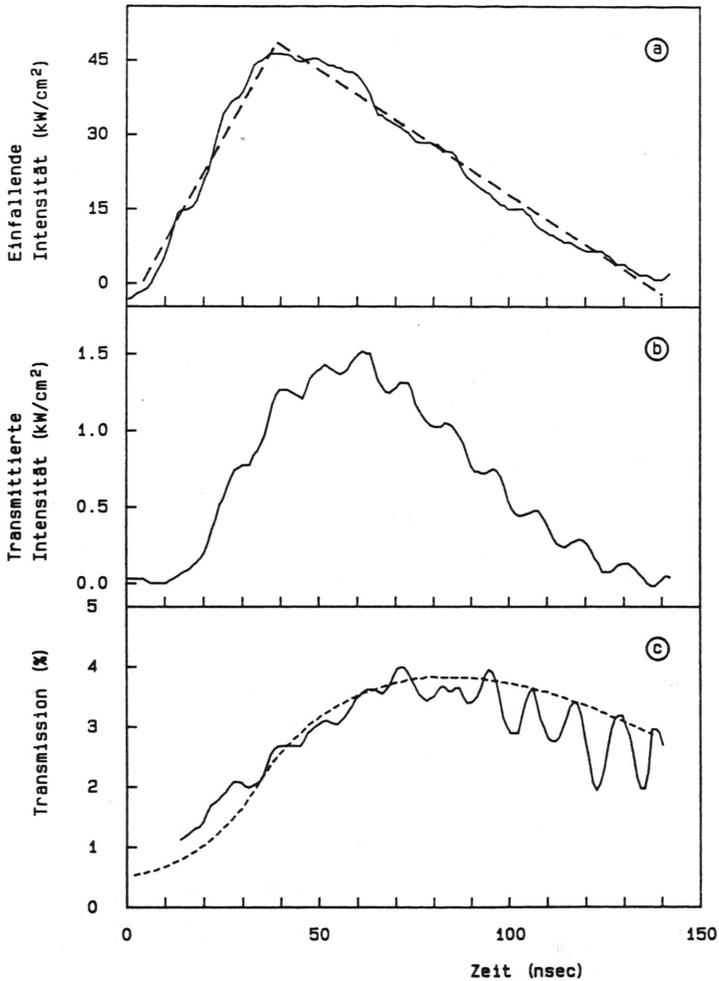


Abb. 48 Zeitliche Änderung der Transmission eines 5 mm dicken Siliziumkristalls mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für einen FIR-Puls der Energie $110 \mu\text{J}$ (durchgezogene Kurve in c); die gestrichelte Kurve stellt das Ergebnis einer Modellrechnung nach Abschnitt II.3.2.4 dar. a) und b) zeigen die zeitliche Struktur des einfallenden und transmittierten FIR-Pulses. (Die gestrichelte Kurve in a) ist eine idealisierte zeitliche Struktur, die in der erwähnten Modellrechnung verwendet wird.)

der Sauerstoffschwingungen nach Anregung durch die FIR-Strahlung, werden beschrieben; sie ermöglichen den Schluß, daß eine sogenannte räumlich-spektrale Diffusion (siehe Abschnitt II.3.2.3) dieser Phononen den dominanten Dämpfungsmechanismus für die resonante Bandmode darstellt. Es wird gezeigt, daß eine Einbeziehung dieses Mechanismus in die Modellrechnung eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten liefert.

3.2.1 Modellrechnung für die Abhängigkeit der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls von der FIR-Pulsenergie für den Fall vernachlässigbarer Dämpfung der resonanten Bandmode

Die grundlegenden Ideen zur Berechnung der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls für gepulste FIR-Strahlung im Falle verschwindender Dämpfung der resonanten Bandmode sind im folgenden kurz skizziert:

- a) Gemäß den Betrachtungen in den Abschnitten II.1.3 und II.1.4 läßt sich das System der Sauerstoffschwingungen mit einem System von untereinander identischen Zweiniveausystemen identifizieren, deren Energieabstand durch die Resonanzfrequenz ν_0 der resonanten Bandmode gegeben ist und die homogen im Siliziumkristall verteilt sind. Ihre Konzentration ist gegeben durch die Konzentration N der Sauerstoffatome. Die Wechselwirkung dieser Zweiniveausysteme mit dem Schwingungssystem des Siliziumkristalls durch ständige Emission und Reabsorption resonanter Phononen, die nach II.1.4 die resonante Bandmode ausmacht, läßt sich durch folgende Rategleichung beschreiben (Eintreffen von FIR-Strahlung wird dabei noch nicht betrachtet):

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\frac{N_2(t)}{T_1} + \int_0^{\infty} \frac{Z(\nu, t) d\nu}{\tau_{res}(\nu)} \quad (49)$$

Hierbei ist $N_2(t)$ die Konzentration angeregter Zweiniveausysteme und $Z(\nu, t) d\nu$ die Konzentration der Phononen mit Frequenzen im Intervall $[\nu, \nu + d\nu]$. T_1 gibt die Lebensdauer der angeregten Zweiniveausysteme gegenüber der spontanen Emission von Phononen an, $\tau_{res}(\nu)$ die mittlere Zeit zwischen 2 Reabsorptionsprozessen von Phononen der Frequenz ν . Der erste Term in Gl.(49) beschreibt somit die Erzeugung von Phononen durch spontane Relaxation von angeregten Zweiniveausystemen, der zweite Term die Reabsorption von Phononen durch im Grundzustand befindliche Zweiniveausysteme. Das Integral ist nötig, da die spontan emittierten Phononen eine Frequenzverteilung endlicher Breite besitzen (siehe Punkt 2).

Bei der Aufstellung von Gl.(49) ist angenommen, daß die Emission eines resonanten Phonons den einzigen Relaxationsprozeß für angeregte Zweiniveausysteme darstellt, und

daß sich das resonante Phonon unbeeinflusst ballistisch durch den Kristall bewegt, bis es nach der Zeit $\tau_{res}(\nu)$ stets wieder von einem Zweiniveausystem reabsorbiert wird. Es geht somit keine Energie aus dem gekoppelten System von Zweiniveausystemen und resonanten Phononen verloren: die resonante Bandmode ist ungedämpft. Damit kann man eine Gleichgewichtsbedingung angeben, die beschreibt, wie sich eine im gekoppelten System enthaltene Energie (die z.B. über FIR-Absorption durch die Zweiniveausysteme injiziert wurde) nach genügend langer Zeit auf die Sauerstoffschwingungen bzw. die resonanten Phononen aufteilt. Aus $\frac{dN_2}{dt} = 0$ erhält man für den stationären Zustand

$$\frac{N_2}{T_1} = \int_0^{\infty} \frac{Z(\nu) d\nu}{\tau_{res}(\nu)} \quad (50)$$

Es gilt nach Gl. (44):

$$\tau_{res}^{-1}(\nu) = \frac{4}{D(\nu_0)} g(\nu) (N - 2N_2)$$

Hierbei ist $g(\nu) = \frac{\Gamma^2/4}{\Gamma^2/4 + (\nu - \nu_0)^2}$ mit $\Gamma = \frac{1}{2\pi T_1}$ die Linienformfunktion für die Resonanzstreuung der Phononen. Der Term N in Gl.(44) wurde hier durch $(N - 2N_2)$ ersetzt. Dies berücksichtigt in Gl.(49) auch die stimulierte Emission von Phononen. Damit ergibt sich die Gleichgewichtsbedingung

$$\frac{N_2}{N - 2N_2} D(\nu_0) \Gamma \frac{\pi}{2} = \int_0^{\infty} Z(\nu) g(\nu) d\nu \quad (51)$$

- b) Wird jetzt die Konzentration N_2 angeregter Zweiniveausysteme, die mit einer Verteilung $Z(\nu)$ resonanter Phononen im Gleichgewicht steht, durch Absorption eines kurzen FIR-Pulses um dN_2 erhöht, ist die Gleichgewichtsbedingung (51) gestört. Es wird eine gewisse Konzentration Δ von resonanten Phononen emittiert, bis die neue Konzentration $N'_2 = N_2 + dN_2 - \Delta$ angeregter Zweiniveausysteme (zusammen mit einer entsprechenden Verteilung $Z'(\nu)$ resonanter Phononen) wieder Bedingung (51) erfüllt. Aus Gründen der Energieerhaltung ist die spektrale Verteilung der erzeugten Phononen die gleiche wie die der absorbierten FIR-Strahlung; bezeichnet man diese mit $g_{FIR}(\nu)$, gilt für die Konzentration $\tilde{Z}(\nu)d\nu$ der erzeugten Phononen im Intervall $[\nu, \nu + d\nu]$: $\tilde{Z}(\nu)d\nu = \frac{\Delta}{\beta} g_{FIR}(\nu) d\nu$. Mit $\beta = \int_0^{\infty} g_{FIR}(\nu) d\nu$ ist die Normierungsbedingung $\int_0^{\infty} \tilde{Z}(\nu) d\nu = \Delta$ erfüllt. Die neue Gleichgewichtsbedingung (51) lautet dann:

$$\frac{N'_2}{N - 2N'_2} D(\nu_0) \Gamma \frac{\pi}{2} = \int_0^{\infty} (Z(\nu) + \tilde{Z}(\nu)) g(\nu) d\nu$$

Sie liefert damit folgende Bedingung für Δ :

$$\frac{N_2 + dN_2 - \Delta}{N - 2(N_2 + dN_2 - \Delta)} D(\nu_0) \Gamma \frac{\pi}{2} = \int_0^{\infty} (Z(\nu) + \frac{\Delta}{\beta} g_{FIR}(\nu)) g(\nu) d\nu \quad (52)$$

- c) Nach den bisherigen Betrachtungen über den stationären Zustand innerhalb des gekoppelten Systems von Zweiniveausystemen und resonanten Phononen wird nun der Fall betrachtet, daß zeitlich veränderliche FIR-Strahlung auf die Probe trifft. Es sei jedoch zunächst bemerkt, daß infolge der Kopplung der Zweiniveausysteme mit dem Schwingungssystem des Kristalls durch Emission und Reabsorption resonanter Phononen die Abhängigkeit der Probentransmission von der FIR-Pulsenergie wesentlich anders aussieht als im Falle einfacher isolierter Zweiniveausysteme (detaillierte Abhandlungen für den letzteren Fall findet man in /121/). So kann beispielsweise nie eine volle Transmission erreicht werden; denn dies würde $N_2 = \frac{N}{2}$, d.h. Gleichbesetzung innerhalb der Zweiniveausysteme bedeuten, was jedoch nach Gl.(51) $Z(\nu) \rightarrow \infty$ für $\nu \simeq \nu_0$ implizieren würde. Es müßten also unendlich hohe FIR-Pulsenergien auf den Kristall treffen. (Die Pulsdauer sei als lang gegenüber T_1 betrachtet). Demzufolge hat es auch keinen Sinn, im vorliegenden Fall von einer möglichen Sättigung der FIR-Absorption zu sprechen. Um die Ausbreitung eines FIR-Pulses durch den Kristall zu beschreiben, sei dennoch zunächst der Fall von isolierten Zweiniveausystemen betrachtet. Sie wird in diesem Fall durch folgende Differentialgleichungen festgelegt:

$$\frac{\partial N_2(t, z)}{\partial t} = (N - 2N_2(t, z)) \int_0^{\infty} \sigma_{FIR}(\nu) F(t, z, \nu) d\nu \quad (53a)$$

$$\frac{\partial F(t, z, \nu)}{\partial z} = -\sigma_{FIR}(\nu) F(t, z, \nu) (N - 2N_2(t, z)) \quad (53b)$$

Hierbei bezeichne z die Ausbreitungsrichtung der Strahlung durch den Kristall; $F(t, z, \nu) d\nu$ ist der Photonenfluß innerhalb des Frequenzintervalls $[\nu, \nu + d\nu]$ und $\sigma_{FIR}(\nu)$ gibt den Absorptionsquerschnitt für Strahlung der Frequenz ν an. Es gilt $N \sigma_{FIR}(\nu) = \alpha_{FIR}(\nu)$, wobei $\alpha_{FIR}(\nu)$ der Absorptionskoeffizient für FIR-Strahlung im Fall geringer Pulsenergien ist. Der Term $-2N_2$ berücksichtigt die stimulierte Emission von FIR-Strahlung. Da die beschriebenen Experimente alle bei einer Temperatur von $T = 1.8$ K durchgeführt wurden, gelten die Randbedingungen $N_2(t = 0, z) = 0$ und $Z(t = 0, z, \nu) = 0$.

Die Lösung der Gln.(53) erfolgte numerisch für eine vorgegebene spektrale Photonenflußdichte $F(t, z = 0, \nu)$. Um dabei zusätzlich aber die Kopplung der Zweiniveausysteme mit dem Schwingungssystem des Kristalls zu berücksichtigen, wurde der FIR-Puls zeitlich in einzelne Pulse von der Dauer einer Nanosekunde zerlegt. Jeder dieser

Einzelpulse führt zu einer Erhöhung dN_2 der Konzentration N_2 der angeregten Zweiniveausysteme nach Gl.(53a). Danach läßt sich gemäß Gl.(52) die Konzentration der Phononen berechnen, die emittiert werden müssen, damit ein Gleichgewicht zwischen den Zweiniveausystemen und dem System der resonanten Phononen existiert. (Hier sei daran erinnert, daß der Energieaustausch innerhalb des gekoppelten Systems nach Abschnitt II.2 in Zeiten von weniger als 100 psec erfolgt!) Mit der nach Gl.(52) erhaltenen neuen Konzentration N_2' angeregter Sauerstoffschwingungen wird das Verfahren für den nächsten Teilpuls nach Gl.(53a) wiederholt. In Verbindung mit Gl.(53b) erhält man schrittweise die spektrale Photonenflußdichte $F(t, z = d, \nu)$ nach dem Kristall der Dicke d . Aus $F(t, z = 0, \nu)$ und $F(t, z = d, \nu)$ läßt sich durch Integration über die Frequenz die (effektive) Transmission als Funktion der Zeit innerhalb des Laserpulses berechnen, zusätzliche Integration über die Zeit liefert die Energietransmission T_{eff} .

Mit dem in a)-c) skizzierten Verfahren wurde die Abhängigkeit der Transmission eines 5 mm dicken Siliziumkristalls mit der Sauerstoffkonzentration $[O_2] = 18 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ von der FIR-Pulsenergie unter den experimentellen Bedingungen aus Abschnitt II.3.1 berechnet. Hierbei wurde auch die dort angesprochene Gaußsche Intensitätsverteilung der FIR-Strahlung innerhalb ihres Strahlquerschnitts mitberücksichtigt. Für die zeitliche Struktur des FIR-Pulses wurde eine idealisierte dreieckige Struktur angenommen, die in Abb. 48 angedeutet ist.

Abb. 49 zeigt das Ergebnis für FIR-Strahlung der Frequenz 29.22 cm^{-1} zusammen mit der experimentell beobachteten energieabhängigen Transmission aus Abb. 46 unter Berücksichtigung, daß die Detektorbandbreite auf 2.8 GHz beschränkt ist. Die Modellrechnung zeigt eine wesentlich stärkere Zunahme der Transmission mit der FIR-Pulsenergie als das experimentelle Ergebnis. Die Annahme, daß keine Dämpfung der resonanten Bandmode innerhalb der Zeitdauer des Laserpulses auftritt, ist somit nicht gerechtfertigt. (Wie bereits erwähnt, wurden die Energien der FIR-Pulse nach Gl.(37) mit dem Korrekturfaktor $\gamma = 3.5$ bestimmt. Nach Abschnitt I.2.2 kann dieser Korrekturfaktor jedoch zwischen 2 und 5 liegen. Höhere Korrekturfaktoren als 3.5 bedeuten aber, daß die experimentell gefundenen Transmissionswerte erst bei höheren Energiewerten gefunden würden als in Abb. 49 angegeben. Eintragen der Modellrechnungsergebnisse in die entsprechend geänderte Skala würde eine noch krassere Abweichung vom Experiment ergeben. Auch bei dem minimalen Korrekturfaktor $\gamma = 2$ liefert die Modellrechnung immer noch eine deutlich stärkere Zunahme der Transmission mit der Pulsenergie als das Experiment.)

Anmerkung 1:

Für die Berechnung der Ausbreitung eines FIR-Pulses durch den Kristall nach Gl.(53) ist entscheidend, daß die resonanten Phononen nicht räumlich das Pumpvolumen verlassen. Dies müßte als ein Energieverlustmechanismus in die Rechnung miteinbezogen werden. Aus Gründen der Schrittweite dz , die für die numerische Lösung von (53b) gewählt wurde, so-

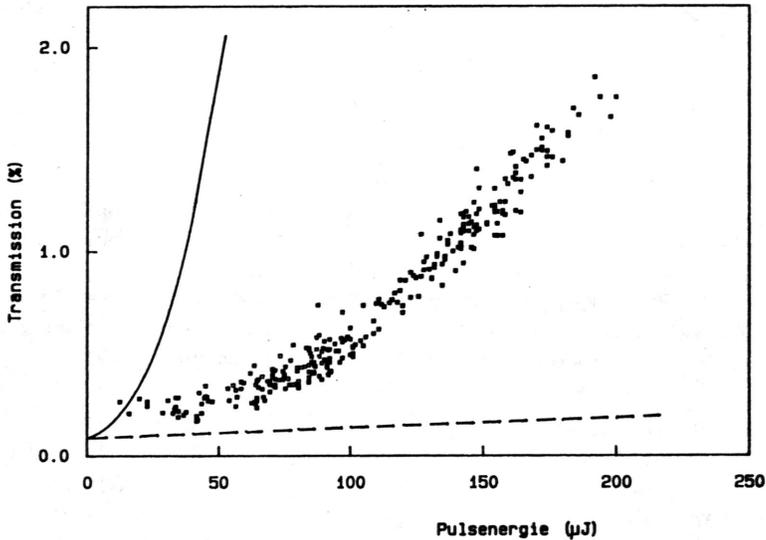


Abb. 49 Transmission einer 5 mm dicken Siliziumprobe mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{cm}^{-3}$ als Funktion der FIR-Pulsenergie für Strahlung der Frequenz 29.22cm^{-1} . Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis der in diesem Kapitel beschriebenen Modellrechnung. Die Bedeutung der gestrichelten Kurve wird in Anmerkung 2 dieses Abschnitts erklärt.

wie der Berücksichtigung der Intensitätsverteilung der FIR-Strahlung über ihren Strahlquerschnitt gilt sogar, daß sie ein Volumen von der Größenordnung einer Kugel mit Radius 0.1 mm nicht verlassen dürfen. Dies läßt sich durch eine kurze Betrachtung der Ausbreitungseigenschaften der resonanten Phononen überprüfen. Infolge der starken Resonanzstreuung breiten sich diese Phononen nur diffusiv im Kristall aus. Analog zur kinetischen Gastheorie /122/ ist die Wahrscheinlichkeit, daß ein Phonon der Frequenz ν bei dreidimensionaler Diffusion die lineare Entfernung x zurückgelegt hat, am größten für die Zeit t_{diff} :

$$t_{diff}(\nu) = \frac{x^2}{6D_{diff}(\nu)} \quad (54)$$

Die Diffusionskonstante $D_{diff}(\nu)$ ist mit der mittleren Schallgeschwindigkeit \bar{v} für Silizium

errechnet man mit Hilfe der elastischen Konstanten in /99/ den Wert $6.6 \cdot 10^5 \frac{\text{cm}}{\text{sec}}$ - und der Streuzeit $\tau_{res}(\nu)$ verknüpft durch

$$D_{diff}(\nu) = \frac{1}{3} \bar{v}^2 \tau_{res}(\nu) = \frac{\bar{v}^2}{12N} \frac{D(\nu_0)}{g(\nu)} \quad (55)$$

Hierbei wurde Gl.(44) verwendet. Mit der Debyeschen Näherung für die Zustandsdichte $D(\nu_0)$ erhält man - unter Verwendung der mittleren Schallgeschwindigkeit \bar{v} - für Phononen im Zentrum der Resonanz eine Diffusionskonstante $D_{diff}(\nu_0) = 2.2 \frac{\text{cm}^2}{\text{sec}}$; somit benötigen diese Phononen eine Zeit $t_{diff} = 7.6 \mu\text{sec}$, um ein Volumen von 0.1 mm Radius zu verlassen. Für Phononen, deren Frequenz 3 Halbwertsbreiten außerhalb des Zentrums liegt, beträgt diese Zeit noch immer 200 nsec. Die Annahme, daß die resonanten Phononen während des Laserpulses innerhalb des angegebenen Volumens bleiben, ist somit gerechtfertigt.

Anmerkung 2:

Es muß auch noch untersucht werden, ob die in Abb. 49 gezeigte nichtlineare Transmission eines 5 mm dicken Siliziumkristalls mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für FIR-Strahlung der Frequenz 29.22 cm^{-1} tatsächlich eine Folge eines hohen nichtthermischen Anregungszustandes der resonanten Bandmode ist. Denn man könnte die Frage stellen, ob die Zunahme der Transmission mit zunehmender FIR-Pulsenergie nicht einfach durch eine zunehmende lokale Erwärmung des Kristalls innerhalb des Pumpkanals infolge der dort absorbierten FIR-Energie verursacht werden könnte. Voraussetzung dafür wäre eine lokale Thermalisierung der durch Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen durch Mehrphononenprozesse (siehe Abschnitt II.3.2.2) in Zeiten, die viel kürzer sind als die Dauer des FIR-Pulses. Unter einer lokalen Thermalisierung versteht man eine Umverteilung der Phononenfrequenzen innerhalb eines Teilbereiches des Kristalls zu einer Planckschen Verteilung, die der Temperatur entspricht, die der Kristall in diesem Teilbereich annehmen würde, wenn die gesamte dort absorbierte FIR-Energie in Wärme verwandelt würde. Zu jedem Zeitpunkt während des FIR-Pulses hätte man dann an jedem Ort innerhalb des Pumpkanals eine definierte Temperatur, mit der gemäß der Boltzmannverteilung eine Konzentration N_2 angeregter Zweiniveausysteme verbunden ist. Eine an einem Ort von Null verschiedene Konzentration N_2 angeregter Sauerstoffschwingungen bewirkt aber dort eine Reduktion des Absorptionskoeffizienten $\alpha_{FIR}(\nu)$ für die FIR-Strahlung gemäß der Beziehung $\alpha_{FIR}(\nu) = \sigma_{FIR}(\nu) (N - 2N_2)$ (siehe Gl.(53a)). Eine Erhöhung der FIR-Pulsenergie bedeutet dann eine stärkere lokale Erwärmung des Kristalls und damit auch eine stärkere Reduktion der Absorption; die Transmission des Kristalls nimmt zu.

Eine einfache Abschätzung zeigt jedoch, daß die beobachteten erhöhten Transmissionswerte bei großen FIR-Pulsenergien keine Folge einer solchen lokalen Erwärmung des Kristalls sein können.

Dazu sei angenommen, daß sich die Strahlung in einem Pumpkanal von $1 \times 1 \text{ mm}^2$ Querschnitt durch den Kristall ausbreite. (Dies ist bereits ein wesentlich ungünstigerer Fall, als im Experiment gegeben war; denn dort war die Halbwertsbreite der durch ein Gaußsches Profil beschreibbaren Intensitätsverteilung im Pumpkanal etwa 1.7 mm .) Der Pumpkanal, der ja eine Länge von 5 mm besitzt, sei nun in 10 Stücke der Länge 0.5 mm zerteilt gedacht. Unter der Annahme, daß der Absorptionskoeffizient $\alpha_{FIR}(\nu)$ für die FIR-Strahlung in allen dieser Teilstücke i ($i = 1 \dots 10$) gleich ist und unabhängig von der Pulsenergie der FIR-Strahlung denselben Wert hat, wie er im Falle schwacher Pulsenergien in Abschnitt II.2 ermittelt wurde, nämlich $\alpha_{FIR}(\nu) = 18.5 \text{ cm}^{-1} \cdot g(\nu)$, läßt sich bei einer einfallenden Pulsenergie E (unter Berücksichtigung der spektralen Verteilung der FIR-Strahlung) die in jedem Teilstück i absorbierte Energie E_{abs}^i berechnen. Wenn die gesamte Energie E_{abs}^i in einem solchen Teilstück mit dem Volumen $1 \times 1 \times 0.5 \text{ mm}^3$ vollständig in Wärme verwandelt würde und innerhalb des Teilstücks bliebe, würde dieses die Temperatur

$$T^i = \sqrt[4]{T_o^4 + \frac{4E_{abs}^i}{\delta V}} \quad /123/ \quad (56)$$

erreichen. T_o ist die Temperatur des Kristalls vor Auftreffen des FIR-Pulses ($T_o = 1.8 \text{ K}$), V ist das Volumen des Teilstücks in Bruchteilen eines Mols und δ der Proportionalitätsfaktor, der in dem für $T \ll \Theta_D$ ($\Theta_D \approx 600 \text{ K}$ ist die Debyetemperatur von Silizium /99/) gültigen T^3 -Gesetz der spezifischen Wärme $C_p = \delta T^3$ auftritt. Für Silizium gilt hier $\delta = 0.008 \frac{\text{kJ}}{\text{K}^3 \text{ Mol}} /99/$.

Nach der Boltzmannverteilung läßt sich über T^i die Konzentration N_2^i angeregter Zweiniveausysteme im Teilstück i ermitteln und daraus der reduzierte Absorptionskoeffizient

$$\alpha_{FIR}^i(\nu) = \frac{1 - n^i}{1 + n^i} \alpha_{FIR}(\nu) \quad \text{mit} \quad n^i = e^{-h\nu_o/kT^i} \quad (\text{Boltzmannfaktor}) \quad (57)$$

berechnen. Unter Verwendung dieser reduzierten Absorptionskoeffizienten $\alpha_{FIR}^i(\nu)$ kann man die Transmission des Kristalls für einen hypothetischen Teststrahl geringer Energie, der die gleiche spektrale Verteilung hat wie die FIR-Strahlung, die den Kristall erwärmt, und der zu ihr kollinear durch den Pumpkanal läuft, berechnen. Diese Transmissionswerte sind in Abb. 49 (gestrichelte Kurve) als Funktion der Energie der den Kristall erwärmenden FIR-Pulse aufgetragen. Man erhält z.B. für eine Pulsenergie von $200 \mu\text{J}$ eine Transmission von 0.18% für den hypothetischen Teststrahl. Diese liegt somit um eine Größenordnung unter den gemessenen Werten. Selbst für eine Pulsenergie von $400 \mu\text{J}$ (Pulsenergien dieser Größenordnung würde man nach Gl.(37) erhalten, wenn der maximale Korrekturfaktor $\gamma = 5$ bei der Bestimmung der FIR-Pulsenergie gültig wäre) würde die Transmission des Teststrahls erst 0.25% betragen.

Eine lokale Erwärmung des Kristalls durch die Absorption der FIR-Strahlung kann somit nicht die Ursache der beobachteten Zunahme der Energietransmission mit zunehmender Pulsenergie sein. Es muß vielmehr tatsächlich ein hoher nichtthermischer Anregungszustand der resonanten Bandmode vorhanden sein. Ein direkter Beweis, daß eine schnelle Thermalisierung der resonanten Phononen während des Laserpulses nicht stattfindet, wird außerdem in den beiden folgenden Abschnitten gegeben.

3.2.2 Mögliche Dämpfungsmechanismen für die resonante Bandmode

Eine Dämpfung bzw. ein Zerfall der hochangeregten resonanten Bandmode im System Si:O bedeutet, daß Energie aus dem gekoppelten System von Zweiniveausystemen und resonanten Phononen verlorengeht. Prozesse, die nur die interne Wechselwirkung innerhalb des gekoppelten Systems, nicht aber die darin enthaltene Energie beeinflussen, führen nur zu einer Verbreiterung der Linienform des Streuquerschnitts bzw. der Ferninfrarotabsorption. (So wird beispielsweise die elastische nichtresonante Streuung thermisch vorhandener Phononen an Störstellenschwingungen - sie beeinflussen die Phasenrelaxationszeit T_2 ! - als Ursache der Verbreiterung der FIR-Absorptionslinie von resonanten Bandmoden in dotierten Alkalihalogeniden bei hohen Temperaturen diskutiert /124/). Als Energieverlustmechanismen für die resonante Bandmode kommen in Frage:

- a) Spontaner Zerfall der Sauerstoffschwingung in $\underline{2}$ oder mehr Phononen. Ein solcher Prozeß erscheint möglich, da in der Bindung der Sauerstoffatome an die benachbarten Siliziumatome auch anharmonische Anteile enthalten sind.
- b) Eine Art Differenzprozeß, bei dem ein resonantes Phonon und ein Sauerstoffschwingungsquant vernichtet werden und dabei ein Phonon der doppelten Energie entsteht.
- c) Spontaner Zerfall der resonanten Phononen in $\underline{2}$ niederenergetischere Phononen aufgrund kubisch anharmonischer Terme im Gitterpotential des Siliziumkristalls.
- d) Kombination von 2 resonanten Phononen zu einem Phonon der doppelten Energie (sog. Aufkonversion).
Dies ist der zu c) inverse Prozeß, der bei hohen Phononenbesetzungszahlen bedeutend wird /117/. Als Extremfall wäre sogar eine Thermalisierung der resonanten Phononen durch Mehrphononenprozesse denkbar, wie sie in Anmerkung 2 des vorhergehenden Abschnitts diskutiert wurde.
- e) Inelastische Streuprozesse der resonanten Phononen an im Kristall enthaltenen Defekten, bei denen die Frequenz der Phononen so stark geändert wird, daß sie von den Zweiniveausystemen nicht mehr reabsorbiert werden können.
- f) Inelastische Streuprozesse der resonanten Phononen mit geringer Frequenzverschiebung, so daß die Phononen erst nach vielen Streuprozessen den Resonanzbereich verlassen.

All diesen Prozessen mit Ausnahme von f) ist gemeinsam, daß als Folge Phononen mit Frequenzen weit außerhalb der Resonanzlinie der resonanten Bandmode entstehen. Diese unterliegen dann nicht mehr der Resonanzstreuung und sind somit kein Bestandteil des gekoppelten Systems aus Zweiniveausystemen und resonanten Phononen. Das System hat Energie verloren! Am Ende dieses Abschnitts und im folgenden Kapitel wird nun gezeigt, daß die Prozesse a)-e) als Dämpfungsmechanismen ausgeschlossen werden können, daß aber Prozeß f) einen wesentlichen Zerfallsmechanismus der resonanten Bandmode in Sauerstoff-dotiertem Silizium darstellen könnte.

Berechnungen der Lebensdauer akustischer Phononen in Silizium gegenüber spontanem Zerfall in 2 Phononen aufgrund kubischer Anteile im Gitterpotential wurden von Berke et al. /125/ durchgeführt. Für longitudinale Phononen der Frequenz $\nu_0 = 876$ GHz erhält man eine (über alle Ausbreitungsrichtungen gemittelte) Lebensdauer $\tau_L(\nu_0) = 10$ μsec , für schnelle transversale Phononen $\tau_{FT}(\nu_0) = 12.5$ μsec . Liegt ein Gemisch aus longitudinalen und transversalen Phononen dieser Frequenz vor, in dem sich die Phononen untereinander im Gleichgewicht befinden, erhält man eine mittlere Lebensdauer $\bar{\tau}(\nu_0)$, wenn man die Zerfallsraten für die verschiedenen Phononenpolarisationen mit den zugehörigen Zustandsdichten wichtet. In dem hier beschriebenen Fall wird das Gleichgewicht im Gemisch durch die Resonanzstreuung gewährleistet. Es gilt nach /125/

$$\bar{\tau}^{-1}(\nu_0) = \frac{D_L(\nu_0)\tau_L^{-1}(\nu_0) + D_{FT}(\nu_0)\tau_{FT}^{-1}(\nu_0) + D_{ST}(\nu_0)\tau_{ST}^{-1}(\nu_0)}{D_L(\nu_0) + D_{FT}(\nu_0) + D_{ST}(\nu_0)} \quad (58)$$

$D_L(\nu)$, $D_{FT}(\nu)$ und $D_{ST}(\nu)$ sind dabei die Zustandsdichten der longitudinalen und der schnellen bzw. langsamen transversalen Phononen. Vernachlässigt man den Zerfall der langsamen transversalen Phononen $\tau_{ST}^{-1}(\nu_0) \approx 0$, erhält man $\bar{\tau}(\nu_0) \simeq 22\mu\text{sec}$. Spontaner anharmonischer Zerfall (Prozeß c)) kommt somit als ein Dämpfungsmechanismus für die resonante Bandmode, der bereits während des FIR-Pulses wirksam wird, nicht in Frage.

Bevor nun die anderen Verlustmechanismen betrachtet werden, sei die Ausbreitung von Phononen in Silizium diskutiert, deren Frequenz außerhalb der Resonanzlinie der resonanten Bandmode liegt. Auch diese Phononen breiten sich nicht beliebig weit ballistisch im Kristall aus, sondern unterliegen elastischen nichtresonanten Streuprozessen an Punktdefekten wie Isotopen oder anderen Fremdatomen im Kristall, wenn ihre Frequenz unterhalb der Einsteinoszillationsfrequenz des Defektes liegt. Nach Tamura /126/ beträgt die mittlere Streuzeit $\tau_{el}(\nu)$ für elastische Streuung der Phononen der Frequenz ν an Isotopen in Silizium

$$\tau_{el}^{-1}(\nu) = V_0 \frac{4\pi^3}{v^3} \sum_{i=1}^3 f_i \left(1 - \frac{M_i}{M}\right)^2 \nu^4 \quad (59)$$

Dabei ist V_0 das Volumen pro Atom, i indiziert die verschiedenen Isotope; f_i ist der Bruchteil der Isotope mit der Masse M_i und $\bar{M} = \sum_{i=1}^3 f_i M_i$ die mittlere Atommasse. Mit den Isotopenhäufigkeiten von 92.2% Si²⁸, 4.7% Si²⁹ und 3.1% Si³⁰ erhält man für Phononen der Frequenz 800 GHz eine mittlere Streuzeit von 1.3 μ sec und damit eine mittlere freie Weglänge von 8.5 mm. Die relative Konzentration der Sauerstoffatome beträgt $3 \cdot 10^{-3}\%$ und ist somit um den Faktor 3000 kleiner als die der Isotope. Eine Miteinbeziehung in obige Formel wirkt sich somit trotz der größeren Massendifferenz nicht aus. Dies gilt auch für andere im verwendeten Kristall enthaltene Defekte wie Phosphor (10^{14} cm^{-3}), Bor ($< 10^{14} \text{ cm}^{-3}$) und Kohlenstoff ($5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

Bei den Dämpfungsmechanismen a) und e) entstehen Phononen mit Frequenzen unterhalb 800 GHz. Nach der obigen Diskussion besitzen sie somit eine mittlere freie Weglänge von mindestens 8.5 mm. Sie müßten damit den Kristall ballistisch verlassen, wenn ihre Erzeugung 5 mm vom Kristallrand entfernt erfolgt. Nimmt man an, daß die Mechanismen b) oder d) für den Zerfall der resonanten Bandmode verantwortlich sind, würden innerhalb der Zeitdauer des Laserpulses, der eine Halbwertsbreite von typisch 70 nsec besitzt, Phononen der doppelten Frequenz $2\nu_0 = 1.75 \text{ THz}$ erzeugt. Nach Berke et al. /125/ beträgt die Lebensdauer dieser Phononen gegenüber anharmonischem Zerfall für longitudinale Phononen $\tau_L(2\nu_0) \simeq 300 \text{ nsec}$ und für schnelle transversale Phononen $\tau_{FT}(2\nu_0) \simeq 400 \text{ nsec}$. Da man aber annehmen kann, daß die Zerfallsprodukte der $2\nu_0$ -Phononen über einen Frequenzbereich verschmiert sind, der groß gegenüber der Halbwertsbreite der Resonanzlinie der resonanten Bandmode ist, entstehen auch hier wieder Phononen mit solchen Frequenzen, daß sie sich ballistisch durch den Kristall ausbreiten können. Dasselbe gilt natürlich erst recht für den Fall, daß während des Laserpulses eine Thermalisierung der durch Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen stattfindet. Durch die Umverteilung der Phononenfrequenzen zu einer Planckschen Verteilung werden wiederum Phononen mit Frequenzen unter 800 GHz erzeugt, die den Kristall ballistisch verlassen können.

Bringt man daher einen Phononendetektor an einer Seite des Kristalls an, der 5 mm von dem Ort entfernt ist, wo die FIR-Strahlung auf den Kristall trifft, müßte dieser Detektor innerhalb einer Zeit von 1 μ sec nach Auftreffen des Laserpulses ballistisch den Kristall verlassende Phononen registrieren, wenn einer der Fälle a), b), d) oder e) für die Dämpfung der resonanten Bandmode verantwortlich ist. Das Ergebnis einer experimentellen Überprüfung dieser Fragestellung wird im folgenden Abschnitt geschildert.

3.2.3 Laufzeitexperimente zur Untersuchung der Ausbreitungseigenschaften der durch die FIR-Absorption erzeugten Phononen: Hinweis auf eine räumlich-spektrale Diffusion

Um die Ausbreitung der durch die Relaxation der angeregten Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen zu untersuchen, wurde ein supraleitendes Zinnbolometer auf eine Seitenfläche des Siliziumkristalls aufgebracht. Die experimentelle Konfiguration zeigt Abb. 50.

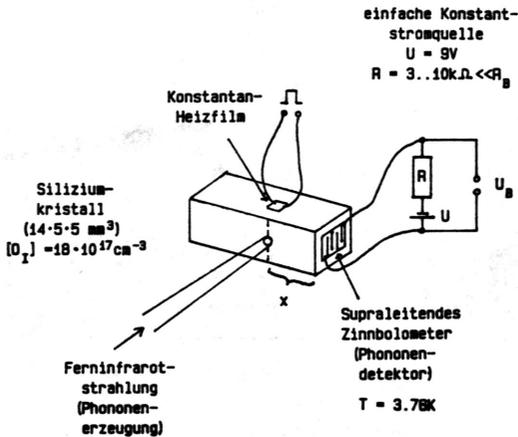


Abb. 50 Experimentelle Anordnung für die Laufzeitexperimente.

Das Bolometer wurde durch Aufdampfen einer $3 \times 4 \text{ mm}^2$ großen Zinnschicht (Dicke 550 \AA) hergestellt, in die zur Erhöhung des Widerstandes R_B (im normalleitenden Zustand) mäanderförmige Strukturen eingeritzt wurden. Der Übergang vom normalleitenden in den supraleitenden Zustand erfolgte innerhalb eines scharfen Temperaturbereichs zwischen $T = 3.74 \text{ K}$ ($R_B = 0$) und $T = 3.84 \text{ K}$ ($R_B = 30 \Omega$). Durch einen speziellen Regelkreis wurde das Bolometer auf einer Temperatur im Übergangsbereich ($T = 3.76 \text{ K}$) gehalten. Auf das Bolometer treffende Phononen bewirken eine Temperaturerhöhung des Bolometers - im metallischen Zinn erfolgt eine schnelle Thermalisierung der Phononen infolge der starken Elektron-Phonon-Kopplung! - und damit eine Widerstandsänderung, die sich bei Verwendung einer Konstantstromquelle als Spannungsänderung registrieren läßt. Die Widerstandsänderung ist in erster Näherung proportional zur Temperaturerhöhung und damit

zu der im Bolometer absorbierten Energie. (Eine detaillierte Abhandlung über supraleitende Bolometer findet sich in /127/.) Hat man zusätzlich nur Phononen in einem schmalen Frequenzbereich, ist die momentane Bolometerspannung U_B proportional zu dem momentan auf das Bolometer treffenden Phononenfluß (eine genügend kleine thermische Zeitkonstante des Bolometers sei vorausgesetzt). Über die Zeitabhängigkeit der Spannung U_B läßt sich somit die Zeitabhängigkeit des auf den Detektor treffenden Phononenflusses ermitteln.

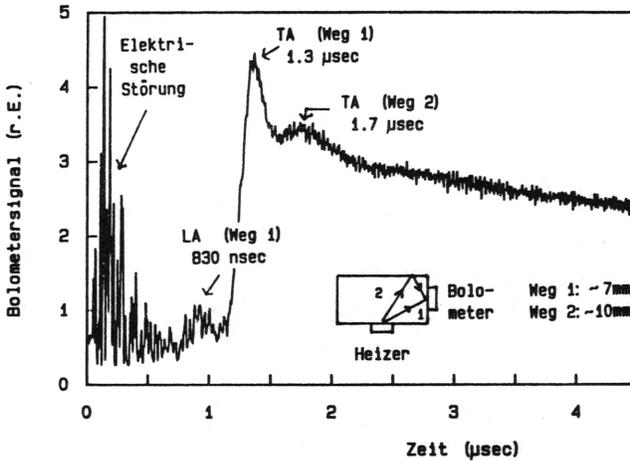


Abb. 51 Laufzeitmessungen mit Wärmepulsphononen (ihre Erzeugung fand bei $t=0$ durch einen 100 nsec langen Heizpuls statt; das Maximum der spektralen Energiedichte lag bei 950 GHz).

Zunächst wurde überprüft, ob mit der Anordnung in Abb. 50 ballistisch laufende Phononen beobachtet werden können. Zu diesem Zweck war zusätzlich ein Konstantanheizfilm (Dicke 100 Å, Fläche $1.5 \times 1.5 \text{ mm}^2$, $R = 24 \Omega$) auf eine weitere Seitenfläche des Kristalls aufgedampft. Erhitzt man den Konstantanfilm mit kurzen Strompuls auf die Temperatur T_H , werden Phononen mit einer der Temperatur T_H entsprechenden Planckschen spektralen Verteilung in den Kristall injiziert /128/. Die Heizertemperatur läßt sich mittels des akustischen Fehlanpassungsmodells /128/ abschätzen. Man erhält für die Anordnung in Abb. 50 bei Heizpuls von 100 nsec Dauer und 20 W Pulsleistung eine Heizertemperatur von $T_H \approx 16 \text{ K}$. Das Maximum der spektralen Energiedichte der in den Kristall injizierten Phononen liegt somit bei 950 GHz. Abb. 51 zeigt das zugehörige Bolometersignal $U_B(t)$

(gemittelt über 50 Pulse). Es sind klar 2 Pulse zu erkennen, die die direkte ballistische Ausbreitung von longitudinalen und transversalen akustischen Phononen vom Heizer zum Detektor anzeigen. Ein dritter Puls ist auf die Ankunft von transversalen Phononen nach einer spiegelnden Reflexion zurückzuführen. Der restliche Teil des Signals wird bestimmt durch die diffusive Ausbreitung von Phononen durch Streuung an Punktdefekten bzw. den Oberflächen des Kristalls.

Abb. 52a zeigt das Bolometersignal U_B nach Bestrahlung des Siliziumkristalls mit FIR-Pulsen einer Energie von typisch $150 \mu\text{J}$ und einer Frequenz von 29.2 cm^{-1} (gemittelt über 10 Pulse) für einen Abstand $x = 5 \text{ mm}$ zwischen Detektor und Auftreffort der FIR-Strahlung. Die Kurvenform ist typisch für eine diffusive Ausbreitung der Phononen. Messungen bei höherer Zeitaufösung (Abb. 52 b) beweisen eindeutig, daß innerhalb einer Zeit von $5 \mu\text{sec}$ nach dem Laserpuls kein Anzeichen ballistisch laufender Phononen vorhanden ist.

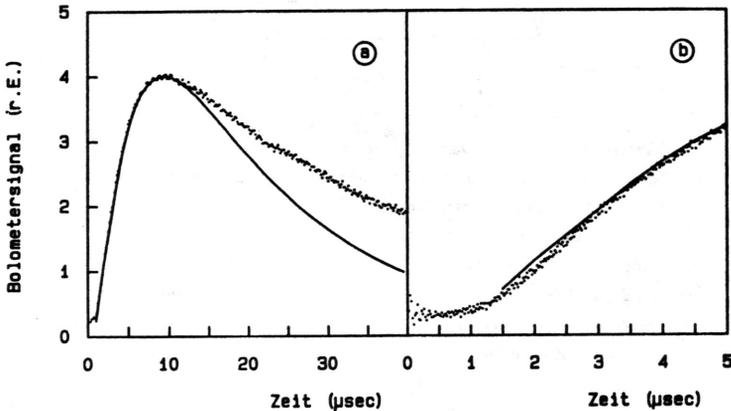


Abb. 52 Bolometersignal nach Bestrahlung des Siliziumkristalls mit FIR-Pulsen (Frequenz 29.2 cm^{-1}) bei $t=0$. Kurve b) zeigt den Anfang des Signals aus a) mit höherer Zeitaufösung. Die durchgezogene Linie ist eine Rechnung nach dem Modell der räumlich-spektralen Diffusion (siehe Text).

In Abb. 53 ist die Ankunftszeit t_{max} des Maximums der Energie, die auf das Bolometer trifft (vgl. Pfeil in Abb. 52 a) als Funktion des Abstandes x zwischen Bolometer und dem Auftreffpunkt der FIR-Strahlung für zwei verschiedene Siliziumkristalle mit verschiedenen Sau-

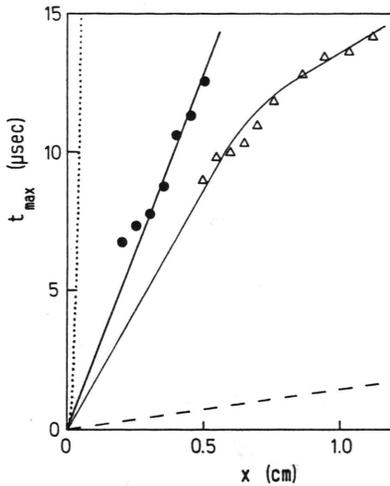


Abb. 53 Abhängigkeit der Ankunftszeit t_{max} vom Abstand x zwischen Bolometer und Auftreffpunkt der FIR-Strahlung für 2 verschiedene Siliziumkristalle mit verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen.

(● $[O_I] = 6 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ Δ $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)

Mit eingezeichnet ist die theoretische Ankunftszeit im Falle der diffusiven Ausbreitung von Phononen der Frequenz ν_0 unter dem Einfluß der Resonanzstreuung bei einer Sauerstoffkonzentration von $18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (gepunktete Kurve) sowie im Falle der ballistischen Ausbreitung (gestrichelte Kurve).

erststoffkonzentrationen aufgetragen. Ebenfalls eingezeichnet ist die theoretische Ankunftszeit t_{max} , die man für den Fall der diffusiven Ausbreitung von Phononen der Frequenz ν_0 infolge der resonanten Streuung an den Sauerstoffatomen ($[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) erwarten würde (gepunktete Kurve). Nach Abschnitt II.3.2.1 ist nämlich die Wahrscheinlichkeit dafür, daß Phononen der Frequenz ν_0 im Abstand x von ihrem Erzeugungsort beobachtbar sind, am größten für die Zeit

$$t_{max}(x) = \frac{x^2}{4D_{diff}(\nu_0)} \quad \text{mit} \quad D_{diff}(\nu_0) = 2.2 \frac{\text{cm}^2}{\text{sec}} \quad (60)$$

(Da die experimentelle Anordnung in Abb. 50 eine annähernd zweidimensionale Konfiguration darstellt, steht hier der Faktor 4 im Nenner im Gegensatz zur dreidimensionalen

Betrachtung in Abschnitt II.3.2.1 (Gl.(54)), die den Faktor 6 erfordert /122/. Die errechneten Zeiten übertreffen die gemessenen Zeiten t_{max} zum einen um Größenordnungen, zum anderen erfordern sie eine quadratische Abhängigkeit der Ankunftszeit t_{max} vom Abstand x , während die beobachteten Zeiten zumindest für kleine Abstände x eine lineare Abhängigkeit vom Abstand besitzen (durchgezogene Linien). Die gestrichelte Kurve zeigt als anderen Extremfall das Ergebnis für eine ballistische Ausbreitung der Phononen (berechnet mit der mittleren Schallgeschwindigkeit $\bar{v} = 6.6 \cdot 10^5 \frac{\text{cm}}{\text{sec}}$). Die erhaltenen Zeiten sind hier sehr viel kleiner als die beobachteten.

Die oben genannten Ergebnisse lassen sich aber mit Hilfe des Modells der sog. räumlich-spektralen Diffusion der durch die Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen interpretieren. Dieses Modell wurde erstmals bei Untersuchungen des Resonanzeinfangs akustischer 870 GHz Phononen durch das elektronische Zweiniveausystem ($\bar{E}, 2\bar{A}$) optisch angeregter Cr^{3+} -Ionen in Rubin diskutiert /129-131/. Räumlich-spektrale Diffusion bedeutet, daß die Ausbreitung der Phononen durch 2 Einflüsse bestimmt wird, nämlich durch resonante (elastische) Streuung (hier an den Sauerstoffatomen) und zusätzlich durch inelastische Streuprozesse, bei denen sie kleinen Frequenzänderungen unterliegen, die positives oder negatives Vorzeichen haben können. Nimmt man eine mittlere Frequenzverschiebung $\pm \nu_R$ pro inelastischem Streuprozess an und bezeichnet man mit τ_{in} die mittlere Zeit zwischen zwei solchen Streuprozessen (sie sei als unabhängig vom Vorzeichen der Frequenzverschiebung angenommen), läßt sich die zeitliche (spektrale) Veränderung einer gegebenen anfänglichen spektralen Verteilung von Phononen analog einer eindimensionalen räumlichen Diffusion beschreiben. Die räumliche Diffusionskonstante wird hierbei durch die spektrale Diffusionskonstante $D_\nu = \frac{\nu_R^2}{\tau_{in}}$ ersetzt (ν_R entspricht der mittleren freien Weglänge bei der räumlichen Diffusion, τ_{in} der mittleren Zeit zwischen zwei Streuprozessen); sie sei im folgenden als frequenzunabhängig betrachtet. Die spektrale Verteilung der durch die Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten resonanten Phononen ist nach Abschnitt II.3.2.1 durch die spektrale Verteilung der absorbierten FIR-Strahlung gegeben (≈ 3.6 GHz!). Ihre Ausbreitung unter dem Einfluß der Resonanzstreuung würde im wesentlichen der gepunkteten Kurve in Abb. 53 folgen. Infolge der spektralen Diffusion verbreitert sich jedoch diese Verteilung. Ein Teil der Phononen wandert (im Frequenzraum) in die Flanken der Resonanzlinie, besitzt damit einen geringeren Streuquerschnitt für die resonante Streuung an den Sauerstoffschwingungen, d.h. größere freie Weglängen und breitet sich somit schneller aus als der Teil der Phononen mit Frequenzen im Resonanzzentrum. Die Ausbreitung der Phononen wird durch die verallgemeinerte Diffusionsgleichung /130/

$$\frac{\partial Z}{\partial t} = D_\nu \frac{\partial^2 Z}{\partial \nu^2} + D_{diff}(\nu) \vec{\nabla}_d^2 Z \quad (61)$$

beschrieben. Hierbei ist $Z d\nu = Z(\nu, \vec{r}, t) d\nu$ wieder die Konzentration der Phononen im Intervall $[\nu, \nu + d\nu]$ am Orte \vec{r} zur Zeit t , $D_{diff}(\nu)$ ist ihre räumliche Diffusionskonstante infolge

der Resonanzstreuung an den Sauerstoffschwingungen nach Gl.(55) und D_ν die erwähnte spektrale Diffusionskonstante; ∇_d^2 bezeichne den d-dimensionalen Laplaceoperator. Von Happek et al. /130/ wurde gezeigt, daß im Falle starker spektraler Diffusion, d.h. wenn $D_\nu \gg D_{diff}(\nu_0)$, eine lineare Abhängigkeit der Ankunftszeit t_{max} vom Abstand x zwischen Bolometer und Erzeugungsort der resonanten Phononen existiert. Für den Fall einer zweidimensionalen Geometrie, wie sie annähernd in der Konfiguration in Abb.50 realisiert ist, gilt nach /130/:

$$t_{max}(x) = \frac{0.79 \Gamma}{\sqrt{D_{diff}(\nu_0) D_\nu}} \cdot x \quad (62)$$

Hierbei ist Γ wieder die Breite der Resonanzlinie für die Streuung akustischer Phononen an den Sauerstoffschwingungen. Mit $\Gamma = 4$ GHz und $D_{diff}(\nu_0) = 2.2 \frac{\text{cm}^2}{\text{sec}}$ erhält man für den Fall des mit $18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ Sauerstoffatomen dotierten Siliziumkristalls aus der durchgezogenen Linie in Abb. 53 eine spektrale Diffusionskonstante $D_\nu = 1.3 \cdot 10^{28} \frac{\text{Hz}^2}{\text{sec}}$. Daraus Werte für ν_R und τ_{in} zu ermitteln ist, da beide unbekannt sind, nicht möglich. Wäre $\tau_{in} = 10$ nsec, wäre $\nu_R \approx 11.5$ GHz. Die Abweichung der experimentellen Werte vom linearen Zusammenhang zwischen der Ankunftszeit t_{max} und dem Abstand x bei großen Abständen ist eine Frage der endlichen Ausdehnung des Kristalls. Happek et al. /129/ haben gezeigt, daß sich in diesem Fall nach einer genügend langen Zeit t_E eine stationäre räumliche Phononenverteilung im ganzen Kristall ausgebreitet hat, die nur mehr zeitlich exponentiell abnimmt. Es können somit keine längeren Ankunftszeiten t_{max} als t_E gemessen werden!

Ähnliche Resultate, wie sie in Abb. 53 bereits für 2 verschiedene Siliziumkristalle gezeigt sind, wurden auch für weitere Kristalle mit noch anderen Sauerstoffkonzentrationen gefunden. Der Wert der spektralen Diffusionskonstante war jedoch für jeden Kristall, die alle von unterschiedlichen Quellen stammten, verschieden. Eine Korrelation mit der Sauerstoffkonzentration konnte dabei nicht gefunden werden /132/. Da die Qualität der verschiedenen Kristalle und die in ihnen enthaltenen Verunreinigungen in den meisten Fällen unbekannt waren, ist auch die mikroskopische Ursache für die inelastischen Streuprozesse zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch völlig unbekannt.

Um den Hinweis auf räumlich-spektrale Diffusion anhand der Diskussion von Abb. 53 noch zu bekräftigen, wurde in Abb. 52 die auf das Bolometer fallende Energie als Funktion der Zeit miteingetragen, die numerisch anhand einer Lösung der Gl.(61) in /130/ für die experimentelle Konfiguration in Abb. 50 für $x = 5$ mm unter Verwendung der obigen spektralen Diffusionskonstante berechnet wurde. (Die endliche Ausdehnung des Bolometers wurde dabei berücksichtigt.) Es zeigt eine gute Übereinstimmung im ersten Teil des Signals. Die Abweichung im zweiten Teil kann eine Folge davon sein, daß der Kristall wie oben erwähnt endlich ist und daß damit insbesondere keine exakte zweidimensionale Geometrie vorhanden ist.

Zusammenfassend gilt: Die Untersuchung der Ausbreitung der durch Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen mittels Laufzeitexperimenten ergab keinen Anhaltspunkt dafür, daß Phononen innerhalb der Zeitdauer von 1 μsec nach dem Laserpuls den Kristall ballistisch verlassen. Die Dämpfungsmechanismen a), b), d) und e) des vorhergehenden Abschnitts können damit gemäß der dortigen Diskussion nicht für den Zerfall der resonanten Bandmode verantwortlich sein. Die Ursache dafür scheinen vielmehr inelastische Streuprozesse zu sein, die kleine Frequenzverschiebungen der resonanten Phononen zur Folge haben, so daß diese allmählich (d.h. nach vielen Streuvorgängen) die Resonanzlinie verlassen und somit langsam dem gekoppelten System von Sauerstoffschwingungen und resonanten Phononen verlorengehen. Welcher mikroskopische Mechanismus für die inelastischen Streuprozesse verantwortlich ist, ist noch nicht bekannt.

3.2.4 Erweiterung der Modellrechnung mit spektraler Diffusion der resonanten Phononen als Dämpfungsmechanismus der resonanten Bandmode

In Abschnitt II.3.2.1 wurde gezeigt, daß die resonanten Phononen, die in Wechselwirkung mit den Zweiniveausystemen stehen, mit denen sich die Sauerstoffschwingungen identifizieren lassen, innerhalb der Dauer des Laserpulses ein Volumen der Größenordnung einer Kugel von 0.1 mm Radius nicht verlassen. Das Näherungsverfahren zur Berechnung der Ausbreitung eines FIR-Pulses durch einen Siliziumkristall nach Gl.(53) erforderte diese Bedingung. Diese Aussage ist aber auch noch im Falle einer räumlich-spektralen Diffusion der resonanten Phononen näherungsweise gültig. Denn nach Abschnitt II.3.2.3 gilt: Werden zu einem Zeitpunkt $t = 0$ an einem Ort resonante Phononen erzeugt, erreicht die Konzentration der Phononen im Abstand x vom Erzeugungsort ihr Maximum zur Zeit $t_{max} = \frac{0.65 \cdot \Gamma}{\sqrt{D_{eff}(\nu_0)} D_\nu} \cdot x$. (Der Faktor 0.65 steht anstelle des Faktors 0.79 in Gl.(62), wenn, wie in diesem Fall, eine dreidimensionale Ausbreitung betrachtet wird.) Für $x = 0.1$ mm errechnet man $t_{max} \simeq 150$ nsec, so daß innerhalb des Laserpulses, dessen komplette Dauer maximal 140 nsec betrug, die Phononen als näherungsweise lokalisiert in obigem Volumen betrachtet werden können. Es genügt also, während des FIR-Pulses nur die spektrale Diffusion der resonanten Phononen zu berücksichtigen. Die Diffusionsgleichung (61) lautet dann:

$$\frac{\partial Z(\nu, t)}{\partial t} = D_\nu \frac{\partial^2 Z(\nu, t)}{\partial \nu^2} \quad (63)$$

Wird zum Zeitpunkt t_0 eine Konzentration Z_0 von Phononen in einem sehr schmalen Frequenzbereich um eine Zentralfrequenz $\tilde{\nu}$ (d.h. im Sinne einer Deltafunktion bei $\tilde{\nu}$) erzeugt, dann ist bekanntlich /122/

$$Z(\nu, t) = \frac{Z_0}{2\sqrt{\pi D_\nu(t-t_0)}} \exp\left(-\frac{(\nu-\tilde{\nu})^2}{4 D_\nu(t-t_0)}\right) \quad \forall t > t_0 \quad (64)$$

die Lösung der Diffusionsgleichung (63). Insbesondere ist die Normierungsbedingung $\int_0^\infty Z(\nu, t) d\nu = Z_0 \forall t > t_0$ erfüllt. Für die Halbwertsbreite $\Delta\nu_p$ dieser spektralen Phononenverteilung (64) gilt: $\Delta\nu_p = 4\sqrt{\ln 2} \sqrt{D\nu}(t - t_0) \forall t > t_0$; d.h. 100 nsec nach der (monochromatischen) Erzeugung der Phononen beträgt die Breite ihrer spektralen Verteilung bereits $\Delta\nu_p \simeq 120$ GHz (bei $D\nu = 1.3 \cdot 10^{28} \frac{\text{Hz}^2}{\text{sec}}$), was sehr groß gegenüber der spektralen Breite $\Delta\nu_L \simeq 3.6$ GHz der FIR-Strahlung ist. Die Anfangsverteilung der durch Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen, die ja nach Abschnitt II.3.2.1 gegeben ist durch die spektrale Verteilung der absorbierten Laserstrahlung, kann somit als näherungsweise deltapulsförmig betrachtet werden, ihre zeitliche Entwicklung ist dann durch Gl.(64) gegeben.

Nach Abschnitt II.3.2.1 wurde zur Berechnung der Ausbreitung eines FIR-Pulses durch den Kristall nach Gl.(53) der Puls zeitlich in einzelne Teilpulse von der Dauer einer Nanosekunde zerlegt. Der zu einem Zeitpunkt $t_i = i$ nsec einfallende Teilpuls führt zu einer Erhöhung dN_2 der Konzentration N_2 angeregter Zweiniveausysteme nach Gl.(53a). Über Gl.(52) erhält man die Konzentration Δ_i der Phononen, die zum Zeitpunkt t_i emittiert werden müssen, damit die Gleichgewichtsbedingung (51) erfüllt ist. Im Gegensatz zum Abschnitt II.3.2.1, wo man auf diese Art und Weise zu einem Zeitpunkt t_j folgende spektrale Verteilung der Phononenkonzentration

$$Z(\nu, t_j) = \sum_{i=1}^{j-1} \frac{\Delta_i}{\beta} g_{FIR}(\nu) \quad (65)$$

vorliegen hat, die ja nach Gl.(52) zusammen mit der Erhöhung dN_2 der Konzentration angeregter Zweiniveausysteme durch den FIR-Teilpuls zur Zeit t_j die Konzentration Δ_j emittierter Phononen zu diesem Zeitpunkt bestimmt, muß jetzt die spektrale Diffusion der Phononen nach Gl.(64) berücksichtigt werden. Es gilt somit:

$$Z(\nu, t_j) = \sum_{i=1}^{j-1} \frac{\Delta_i}{2\sqrt{\pi D\nu}(t_j - t_i)} \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_L)^2}{4D\nu(t_j - t_i)}\right) \quad (66)$$

Ansonsten ist die Durchführung der Berechnung der Ausbreitung eines FIR-Pulses durch den Kristall völlig identisch zu der, die in Abschnitt II.3.2.1 für den Fall verschwindender Dämpfung der resonanten Bandmode beschrieben wurde.

Für einen 5 mm dicken Siliziumkristall mit der Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, an dem ja die Experimente durchgeführt wurden, wurde die Abhängigkeit seiner Transmission für FIR-Strahlung der Frequenz 29.22 cm^{-1} von der Pulsenergie unter den oben genannten Nebenbedingungen und den experimentellen Bedingungen aus Abschnitt II.3.1 berechnet. Für die zeitliche Struktur des FIR-Pulses wurde wieder die in Abb.48 a skizzierte dreieckige Struktur angenommen; die annähernd Gaußsche Intensitätsverteilung der

FIR-Strahlung innerhalb ihres Strahlquerschnitts wurde berücksichtigt. Nun war gemäß der Diskussion in den Abschnitten I.3.1 und II.3.1 der exakte Wert der FIR-Pulsenergie nicht bekannt. Ihre Berechnung erfolgte nach Gl.(37), die einen Korrekturfaktor γ enthält, der im Bereich zwischen 2 und 5 liegt. Dieser Wert wurde in der Modellrechnung als freier Parameter betrachtet. Für $\gamma = 3.5$ erhält man eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der experimentell beobachteten Abhängigkeit der Transmission von der Pulsenergie und dem Ergebnis der Modellrechnung. Dies ist in Abb. 46 dargestellt. (Daß der Detektor nur Strahlung einer Bandbreite von 2.8 GHz registrieren konnte, wurde in der Modellrechnung berücksichtigt.) Die Abweichungen zwischen der experimentell beobachteten und der berechneten Transmission bei kleinen Pulsenergien können eine Folge davon sein, daß in diesem Fall die zeitliche Struktur des Laserpulses nicht mehr die idealisierte dreieckige Form, wie sie in Abb. 48 a angedeutet ist, besaß, sondern daß sie (siehe Abschnitt I.2.3.2) vielmehr stark strukturiert war und aus einigen wenigen Einzelpulsen bestand, deren Intensität natürlich stärker war als die, die für eine dreieckige Struktur aus der Pulsenergie berechnet wurde.

Eine befriedigende Übereinstimmung zwischen Experiment und Modellrechnung erhält man auch für die in Abb. 47 gezeigten Fälle, bei denen die energieabhängige Transmission für verschiedene Laserfrequenzen in der Nähe des Zentrums der resonanten Bandmode bestimmt wurde; wie in Abschnitt II.3.1 bereits diskutiert, war in diesem Fall keine Einengung der Detektorbandbreite durch ein Fabry-Perot-Interferometer vorhanden. Das zusätzliche Auftreten einer zweiten Komponente mit einer Frequenz von 28.5 cm^{-1} im Emissionsspektrum des CH_3F -Raman-Lasers bei Pulsenergien über $125 \mu\text{J}$, die nicht im Kristall absorbiert wurde, führt daher zu einer Abweichung zwischen experimentell beobachteter und berechneter Transmission bei hohen Pulsenergien. Es sei bemerkt, daß neben der Bandbreite des Detektors die Laserfrequenz ν_L die einzige Größe war, die bei der Berechnung der durchgezogenen Kurven in Abb. 47 gegenüber der Rechnung im Falle von Abb. 46 geändert wurde.

Die zeitliche Änderung der Transmission innerhalb eines FIR-Pulses mit der Frequenz $\nu_L = 29.22 \text{ cm}^{-1}$ und einer Pulsenergie von $110 \mu\text{J}$, wie sie in Abb. 48 c gezeigt ist, soll hier noch kurz genauer betrachtet werden. In Abb. 64 ist die gemessene Transmission für diesen Fall noch einmal aufgezeichnet (durchgezogene Linie). Die gestrichelte Linie ist das Ergebnis der Modellrechnung, wie sie am Anfang dieses Kapitels beschrieben wurde. Auch sie reproduziert sehr gut die gemessene zeitliche Änderung der Transmission. (Die starken Oszillationen der Transmission gegen Ende des FIR-Pulses resultieren aus elektrischen Schwingungen des Verstärkers, der bei der Messung der transmittierten Pulsintensität verwendet wurde.)

Die gepunktete Kurve zeigt das Ergebnis der Modellrechnung für den Fall, daß der Mechanismus e) aus Abschnitt II.3.2.2 für den Zerfall der resonanten Bandmode verantwortlich ist, d.h. daß inelastische Streuprozesse mit einer Rate τ_{in} so starke Frequenzänderungen der durch die Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen bewirken, daß

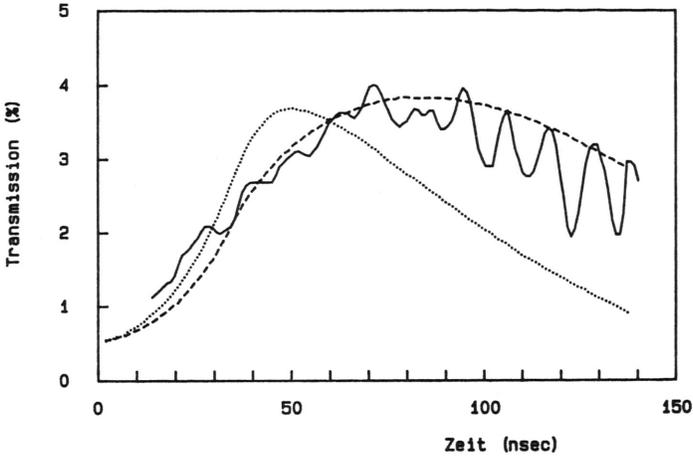


Abb. 54 Zeitliche Änderung der Transmission eines 5 mm dicken Siliziumkristalls mit einer Sauerstoffkonzentration $[O_I] = 18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ für einen FIR-Puls einer Frequenz von 29.22 cm^{-1} und einer Energie von $110 \mu\text{J}$. Die gestrichelte bzw. gepunktete Kurve ist das Ergebnis der Modellrechnung bei Berücksichtigung der spektralen Diffusion bzw. des Dämpfungsmechanismus e) aus Abschnitt II.3.2.2.

diese nicht mehr der Resonanzstreuung unterliegen. In diesem Fall gilt für die spektrale Verteilung der Phononen, die innerhalb der Resonanzlinie der resonanten Bandmode zum Zeitpunkt t_j übriggeblieben sind und die durch ihre Wechselwirkung mit den Zweiniveausystemen die Konzentration der angeregten Zustände dieser Systeme nach Gl.(51) und damit die Transmission für die FIR-Strahlung bestimmen:

$$Z(\nu, t_j) = \sum_{i=1}^{j-1} \frac{\Delta_i}{\beta} g_{FIR}(\nu) \exp\left(-\frac{t_j - t_i}{\tau_{in}}\right) \quad (67)$$

Mit $\tau_{in} \simeq 7 \text{ nsec}$ reproduziert die berechnete Kurve auch in diesem Fall gut die experimentell beobachtete energieabhängige Transmission aus Abb. 46. Die zeitlich aufgelöste Transmission (gepunktete Kurve in Abb. 64) zeigt jedoch einen wesentlich stärkeren Abfall im zweiten Teil des Laserpulses als experimentell beobachtet wurde. Ähnliche Ergebnisse sind auch für die restlichen Dämpfungsmechanismen aus Abschnitt II.3.2.2 zu erwarten. Dieses Ergebnis liefert (neben den Laufzeitexperimenten aus Abschnitt II.3.2.3) einen weiteren Hinweis, daß

die spektrale Diffusion der resonanten Phononen der hauptsächlich für den Zerfall der resonanten Bandmode verantwortliche Prozeß ist. Denn bei der spektralen Diffusion verlangsamt sich (wie bei jeder Diffusion) die Verlustrate einer gegebenen Anfangsverteilung resonanter Phononen aus einem vorgegebenen Frequenzintervall mit zunehmender Zeit, während sie beim oben betrachteten Prozeß ja konstant bleibt. Dies führt zu einem langsameren Abfall der Transmission im zweiten Teil des Laserpulses im Fall der spektralen Diffusion, als es für einen Dämpfungsprozeß mit konstanter Verlustrate der Fall wäre.

3.3 Ausblick

In diesem Kapitel wurde erstmals eine nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung durch eine resonante Bandmode in Kristallen mit Punktdefekten demonstriert. Modellsystem war ein mit Sauerstoff dotierter Siliziumkristall, in dem der in interstitieller Form vorliegende Sauerstoff zum Auftreten einer resonanten Bandmode bei 29.2 cm^{-1} führt. Mit Hilfe des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten abstimmbaren CH_3F -Raman-Lasers konnte eine Erhöhung der Transmission eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls für FIR-Strahlung obiger Frequenz bei hohen Pulsenergien beobachtet werden. Es wurde außerdem eine Modellrechnung vorgestellt, die die nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung durch ein System von homogen in einem Kristall verteilten Zweiniveausystemen beschreibt, das sich durch Emission und Reabsorption resonanter Phononen im (partiellen) Gleichgewicht mit dem Schwingungssystem des Kristalls befindet. (Die resonante Bandmode in Sauerstoff-dotiertem Silizium läßt sich als ein solches System interpretieren!) Vergleich von Modellrechnung und experimentell beobachteter Transmission gab Anlaß zu dem Schluß, daß eine Dämpfung der resonanten Bandmode bereits während des etwa 140 nsec dauernden Laserpulses eintritt. Von allen betrachteten Dämpfungsmechanismen erwies sich einzig die Vorstellung einer spektralen Diffusion der durch die Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen als verträglich mit den experimentellen Ergebnissen, insbesondere mit Experimenten zur Ausbreitung dieser Phononen, so daß spektrale Diffusion der resonanten Phononen als Ursache des Zerfalls der resonanten Bandmode vorgeschlagen wurde.

Einen direkten Beweis für die spektrale Diffusion der resonanten Phononen stellen die genannten Experimente jedoch nicht dar. Um sie direkt nachzuweisen, sei folgendes Experiment vorgeschlagen:

Neutrale Donatoren bzw. Akzeptoren in Halbleitern sind in der Lage, weitere freie Elektronen bzw. Löcher an sich zu binden und sog. D^- - bzw. A^+ -Zentren /133/ zu bilden. Die Bindungsenergie für diese zusätzlichen Ladungsträger lassen sich in der effektiven Massennäherung analog zum Fall eines H^- -Ions näherungsweise berechnen. Man erhält für A^+ -Zentren in Silizium eine Bindungsenergie von etwa 2 meV; Berücksichtigung von

'central-cell'-Effekten führt zu einer Erhöhung dieses Wertes je nach Typ der Störstellen /134/. Da bei tiefen Temperaturen ($T \leq 1.8$ K) jedoch keine freien Ladungsträger vorhanden sind, müssen diese, damit sich D^- - oder A^+ -Zentren bilden können, beispielsweise durch Einstrahlen von Licht mit einer Energie größer als die Bandlücke des Halbleiters bzw. von Infrarotstrahlung mit einer Energie größer als die Bindungsenergie neutraler Störstellen erzeugt werden. Man erhält dann eine (von der eingestrahlten Lichtintensität und der Störstellenkonzentration abhängige) Gleichgewichtskonzentration von D^- - bzw. A^+ -Zentren. Treffen Phononen mit einer Energie größer als die Bindungsenergie der zusätzlichen Ladungsträger an den D^- bzw. A^+ -Zentren auf solche Zentren, werden diese neutralisiert und zusätzliche freie Ladungsträger erzeugt. Man beobachtet eine Erhöhung der Leitfähigkeit. Sie wird als phononeninduzierte Leitfähigkeit (PIC) bezeichnet. Burger /134/ hat eine detaillierte Analyse der Bindungsenergie der zusätzlichen Ladungsträger an den D^- - bzw. A^+ -Zentren nach der PIC-Methode durchgeführt. (Die Phononen wurden von ihm quasimonochromatisch mittels supraleitender Tunnelioden erzeugt.) Er fand für mit dem Akzeptor Bor in einer Konzentration von 10^{16} cm^{-3} dotierte Siliziumkristalle eine Bindungsenergie der zusätzlichen Löcher an den Bor^+ -Zentren von 3.85 meV bzw. 930 GHz. Würde man nun Sauerstoff-dotierte Siliziumkristalle zusätzlich mit Boratomen in der angegebenen Konzentration dotieren, könnte man durch Beobachtung des PIC-Signals während und nach Auftreten des FIR-Pulses auf den Kristall die Information darüber erhalten, ob und wann Phononen einer Frequenz größer als 930 GHz im Kristall auftreten. (Die FIR-Strahlung mit einer Frequenz von 876 GHz bewirkt keine Neutralisation der Bor^+ -Zentren.) Im Falle eines positiven Ergebnisses hätte man einen direkten Nachweis einer Frequenzänderung von 54 GHz der bei 876 GHz erzeugten Phononen.

Bei Verwendung des Akzeptors Indium statt Bor hätte man auch die Möglichkeit, das Auftreten von Aufkonversionsprozessen zu überprüfen. Denn die Indium^+ -Zentren besitzen eine Bindungsenergie für das zusätzliche Loch von etwa 5.9 meV bzw. 1.4 THz /134/. Die diskutierte spektrale Diffusion, die ja nach Abschnitt II.3.2.3 in 100 nsec nur eine Verbreiterung der bei $\nu_0 = 876$ GHz erzeugten schmalbandigen Phononenverteilung auf 120 GHz bewirkt, kann ein PIC-Signal während des Laserpulses nicht erzeugen. Treten jedoch Aufkonversionsprozesse bzw. Thermalisierungsprozesse bereits während des Laserpulses auf, erhält man zu diesem Zeitpunkt auch ein PIC-Signal, da bei diesen Prozessen ja Phononen der Frequenz $2\nu_0 = 1.75$ THz entstehen.

Weiterhin wäre die bislang unbekannte mikroskopische Ursache der spektralen Diffusion der resonanten Phononen zu klären. So könnte beispielsweise mittels gezielter Störstellenspektroskopie (z.B. durch photothermale Infrarotspektroskopie /135/) Art und Konzentration der in den Kristallen enthaltenen Störstellen bestimmt und eine mögliche Korrelation mit der spektralen Diffusionskonstante ermittelt werden.

Von Interesse wäre es auch, die in diesem Kapitel vorgestellten Experimente mit FIR-

Strahlung der gleichen Pulsenergie, aber wesentlich geringerer spektraler Breite $\Delta\nu_L$ zu wiederholen. In diesem Fall würden sehr viel größere Phononenbesetzungszahlen $p(\nu_0)$ als in den vorliegenden Experimenten erreicht. (Die Phononenbesetzungszahl $p(\nu_0)$ ist definiert durch $p(\nu_0) = \frac{Z(\nu_0)}{D(\nu_0)\Delta\nu_L} / 117$, wobei $Z(\nu_0)$, wie gehabt, die Konzentration der durch die Relaxation der Sauerstoffschwingungen erzeugten Phononen ist und $D(\nu_0)$ ihre Zustandsdichte darstellt.) Aufkonversionsprozesse der resonanten Phononen wären dann sehr viel wahrscheinlicher $/117/$. Es wäre zu untersuchen, ob und in welcher Weise Änderungen gegenüber den in dieser Arbeit diskutierten Ergebnissen auftreten. (Man vergleiche dazu die Diskussion, ob eine lokale Erwärmung des Siliziumkristalls durch die Absorption der FIR-Strahlung nicht die Ursache der Erhöhung der Transmission mit zunehmender FIR-Pulsenergie sein könnte, in Anmerkung 2 von Abschnitt II.3.2.1.)

Letztendlich wäre es interessant, die in diesem Kapitel beschriebenen Absorptionsexperimente auch an resonanten Bandmoden in anderen Kristallsystemen durchzuführen. Beispiele wären die Systeme $\text{MgF}_2:\text{Eu}^+$ (charakteristische Daten der resonanten Bandmode: $\nu = 15.95 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma \leq 0.15 \text{ cm}^{-1}$), $\text{NaCl}:\text{Cu}^+$ ($\nu = 23.57 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 0.4 \text{ cm}^{-1}$), $\text{KBr}:\text{Li}$ ($\nu = 16.07 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 0.43 \text{ cm}^{-1}$) oder $\text{KJ}:\text{Ag}^+$ ($\nu = 17.23 \text{ cm}^{-1}$, $\Gamma = 0.45 \text{ cm}^{-1}$) $/111/$. Die resonanten Bandmoden in all diesen Systemen liegen in einem Frequenzbereich, der mit Hilfe eines $^{13}\text{CH}_3\text{F}$ -Raman-Lasers (siehe Abschnitt I.2.1.2) zugänglich wäre.

Auch elektronische Zweiniveausysteme in Kristallen, die durch Emission und Reabsorption resonanter Phononen an das System der Gitterschwingungen gekoppelt sind, könnten mit den in diesem Kapitel beschriebenen Experimenten untersucht werden. Ein Beispiel wäre das Zweiniveausystem ($\bar{E}, 2\bar{A}$) optisch angeregter Cr^{3+} -Ionen in Rubin, das einen Energieabstand von 29.25 cm^{-1} besitzt. Die Linienbreite der FIR-Absorptionslinie beträgt $0.35 \text{ GHz} / 136/$.

Eine andere Anwendungsmöglichkeit für das hier vorgestellte FIR-Lasersystem wäre die Untersuchung von Ionenleitern wie RbAg_4I_5 oder ferroelektrischen Kristallen wie TGS und TGSe. Diese Substanzen zeigen eine Reihe scharfer Absorptionslinien im fernen Infrarot $/137,137,139/$. Sättigungsexperimente könnten Aufschluß geben, ob das Potential der die Absorption verursachenden Oszillatoren einen anharmonischen Charakter hat.

Auch der Hochdruck- CO_2 -Laser allein bietet Einsatzmöglichkeiten in der nichtlinearen Spektroskopie. Mit seiner Hilfe könnte beispielsweise das Sättigungsverhalten infrarotaktiver lokalisierter Moden in gestörten Kristallen untersucht werden. Ein Beispiel dafür ist das System $\text{CaF}_2:\text{H}^-$, das eine schmalbandige lokalisierte Mode bei 965.1 cm^{-1} besitzt $/140/$.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschreibt die Entwicklung eines abstimmbaren Hochleistungslasersystems für den ferninfraroten Spektralbereich. Das Lasersystem besteht aus einem Hochdruck-CO₂-Laser und einem CH₃F-Raman-Laser und ermöglicht eine abstimmbare Erzeugung von FIR-Strahlung in einzelnen Intervallen im Frequenzbereich von 23 cm⁻¹ bis 45 cm⁻¹. Dabei besitzen die Abstimmintervalle eine Breite von 1.2 cm⁻¹ und untereinander einen Abstand von 0.4 cm⁻¹. Mit Hilfe des Lasersystems wurde erstmals die nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung bei starker Anregung einer resonanten Bandmode in einem gestörten Kristall, deren Frequenz im Bereich der hochfrequenten akustischen Phononen des ungestörten Kristalls liegt, beobachtet.

Das der Erzeugung der FIR-Strahlung zugrundeliegende Prinzip war die stimulierte Ramanstreuung der Strahlung eines CO₂-Lasers in CH₃F-Gas. Die FIR-Strahlung kann dabei abstimmbar erzeugt werden, wenn der CO₂-Laser abstimmbar ist. Es wurde daher im Rahmen dieser Arbeit zunächst ein Hochdruck-CO₂-Laser mit einem Betriebsdruck von 20 atm entwickelt. Bei diesem Druck sind die Rotations-Schwingungs-Übergänge eines CO₂-Moleküls so stark verbreitert, daß ihr Überlapp eine kontinuierliche Emissionscharakteristik des Lasers zur Folge hat. Der Laser wurde durch eine selbständige Gasentladung mit UV-Vorionisierung angeregt. Seine Konstruktion enthielt dabei zwei wesentliche Neuerungen gegenüber den bisher veröffentlichten Konstruktionen solcher Laser:

- Die zur UV-Vorionisierung verwendeten Funkenstrecken waren parallel geschaltet. Die dadurch erreichte Verringerung der Induktivität des Vorionisierungsschaltkreises gegenüber der bisher benutzten seriellen Schaltung der Funkenstrecken führt zu sehr kurzen und intensiven UV-Strahlungspulsen sowie zu einer synchronen Vorionisierung des gesamten Entladungsvolumens. Eine direkte Kopplung von Hauptentladungs- und Vorionisierungskreis war somit möglich. Sie wurde mittels Kondensatoren innerhalb der Hochdruckkammer durchgeführt und erlaubte daher eine sehr kompakte Laserkonstruktion, die auch nur eine Hochspannungsversorgung nötig machte.
- Die Verwendung von 2 Entladungsstrecken ergab eine deutliche Ausweitung des Abstimmbereichs und eine Erhöhung der Ausgangspulsenergie bei gleichzeitiger Reduktion der Versorgungsspannung gegenüber dem Betrieb mit nur einer Entladungsstrecke, wie er bisher üblich war.

Der Hochdruck-CO₂-Laser ermöglichte eine kontinuierliche Abstimmung in allen Emissionsbereichen eines CO₂-Lasers. Insbesondere war die Emissionsfrequenz des Lasers eindeutig

durch die Winkelposition des im Resonator zur Frequenzselektion verwendeten Reflexionsgitters bestimmt. 'Frequency pulling', das häufig bei den bisher üblichen Hochdruck-CO₂-Lasern beobachtet worden war, die einen Betriebsdruck von 10-12 atm besaßen, trat nicht auf. Der Hochdruck-CO₂-Laser wurde dabei mit einem Gemisch aus CO₂, N₂ und He in der Zusammensetzung CO₂ : N₂ : He = 3:1:60 bei einem Druck von 20 atm betrieben. Die Hochspannungsversorgung erfolgte durch einen zweistufigen Marxgenerator mit einer Kapazität von 10 nF pro Stufe. Typische Ladespannungen lagen bei 50-60 kV. Das durch die Elektroden mit Changprofil gebildete aktive Volumen war $1 \times 1 \times 80 \text{ cm}^3$.

Die Eigenschaften des Lasers im einzelnen waren: Der Abstimmbereich betrug 16 cm^{-1} im 9R-Zweig (1069 cm^{-1} - 1085 cm^{-1}) und 15 cm^{-1} im 10R-Zweig (966 cm^{-1} - 981 cm^{-1}) bei einer Entladungsenergie-dichte von $21 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$, bzw. 16 cm^{-1} im 9P-Zweig (1040 cm^{-1} - 1056 cm^{-1}) und 18 cm^{-1} im 10P-Zweig (936 cm^{-1} - 954 cm^{-1}) bei einer Entladungsenergie-dichte von $26 \frac{\text{J}}{\text{atm}}$. Die Emissionscharakteristik war in den R-Zweigen völlig glatt, während in den P-Zweigen noch eine geringfügige Modulation (Tiefe etwa 15%) infolge der dort größeren Abstände der Rotations-Schwingungs-Übergänge vorhanden war. Eine Frequenzvariation war dabei in Schritten von 0.04 cm^{-1} möglich. Die spektrale Breite der emittierten Strahlung (FWHM) betrug in den Bereichen hoher Verstärkung 0.16 cm^{-1} . Eine obere Grenze für die Pulsenergie (300 mJ) war nur durch die Zerstörungsschwelle der NaCl-Brewsterfenster, die den optischen Zugang zur Hochdruckkammer ermöglichten, festgelegt. Die Dauer (FWHM) der Laserpulse betrug 130 nsec bei einem Betrieb weit über der Schwelle, d.h. bei hohen Kleinsignalverstärkungen im Zentrum der Emissionsbereiche; die Pulsform war dabei nahezu strukturlos. Bei einem Betrieb in der Nähe der Schwelle, d.h. am Rande der Abstimmbereiche, wiesen die Pulse dagegen bei einer Dauer von 190 nsec eine stark strukturierte Form auf, da das Lasermedium selbst eine Phasenkopplung der wenigen longitudinalen Moden erzeugt, die innerhalb der (bei einem Betrieb nahe der Schwelle reduzierten) Bandbreite enthalten sind. Ein spektral breitbandiger Betrieb war durch Ersetzen des Reflexionsgitters durch einen hochreflektierenden Spiegel möglich. Die Emission erfolgte dann nahezu vollständig im Zentrum des 10R-Zweiges bei einer spektralen Breite (FWHM) von etwa 2 cm^{-1} .

Der CH₃F-Raman-Laser wurde mit der Strahlung des 9R-Emissionszweiges des Hochdruck-CO₂-Lasers gepumpt. Die Kleinsignalverstärkung für die stimulierte Ramanstreuung der CO₂-Laserstrahlung wird durch einen doppelten quasiresonanten Ramanprozeß bestimmt: der Ramanübergang eines CH₃F-Moleküls kann nämlich entweder bei gleichzeitiger Emission eines FIR-Photons durch Rotationsübergänge im Schwingungsgrundzustand oder durch entsprechende Übergänge im ersten angeregten Schwingungszustand erfolgen. Die Interferenz der Wahrscheinlichkeitsamplituden der beiden Prozesse hat wesentlichen Einfluß auf die Abstimmcharakteristik des CH₃F-Raman-Lasers. So war eine abstimmbare Erzeugung von FIR-Strahlung im Frequenzbereich von 23 cm^{-1} bis 45 cm^{-1} in einzelnen Intervallen möglich, die eine Breite von etwa 1.2 cm^{-1} und untereinander einen Abstand von 0.4 cm^{-1}

besaßen. Innerhalb der Intervalle bestand ein linearer Zusammenhang zwischen der Frequenz des CO₂-Lasers und der Frequenz der FIR-Strahlung. Eine Frequenzvariation der FIR-Strahlung konnte dabei in Schritten von 0.04 cm⁻¹ entsprechend der minimal möglichen Frequenzänderung der CO₂-Laserstrahlung erfolgen. Die Bandbreite der emittierten Strahlung war (4 ± 0.5) GHz. Die Dauer (FWHM) der FIR-Pulse betrug typischerweise 70 nsec und war somit deutlich geringer als die Dauer der CO₂-Laserpulse. Ursache ist die Reduktion der Kleinsignalverstärkung während des CO₂-Laserpulses infolge einer Entvölkerung des Schwingungsgrundzustandes durch die stimulierte Ramanstreuung selbst. Innerhalb der Abstimmintervalle wurde eine starke Variation der Pulsenergie der FIR-Strahlung mit ihrer Frequenz gefunden. So wurden im Bereich großer Kleinsignalverstärkungen FIR-Pulsenergien von über 500 μJ erreicht. Der Wirkungsgrad für die Umsetzung von CO₂-Laser-Photonen in FIR-Photonen lag dabei im Bereich von 4% - 11%. Eine starke Abnahme der FIR-Pulsenergie wurde jedoch im Zentrum eines jeden Intervalls infolge eines Zwei-Photonen-Absorptionsprozesses eines CO₂-Laser-Photons und des zugehörigen FIR-Photons sowie an den Rändern der Abstimmintervalle beobachtet. Letztere steht im Widerspruch zu theoretischen Rechnungen, die gerade dort einen Anstieg der Kleinsignalverstärkung voraussagen, da dann die Frequenz der CO₂-Laserstrahlung sehr nahe den Frequenzen der CH₃F-Absorptionslinien liegen. Untersuchungen der Transmission der CH₃F-Ramanzelle für die CO₂-Laserstrahlung zeigten, daß die Resonanzabsorption dieser Strahlung in den Flanken der CH₃F-Absorptionslinien für die beobachtete Abnahme der FIR-Pulsenergie verantwortlich ist.

In einem ersten Experiment wurde demonstriert, daß das Lasersystem für die lineare Spektroskopie im ferninfraroten Spektralbereich geeignet ist. Dabei wurde als Beispiel das Absorptionsspektrum eines Sauerstoff-dotierten Siliziumkristalls ermittelt. Interstitiell in Silizium eingebauter Sauerstoff führt nämlich zum Auftreten einer resonanten Bandmode, deren Frequenz bei 29.2 cm⁻¹ im Frequenzbereich der akustischen Phononen liegt und die durch Absorption von FIR-Strahlung anregbar ist. Es wurde erstmals die genaue spektrale Breite der zugehörigen Absorptionslinie bestimmt. Sie beträgt (3.9±0.3) GHz.

Um die Anwendbarkeit des Lasersystems in der nichtlinearen Spektroskopie aufzuzeigen, wurde daraufhin die durch die Anregung der resonanten Bandmode verursachte Absorption bei hohen FIR-Pulsenergien untersucht. Dabei wurde eine starke Zunahme der Transmission eines 5 mm dicken Siliziumkristalls mit einer Sauerstoffkonzentration von 18·10¹⁷ cm⁻³ mit zunehmender Pulsenergie der FIR-Strahlung beobachtet. Betrug die Energietransmission beispielsweise bei einer FIR-Pulsenergie von 20 μJ noch 0.2%, erreichte sie bei einer Energie von 200 μJ bereits einen Wert von 2%. Die Zunahme der Transmission während eines FIR-Laserpulses hoher Energie wurde mit Hilfe zeitaufgelöster Messungen auch direkt beobachtet.

Für die Interpretation der Ergebnisse wurde berücksichtigt, daß sich die resonante Bandmode durch (mittels FIR-Absorption anregbare) Schwingungen der interstitiell im Siliziumkristall eingebauten Sauerstoffatome beschreiben läßt, die mit dem Schwingungssystem des ungestörten Siliziumkristalls durch Emission und Reabsorption resonanter Phononen, d.h. von Phononen mit der gleichen Frequenz wie die Sauerstoffschwingungen, gekoppelt sind. Infolge des durch die interstitielle Einbaulage verursachten anharmonischen Potentials der Sauerstoffschwingungen kann das zugehörige Energieniveausystem bezüglich der FIR-Strahlung von 29.2 cm^{-1} als Zweiniveausystem betrachtet werden. Die Linienbreite der lorentzförmigen FIR-Absorptionslinie zeigt, daß der Energieaustausch zwischen dem System der Sauerstoffschwingungen und dem Schwingungssystem des Kristalls in einer Zeit von 80 psec erfolgt. Da diese Zeit klein gegen die Dauer des FIR-Laserpulses ist, kann davon ausgegangen werden, daß sich die beiden Systeme während des Pulses stets im Gleichgewicht befinden. Eine Modellrechnung wurde daraufhin entwickelt, die die nichtlineare Absorption von FIR-Strahlung durch ein sättigbares System von Zweiniveausystemen beschreibt, das sich stets im Gleichgewicht mit dem nichtsättigbaren System der resonanten Phononen befindet. Der Vergleich der Ergebnisse der Modellrechnung und der experimentell beobachteten Transmission zeigte, daß eine hohe nichtthermische Anregung der resonanten Bandmode zwar für Zeiten existiert, die länger als die Dauer des FIR-Laserpulses sind, daß aber dennoch eine Dämpfung der resonanten Bandmode bereits während des Laserpulses erfolgt. Eine detaillierte Analyse der experimentellen Ergebnisse, insbesondere der zeitlichen Änderung der Transmission während des FIR-Laserpulses, und zusätzlich durchgeführte Experimente zur Ausbreitung der resonanten Phononen ermöglichten den Schluß, daß spektrale Diffusion dieser Phononen aus dem Bereich der Resonanzabsorption den dominanten Zerfallsprozeß der resonanten Bandmode darstellt.

Literaturverzeichnis

- / 1/ V.S. Letokhov und V.P. Chebotayev, *Nonlinear Laser Spectroscopy* (Springer Series in Optical Sciences, Vol.4, Springer Verlag, Berlin 1977).
- / 2/ M.S. Feld und V.S. Letokhov, *Coherent Nonlinear Optics* (Topics in Current Physics, Vol.21, Springer Verlag, Berlin 1980).
- / 3/ W. Böhm, E. Ettliger und W. Prettl, *Phys.Rev.Lett.* **47**, 1198 (1981).
- / 4/ G.R.Allan, A. Black, C.R. Pidgeon, E. Gornik, W. Seidenbusch und P. Colter, *Phys.Rev. B* **31**, 3560 (1985).
- / 5/ J. Kaminski, J. Spector, W. Prettl und M. Weispfenning, wird veröffentlicht in *Appl.Phys.Lett.*
- / 6/ G.A. Rodriguez, R.M. Hart, A.J. Sievers, F. Keilmann, Z. Schlesinger, S.L. Wright und W.I. Wang, *Appl.Phys.Lett.* **49**, 458 (1986).
- / 7/ T.Y. Chang und T.J. Bridges, *Opt.Commun.* **1**, 423 (1970).
- / 8/ R. Beck, W. Englisch und K. Gürs, *Table of Laser Lines in Gases and Vapors*, 3.Aufl. (Springer Series in Optical Sciences, Vol. 2, Springer Verlag, Berlin 1980).
- / 9/ L.R. Elias, J. Hu und G. Ramian, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **237**, 203 (1985).
- / 10/ A.A. Andronov, I.V. Zverev, V.A. Kozlov, Y.N. Nozdrin, S.A. Pavlov und V.N. Shastin, *JETP Lett.* **40**, 804 (1984).
- / 11/ A.A. Andronov, in *Infrared and Millimeter Waves*, ed. K.J. Button (Academic Press, Inc., Orlando 1986), vol. 16, p. 149.
- / 12/ M. Berg, C.B. Harris, T.W. Kenny und P.L. Richards, *Appl.Phys.Lett.* **47**, 206 (1985).
- / 13/ R. Frey, F. Pradere und J. Ducuing, *Opt.Commun.* **23**, 65 (1977).
- / 14/ A. De Martino, R. Frey und F. Pradere, *Opt.Commun.* **27**, 262 (1978).
- / 15/ D.G. Biron, B.G. Danly, R.J. Temkin und B. Lax, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-17**, 2146 (1981).
- / 16/ P. Mathieu und J.R. Izatt, *Opt.Lett.* **6**, 369 (1981).
- / 17/ B.G. Danly, S.G. Evangelides, R.J. Temkin und B. Lax, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-20**, 834 (1984).
- / 18/ V.N. Bagratashvili, I.N. Knyazev und V.S. Letokhov, *Opt.Commun.* **4**, 154 (1971).
- / 19/ T.Y. Chang und O.R. Wood, *Appl.Phys.Lett.* **23**, 370 (1973).
- / 20/ K. Stenersen und G. Wang, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-19**, 1414 (1983).
- / 21/ F.O'Neill und W.T. Whitney, *Appl.Phys.Lett.* **26**, 454 (1975).

-
- / 22/ V.N. Bagratashvili, I.N. Knyazev, V.S. Letokhov und V.V. Lobko, *Opt.Communications* **14**, 426 (1975).
- / 23/ N.G. Basov, E.M. Belenov, V.A. Danilychev, O.M. Kerimov, I.B. Kovsh, A.S. Podsonnyi und A.F. Suchkov, *Sov.Phys.-JETP* **37**, 58 (1973).
- / 24/ N.W. Harris, F. O'Neill und W.T. Whitney, *Opt.Communications* **16**, 57 (1976).
- / 25/ A.J. Alcock, K. Leopold und M.C. Richardson, *Appl.Phys.Lett.* **23**, 562 (1973).
- / 26/ D. Rollin und A.J. Alcock, *Opt.Communications* **23**, 11 (1977).
- / 27/ T.W. Carman und P.E. Dyer, *Opt.Communications* **29**, 218 (1979).
- / 28/ P.E. Dyer und B.L. Tait, *Appl.Phys.Lett.* **37**, 356 (1980).
- / 29/ B.K. Deka, P.E. Dyer und R.J. Winfield, *Opt.Communications* **39**, 255 (1981).
- / 30/ B.K. Deka, P.E. Dyer und R.J. Winfield, *Opt.Lett.* **5**, 194 (1980).
- / 31/ B.K. Deka, P.E. Dyer und R.J. Winfield, *Opt.Communications* **33**, 206 (1980).
- / 32/ A.J. Alcock und P.B. Corkum, *Phil.Trans.Roy.Soc.Lond. A* **298**, 365 (1980).
- / 33/ P.B. Corkum, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-21**, 216 (1985).
- / 34/ Wan Chong-Yi, W. Fuss, C. Schwab, Zhou Jin-Wen und K.L. Kompa, Report MPQ 86, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching 1984.
- / 35/ T. Jaeger und G.Wang, in *Tunable Lasers*, ed. L.F. Mollenauer und J.C. White (Topics in Applied Physics, Vol. 59, Springer Verlag, Heidelberg 1987), p. 303.
- / 36/ G. Herzberg, *Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules* (Van Nostrand Reinhold Comp., New York 1945).
- / 37/ W.J. Witteman, *The CO₂ Laser* (Springer Series in Optical Sciences, Vol. 53, Springer Verlag, Berlin 1987).
- / 38/ O.R. Wood, *Proceedings of the IEEE* **62**, 355 (1974).
- / 39/ J.T. Verdeyen, *Laser Electronics* (Prentice Hall, Inc., Englewood Cliffs, New Jersey 1981).
- / 40/ N.C. Chang und M.T. Tavis, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-10**, 372 (1974).
- / 41/ J. Reid, J.Shewchun und B.K. Garside, *Appl.Phys.* **17**, 349 (1978).
- / 42/ R.L. Abrams, *Appl.Phys. Lett.* **25**, 609 (1974).
- / 43/ J.L. Miller, *J.Appl.Phys.* **49**, 3076 (1978).
- / 44/ W.E. Schmid, Report IPP IV/84, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching 1975.
- / 45/ I. Burak, Y. Noter und A. Szöke, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-9**, 541 (1973).
- / 46/ E.A. Ballik, B.K. Garside, J. Reid und T. Tricker, *J.Appl.Phys.* **46**, 1322 (1975).
- / 47/ R.S. Taylor, A.J. Alcock, W.J. Sarjeant und K.E. Leopold, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-15**, 1131 (1979).
- / 48/ S. Lovold und G. Wang, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-20**, 182 (1984).
- / 49/ E. Nasser, *Fundamentals of Gaseous Ionization and Plasma Electronics* (Wiley-Interscience, New York 1971).

-
- / 50/ J.J. Lowke, A.V. Phelps und B.W. Irwin, *J.Appl.Phys.* **44**, 4664 (1973).
 - / 51/ L.J. Denes und J.J. Lowke, *Appl.Phys.Lett.* **23**, 130 (1973).
 - / 52/ W.L. Nighan und J.H. Bennett, *Appl.Phys.Lett.* **14**, 240 (1969).
 - / 53/ J.I. Levatter und Lin Shao-chi, *J.Appl.Phys.* **51**, 210 (1980).
 - / 54/ A.J. Palmer, *Appl.Phys.Lett.* **25**, 138 (1974).
 - / 55/ V.N. Karnyushin, A.N. Malov and R.I. Soloukhin, *Sov.J.Quantum.Electron.* **8**, 319 (1978).
 - / 56/ D.C. McKen, H.J. Seguin und J. Tulip, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-12**, 470 (1976).
 - / 57/ P. Mathieu, Dissertation, Universität Laval, Kanada (1982).
 - / 58/ Wan Chong-Yi, C. Schwab, W. Fuss und K.L. Kompa, *Opt.Communic.* **46**, 311 (1983).
 - / 59/ H. Shields, A.L.S. Smith und B. Norris, *J.Phys. D : Appl.Phys.* **9**, 1587 (1976).
 - / 60/ R.B. Gibson, A. Javan und K. Boyer, *Appl.Phys.Lett.* **32**, 726 (1978).
 - / 61/ Wan Chong-Yi, U. Werling und K.F. Renk, *J.Appl.Phys.* **57**, 990 (1985).
 - / 62/ U. Werling, Wan Chong-Yi und K.F. Renk, *Intern.J. Infrared and Millimeter Waves* **6**, 449 (1985).
 - / 63/ B.G. Danly, S.G. Evangelides, R.J. Temkin und B. Lax, in *Infrared and Millimeter Waves*, vol. 12, ed. K.J. Button (Academic Press, Inc., New York 1984), p. 195.
 - / 64/ T.Y. Chang, *Rev.Sci.Instrum.* **44**, 405 (1973).
 - / 65/ U. Tietze und Ch. Schenk, *Halbleiterschaltungstechnik* (Springer Verlag, Berlin 1983).
 - / 66/ G. Busse und R. Thurmaier, *Appl.Phys.Lett.* **31**, 194 (1977).
 - / 67/ W.L. Smith und I.M. Mills, *J.Mol.Spectrosc.* **11**, 11 (1963).
 - / 68/ W. Eisfeld, U. Werling und W. Prettl, *Appl.Phys.Lett.* **42**, 276 (1983).
 - / 69/ K. Moser, W. Eisfeld, U. Werling, S. Wahl und W. Prettl, *Appl.Phys.Lett.* **45**, 711 (1984).
 - / 70/ J. Gilbert und J.L. Lachambre, *Appl.Phys.Lett.* **18**, 187 (1971).
 - / 71/ H. Statz und C.L. Tang, *J.Appl.Phys.* **36**, 3924 (1965).
 - / 72/ V.I. Malyshev, A.S. Markin, A.V. Masalov und A.A. Sychev, *Soviet Physics JETP* **30**, 453 (1970).
 - / 73/ P. Bernard, P. Mathieu und J.R. Izatt, *Opt.Communic.* **37**, 285 (1981).
 - / 74/ B.S. Patel, *Appl.Optics* **16**, 1232 (1977).
 - / 75/ J.R. Izatt und B.K. Deka, *Int.J.Infrared and Millimeter Waves* **5**, 1473 (1984).
 - / 76/ U. Werling, K.F. Renk und Wan Chong-Yi, *Intern.J.Infrared and Millimeter Waves* **7**, 881 (1986).
 - / 77/ U. Werling, Wan Chong-Yi und K.F. Renk, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-22**, 1024 (1986).
 - / 78/ P. Shoja-Chaghervand und R.H. Schwendeman, *J.Mol.Spectrosc.* **98**, 27 (1983).

-
- / 79/ N.J. Trappeniers und E.W.A. Elenbaas-Bunschoten, *Chem.Phys.Lett.* **64**, 205 (1979).
- / 80/ E. Weitz, G. Flynn und A.M. Ronn, *J.Chem.Phys.* **56**, 6060 (1972).
- / 81/ R. Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Clarendon Press, Oxford 1983).
- / 82/ D. Marcuse, *Principles of Quantum Electronics* (Academic Press, New York 1980).
- / 83/ D.R. Hall, E.K. Gorton und R.M. Jenkins, *J.Appl.Phys.* **48**, 1212 (1977).
- / 84/ C.T. Gross, J. Kiess, A. Mayer und F. Keilmann, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 377 (1987).
- / 85/ K.F. Renk und L. Genzel, *Appl.Optics* **1**, 643 (1962).
- / 86/ R. Ulrich, K.F. Renk und L. Genzel, *IEEE Trans. on Microwave Theory and Techniques* **11**, 363 (1963).
- / 87/ L.O. Hocker, A. Javan, R. Ramachandra Rao, L. Frenkel und T. Sullivan, *Appl.Phys. Lett.* **10**, 147 (1967).
- / 88/ J.R. Izatt, B.K. Deka und Wen-Sen Zhu, *IEEE J.Quantum Electron.* **QE-23**, 117 (1987).
- / 89/ E. Kalikstein, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1986).
- / 90/ *Semiconductor Silicon 1981*, ed. by H.R. Huff, R.J. Kriegler und Y. Takeishi (Electrochemical Soc., Pennington, 1981).
- / 91/ *Defects in Semiconductors*, ed. by J. Narayan und T.Y. Tan (North-Holland, New York 1981).
- / 92/ U. Gösele und T.Y. Tan, *Appl.Phys. A* **28**, 79 (1982).
- / 93/ L. Jastrzebski, *IEEE Trans. on Electron. Devices* **ED-29**, 475 (1982).
- / 94/ G.S. Oehrlein und J.W. Corbett, in *Defects in Semiconductors II*, ed. by S. Mahajan und J.W. Corbett (North-Holland, New York 1983), p. 107.
- / 95/ W.L. Bond und W. Kaiser, *J.Phys.Chem.Solids* **16**, 44 (1960).
- / 96/ R.C. Newman, *Infra-red Studies of Crystal Defects* (Taylor & Francis Ltd. London 1973).
- / 97/ H.J. Hrostowski und R.H. Kaiser, *J.Phys.Chem.Solids* **9**, 214 (1959).
- / 98/ R.M. Chrenko, R.S. McDonald und E.M. Pell, *Phys.Rev.* **138**, A1775 (1965).
- / 99/ Landolt-Börnstein, *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik*, Gruppe III, Bd. 17a (Springer Verlag, Heidelberg 1982).
- /100/ D.R. Bosomworth, W. Hayes, A.R.L. Spray und G.D. Watkins, *Proc.Roy.Soc.Lond. A* **317**, 133 (1970).
- /101/ W. Eisenmenger, in *Nonequilibrium Superconductivity, Phonons and Kapitza Boundaries*, ed. K.E. Gray, NATO ASI Series, Vol. B 65 (Plenum Press, New York 1981), p. 73.
- /102/ H.J. Hrostowski und B.J. Alder, *J.Chem.Phys.* **33**, 980 (1960).
- /103/ W.R. Thorson und I. Nakagawa, *J.Chem.Phys.* **33**, 994 (1960).

-
- /104/ J.R. Aronson, R.C. Lord und D.W. Robinson, *J.Chem.Phys.* **33**, 1004 (1960).
- /105/ M. Stavola, *Appl.Phys.Lett.* **44**, 514 (1984).
- /106/ T. Iizuka, S. Takasu, M. Tajima, T. Arai, T. Nozaki, N. Inoue und M. Watanabe, *J.Electrochem.Soc.* **132**, 1707 (1985).
- /107/ H.Bilz und W.Kress, in *Phonon Dispersion Relations in Insulators*, (Springer Series in Solid-State Sciences, Vol.10, Springer Verlag, Heidelberg 1979), p. 97.
- /108/ L. Genzel, in *Optical Properties of Solids*, ed. by S. Nudelman und S.S. Mitra (Plenum Press, New York 1969), p. 453.
- /109/ A.A. Maradudin, in *Solid State Physics*, ed. F. Seitz und D. Turnbull, (Academic Press, New York 1966), Vol. 18, p. 273; Vol. 19, p. 1, Suppl. 3, p. 353.
- /110/ A.S. Barker, Jr. und A.J. Sievers, *Rev. Mod. Phys.* **47**, Suppl. No. 2, S1 (1975).
- /111/ H. Bilz, D. Strauch und R.K. Wehner, in *Handbuch der Physik*, Vol. 25/2d, ed. L. Genzel (Springer Verlag, Berlin 1984), p. 262.
- /112/ M.v. Klein, in *Physics of Colour Centers*, ed. W.B. Fowler (Academic Press, New York 1968), p. 430.
- /113/ S. Takeno, *Prog.Theor.Phys.* **29**, 191 (1963).
- /114/ D.K. Brice, *Phys.Rev.* **140**, A1211 (1965).
- /115/ M.Wagner, *Phys.Rev.* **133**, A750 (1964).
- /116/ P.H. Dederichs und R. Zeller, *Phys.Rev. B* **14**, 2314 (1976); R. Zeller und P.H. Dederichs, *Zeitschrift f. Physik B* **25**, 139 (1976).
- /117/ Y.B. Levinson, in *Nonequilibrium Phonons in Nonmetallic Crystals*, ed. W. Eisenmenger und A.A. Kaplyanskii (North-Holland, Amsterdam 1986), p. 91.
- /118/ K.F. Renk, in *Nonequilibrium Phonons in Nonmetallic Crystals*, ed. W. Eisenmenger und A.A. Kaplyanskii (North-Holland, Amsterdam 1986), p. 317.
- /119/ R.H. Pantell und H.E. Puthoff, *Fundamentals of Quantum Electronics* (John Wiley & Sons, New York 1969).
- /120/ E.V. Loewenstein, D.R. Smith und R.L. Morgan, *Appl. Optics* **12**, 398 (1973).
- /121/ L. Allen und J.H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (John Wiley & Sons, New York 1975).
- /122/ J. Crank, *The Mathematics of Diffusion* (Clarendon Press, Oxford 1979).
- /123/ U. Werling, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1982).
- /124/ R.W. Alexander, Jr., A.E. Hughes und A.J. Sievers, *Phys.Rev. B* **1**, 1563 (1970).
- /125/ A. Berke, A.P. Mayer und R.K. Wehner, *Solid State Commun.* **54**, 395 (1985).
- /126/ S. Tamura, *Phys.Rev. B* **27**, 858 (1973).
- /127/ M.K. Maul und M.W.P. Strandberg, *J.Appl.Phys.* **40**, 2822 (1969).
- /128/ W. Eisfeld, Dissertation, Universität Regensburg (1979).
- /129/ U. Happek, T. Holstein und K.F. Renk, *Phys.Rev.Lett.* **54**, 2091 (1985).
- /130/ U. Happek, T. Holstein und K.F. Renk, *Phys.Rev. B* **34**, 8898 (1986).

-
- /131/ N. Retzer, Dissertation, Universität Regensburg (1987).
- /132/ U. Werling und K.F. Renk, Japanese J.Appl.Phys. **26**, 671 (1987).
- /133/ E.I. Gershenzon, G.N. Goltsman und A.P. Melnikov, JETP Letters **14**, 185 (1971).
- /134/ W. Burger, Dissertation, Universität Stuttgart (1986).
- /135/ T.M. Lifshits und F.Ya. Nad, Sov.Phys. - Dokl. **10**, 532 (1965).
- /136/ H. Lengfellner, U. Werling, J. Hummel, H. Netter, N. Retzer und K.F. Renk, Solid State Commun. **38**, 1215 (1981).
- /137/ A.A. Volkov, Yu.G. Goncharov, G.V. Kozlov, S.P. Lebedev und A.M. Prokhorov, Infrared Phys. **25**, 369 (1985).
- /138/ D. Grandjean, J. Claudel, F. Bréhat, A. Hadni, P. Strimer und R. Thomas, J. Phys. (France) **31**, 471 (1970).
- /139/ A. Hadni und X. Gerbeaux, Opt.Comm. **50**, 231 (1984).
- /140/ L.C. Lee und W.L. Faust, Phys.Rev.Lett. **26**, 648 (1971).

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, besonders bei

- Herrn Prof. Dr. K.F. Renk für die interessante Aufgabenstellung, die vielen kritischen Diskussionen und die großzügige materielle Unterstützung;
- Herrn Prof. Wan Chong-Yi, Institute of Electronics, Academia Sinica in Peking, China, der die Konstruktionsvorschläge für den Hochdruck-CO₂-Laser lieferte und der mich mit den Grundlagen der Hochspannungs-Gasentladungstechnik vertraut gemacht hat;
- Herrn Prof. Dr. W. Prettl für die ständige Diskussionsbereitschaft;
- Herrn E. Kalikstein, der im Rahmen seiner Diplomarbeit den Meßplatz für die Transmissionsspektroskopie optimierte und der eine große Hilfe bei der Beseitigung der technischen Probleme des Hochdruck-CO₂-Lasers war;
- Herrn Dr. H. Lengfellner für seine Tips zur Herstellung supraleitender Bolometer;
- meinen Kollegen Dr. H. Schwartz, Dr. E. Ettlinger, U. Happek, G. Jungwirt, P.E. Obermayer, Dr. N. Retzer und M. Weispfenning, die bei allen anfallenden Schwierigkeiten diskussions- und hilfsbereit waren;
- allen übrigen Mitgliedern des Lehrstuhls für die freundschaftliche Zusammenarbeit;
- Frau M. Reif für die graphische Gestaltung dieser Arbeit und ihre sonstige stetige Hilfsbereitschaft;
- den Herren A. Humbs und K. Lachner für ihren Einsatz und ihre technische Unterstützung während der Aufbauphase des Lasersystems;
- Herrn F. Waider, stellvertretend für die feinmechanische Werkstatt der Fakultät Physik, in der alle Teile des mechanischen Aufbaus des Lasersystems gefertigt wurden und die bei kurzfristig aufgetretenen Problemen stets mit Rat und Tat zur Seite stand;
- den Herren K. Walling und K.H. Weigert für die stetige Bereitstellung von flüssigem Helium;
- Herrn G.Göbl und seinen Mitarbeitern in der Elektronikwerkstatt für ihre Hilfe bei elektronischen Problemen;
- den Herren Dr. J. Reffle und Dr. D. Huber der Firma Wacker-Chemitronic, Burghausen, bzw. Herrn Dr. K. Laßmann, Universität Stuttgart, die freundlicherweise Sauerstoff-dotierte Siliziumkristalle zur Verfügung stellten.

