

**Frequenzstabile kontinuierliche Jodamanlaser gepumpt mit einem
frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser**

Vom Fachbereich Physik der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Manuel Klug
geboren am 12.10.1970 in Auetal

2003

Referent : Prof. Dr. B. Wellegehausen

Korreferent: Prof. Dr. E. Tiemann

Tag der Promotion: 18.07.2003

Abstract

Manuel Klug

Frequenzstabile kontinuierliche Jodramanlaser gepumpt mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser

Diese Arbeit befaßt sich mit Untersuchungen an kontinuierlichen Ramanlasern im B-X-System des Jodmoleküls.

Die Jodmoleküle werden in abgeschmolzenen Quarzglaszellen bei Zimmertemperatur erzeugt.

Als Pumplaser dient ein frequenzverdoppelter diodengepumpter monolithischer Nd:YAG-Ringlaser mit einer Pumpwellenlänge bei 532 nm und einer maximalen Ausgangsleistung von 500 mW, der in seinem Durchstimmbereich von 120 GHz zahlreiche starke Absorptionsübergänge des Jodmoleküls erreicht und durch dopplerfreie Frequenzmodulationsspektroskopie auf Hyperfeinübergänge des Jodmoleküls stabilisiert werden kann.

Der Betrieb der Ramanlaser erfolgt in Einrichtungs-Single-Mode-Ringresonatoren in einem Spektralbereich von 544–1343 nm, wobei durch Stabilisierung der Ringresonatoren auf das induzierte Ramanverstärkungsprofil eine gute Amplitudenstabilität der Ramanlaser erreicht wird. Typische Schwellen der Ramanlaser liegen bei 15 cm langen Jodzellen bei 30 mW. Bei Pumpleistungen von 300 mW werden maximale Ausgangsleistungen von etwa 0,5 mW bei einer Emissionswellenlänge von 781 nm erreicht.

Für den Ramanlaser bei 781 nm werden detaillierte Untersuchungen zum Einfluß der Hyperfeinstruktur auf das Durchstimmverhalten und die Verstärkungsprofile vorgestellt, sowie die Abhängigkeit der Schwelle und der Ausgangsleistung von Pumpleistung, Pumpfrequenz und Dichte des Mediums. Die teilweise komplexen Abhängigkeiten und besonderen Strukturen bei den Verstärkungs- und Verstimmungsprofilen können durch numerische Berechnung des Kleinsignalverstärkungskoeffizienten im Dichtematrixformalismus unter Berücksichtigung von Strahlpropagation und Pumpabsorption zufriedenstellend interpretiert werden. Die Untersuchung der spektralen Eigenschaften und der Frequenzstabilität des Ramanlasers bei 781 nm erfolgt durch Beatfrequenzmessung zweier identischer Ramanlasersysteme. Es ergibt sich eine Kurzzeitlinienbreite von 4,5 kHz und eine relative Frequenzstabilität des Ramanlasers von $5 \cdot 10^{-10}$.

Schlagworte zum Inhalt

Kontinuierliche Ramanlaser, Jodmolekül, frequenzstabile Laser

Abstract

Manuel Klug

Frequency stable continuous wave I₂ Raman laser excited by a frequency doubled Nd:YAG-laser

In this thesis investigations on continuous wave Raman lasers in the B–X system of molecular iodine are performed.

The iodine molecules are generated at room temperature in sealed-off quartz cells.

As pump source a frequency doubled diode pumped monolithic Nd:YAG–ringlaser with a pump wavelength of 532 nm and a maximum output power of 500 mW is used. Within the tuning range of 120 GHz several strong absorption transitions of molecular iodine can be reached. The pump laser can be stabilized to hyperfine transitions of molecular iodine by Doppler–free frequency modulation spectroscopy. The Raman lasers are realized in unidirectional single–mode ringresonators in a spectral range from 544 to 1343 nm. The ringresonators can be stabilized to the induced Raman gain profil, which leads to a good amplitude stability of the Raman laser output. In 15 cm long iodine cells typical thresholds of 30 mW and maximum output powers of 0.5 mW (300 mW pump power) at an emission wavelength of 781 nm can be reached.

For the laser at 781 nm detailed investigations on the influence of the hyperfine structure on the tuning behaviour and the gain profiles are presented, and dependencies of the threshold and output power on the pump power, pump frequency and the density of the medium are investigated. The complex dependencies and specific structures of the gain and detuning profiles can be explained via numerical calculation of the small signal gain coefficient in the density matrix representation, including beam propagation and pump absorption. The spectral properties and frequency stability of the Raman laser at 781 nm is investigated by beat frequency measurements of two identical Raman lasers. For the Raman laser a short time linewidth of 4,5 kHz and a frequency stability of $5 \cdot 10^{-10}$ is obtained.

Keywords of the contents:

cw Raman laser, Iodine molecule, frequency stable laser

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	7
2. Laserzyklus am Beispiel des Jodmoleküls	11
2.1. Sub-Doppler-Anregung	13
2.2. Kohärente Anregung im Dreiniveau-System	15
2.3. Überblick über Ramanlaserexperimente an zweiatomigen Molekülen . . .	18
3. Eigenschaften des Jodmoleküls	25
3.1. Potentialschema des Jodmoleküls	25
3.2. Hyperfeinstrukturaufspaltung der I_2 -Übergänge	29
3.3. Verbreiterungsmechanismen	31
3.3.1. Relaxationsprozesse	31
3.3.1.1. Stoßprozesse	32
3.3.1.2. Einstein-A-Koeffizienten und Übergangsdipolmomente .	35
3.3.2. Joddampfdruck	40
4. Eigenschaften und Frequenzstabilisierung des Pumplasersystems	41
4.1. Aufbau des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers	41
4.2. Aktive Frequenzabstimmung des Systems	44
4.3. Linienbreite und Frequenzstabilität des freilaufenden Lasers	46
4.4. Absorptionsspektroskopie am Jodmolekül	47
4.5. Frequenzstabilisierung des Pumplasers	52
4.5.1. Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie am Jodmolekül	52
4.5.2. Frequenzmodulationsspektroskopie	56
4.5.3. Ergebnisse der Stabilisierung	63

5. Ramanlasertheorie und Simulation	69
5.1. Ramanverstärkungskoeffizient	70
5.1.1. Einfluß der Hyperfeinstruktur	75
5.1.2. Makroskopische Verstärkung	79
5.1.3. Modellierung der Pumpabsorption	80
6. Experimentelle Untersuchungen	83
6.1. Multi-Line-Laserbetrieb in Stehwellenresonatoren	84
6.2. Single-Mode-Laserbetrieb in Ringresonatoren	90
6.2.1. Aufbau der Resonatoren	90
6.2.2. Stabilisierung des Ringresonators	93
6.3. Absorption der Pumpstrahlung	96
6.4. Eigenschaften der Single-Mode-Laser	103
6.4.1. Laserschwelle	104
6.4.2. Ausgangsleistung der Laser	108
6.4.3. Durchstimmverhalten	113
6.4.4. Form der Ausgangsleistungsprofile	122
6.4.4.1. Dynamischer Stark-Effekt	125
6.4.5. Linienbreite und Frequenzstabilität der Ramanlaser	131
7. Zusammenfassung und Ausblick	137
A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten	143
A.0.6. Einleitung	143
A.0.7. Berechnung des Verstärkungskoeffizienten	143
A.0.8. Allgemeine Lösung	150
A.0.9. Kleinsignalverstärkung	153
B. Sättigungsspektren	159
C. Realisierte Ramanlaser	166
Literaturverzeichnis	170

Symbolverzeichnis

- $|\langle \dots | \mu_e(R) | \dots \rangle|^2$ Betragsquadrat des elektronischen Übergangsmoments [D^2]
- α_d Doppler-verbreiterter Verstärkungskoeffizient [m^{-1}] (Gl. 5.1)
- \bar{F} Linienformfunktion für den Verstärkungskoeffizienten (Inversionsanteil)(Gl. 5.6)
- \bar{G} Linienformfunktion für den Verstärkungskoeffizienten (Ramananteil)(Gl. 5.7)
- $\Delta\nu_{Druck}$ Druckverbreiterung der molekularen Jodübergänge [MHz/Pa]
- ΔJ Differenz zwischen Drehimpuls im Grundzustand und angeregtem Zustand ($\Delta J = J'' - J'$)
- Δn Besetzungsdifferenz
- $\delta\nu_{EOM}$ Modulationsfrequenz des elektrooptischen Modulators [Hz]
- $\Delta\omega_{AOM}$ Modulationsfrequenz des akustooptischen Modulators [$rad \cdot s^{-1}$]
- δ_{13}^P leistungsverbreiterte lorentzförmige Linienformfunktion
- γ_{ij} Relaxationsraten vom Zustand $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$ mit $i, j = 1 \rightarrow 3$ [Hz]
- γ_i Relaxationsrate aus dem Zustand $|i\rangle$ [Hz]
- γ_{spont} spontane Rate für strahlende Übergänge [Hz]
- Λ Gesamtdrehimpuls des Molekülzustandes
- AOM Akustooptischer Modulator
- EOM Elektrooptischer Modulator

HV	Hochspannungsverstärker
NF	Niederfrequenzgenerator
PD	Photodiode
PST	Polarisationsstrahlteilerwürfel
$ \mu_e(\bar{R}) ^2$	Betragsquadrat des mittleren elektronischen Übergangsmoments [D ²]
$ P_{ij} ^2$	Betragsquadrat des Übergangsdipolmoments für den Übergang $ i\rangle \rightarrow j\rangle$ [D ²]
μ	reduzierte Masse des Jodmoleküls [kg]
ν	Übergangsfrequenz [Hz]
ν_d	Frequenz des Ramanlasers [Hz]
ν_{probe}	Frequenz des Probelasers [Hz], Abs. 4.5.2
ν_{pump}	Frequenz des Pumplasers [Hz], Abs. 4.5.2
Ω	Gesamtdrehimpuls
ω	unverschobene Zentralfrequenz eines Übergangs in [rad·s ⁻¹]
$\omega(z)$	Strahlradius an der Stelle z (Gl. 5.22)
ω_d	Frequenz des Ramanlasers [rad ·s ⁻¹]
ω_p	Frequenz des Pumplasers [rad ·s ⁻¹]
ω_{probe}	Frequenz des Probelasers [rad·s ⁻¹], Abs. 4.5.2
ω_{pump}	Frequenz des Pumplasers [rad·s ⁻¹], Abs. 4.5.2
ω_{ij}	molekulare Übergangsfrequenzen für den Übergang $ i\rangle \rightarrow j\rangle$ [rad ·s ⁻¹]
$\Omega_{p,d}$	Verstimmung vom Pump- bzw. Ramanübergang
\bar{R}	R-Zentroid [m]
ρ_{ij}	Komponenten des Dichtematrixoperators

- σ Standardabweichung einer Messung (Abs. 4.5.3)
- σ_d inhomogener Absorptionskoeffizient [m^2]
- σ_{sq} Wirkungsquerschnitt für selbstlöschende Stöße [m^2]
- $\sigma_{V-T+R-T}$ Wirkungsquerschnitt für rotationsvibrationsändernde Stöße [m^2]
- ε $\varepsilon = \pm 1$ kollineare/antikollineare Ausbreitung der Ramanstrahlung
- $A(v'J', v''J'')$ Einstein-A-Koeffizienten der spontanen Emission für den Übergang $v'J' \rightarrow v''J''$
[Hz]
- A_{ij} Einstein-A-Koeffizienten der spontanen Emission für den Übergang $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$
[Hz]
- B_{ij} Einstein-B-Koeffizienten der induzierten Emission für den Übergang $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$
[Hz]
- D Durchmesser der Ramanlasermode [m]
- E Energie eines Zustandes
- $E(z, t)$ Ort- und zeitabhängiges elektromagnetisches Feld
- F_{vJ} Energie des Moleküls im Zustand v und J
- $g_i(\nu)$ frequenzabhängiges Linienformprofil für die i .te Hyperfeinkomponente (Gl. 5.25)
- H Hamiltonoperator
- I Atomarer Kernspin
- $I(\nu)$ frequenzabhängige transmittierte Leistung (Gl. 5.23)
- I_p Pumpintensität [W/m^2]
- I_p^0 Sättigungsintensität [W/m^2] (Gl. 5.5)
- J Rotationsquantenzahl
- J' Rotationsquantenzahl im ersten angeregten Zustand

J''	Rotationsquantenzahl im Grundzustand
$J_n(\beta)$	Besselfunktionen n.ter Ordnung
$k_{d,p}$	Betrag des Wellenvektors für Raman- und Pumplaser
n_i	Besetzung im Zustand $ i\rangle$
P	Pumpparameter
P	Übergänge mit $\Delta J = -1$
P_r	Dampfdruck des Jodmoleküls [Pa]
p_{ij}	Komponenten des Dipoloperators
R	Übergänge mit $\Delta J = +1$
S	elektronischer Gesamtspin
$s_{J',J''}$	Hönl-London-Faktor
T	absolute Temperatur [K]
V	makroskopische Verstärkung [m^{-1}](Gl. 5.12)
v	Vibrationsquantenzahl
v'	Vibrationsquantenzahl im ersten angeregten Zustand
v''	Vibrationsquantenzahl im Grundzustand
v_m	mittlere thermische Geschwindigkeit [m/s]
v_z	Projektion der Molekülgeschwindigkeit auf die z-Achse
Y_{lj}	Dunham-Parameter
APD	Avalanche Photodiode

1. Einleitung

Die primären Standards für Zeit und Frequenz bilden derzeit die Cäsium-Atomuhren. Möchte man eine optische Frequenz mit der Mikrowellenfrequenz der Atomuhr von etwa 9,2 GHz vergleichen, so ist hierbei ein Frequenzverhältnis von einigen 10.000 zu überbrücken. Dies gelingt mit aufwendigen Frequenzketten, die seit langem in wenigen nationalen Standardinstituten betrieben werden oder in jüngster Zeit auch mit noch in der Entwicklung befindlichen Frequenzkämmen auf der Basis von Femtosekunden-Oszillatoren. Auf Grund des hohen technischen Aufwands für den Betrieb solcher Frequenzketten und Frequenzkämmen werden in allen Frequenzbereichen des optischen Spektrums präzise, gut reproduzierbare und einfach zu handhabende Transferstandards, sogenannte sekundäre Frequenzstandards eingesetzt.

Präzisionspektroskopie, optische Kommunikationstechnik und moderne Längen- und Frequenzmessung benutzen Referenzwellenlängen bzw. sekundäre Frequenzstandards auf der Basis von stabilen Lasern. Als Frequenzreferenz für diese Laser dienen dabei Absorptionsübergänge atomarer und molekularer Medien. Derzeit sind 12 optische Frequenzen im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich des elektromagnetischen Spektrums vom Comité International des Poids et Mesures (CIPM) als Standardfrequenzen vorgeschlagen [Quinn 1993/1994; 1999]. Diese Standards erreichen relative Genauigkeiten von $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 10^{-11}$ bis 10^{-13} und benutzen Übergänge in atomarem Wasserstoff [Niering u. a. 2000], Calcium [Riehle u. a. 1999], Rubidium [Touahri u. a. 1997], dem Strontium-Ion [Barwood u. a. 1997], molekularem Methan [Weiss u. a. 1988] und Osmiumtetroxid [Acef 1997]. Die übrigen 6 Referenzfrequenzen basieren auf Hyperfeinübergängen in molekularem Jod. Die ersten 6 genannten Standards haben in der Anwendung im Laboralltag und in der Industrie wegen des teilweise hohen experimentellen Aufwandes zur Realisierung der Referenzfrequenzen kaum Verbreitung gefunden und werden nur in wenigen Laboratorien betrieben. Einer der derzeit wichtigsten Frequenzstandards im sichtbaren Spektralbereich ist wegen seiner hohen Verfügbarkeit, Kompaktheit und Wartungsfrei-

heit der auf Jod stabilisierte Helium–Neon–Laser mit einer relativen Genauigkeit von $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 2,5 \cdot 10^{-11}$. Als Frequenzreferenz für verschiedene Laserlinien finden hier Hyperfeinübergänge im Jodmolekül bei 543, 633 und 640 nm Anwendung. Mit der Entwicklung hochstabiler diodengepumpter frequenzverdoppelter Nd:YAG–Laser entstand in den letzten Jahren ein neuer optischer Frequenzstandard im grünen Spektralbereich. Als Frequenzreferenz wird auch hier wiederum ein Absorptionsübergang im Jodmolekül verwendet. Die Stabilität und der systematische Vergleich der auf das Jodmolekül stabilisierten frequenzverdoppelten Nd:YAG–Laser ist gegenwärtig aktueller Forschungsgegenstand und wird insbesondere von den nationalen Standardinstituten weltweit mit immer höherer Präzision betrieben. Derzeit gilt ein Hyperfeinübergang des Jodmoleküls bei 532 nm (Komponente a_{10} der R(56)(32-0)) mit einer relativen Unsicherheit von $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 7 \cdot 10^{-11}$ [Quinn 1999] als Frequenzstandard. Zahlreiche aktuelle Messungen und Frequenzvergleiche zwischen stabilisierten frequenzverdoppelten Nd:YAG–Lasern [Nevsky u. a. 2001] lassen vermuten, dass diese Unsicherheit bei der nächsten CIPM–Evaluation um mehr als eine Größenordnung auf Werte um $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 2 \cdot 10^{-12}$ verringert werden kann. Aufgrund der besonderen Eigenschaften des frequenzverdoppelten monolithischen Nd:YAG–Ringlasers (MISER), wie Kompaktheit, Robustheit, hohe Lebensdauer, geringes Amplituden– und Frequenzrauschen, sowie der Möglichkeit hohe Ausgangsleistungen bei 532 nm zu erreichen, kann sich dieses Lasersystem zum Nachfolger des Helium–Neon–Lasers als einfach zu handhabender optischer Frequenzstandard entwickeln.

Für viele Anwendungen in der Grundlagenforschung (z.B. zur Kalibration unbekannter optischer Frequenzen) aber auch in der Meßtechnik werden häufig zusätzliche stabile Referenzfrequenzen benötigt, die einen Transfer der Frequenzstandards in andere Frequenzbereiche erfordern. Für einen solchen Transfer sind stabile Transferresonatoren, aber auch nichtlineare optische Effekte wie z.B. die Frequenzverdopplung der Referenzfrequenz oder auch Summen– und Differenzfrequenz und Vierwellenmischung geeignet. Die Flexibilität dieser Methoden ist jedoch gering und es können nur mit hohem Aufwand wenige neue Referenzfrequenzen erzeugt werden.

Vorteilhaft erscheint deshalb ein System bei dem die stabile Frequenz eines Referenzlasers flexibel auf viele Frequenzen in anderen, möglichst weiten Spektralbereichen übertragen werden kann. Diese Möglichkeit bietet der Ramanprozess in Molekülen, bei dem eine Pumpfrequenz in einen ganzen Kamm von Ramanfrequenzen umgewandelt wird. Wird als Molekül das zweiatomige Jodmolekül verwendet, so können sich diese Raman–

frequenzen über den gesamten sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich erstrecken. Da die Übergänge im Jodmolekül zudem sehr schmalbandig sind und ohnehin als Referenzfrequenzen dienen, erscheint der Betrieb eines Jodramanlasers mit diskret durchstimmbaren Laserlinien für eine Verwendung als flexiblen Transferstandard interessant. Der Betrieb von kontinuierlichen Ramanlasern im Jodmolekül konnte mit leistungsstarken Argon-Ionen-Lasern als Pump laser bereits in den achtziger Jahren demonstriert [Wellegehausen 1979] und in Nachfolgearbeiten reproduziert werden. In diesen Arbeiten wurden vor allem grundsätzliche Betriebsweisen der Laser ermittelt, detaillierte Untersuchungen zum frequenzstabilen Betrieb dieser Laser und zur möglichen Eignung als Transferstandard wurden dabei jedoch nicht durchgeführt.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich sehr ausführlich mit der Untersuchung der besonderen Eigenschaften und Betriebsweisen von Ramanlasern im Jodmolekül. Als Pump laser wird erstmals ein diodengepumpter frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser hoher Frequenzstabilität verwendet. Ziel der Untersuchungen war es, mit diesem Pump laser den Ramanlaserbetrieb in weiten Spektralbereichen zu demonstrieren, die Lasereigenschaften und Betriebsweisen der Laser detailliert zu untersuchen und durch Linienbreiten- und Frequenzstabilitätsuntersuchungen an ausgewählten Pump- und Ramanübergängen Möglichkeiten dieses Systems für eine Eignung als Transferstandard zu ermitteln.

Im Kapitel 2 wird zunächst eine anschauliche Einführung in das Funktionsprinzip der Ramanlaser gegeben und es werden die wichtigsten Eigenschaften der Ramanlaser herausgearbeitet. Desweiteren werden in einem kurzen Überblick über experimentelle Arbeiten zu Ramanlasern in zweiatomigen Molekülen die wesentlichen experimentellen Ergebnisse bisheriger Ramanlaseruntersuchungen zusammengefaßt, um die Einordnung der hier vorgestellten Experimente zu erleichtern. Im Anschluß werden in Kapitel 3 die Eigenschaften des Jodmoleküls vorgestellt. Hierbei werden das Potentialschema, der Einfluß der Hyperfeinstruktur und mögliche Verbreiterungsmechanismen diskutiert, soweit sie für den Ramanlaserbetrieb relevant sind. Die Eigenschaften des verwendeten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers, wie z.B. Durchstimmbereich und Linienbreite, sowie Methoden und Ergebnisse der Stabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers werden in Kapitel 4 zusammengefaßt. Kapitel 5 und Anhang A befassen sich eingehend mit der Theorie des Ramanprozesses im Dichtematrixformalismus sowie der Absorption der Laserstrahlung auf dem Pumpübergang. Die experimentellen Ergebnisse sind in Kapitel 6 zusammengefaßt. Hierbei wurden in unterschiedlichen Resonatorkonfigurationen Ramanlaser in einem weiten Spektralbereich realisiert. Der Einfluß der Hyperfeinstruk-

1. Einleitung

tur, der Pumplaserfrequenz und -leistung, sowie die Linienbreite und Frequenzstabilität der Ramanlaser wurden an einem Übergang im nahen Infraroten näher untersucht.

2. Laserzyklus am Beispiel des Jodmoleküls

Im Jodmolekül läßt sich ein Dreiniveau-Laserzyklus realisieren, der wegen seiner Form auch als Lambda-Zyklus oder Lambda-Schema bezeichnet wird. In Abb. 2.1 ist der Prozeß schematisch dargestellt. Moleküle in einem bestimmten (Rotationsvibrations-) Zustand des elektronischen Grundzustandes ($|1\rangle$) werden durch einen Pumplaser mit der Frequenz ω_P (hier: frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser) in ein Rotationsvibrationsniveau ($|3\rangle$) des ersten angeregten elektronischen Zustand überführt. Die Moleküle können durch Emission eines Photons der Frequenz ω_d^1 auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ den angeregten Zustand verlassen. Durch nichtstrahlende Übergänge (Stöße) können die Moleküle aus dem Zustand $|2\rangle$ in den Ausgangszustand zurückkehren und der Laserzyklus ist somit geschlossen. Betrachtet man den Laserzyklus zunächst nur als reinen Inversionslaser, so muß die Besetzung im Niveau $|3\rangle$ größer als die Besetzung im Niveau $|2\rangle$ sein, um die Bedingung für Laseremission zu erfüllen. Aus dem angeregten Zustand $|3\rangle$ sind Übergänge zu beliebigen Vibrationsniveaus im Grundzustand erlaubt. Da das Lasermedium in der Nähe der Zimmertemperatur betrieben wird, konzentriert sich die thermische Besetzung der Jodmoleküle auf die untersten Vibrationsniveaus im Grundzustand. Dadurch kann bereits bei geringer Pumprate eine Besetzungsinversion gegenüber den untersten Rotationsvibrationsniveaus erreicht werden. Im stationären Gleichgewicht (bei kontinuierlichem Betrieb des Lasers) muß die Inversion zwischen $|3\rangle$ und $|2\rangle$ aufrecht erhalten werden. Eine notwendige Bedingung für den stationären Betrieb ist $\gamma_2 > A_{32}$, wobei γ_2 die Relaxationsrate für strahlungslose Übergänge von $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ und A_{32} die spontane Emissionsrate auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ ist. Da γ_2 proportional zum Dampfdruck der Jodmoleküle ist, erfordert der Betrieb der Laser einen Mindestdampfdruck.

Vernachlässigt man Sättigungseffekte durch die Pumpstrahlung, die zu einer Änderung der Grundzustandsbesetzung n_1^0 führen würden, so läßt sich für den Kleinsignalfall (er-

¹Für den Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ ist in der Literatur die Bezeichnung ω_d üblich, wobei das Subscript d für Dimer steht.

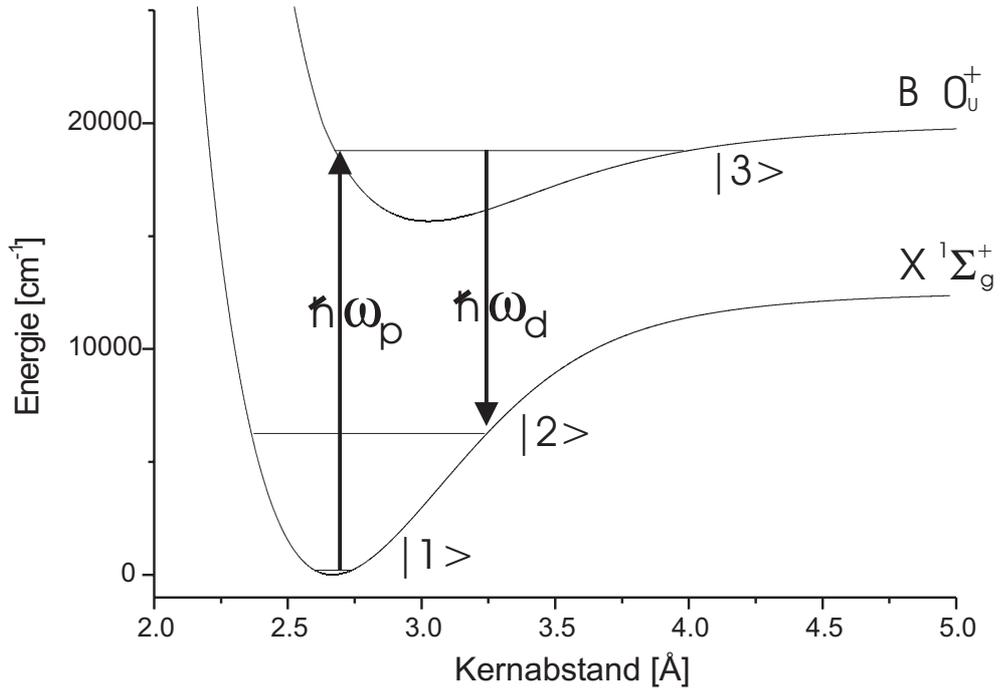


Abbildung 2.1.: Dreiniveau-Laserschema (Λ -Schema) am Beispiel des Jodmoleküls. Die Niveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$ sind Niveaus im elektronischen Grundzustand des Jodmoleküls. Der Zustand $|3\rangle$ liegt im ersten angeregten Zustand. ω_p und ω_d : Pump- bzw. Dimerenlaserfrequenz.

zeugtes Laserfeld $\rightarrow 0$, d.h. an der Laserschwelle) das System durch die folgenden Rategleichungen vereinfacht beschreiben:

$$\frac{dn_1}{dt} = -\frac{I_p}{h\nu_p}\sigma_p n_1^0 + A_3 n_3 \quad (2.1)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = A_{32} n_3 - \gamma_2 n_2 \quad (2.2)$$

Dabei sind n_2 und n_3 die Besetzungsdichten von Zustand $|2\rangle$ und $|3\rangle$, A_3 ist die Gesamtrate für spontane Emission aus dem Niveau $|3\rangle$ in Rotationsvibrationszustände des Grundzustandes des Jodmoleküls ($A_3 = \sum_k A_{3k}$), σ_p ist der Wirkungsquerschnitt für Absorption auf dem Pumpübergang und I_p ist die Pumpintensität der Laserstrahlung mit der Frequenz ν_p . Im stationären Fall ergibt sich dann die Inversionsdichte $\Delta n = n_3 - n_2$

zu:

$$\Delta n = \left(1 - \frac{A_{32}}{\gamma_2}\right) \frac{I_p}{h\nu_p} \frac{\sigma_p n_1^0}{A_3} \quad (2.3)$$

Die Leerlaufverstärkung auf dem Pumpübergang ist dann gegeben durch:

$$V = e^{(\sigma_d \Delta n L)} \approx 1 + \sigma_d \Delta n L \quad (2.4)$$

σ_d bezeichnet dabei den Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission aus Zustand $|3\rangle$ und L die Länge des Mediums. Nimmt man einen Gesamtverlust V_L für den Laserprozess an, so gilt an der Schwelle $V_L = V$ und die Pumpintensität an der Schwelle bestimmt sich zu:

$$I_p = \frac{V_L - 1}{\sigma_d L} \frac{h\nu_p A_3}{\sigma_p n_1^0 (1 - A_{32}/\gamma_2)} \quad (2.5)$$

An Hand dieses einfachen Formalismus lassen sich zwei wesentliche Eigenschaften der Laser ableiten. Die Laserschwelle sollte umgekehrt proportional sowohl mit der Länge des Mediums, als auch mit der Besetzungsdichte abfallen. Quantitative Aussagen lassen sich aus diesen einfachen Beziehungen allerdings noch nicht ableiten, da zum einen Propagationseffekte im Medium (z.B. Absorption), zum anderen aber auch zwei grundlegende Effekte noch nicht berücksichtigt wurden:

- Sub-Doppler-Anregung des doppler-verbreiterten Molekülensembles mit einem schmalbandigen Pumplaser.
- Kohärente Kopplung von Pump- und erzeugtem Laserstrahlungsfeld als Folge eines Zweiphotonen- oder Ramanübergangs zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$.

Im folgenden sollen diese beiden Aspekte vereinfacht diskutiert werden.

2.1. Sub-Doppler-Anregung

Bei Wechselwirkung mit einem schmalbandigen Pumplaser ω_p wird wie in Abb. 2.2 dargestellt nur eine Geschwindigkeitsunterklasse um die Geschwindigkeit v_0 des Molekülensembles gepumpt, entsprechend $\omega_p = \omega_{31} + k_p v_0$, wobei k_p den Betrag des Wellenvektors

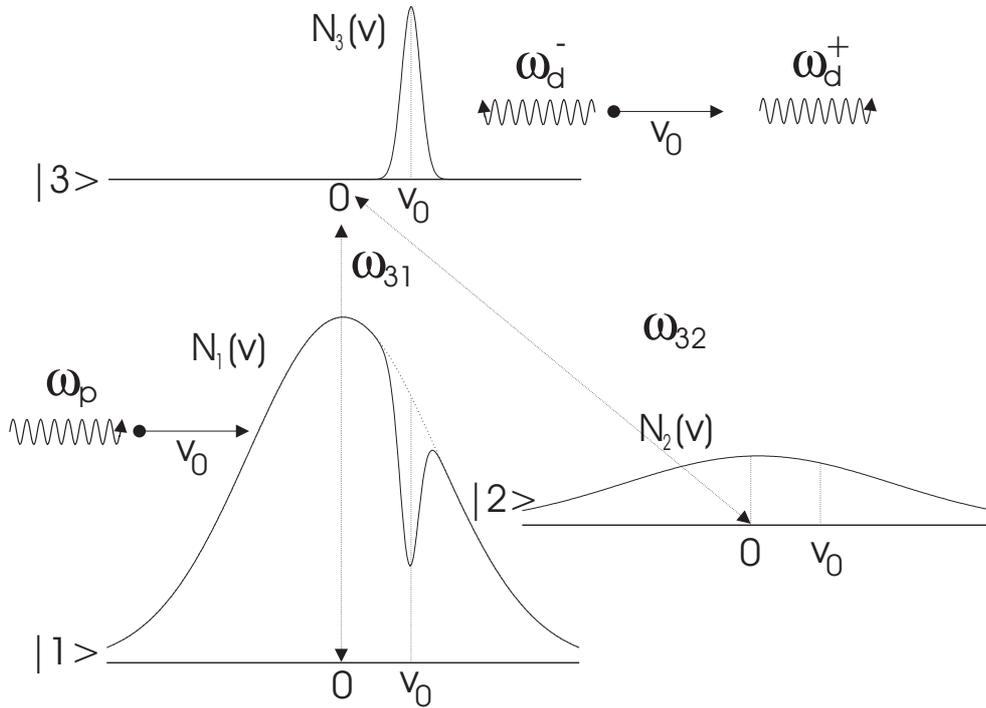


Abbildung 2.2.: Sub-Doppler-Anregung der Jodmoleküle auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ durch einen Single-Mode-Laser. ω_p : Frequenz des Pumplasers, ω_d : Frequenz des abgestrahlten Laserfeldes auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. $N_i(v)$: Besetzungsverteilungen der Niveaus $|i\rangle$, v_0 Geschwindigkeit eines Moleküls in Bezug auf die Ausbreitungsrichtung des Pumplasers.

des Pumplaserfeldes darstellt. Somit trägt nur ein Teilensemble $N_3(v_0)$ zur Besetzungsinversion bei. $N_1(v)$ und $N_3(v)$ sind die doppler-verbreiterten Geschwindigkeitsverteilungen in den Niveaus $|1\rangle$ und $|3\rangle$. Die Breite der im Niveau $|3\rangle$ erzeugten Besetzungsverteilung $N_3(v_0)$ ist bei niedriger Pumpintensität prinzipiell durch die natürliche Linienbreite des Pumpübergangs bestimmt. Für den Fall des Jodmoleküls liegt die Dopplerbreite bei Zimmertemperatur bei 250 MHz und die natürliche Linienbreite von Übergängen in der Nähe eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers bei etwa 500 kHz, wobei durch die Druckverbreiterung die Linienbreite der Übergänge unter typischen Betriebsbedingungen der Laser auf einige MHz ansteigt (siehe auch Kap. 3). Die natürliche Linienbreite des Mediums bestimmt hier somit die Breite der erzeugten Besetzungsverteilung im Niveau $|3\rangle$. Auf Grund des Dopplereffekts emittieren die angeregten Moleküle mit der Geschwindigkeit v_0 in Pumpstrahlrichtung (auch als Vorwärts- oder +Richtung be-

zeichnet) und entgegengesetzt zur Pumpstrahlrichtung (Rückwärts- oder –-Richtung) unterschiedliche Frequenzen gemäß:

$$\omega_d^\pm = \omega_{32} + \varepsilon k_d v_0 \quad (2.6)$$

ω_{32} bezeichnet die molekulare Übergangsfrequenz, k_d den Betrag des Wellenvektors des erzeugten Dimerenlaserfeldes. ε gibt die Richtung von ω_d^\pm bezüglich der Pumpstrahlungsrichtung an ($\varepsilon = \pm 1$). Alle anderen Abstrahlungsrichtungen sind für die Betrachtung der Laserprozesse hier nicht relevant.

Die Bedingung für eine Inversionsverstärkung bleibt grundsätzlich wie unter Abs. 2 erhalten, insbesondere sind die möglichen Verstärkungswerte für die Vorwärts- und Rückwärtsrichtung gleich, d.h. es entsteht bei der Sub-Doppler-Anregung zwar eine Richtungsasymmetrie der Emissionsfrequenzen (die Frequenzasymmetrie ist für $\omega_p = \omega_{31}$ ($v_0 = 0$) aufgehoben), aber keine Richtungsasymmetrie hinsichtlich der Größe der Verstärkung. Diese Situation ändert sich grundlegend, wenn jetzt zusätzlich die kohärente Kopplung zweier Strahlungsfelder zugelassen wird, d.h. der Prozess der simultanen Absorption eines Pumpphotons und der Emission eines Laserphotons in einem Zweiphotonen- oder Ramanprozeß, wobei ein unmittelbarer Übergang aus dem Niveau $|1\rangle$ in das Niveau $|2\rangle$ ohne Besetzung des Niveaus $|3\rangle$ erfolgt.

2.2. Kohärente Anregung im Dreiniveau-System

In einem Dreiniveau-System entsprechend der Abb. 2.1 mit dipolerlaubten Übergängen zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|3\rangle$ und $|3\rangle$ und $|2\rangle$ ist ein simultaner Absorptions- und Emissionsprozess mit einem direkten Übergang vom Niveau $|1\rangle$ in das Niveau $|2\rangle$ möglich. Der Übergang von $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ wird auch als Ramanübergang bezeichnet und ist eine spezielle Form eines Zweiphotonenübergangs. Das Niveau $|3\rangle$ ist entsprechend in Dipolnäherung des Zweiphotonenübergangs zu berücksichtigen. Der Ramanprozeß benötigt für das Pumpfeld keine resonante Pumpstrahlung ω_p . Somit kann die Verstimmung $\Delta\omega$ von der Resonanz sehr groß sein. Für den Fall, daß $\Delta\omega \gg \Delta\omega_{13}$ (mit $\Delta\omega_{13}$: Dopplerbreite des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$) ist, wird praktisch keine Besetzung im Niveau $|3\rangle$ erzeugt und es liegt ein reiner Zweiphotonen-(Raman)-Prozeß vor. Der beschriebene Zweiphotonenprozeß kann auch als ein inelastischer Streuprozeß angesehen werden und wurde als solcher 1923 von Smekal vorhergesagt, 1928 von Raman experimentell nachgewiesen und nach

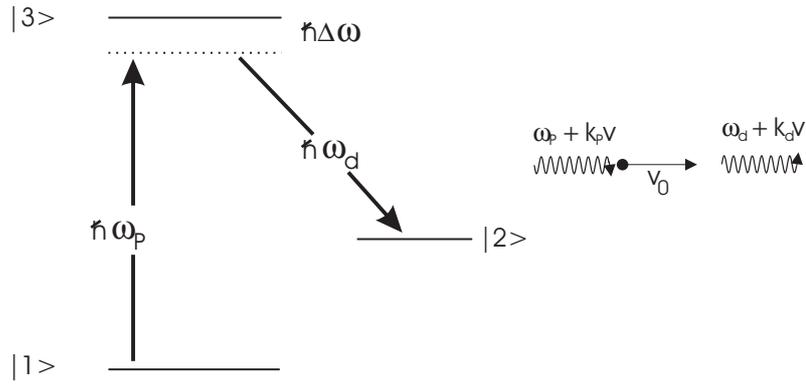


Abbildung 2.3.: Λ -förmiges Ramanschema mit simultaner Absorption von ω_p und Emission von ω_d

ihm benannt. Bei Verwendung von inkohärentem Pumplicht ω_p ist auch die Streustrahlung ω_d inkohärent (inkohärente Ramanstreuung). Bei Einstrahlung eines kohärenten Pumpfeldes wird auch die Streustrahlung kohärent (kohärente Ramanstreuung) und durch das Pumpfeld wird im Medium eine Verstärkung bei der Ramanfrequenz ω_d induziert, die schließlich auch zu einer Ramanoszillation (Ramanlaser) führen kann. Eine Beschreibung der kohärenten Ramanverstärkung ist nicht mehr mit Hilfe der Ratengleichung möglich, da in der Ratengleichung die kohärente Kopplung der Strahlungsfelder nicht adäquat dargestellt werden kann. Stattdessen eignet sich zur konsistenten Beschreibung der semiklassische Dichtematrixformalismus, der in Kapitel 5 behandelt wird. Im Dichtematrixformalismus kann sowohl die Zweiphotonen-(Raman)-Verstärkung, als auch die Inversionsverstärkung (auch Einphotonenverstärkung genannt), die insbesondere für $\Delta\omega \leq \Delta\omega_{13}$ einen Beitrag liefert, konsistent mit berücksichtigt werden. Erste einfache Aussagen zum Ramanbeitrag ergeben sich aus der Zweiphotonen-Resonanzbedingung. Für ruhende Moleküle gilt:

$$\omega_{31} - \omega_{32} = \frac{E_1 - E_2}{\hbar} = \omega_{21} \quad (2.7)$$

Für Moleküle mit der Geschwindigkeit v ergibt sich auf Grund des Dopplereffekts für die beiden betrachteten Ausbreitungsrichtungen:

$$\omega_p = \omega_{31} + k_p v_0 \quad (2.8)$$

$$\omega_d^\pm = \omega_{32} + \varepsilon k_d v_0 \quad (2.9)$$

Setzt man diese beiden Beziehungen in die Bedingung für die Zweiphotonen-Resonanz ein, so ergibt sich:

$$(\omega_p - k_p v_0) - (\omega_d^\pm + \varepsilon k_d v_0) = \omega_{21} \quad (2.10)$$

Daraus folgt für die Emissionsfrequenz der Laserstrahlung:

$$\omega_d^\pm = \omega_p - \omega_{21} - \left(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p}\right) k_p v_0 \quad (2.11)$$

Die Emissionsfrequenz ω_d^\pm ist identisch mit der in Gl. (2.6) angegebenen Emissionsfrequenz des Inversionsanteils.

Ein wesentlicher Unterschied ergibt sich jetzt jedoch für die Verstärkung bzw. die spektrale Breite der Verstärkungsprofile durch den Ramanprozess in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung. Hierzu wird die mögliche Varianz $\delta\omega_d^\pm$ von Gl. (2.11) betrachtet. Es ergibt sich [Beterov und Chebotaev 1974]

$$\delta\omega_d^\pm = \delta\omega_{21} + \left(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p}\right) \delta(k_p v_0). \quad (2.12)$$

$\delta\omega_{21}$ ist dabei gegeben durch die natürliche Linienbreite $\Delta\omega_{21}$ des Zweiphotonenübergangs und $\delta(k_p v_0)$ ist bestimmt durch die Dopplerbreite $\Delta\omega_{13}$ auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$.

$$\delta\omega_d^\pm \sim \Delta\omega_{21} + \left(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p}\right) \Delta\omega_{13} \quad (2.13)$$

Auf Grund des Faktors $(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p})$ ergibt sich:

$$\delta\omega_d^+ < \delta\omega_d^-, \quad (2.14)$$

wobei der Unterschied zwischen beiden Profildbreiten desto größer ist, je geringer der Unterschied zwischen k_p und k_d ist. Beim Zweiphotonenprozeß können alle Moleküle des Ensembles an der Wechselwirkung teilnehmen. Auf Grund des Faktors $(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p})$ verteilen sich die Emissionsfrequenzen in Vorwärtsrichtung ($\varepsilon = +1$) auf einen kleinen spektralen Bereich (Dopplerkompensation), so daß ein hohes und schmales Verstärkungsprofil entsteht, während sich für die Emission in Rückwärtsrichtung ($\varepsilon = -1$) die Frequenzen ω_d^-

auf ein größeres spektrales Gebiet verteilen und insgesamt ein wesentlich breiteres und flacheres Verstärkungsprofil entsteht.

Durch den Zweiphotonenprozeß entsteht in doppler-verbreiterten Medien zusätzlich zu der schon aus Abschnitt 2.1 bekannten Frequenzrichtungsasymmetrie eine Verstärkungs-Richtungsasymmetrie, die z.B. in einem Ringlaser zu Einrichtungsbetrieb führt (siehe Kap. 6). Die Verstärkungsrichtungsasymmetrie ist umso geringer, je kleiner der Faktor k_d/k_p ist, d.h. je stärker sich Pump- und Ramanfrequenz unterscheiden. Für den Fall homogen verbreiteter Medien verschwindet die Asymmetrie sogar vollständig. Bei Verstimmung $\Delta\omega \leq \Delta\omega_{13}$, d.h. auf der Resonanz oder in der Umgebung der Resonanz überlagern sich Einphotonen- (Inversions-) Verstärkung und Zweiphotonen- (Raman-) Verstärkung in komplizierter Weise und eine Trennung beider Beiträge ist nur eingeschränkt möglich.

Aus praktischen Gründen werden die erzeugte Verstärkung durch Inversion und Raman-effekt im folgenden häufig als Ramanverstärkung bezeichnet, die resultierende Laseremission wird, wie auch in der Literatur üblich, als Ramanlaser bezeichnet. Als vollständige Bezeichnung der untersuchten Lasersysteme könnte folgender Ausdruck Verwendung finden: „Kohärent gepumpter Dreiniveau-Dimerenlaser“.

Die detaillierte Darstellung zur Theorie der Inversions- und Ramanverstärkung wird in Kap. 5 vorgestellt und erfordert die vollständige Beschreibung des Λ -förmigen Schemas im Dichtematrixformalismus. Da für die später vorgestellten Experimente $\frac{k_d}{k_p} \neq 1$ gilt, muß der Dopplereffekt mit in die Berechnungen einbezogen werden. Nur in Spezialfällen lassen sich hierbei noch analytische Lösungen für die Form der Verstärkungsprofile finden. In dieser Arbeit wurden deshalb die Verstärkungsprofile durch numerische Methoden bestimmt. Wegen der komplexen Berechnung der Verstärkungsprofile in doppler-verbreiterten Medien ist die Herleitung der Verstärkungsgleichungen in Anhang A zusammengefaßt.

2.3. Überblick über Ramanlaserexperimente an zweiatomigen Molekülen

Die folgende Übersicht beschränkt sich wegen der Vielzahl der Experimente zu Ramanlasern auf die Realisierung von Ramanlasern in homonuklearen zweiatomigen Molekülen. Molekulare Ramanlaser können in einer Vielzahl von zweiatomigen Molekülen erzeugt

werden. Eine gute Übersicht über die experimentellen Arbeiten und theoretischen Aspekte bietet die Arbeit von Wellegehausen [1979]. In Tab. 2.1 auf Seite 23 ist eine Übersicht über die wichtigsten Experimente zu Ramanlasersystemen in homonuklearen zweiatomigen Molekülen zusammengestellt, die bislang mit leistungstarken Pumplasersystemen betrieben werden konnten. Die Eigenschaften der Ramanlaser im Li_2 , Na_2 , K_2 , Bi_2 , S_2 und Te_2 unterscheiden sich dabei deutlich von den Eigenschaften der Ramanlaser im I_2 und H_2 . Wie man in Tab. 2.1 erkennt, erstreckt sich der Emissionsbereich der erzeugten Ramanlaserstrahlung bei allen Molekülen mit Ausnahme des Jodmoleküls über einen kleinen spektralen Bereich, der meistens deutlich kleiner als 100 nm ist. Der erreichbare Emissionsbereich der Ramanlaser hängt von der Tiefe und dem Verlauf der Molekülpotentiale im Grund- und angeregtem Zustand ab und ist limitiert durch den Überlapp von der Rotationsvibrationswellenfunktionen zwischen Grund- und angeregtem Zustand (vergleiche: Franck-Condon-Prinzip in Abs. 3.1). In den meisten verwendeten Medien verteilt sich daher die Emission auf wenige Linien und der Frequenzversatz zwischen Pump- und Ramanlaser ist meist klein ($0,6 < \frac{k_d}{k_p} < 0,9$). Die Verteilung der durch den Pumplaser induzierten Verstärkung konzentriert sich in diesen Medien auf wenige Linien. Somit ist eine hohe Verstärkung und effiziente Konversion der Pumpstrahlung zu erwarten. Im Na_2 und K_2 lassen sich Schwellen von deutlich unter 1 mW und Konversionseffizienzen von 10% [Sarkisyan u. a. 2000] erreichen. Insbesondere molekulare Natrium-Ramanlaser wurden näher untersucht [Wellegehausen 1979] und finden auch Anwendung in komplexen Frequenzkonversionsschemata zur Untersuchung von kohärenten Kopplungen und parametrischen Prozessen [Hinze u. a. 2000; 1999] in Molekülen. Anders verhält sich die Situation im Jodmolekül. Bei Anregung des Jodmoleküls im grünen Spektralbereich (z.B. 514 oder 532 nm) kann die Ramanlaseremission in einem breiten Spektralbereich zwischen 544 und 1343 nm ($0,4 < \frac{k_d}{k_p} < 0,98$) auf mehr als 70 Übergängen erfolgen. Dies hat eine Verteilung der durch den Pumplaser erzeugten Verstärkung zur Folge. Verkompliziert wird die Situation im Jodmolekül durch die nicht vernachlässigbare Hyperfeinstrukturaufspaltung, die zu einer weiteren Verteilung der Verstärkung auf einzelne Hyperfeinstrukturübergänge führt.

Ein weiterer Unterschied zu den molekularen Natrium-Ramanlasern besteht in der Erzeugung der Moleküle. Jod hat bei Zimmertemperatur bereits einen ausreichenden Dampfdruck und liegt in der Gasphase grundsätzlich als zweiatomiges Molekül vor. Der Betrieb von Jod-Ramanlasern kann daher in abgeschmolzenen Zellen bei Zimmertemperatur erfolgen. Die anderen Medien werden durch Verdampfen in Heatpipes erzeugt,

wobei ein Gemisch aus atomarem und molekularem Dampf sowie Puffergasen zum Schutz der optischen Fenster vor den korrosiven Metaldämpfen vorliegt. Der Betrieb der Zellen und Heatpipes bei hohen Temperaturen führt durch Stöße zu einer starken Verbreiterung der molekularen Übergänge und zu einer erhöhten thermischen Besetzung der untersten Vibrationsniveaus im Grundzustand, die den Betrieb der Ramanlaser dicht an der Pumplaserfrequenz erschweren. Beim Jodmolekül konzentriert sich die thermische Besetzung auf die untersten Vibrationsniveaus. Dadurch kann bereits auf Übergängen dicht an der Pumplaserfrequenz Ramanlaserbetrieb realisiert werden.

Bemerkenswerte Experimente zu Ramanlasern im Wasserstoffmolekül wurden in den letzten Jahren aus der Gruppe von John L. Carlsten und seinen Mitarbeitern vorgestellt. Bei den Experimenten konnten kontinuierliche Ramanlaser im Wasserstoffmolekül stark off-resonant von der Einphotonen-Resonanz betrieben werden. Die nur geringe Ramanverstärkung, die bei dieser Form der Anregung durch den Pumplaser induziert wird, wurde durch Verwendung von doppelt resonanten Resonatoren hoher Güte ($5 \cdot 10^5$) kompensiert. Die geringe Linienbreite der eingesetzten Resonatoren erfordert den Einsatz von Pumplaserquellen mit Linienbreiten im kHz-Bereich um eine effiziente Einkopplung der Strahlung in den Resonator zu gewährleisten. Unter Verwendung eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers (532 nm) wurde Ramanlaserstrahlung bei 683 nm (Ramanverschiebung im Wasserstoffmolekül: 4155 cm^{-1}) mit einer Schwelle von 0,64 mW erzeugt. Die maximale Konversionseffizienz lag bei 27% und wurde bei einer Pumpleistung von nur 2,6 mW erreicht [Brasseur u. a. 1998]. Bei einer Pumpwellenlänge von 792 nm konnte mit einem gitterstabilisierten Diodenlaser die Konversionseffizienz auf 83% (10 mW Pumpleistung) bei einer Emissionswellenlänge von 1180 nm [Bienfang u. a. 2002] gesteigert werden.

Durch den großen Emissionsbereich der Ramanlaser im Jodmolekül, der sich über mehr als eine Oktave erstreckt, die einfache Handhabung in abgeschmolzenen Zellen, die gute spektroskopische Charakterisierung des Jodmoleküls und Verwendung von Absorptionsübergängen des Jodmoleküls als sekundärer Frequenzstandard [Quinn 1999], machen Jod zu einem interessanten Medium für die Frequenzkonversion. Hierbei sollten sich die Eigenschaften eines schmalbandigen und stabilen Pumplasers auf die erzeugte Ramanlaserstrahlung übertragen lassen.

Um die in Kapitel 6 vorgestellten experimentellen Ergebnisse besser einordnen zu können, sollen im folgenden die Ergebnisse der wichtigsten experimentellen Arbeiten zu Jod-Ramanlasern kurz vorgestellt werden. Eine Übersicht der wichtigsten Veröffentlichungen

ist in Tab. 2.2 zusammengestellt.

Bereits 1972 konnte von Byer u. a. [1972] mit einem gepulsten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser bei 532 nm in einer 8 cm langen Jodzelle bei Zimmertemperatur Ramanlaserbetrieb in einem Stehwellenresonator realisiert werden. Dies war zugleich die erste Demonstration von Ramanlasern in zweiatomigen Molekülen. Dabei konnte Laseremission in einem breiten Spektralbereich von 544 bis 1338 nm nachgewiesen werden. Die erste Demonstration von kontinuierlichen Ramanlasern im Jodmolekül wurde nahezu zeitgleich von Wellegehausen u. a. [1977] und Koffend und Field [1977] veröffentlicht. In beiden Experimenten wurde ein Argon-Ionen-Laser bei 515,5 nm verwendet und die zufällige Koinzidenz dieser leistungstarken Laserlinie mit einem Absorptionsübergang im Jodmolekül ausgenutzt. Wellegehausen verwendete eine 1 m lange Jodzelle in einem Stehwellenresonator und erreichte bei Single-Mode-Betrieb des Pumplasers auf dem Pumpübergang $P(13)/R(15)(43 - 0)$ (Notation siehe Abs. 3.1) Schwellen von 600 mW im sichtbaren Bereich ($\lambda < 630$ nm) und eine maximale Ausgangsleistung der Ramanlaser von 0,5 mW bei einer Pumpleistung von 3 W. Im nahinfraroten Spektralbereich bis 1338 nm konnten sogar 250 mW Ausgangsleistung bei 3 W im Multi-Mode-Betrieb der Ramanlaser bei Schwellen von 100 mW erzeugt werden. Die Experimente von Koffend und Field [1977] wurden ebenfalls mit einem Single-Mode-Pumplaser durchgeführt, der in einen Stehwellenresonator mit einer 50 cm langen Zelle fokussiert wurde. Durch frequenzselektive Elemente im Resonator konnte von Koffend und Field [1977] Single-Mode-Betrieb der Ramanlaser bei Schwellen von 110 mW erreicht werden. Es wurden maximale Ausgangsleistungen von 3 mW bei einer Pumpleistung von bis zu 4 W erreicht. In einer Nachfolgearbeit [Koffend u. a. 1979] wurden erstmals Verstärkungsmessungen an Jod-Ramanlasern vorgenommen. In einer 242 cm langen Jodzelle wurde eine Verstärkung im sichtbaren Spektralbereich von $0,03\% \frac{1}{\text{cm}}$ und im nahinfraroten Bereich von $0,3\% \frac{1}{\text{cm}}$ gemessen. Die Verstärkungen im Jodmolekül sind im Vergleich zum Na_2 somit 10- bis 100-fach geringer [Wellegehausen 1979]. Barwood und Marx [1982] erprobten den Einsatz von Krypton-Ionen-Lasern zum Betrieb von Jod-Ramanlasern. Sie konnten in 50 cm langen Zellen bei Schwellen von 50 mW mehr als 50 (insgesamt 4 unterschiedliche Pumpübergänge) Ramanlaser zwischen 540 und 650 nm zur Oszillation bringen. Ein Experiment mit bemerkenswert niedriger Schwelle stellten Luhs u. a. [1983] vor. Dabei konnte mit einem Multi-Mode Helium-Neon-Laser eine Schwelle von 4 mW im Nahinfraroten Spektralbereich bei einer Zelllänge von nur 25 cm erreicht werden. Die erste Realisierung eines Jod-Ramanlasers im Einrichtungsbetrieb in einem Ringlaser

konnten Luhs und Wellegehausen [1983] vorstellen, bei der erstmals auch die Verstimmbarkeit der Jod-Ramanlaser von der Resonanz nachgewiesen wurde. Es konnte bei einer Verstimmung von 30 GHz von der Resonanz immer noch Ramanlaseremission beobachtet werden. Dies war zugleich das erste Experiment bei dem ein durchstimmbarer Farbstofflaser mit 1 W Ausgangsleistung eingesetzt wurde.

1985 realisierte Hefter [Hefter u. a. 1985] in einem 0,14 cm langen Molekülstrahl Ramanlaseremission bei 1338 nm mit einer Schwelle von 10 mW und maximalen Ausgangsleistungen von 2 mW in einem Ringresonator. Dabei wurde Zweirichtungsbetrieb des Lasers beobachtet (Verhältnis der Ausgangsleistungen 10 : 1, vorwärts:rückwärts), da die Richtungsasymmetrie der erzeugten Verstärkung bei 1338 nm bereits weitgehend aufgehoben ist. 1996 veröffentlichte Jones [Jones u. a. 1996] Daten über Ringlaserexperimente in 70 cm langen Zellen mit Schwellen von 50 mW. Dabei konnte auf 29 Linien Single-Mode-Laseremission von 544 bis 1338 nm nachgewiesen werden.

An Hand dieser Übersicht über experimentelle Arbeiten an Jod Ramanlasern, die in Tab. 2.2 auf Seite 24 zusammengefaßt ist, wird ersichtlich, daß mit Ausnahme der Experimente von Luhs und Wellegehausen [1983] nur festfrequente Laser unter Ausnutzung zufälliger Koinzidenz mit Absorptionsübergängen Ramanlaser betrieben wurden. Die prinzipielle Durchstimmbbarkeit der Argon-Ionen-Laser zur genaueren Untersuchung der Ramanlaser und des Einflusses der Hyperfeinstruktur wurde in keinem der hier genannten Experimente untersucht.

In dieser Arbeit werden erstmals Ringlaserexperimente mit einem kontinuierlich durchstimmbaren frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser als Pumplaser vorgestellt. Dabei wurden in kurzen Zellen der Länge 15 cm Schwellen von 30 mW bei maximalen Ausgangsleistungen von 3 mW (@1330 nm) bei einer Pumpleistung von 350 mW erreicht. Es konnte die Erzeugung von Ramanlaseremission über den gesamten möglichen Spektralbereich von 544 bis 1343 nm nachgewiesen werden. Da in dieser Arbeit eine schmalbandige durchstimmbare Laserquelle als Pumplaser verwendet wurde, konnten auch erstmals Aussagen über das komplexe Verstärkungsprofil, wie es sich als Konsequenz von Sub-Doppler-Anregung und großer Hyperfeinstrukturaufspaltung ergibt gewonnen und mit theoretischen Aussagen und numerischen Simulationen verglichen werden.

	λ_p [nm]	λ_R (Linienzahl) [nm]	Molekülerzeugung	Schwelle ^I [mW]	$P_{\text{out}}(@P_{\text{pump}})$ [mW](@[mW])	Referenz
Li ₂	476 647	530...560(10) 800...910(10)	Heatpipe (1300 K, 10 cm)	< 100	30(@1000)MM	[Welling u. a. 1977]
Na ₂	472,5 488 514,5	500...580(20) 570...640(25) 760...820(15)	Heatpipe (650 – 850 K, ≈ 10 cm) Saphirzellen(650 – 850 K, ≈ 10 cm) Molekülstrahlen	0, 2	10(@120)SM	[Sarkisyan u. a. 2000]
K ₂	647	695...710(6)	Heatpipe (650 – 850 K, ≈ 10 cm) Saphirzellen650 – 850 K, 9 cm)	1	3(@250)MM	[Wellegehausen u. a. 1978b]
Bi ₂	514,5	600...770(30)	Heatpipe (1200 – 1300 K, ≈ 20 cm)	~ 200	350(@3500)MM	[Wellegehausen u. a. 1978a]
S ₂	363,3	450...495(15)	Heatpipe (1100 – 1400 K, ≈ 20 cm) mit Seitenarm bei ≈ 500 K	~ 600	3(@3500)MM ^{II}	[Wellegehausen u. a. 1978b]
Te ₂	476	560...660(200)	Zellen (800 – 900 K, 18 cm)	20	20(@1000)MM	[Wellegehausen u. a. 1978a]
I ₂	514 532	544...1340(29) 544...1343(34)	Zellen (≈ 300 K, 70 cm) Zellen (≈ 300 K, 15 cm)	50 30	5(@800)SM 3(@350)SM	[Jones u. a. 1996] [Klug u. a. 2000]
H ₂	532 792	683 1180	Cavity(10 bar, 7, 7 cm) ^{III} Cavity(10 bar, 7, 7 cm) ^{III}	0, 64 2, 4	3(@25)SM 8, 3(@10)SM	[Bienfang u. a. 2002] [Brasseur u. a. 1998]

^Ijeweils die geringste berichtete Schwelleistung

^{II}geringe Effizienz, wegen hohem Anteil von S₆ und S₈

^{III}doppelt resonante High Finesse Cavity mit $F = 5 \cdot 10^4$

Tabelle 2.1.: Übersicht über Experimente zu kontinuierlichen Ramanlasern in homonuklearen zweiatomigen Molekülen.

λ_p : Pumpwellenlänge, λ_R : Emissionsbereich der Ramanlaser (Anzahl der Laserlinien pro erreichbarem Pumpübergang), $P_{\text{out}}(P_{\text{pump}})$: Ausgangsleistung in [mW] (bei Pumpleistung [mW]), SM/MM: Single-Mode bzw. Multi-Mode-Betrieb der Ramanlaser.

λ_p [nm]	Resonatortyp	Länge [cm]	Schwelle [mW]	$P_{\text{out}} (P_{\text{pump}})$ [mW] (@ [mW])	λ_R [nm]	Referenz
532,0 ^I	Stehwelle	8	–	-	544-1340(26)	[Byer u. a. 1972]
514,5 ^{II}	Stehwelle	50	110	3(@400) SM	569-1027(13)	[Koffend und Field 1977]
514,5 ^{II}	Stehwelle	100	100	250(@3000)MM	583-1338(18)	[Wellegehausen u. a. 1977]
514,5 ^{II}	Stehwelle	242	< 500	-	611-1338(13)	[Koffend und Field 1977]
521 ^{III}	Stehwelle	50	80	0,7(@350)MM	557-627(9)	[Barwood und Marx 1982]
531 ^{III}	Stehwelle	50	80	0,7(@350)MM	542-650(13)	[Barwood und Marx 1982]
633 ^{IV}	Stehwelle	25	4	0,1(@25)MM	840-1163(9)	[Luhs u. a. 1983]
588 ^V	Ring	30	–	-	-	[Luhs und Wellegehausen 1983]
514 ^{II}	Ring	0,14 ^{VII}	10	2(@100) ^{VIII} SM	1338(1)	[Hefter u. a. 1985]
514 ^{II}	Ring	70	50	5(@800) ^{VIII} SM	544-1338(29)	[Jones u. a. 1996]
532 ^{VI}	Ring	15	30	3(@350) ^{VIII} SM	544-1343(34)	[Klug u. a. 2000]

^I gepulster frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser

^{II} Argon-Ionen-Laser, P(13)/R(15)(43-0)

^{III} Krypton-Ionen-Laser, P(89)(32-0), P(10)/P(13)(32-0), R(37)(33-0), R(76)(40-0)

^{IV} He-Ne-Laser, R(60)(8-4)

^V Single-Mode-Farbstofflaser, Pumpübergang nicht angegeben

^{VI} durchstimmbarer frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser, Pumpübergänge in Tab. 4.1 auf Seite 48

^{VII} Molekülstrahl

^{VIII} die berichteten Leistungen wurden jeweils bei Übergängen um 1330 nm erreicht

Tabelle 2.2.: Übersicht über Ramanlasereperimente in molekularem Jod. λ_p : Pumpwellenlänge, λ_R : Emissionsbereich der Ramanlaser (Anzahl der Laserlinien), $P_{\text{out}} (P_{\text{pump}})$: Ausgangsleistung in [mW] (bei Pumpleistung [mW])

3. Eigenschaften des Jodmoleküls

Im folgenden Abschnitt wird zunächst auf die spektralen Eigenschaften des Jodmoleküls eingegangen. Allgemeine Einführungen in die Theorie zweiatomiger Moleküle findet man z.B. in [Haken und Wolf 1994, Hellwege 1974, Dunham 1932]. Das Jodspektrum wird in Absorption und Emission anhand des Potentialschemas des Jodmoleküls diskutiert und die zur Verfügung stehenden Daten, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, vorgestellt. Anschließend wird kurz auf die Hyperfeinstrukturaufspaltung der Übergänge eingegangen. Zum Abschluß werden Effekte und Daten zur Verbreiterung der Übergänge vorgestellt, da sie für die spätere Diskussion des Ramanlaserbetriebes relevant sind.

3.1. Potentialschema des Jodmoleküls

Das Jodmolekül zeigt im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich von 500 nm bis 900 nm ($\hat{=}20.000\text{--}11.000\text{ cm}^{-1}$) eine Vielzahl von Absorptionslinien, von denen ca. 20.000 im Jodatlas [Gerstenkorn u. a. 1978] mit einer relativen Genauigkeit von $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 10^{-7}$ katalogisiert sind. Hierbei handelt es sich um das Feinstrukturspektrum (Rotationsvibrationsübergänge) zwischen dem elektronischen Grundzustand (X-Zustand) und dem ersten elektronisch angeregten Zustand (B-Zustand), wofür auch die Bezeichnung B-X-System des Jodmoleküls gebräuchlich ist. Der Grundzustand liegt als $^1\Sigma_g^+$, der B-Zustand als 0_u^+ vor. Der elektronische Grundzustand ist somit ein Σ -Zustand, da die Projektion des Gesamtbahndrehimpulses Λ auf die Molekülachse Null ist ($\Lambda = 0 \Rightarrow \Sigma$). Der elektronische Gesamtspin ist $S = 0$, wodurch sich die Multiplizität $2S + 1 = 1$ ergibt. Das (+)-Zeichen gibt die Spiegelinvarianz der Wellenfunktion an einer Ebene an, die durch beide Kerne verläuft, g steht für gerade Symmetrie der elektronischen Wellenfunktion bei Punktspiegelung um den Mittelpunkt der Kernverbindungsachse (u : ungerade Symmetrie). Beim angeregten Zustand handelt es sich um einen 0 -Zustand. Der

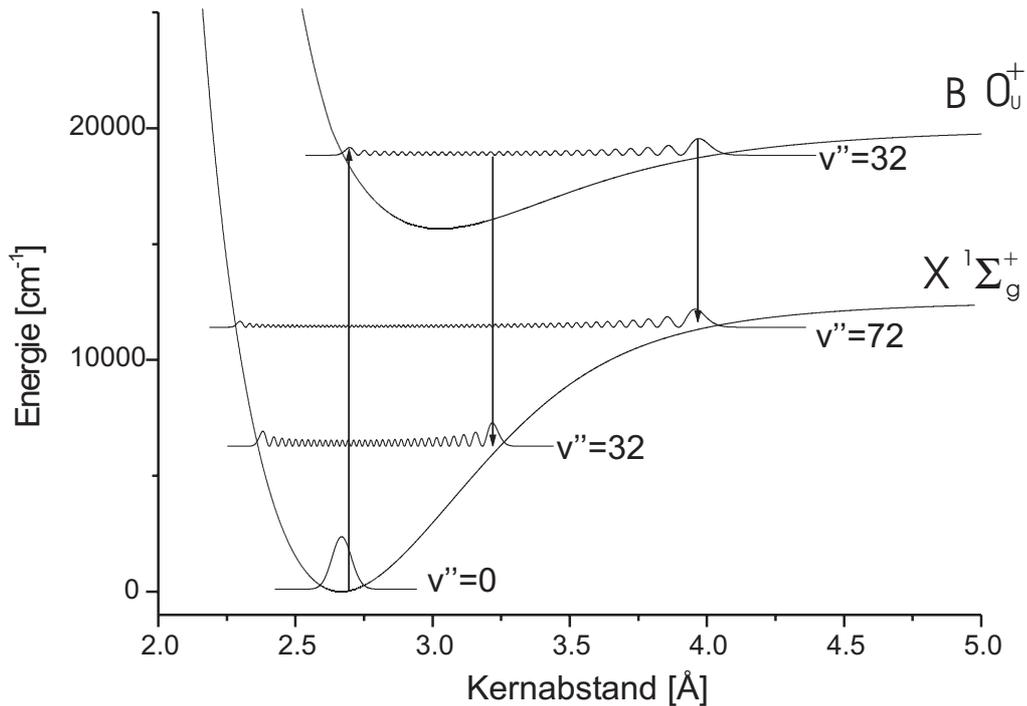


Abbildung 3.1.: Vereinfachtes Potentialschema des B–X–Systems des Jodmoleküls. Die eingezeichneten Betragsquadrate der Vibrationswellenfunktionen veranschaulichen das Franck–Condon–Prinzip. Die Berechnung der Potentialschichten und Wellenfunktionen erfolgte mit dem Programm *FCFrkr* [Telle und Telle 1982].

angeregte Zustand besitzt somit einen Gesamtdrehimpuls $\Omega = 0$, der sich als Summe des Gesamtbahndrehimpulses und der Projektion des elektronischen Spins entlang der Kernverbindungsachse ergibt (Hundscher Kopplungsfall (c) [Dunham 1932]). Der B–Zustand hat eine ungerade Parität. Für die Bezeichnung der Rotationsvibrationsübergänge werden in der Literatur unterschiedliche Notationen verwendet. Hier wird für die Vibrationsquantenzahl v des Grundzustandes die Bezeichnung v'' , für die des angeregten Zustandes v' verwendet. Für die Rotationsquantenzahl des Übergangs wird der Wert der Rotationsquantenzahl im Grundzustand angegeben. Folgendes Beispiel soll die Kurzschreibweise der Notation erläutern: $R(56)(32 - 0)$ bedeutet $v'' = 0$ $J'' = 56$, $\rightarrow v' = 32$, $J' = 57$. Die Abkürzung R steht für $\Delta J = J' - J'' = +1$, entsprechend werden Übergänge mit $\Delta J = -1$ mit P bezeichnet. Zur eindeutigen Zuordnung der Absorptionsübergänge kann zum einen der Jodatlas [Gerstenkorn u. a. 1978] verwendet werden. Das Feinstrukturpektrum des Jodmoleküls kann aber auch durch eine Dunham–Reihe [Dunham 1932]

beschrieben werden.

$$F_{vJ} = \sum_{lj} Y_{lj} \left(v + \frac{1}{2} \right)^l [J(J+1) - \Omega^2]^j \quad (3.1)$$

Die Größen v und J geben dabei die Vibrations- und Rotationsquantenzahlen an. Y_{lj} sind die Dunham-Parameter. Mit dieser Reihenentwicklung kann das $^{127}I_2$ -Spektrum für den Bereich von $v'' \leq 19$ und $v' \leq 80$ durch insgesamt 46 Dunham-Parameter mit einer Genauigkeit von $0,002 \text{ cm}^{-1}$ (60 MHz) [Gerstenkorn und Luc 1985] beschrieben werden. Der Potentialverlauf ist in Abb. 3.1 dargestellt.

Für die Experimente standen auch Zellen mit den Isotopomeren $^{127}I^{129}I$ und $^{129}I_2$ zur Verfügung. Zur Beschreibung der Absorptionsspektren von $^{127}I^{129}I$ und $^{129}I_2$ wurden die Daten aus [Gerstenkorn u. a. 1991] verwendet, wobei in dieser Arbeit die Dunham-Parameter des $^{127}I_2$ mit Hilfe der genau bekannten Atommasse der Isotope ^{127}I und ^{129}I umgerechnet wurden. Zur Beschreibung des Fluoreszenzspektrums des Jodmoleküls sind Daten aus [Gerstenkorn und Luc 1985, Gerstenkorn u. a. 1991] nur bis $v'' = 19$ geeignet. Bei einer Anregung mit 532 nm entspricht dies einer Fluoreszenzwellenlänge von etwa 660 nm. Da beim Betrieb der Jod-Ramanlaser auch höhere Vibrationsniveaus im Grundzustand erreicht werden können, wurden die Daten aus [Martin u. a. 1986] für das $^{127}I_2$ und [Cerny u. a. 1986] für $^{127}I^{129}I$ und $^{129}I_2$ verwendet. Diese Datensätze erlauben die Beschreibung der Übergangsfrequenzen bis zu Vibrationsniveaus von $8 \leq v'' \leq 108$ im Grundzustand.

Die Genauigkeiten der Fluoreszenzfrequenzen in den Grundzustand für die einzelnen Isotopomere ist in Tab. 3.1 angegeben. Aus den Datensätzen wurden Rechenprogramme erstellt, um die Übergänge in Absorption und Emission vorhersagen zu können. Zur Überprüfung der Konsistenz der Daten von [Gerstenkorn u. a. 1978; 1991] für die niedrigen Vibrationsniveaus im Grundzustand und von [Martin u. a. 1986, Cerny u. a. 1986] für die höheren Vibrationsniveaus wurden die Daten im Überlappbereich der beiden Datensätze an einigen für diese Arbeit relevanten Übergängen exemplarisch verglichen. Die Frequenzabweichungen lagen im Überlappbereich der Datensätze von [Gerstenkorn und Luc 1985] und [Martin u. a. 1986, Cerny u. a. 1986] innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen. Durch eigene Fluoreszenzuntersuchungen mittels eines Fourierspektrometers konnte die Genauigkeit der angegebenen Daten verifiziert werden [Schulze 2000].

3. Eigenschaften des Jodmoleküls

Isotopomer	Genauigkeit [cm^{-1}]	Bereich
$^{127}I_2$	$< 5 \cdot 10^{-3}$	$8 \leq v'' \leq 85, 0 \leq J'' \leq 80$
	$< 10 \cdot 10^{-3}$	$8 \leq v'' \leq 85, 80 < J'' \leq 100$
	$< 20 \cdot 10^{-3}$	$8 \leq v'' \leq 85, 100 < J'' \leq 120$
	$< 150 \cdot 10^{-3}$	$8 \leq v'' \leq 85, 120 < J'' \leq 150$
	$< 5 \cdot 10^{-3}$	$85 \leq v'' \leq 90, J'' \leq 40$
	$< 10 \cdot 10^{-3}$	$85 \leq v'' \leq 90, 40 < J'' \leq 60$
	keine Angabe	$v'' > 90$
$^{127}I^{129}I, ^{129}I_2$	$< 5 \cdot 10^{-3}$	$0 \leq v'' \leq 70, J'' \leq 35$
	$< 10 \cdot 10^{-3}$	$0 \leq v'' \leq 70, 35 < J'' \leq 100$
	$< 30 \cdot 10^{-3}$	$70 \leq v'' \leq 90, J'' \leq 35$
	keine Angabe	$v'' > 90$

Tabelle 3.1.: Übersicht über die Genauigkeit der in [Martin u. a. 1986] und [Cerny u. a. 1986] veröffentlichten Dunham-Parameter zur Beschreibung der hohen Vibrationsniveaus im Grundzustand des Jodmoleküls.

Zur Bestimmung der Fluoreszenzintensität vom Übergang aus dem B-Zustand in den Grundzustand des Jodmolekül werden aus den Werten der Dunham-Reihe die Franck-Condon-Faktoren [Herzberg 1950] berechnet, die als Proportionalitätsfaktor in die Fluoreszenzintensität eingehen (Siehe auch Einstein-A-Koeffizienten in Abs. 3.3.1.2). Der Franck-Condon-Faktor ist das Quadrat des Überlappintegrals zwischen zwei Vibrationswellenfunktionen unterschiedlicher Molekülzustände. Hierzu wird das Programm *FCFrkr* [Telle und Telle 1982] verwendet, das aus den Dunham-Parametern zunächst den Potentialverlauf, die Vibrationswellenfunktion und den Franck-Condon-Faktor berechnet. Der Verlauf der Franck-Condon-Faktoren ist in Abb. 3.2 für den Bereich von $v'' = 0$ bis $v'' = 74$ dargestellt, das Startniveau im angeregten Zustand wurde mit einem Übergang von $v'' = 0 \rightarrow v' = 32$ bei einer Pumpwellenlänge von 532 nm besetzt. Die Fluoreszenz erstreckt sich über einen Bereich von 532 nm ($v'' = 0$) bis 1355 nm ($v'' = 74$). Im sichtbaren und nahinfraroten Wellenlängenbereich ergeben sich Franck-Condon-Faktoren von $\leq 0,01$, der Bereich oberhalb 1250 nm zeigt deutlich größere Franck-Condon-Faktoren mit einem Maximum bei $v'' = 72$ mit einem Wert von 0,22 (zur Veranschaulichung des großen Überlapps der Vibrationswellenfunktionen bei $v'' = 72$ siehe auch Abb. 3.1). Ab $v'' > 74$ sind die Franck-Condon-Faktoren nahezu gleich Null.

Aufnahmen der Spektren in Absorption findet man in Abb. 4.4 und Abb. 4.5 auf Seite

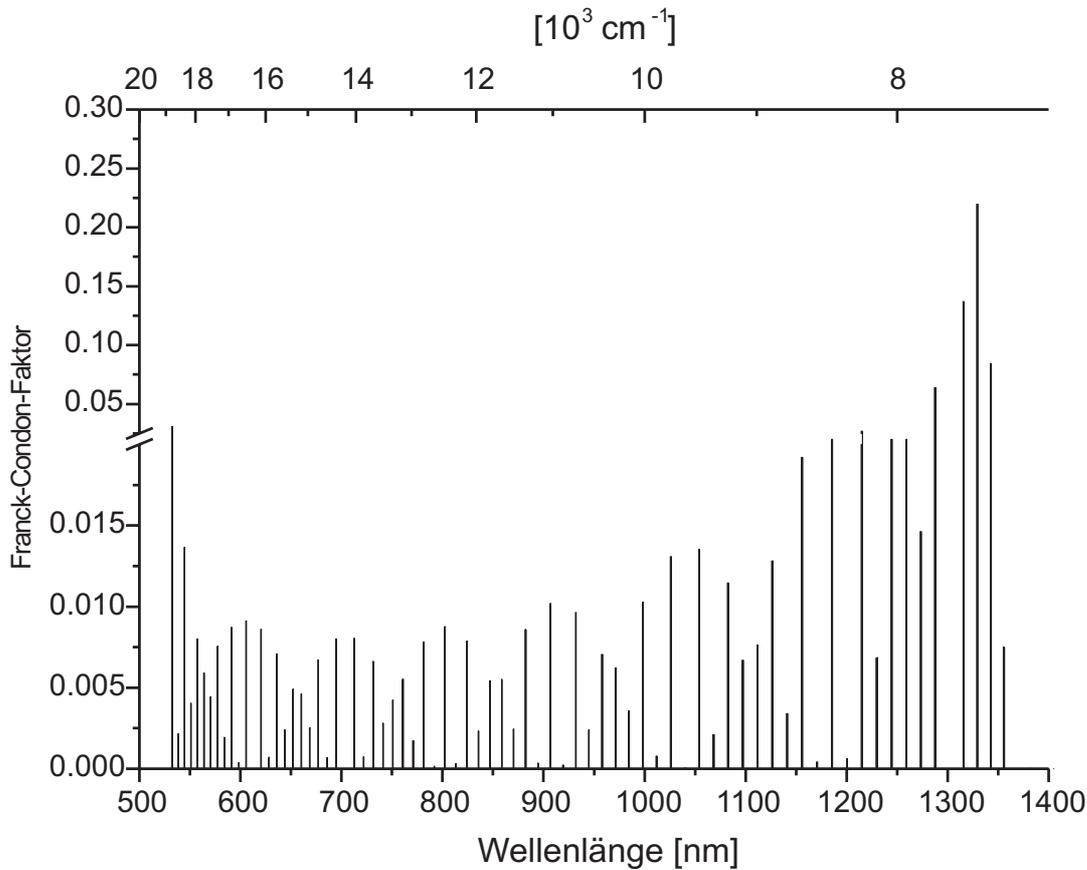


Abbildung 3.2.: Berechneter Verlauf der Franck–Condon–Faktoren für den Bereich $v'' = 0$ bis $v'' = 74$ bei Anregung auf dem Übergang $R(56)(32-0)$.

50 und 51. Fluoreszenzspektren für den sichtbaren bis nahinfraroten Bereich werden in [Schulze 2000] vorgestellt.

3.2. Hyperfeinstrukturaufspaltung der I_2 -Übergänge

Beim ^{127}I - und ^{129}I -Atom handelt es sich um Atome mit einem Kernspin $I \neq 0$, wodurch es durch die Wechselwirkung von Kernspin und Elektronenhülle zu einer energetischen Aufspaltung der Niveaus kommt. In zweiatomigen Molekülen muß auch die Wechselwirkung mit dem anderen Atom berücksichtigt werden. Eine Einführung in die Theorie der Hyperfeinstruktur zweiatomiger Moleküle findet man z.B. in [Townes und Schawlow 1975]. Hier soll allerdings nicht auf Details der Hyperfeinstrukturaufspaltung eingegan-

3. Eigenschaften des Jodmoleküls

gen werden, sondern lediglich dessen Struktur verständlich gemacht werden. Details zur Hyperfeinstruktur des Jodmoleküls finden sich z.B. in [Broyer u. a. 1978]. Da das Jodmolekül aus Atomkernen mit halbzahligem Kernspin ($I_{\text{Atom}}(^{127}\text{I}) = \frac{5}{2}$; $I_{\text{Atom}}(^{129}\text{I}) = \frac{7}{2}$) besteht, die dem Pauli-Prinzip unterliegen, muß die Gesamtwellenfunktion antisymmetrisch gegenüber Vertauschung der Kerne sein. Bei gerader elektronischer Parität eines elektronischen Zustandes verlangt das Pauli-Prinzip bei einer symmetrischen Rotationswellenfunktion (gerades J) eine antisymmetrische Kernspinwellenfunktion. In einem elektronischen Zustand ungerader Parität müssen Rotations- und Kernspinwellenfunktionen gleiche Symmetrie besitzen. Das Pauli-Prinzip verringert die Anzahl der möglichen Kopplungen zwischen dem Kernspin I und dem Drehimpuls J . Für den Fall des $^{127}\text{I}_2$ ergibt sich $I = I_{\text{Atom1}} + I_{\text{Atom2}}$ maximal zu 5 ($^{127}\text{I}^{129}\text{I}$: $I = 6$; $^{129}\text{I}_2$: $I = 7$). Eine Konsequenz der Symmetriebetrachtungen ist dabei die unterschiedliche Anzahl von Hyperfeinübergängen. Die elektronische Parität des elektronischen Grundzustandes ist gerade. Für gerades J muß daher die Kernspinwellenfunktion antisymmetrisch sein, was sich nur für gerades I erfüllen läßt. Für ungerades J ergibt sich entsprechend ungerades I . Der B-Zustand hat ungerade elektronische Parität, so daß hier die umgekehrte Situation vorliegt: Gerades J koppelt mit ungeradem I und ungerades J koppelt mit geradem I . Für das heteronukleare $^{127}\text{I}^{129}\text{I}$ gibt es keine derartige Beschränkung. Die sich daraus ergebende Anzahl der Hyperfeinniveaus ist in Tabelle 3.2 für die drei Isotopomere zusammengefaßt.

Durch weitere Überlegungen können die Auswahlregeln für die Übergänge zwischen den

Isotopomer	J''	Anzahl Komponenten
$^{127}\text{I}_2$	gerade	$\sum_{I=0,2,4} 2I + 1 = 15$
	ungerade	$\sum_{I=1,3,5} 2I + 1 = 21$
$^{129}\text{I}_2$	gerade	$\sum_{I=0,2,4,6} 2I + 1 = 28$
	ungerade	$\sum_{I=1,3,5,7} 2I + 1 = 36$
$^{127}\text{I}^{129}\text{I}$	ger./unger.	$\sum_{I=1}^6 2I + 1 = 48$

Tabelle 3.2.: Anzahl der auftretenden Hyperfeinniveaus für die drei Isotopomere des Jodmoleküls.

Hyperfeinniveaus abgeleitet werden [Herzberg 1950]:

$$\Delta J = \pm 1 \quad \Delta F = 0, \pm 1 \quad \Delta I = 0 \quad (3.2)$$

Im Hyperfeinspektrum beobachtet man für größere Werte von J nur Übergänge mit $\Delta F = \Delta J$. Die Intensitäten der Hyperfeinübergänge mit $\Delta F = 0$ und $\Delta F = -\Delta J$ sind proportional zu $\frac{1}{2J^2}$ bzw. $\frac{1}{10J^4}$, wodurch diese Übergänge nur bei sehr kleinen Werten von J beobachtbar sind.

3.3. Verbreiterungsmechanismen

Zur Beschreibung des Dreiniveau-Systems im Dichtematrixformalismus, sowie die darauf aufbauende numerische Simulation der Verstärkungsprofile werden die Relaxationsraten für strahlungslose und strahlende Prozesse aus allen beteiligten Niveaus des Jodmoleküls benötigt. Die strahlungslosen Übergänge werden durch Stöße zwischen den Molekülen verursacht und führen zu einer effektiven Verbreiterung der Übergänge, die von der Teilchendichte im Medium abhängig ist [Demtröder 1996]. Die einzelnen Mechanismen, die zur Verbreiterung der Übergänge durch Stöße führen werden in Abs. 3.3.1 behandelt. Strahlende Übergänge werden durch die Einstein-A-Koeffizienten beschrieben. Sie hängen nur von den Eigenschaften des Moleküls ab und werden in Abs. 3.3.1.2 beschrieben. Der folgende Abschnitt stellt im wesentlichen eine ausgewertete Zusammenfassung von Literaturdaten dar.

3.3.1. Relaxationsprozesse

Nach Anregung der Jodmoleküle auf einem Rotationsvibrationsübergang des B-X-Systems kann der angeregte Zustand durch Stöße in benachbarte Rotationsvibrations-Zustände des gleichen elektronischen Zustands relaxieren oder durch spontane oder stimulierte Emission gemäß dem Franck-Condon-Prinzip (Abb.3.2) zurück in den Grundzustand gelangen.

In Abb.3.3 ist das Λ -förmige Dreiniveau-System schematisch dargestellt. Ein Laserfeld ω_p wird auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ eingestrahlt. Durch strahlende Übergänge kann das System in den Zustand $|1\rangle$ oder $|2\rangle$ mit der Rate A_{31} bzw. A_{32} (Einstein-A-Koeffizienten) relaxieren. Die γ_i ($i = 1 \dots 3$) charakterisieren die Summe aus allen strahlenden und strahlungslosen Übergängen.

Die gesamte Relaxationsrate γ_i für die relevanten Zustände im Absorptions-Emissions-

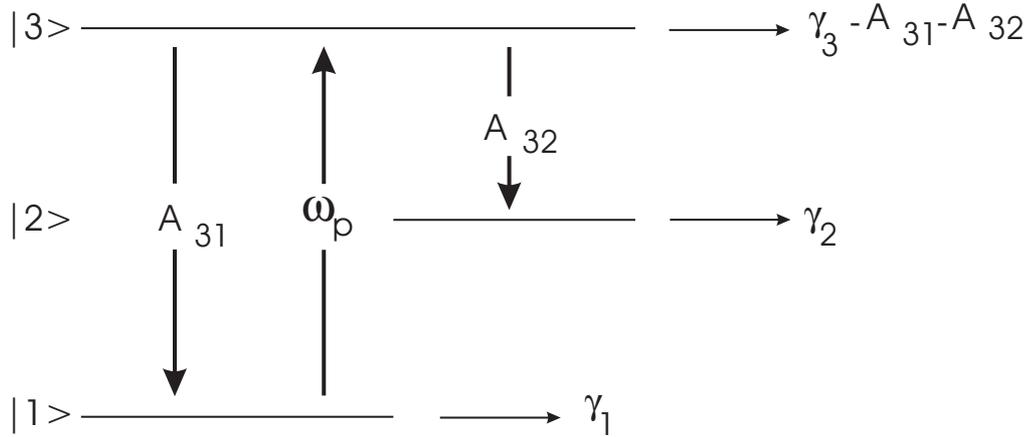


Abbildung 3.3.: Vereinfachtes Dreineiveau-System. γ_i : Summe aller Relaxationen, A_{ij} : Einstein-A-Koeffizienten für strahlende Übergänge, ω_p : Frequenz des Pumplaserfelds

zyklus ergibt sich aus der Summe der verschiedenen Einzelbeiträge zu:

$$\gamma_i = (\sigma_{sq} + \sigma_{V-T+R-T}) P_r \sqrt{\frac{8\pi}{kTM}} + \gamma_{spon} + \frac{v_m}{D}. \quad (3.3)$$

Dabei ist σ_{sq} der Wirkungsquerschnitt für selbstlöschende Stöße (engl.: self quenching collisions), $\sigma_{V-T+R-T}$ der Wirkungsquerschnitt für rotationsvibrationsändernde (V-T+R-T- ändernde) Stöße. Beide Stoßprozesse gehören zu den strahlungslosen Relaxationen. σ_{sq} und $\sigma_{V-T+R-T}$ skalieren linear mit dem Joddampfdruck P_r (Abs. 3.3.2). M ist die Masse des Jodmoleküls. γ_{spon} ist die spontane Rate für strahlende Übergänge der betrachteten Niveaus, die im folgenden Abschnitt (3.3.1.2) behandelt wird. Der letzte Term berücksichtigt den Beitrag der Flugzeitverbreiterung durch die endliche Ausdehnung der Lasermode, wobei D der Durchmesser der Pumpstrahlung im Medium und v_m die mittlere thermische Geschwindigkeit der Teilchen ist.

3.3.1.1. Stoßprozesse

Die Wirkungsquerschnitte σ_{sq} für selbstlöschende Stöße beinhalten die Änderung des elektronischen Zustandes. Für die hier vorliegenden Bedingungen treten selbstlöschende Stöße nur vom angeregten Zustand in den Grundzustand auf, sowie auch stoßinduzierte Prädissoziation in repulsive Zustände. Der umgekehrte Prozess kann aufgrund der geringen Relativgeschwindigkeiten der Moleküle energetisch nicht stattfinden. Die bei den

selbstlöschenden Stößen freiwerdende Energie wird als Translationsenergie freigesetzt. Selbstlöschende Stöße wurden in zahlreichen Arbeiten mit Methoden der laserinduzierten Fluoreszenz (LIF) [Bugrim u. a. 1977, Lehmann 1976, Sakurai u. a. 1976, Broyer u. a. 1975, Bugrim u. a. 1974, Paisner und Wallenstein 1974, Kurzel u. a. 1972, Shotton und Chapman 1972] oder in älteren Arbeiten mit monochromatisch erregter Fluoreszenz (MEF) [Steinfeld 1966, Brown und Klemperer 1964, Polanyi 1958] untersucht.

Die MEF basierten Veröffentlichungen sind nicht hinreichend selektiv bezüglich der präparierten Zustände (Anregung zahlreicher rovibronischer Übergänge) und ergeben grundsätzlich größere Werte für den Stoßquerschnitt σ_{sq} . Daher wurden diese Messungen nicht berücksichtigt. Die LIF Messungen erstrecken sich über einen Anregungsbereich von $v' = 6$ bis $v' = 62$, sowie einen weiten Bereich von Drehimpulsen. Dabei streuen die veröffentlichten Messwerte von minimal $\sigma_{sq} = 54 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ bis maximal $\sigma_{sq} = 73 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$. Da keine Systematik bezüglich v' oder J' erkennbar ist (siehe

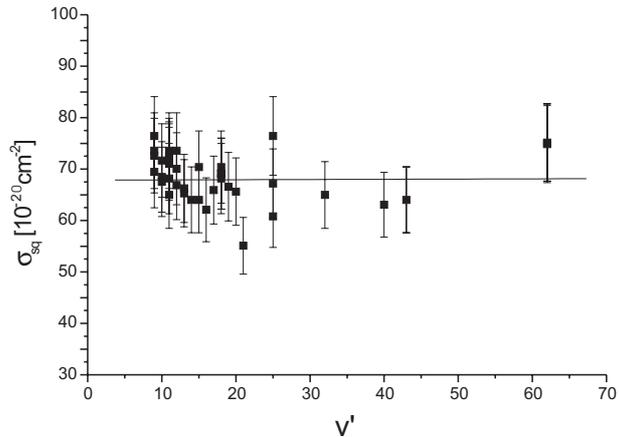


Abbildung 3.4.: Wirkungsquerschnitt σ_{sq} für den B-Zustand.

Abhängigkeit von v' in Abb. 3.4), wird für die weiteren Betrachtungen ein mittlerer Wert aus insgesamt 37 Messwerten, die bei einer Zelltemperatur von 300 K gewonnen wurden, von $\sigma_{sq} = 68 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ angenommen, der Fehler für diesen Wert wird mit 5% angenommen. Für den Fall der rotationsvibrationsändernden Stöße, muß zwischen dem elektronischen Grundzustand und dem angeregten Zustand unterschieden werden.

Für rotationsvibrationsändernde Stöße im B-Zustand liegen nur sehr wenige Messungen vor. In insgesamt drei Arbeiten [Kurzel und Steinfeld 1970, Polanyi 1958, Derouard und Sadeghi 1983] wurden Messungen für $v' = 15, 25, 43$ veröffentlicht. Leider ist der Wert in der Arbeit von [Polanyi 1958] für $v' = 25$ fehlerbehaftet, da von einem falschen Wert für die Strahlungslebensdauer ausgegangen wird, ein Umrechnen der Daten ist wegen unvollständiger Angaben nicht möglich. Für die vorliegende Arbeit wurde der Stoßquerschnitt $\sigma_{V-T+R-T}(B(v' = 43) \rightarrow B(v' = \dots)) = 54 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ aus [Kurzel u. a. 1971] verwendet. Der Fehler wird mit 10% angenommen.

Für rotationsvibrationsändernde Stöße im Grundzustand sind folgende Veröffentlichungen relevant: [Clark und McCaffery 1978, Koffend u. a. 1980]. Hier wurden für den Bereich $v'' = 0$ bis $v'' = 100$ Stoßquerschnitte für $\sigma_{V-T+R-T}(X \rightarrow X)$ an 4 Stellen bestimmt. Für die spätere Verwendung wurde deshalb wie von [Koffend u. a. 1980] vorgeschlagen zwischen den Meßwerten mit einer Exponentialfunktion (Abb. 3.5) interpoliert. Für den Verlauf der rotationsvibrationsändernde Stöße im B-Zustand ist ein ähnlicher Verlauf zu vermuten. In dieser Arbeit wird der gemessene Wert von $\sigma_{V-T+R-T}(B \rightarrow B)$ für $v' = 43$ unkorrigiert verwendet. In den Experimenten werden aber Pumpübergänge mit $v' = 32 \dots 35$ erreicht. Es ist zu vermuten, daß der hier verwendete Wert für $\sigma_{V-T+R-T}(B \rightarrow B)$ zu groß abgeschätzt ist.

Die Werte der Stoßquerschnitte sind am Ende des Abschnitts in Tab. 3.3 auf Seite 39 zusammengefaßt. Zur Abschätzung der Druckverbreiterung bei Absorptions- bzw. Sättigungsspektroskopie kann bei Temperaturen in der Nähe der Zimmertemperatur die Beziehung $\Delta\nu_{Druck} = 0,14 \sqrt{\frac{300}{T[K]}} \frac{\text{MHz}}{\text{Pa}}$ [Schnatz 1999] verwendet werden. Stöße bewirken neben einer Verbreiterung auch eine Verschiebung der Frequenzen bedingt durch Phasenänderung. Dieser Effekt liegt in der Größenordnung von $< 10 \text{ kHz/Pa}$ [Bodermann 1998].

An dieser Stelle soll noch eine Bemerkung zu den in der Literatur veröffentlichten

Stoßquerschnitten gemacht werden. Es werden unterschiedliche Definitionen des Stoßquerschnittes verwendet, die den unmittelbaren Vergleich der veröffentlichten Daten oft erschweren. Der Ausdruck für die mittlere Geschwindigkeit der Moleküle \bar{v} , der von Clark und McCaffery [1978] zur Bestimmung des Stoßquerschnittes benutzt wurde, lautet: $\bar{v} = \sqrt{8kT/(\pi M)}$. Konsequenterweise wird der Stoßquerschnitt σ_T in $D^2\pi$ angegeben, wobei D der effektive Stoßradius ist. Paisner und Wallenstein [1974], sowie Kurzel u. a.

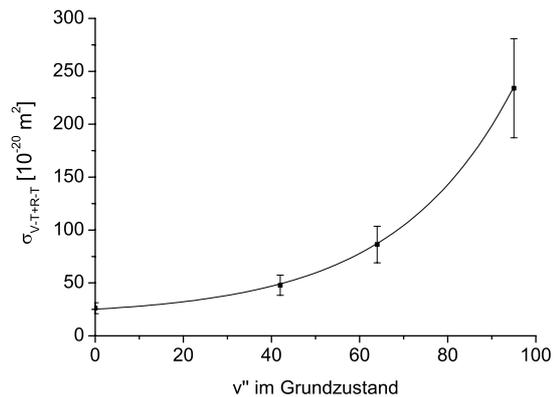


Abbildung 3.5.: Wirkungsquerschnitt $\sigma_{V-T+R-T}(X \rightarrow X)$ für den Grundzustand.

[1971] ermitteln den Stoßquerschnitt in einer anderen Darstellung aus der Ratenkonstante S durch den Ausdruck $S = \sigma_T \sqrt{\frac{8\pi kT}{M}}$. Dadurch ergibt sich für den Stoßquerschnitt $\sigma_T = D^2$. Die beiden Darstellungen unterscheiden sich also um einen Faktor π . Die Aussage in dem Artikel von Clark und McCaffery [1978], der Grundzustand besitze einen größeren Stoßquerschnitt σ_T als der angeregte B-Zustand, läßt sich auf unterschiedliche Definitionen zurückführen und stellt den von Kurzel u. a. [1971] ermittelten Wert nicht in Frage. Der Wert von Kurzel u. a. [1971] für den inelastischen Stoßquerschnitt von $54 \cdot 10^{-20} \cdot \pi \text{ m}^2$ für den B-Zustand ist größer als der Wert von $82 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ [Clark und McCaffery 1978] für den Grundzustand.

3.3.1.2. Einstein–A–Koeffizienten und Übergangsdipolmomente

Für zweiatomige Moleküle ist der Einstein–A–Koeffizient gegeben durch [Tellinghuisen 1978, Lamrini u. a. 1994]:

$$A(v'J', v''J'') = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{64\pi^4}{3hc^3} \nu^3 \frac{s_{J'J''}}{2J'+1} |\langle v''(J'') | \mu_e(R) | v'(J') \rangle|^2 \quad (3.4)$$

Dabei ist ν die Übergangsfrequenz und $s_{J'J''}$ der Hönl–London–Faktor für die Linienstärke des Rotationsüberganges. Für große Werte von J' , wie sie im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG–Laser für das I_2 B–X–System vorliegen, ist der Quotient für P wie R Übergänge $\frac{s_{J'J''}}{2J'+1} \simeq \frac{1}{2}$ [Herzberg 1950]. Der letzte Faktor in Gleichung (3.4) ist das Betragsquadrat des Dipoloperators zwischen oberer und unterer Radialwellenfunktion. Der hier eingeführte Operator ist das Integral des Dipoloperators über die elektronischen Koordinaten von Anfangs- und Endzustand beim Kernabstand R . Insgesamt kann der Term zerlegt werden in ein Produkt aus dem Quadrat des mittleren elektronischen Übergangsmoments und dem Franck–Condon–Faktor des beteiligten Übergangs:

$$|\langle v''(J'') | \mu_e(R) | v'(J') \rangle|^2 = \overline{|\mu_e|^2} |\langle v''(J'') | v'(J') \rangle|^2 \quad (3.5)$$

In der R–Zentroid–Näherung kann das mittlere Übergangsmoment durch $|\mu_e(\overline{R})|^2$ angegeben werden. Dabei ist \overline{R} der sogenannte R–Zentroid [Fraser 1954, Nicholls 1972]

$$\overline{R} = \frac{\langle v''(J'') | R | v'(J') \rangle}{\langle v''(J'') | v'(J') \rangle}. \quad (3.6)$$

Diese Näherung gilt streng für lineare Dipolmomentfunktionen der Form $(\mu_e(R) = a + bR)$.

Für komplexere nichtlineare Zusammenhänge zwischen dem R-Zentroiden und dem mittleren Übergangsmoment wird der Zähler in Gleichung (3.6) durch höhere Potenzen der Form $[\langle v''(J'')|R|v'(J') \rangle]^n$ ersetzt¹. Dadurch kann $|\mu_e(\bar{R})|^2$ im Jodmolekül durch Polynome niedriger Ordnung bzw. abschnittsweiser Definition dargestellt werden. Hierzu liegen für den Fall des Jodmoleküls zahlreiche Arbeiten vor, die für unterschiedliche Bereiche des R-Zentroids den Wert von $|\mu_e(\bar{R})|^2$ z.B. durch hoch präzise Messungen der Fluoreszenzintensitäten der einzelnen Übergänge [Tellinghuisen 1978, Koffend u. a. 1979, Tellinghuisen 1982, Kirillov 1983, Bhale u. a. 1985, Martinez u. a. 1989, Lamrini u. a. 1994] angeben. Für die vorliegende Arbeit wurden folgende elektronische Übergangsmomentefunktionen verwendet:

Für den Bereich von $2,65 < \bar{R} < 3,10 \text{ \AA}$ [Bhale u. a. 1985] ist

$$|\mu_e(\bar{R})|^2(D^2) = -500,358 + 377,125 \cdot \bar{R} - 38,483 \cdot \bar{R}^2 - 25,429 \cdot \bar{R}^3 + 4,983 \cdot \bar{R}^4, \quad (3.7)$$

für das Gebiet von $3,10 < \bar{R} < 3,30 \text{ \AA}$ [Martinez u. a. 1989]

$$|\mu_e(\bar{R})|^2(D^2) = 4,6214 - 0,994 \cdot \bar{R} \quad (3.8)$$

und für das Gebiet von $3,30 < \bar{R} < 4,60 \text{ \AA}$ [Koffend u. a. 1979]

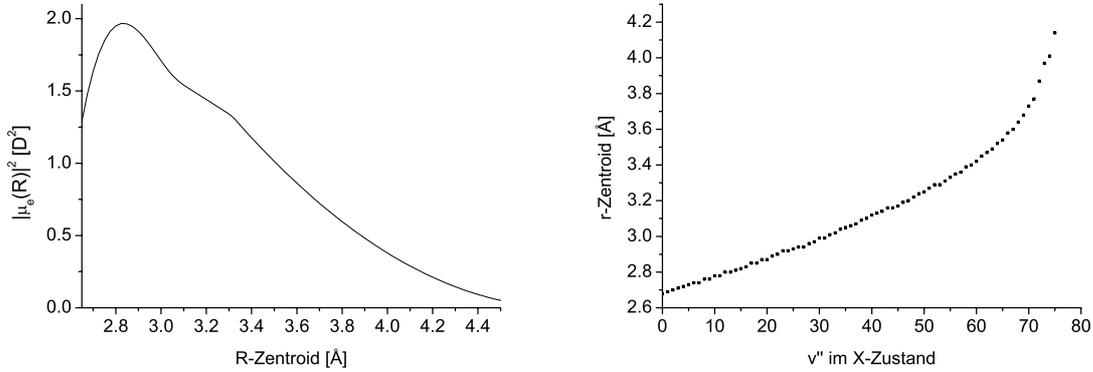
$$|\mu_e(\bar{R})|^2(D^2) = (3,74 - 0,781 \cdot \bar{R})^2. \quad (3.9)$$

Der resultierende Verlauf von $|\mu_e(\bar{R})|^2$ ist in Abb. 3.6(a) für R-Zentroiden von $2,65 \text{ \AA}$ bis $4,5 \text{ \AA}$ dargestellt. $|\mu_e(\bar{R})|^2$ erreicht bei einem R-Zentroiden von $2,85 \text{ \AA}$ einen maximalen Wert von $2 D^2$, wobei $1D$ (Debye) einem Wert in SI-Einheiten von $3,336 \cdot 10^{-30} \text{ Cm}$ entspricht. Die in dieser Arbeit verwendeten Funktionen für den Verlauf von $|\mu_e(\bar{R})|^2$ entsprechen den Empfehlungen der letzten Veröffentlichung auf diesem Gebiet von Martinez u. a. [1989]. In der Arbeit von Martinez wurden alle bisher veröffentlichten Fitfunktionen mit neueren Messungen verglichen, wobei die hier angegebenen Funktionen (Gl. (3.7)–(3.9)) die beste Übereinstimmung mit den Messungen in [Martinez u. a. 1989] ergeben.

¹In der R-Zentroid-Näherung gilt :

$$\frac{\langle v''(J'')|R^n|v'(J') \rangle}{\langle v''(J'')|v'(J') \rangle} = \left(\frac{\langle v''(J'')|R|v'(J') \rangle}{\langle v''(J'')|v'(J') \rangle} \right)^n$$

[Fraser 1954]



(a) Verlauf von $|\mu_e(\bar{R})|^2$ für den Bereich von $2.65 < \text{\AA} < 4.5$.

(b) Verlauf des R-Zentroiden für den Bereich $0 < v'' < 75$.

Abbildung 3.6.: $|\mu_e(\bar{R})|^2$ und R-Zentroid für das I_2 B-X-System.

Der Verlauf des R-Zentroiden kann z.B. mit dem Programm *FCFrkr* [Telle und Telle 1982] bestimmt werden. Hierzu werden die Dunham-Parameter des X- sowie B-Zustandes benötigt. Für den X-Zustand wurden die von Martin u. a. [1986] veröffentlichten Werte verwendet, die einen Gültigkeitsbereich bis $v'' = 108$ haben; die Daten für den B-Zustand wurden aus Gerstenkorn und Luc [1985] entnommen (Gültigkeit bis $v' = 43$). Der Verlauf des R-Zentroiden für den Bereich von $v'' = 0$ bis $v'' = 75$ ist in Abb. 3.6(b) dargestellt. Als oberes Niveau für die Rechnungen wurde $v' = 32$, $J' = 57$ angenommen. Die Darstellung über diesen Bereich des R-Zentroiden ist ausreichend, da oberhalb $v'' = 73$ die Franck-Condon-Faktoren gegen Null gehen (siehe Abb. 3.2) und somit oberhalb dieses Vibrationsniveaus kein Ramanlaserbetrieb mehr zu erwarten ist. Zur Berechnung des Einstein-A-Koeffizienten kann jetzt folgende vereinfachte Beziehung verwendet werden:

$$A(v'J', v''J'') = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{64\pi^4}{3hc^3} \nu^3 \frac{S_{J'J''}}{2J'+1} |\mu_e(\bar{R})|^2 |\langle v''(J'') | v'(J') \rangle|^2 \quad (3.10)$$

Der Verlauf des Einstein-A-Koeffizienten ist graphisch in Abb. 3.7 dargestellt. Hierbei ist insbesondere die Oszillation der Franck-Condon-Faktoren über v'' zu erkennen (Ver-

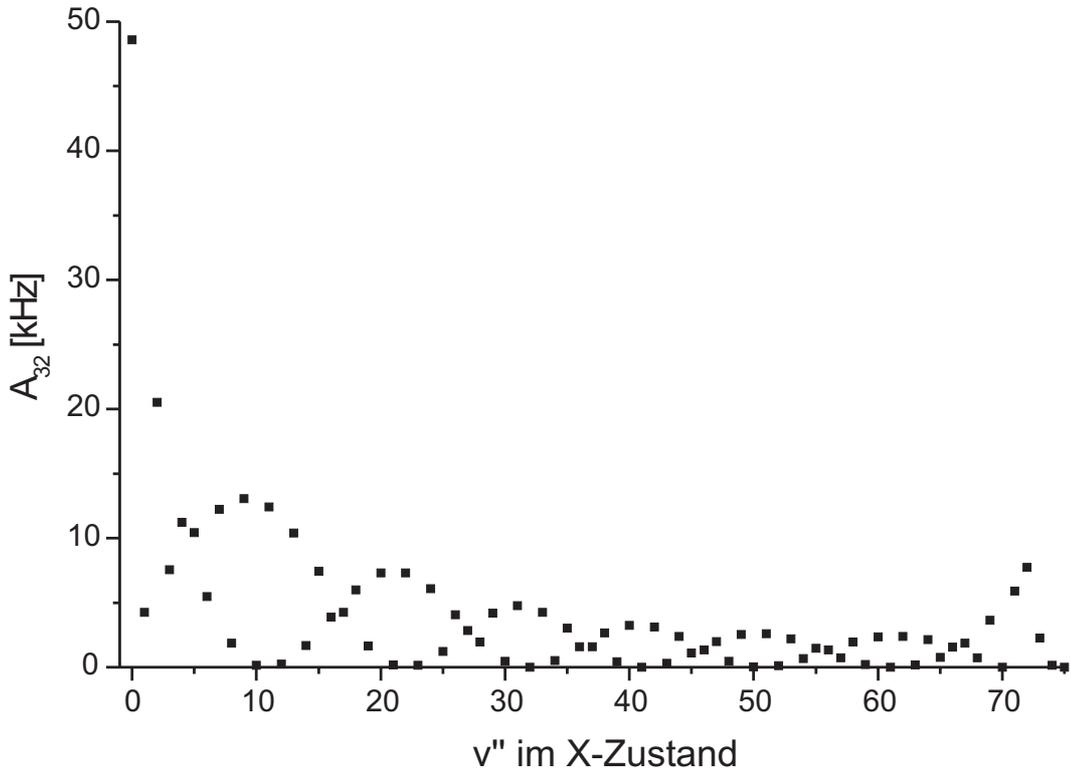


Abbildung 3.7.: Verlauf der Einstein–A–Koeffizienten für spontane Emission. Berechnete Werte für $v' = 32, J' = 57 \rightarrow J'' = 56$. Der Index am Einstein–A–Koeffizienten bezeichnet oberes ($|3\rangle$) bzw. unteres ($|2\rangle$) Laserniveau. Vergleiche hierzu auch den Verlauf der Franck–Condon–Faktoren in Abb. 3.2.

gleiche Darstellung der Franck–Condon–Faktoren in Abb. 3.2). Zur Kontrolle der obigen Rechnung kann man aus der Summe der Einstein–A–Koeffizienten die spontane Rate für strahlende Zerfälle (γ_{spon}) berechnen und mit Literaturwerten vergleichen. Die Rate ist gegeben durch

$$\gamma_{spon}(v', J') = \sum_{v'', J''} A(v' J', v'' J'') \quad .$$

Hierbei ergibt sich für $v' = 32, J' = 57$ ein Wert von $\gamma_{spon} = 594$ kHz für Zerfälle in P– und R–Zweig, wobei für P wie R Übergang gleiche R–Zentroiden wie auch Franck–Condon–Faktoren angenommen wurden. Vergleicht man dies mit dem Wert aus Vigúe u. a. [1981], der die direkt gemessene Rate von $v' = 32$ mit $\gamma_{spon} = 600$ kHz ± 150 kHz angibt, so ergibt sich hier eine sehr gute Übereinstimmung. Die Berechnung von Einstein–

A-Koeffizienten mit den aus der Literatur zusammengestellten Daten ergibt also sinnvolle Werte für die Berechnung von Übergangsraten zu den einzelnen Vibrationsniveaus. In Tabelle 3.3 sind alle relevanten Beiträge zu den Verbreiterungsmechanismen zusammengefaßt. Durch die in den vorangegangenen Abschnitten vorgestellten Daten, wird es möglich die Relaxationsraten aller am Prozess beteiligten Niveaus zu bestimmen. Dadurch können die experimentellen Ergebnisse zum Ramanlaserbetrieb in Kap. 6 mit den numerischen Berechnungen basierend auf Gl. (5.1) verglichen werden.

Relaxationsprozess	Symbol	Einheit	γ_3	γ_2 $v'' = 0 \dots 75$	γ_1 $v'' = 0$
spontane Rate	γ_{spont}	10^6 s^{-1}	0,594	–	–
Self Quenching	σ_{sq}	10^{-20} m^2	68	–	–
vibrationsändernde Stöße	$\sigma_{V-T+R-T}$	10^{-20} m^2	54,0	26...121	26

Tabelle 3.3.: Übersicht über die verwendeten Daten zur Bestimmung von Stoß- und Relaxationsraten.

3.3.2. Joddampfdruck

Die Dampfdruckkurve des Jodmoleküls wird durch folgende Gleichung beschrieben [Bartels 1960]:

$$\log(P_r) = \frac{-3512,83}{T} + 16,225 - 2,013 \log(T) + 2,125 \quad (3.11)$$

Dabei ist die Temperatur T in Kelvin anzugeben, der Dampfdruck p ergibt sich dann in Pascal. Der Zusammenhang ist graphisch in Abb. 3.8 dargestellt. In den späteren

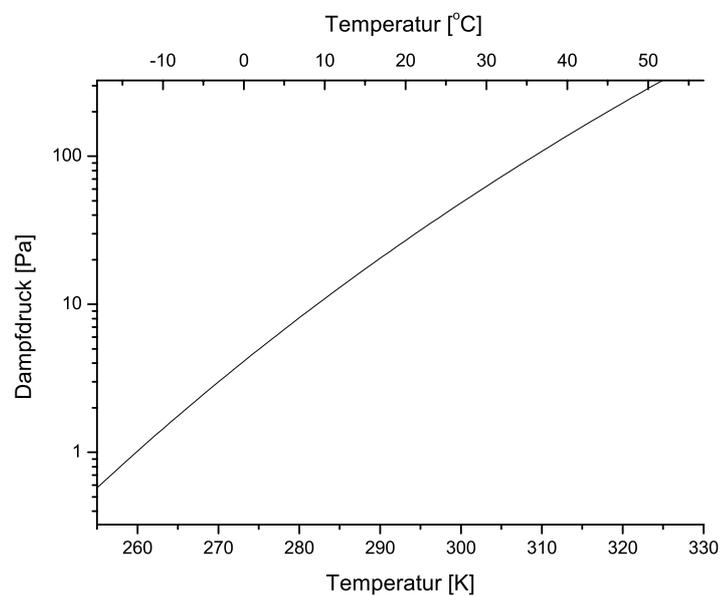


Abbildung 3.8.: Dampfdruckkurve des Jodmoleküls.

Experimenten zum Ramanlaserbetrieb wird das Jodmolekül im Bereich von 270 K bis 330 K in abgeschmolzenen Quarzglaszellen erzeugt.

4. Eigenschaften und Frequenzstabilisierung des Pumplasersystems

4.1. Aufbau des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers

Bei dem verwendeten Lasersystem handelt es sich um ein im Rahmen einer Dissertation erstelltes Lasersystem [Bode 1999], das in verbesserter technischer Ausstattung als kommerzielles Lasersystem erhältlich ist. Die einzelnen Komponenten des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers sollen im folgenden kurz vorgestellt werden (siehe Abb. 4.1). Das Nivauschema des Lasers kann z.B. aus [Kneubühl und Sigrist 1991] entnommen werden. Die zentrale Komponente des Systems ist ein monolithischer Nd:YAG-Ringlaser (die exakte Bezeichnung lautet: Monolithic Isolated Single-End-Pumped-Ringlaser kurz: Miser). Dieser Laser zeichnet sich durch eine hohe intrinsische Stabilität aus, da sich der Resonator durch die geschliffenen Endflächen ergibt, der Resonator also keine justierbaren Komponenten enthält. Als optische Pumpe werden zwei Laserdioden bei 808 nm (Siemens SFH487401, je 1W) in einem Polarisationsstrahlteiler überlagert und entlang der Resonatorachse des Misers in den Kristall modenselektiv eingekoppelt. Die Einkoppelfläche des Misers wird auch zur Auskopplung der Laserstrahlung bei 1064 nm verwendet (siehe auch Abb. 4.1). Die beiden anderen Endflächen des Resonators sind hochreflektierend für Pump- und erzeugte Laserstrahlung. Um Einrichtungsbetrieb des Lasers zu gewährleisten wird der Faraday-Effekt bzw. die nichtverschwindende Verdet Konstante des YAG-Kristalls ausgenutzt. Dazu ist der Kristall auf einem starken Permanentmagneten montiert. Durch den Faraday-Effekt im Kristall addieren bzw. subtrahieren sich die Polarisationsdrehungen in den beiden Umlaufrichtungen, so daß durch die polarisationsabhängigen Vergütungen der Resonatorendflächen unterschiedliche Resonatorverluste für die Umlaufrichtungen auftreten. Das Resonatordesign ist so ausgelegt, daß erst durch die Pumpstrahlung bei 808 nm der Resonator durch Ausbildung einer thermischen

Linse stabil wird. Das Nd:YAG-Ringlasersystem erreicht bei einer Pumpleistung von 2 Watt bei 808 nm eine Ausgangsleistung von ca. 900 mW bei 1064 nm (Grundwelle) im TEM₀₀-Mode.

Die emittierte Strahlung wird durch eine optische Diode (30 dB Unterdrückung), zwei Linsen (in Abb. 4.1 nicht eingezeichnet) und zwei Umlenkspiegel in einen linearen Resonator zur Frequenzverdopplung eingekoppelt.

Der Resonator bewirkt eine starke Überhöhung der Grundwelle, wodurch die Effizienz der Frequenzverdopplung, im Vergleich zu einer Frequenzverdopplung in einfachem Durchgang, um etwa 4 Größenordnungen erhöht werden kann. Der Resonator besteht aus einem 7,5 mm langen $MgO : LiNbO_3$ -Kristall, dessen Rückseite konvex poliert und hochreflektierend für 532 nm und 1064 nm vergütet ist. Die Vorderseite des Kristalls ist antireflexbeschichtet für beide Wellenlängen. Der konkave Einkoppelspiegel ist auf einem Piezotubus montiert und hat eine impedanzangepaßte Transmission für die Grundwelle, sowie eine Transmission von 90% für 532 nm (2.te Harmonische). Die Trennung der erzeugten 2.ten Harmonischen von der Grundwelle erfolgt an einem der Umlenkspiegel. Der Verdopplerkristall befindet sich in einem Ofen und wird über die Temperatur nicht kritisch phasenangepaßt. Die gemessene Phasenangepassungstemperatur beträgt 90,4°C, hängt jedoch stark von der Position des Platinsensors am Kristall ab. Die Temperatur wird über einen PID-Regler (PID-Regler, [Lutz und Wendt 1998]) auf eine Schwankungsbreite von ca. 10 mK stabilisiert. Um eine effiziente Frequenzkonversion zu garantieren, muß die Grundwelle im Resonator resonant umlaufen können. Hierzu muß die Länge des Resonators stabilisiert werden. Der Resonator wird dazu nach dem Pound-Drever-Verfahren [Hamilton 1989] stabilisiert. Details hierzu kann man auch im Abschnitt 4.5 finden. Die zur Erzeugung des Fehlersignals benötigte Phasenmodulation der Grundwelle wird durch den Verdopplerkristall selbst erzeugt, da er einen ausreichend großen elektrooptischen Koeffizienten aufweist. Dazu sind am Kristall zwei dünne Kupferelektroden aufgebracht. Die Modulationsfrequenz von bis zu 30 MHz wird von einem stabilen Frequenzgenerator erzeugt. Die erreichbare Leistung in den Seitenbändern beträgt bei diesem Modulationsverfahren etwa 10^{-6} der Leistung des Trägers. Zur Stabilisierung des Verdopplerresonators wird das Schwebungssignal zwischen Träger und Seitenband hinter dem Resonator mit einer schnellen Photodiode detektiert und mit dem Referenzsignal in einem Mischer phasenempfindlich verglichen. Zum Phasenabgleich ist zwischen Referenzoszillator und Mischer ein Phasenschieber eingebaut. Das Ausgangssignal des Mixers ist proportional zur Verstimmung der Trägerstrahlung von

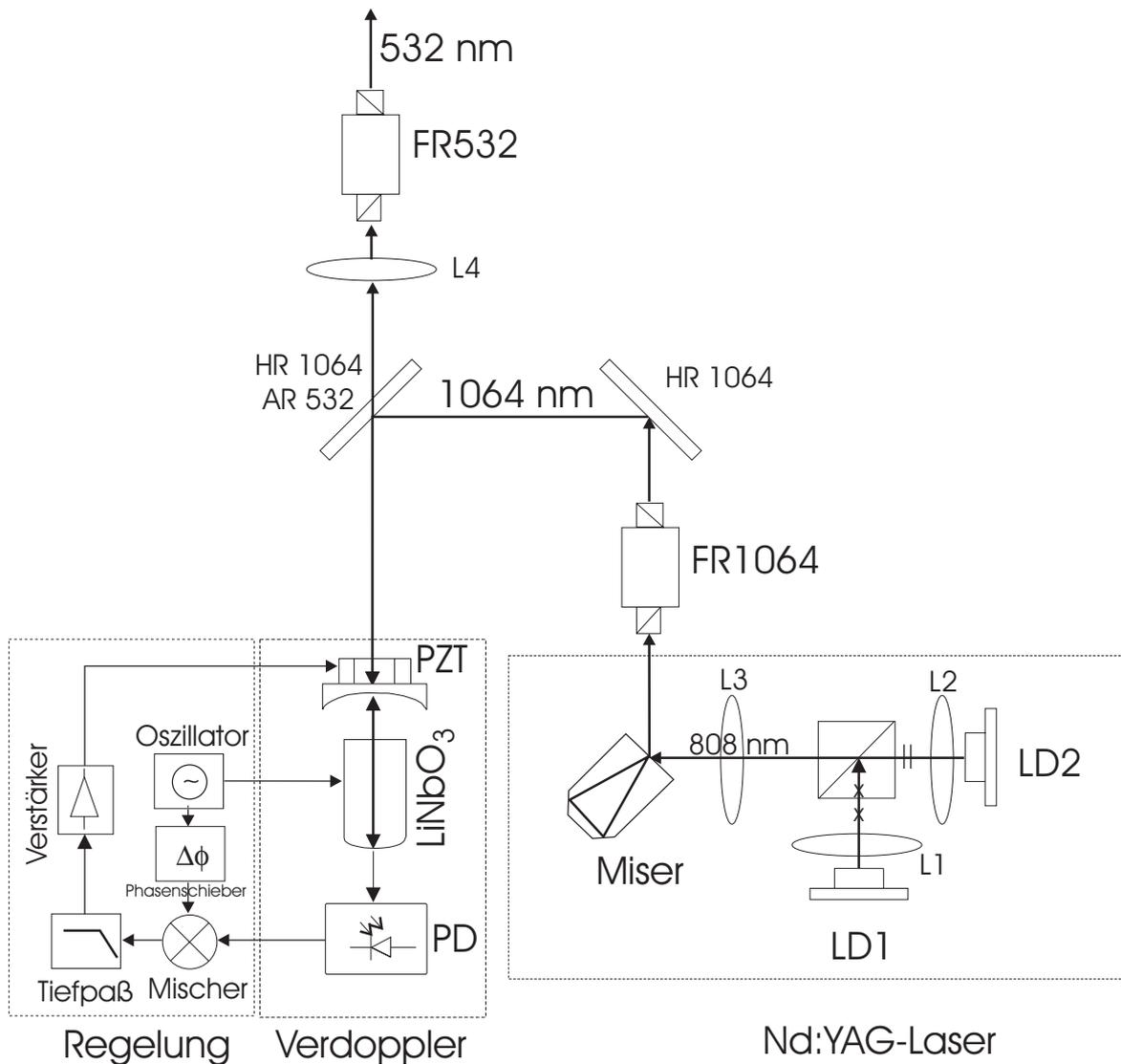


Abbildung 4.1.: Vereinfachte Darstellung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasersystems; LD1,LD2: Diodenlaser bei 808 nm mit 1 W Leistung, Miser: monolithischer Nd:YAG-Ringlaser, L1...L4: Kollimations- bzw. Fokussieroptiken, FR1064, FR532: optische Dioden für 1064 nm und 532 nm mit 30 dB Unterdrückung, PZT: konkaver Resonatorspiegel montiert auf Piezotubus, $LiNbO_3$ -Verdopplerkristall mit konvexer Endfläche und HR Vergütung für 532 nm und 1064 nm, PD: Photodiode, weitere Erläuterungen im Text.

der Resonanz und kann so über einen Tiefpaßfilter zur Längenstabilisierung des Resonators verwendet werden. Das Regelsignal wird dazu über einen Verstärker auf den

Piezotubus gegeben. Durch die resonante Verdopplung erhält man maximal 500 mW frequenzverdoppelte Strahlung bei 532 nm. Die aus dem Frequenzverdoppler ausgekoppelte Strahlung ist aufgrund der Geometrie des Resonators divergent und muß mit einer Linse kollimiert werden. Durch eine optische Diode (FR532 mit 30 dB Unterdrückung) wird das Lasersystem vor optischer Rückkopplung aus dem Experiment isoliert. Die Erzeugung der Phasenmodulation direkt durch den Verdopplerkristall ist zwar kostengünstig, erwies sich aber als problematisch. So muß die Oszillatorfrequenz und Leistung individuell an den Kristall angepaßt werden, um eine ausreichende Phasenmodulation zu erhalten. Ferner variierte die Modulationsfrequenz während des Experimentierzeitraums zwischen 18 MHz und 29 MHz, wobei häufiger sprunghafte Änderungen der Modulationsfrequenzen zu beobachten waren (insbesondere nach Abschaltung des Lasersystems und erneuter Inbetriebnahme z.B. nach einem Transport). Insgesamt führt dies zu einer zeitintensiven Optimierung aller Regelparameter, um einen stabilen Betrieb des Lasersystems zu gewährleisten. Im kommerziell erhältlichen System wird deshalb zur Erzeugung der Phasenmodulation ein resonanter elektrooptischer Modulator eingesetzt, was zu einer gesteigerten Zuverlässigkeit des Systems führt.

4.2. Aktive Frequenzabstimmung des Systems

Die Frequenzabstimmung des Systems kann auf zwei Arten erfolgen. Die einfachste Art der Frequenzabstimmung kann durch Änderung der Temperatur des Miser-Kristalls erfolgen, der dazu auf einem Peltierelement montiert ist. Die Temperatur des Miser-Kristalls wird über einen Temperaturregler gesteuert, der eine Stabilität der Temperatur im mK Bereich erreicht. Die Temperatur kann auf einer Anzeige auf 0,1 K genau abgelesen werden. Zur Feinabstimmung der Temperatur befindet sich am Temperaturregler ein Modulationseingang mit einer Empfindlichkeit von 1 K/V. Mit Hilfe der Temperatur kann die Emissionsfrequenz des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers in einem Bereich von ca. 120 GHz durchgestimmt werden, was im konkreten Fall einer Temperatur von 281 bis 311 K entspricht. Der Temperaturabstimmkoeffizient beträgt 7 GHz/K. Etwa alle 20 GHz erfolgt ein Modensprung des Lasers, da jeweils eine benachbarte Mode eine höhere Verstärkung erfährt (siehe Abb. 4.2). Die oben angeführten Werte sind spezifisch für diesen Miser-Kristall und können für andere Miser-Kristalle deutlich von den hier bestimmten Werten abweichen. Aufgrund der Wärmekapazität des Miser-Kristalls

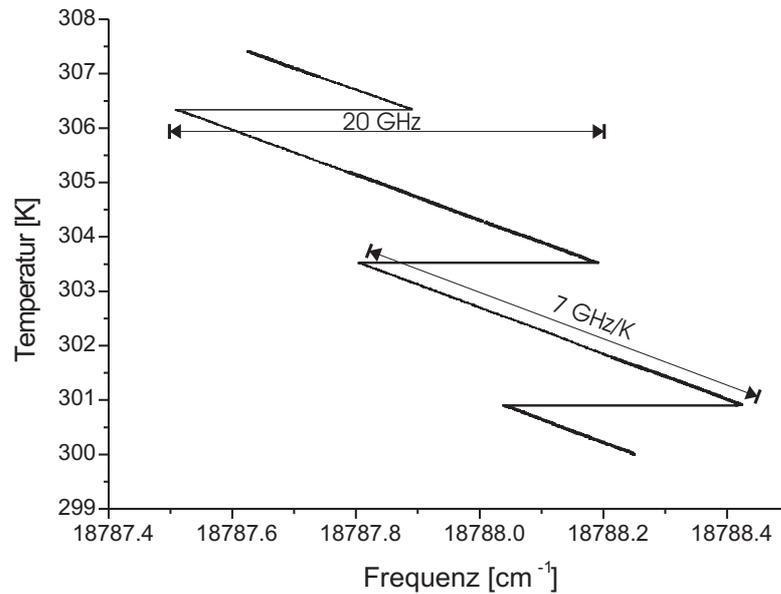


Abbildung 4.2.: Durchstimmverhalten des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers bei Veränderung der Temperatur des Miser-Kristalls. Modensprünge treten alle ≈ 20 GHz auf, der Temperaturabstimmkoeffizient liegt bei 7 GHz/K.

kann diese Art der Frequenzabstimmung nur langsam erfolgen. Bei Abstimmgeschwindigkeiten bis etwa 500 MHz/min kann das System linear folgen. Frequenzmodulationen des Systems durch periodische Variation der Temperatur des Miser-Kristalls sind nicht möglich.

Zur schnellen Frequenzabstimmung des Lasers ist auf dem Miser-Kristall eine dünne Piezokeramik aufgeklebt. Beim Anlegen einer Spannung dehnt sich diese radial aus und verursacht mechanische Spannungen im Miser-Kristall, welche die optische Weglänge (Spannungsdoppelbrechung) im Resonator verändert. Experimentell ergibt sich ein Abstimmkoeffizient von ca. 1 MHz/V, wodurch sich im zulässigen Spannungsbereich des Piezos von 0 – 100 V ein Abstimmbereich von 100 MHz ergibt. Mit Hilfe des Piezos lassen sich Modulationsfrequenzen bis etwa 250 Hz realisieren. Bei höheren Frequenzen und großen Frequenzhuben kann die Regelung der Frequenzverdopplung (aufgrund des Tiefpaßfilters in der Regelelektronik des Verdopplers und der geringen Modulationsbandbreite des Piezos im Verdoppler) der Modulationsfrequenz durch den Piezokristall am Miser-Kristall nicht folgen, und es kommt zu starken Amplitudenschwankungen der frequenzverdoppelten Strahlung.

4.3. Linienbreite und Frequenzstabilität des freilaufenden Lasers

Die Linienbreite des freilaufenden frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers wurde durch Überlagerung der Laserstrahlung zweier identischer Systeme ermittelt¹. Dazu wurde etwa 1 mW der Ausgangsstrahlung beider Systeme auf einer Avalanche Photodiode (APD in Abb. 4.3 mit 1 GHz Bandbreite) überlagert und von einem Spektrum-Analysator fouriertransformiert (siehe Abb. 4.3(a)). Man erhält ein frequenz aufgelöstes Leistungsspektrum (Beatspektrum). Ein Beispielspektrum ist in Abb. 4.3(b) dargestellt. Die Zeit für die Aufnahme betrug 100 ms („Sweptime“) bei einer Detektionsbandbreite des Spektrumanalysators von 10 kHz. Beide Laser zeigen in diesem Beispiel einen Frequenzun-

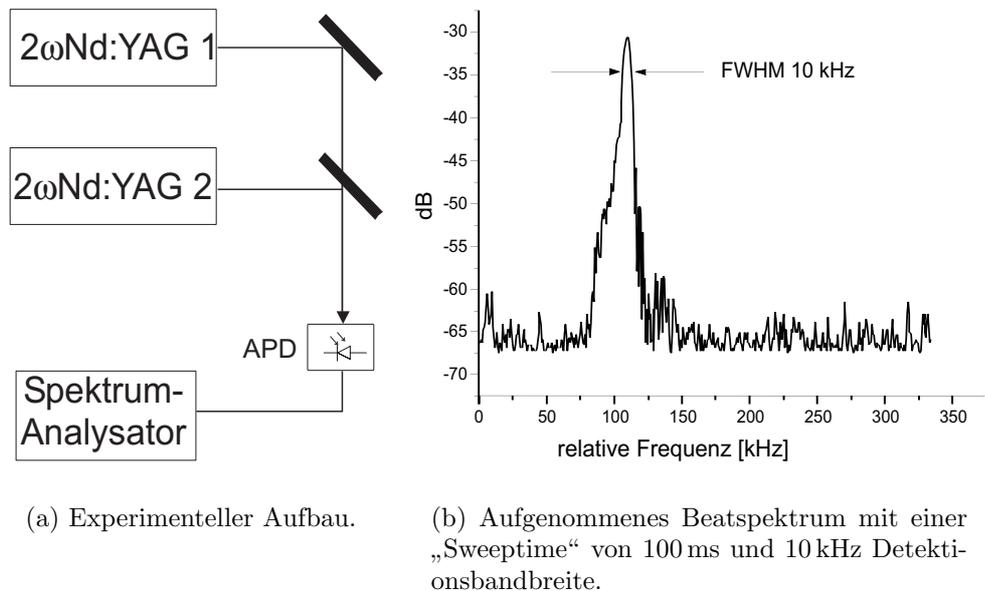


Abbildung 4.3.: Spektrale Eigenschaften des freilaufenden Nd:YAG-Lasers.

terschied von 110 kHz. Die 3 dB Halbwertsbreite des aufgenommenen Spektrums beträgt 10 kHz, entspricht also genau der Detektionsbandbreite des Spektrumanalysators. Deutlich ist in dem Spektrum eine Frequenzdrift des aufgenommenen Signals zu höheren Frequenzen zu erkennen. Messungen mit geringerer Filterbandbreite konnten aufgrund der längeren Meßzeit und der zu großen Frequenzdrift der freilaufenden Laser während

¹Der zweite frequenzverdoppelte Nd:YAG-Laser stand nur für kurze Zeit dem Institut zur Verfügung.

der Messung nicht durchgeführt werden. Legt man für beide Laser ein lorentzförmiges Frequenzspektrum zugrunde, so ergibt sich als oberer Wert für die Linienbreite des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers ein Wert von 5 kHz bei einer Meßzeit von 100 ms. Um Aussagen über die Frequenzdrift der Lasersysteme zu gewinnen, wurde neben der Messung der Linienbreite auch die Beatfrequenz mit einem Mikrowellenzähler über einen Zeitraum von mehreren Stunden gemessen. Bei den Messungen ergab sich eine Frequenzdrift der Systeme von ca. 150 MHz in 2 Stunden. Nimmt man an, daß die Frequenzen der beiden Lasersysteme während der Messung nicht zufällig in die gleiche Richtung aber mit unterschiedlicher Frequenzexkursion gedriftet sind², ergibt sich eine Frequenzdrift des Lasersystems von weniger als 100 MHz pro Stunde. Für den Aufbau einer Frequenzstabilisierung sollte daher der Frequenzhub des Piezokristalls auf dem Miser-Kristall als Frequenzstellelement ausreichend sein. Unter Verwendung des Piezokristalls als einzigem Frequenzstellelement sollte sich der frequenzverdoppelte Nd:YAG-Laser über mehrere Stunden auf eine geeignete Referenz stabilieren lassen. Eine Stabilisierung der Frequenz des Lasers ist für die späteren Ramanlaser-Experimente in Kap. 6 von großer Bedeutung. Die verwendeten Methoden der Stabilisierung werden in Abs. 4.5.2 vorgestellt.

4.4. Absorptionsspektroskopie am Jodmolekül

Um einen Überblick über das Feinstrukturspektrum des Jodmolekül im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers zu gewinnen, wurden doppler-verbreitere Spektren aufgenommen. Dazu wurden einige mW Laserstrahlung durch eine Zelle geschickt und die Intensität hinter der Zelle aufgezeichnet. Um quantitative Aussagen über die Absorption machen zu können, wurde die Laserleistung simultan mit aufgezeichnet. Fluktuationen der Laserleistung (insbesondere in der Umgebung von Modensprüngen) werden somit eliminiert und die Interpretation der Spektren vereinfacht. Zur Bestimmung der Absolutfrequenz werden die Zählergebnisse eines Wavemeters [Ohlenbusch 1987] verwendet. Das Frequenzintervall der gezeigten Spektren in Abb. 4.4 und Abb. 4.5 umfaßt einen Bereich von 4 cm^{-1} (120 GHz). Die Frequenz wurde durch Anlegen einer Spannungsrampe an den Modulationseingang des Temperaturreglers des Miser-Kristalls durchgestimmt. Da der modensprungfreie Bereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers nur 20 GHz beträgt, mußte das Spektrum aus mehreren sich überlappenden Ein-

²Die Richtigkeit dieser Annahme wird durch Abb. 4.12(b) bestärkt. Die wesentliche Frequenzdrift der Lasersysteme wird durch periodische Schwankungen der Temperaturregelung hervorgerufen.

4. Eigenschaften und Frequenzstabilisierung des Pumplasersystems

zelspektren zusammengesetzt werden, was erst durch die mitgeschriebene Absolutfrequenz möglich wird. In Abb. 4.4 ist das Spektrum des natürlichen $^{127}\text{I}_2$ -Moleküls dar-

Linie	Übergang	FCF $\cdot 10^3$	[cm^{-1}]
1104	R(57) (32-0)	31,4	18.786,6665
1106	P(119) (35-0)	28,5	18.787,1282
1105	P(54) (32-0)	31,4	18.787,7672
1107	R(86) (33-0)	30,6	18.787,2809
1108	R(106) (34-0)	29,6	18.787,3395
1109	P(83) (33-0)	30,6	18.787,8025
1110	R(56) (32-0)	31,4	18.788,3355
1111	P(53) (32-0)	31,4	18.788,4425
1112	P(142) (37-0)	25,9	18.788,6086
1113	R(121) (35-0)	28,5	18.789,2758
1114	R(85) (33-0)	30,6	18.789,9073
1115	R(55) (32-0)	31,4	18.789,9840
1116	P(52) (32-0)	31,4	18.790,0875

Tabelle 4.1.: Absorptionslinien im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers in $^{127}\text{I}_2$. Die Linienzuordnung entspricht der Zuordnung in [Gerstenkorn u. a. 1991]; die Frequenzen wurden mit dem Programm *Iodinespec* [IodineSpec 2000] gerechnet. Es wurden nur Übergänge mit einem Franck–Condon–Faktor von größer $25 \cdot 10^{-3}$ berücksichtigt.

gestellt. Die Zuordnung der Linien erfolgte mit Hilfe des Jodatlasses [Gerstenkorn u. a. 1978] bzw. mit dem Programm *Iodinespec* [IodineSpec 2000]. Die starken Jodübergänge im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers gehen von $v'' = 0$ nach $v' = 32 - 37$, wobei die Übergänge nach $v' = 32$ in diesem experimentellen Aufbau eine Absorption von 100% erreichen. Die starken Übergänge im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers sind in Tabelle 4.1 mit Liniennummer laut Jodatlas, Franck–Condon–Faktor und Übergangsfrequenz zusammengefaßt. Desweiteren stand eine Zelle mit einem Gemisch aus ^{127}I und dem radioaktivem ^{129}I , wie es als Abfall in der Aufarbeitung radioaktiver Abfälle anfällt, zur Verfügung. Dadurch kommt es zur Bildung von $^{129}\text{I}_2$, $^{127}\text{I}^{129}\text{I}$ und $^{127}\text{I}_2$ in der Zelle. Durch die Bildung mehrerer Isotopomeren in der Zelle ist das Absorptionsspektrum bedeutend dichter. Die Übergangsfrequenzen wurden mit den Daten von [Gerstenkorn u. a. 1991] berechnet und sind in Tabelle 4.2 zusammengefaßt. Alle in Tab. 4.1 und 4.2 aufgelisteten Übergänge sind als Pumpübergänge

für den Betrieb von Ramanlasern geeignet. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Kap. 6 zu finden.

$^{129}\text{I}_2$			$^{127}\text{I}^{129}\text{I}$		
Übergang	FCF $\cdot 10^3$	$[\text{cm}^{-1}]$	Übergang	FCF $\cdot 10^3$	$[\text{cm}^{-1}]$
R(143) (37-0)	26,1	18.787,21	R(52) (32-0)	31,4	18.787,21
P(116) (35-0)	28,7	18.787,66	P(49) (32-0)	31,4	18.787,28
R(102) (34-0)	29,8	18.788,00	R(133) (36-0)	27,4	18.787,45
R(46) (32-0)	31,4	18.788,13	R(121) (35-0)	28,6	18.787,72
P(43) (32-0)	31,4	18.788,17	R(104) (34-0)	29,7	18.787,82
R(80) (33-0)	29,7	18.788,64	R(83) (33-0)	30,7	18.788,21
P(99) (34-0)	28,9	18.788,93	P(80) (33-0)	30,7	18.788,67
P(77) (33-0)	29,7	18.789,03	R(51) (32-0)	31,4	18.788,72
P(129) (35-0)	28,7	18.789,42	P(48) (32-0)	31,4	18.788,79
R(45) (32-0)	30,3	18.789,45	P(101) (34-0)	29,7	18.788,84
P(42) (32-0)	30,3	18.789,49	P(117) (35-0)	28,6	18.789,42
R(118) (32-0)	30,3	18.789,82	P(141)(37-0)	26,0	18.789,75

Tabelle 4.2.: Absorptionslinien im Durchstimbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers in $^{129}\text{I}_2$ und $^{127}\text{I}^{129}\text{I}$; die Frequenzen wurden mit den Daten aus [Gerstenkorn u. a. 1991] gerechnet. Es wurden nur Übergänge mit einem Franck-Condon-Faktor von größer $25 \cdot 10^{-3}$ berücksichtigt.

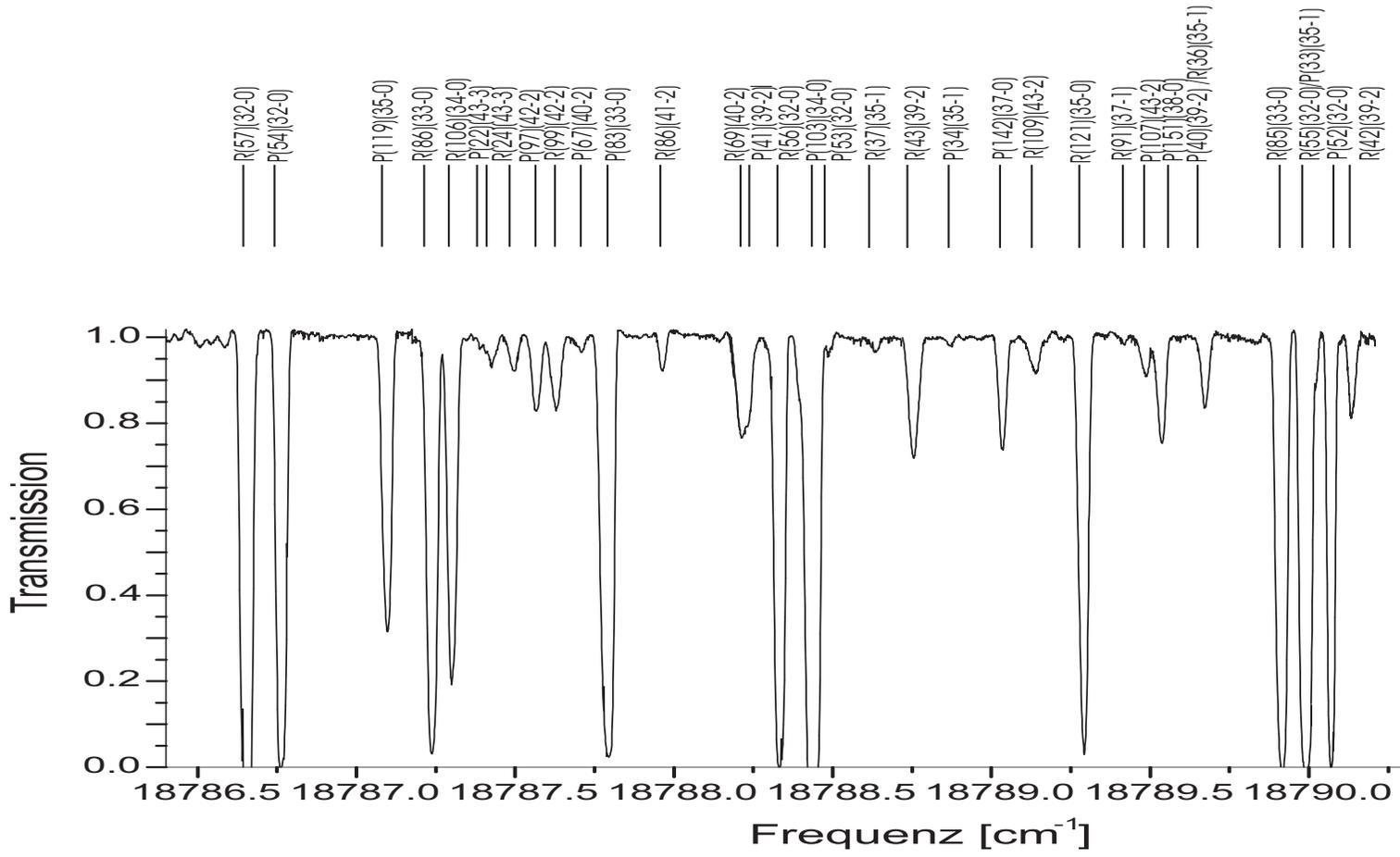


Abbildung 4.4.: Normiertes Absorptionsspektrum des $^{127}\text{I}_2$ -Moleküls im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers. Die Zelllänge beträgt 15 cm, die Seitenarmtemperatur 300 K.

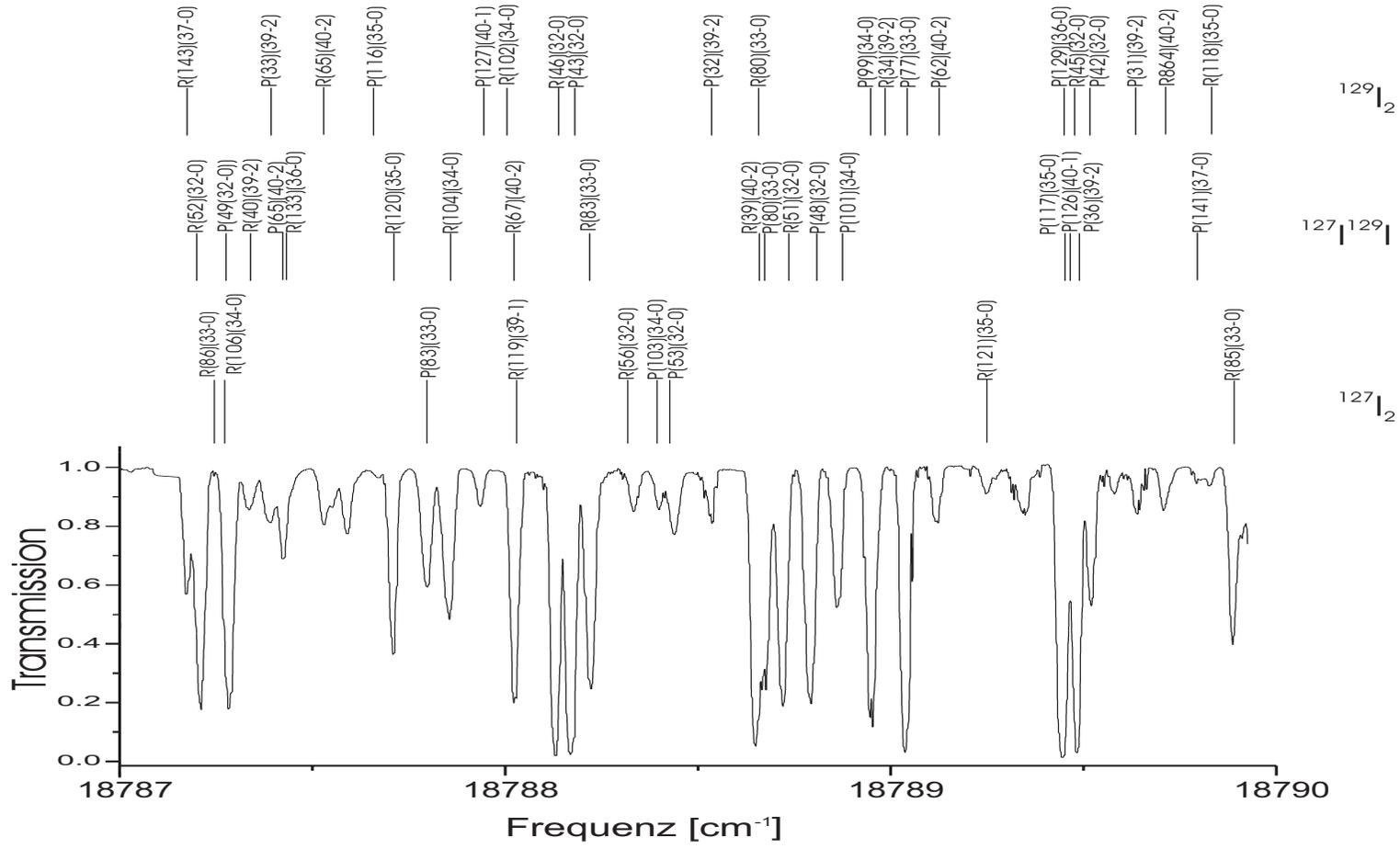


Abbildung 4.5.: Normiertes Absorptionsspektrum des ¹²⁹I₂- bzw. ¹²⁷I¹²⁹I-Moleküls im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers. Die Zelllänge beträgt 50 cm, die Seitenarmtemperatur 300 K.

4.5. Frequenzstabilisierung des Pumplasers

Obwohl der frequenzverdoppelte Nd:YAG-Laser eine sehr geringe Frequenzdrift und geringe Linienbreite zeigt, ist es notwendig die Frequenzdrift des Lasers für die späteren Experimente an Ramanlasersystemen zu kompensieren. Hierbei bieten sich mehrere technische Möglichkeiten zur Frequenzstabilisierung an: Die Stabilisierung auf optische Resonatoren hoher Stabilität, z.B. mittels des Pound–Drever–Verfahrens (ein guter Überblick wird z.B. in [Hamilton 1989] gegeben), oder die Stabilisierung des Lasers auf atomare oder molekulare Resonanzen.

Für die hier durchgeführten Untersuchungen an Ramanlasern ist die direkte (und festfrequente) Stabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers auf Hyperfeinstrukturkomponenten molekularen Jods naheliegend und technisch einfacher zu realisieren, da die Ramanlaser unmittelbar auf den Absorptionsübergängen des Jodmoleküls betrieben werden. Im folgenden Abschnitt wird die Stabilisierung des Systems dargestellt. Dabei wird zunächst auf den Aufbau zur antikollinearen Sättigungsspektroskopie eingegangen, die Erzeugung des Regelsignals zur Frequenzstabilisierung mittels Frequenzmodulationsspektroskopie erläutert, die Funktionsweise der Stabilisierung beschrieben und dann die Messungen zur erreichten Frequenzstabilität vorgestellt und diskutiert.

4.5.1. Dopplerfreie Sättigungsspektroskopie am Jodmolekül

Die Hyperfeinstrukturkomponenten eines Rotationsvibrationsübergangs des Jodmoleküls sind bei Zimmertemperatur doppler-verbreitert. Sie überlappen stark und können somit in Absorptionsspektroskopie nicht aufgelöst werden. Zur Spektroskopie und späteren Stabilisierung auf die Hyperfeinübergänge muß daher eine dopplerfreie Spektroskopiemethode angewandt werden. Das Prinzip der Sättigungsspektroskopie ist in der Literatur hinreichend beschrieben [Demtröder 1996]. Deshalb sollen hier nur kurz die Grundlagen erläutert werden, soweit sie für das weitere Verständnis notwendig sind. Sättigungsspektroskopie beruht auf der selektiven Sättigung inhomogen verbreiteter Übergänge z.B. in Molekülen. In Gaszellen wird die Verbreiterung der Übergänge insbesondere durch Dopplerverbreiterung eines Maxwell–Boltzmann verteilten thermischen Ensembles hervorgerufen. Einstrahlen eines Lasers (L_{pump} : Pumplaser) in z -Richtung mit der Frequenz ν_{pump} in ein thermisches Ensemble bewirkt, daß Molekülen mit der

Geschwindigkeit v_z der Laserstrahl um die Frequenz $\omega'_{\text{pump}} = \omega_{\text{pump}} \left(1 + \frac{v_z}{c} \right)$ verschoben erscheint. Stimmt man den Laser über die inhomogene Resonanz ab, so ist immer nur eine Geschwindigkeitsklasse der Moleküle mit der eingestrahlten Laserstrahlung resonant. Der eingestrahlte Pumplaser sei so stark, daß der Übergang gesättigt wird (siehe auch Abschnitt 5.5 auf Seite 70). Strahlt man nun einen zweiten Laser (L_{probe} : Probelaser) kollinear in das Medium ein und stimmt die Frequenz ν_{probe} über die gleiche Resonanz, dann tritt für den Fall, daß L_{probe} mit der Geschwindigkeitsklasse wechselwirkt, die L_{pump} bereits gesättigt hat, im Absorptionssignal verminderte Absorption des Probelasers auf, der sogenannte Lamb–Dip. Die Linienbreite des Lamb–Dips ist nur durch die homogene Linienbreite gegeben. Strahlt man den Probelaser antikollinear zum Pumplaser ein, so ist die Bedingung für gleichzeitige Resonanz:

$$\omega'_{\text{pump}} = \omega_{\text{pump}} \left(1 + \frac{v_z}{c} \right) = \omega_{\text{pump}} \left(1 - \frac{v_z}{c} \right) = \omega'_{\text{probe}}$$

Verwendet man für beide Laser die gleichen Frequenzen (der Probelaser als Teilstrahl des Pumplasers), so kann diese Bedingung nur für $v_z = 0$ erfüllt werden. Der Lamb–Dip erscheint dann bei der unverschobenen Frequenz $\omega_0 = \omega(v_z = 0)$.

In Abb. 4.6 ist schematisch der Aufbau zur antikollinearen Sättigungsspektroskopie dargestellt. Über eine Strahlteilerplatte wird ein Teil der Strahlung des frequenzverdoppelten Nd:YAG–Lasers ausgekoppelt und über einen Polarisationsstrahlteilerwürfel (PST1) in zwei Teilstrahlen aufgeteilt. Der transmittierte Strahl dient als Probestrahl, der am Polarisationsstrahlteiler reflektierte Strahl als Pumpstrahl. Das Teilungsverhältnis der beiden Strahlen kann über eine $\lambda/2$ –Platte eingestellt werden. Der Probestrahl durchläuft eine Jodzelle der Länge $l = 10$ cm mit temperaturstabilisiertem Seitenarm zum Einstellen des Joddampfdrucks und wird nach Durchlaufen eines weiteren Polarisationsstrahlteilerwürfels (PST2) auf einer breitbandigen Photodiode detektiert. Der Pumpstrahl wird durch einen akustooptischen Modulator geschickt (AOM), der einen Frequenzversatz pro Beugungsordnung der Strahlung von 80 MHz erzeugt. Die erste Beugungsordnung des AOM (ca. 50% Effizienz) wird über einen Spiegel und einen Polarisationsstrahlteilerwürfel (PST2) antikollinear mit dem Probestrahl zur Deckung gebracht. Wird wie in Abb. 4.6 der AOM nicht verwendet und stattdessen der Pumpstrahl direkt antikollinear durch die Jodzelle geschickt, so entsteht ein Sättigungsspektrum wie Abb. 4.7(b) gezeigt. In Abb. 4.7(b) wurde ein mechanischer Chopper zur Detektion des Sättigungssignals verwendet. Durch die ungenügende optische Isolation von Pump– und

4. Eigenschaften und Frequenzstabilisierung des Pumplasersystems

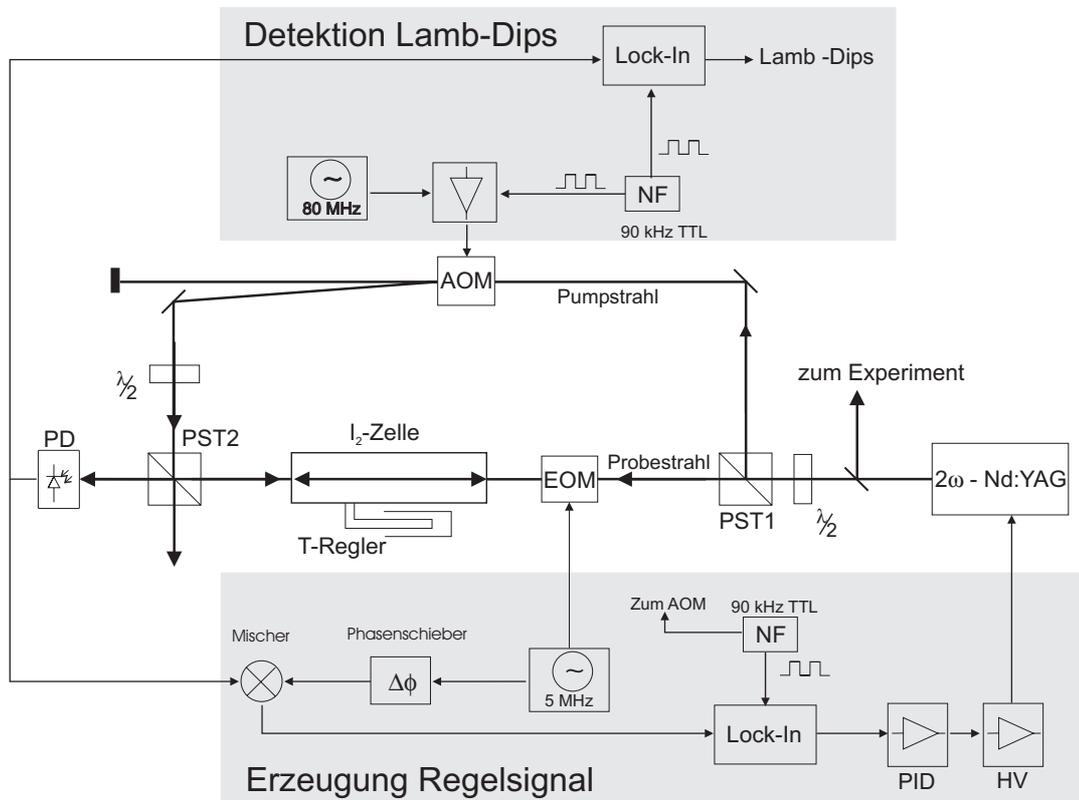


Abbildung 4.6.: Aufbau zur antikollinearen Sättigungsspektroskopie und Frequenzstabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers. Die obere Hälfte der Abbildung stellt die Detektion der Lamb-Dips dar, der untere Teil der Abbildung zeigt die Erzeugung der Frequenzmodulation, die Detektion und Verarbeitung des Regelsignals.

Probestrahl als Folge der Antikollinearität der Strahlen im Aufbau entsteht ein instabiler kohärenter Untergrund, der das Signal-zu-Rauschverhältnis verschlechtert. Ein Teil der Pumpstrahlung kann durch reflektierende Flächen und die nicht vollständig polarisierende Wirkung der Polarisationsstrahlteilerwürfel (1 : 1000 laut Hersteller bei 550 nm) auf den Detektor gelangen, wo es zu Interferenz mit dem Probestrahl kommt. Die Amplitude der Störung wird von der Amplitude und Phase der Pumpstrahlung bestimmt. Das entstehende Hintergrundsignal hängt insbesondere auch von Abstand der Komponenten im Aufbau und von Lufturbulenzen ab und führt zu Signalamplituden, die die gleiche Intensität, wie die zu detektierenden Sättigungssignale haben.

Bei Verwendung des AOM (wie in Abb. 4.6) entsteht dagegen ein untergrundfreies Sättigungsspektrum (4.7(c)). Die Frequenzverschiebung der Pumpstrahlung durch Verwendung des AOMs von $\Delta\nu_{\text{AOM}} = 80 \text{ MHz}$ ($\Delta\omega_{\text{AOM}} = 2 \cdot \pi \cdot \Delta\nu_{\text{AOM}}$) bewirkt jetzt, dass die Interferenz von Pump- und Probestrahlung als hochfrequentes Schwebungssignal auftritt, das sich auf einem geeigneten Detektor durch Wahl der Bandbreite zu Null mittelt, oder bei frequenzselektiver Detektion durch einen Mischer herausfällt.

Allerdings haben im Bezugssystem des Moleküls mit der Geschwindigkeit v_z Pump- und Probestrahlung jetzt folgende Frequenzen:

$$\begin{aligned}\omega_{\text{pump}} &= (\omega + \Delta\omega_{\text{AOM}})\left(1 + \frac{v_z}{c}\right) \\ \omega_{\text{probe}} &= \omega\left(1 - \frac{v_z}{c}\right)\end{aligned}$$

Für Moleküle mit der Geschwindigkeit $v_z = \frac{\Delta\omega_{\text{AOM}}}{\Delta\omega_{\text{AOM}} + 2\omega}c$ sind ω_{pump} und ω_{probe} gleich. Der Lamb-Dip liegt dann allerdings nicht bei der Frequenz ω_0 , sondern ist um $\omega = \omega_0 - \frac{\Delta\omega_{\text{AOM}}}{2}$ verschoben, hier also um 40 MHz. Diese Frequenzverschiebung ist für die späteren Experimente an den Ramanlasersystemen nicht von Bedeutung, da die Dopplerbreite der einzelnen Übergänge viel größer ist, als der durch den AOM verursachte Frequenzversatz. Die Alternative zur Vermeidung von Interferenzen auf dem Detektor stellt die nicht exakt antikollineare Anordnung von Pump- und Probestrahlung (unter einem Winkel α)

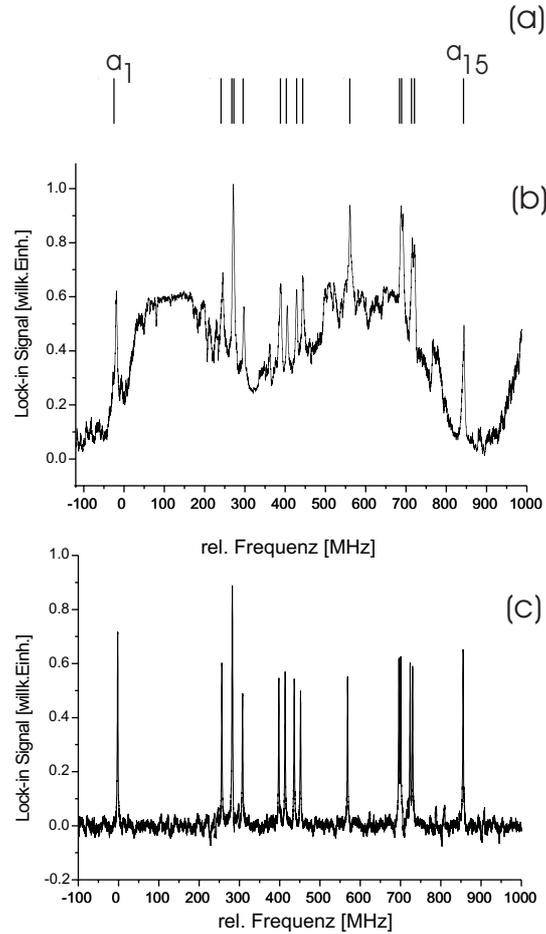


Abbildung 4.7.: Sättigungsspektrum der R(56)(32-0) in antikollinearer Anordnung. (a) Position der einzelnen Hyperfeinkomponenten, (b) Spektrum ohne Einsatz eines akustooptischen Modulators (c) Spektrum mit akustooptischem Modulator.

dar. Dies führt allerdings zu einer Verringerung des Überlagerungsvolumens zwischen Pump- und Probestrahl, wodurch das Signal-zu-Rauschverhältnis verschlechtert wird. Zur Kompensation müssen dann längere Absorptionszellen und größere Laserstrahlquerschnitte verwendet werden. Eine Trennung von Pump- und Probestrahl vor dem Detektor führt außerdem zu größeren optischen Weglängen. Bei einem Strahldurchmesser von 2 mm und einem Kreuzungswinkel von 1° ist minimal 1 m für die Trennung der beiden Strahlen notwendig. Der Kreuzungswinkel zwischen beiden Strahlen führt zu einer nicht vollständigen Kompensation des Dopplereffektes, die Linienbreite des zu detektierenden Übergangs wird um $\Delta\omega_{\text{Restdoppler}} \approx \alpha\Delta\omega_{\text{Doppler}}$ (für kleine Winkel α) verbreitert.

Durch den hier vorgestellten Aufbau ist es möglich die einzelnen Hyperfeinübergänge des Jodmoleküls mit hohem Signal-zu-Rauschverhältnis zu detektieren. Allerdings ist die Profilform der Lamb-Dips nicht zur Stabilisierung geeignet, da sie eine gerade Symmetrie bezüglich der Frequenzachse aufweisen und daher eine Stabilisierung auf das Maximum der Lamb-Dips erfolgen müßte. Da dieser Regelpunkt nicht stabil ist, müssen die Signale in eine ungerade und somit für eine Regelung geeignete Symmetrie überführt werden. Hierzu wird Frequenzmodulationsspektroskopie als Verfahren angewendet.

4.5.2. Frequenzmodulationsspektroskopie

Zur Frequenzmodulationsspektroskopie wird der experimentelle Aufbau durch einen elektrooptischen Modulator (EOM) im Probestrahl erweitert (unterer Teil von Abb. 4.6), bzw. es wird die bereits vorhandene Phasenmodulation des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers verwendet. Eine Phasenmodulation des Probestrahls erzeugt einen Kamm von Seitenbändern im Frequenzabstand $\delta\nu_{\text{EOM}}$ zum Träger mit der Frequenz ω .

$$E = E_0 \sin(\omega t + \beta \sin(\delta\nu_{\text{EOM}} t)) \quad (4.1)$$

$$= E_0 \left(\sum_{n=0}^{\infty} J_n(\beta) \sin(\omega + n\delta\nu_{\text{EOM}})t + \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n J_n(\beta) \sin(\omega - n\delta\nu_{\text{EOM}})t \right) \quad (4.2)$$

$J_n(\beta)$ sind die Besselfunktionen der n .ten-Ordnung. β beschreibt die maximal erzeugte Phasenabweichung und wird auch Modulationsindex genannt. Für Modulationsindices von $\beta \ll 1$, wie sie in der Praxis auftreten, vereinfacht sich Gleichung (6.5), da nur die Besselfunktionen $J_0(\beta) \simeq 1$ und $J_1(\beta) \simeq \frac{\beta}{2}$ berücksichtigt werden müssen. Das Spektrum des Probestrahls besteht dann im Wesentlichen aus dem Träger der Frequenz ω und zwei

Seitenbändern bei den Frequenzen $\omega \pm \delta\nu_{\text{EOM}}$ (Abb. 4.8).

Die Leistung der Seitenbänder höherer Ordnung kann vernachlässigt werden. Gleichung (6.5) vereinfacht sich dann zu:

$$E = E_0 \left(\sin(\omega t) + \frac{\beta}{2} \sin(\omega t + \delta\nu_{\text{EOM}} t) - \frac{\beta}{2} \sin(\omega t - \delta\nu_{\text{EOM}} t) \right) \quad (4.3)$$

Die Photodiode detektiert vom Probestrahl ein Signal das proportional zum Quadrat der elektrischen Feldstärke ist. Es enthält somit bei ausreichender Bandbreite des Detektors die Schwebungssignale der beiden Seitenbänder mit dem Hauptband. An Gleichung (4.3) sowie in Abb. 4.8 erkennt man eine Phasendifferenz der beiden Seitenbänder von π zueinander (im Gegensatz zur Amplitudenmodulation, wo die beiden Seitenbänder in Phase schwingen).

Die Schwebungssignale zwischen Seitenbändern und dem Träger interferieren bei idealer Frequenzmodulation somit zu Null. Stimmt man aber den Laser über die Resonanz einer Spektrallinie, wechselwirkt jeweils nur eine Frequenzkomponente mit der Resonanz. Die wechselwirkende Frequenzkomponente wird absorbiert (α_- bzw. α_+) und erfährt eine Phasenverschiebung (ϕ_- , ϕ_0 , ϕ_+). Die Indices $-$ und $+$ stehen für unteres und oberes Seitenband, der Index 0 für die Trägerfrequenz. Durch die Absorption eines Seitenbandes verkleinert sich

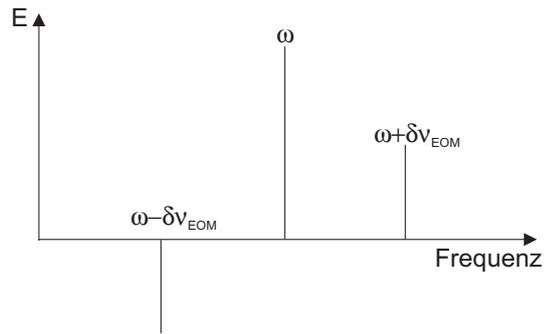


Abbildung 4.8.: Frequenzspektrum des Probestrahls.

die Amplitude des entsprechenden Summanden in Gl. (4.3). Durch die Dispersion des Mediums erfährt die transmittierte Frequenzkomponente eine Phasenverschiebung ϕ . Auf der Photodiode heben sich dann die Schwebungen der beiden Seitenbänder mit dem Träger nicht mehr auf. Es entsteht ein Signal am Detektor bei der Modulationsfrequenz. Das Detektorsignal wird wie in Abb. 4.6 durch einen doppelt balancierten Mischer mit dem in der Phasenlage verschiebbaren Referenzsignal phasenempfindlich gleichgerichtet. Aus diesem Signal können relativ zur Phasenlage des detektierten Signals und des Referenzsignals zwei unterschiedliche Signale gewonnen werden. Das Absorptionssignal ergibt sich aus der Differenz der Absorption der beiden Seitenbänder ($\alpha_- - \alpha_+$), das Dispersions-

signal ist 90° phasenverschoben und ergibt sich aus der Differenz der Phasenverschiebung des Trägers und den Phasenverschiebungen der beiden Seitenbänder ($\phi_+ + \phi_- - 2\phi_0$). Die resultierenden Linienformen lassen sich durch Ratengleichungsmodelle oder unter Einbeziehung von Kohärenzeffekten im Dichtematrixformalismus berechnen [De Voe und Brewer 1982, Schenzle u. a. 1982]. Aus dem Ratengleichungsmodell [Schenzle u. a. 1982] ergeben sich folgende Beziehungen für Absorptions- und Dispersionssignal:

Absorption:

$$I(\Omega) \propto \Omega \left[\frac{\Gamma \delta\nu_{\text{EOM}}}{[(\Omega - \frac{1}{2}\delta\nu_{\text{EOM}})^2 + \Gamma^2][(\Omega + \frac{1}{2}\delta\nu_{\text{EOM}})^2 + \Gamma^2]} \right] \quad (4.4)$$

Dispersion:

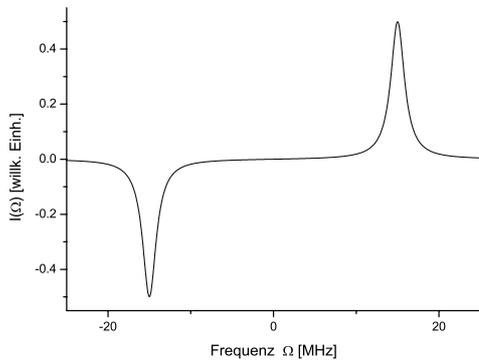
$$I(\Omega) \propto \Omega \left[\frac{1}{\Omega^2 + \Gamma^2} - \frac{\Omega^2 - (\frac{1}{2}\delta\nu_{\text{EOM}})^2 + \Gamma^2}{[(\Omega - \frac{1}{2}\delta\nu_{\text{EOM}})^2 + \Gamma^2][(\Omega + \frac{1}{2}\delta\nu_{\text{EOM}})^2 + \Gamma^2]} \right] \quad (4.5)$$

Hierbei ist Γ die Linienbreite des Übergangs und $\Omega = \omega - \omega_0$ die Verstimmung der Laserfrequenz von der Resonanz.

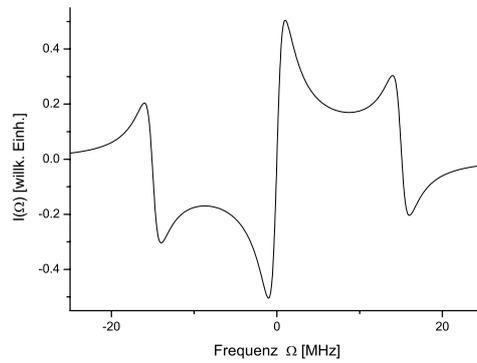
Abbildung 4.9 zeigt für die Absorptions- und Dispersionssignale für zwei unterschiedliche Quotienten von Modulationsfrequenz zu Linienbreite. In Abb. 4.9(a) und 4.9(b) ist $\frac{\delta\nu_{\text{EOM}}}{\Gamma} = 30$. Man erkennt im Absorptionssignal deutlich die beiden Maxima bei einer Verstimmung von der Resonanz, die der halben Modulationsfrequenz entsprechen. Da beim Durchstimmen der Laserfrequenz Träger und Seitenband mit der gleichen Geschwindigkeitsklasse wechselwirken, erscheinen auf Grund der Dopplerverschiebung die Seitenbänder im halben Seitenband-Abstand $\frac{\delta\nu_{\text{EOM}}}{2}$. Das Dispersionssignal zeigt auf der Resonanz einen steilen Nulldurchgang und bei halber Modulationsfrequenz zwei Nebenmaxima mit ebenfalls steilen Nulldurchgängen. Verringert man $\frac{\delta\nu_{\text{EOM}}}{\Gamma}$ auf einen Wert von 3, dann liegen Träger und Seitenbänder in der Größenordnung der Linienbreite des Übergangs und es kommt zu einer Überlagerung der einzelnen Frequenzanteile, wie in Abb. 4.9(c) und 4.9(d) erkennbar. In Abb. 4.10(a) bis 4.10(b) sind die experimentell erhaltenen Linienformen am Beispiel der Komponente a_{15} der R(56)(32-0) in Absorption bzw. Dispersion dargestellt unter Verwendung der internen Modulation von 29,1 MHz, die Abb. 4.10(c) und 4.10(d) zeigen die Signalformen unter Verwendung des EOMs mit 5,07 MHz.

Das Signal wurde mit einer Pumpleistung von 1 mW und einer Leistung im Probestrahl von $250 \mu\text{W}$ aufgenommen, also einem Pump- Probeverhältnis von 1 : 4. Die Leistungs-

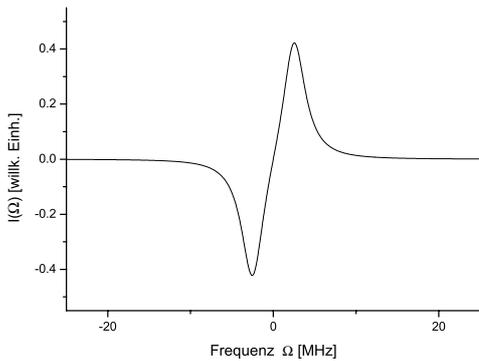
dicke beträgt $\approx 1,5 \frac{mW}{mm^2}$. Die Anpassung der experimentell erhaltenen Daten an die theoretischen Linienformen aus Gl. (4.4) und (4.5) ergibt eine experimentelle Linienbreite von 1,8 MHz. Der Vergleich mit den theoretischen Daten aus der Literatur (siehe auch Abschn. 3.3.1) ergibt folgendes: Für eine Seitenarmtemperatur von $2^\circ C$ ergibt sich ein Joddampfdruck von 5 Pa, woraus sich eine Druckverbreiterung von ca. 0,75 MHz ergibt. Unter Berücksichtigung der natürlichen Linienbreite des Übergangs von 0,5 MHz [Vigúe u. a. 1981], sowie der Flugzeitverbreiterung und Justageungenauigkeiten von ca.



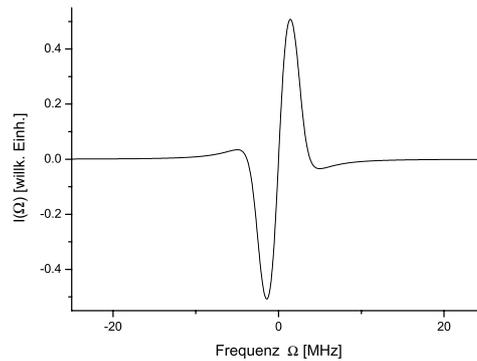
(a) Absorptionssignal für $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 30$



(b) Dispersionssignal für $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 30$



(c) Absorptionssignal für $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 3$



(d) Dispersionssignal für $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 3$

Abbildung 4.9.: Signalformen bei Frequenzmodulationsspektroskopie für $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 30$ und $\delta\nu_{EOM}/\Gamma = 3$.

4. Eigenschaften und Frequenzstabilisierung des Pumplasersystems

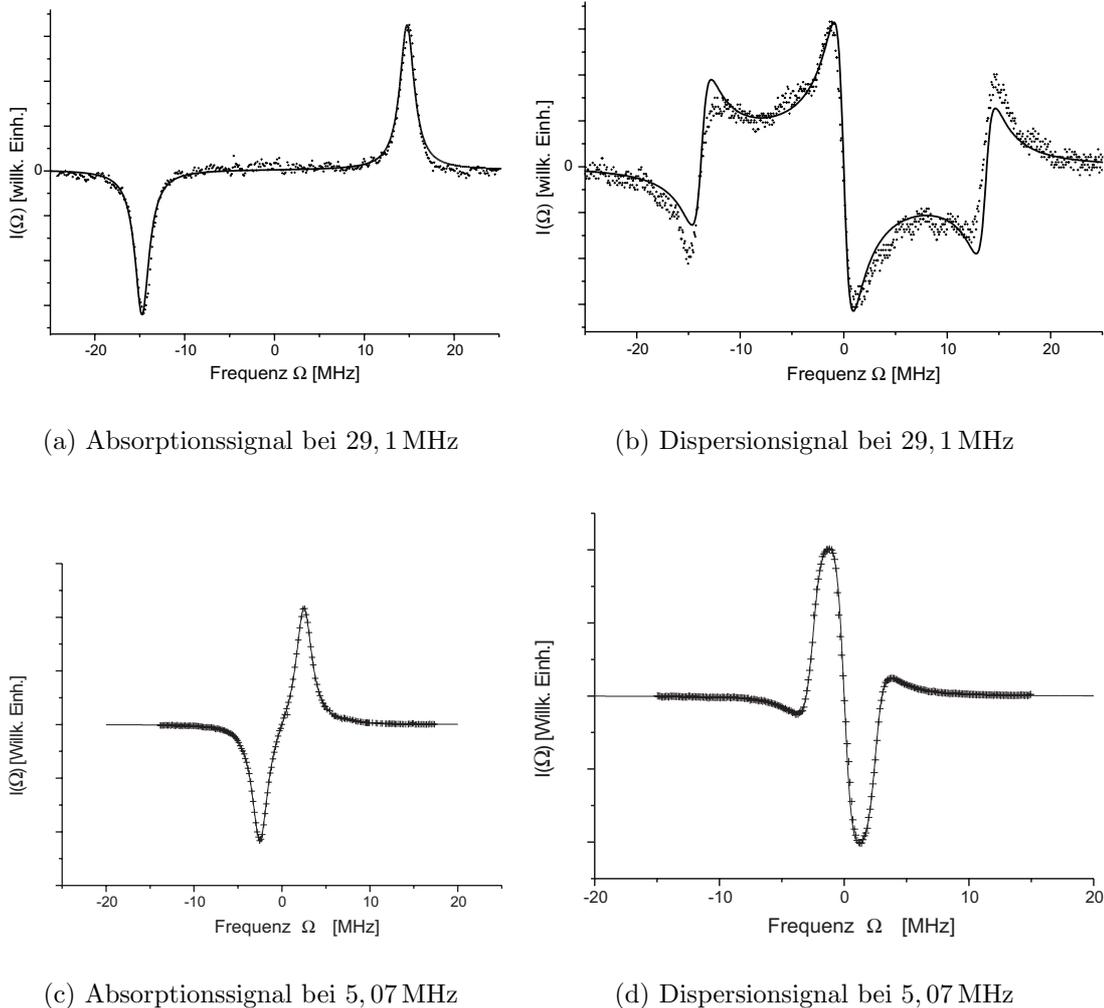
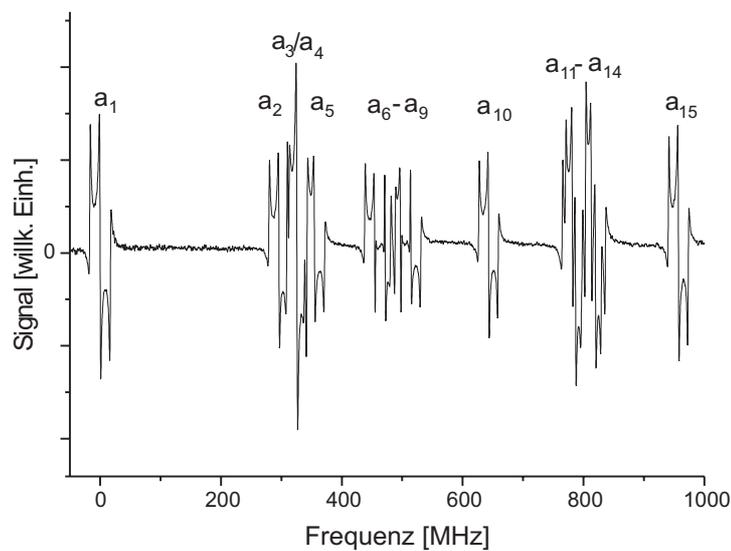


Abbildung 4.10.: Absorption- und Dispersionssignal unter Verwendung der internen Modulation des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers. Modulationsfrequenz: 29,1 MHz, Linienbreite der Resonanz 1,8 MHz, Joddampfdruck: 5 Pa (Temperatur des Seitenarms: 2°C). Die Punkte stellen die Messwerte dar, die durchgezogene Linie die theoretische Kurve nach Gl.(4.4) und (4.5), wobei nur die Signalamplitude angepaßt wurde.

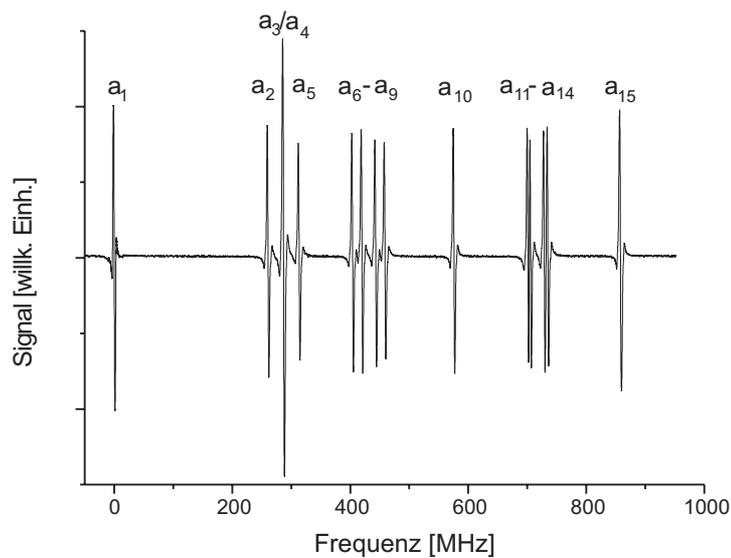
0,15 MHz ergibt sich eine Gesamtlinienbreite von 1,4 MHz. Sättigungseffekte tragen also bei den gezeigten Spektren wesentlich zur Verbreiterung der Struktur bei. Die Abweichungen der theoretischen Kurve in Abb. 4.10(b) von den Messpunkten erklärt sich dadurch, daß in den Gleichungen (4.4) und (4.5) die Lösung für das Ratengleichungsmodell angegeben ist. Berücksichtigt man kohärente Effekte, so wird die Signalform leicht verändert,

was sich insbesondere auf die Struktur in der Umgebung des halben Seitenbandabstandes auswirkt [Schenzle u. a. 1982].

In Abb. 4.11 sind zwei Hyperfeinstrukturspektren der R(56)(32-0) in Dispersion dargestellt, wobei das Spektrum in 4.11(a) mit der internen Modulation des frequenzverdoppelten Misers aufgenommen wurde, Abb. 4.11(b) zeigt das Spektrum unter Verwendung des externen EOMs mit einer Modulationsfrequenz von 5,07 MHz. In Abb. 4.11(a) erkennt man, daß nur die einzelstehenden Komponenten a_1, a_{10}, a_{15} der Hyperfeinstrukturaufspaltung vollständig aufgelöst werden. Die HFS-Komponenten mit Frequenzabständen in der Größenordnung der Modulationsfrequenz können nicht mehr komplett aufgelöst werden. Es kommt zur Überlagerung der einzelnen Dispersionssignale, so daß die zentralen Nulldurchgänge der einzelnen HFS-Komponenten in der Frequenz verschoben bzw. teilweise ausgelöscht werden. Eine Stabilisierung auf diese Komponenten ist somit nicht möglich. Das Spektrum mit der Modulationsfrequenz von 5,07 MHz in Abb. 4.11(b) zeigt mit Ausnahme der Komponenten a_3/a_4 ($\Delta\nu = 0,7$ MHz [Arie und Byer 1993]) alle HFS-Komponenten aufgelöst. Hier ist eine Stabilisierung auf alle Komponenten möglich.



(a) Modulationsfrequenz 29,1 MHz



(b) Modulationsfrequenz 5,07 MHz

Abbildung 4.11.: Hyperfeinstrukturspektrum der R(56)(32-0) aufgenommen in Dispersion mit der internen Modulation des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers und mit externer Modulation durch einen EOM. Der Joddampfdruck betrug 5 Pa (2° C Seitenarmtemperatur).

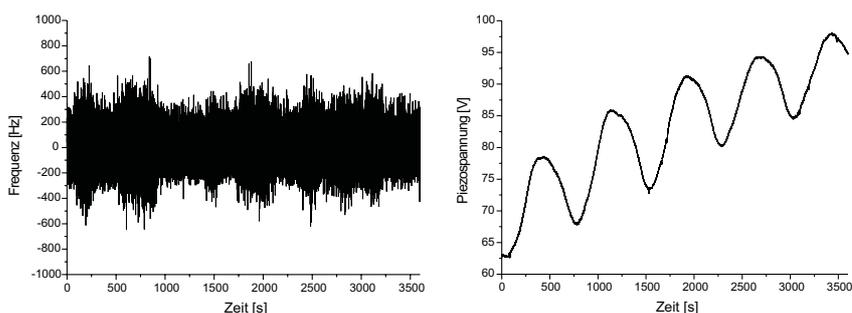
4.5.3. Ergebnisse der Stabilisierung

Die im vorherigen Abschnitt beschriebene Frequenzmodulationsspektroskopie an der Jod-Hyperfeinstruktur liefert bei den Absorptions- und Dispersionssignalen eine Struktur, die zur Stabilisierung des Lasers geeignet ist. Beide Signalformen haben ungerade Symmetrie und einen Nulldurchgang an der Resonanzstelle ω_0 und somit kann aus dem Vorzeichen des Signals die Richtung der Frequenzabweichung gewonnen werden. Wegen der hohen Flankensteilheit des Dispersionssignals im zentralen Nulldurchgang wird das Dispersionssignal verwendet. Im Experiment wird deshalb der Aufbau in Abb. 4.6 um einen Proportional-Integral-Differential-Regler (PID-Regler, [Lutz und Wendt 1998]) erweitert. Das Dispersionssignal wird als Fehlersignal an den Eingang des PID-Reglers und das Ausgangssignal des PID-Reglers (das Regelsignal) wird über einen Hochspannungsverstärker (HV) an den Piezokristall des Miser-Kristalls gegeben. Zur Stabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers hat sich folgende Vorgehensweise bewährt. Zunächst fährt man die gewünschte dopplerverbreiterte Absorptionslinie durch manuelles Einstellen der Temperatur (siehe Abschnitt 4.2) des Miser-Kristall am entsprechenden Temperaturregler an, die Spannung am Piezokristall stellt man auf einen mittleren Wert. Dann stimmt man durch Anlegen einer stabilen Spannung (z.B. durch den D/A-Wandler einer Meßdatenerfassung) an den Modulationseingang des Temperaturreglers die Frequenz auf die gewünschte Hyperfeinkomponente. Durch Veränderung der angelegten Piezospannung wird die feine Frequenzabstimmung des Lasers vorgenommen und beim Erreichen des zentralen Nulldurchgangs des Dispersionssignals die Verstärkung des Proportionalanteils am PID-Regler langsam eingeschaltet. Der Laser ist somit auf die Hyperfeinkomponente stabilisiert. Bei stabilisiertem Laser werden dann die Regelparameter für die einzelnen Regelanteile optimiert. Die Verstärkung der Rückkopplung wird dabei so gewählt, daß gerade keine Regelschwingungen im Rückkoppelkreis auftreten. Die Frequenz der Regelschwingung ist ein Maß für die Regelbandbreite des Rückkoppelkreises und liegt bei 250 Hz. Oberhalb dieser Frequenz werden Störungen der Laserfrequenz nicht mehr unterdrückt. Die Regelbandbreite ist bei der hier verwendeten Art der Stabilisierung der Laserfrequenz durch den auf den Miser-Kristall aufgebraachten Piezokristall limitiert. Der Tiefpaß-Charakter des Lock-In, sowie die verwendeten Zeitkonstanten des Reglers beschränken nicht die Bandbreite der Regelung. Detaillierte Untersuchungen von Frequenz- und Phasengang wurden nicht durchgeführt, da dies den Einsatz eines Netzwerkanalysators erfordert. Die P-, I- und D-Anteile werden un-

ter Beobachtung des Regelsignals iterativ optimiert. Zur Beurteilung der erreichten Frequenzstabilität wurde das Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers bei geschlossenem Regelkreis aufgezeichnet und in Frequenzschwankungen umgerechnet.

In Abb. 4.12(a) ist das Frequenzrauschen bei geschlossenem Regelkreis für einen Zeitraum von einer Stunde dargestellt. Die Meßpunkte wurden alle 10 ms aufgenommen. Die Messung des Frequenzrauschens ergibt für den Zeitraum von einer Stunde eine Standardabweichung von $\sigma = \Delta\nu = 150$ Hz, wobei die maximale Frequenzabweichung 750 Hz betrug. Rechnet man diese Frequenzschwankungen in die relative Stabilität bei einer Trägerfrequenz von $\nu = 563,7$ THz um, so erhält man $\frac{\Delta\nu}{\nu} \simeq 3 \cdot 10^{-13}$. Die umgerechnete Frequenzexkursion bei geschlossenem Regelkreis liegt deutlich unter 1 kHz und ist mehr als ausreichend für die später vorgestellten Untersuchungen an den Ramanlasersystemen in Kap. 6.

Konkrete Aussagen über die erreichte absolute Frequenzstabilität lassen sich allerdings



(a) Frequenzrauschen bei geschlossenem Regelkreis.

(b) Piezospannung bei geschlossenem Regelkreis.

Abbildung 4.12.: Frequenzrauschen und Regelsignal bei geschlossener Regelschleife.

nur durch Vergleich mit einer hochstabilen Referenz, z.B. einer Cavity hoher Güte oder durch Aufbau eines weiteren iodstabilisierten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers und Messung der Beatfrequenz zwischen beiden Systemen machen. Die hier vorgestellte Messung trifft eine Aussage über die Qualität der Regelschleife. Driften und Offsets des Nullpunktes können bei geschlossener Regelschleife nicht detektiert werden. Allerdings wurden einige bekannte und detektierbare frequenzverschiebende Effekte sorgfältig überprüft und wenn möglich unterdrückt. Durch die Stabilisierung der Temperatur des Seitenarms auf besser als 10 mK [Richling 1990] und eine stabile Raumtemperatur wird die

Druckverschiebung der Hyperfeinstrukturübergänge von etwa 5 kHz/Pa [Bodermann 1998] auf Werte von weniger als 1 Hz verringert (angenommene Seitenarmtemperatur: 2° C). Ein weiterer frequenzverschiebender Effekt tritt durch die AC–Stark Verschiebung [Autler und Townes 1955, Townes und Schawlow 1975] auf und wurde von Bordé u. a. [1979] an der Hyperfeinstruktur des Jodmoleküls nachgewiesen. Die Frequenzverschiebung wurde in [Bordé u. a. 1979] für Komponenten der P(13)/R(15)(43-0) zu 5 kHz bei 1 mW/mm² (Pump-Probe-Verhältnis 1 : 5, Strahldurchmesser 2 mm) bestimmt. In einer aktuelleren Arbeit bestimmte Braxmaier [1997] die Verschiebung von Komponenten der R(56)(32-0)³ mit $50 \frac{\text{kHz}}{\sqrt{\text{mW}}}$ bei Strahldurchmessern von 1 mm und einem Verhältnis von Pump- und Probestahl von 1 : 3. Die Position des zentralen Nulldurchgangs der Hyperfeinkomponenten durch die AC–Stark Shift ist somit empfindlich von der eingestrahlten Pumpleistung abhängig. Eine Änderung der eingestrahlten Leistung von 10 µW bei in diesem Aufbau verwendeten Strahldurchmessern von 2 mm bewirkt eine Frequenzänderung von $\approx 1,5$ kHz, was für den Fall dieser Arbeit eine Amplitudenstabilität des Lasersystems von 1% voraussetzt. Deshalb ist bei den Stabilitätsmessungen auf eine optimale Einstellung der Verdopplerregelung und damit auf eine stabile Ausgangsleistung geachtet worden. Die Regelung erreichte eine Amplitudenstabilität der Ausgangsleistung von ca. 1% und ist damit vermutlich der limitierende Faktor für die Stabilität der Absolutfrequenz im derzeit verwendeten Aufbau. Als weitere Quelle für Unsicherheiten in der Frequenzstabilisierung muß der AOM betrachtet werden. Der Pumpstrahl wird durch den AOM mit einer festen Frequenz an- und ausgeschaltet. Das Verhältnis von ein- zu ausgeschalteten Zeiten beträgt idealerweise 50% und wird als Duty–Cycle bezeichnet. Weicht der Duty–Cycle von diesem Wert ab, so resultiert daraus ein Offset am Ausgang des Lock–In. Variiert der Duty–Cycle, so treten am Lock–In–Ausgang variierende Offsets auf. Um dies zu überprüfen, wurde das Licht aus der 1. Beugungsordnung des AOM auf eine Photodiode gegeben und vom Lock–In heruntergemischt. Es konnten dabei über Zeiträume von Stunden weder Offsets noch Schwankungen des Lock–In–Signals gemessen werden. Desweiteren können Änderungen der AOM–Frequenz zu einer Verschiebung des zentralen Nulldurchgangs der Hyperfeinstrukturkomponenten führen. Laut Datenblatt der AOM–Leistungsstufe sollte die Zeitbasis des integrierten Oszillators bei einer Trägerfrequenz von 80 MHz um nicht mehr als 10 Hz schwanken. Die Auswirkungen auf die Position des zentralen Nulldurchgangs der Hyperfeinstrukturkomponenten halbiert

³Die Werte von [Bordé u. a. 1979] und [Braxmaier 1997] sind wegen unterschiedlicher molekularer Parameter (z.B. Dipolmoment) nicht unmittelbar vergleichbar.

sich bedingt durch den Aufbau und ergibt daher einen Wert von 5 Hz. Diese Unsicherheit der Frequenzposition ließe sich durch Einsatz einer besseren externen Zeitbasis leicht verringern. Als letzte Ursache für Frequenzinstabilitäten ist der EOM zu nennen. Neben der gewünschten Phasenmodulation der Probestrahlung verursacht ein EOM auch immer parasitäre Amplitudenmodulation (RAM= Residual Amplitude Modulation) des Lichtes, dessen Stärke empfindlich von der Eingangspolarisation des Lichtes abhängt und zu Offsets am Lock-In-Ausgang führt. Zur Minimierung der Amplitudenmodulation wurde das Amplitudenspektrum der Probestrahlung hinter dem EOM mit einem Spektrum-Analysator gemessen und die Kombination aus Polarisationsstrahlteiler und EOM (Abb. 4.6) auf minimale Amplitudenmodulation justiert. Auf kurzen Zeitskalen kann daher die Amplitudenmodulation des EOM vernachlässigt werden. Systematische Aussagen zu den Auswirkungen dieser Effekte lassen sich allerdings nur durch Vergleich mit einer weiteren Referenz mit vergleichbarer Stabilität machen. Den limitierenden Faktor in der Stabilität auf kürzeren Zeitskalen stellt die Leistungsstabilität des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers dar, auf längeren Zeitskalen (mehrere Stunden bis Tage) wird die parasitäre Amplitudenmodulation des EOMs zu Driften des zentralen Nulldurchgangs der Hyperfeinstrukturkomponenten führen.

In Abb. 4.12(b) ist die am Piezokristall anliegende Regelspannung dargestellt. In der Abbildung erkennt man ein periodisches Schwanken der Regelspannung mit einer Amplitude von ca. 18V ($\hat{=}18$ MHz) und einer Periodendauer von 12 Minuten, die auf die Schwankungen der Temperatur des Miserkristalls zurückzuführen sind. Führt man diese Schwankungen ausschließlich auf Temperaturschwankungen zurück, so ergibt sich hieraus eine Schwankungsbreite der Temperatur am Miserkristall von 2,5 mK. Desweiteren erkennt man in Abb. 4.12(b) eine Überlagerung der periodischen Schwankungen mit einer linearen Drift der Regelspannung zu höheren Spannungswerten. Der Effekt, daß zu höheren Spannungen nachgeregelt werden muß, ist bei allen Stabilitätsmessungen in vergleichbarer Weise aufgetreten. Hierbei handelt es sich vermutlich um eine Ermüdung des Piezokristalls bei einer konstant anliegenden Spannung, wie sie bei nahezu allen Piezotypen zu beobachten ist. Die in Abb. 4.12 dargestellte Messung wurde nach einer Warmlaufzeit des Lasers von 8 Stunden an einem Wochenende vorgenommen. Unter diesen Bedingungen läßt sich das System etwa 5 – 6 Stunden nur durch Regelung der Piezospannung auf eine Hyperfeinkomponente stabilisieren. Für die Stabilisierung auf längeren Zeitskalen muß dann die Temperaturregelung des Miserkristalls zur Rege-

lung von langsamen Driften des Lasersystems mit einbezogen werden. Als alternatives Frequenzstellelement, das auch für schnelle Regelungen mit hoher Bandbreite geeignet ist, kann der Diodenstrom der Pumpdioden verwendet werden, da ein unmittelbarer Zusammenhang zwischen Diodenstrom und Ausgangsfrequenz des Misers besteht. Die Stabilisierung des Lasers nach einer kurzen Warmlaufzeit und während des normalen Laborbetriebs beschränkt die Stabilisierungszeit wegen größerer Schwankungen des Systems (höhere Drift der Temperatur, akustische Störungen) auf etwa eine Stunde.

Zur Einordnung des in dieser Arbeit vorgestellten Experimentes sind in Tabelle 4.3 einige Experimente zur Stabilisierung von frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasern aufgelistet. Es handelt sich bei den in Tab. 4.3 aufgeführten Experimenten um Doppelaufbauten, wodurch ein direkter Vergleich der beiden stabilisierten Laser durch Zählen der Differenzfrequenz (Beat-Messung) der Laserfelder möglich wird. Ye u. a. [1997] haben einen jodstabilisierten Nd:YAG-Laser mit einem auf C_2HD stabilisierten Nd:YAG-Laser bei 1064 nm verglichen. Als Maß für die Stabilität wird die Allan-Varianz [Allan 1966] $\sigma(\tau)$ angegeben. Sie ist ein Maß für mittlere Frequenzabweichung σ von zwei Oszillatoren in zwei direkt aufeinanderfolgenden Meßintervallen der Länge τ und ist in der dritten Spalte von Tab. 4.3 angegeben. Derzeit werden mit jodstabilisierten Nd:YAG-Lasern bei einer Zelllänge von 1,2 m und Seitenarmtemperaturen von -20°C Stabilitäten von $\sigma(100s) = 6,5 \cdot 10^{-15}$ [Ye u. a. 1999] erreicht. Der in dieser Arbeit vorgestellte Aufbau dürfte eine Frequenzstabilität erreichen, die in der Größenordnung der Stabilitäten von Arie und Byer [1993] und Galzerano u. a. [1999] liegt, da die experimentellen Daten und verwendeten Geräte etwa vergleichbar sind.

Die hohe Stabilität der Lasersysteme, die in den Arbeiten von [Eickhoff und Hall 1995,

Referenz	Vergleich	Allan Varianz $\sigma(\tau)$	Meßdauer	Zelllänge	Seitenarmtemp.
[Arie und Byer 1993]	I_2/I_2	$2,3 \cdot 10^{-13}(32s)$	1h	0,1 m	$+20^\circ\text{C}$
[Eickhoff und Hall 1995]	I_2/I_2	$6,5 \cdot 10^{-14}(100s)$?	1,2 m	-20°C
[Ye u. a. 1997]	I_2/C_2HD	$1,0 \cdot 10^{-14}(800s)$	2h	1,2 m	-20°C
[Galzerano u. a. 1999]	I_2/I_2	$8 \cdot 10^{-14}(100s)$	0,5h	0,5 m	-15°C
[Ye u. a. 1999]	I_2/I_2	$6,5 \cdot 10^{-15}(100s)$	1,6h	1,2 m	-20°C

Tabelle 4.3.: Vergleich der bislang erreichten Stabilitäten von jodstabilisierten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasern.

Ye u. a. 1997; 1999] berichtet wird, unterscheidet sich in der erreichten Stabilität deutlich

von den beiden anderen Experimenten in Tab. 4.3. Die hohe Stabilität der Lasersysteme wird durch erhöhten experimentellen Aufwand erreicht. So wird in den Arbeiten von Eickhoff und Hall [1995], Ye u. a. [1997; 1999] (alle Arbeiten wurden in der Gruppe von J.L. Hall durchgeführt) die Verdopplung der Grundwelle des Nd:YAG-Lasers in Ringresonatoren durchgeführt, wodurch eine bessere Amplitudenstabilität als in Stehwellenresonatoren erreicht wird. Zusätzlich wird die Ausgangsamplitude der stabilisierten Strahlung noch aktiv geregelt. Zur schnellen Frequenzkontrolle wird teilweise nicht das Lasersystem direkt in der Frequenz korrigiert. Die schnellen Fluktuationen werden durch Regelung eines externen AOM's vorgenommen. Der Einsatz sehr langer Jodzellen ermöglicht niedrige Dampfdrücke bei dennoch hohem Signal-zu-Rausch-Verhältnis, wodurch eine niedrige Modulationsfrequenz für die Frequenzmodulationsspektroskopie möglich wird. Dadurch kann die Flankensteilheit des Dispersionssignals um mindestens eine Größenordnung erhöht werden, was zu einer deutlich verbesserten Frequenzdiskriminierung führt.

5. Ramanlasertheorie und Simulation

Nach der Einführung in die Theorie der Ramanlaser in Kapitel 2 werden jetzt die theoretischen Aspekte zur Theorie der Ramanlaser vertieft dargestellt. Zur Beschreibung der Ramanlaser wird der Dichtematrixformalismus für das Λ -förmige Dreiniveau-Laserschema verwendet. Eine vollständige Beschreibung der Ramanlaser im Dichtematrixformalismus wurde erstmals von Wellegehausen [1979] durchgeführt. Um einen quantitativen Vergleich zwischen der Theorie und den experimentellen Ergebnissen zu ermöglichen, war es jedoch notwendig, den in Wellegehausen [1979] vorgestellten Formalismus zu erweitern. Insbesondere wurde die Hyperfeinstrukturaufspaltung des Pump- und Ramanübergangs, die Propagation und Absorption der Pumpstrahlung im Medium berücksichtigt. Die im folgenden verwendeten Schreibweisen sind aus der Veröffentlichung von Wellegehausen [1979] übernommen worden. In diesem Abschnitt wird der allgemeine Ausdruck des Verstärkungskoeffizienten eingeführt und an Beispielen das Verhalten der einzelnen Verstärkungsbeiträge diskutiert. Anschließend werden die Auswirkungen der Hyperfeinstrukturaufspaltung des Pump- und Ramanübergangs auf die Struktur des Ramanlaserspektrums besprochen. Um quantitative Aussagen über die Größe der zu erwartenden Verstärkungskoeffizienten machen zu können, wird nachfolgend ein Ausdruck für die makroskopische Verstärkung angegeben. Wegen der großen Absorption im Medium muß bei der Bestimmung der makroskopischen Verstärkung die z -Abhängigkeit der Pumpstrahlung berücksichtigt werden. Daher wird am Ende dieses Kapitels die Propagation der Pumpstrahlung durch das Medium und die dadurch resultierende Absorption diskutiert. Mit Hilfe des vorgestellten Formalismus wurden zur Beschreibung der Pumpabsorption und der makroskopischen Verstärkung Rechenprogramme entwickelt, die quantitative Aussagen zu Form und Größe der Verstärkungsprofile ermöglichen.

5.1. Ramanverstärkungskoeffizient

Die Berechnung der Ramanverstärkung in diesem Abschnitt erfolgt mit Hilfe des Dichtematrixformalismus. Die Herleitung des Verstärkungskoeffizienten folgt im wesentlichen den Ausführungen von [Wellegehausen 1979] und ist wegen der Komplexität der Herleitung ausführlich und mit einigen weitergehenden Umformungen für den allgemeinen Fall und den Fall der Kleinsignalverstärkung bei kohärentem Pumpfeld im Anhang A dargestellt. In diesem Abschnitt soll auf Details der Herleitung verzichtet und sofort das Ergebnis vorgestellt und diskutiert werden.

Der resultierende doppler–verbreiterte Verstärkungskoeffizient α_d ist gegeben durch:

$$\alpha_d = -\frac{\sigma_d n_1 k_d}{\pi} \frac{P}{P+1} \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_3} \left[\left(1 - \frac{A_{32}}{\gamma_2} \bar{F} \right) + \frac{\gamma_3}{2\gamma_{13}} \bar{G} \right] \quad (5.1)$$

Dabei sind die einzelnen Faktoren des doppler–verbreiterte Verstärkungskoeffizienten gegeben durch:

$$\text{hom. Absorptionskoeffizient: } \sigma_d = \frac{\sqrt{\pi} |P_{32}|^2}{\epsilon_0 \hbar v_m} \quad (5.2)$$

$$\text{Grundzustandsbesetzung: } n_1 = n_t f_v f_J \quad (5.3)$$

$$\text{Pumpparameter: } P = \frac{I_P}{I_P^0} \quad (5.4)$$

$$\text{Sättigungsintensität: } I_P^0 = \frac{\hbar^2 \epsilon_0 c \gamma_{13} \gamma_1 \gamma_3}{|P_{13}|^2 (\gamma_1 + \gamma_3)} \quad (5.5)$$

integrierte Linienformfkt.:

$$\text{Einphotonen–Prozeß: } \bar{F}(\Omega_p, \Omega_d) = \int_{-\infty}^{+\infty} \delta_{13}^P \frac{Z\gamma_{12} - RQ}{Z^2 + Q^2} \exp(-v/v_m)^2 dv \quad (5.6)$$

$$\text{Zweiphotonen–Prozeß: } \bar{G}(\Omega_p, \Omega_d) = \int_{-\infty}^{+\infty} \delta_{13}^P \frac{Z\gamma_{13} - TQ}{Z^2 + Q^2} \exp(-v/v_m)^2 dv \quad (5.7)$$

$$\text{lorentzförmige Linienformfkt.: } \delta_{13}^P = \left[1 + \left[\frac{\Omega_P - k_p v}{\gamma_{13} \sqrt{1 + P}} \right]^2 \right]^{-1} \quad (5.8)$$

$$\text{Pumpverstimmung: } T = -\Omega_p + k_p v$$

$$\text{Ramanverstimmung: } R = -\Omega_p + \Omega_d + v(k_p - \epsilon k_d)$$

$$\text{Stokesverstimmung: } S = -\Omega_d + \epsilon k_d v$$

(5.9)

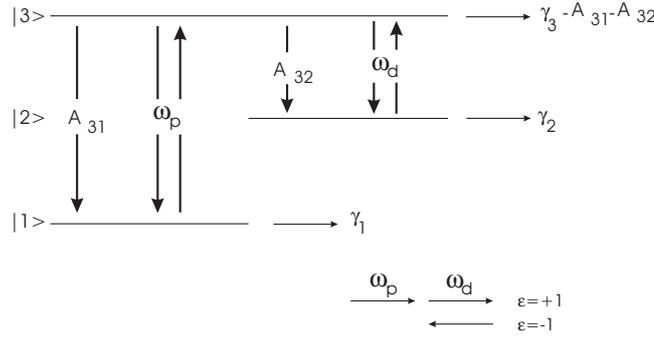


Abbildung 5.1.: Darstellung des verwendeten Dreiniveau–Lambdaschema inklusive aller strahlenden und strahlungslosen Relaxationen. A_{ij} : spontane Emissionsrate für den Übergang $i \rightarrow j$, γ_i : Zerfall der Besetzungsdichte aus dem Energieniveau $|i\rangle$ durch strahlende und nicht strahlende Zerfälle.

Z und Q aus Gleichung (5.6) und (5.7) ergeben sich dabei zu:

$$\begin{aligned} Z &= RS + P\gamma + \gamma_{12}\gamma_{23} \\ Q &= R\gamma_{23} - S\gamma_{12} \end{aligned}$$

Der Wert von γ ergibt sich aus den einzelnen Relaxationsraten der Zustände zu: $\gamma = \gamma_{13}\gamma_1\gamma_3 / (2\gamma_1 + \gamma_3)$. $\Omega_{p,d}$ gibt die Verstimmung von Pump– bzw. Ramanlaser von der jeweiligen molekularen Resonanz an.

$$\Omega_{p,d} = \omega_{p,d} - \omega_{31,32}$$

k_p bzw. k_d sind die entsprechenden Wellenvektoren $k_{p,d} = \frac{\omega_{p,d}}{c}$ für den Pump- bzw. Ramanlaserübergang. Die einzelnen Raten kann man Abb. 5.1 entnehmen. A_{32} ist die spontane Emissionsrate für den Übergang zwischen den Energieniveaus $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. Die Relaxationsprozesse sind durch die im Anhang definierte Matrix (Gl. A.14) vollständig beschrieben. γ_i ist der Zerfall der Besetzungsdichte aus dem Energieniveau $|i\rangle$ durch strahlende und nicht strahlende Zerfälle, wobei für harte Stöße gilt: $\gamma_{ij} = (\gamma_i + \gamma_j) / 2$. Berücksichtigt man phasenändernde Stöße, so ergibt sich $\gamma_{ij} = (\gamma_i + \gamma_i^d + \gamma_j + \gamma_j^d) / 2$, wobei $\gamma_{i,j}^d$ die jeweilige Stoßrate für phasenändernde Stöße ist. Die Relaxationsraten für die einzelnen Niveaus wurden bereits in Abschnitt 3.3.1 diskutiert. v_m ist die wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit, die sich aus der Boltzmannverteilung ergibt.

ε beschreibt die Richtung der Ramanlaserstrahlung relativ zur Richtung der Pump- laserstrahlung. Für $\varepsilon = 1$ laufen beide Strahlungsfelder kollinear zueinander, für $\varepsilon = -1$ propagieren Pump- und Ramanlaserfeld antikollinear.

Die Grundzustandsbesetzung n_1 ergibt sich aus der Anzahl der Moleküle im betrachteten Volumen n_t (vergleiche Abs. 3.3.2) und den Anteilen der Vibrations- und Rotationsbesetzung der Zustände.

$$f_v = \exp\left(-\frac{hv_i\omega_e c}{kT}\right) \left(1 - \exp\left(-\frac{h\omega_e c}{kT}\right)\right) \quad (5.10)$$

$$f_J = (2J + 1) \frac{hBc}{kT} \exp\left(-\frac{hBcJ(J + 1)}{kT}\right) \quad (5.11)$$

Hierbei ist v_i die Vibrationsquantenzahl und J die Rotationsquantenzahl. ω_e ist die Vibrationskonstante ($\omega_e = 21452 \text{ m}^{-1}$) und B die Rotationskonstante ($B = 3.737 \text{ m}^{-1}$) [Gerstenkorn und Luc 1985]. Die Integrale \overline{F} und \overline{G} sind die eigentlichen Linienformfunktionen des Verstärkungskoeffizienten α_d . \overline{F} beschreibt den Einphotonen-(Inversions-)Anteil und \overline{G} den Zweiphotonen-(Raman)-Anteil des Prozesses (detaillierte Erläuterungen findet man im Anhang A). Analytische Lösungen für diese Integrale sind nicht einfach, aber möglich für den Fall, daß die Halbwertsbreite der Lorentzfunktion in Gl. (5.2) bedeutend kleiner ist als die Halbwertsbreite des Dopplerprofils. Dann kann die Gaußfunktion als einhüllende Funktion der Form $\exp(-(\Omega_p/k_p v_m)^2)$ angenommen und vor das Integral gezogen werden [Wellegehausen 1979, Letokhov und Chebotaeu 1960, Skribanowitz u. a. 1971]. Für die in den Experimenten vorliegenden Parameter ist diese Bedingung nicht erfüllt. Die Gaußfunktion wurde in die Berechnung mit einbezogen und die Funktionen \overline{F} und \overline{G} wurden numerisch integriert.

Die Verstärkung V ergibt sich dann aus der Integration über die Länge L des Mediums

$$V = \exp\left(\int_0^L -\alpha_d dz\right) \quad (5.12)$$

und ist im Allgemeinen stark richtungsabhängig. Dieser Sachverhalt wurde bereits in Abs. 2.2 für die Richtung kollinear ($\varepsilon = 1$) und antikollinear ($\varepsilon = -1$) zur Pumpstrahlung anschaulich diskutiert. Die Richtungsabhängigkeit der Verstärkung führt zu deutlich unterschiedlichen Beiträgen der einzelnen Verstärkungsmechanismen. Zur Veranschaulichung soll zunächst die Form der Verstärkungsprofile kurz diskutiert werden. In Abb. 5.2 sind einige Verstärkungsprofile für den Fall $k_d/k_p = 0,65$ (entspricht bei einer Pumpfre-

quenz von 18.788 cm^{-1} ($\approx 532,25 \text{ nm}$) einer Ramanlaserfrequenz von 12.800 cm^{-1} ($\approx 781,25 \text{ nm}$) dargestellt. Für die Berechnungen wurde $\gamma_1 = \gamma_2 \approx 5 \text{ MHz}$ und $\gamma_3 \approx 20 \text{ MHz}$ gesetzt, was einer Betriebstemperatur der Jodzelle von etwa 305 K entspricht. Die Graphiken sind nach Inversionsverstärkung ($\overline{G} = 0$), Ramanverstärkung ($\overline{F} = 0$) und resultierender Gesamtverstärkung aufgeteilt. Der obere Teil von Abb. 5.2 zeigt die Verstärkungsprofile in Vorwärtsrichtung, der untere Teil die Profile in Rückwärtsrichtung. Positive Werte in den Grafiken geben Verstärkung an, negative Absorption. In den Abbildungen wurde der Pumpparameter im Bereich von $P = 0,01$ bis $P = 100$ variiert. In Vorwärtsrichtung wirkt bei kleinen Pumpparametern sowohl der Inversions- als auch Ramananteil der Verstärkung absorptiv. Bei größer werdenden Pumpparametern geht der Inversionsanteil in reine Verstärkung über und spaltet schließlich in 2 Profile auf. Der Ramananteil der Verstärkung in Vorwärtsrichtung zeigt bei geringen Ramanverstimmungen ein ähnliches Verhalten, an den Rändern des Profils wird die Verstärkung negativ und geht somit in Absorption über. Die Ramanverstärkung ist wegen der höheren Relaxationsrate γ_3 (gegenüber γ_1) bei einem Pumpparameter von $P = 1$ um den Faktor 4 größer. Die Aufspaltung der Profile ist auf den AC-Stark-Effekt zurückzuführen. Es handelt sich hierbei um eine echte Aufspaltung des Niveaus durch den Einfluß eines starken oszillierenden elektromagnetischen Feldes [Autler und Townes 1955]. In Rückwärtsrichtung beobachtet man ein anderes Verhalten. Die Inversionsverstärkung in Rückwärtsrichtung führt bei entsprechend großen Pumpparametern über den gesamten Verstimmungsbereich zu Verstärkung. Wegen des größeren Einflusses des Dopplereffektes spaltet die Inversionsverstärkung in Rückwärtsrichtung nicht auf, was aber für $P \gg 1$ zu einer geringeren Inversionsverstärkung als in Vorwärtsrichtung führt. Die Ramanverstärkung in Rückwärtsrichtung zeigt bei kleinen Ramanverstimmungen ein absorptives Verhalten, das an den Rändern des Profils in eine vernachlässigbare Verstärkung übergeht. Die Breite des Ramanverstärkungsprofils in Rückwärtsrichtung ist deutlich größer als das entsprechende Ramanverstärkungsprofil in Vorwärtsrichtung. Bei einem Pumpparameter von $P = 1$ ist das Verhältnis der Breite von Ramanverstärkung in Rückwärtsrichtung zu Ramanverstärkung in Vorwärtsrichtung $\frac{35 \text{ MHz}}{10 \text{ MHz}} = 3,5$. Für die Gesamtverstärkung des Ramanlasers ergibt sich hier eine 5-mal größere Verstärkung in Vorwärtsrichtung als in Rückwärtsrichtung, auch die Halbwertbreiten der Gesamtverstärkungsprofile unterscheiden sich deutlich (FWHM in Vorwärtsrichtung: 15 MHz , FWHM in Rückwärtsrichtung: 75 MHz).

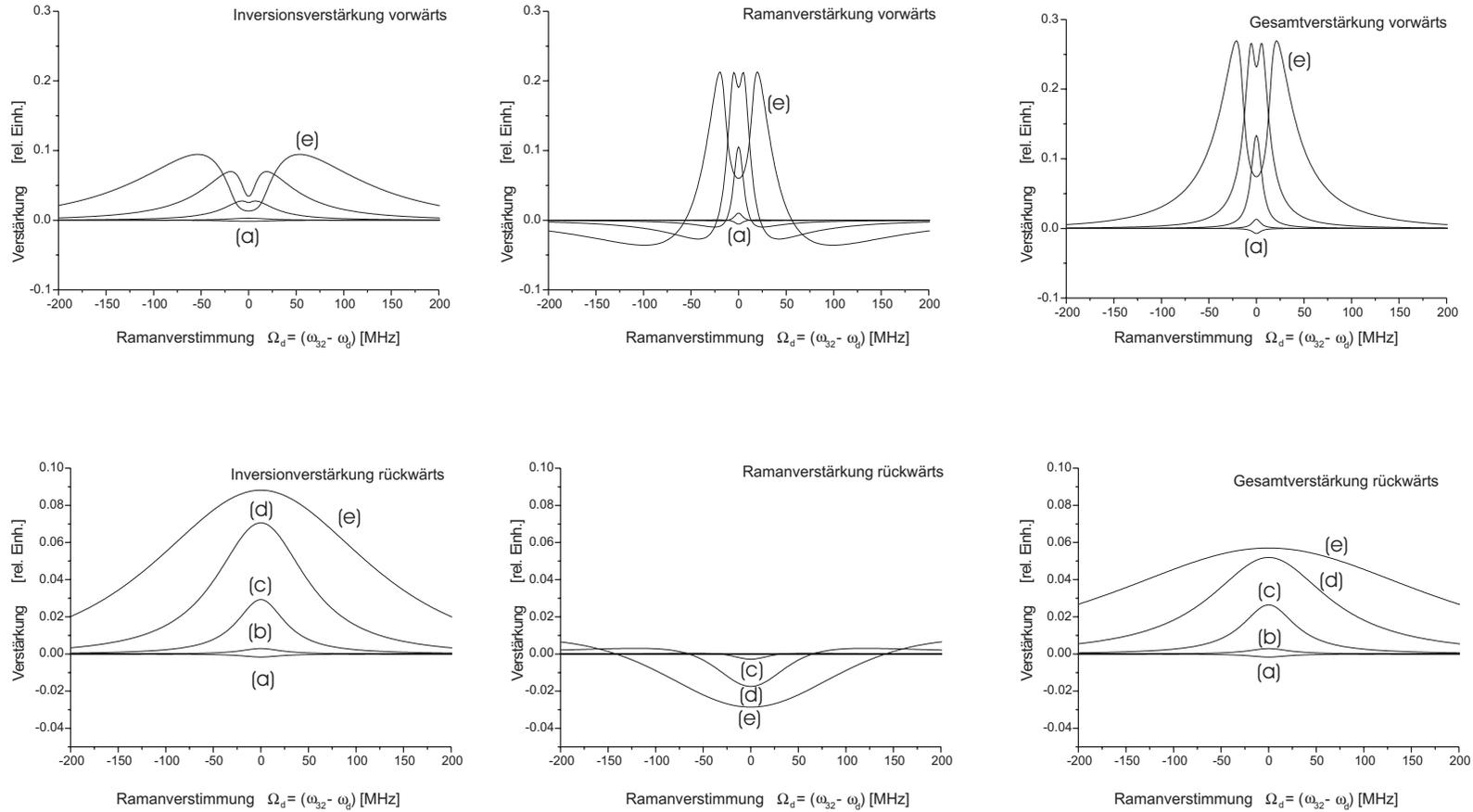


Abbildung 5.2.: Beispiele für Ramanverstärkungsprofile bei resonanter Einstrahlung der Pumpstrahlung ($\Omega_p = 0$): Der obere Teil der Abbildung zeigt die Verstärkung in Vorwärtsrichtung, der untere Teil die Verstärkung in Rückwärtsrichtung für $k_d/k_p = 0,65$; $\gamma_1 = \gamma_2 = 5$ MHz; $\gamma_3 = 20$ MHz; die Kurven stellen die Profile für folgende Pumpparameter dar: (a) $P = 0,01$, (b) $P = 0,1$, (c) $P = 1$, (d) $P = 10$, (e) $P = 100$.

5.1.1. Einfluß der Hyperfeinstruktur

Da das Jodmolekül eine ausgeprägte Hyperfeinstrukturaufspaltung zeigt (siehe auch Abb. 4.11), die größer als die Dopplerbreite der einzelnen Hyperfeinübergänge ist, muß in die Berechnung der Verstärkungsprofile die Aufspaltung der Niveaus durch die Hyperfeinstruktur mit einbezogen werden.

Die Aufspaltung der Übergänge durch die Hyperfeinstrukturaufspaltung in den Nive-

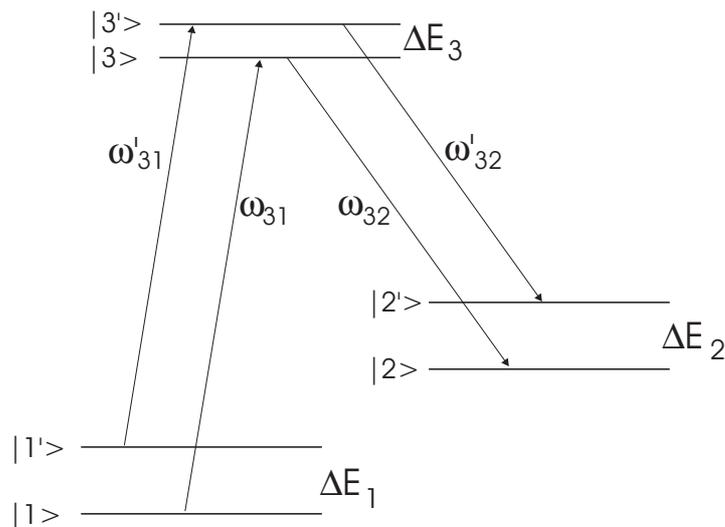


Abbildung 5.3.: Energieniveauschema unter Berücksichtigung einer benachbarten HFS-Komponente: $\omega_{31} = E(|3\rangle) - E(|1\rangle)$; $\omega_{32} = E(|3\rangle) - E(|2\rangle)$; $\omega'_{31} = \omega_{31} + \Delta E_3 - \Delta E_1$; $\omega'_{32} = \omega_{32} + \Delta E_3 - \Delta E_2$

aus ist abhängig von den Rotations- und Vibrationsquantenzahlen. Eine genaue Beschreibung der Abhängigkeit findet man in [Vigúe u. a. 1981] und [Bodermann 1998]. Die Rotationsquantenzahl zwischen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ ändert sich beim Ramanübergang um $\Delta J = \pm 2$. Da die Änderung der Aufspaltung im Grund- wie auch im angeregten Zustand nur schwach von J abhängt, treten durch Änderung der Rotationsquantenzahl nur geringe Änderungen der Aufspaltung auf. Das Endniveau $|2\rangle$ kann allerdings einen weiten Bereich von Vibrationsniveaus überstreichen, so daß sich deutliche Änderungen der Hyperfeinstruktur durch die Änderung der Quadrupolwechselwirkung (Details zu den Ursachen in [Vigúe u. a. 1981, Bacis u. a. 1980, Bodermann 1998]) ergeben können. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung ist für niedrige Vibrationsniveaus im Grundzustand größtenteils durch Sättigungsspektroskopie thermisch besetzter Niveaus bis in den nahen

Infrarotbereich ($0 < v'' < 16$) präzise vermessen und kann durch einen Satz von Parametern mit Unsicherheiten von ≈ 100 kHz beschrieben werden [Bodermann 1998]. Für höher gelegene Vibrationsniveaus im Grundzustand ($v'' \geq 20$) liegt nur eine Veröffentlichung zur Bestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung für $20 < v'' < 106$ vor [Bacis u. a. 1980], die Parameter beschreiben die Aufspaltung mit einer Genauigkeit von ≈ 1 MHz, da die Hyperfeinstrukturaufspaltung nur aus den Linienformen von Fluoreszenzprogressionen bestimmt wurde. Durch die in [Bacis u. a. 1980] veröffentlichten Daten läßt sich die Hyperfeinstrukturaufspaltung berechnen. Die Änderung der Hyperfeinstrukturaufspaltung soll am Beispiel des Pumpübergangs R(56)(32-0) erläutert werden: Für den Übergang R(56)(32-15) z.B. ergibt sich gegenüber dem Pumpübergang eine Änderung der Gesamtaufspaltung zwischen der ersten und letzten Hyperfeinstrukturkomponente von ≈ 4 MHz, die Änderung der Aufspaltung wächst allerdings mit steigendem v'' und erreicht bei $v'' = 31$ bereits einen Wert von ≈ 30 MHz, der nicht mehr vernachlässigt werden und in den späteren Messungen auch beobachtbar sein sollte.

Desweiteren ist zu beachten, daß durch die Auswahlregel $\Delta F = \Delta J$ die einzelnen Hyperfeinstrukturübergänge keine gemeinsamen oberen und unteren Niveaus haben. Die einzelnen Hyperfeinstrukturübergänge können also getrennt voneinander betrachtet werden, wodurch die Analyse des Systems erheblich vereinfacht wird [Hänsch u. a. 1971]. Strahlt man ein Pumpfeld ω_p resonant auf dem Übergang ω_{31} ein, so wird das entstehende Ramanfeld ω_d mit der Frequenz $\omega_d = \omega_{32}$ auf dem Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ erzeugt. Ein benachbarter HFS-Übergang ($|1'\rangle \rightarrow |3'\rangle$) mit der Energiedifferenz $\Delta E_3 - \Delta E_1$ wird nun nichtresonant angeregt ($\omega'_{31} = \omega_{31} + \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_1)$). Durch die Dopplerverschiebung sind Moleküle mit der Geschwindigkeit $v_0 \neq 0$ mit der Pumpfrequenz resonant. Die erzeugte Ramanfrequenz auf dem Übergang $|3'\rangle \rightarrow |2'\rangle$ für $v = 0$ ist $\omega'_{32} = \omega_{32} + \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_2)$. Die doppler-verschobene Ramanfrequenz lautet jetzt:

$$\begin{aligned}
 \omega'_d &= \omega'_{32} + \varepsilon k_d v_0 \\
 &= \omega'_{32} + \varepsilon(\omega_p - \omega'_{31}) \frac{k_d}{k_p} \quad [\text{Wellegehausen 1979}] \\
 &= \omega_{32} + \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_2) + \varepsilon \frac{1}{\hbar} \frac{k_d}{k_p} (\Delta E_1 - \Delta E_3) \quad . \quad (5.13)
 \end{aligned}$$

Vernachlässigt man die Änderung der Hyperfeinstrukturaufspaltung zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$, ergibt sich eine einfachere Beziehung:

$$\omega'_d(\Delta E_1 = \Delta E_2) = \omega'_{32} + \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_2)\left(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p}\right) \quad . \quad (5.14)$$

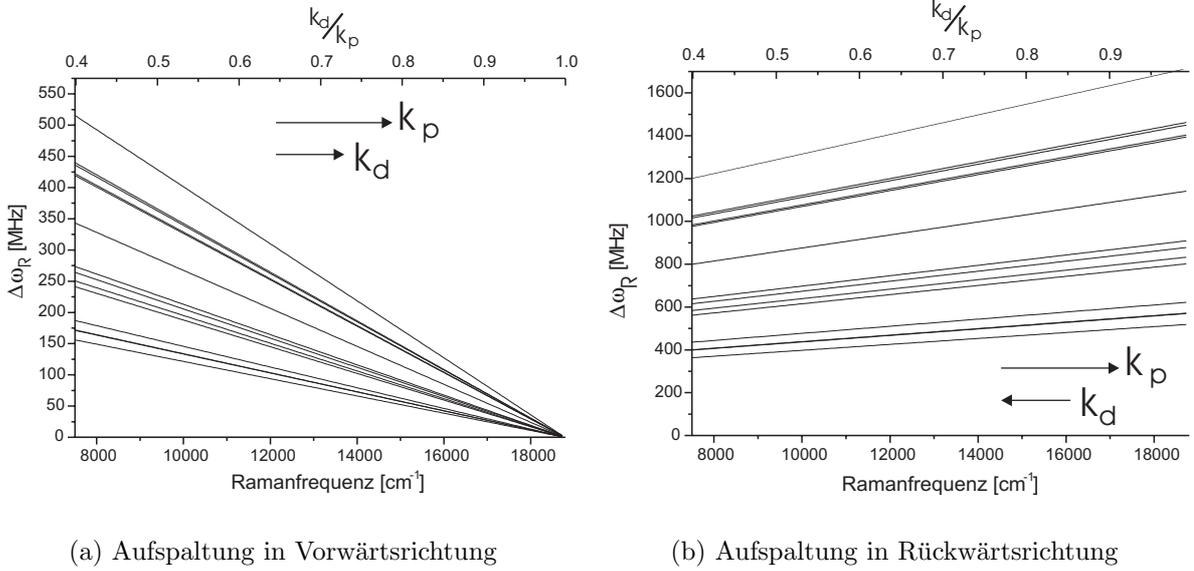
Für die Vorwärtsrichtung von ω'_d kommt es somit zu einer Verringerung der Hyperfeinaufspaltung $(\Delta E_3 - \Delta E_2)$ um der Faktor $(1 - \frac{k_d}{k_p})$, entgegen der Pumprichtung wird das abgestrahlte Ramanfeld über einen größeren Frequenzbereich gestreckt. Betrachtet man nun die Differenz $\Delta\omega_R = \omega'_d - \omega_d$ so ergibt sich

$$\begin{aligned} \Delta\omega_R &= \omega'_d - \omega_d \\ &= \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_2) + \varepsilon \frac{1}{\hbar} \frac{k_d}{k_p} (\Delta E_1 - \Delta E_3) \quad . \end{aligned} \quad (5.15)$$

Vernachlässigt man hier auch wieder die Änderung der Hyperfeinstrukturaufspaltung, so erhält man

$$\Delta\omega_R(\Delta E_1 = \Delta E_2) = \frac{1}{\hbar}(\Delta E_3 - \Delta E_2)\left(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p}\right) \quad . \quad (5.16)$$

Die Frequenzabstände in Vorwärtsrichtung verringern sich somit um den Faktor $(1 - \varepsilon \frac{k_d}{k_p})$, in Rückwärtsrichtung ($\varepsilon = -1$) werden die HFS-Komponenten über einen weiten Frequenzbereich verteilt. Dieser Sachverhalt ist in Abb. 5.4(a) für den Fall $\Delta E_1 = \Delta E_2$ dargestellt. Als Pumpübergang wird die erste HFS-Komponente der R(56)(32-0) angenommen. Dargestellt ist jeweils die Frequenzdifferenz $\Delta\omega_R$ der Ramanübergänge im Bezug auf die erste HFS-Komponente. In Vorwärtsrichtung kommt es für den Fall $k_d \approx k_p$ zu einer starken Überlagerung der einzelnen Profile. Bei $\frac{k_d}{k_p} \approx 0,96$ ist die Aufspaltung zwischen der ersten und letzten Hyperfeinkomponente nur 35 MHz, bei $\frac{k_d}{k_p} \approx 0,70$ beträgt die Aufspaltung $\Delta\omega_R$ bereits 265 MHz, so daß hier die eng benachbarten Komponenten a_2 und a_3 auf dem Ramanübergang trennbar werden sollten. Der Frequenzabstand auf dem Ramanübergang zwischen den Komponenten a_2 und a_3 beträgt bei 13.000 cm^{-1} 8 MHz (auf dem Pumpübergang 25 MHz). Im infraroten Bereich bei $\frac{k_d}{k_p} \approx 0,4$ ist die Aufspaltung zwischen der ersten und der letzten HFS-Komponente auf 515 MHz angewachsen. Abb. 5.4(b) zeigt die Situation in Rückwärtsrichtung. Hier ergibt sich genau das umgekehrte Verhalten. Die Aufspaltung nimmt mit kleiner werdendem $\frac{k_d}{k_p}$ ab.



(a) Aufspaltung in Vorwärtsrichtung

(b) Aufspaltung in Rückwärtsrichtung

 Abbildung 5.4.: Aufspaltung der einzelnen HFS-Komponenten auf dem Ramanübergang relativ zur ersten HFS-Komponente der R(56)(32-0) für den Fall $\Delta E_1 = \Delta E_2$.

Bei $\frac{k_d}{k_p} \approx 1$ erstrecken sich die einzelnen HFS-Komponenten über einen Bereich von 1680 MHz. Selbst eng benachbarte Komponenten werden getrennt. Die Aufspaltung im infraroten Bereich bei $\frac{k_d}{k_p} \approx 0,4$ beträgt 1200 MHz.

Da die einzelnen HFS-Übergänge als unabhängig voneinander betrachtet werden können, ist die Berücksichtigung der HFS-Aufspaltung im Verstärkungskoeffizienten (Gl.(5.1) und in den Linienformfunktionen in Gl.(5.6) und Gl.(5.7) einfach. Der Verstärkungskoeffizient für den Ramanübergang ergibt sich dann aus der Summe der einzelnen Ramanübergänge als Funktion von Pump- und Ramanverstimmung. Der Verstärkungskoeffizient lautet dann

$$\alpha_d = -\frac{\sigma_d k_d}{\pi} \frac{P}{P+1} \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_3} \left[\left[1 - \frac{A_{32}}{\gamma_2} \right] \bar{F} + \frac{\gamma_3}{2\gamma_{13}} \bar{G} \right] \quad (5.17)$$

$$\text{mit } \bar{F} = \Sigma_F n_F \int_{-\infty}^{\infty} \delta_{13}^P \frac{Z\gamma_{12} + RQ}{Z^2 + Q^2} \exp(-(v/v_m)^2) dv \quad (5.18)$$

$$\bar{G} = \Sigma_F n_F \int_{-\infty}^{\infty} \delta_{13}^P \frac{Z\gamma_{13} - TQ}{Z^2 + Q^2} \exp(-(v/v_m)^2) dv \quad . \quad (5.19)$$

n_F ist hierbei die Anzahl der Moleküle im Zustand F mit $\sum n_F = n_1$ (n_1 ist die Besetzung im Zustand $|1\rangle$). Alle andere Funktionen und Parameter werden im Anhang A definiert.

5.1.2. Makroskopische Verstärkung

Durch Summation aller mikroskopischen Verstärkungskoeffizienten entlang des Mediums kann die makroskopische Verstärkung V berechnet werden. Der Verstärkungsgewinn $(V - 1)$ in einem Medium der Länge L ist gegeben durch

$$V - 1 = \exp\left(\int_0^L -\alpha_d dz\right) - 1 \quad . \quad (5.20)$$

Die z -Abhängigkeit ergibt sich aus der Variation der Pumpleistung bedingt durch Absorption der Pumpstrahlung, sowie Änderung des Durchmessers der Pumpstrahlung. Auf die Beschreibung der Pumpabsorption wird ausführlich im folgenden Abs. 5.1.3 eingegangen und in Abs. 6.3 durch Experimente verifiziert. Für die Berechnung der makroskopischen Verstärkung wird das Medium in 100 Strecken gleicher Länge geteilt und die einzelnen Verstärkungsbeiträge aufsummiert. Der makroskopische Verstärkungsgewinn ergibt sich dann zu

$$V - 1 = \exp\left(-\sum_{m=1}^{100} \alpha_d(P(z_m))\right) - 1 \quad . \quad (5.21)$$

$P(z_m)$ ist dabei der Pumpparameter an der Stelle z_m . Die Berechnung der Profile erfolgt durch numerische Integration von Gl.(A.72) in Anhang A. Hierzu wurde ein Rechenprogramm entwickelt, das mit numerischen Integrationsalgorithmen den Verstärkungskoeffizienten berechnet. Die notwendigen Daten zur Berechnung der Verstärkung (z.B. Aufspaltung der Hyperfeinstruktur, Übergangsfrequenz des Ramanübergangs, $P(z_m), \dots$) werden durch eine Eingabedatei an das Programm übergeben. Die Verstärkungsgleichung wird für einen wählbaren Bereich der Ramanverstimmung frequenzabhängig ausgewertet und der Verstärkungskoeffizient als Ergebnis an das Programm zurückgegeben. Die erhaltenen Ergebnisse werden als makroskopische Verstärkung frequenzabhängig in eine Ausgabedatei geschrieben.

5.1.3. Modellierung der Pumpabsorption

Für die Bestimmung des Verstärkungskoeffizienten bzw. der makroskopischen Verstärkung ist die Kenntnis des Pumpparameters bzw. der Pumpabsorption entlang des Mediums von Bedeutung. Zur Modellierung von Pumpparameter und Absorption entlang des Mediums wird die Propagation der Pumpstrahlung, sowie ein makroskopisches Modell für die Absorption benötigt (siehe auch Abb. 5.5). Als Grundlage für die später vorgestellten Absorptionsrechnungen dient die Arbeit von Forkey u. a. [1997], in der ein Absorptionsmodell für geringe Pumpleistungen vorgestellt wird, das hier entsprechend erweitert wurde.

Für den Verlauf des Strahlradius der Pumpstrahlung im Medium wird Gauß'sche Strahlpropagation angenommen [Kogelnik und Li 1966], d.h.

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{\pi w_0^2} \right)^2}, \quad (5.22)$$

wobei w_0 der Fokusbereich der Pumpstrahlung ist, z der Abstand vom Fokus und λ die Pumpwellenlänge. Für die Berechnung der makroskopischen Absorption entlang des Mediums wurde die Absorption für jede Hyperfeinkomponente i für jeden infinitesimalen Schritt

$$\frac{dI(\nu)}{I(\nu)} = -\alpha(I(\nu)dl) \quad (5.23)$$

berechnet. Hierbei sind $I(\nu)$ und $I_0(\nu)$ die transmittierte bzw. eingestrahlte Leistung mit der Frequenz ν , l ist der zurückgelegte Absorptionsweg in der Zelle, α_i beschreibt den intensitätsabhängigen Absorptionskoeffizienten für die i .te Hyperfeinkomponente und $g_i(\nu)$ gibt das Linienformprofil der Absorption an.

Der Absorptionskoeffizient ergibt sich nach [Tellinghuisen 1982] folgendermaßen:

$$\alpha_i = \frac{8\pi^3}{3hc} \nu_i \left(\frac{1}{\sqrt{1+P}} \right) \left(\frac{S_{J',J''}}{2J''+1} \right) N_{\nu'',J''} G_{ab} |\mu_e(R)|^2 |\langle v''(J'') | v'(J') \rangle|^2 \quad (5.24)$$

h ist hier das Plank'sche Wirkungsquantum, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit, ν_i die Frequenz der i .ten Hyperfeinkomponente, und P gibt das Verhältnis von Pumpintensität zu Sättigungsintensität an (Definition siehe (A.53) und (A.56) auf Seite 154). G_{ab} ist

der elektronische Entartungsfaktor der sich beim Jodmolekül zu 1 ergibt ($\Omega = 0$). $N_{v'',J''}$ ist die Anzahldichte der I_2 -Moleküle im Grundzustand mit den Quantenzahlen v'' und J'' . Der Wert von $N_{v'',J''}$ wurde numerisch durch eine Boltzmann-Verteilung bestimmt. Alle anderen Faktoren wurden bereits in Kapitel 3 erläutert. Für die Bestimmung der Linienformfunktion müssen natürliche Linienbreite, Druck-, Flugzeit- und Sättigungsverbreiterung berücksichtigt werden, wodurch die Linienform als Faltung aller Mechanismen durch ein Voigt-Profil beschrieben werden muß. Da die Dopplerverbreiterung der dominierende Verbreiterungsmechanismus ist, werden alle homogenen Verbreiterungsmechanismen vernachlässigt und die Linienform kann somit als Gauß-Profil angenommen werden, wodurch der numerische Aufwand erheblich verringert wird. Die Linienformfunktion $g_i(\nu)$ ergibt sich dann zu [Steinfeld 1981]

$$g_i(\nu) = \frac{2}{\Delta\nu_i} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \exp\left(-4 \ln 2 \left(\frac{\nu - \nu_i}{\Delta\nu_i}\right)^2\right) . \quad (5.25)$$

Die Halbwertsbreite $\Delta\nu_i$ (FWHM) von $g_i(\nu)$ ist hierbei gegeben durch:

$$\Delta\nu_i = \nu_i \sqrt{\frac{8kT \ln 2}{m}} , \quad (5.26)$$

k ist hier die Boltzmann Konstante und m die Masse des I_2 -Moleküls. Die Transmission der Zelle läßt sich durch Summation über alle Hyperfeinkomponenten im betrachteten Frequenzbereich bestimmen:

$$\frac{dI(\nu)}{I(\nu)} = - \sum_{i=1}^m \alpha_i g_i(\nu) dl \quad (5.27)$$

An das Rechenprogramm werden der zu berechnende Frequenzbereich, die Zelllänge, die Temperatur von Zelle und Seitenarm, die Strahlparameter der Pumpstrahlung und die eingestrahlte Leistung am Anfang der Zelle übergeben. Das Programm berechnet aus den bekannten Moleküldaten zunächst die Übergangsfrequenzen und Aufspaltungen auf Grund der Hyperfeinstrukturwechselwirkungen und anschließend die Transmission der Zelle. Als Ausgabe erhält man die Transmission der Zelle für den gewählten Frequenzbereich, wobei die Gesamtlänge der Zelle in 100 äquidistante Stücke zerlegt wird. Desweiteren bietet das Programm die Möglichkeit, die Leistungsdichte der Pumpstrahlung sowie den Verlauf des Pumpparameters frequenz- und orts aufgelöst auszugeben.

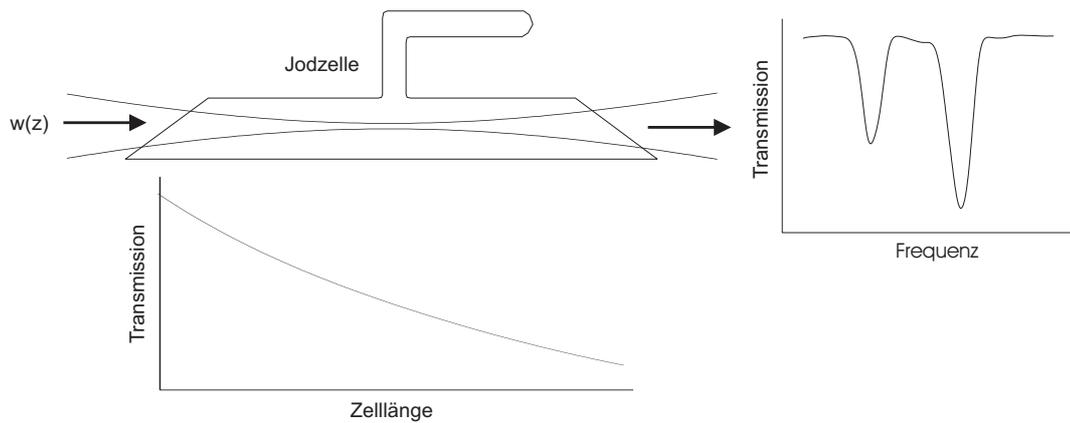


Abbildung 5.5.: Modellierung der Pumpabsorption in der Jodzelle. Die Transmission wird frequenz- und orts aufgelöst berechnet.

Die Ausgabedateien des Programms werden für die Berechnung der Verstärkungsprofile verwendet. Einen Vergleich zwischen numerischer Simulation der Absorption und experimentellen Ergebnissen findet man in Abschnitt 6.3.

6. Experimentelle Untersuchungen

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen vorgestellt. Bevor über die Untersuchungen an kontinuierlichen Jod-Ramanlasern in Ringresonatoren, gepumpt mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser berichtet wird, die sich in der verwendeten Pumpleistung und den Längen des Mediums deutlich von den bisherigen Jod-Ramanlaser Experimenten (wie in Tab. 2.2 auf Seite 24) mit Argon-Ionen-Lasern unterscheiden, werden zunächst einige Voruntersuchungen in einfach realisierbaren Stehwellenresonatoren vorgestellt. Die Ergebnisse des Stehwellenbetriebs findet man im Abschnitt 6.1. Diese Experimente treffen lediglich Aussagen über den Emissionsbereich der Ramanlaser und geben erste Auskunft über die Betriebsparameter, unter denen Ramanlaseremission möglich ist. Auf weitergehende Untersuchungen des Stehwellenbetriebes der Ramanlaser wurde verzichtet, da der Stehwellenresonator im experimentellen Aufbau zwar einfach zu realisieren, die theoretische Beschreibung allerdings problematisch ist. In Resonatoren kann sich nur dann eine stabile Oszillation aufbauen, wenn die erzeugte Strahlung mit einer Resonatormode resonant ist. Für den Fall, daß die durch den Pumpprozess im Medium erzeugte spektrale Verteilung des Verstärkungsprofils klein gegen den Modenabstand des Resonators ist, kann Laseremission im Einfrequenz-Betrieb erreicht werden. Im Stehwellenresonator führt das vorwärts- und rückwärtspropagierende Feld allerdings zu einer räumlich festen Feldverteilung mit Knoten und Bäuchen im Resonator. In den Knoten hat das elektromagnetische Feld eine verschwindende Intensität, wodurch an diesen Stellen die erzeugte Verstärkung nicht abgebaut wird, was zu einer effektiven Verringerung der möglichen Gesamtverstärkung führt. Für diese Situation ist die räumliche Feld- bzw. Besetzungsverteilung im Resonator theoretisch schwer zu beschreiben und wird in der Literatur nur empirisch in Resonatortheorien eingeführt. In Ringresonatoren liegt eine einfachere Situation vor, wenn ein Einrichtungs-Wanderwellen-Betrieb realisiert werden kann. Dies ist möglich, wenn das Verstärkungsprofil anisotrop bezüglich der Vorwärts- bzw.

Rückwärtsrichtung ist oder eine Richtungsasymmetrie erzeugt wird. Im Jodmolekül kann über einen weiten Spektralbereich eine solche Richtungsasymmetrie durch die Pumpstrahlung auf Grund der Ramanverstärkung erzeugt werden. Hierbei bildet sich das erzeugte Feld als Wanderwellenfeld aus, und das gesamte Medium kann zur Verstärkung beitragen. Die theoretische Beschreibung kann durch die in Abs. 5 vorgestellte Theorie erfolgen. Deshalb werden anschließend Aufbauten und Experimente in Ringresonatoren vorgestellt, die einen Einrichtungs-Wanderwellen-Betrieb der Laser und durch entsprechende Frequenzselektion auch Single-Mode-Betrieb der Ramanlaser ermöglichen. Um den Betrieb der Ramanlaser mit theoretischen Vorhersagen vergleichen zu können, ist neben der Messung der Eigenschaften der Ramanlaserstrahlung auch die Charakterisierung der Pumpstrahlung im Medium (insbesondere Strahlpropagation und Absorption der Pumpstrahlung) notwendig. Deshalb werden im Anschluß an die Beschreibung der Single-Mode-Ramanlaser, Ergebnisse zur Strahlpropagation und zur Absorption der Pumpstrahlung diskutiert und mit der Theorie zur Absorption aus Abs. 5.1.3 verglichen. Anschließend werden die Eigenschaften der Ramanlaser in Ringresonatoren zusammengefaßt und soweit möglich die experimentellen Ergebnisse mit der Theorie verglichen und diskutiert, sowie Experimente zur Untersuchung der spektralen Breite und Stabilität der Ramanlaser vorgestellt.

6.1. Multi-Line-Laserbetrieb in Stehwellenresonatoren

Für erste Untersuchungen an den Ramanlasersystemen wurden einfach aufzubauende lineare Stehwellenresonatoren verwendet. Das Jod in spektroskopischer Reinheit (isotopenreines $^{127}\text{I}_2$) befindet sich dabei in Quarzglaszellen mit einem Innendurchmesser des Zellkörpers von 25 mm und Längen von 60, 100 und 150 mm [PTB]. Die Zellen wurden von der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig befüllt. Die Endflächen der Quarzglaszellen sind zur Minimierung von Reflexionsverlusten unter dem Brewster-Winkel angeordnet. Durch den großen Innendurchmesser des Zellkörpers läßt sich die effektive Absorptionslänge um ± 15 mm variieren. Seitlich an der Zelle befindet sich ein temperaturstabilisierter Seitenarm zum Einstellen des Joddampfdrucks im Zellkörper. Die Stabilität der Seitenarmtemperatur wird über einen Temperaturregler [Richling 1990] mit einer Regelgenauigkeit von einigen mK gewährleistet. Der Zellkörper befindet sich in einem elektrisch beheizbaren Metallgehäuse, um bei Betrieb des Seiten-

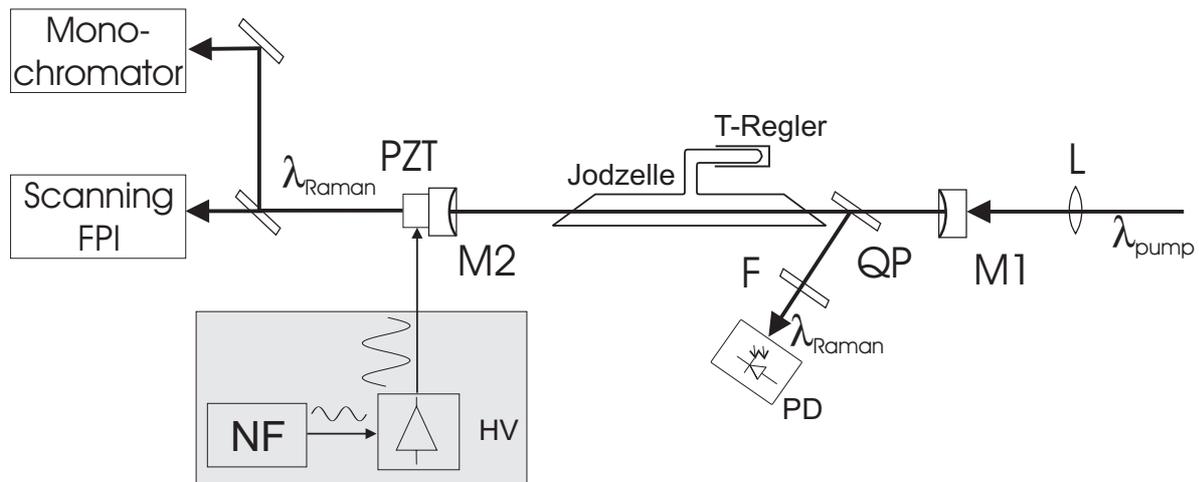


Abbildung 6.1.: Aufbau eines Multi-Line-Lasers im Stehwellenbetrieb. λ_{pump} , λ_{Raman} : Pump- bzw. Ramanlaserstrahlung, M1, M2: konkave Resonatorspiegel (M1 transparent für die Pumpstrahlung), QP: Quarzplatte zur Auskopplung, F: OG590 Filter zur Absorption der Pumpstrahlung, PD: Photodiode, PZT: Piezo-Tubus, T-Regler: Temperaturstabilisierung des Seitenarms der Jodzelle, NF: Niederfrequenz-Sinusgenerator, HV: Hochspannungsverstärker.

arms bei Temperaturen oberhalb der Zimmertemperatur Sublimation des Jods an den Brewster-Fenstern des Zellkörpers zu verhindern. Der Zellkörper läßt sich auf maximal 330 K aufheizen.

Der optische Resonator wird von zwei konkaven Spiegeln (M1, M2 in Abb. 6.1) gebildet, die für die erzeugte Ramanlaserstrahlung hochreflektierend sind. Der Einkoppelspiegel M1 ist transparent für die Pumpstrahlung bei 532 nm. Soweit vorhanden wurden für die Einkopplung der Pumpstrahlung in den Resonator Meniskuslinsen mit $r = -f$ verwendet, um die defokussierende Wirkung der konkaven Spiegelfläche von M1 in Transmission zu kompensieren. Da nicht für alle Experimente geeignete Meniskuslinsen zu Verfügung standen, wurden für die Einkopplung der Pumpstrahlung auch plan/konkav Optiken verwendet. Die defokussierende Wirkung des Resonatorspiegels M1 wurde dann durch eine Konvexlinse vor dem Resonator kompensiert. Zur Variation der Resonatorlänge ist der Spiegel M2 auf einem Piezo-Tubus montiert, dessen Länge durch einen Niederfrequenzgenerator und einen Hochspannungsverstärker sinusförmig moduliert werden kann. Die Stehwellenresonatoren wurden größtenteils im Multi-Line-Laserbetrieb verwendet. Single-Line-Laserbetrieb wurde nur in Einzelfällen durch weitere frequenzselektive Ele-

mente realisiert. Die erzeugte Ramanlaserstrahlung kann am Spiegel M2 ausgekoppelt und mit Hilfe eines Sanning Fabry–Perot und eines Monochromators [Yvon] untersucht werden. Durch Einbringen einer dünnen Quarzplatte in den Resonator kann die erzeugte Ramanlaserstrahlung variabel ausgekoppelt und zur weiteren Analyse verwendet werden. Zur Detektion der ausgekoppelten Ramanlaserstrahlung wurden im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich (bis $\approx 1 \mu\text{m}$) Silizium–Photodioden vom Typ S4011-02 [Si-Photodiodes 1998] verwendet. Für Wellenlängen oberhalb dieses Bereichs wurden InGaAs–Photodioden (Thorlabs PDA255 [Thorlabs 2002]) eingesetzt. Die Detektion am Austrittsspalt des Monochromators erfolgte im sichtbaren Spektralbereich mit einem Photomultiplier (Hamamatsu Typ R1509 [Tubes 1997]) und im nahinfraroten (ab 850 nm) mit InGaAs–Photodioden (Hamamatsu Typ G5832-01 [Infrared-Detectors]) und einer entsprechenden Verstärkerelektronik.

In Abb. 6.2 ist ein Multi–Line–Spektrum eines Stehwellenresonators für den nahinfraroten Bereich abgebildet. Im unteren Teil der Abbildung ist das Fluoreszenzspektrum für $v' = 32, J' = 57$, wie es sich aus den Molekülparametern für den Bereich von $v'' = 22$ bis $v'' = 38$ ($\approx 14.500 - 11.500 \text{ cm}^{-1}$) ergibt, dargestellt. Der obere Teil der Abbildung zeigt das gemessene Spektrum am Austrittsspalt des Monochromators. Verwendet wurde eine 15 cm lange Jodzelle, bei einer Seitenarmtemperatur von 300 K, die Pumpleistung betrug 300 mW. Die verwendeten Spiegel haben einen Krümmungsradius von $r = -713 \text{ mm}$ (Resonatorlänge: 350 mm) und sind für den Bereich von 690–870 nm ($\hat{=} 14.500 - 11.500 \text{ cm}^{-1}$) hochreflektierend mit maximaler Reflexion bei 780 nm. Um alle Laserübergänge im Resonator zum Anschwingen zu bringen, wurde der Laserresonator während der Messung durch den eingebauten Piezo stark moduliert. In Abb. 6.2 erkennt man, daß auf 8 der 16 in diesem Bereich liegenden Vibrationsendniveaus des Laserzykluses Laseremission ($v'' = 24, 26, 29, 31, 33, 35, 37, 38$) realisiert werden konnte, wobei die Intensität der Laseremission auf dem Vibrationsendniveaus $v'' = 31$ und $v'' = 33$ besonders stark ist, was zum einen auf die maximale Reflektivität des Spiegelsatzes in diesem Bereich, zum anderen auf ein lokales, wenn auch nicht besonders ausgeprägtes Maximum der Franck–Condon–Faktoren zurückzuführen ist. Die fehlende Laseremission auf dem Übergang $v'' = 22$ ist vermutlich auf die bereits zu geringe Reflektivität (Resonatorverluste $>$ Verstärkungsgewinn) des Spiegelsatzes zurückzuführen. Genaue Untersuchungen zum beobachteten Intensitätsverlauf bzw. zur Ausgangsleistung der einzelnen Laserübergänge in Abb. 6.2 wurden nicht unternommen, da zu viele nicht genau

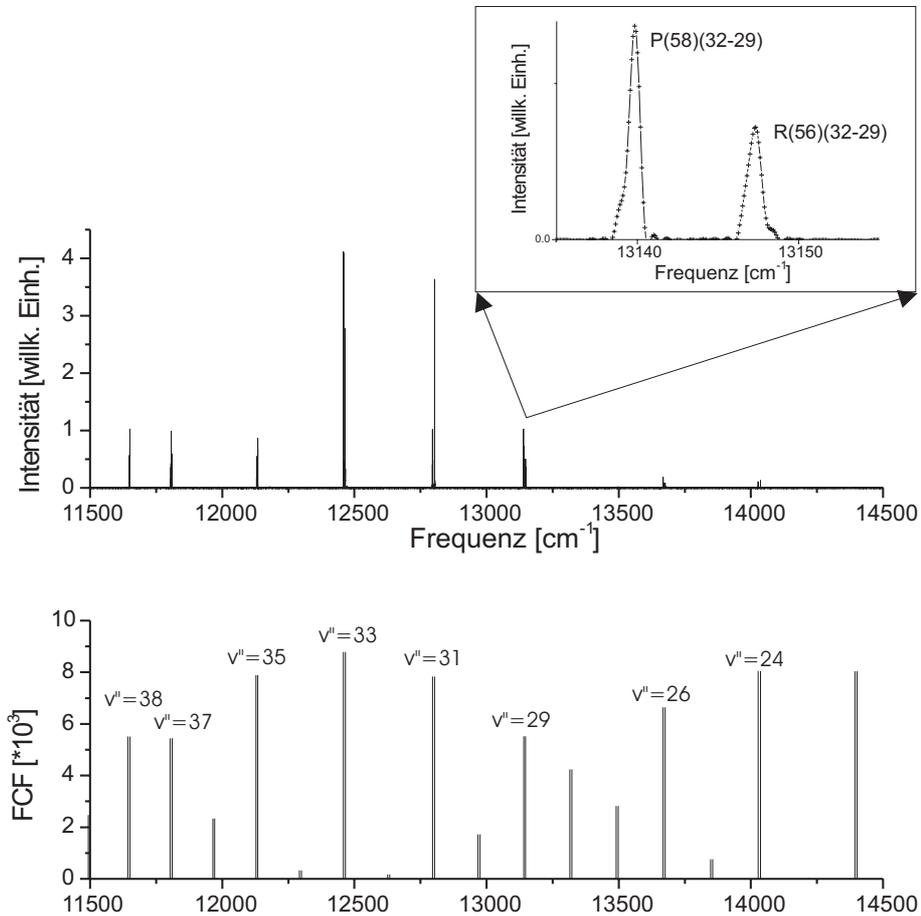


Abbildung 6.2.: Oberer Teil der Abbildung: Gemessenes Multi-Line-Spektrum eines Stehwellenresonators im Bereich von 690 nm (14500 cm^{-1}) bis 870 nm (11500 cm^{-1}). Der verwendete Spiegelsatz ist hochreflektierend für den Bereich 650 nm bis 850 nm. Die Spiegel hatten einen Krümmungsradius von $r = -713 \text{ mm}$ und bildeten einen linearen Stehwellenresonator der Länge 350 mm. Die Länge des aktiven Mediums betrug 15 cm, die Seitenarmtemperatur 300 K. Als Pumpübergang wurde der R(56)(32-0) Übergang bei einer eingestrahelten Pumpleistung von 300 mW verwendet. Die Vergrößerung zeigt die gemessene Laseremission auf dem Übergang $v' = 32, J' = 57 \rightarrow v'' = 29, J'' = 56, 58$. Die gemessene spektrale Breite ergibt sich aus der Spaltbreite von Eingangs- und Ausgangsspalt des Monochromators. Unterer Teil der Abbildung: Franck-Condon-Faktoren des $^{127}\text{I}_2$ für den Übergang von $v' = 32, J' = 57$ in den Grundzustand. Dargestellt ist der Bereich von $v'' = 22$ bis $v'' = 38$.

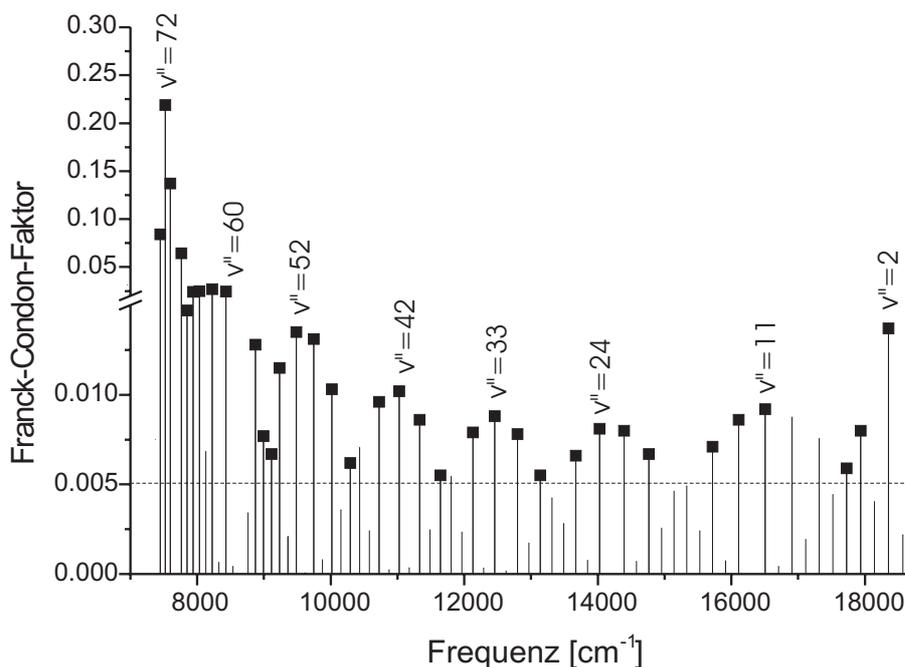


Abbildung 6.3.: Realisierte Ramanlaser am Beispiel des R(56)(32-0) als Pumpübergang. Dargestellt ist das berechnete Fluoreszenzspektrum von $v'' = 1$ bis $v'' = 73$. Die realisierten Ramanlaser sind durch ausgefüllte Quadrate gekennzeichnet. Die gestrichelte Linie markiert den minimalen Franck–Condon–Faktor für den Ramanlaserbetrieb unter den im Text genannten Bedingungen möglich ist.

bekannte Parameter die gemessene Intensität beeinflussen (z.B. der Einfluß der Resonanzmodulation auf das Anschwingverhalten und die Dauer der Oszillation der einzelnen Laserübergänge, die Zeitkonstanten des verwendeten Detektionssystems und der präzise Verlauf der Spiegelreflektivitäten in Abhängigkeit von der Wellenlänge). Detaillierte Untersuchungen zur Ausgangsleistung und zum Schwellverhalten der Laserübergänge sind nur im stabilen Single–Line–Betrieb der Resonatoren sinnvoll. Die hier vorgestellten Experimente im Multi–Mode–Stehwellenbetrieb treffen qualitative Aussagen über den Realisierungsbereich und die Betriebsbedingungen für Ramanlaseremission. Im folgenden sollen die Ergebnisse des Betriebs der Ramanlaser im Stehwellenresonator zusammengefaßt werden:

Unter Verwendung verschiedener breitbandiger Spiegelsätze konnte im Multi–Line–Laserbetrieb im Bereich von $v'' = 2$ (544 nm) bis $v'' = 73$ (1343 nm) Laseremission

erreicht werden. Eine Auflistung der genauen Ramanlaserfrequenzen am Beispiel des Pumpübergangs R(56)(32-0) findet man in Tabelle C.1 im Anhang C. Pro Pumpübergang konnte auf 68 Übergängen (34 Vibrationsübergänge, jeweils P- und R-Zweig der Übergänge) Laseremission erreicht werden. Bei mehr als 10 geeigneten Pumpübergängen im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers im $^{127}I_2$ ergeben sich daher mehrere Hundert mögliche Ramanlaserübergänge. Die Situation ist in Abb. 6.3 nochmals für den gesamten realisierbaren Spektralbereich der Laseremission am Beispiel des Pumpübergangs R(56)(32-0) verdeutlicht. Dargestellt ist das theoretisch berechnete Fluoreszenzspektrum. Die Übergänge, auf denen Laseremission realisiert werden konnte sind mit ausgefüllten Quadraten gekennzeichnet. In Abb. 6.3 erkennt man, daß nahezu alle Vibrationsendniveaus mit einem Franck-Condon-Faktor größer $5 \cdot 10^{-3}$ zur Laseremission gebracht werden konnten. Ausnahmen stellen die Vibrationsendniveaus $v'' = 7, 9, 46, 63$ dar. Das Ausbleiben der Laseremission ist nicht auf prinzipiell physikalische Ursachen zurückzuführen, vielmehr ist die nicht hinreichende Reflektivität der verwendeten Spiegelsätze über den gesamten Spektralbereich als Ursache zu sehen. Der Einsatz geeigneter Spiegel sollte die Lücken im Spektrum schließen. Als mögliche physikalische Ursachen kommen folgende Effekte in Betracht: Reabsorption der erzeugten Ramanlaserstrahlung auf dem Übergang $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ oder zufällige Koinzidenz der Ramanlaserstrahlung mit thermisch besetzten, aber am Laserzyklus nicht beteiligten Niveaus. Reabsorption der erzeugten Laserstrahlung auf dem Laserübergang ist nur für Rotationsvibrationsniveaus in der Nähe des Grundzustandes von Bedeutung, da hierfür thermische Besetzung der Niveaus notwendig ist. Da aber bereits für $v'' = 2$ (Anteil an der thermischen Besetzung 8%) Laseremission möglich ist, kann dies nicht die Ursache für das Ausbleiben der Laseremission insbesondere bei $v'' = 7$ und $v'' = 9$ sein, da die thermische Besetzung bereits nur noch 0,05% bzw. 0,006% beträgt. Zufällige Koinzidenz der erzeugten Laserstrahlung mit Absorptionsübergängen, die von thermisch besetzten Rotationsvibrationsübergängen starten und zu einer Verringerung der Verstärkung führen, konnten für $v'' = 7$ und $v'' = 9$ durch Berechnung des Absorptionsspektrums für den betreffenden Frequenzbereich ausgeschlossen werden. Aber auch die Absorption der erzeugten Ramanlaserstrahlung in ungebundene Zustände (z.B. $1u(^1\Pi)$) bzw. die Absorption aus dem angeregten Zustand in höher gelegene dissozierende Zustände als Verlustmechanismus können in Betracht gezogen werden, sollen aber nicht weiter diskutiert werden. Bei $v'' = 46, 63$ kommen Reabsorption der Ramanlaserstrahlung sowie zufällige Koinzidenz mit einem anderen Niveau aufgrund der dafür notwendigen thermi-

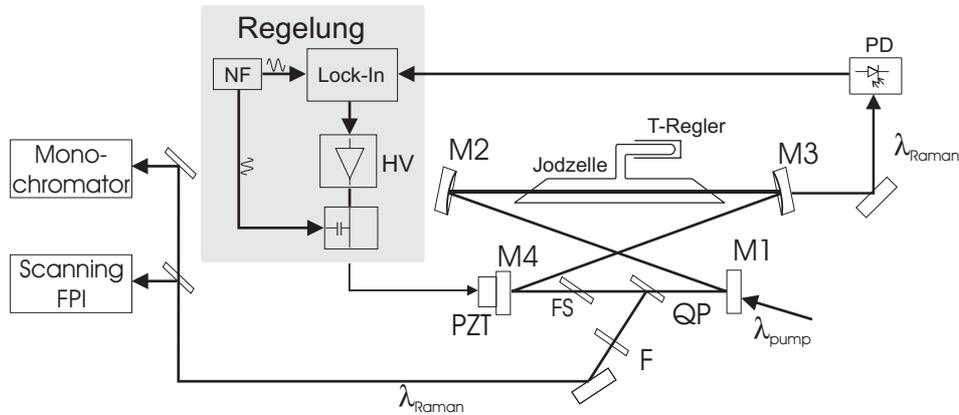
schen Besetzung der Niveaus als Verlustmechanismus nicht in Betracht.

Neben dem Ramanlaserbetrieb in isotopenreinem $^{127}\text{I}_2$ wurden auch in zwei zur Verfügung stehenden Zellen mit einem Gemisch aus $^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$ (siehe Absorptionsspektrum in Abb.4.5 und Tabelle 4.2 und mit Absorptionsübergängen des $^{129}\text{I}_2$ und $^{127}\text{I}^{129}\text{I}$) zahlreiche Ramanlaser betrieben. In beiden Isotopomeren konnte Laseremission von $v'' = 2$ an erreicht werden. Einige der realisierten Ramanlaser sind im Anhang C in den Tabellen C.2 und C.3 zu finden.

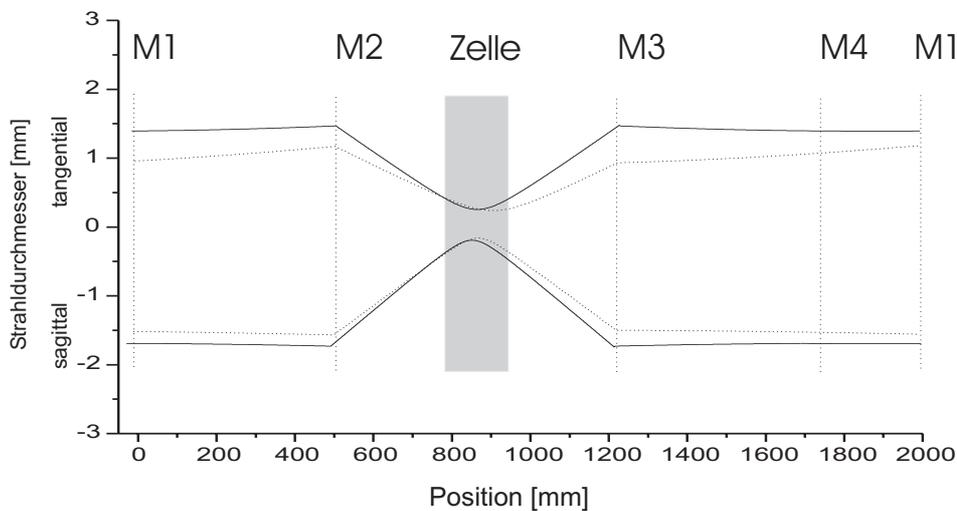
6.2. Single-Mode-Laserbetrieb in Ringresonatoren

6.2.1. Aufbau der Resonatoren

Die Ringresonatoren werden in einer gefalteten Geometrie (auch als Doppel-Z-Anordnung bezeichnet) nach Abbildung 6.4(a) mit zwei konkaven Spiegeln (M2, M4) und zwei planen (M1, M4) Spiegeln realisiert. Analog zum Stehwellenresonator sind alle Spiegel für die Ramanlaserstrahlung hochreflektierend, der Spiegel M1 ist außerdem transmittierend für die Pumpstrahlung, die von M2 in die Zelle fokussiert wird, entsprechend ist M2 für die Pumpstrahlung möglichst hochreflektierend. Die Jodzellen werden in gleicher Weise betrieben, wie es bereits im Abschnitt 6.1 beschrieben wurde. Auch die Detektion mittels Fabry-Perot und Monochromator ist identisch mit den in Abschnitt 6.1 verwendeten Geräten. Die elektronische Regelung des Resonators wird in Abschnitt 6.2.2 detailliert beschrieben. Die hier verwendete gefaltete Geometrie des Resonators hat den Vorteil der Minimierung des Astigmatismus bei nicht senkrechtem Einfall auf die gekrümmten Spiegelflächen, der zu elliptischen Strahlprofilen im Resonator führt. Dies soll im folgenden kurz erläutert werden. Die Fokusslänge in der Ebene des Resonators (tangente Ebene, parallel zur Oberfläche des optischen Tisches) ändert sich um $f \cdot \cos(\varphi/2)$ (φ Einfallswinkel zum Lot), in der Ebene senkrecht dazu (sagittale Ebene) um $f/\cos(\varphi/2)$, was als Astigmatismus bezeichnet wird. Mit größer werdendem Einfallswinkel steigt somit die Differenz zwischen dem Fokus in tangentialer und sagittaler Richtung, was zu unterschiedlichen Stabilitätsbedingungen für die beiden Ebenen führt [Kogelnik und Li 1966]. Die Faltung des Resonators, wie in Abb. 6.4(a) dargestellt ist, ermöglicht es die Einfallswinkel auf die konkaven Spiegel klein zu halten. Beim Aufbau der Resonatoren



(a) Aufbau eines Single-Mode-Lasers im Ringresonator. λ_{pump} , λ_{Raman} : Pump- bzw. Ramanlaserstrahlung, M2, M3: konkave Resonatorspiegel, M1, M4: plane Resonatorspiegel (M1 transparent für die Pumpstrahlung), QP: Quarzplatte zur Auskopplung, F: OG590 Filter zur Absorption der Pumpstrahlung, FS: Frequenzselektives Element (doppelbrechendes Filter oder hochtransmittierendes Interferenzfilter), PD: Photodiode, PZT: Piezotubus, T-Regler: Temperaturstabilisierung des Seitenarms der Jodzelle. Die Regelung besteht aus folgenden Komponenten: NF: Niederfrequenz-Sinusgenerator, HV: Hochspannungsverstärker, Lock-In: Lock-In Verstärker.



(b) *durchgezogene Linie*: Durchmesser der TEM_{00} -Mode im Ringresonator in tangentialer und sagittaler Ebene für einen Resonator mit zwei fokussierenden Spiegeln M2, M3 mit $r = -713 \text{ mm}$ in einem Abstand von 725 mm . Der Gesamtumfang des Resonators beträgt 2000 mm . Das grau unterlegte Feld zeigt die Position der Jodzelle im Resonator an.
gestrichelte Linie: Verlauf der Pumpstrahlung im Resonator für einen Spiegel mit $r = -713 \text{ mm}$ (Vergleiche auch Abs. 6.3).

Abbildung 6.4.: Aufbau eines Single-Mode-Lasers als Ringresonator und Verlauf der Raman- und Pumpstrahlung im Resonator.

limitieren die Abmessungen der Zelle und der Spiegelhalter die minimal möglichen Winkel, so daß im Experiment Einfallswinkel zwischen 7° und 10° zum Lot realisiert werden können. Dadurch liegt die Änderung der effektiven Brennweite in beiden Ebenen des Resonators bei weniger als 2% und die Auswirkungen auf die Stabilität des Resonators in beiden Ebenen können gering gehalten werden. In Abb 6.4(b) ist der Durchmesser der TEM_{00} -Mode innerhalb eines typischen Resonators bei 800 nm ortsabhängig dargestellt. Verwendet werden als fokussierende Elemente zwei Konkavspiegel mit $r = -713$ mm in einem Abstand von 725 mm. Der Gesamtumfang des Resonators beträgt 2000 mm, wobei der Abstand zwischen M1 und M4 mit 240 mm so gewählt wurde, daß in diesem Bereich ein frequenzselektives Element (FS in Abb. 6.4(a)) in den Strahlengang eingebracht werden kann. In dieser Geometrie ergibt sich ein Einfallswinkel von 8° auf die Spiegel. Da der Abstand zwischen M2 und M3 nur geringfügig größer als der verwendete Krümmungsradius der Spiegel ist, wird die TEM_{00} -Mode zwischen beiden Spiegeln stark fokussiert, was eine Folge der nahezu konfokalen Anordnung der beiden Konkavspiegel ist. In tangentialer Richtung ergibt sich an der Fokusposition ein Modendurchmesser von $260 \mu\text{m}$, in sagittaler von $210 \mu\text{m}$. Zwischen den Planspiegeln verläuft der Strahl nahezu kollimiert mit einem Durchmesser von $1400 \mu\text{m}$ in tangentialer und $1700 \mu\text{m}$ in sagittaler Richtung. Die Elliptizität der Lasermode ergibt sich damit zu $1 : 1,2$ und ist eine Folge des nicht senkrechten Einfalls auf die gekrümmten Spiegeloberflächen.

Der hier typischerweise verwendete Aufbau der Ringresonatoren mit einem Fokus zwischen den beiden Konkavspiegeln und weitgehend kollimiertem Strahl im übrigen Resonator bietet folgende Vorteile:

Um einen guten Überlapp zwischen dem Modenvolumen des Resonators und dem gepumpten Volumen innerhalb des Mediums zu erreichen, kann die Pumpstrahlung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers ohne weitere Anpassung des Laserstrahldurchmessers über die Spiegel M1 und M2 in den Resonator eingekoppelt und fokussiert werden. Dabei ist in beiden Ebenen der Strahlverlauf der Pumpstrahlung und damit das gepumpte Volumen gut an die TEM_{00} -Mode des Resonators angepaßt (siehe Abb. 6.4(b)). Die Pumpstrahlung wird in sagittaler Richtung auf $172 \pm 2 \mu\text{m}$ (Abb. 6.8(c) auf Seite 98) und in tangentialer Richtung auf $311 \pm 4 \mu\text{m}$ (Abb. 6.8(d)) fokussiert. Das Pumpvolumen ist allerdings etwas kleiner gewählt als das TEM_{00} -Volumen des Resonators innerhalb des Mediums, wodurch das Anschwingen höherer transversaler Moden erschwert wird. Genauere Ausführungen zur Strahlpropagation der Pumpstrahlung kann man in Abschnitt 6.3 ab Seite 96 im Zusammenhang mit der experimentellen Überprüfung des Absorp-

tionsmodells finden. Durch die weitgehende Kollimation der Lasermode im übrigen Teil des Resonators kann auf einfache Weise Laserstrahlung mit geringer Divergenz aus dem Resonator ausgekoppelt werden.

Da die verwendeten dielektrischen Bedampfungen der verwendeten Spiegel über einen größeren Wellenlängenbereich (typisch > 100 nm) hochreflektierend sind, können analog zum Stehwellenresonator im Ringresonator mehrere Laserübergänge anschwingen (siehe Abb. 6.2). Um Single-Mode-Betrieb des Resonators zu erreichen, wurden deshalb unterschiedliche Strategien verfolgt. Durch Kombination unterschiedlicher Spiegel mit nur teilweise überlappenden Bereichen hoher Reflektivität kann die Frequenzselektivität des Resonators erhöht werden. Dadurch kommt es im Idealfall zur Oszillation des Ramanlasers auf nur noch einem Vibrationsendniveau. Eine weitere Einschränkung des Oszillationsbereiches erfolgt durch Einbringen von frequenzselektiven Elementen zwischen den Spiegeln M1 und M4. Verwendet wurden hierzu schmalbandige Interferenzfilter hoher Transmission ($T \approx 99,5\%$) [Anders 2000], sowie ein 3-stufiges Lyot-Filter, das speziell für die Anwendung in Jod-Ramanlasern in Novosibirsk [Kobtsev 2000] gefertigt wurde. Eine umfassende Einführung in die Theorie der Lyot-Filter findet man in Pinnau [1990]. Durch diese Maßnahmen wird eine gezielte Auswahl eines Laserübergangs ermöglicht.

6.2.2. Stabilisierung des Ringresonators

Da die verwendeten Ringresonatoren typische Modenabstände von 150 MHz (angenommene Resonatorlänge 2 m) haben, die einzelnen induzierten Verstärkungsprofile aber deutlich schmaler sind, wirken sich kleine Änderungen in der Resonatorlänge, sowie Fluktuationen des Brechungsindizes der Luft (z.B. durch Luftströmungen) auf die Ausgangsleistung der erzeugten Ramanlaserstrahlung aus. Schwankungen der Ausgangsleistung von 100% auf Zeitskalen von weniger als einer Sekunde sind die Folge. Folglich müssen Änderungen der Resonatorlänge und alle weiteren Störungen durch eine geeignete Regelung kompensiert werden.

Zur Stabilisierung der Resonatorlänge wird ein Resonatorspiegel auf einem Piezo-Tubus montiert und die Länge des Piezos periodisch mit einem Sinusgenerator moduliert (Abb. 6.4(a)).

Bei den verwendeten Piezo-Tubussen handelt es sich um in Edelstahlgehäusen vorgespannte Piezos. Durch den Aufbau der Gehäuse werden Querkräfte (z.B. durch den am Piezo montierten Spiegel) kompensiert, wodurch sich eine gute Richtungsstabilität des Piezos ergibt. Desweiteren reagieren vorgespannte Piezo-Tubusse auf sprunghafte Spannungsänderungen linear und mit hoher Dämpfung, wodurch sie für Regelungszwecke besonders geeignet sind [Pickelmann 2001]. Die für die Regelung verwendete Modulationsfrequenz beträgt maximal 5 kHz, die Modulationsamplitude wird deutlich kleiner als die Halbwertsbreite des Verstärkungsprofils gewählt (ca. 300 kHz). Diese führt zu einer periodischen Modulation der Ausgangsleistung des Ramanlasers (siehe Abb. 6.5), die von einer Photodiode detektiert wird. Ein Lock-In richtet den gemessenen Wechselspannungsanteil der Photodiode phasempfindlich gleich und gibt das erzeugte Regelsignal an den Gleichspannungseingang eines Hochspannungsverstärkers, wodurch die Resonatorlänge durch den Piezo nachgeregelt wird und der Resonator mit dem Verstärkungsprofil in Resonanz gehalten wird. Da der Lock-In mit einem schmalbandigen Eingangsfilter ausgestattet ist, kann die Zeitkonstante des Lock-In entsprechend klein gewählt werden, wodurch die Regelung den Störungen des Resonators schnell folgen kann. Bei Betrieb des Lock-In mit Zeitkonstanten von 1 ms oder minimaler Zeitkonstante wurden die besten Stabilisierungsergebnisse erzielt. In Abb. 6.6 ist der Einfluß der Stabilisierung auf die Ausgangsleistung graphisch dargestellt. Für den Bereich von 0 bis 400 s (Bereich I) sind die Regelkreise für den frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser und für die Stabilisierung des Ringresonators geschlossen, die Ausgangsleistung des Ramanlasers schwankt um etwa 5%. Von 400 bis 800 (Bereich II) ist die Stabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers ausgeschaltet. Die Frequenz des Pumplasers ändert sich zu diesem Zeitpunkt, da die Kompensation der Frequenzdrift durch den PID-Regler (siehe Abb. 4.6 und 4.12(b) auf Seite 54 und 64) zu diesem Zeitpunkt wegfällt und der Laser auf seine freilaufende Frequenz springt. Dabei tritt für einige Sekunden ein Ausfall der Stabilisierung des Ringlasers auf. Durch

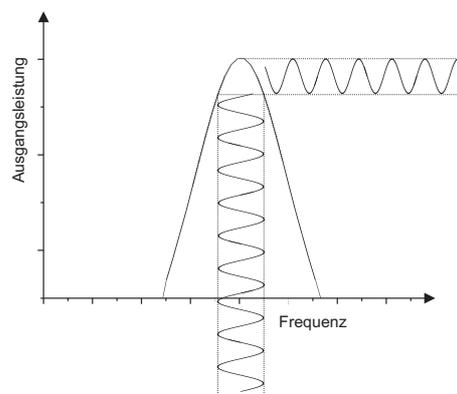


Abbildung 6.5.: Überführung der Frequenzmodulation des Resonators in eine Amplitudenmodulation der Ausgangsleistung.

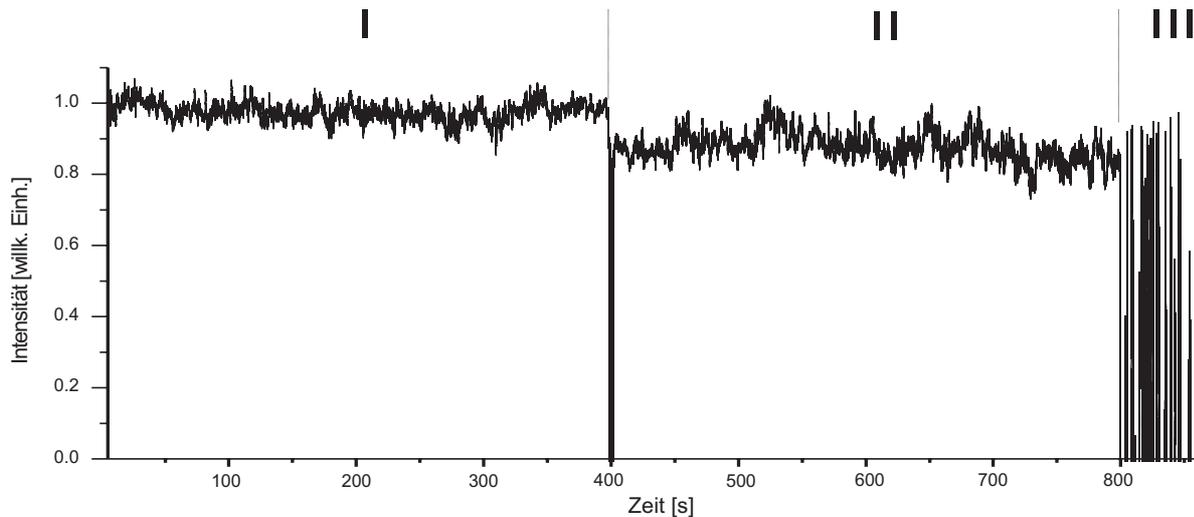


Abbildung 6.6.: Ausgangsleistung des Ringlasers bei Stabilisierung des Ringlasers auf das Maximum des Verstärkungsprofils. Im Bereich **I** (0–400 s) ist der Regelkreis für den frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser und der Regelkreis für die Stabilisierung des Ramanlasers geschlossen. Im Bereich **II** (400–800 s) wurde die Frequenzstabilisierung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers ausgeschaltet. Im Bereich **III** (> 800 s) ist der Ringlaser vollkommen freilaufend.

zufällige Fluktuationen im Resonator wird wieder eine Resonatormode mit dem induzierten Verstärkungsprofil resonant und die Regelung kann den Resonator wieder auf das Verstärkungsprofil stabilisieren. Als Folge des Frequenzsprungs des Lasers ist die Ausgangsleistung des Ramanlasers im Bereich II etwa 10% geringer. Die Leistungsstabilität des Ramanlasers hat sich in diesem Bereich als Folge der Frequenzfluktuationen des freilaufenden Pumplasers etwa verdoppelt. Nach 800 s (Bereich III) wird auch die Stabilisierung des Ringlasers ausgeschaltet, und es kommt zu zufälligen Leistungsschwankungen von 100% mit Oszillationszeiten von teilweise weniger als einer Sekunde.

Für den hier vorgestellten Betrieb der Regelung wurden noch einige Änderungen an der technischen Realisierung der Resonatoren vorgenommen. Kurzzeitige Brechungsindexfluktuationen durch Luftströmungen erwiesen sich als größtes Problem. Die verursachten Störungen durch Luftbewegung überstiegen häufig den Dynamikbereich der Regelung, entsprechend kurz waren die Stabilisierungszeiten des Ringlasers. Deshalb wurde der Resonator mit einem dichtschießenden einwandigen Kunststoffgehäuse umgeben, daß nur noch eine Öffnung für die Durchführung der Pumpstrahlung enthält, wodurch Luftströmungen weitgehend ausgeschlossen sind. Der entstehende Wärmestau im Gehäuse

durch Zellkörperheizung und Temperaturstabilisierung des Seitenarms führte zu einer Drift des gesamten Resonators durch thermische Ausdehnung. Die Kühlung der Peltierelemente am Seitenarm, die bislang mit Kühlkörpern erfolgte, wurde durch eine Wasserkühlung ersetzt, die Wärmeabfuhr des Zellkörpers konnte durch leichte Isolation des Zellkörpers deutlich verringert werden. Durch diese einfachen Maßnahmen konnte die thermische Drift des Resonators erheblich verbessert werden. Auch der Einsatz von 2 Piezos zur Stabilisierung des Resonators wurde erprobt. Ein Piezo wurde dabei zur Erzeugung der Modulation, der andere als Regelement zur Kompensation der Resonator-schwankungen verwendet. Hierbei zeigte sich keine Verbesserung der Leistungsstabilität des Ringlasers. Auffällig war allerdings die Verkürzung der maximal möglichen Stabilisierungszeit, die auf die Längendrift der Piezos im Resonator zurückzuführen ist. Die Längendrift der Piezos ist offensichtlich das limitierende Element bei der Langzeitstabilisierung des Resonators.

6.3. Absorption der Pumpstrahlung

Zur quantitativen Beschreibung der Absorption in der Jodzelle sowie zur Modellierung des Ramanlaserbetriebes müssen zunächst die geometrischen Eigenschaften des Pumpstrahls charakterisiert werden. Hierzu wurde der Pumpstrahl des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers mit Hilfe einer *Beam View*-Kamera [Coherent] vermessen. Die Auflösung der Kamera beträgt $23\ \mu\text{m} \times 27\ \mu\text{m}$ (tangential \times sagittal). Die Inten-

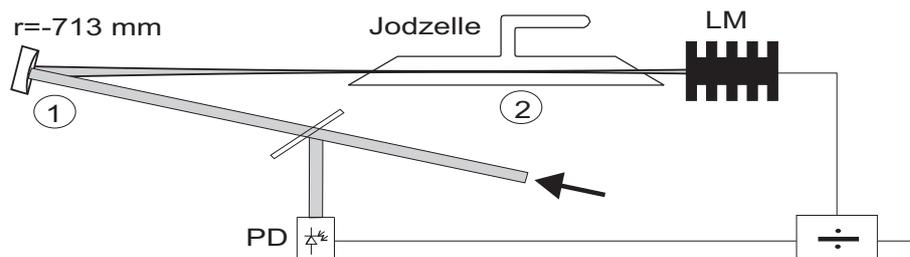
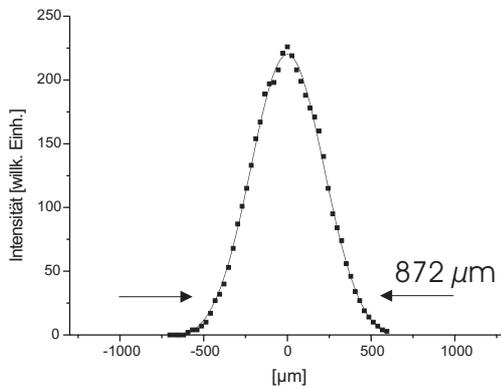


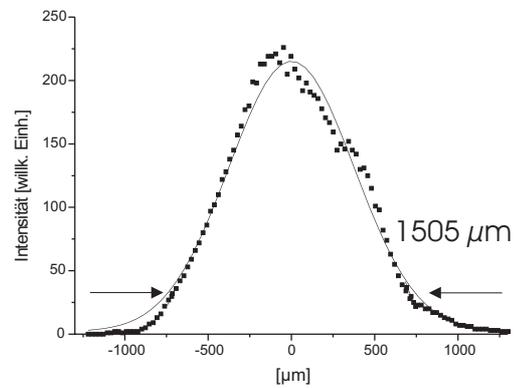
Abbildung 6.7.: Aufbau zur Vermessung des Strahlprofils, sowie zur Überprüfung des Absorptionsmodells. An den Positionen **1** und **2** wurde das Strahlprofil mit einer *Beam View*-Kamera vermessen, das in Abb. 6.8 dargestellt ist. PD: Photodiode, LM: Leistungsmeßgerät.

sitätsprofile am fokussierenden Spiegel (siehe Abb. 6.7) sind in Abb. 6.8(a) und 6.8(b)

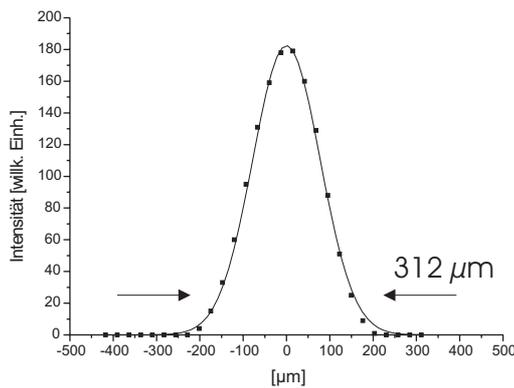
als sagittaler und tangentialer Schnitt durch das Strahlprofil dargestellt. Die Quadrate in der Abbildung stellen die Meßpunkte dar, die durchgezogene Linie den Verlauf einer angepaßten Gaußkurve. In sagittaler Richtung (Abb.6.8(a)) ergibt sich eine volle $1/e^2$ -Breite (bei $1/e^2$ ist das elektromagnetische Feld auf $1/e$ abgefallen) von $872 \pm 9 \mu\text{m}$. In tangentialer Richtung (Abb. 6.8(a)) ergibt sich eine $1/e^2$ -Breite von $1.505 \pm 20 \mu\text{m}$, wobei sich hier eine deutlich größere Abweichung der Meßpunkte vom Gaußprofil als in sagittaler Richtung zeigt, die vermutlich auf leichte Beschädigungen der Optik im Verdopplungsresonator des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser zurückzuführen sind. Der Strahl ist also elliptisch, mit einem Verhältnis der Halbachsen der Ellipse von $1 : 1,7$. Mögliche Ursache für das elliptische Strahlprofil der frequenzverdoppelten Strahlung des Nd:YAG-Lasers kann durch eine leichte Dejustage des Verdoppelungsresonators sein. Die Elliptizität des Strahls ließ sich zu keinem Zeitpunkt der Experimente durch Justage vollkommen eliminieren. Fokussiert man den Strahl mit einem konkaven Spiegel des Krümmungsradius $r = -713 \text{ mm}$ unter einem Einfallswinkel von 8° dann ergibt sich an der Fokusposition nach 357 mm eine gemessene $1/e^2$ -Breite in sagittaler Richtung von $312 \pm 4 \mu\text{m}$ (Abb. 6.8(c)), und in tangentialer Richtung von $172 \pm 2 \mu\text{m}$ (Abb. 6.8(d)). Berechnet man unter der Annahme, daß der einlaufende Pumpstrahl des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers kollimiert ist, die Strahlpropagation mit den oben genannten Parametern, so ergibt sich in sagittaler Richtung eine $1/e^2$ -Breite von $300 \mu\text{m}$, in tangentialer Richtung ergibt sich der berechnete Wert zu $180 \mu\text{m}$. Die Abweichung zwischen den berechneten und gemessenen Werten ist also gering. Um die Berechnung der makroskopischen Absorption zu vereinfachen, wurde das Pumpstrahlungsprofil als rund angenommen. Für den Pumpstrahl wird ersatzweise eine $1/e^2$ -Breite von $1.100 \mu\text{m}$ angenommen. Durch diese Annahme wird gewährleistet, daß durch den runden Pumpstrahl das gleiche Volumen wie durch den elliptischen Pumpstrahl geprobt wird. Im Fokus ergibt sich dadurch ein $1/e^2$ -Breite des Pumpstrahls von $240 \mu\text{m}$. Die Rayleigh-Länge dieses fokussierten Pumpstrahls beträgt 17 cm und übersteigt somit die Länge der typischerweise verwendeten Jodzellen. Der durch den Einfallswinkel der Pumpstrahlung von 8° auftretende Astigmatismus führt zu unterschiedlichen Fokuspositionen in tangentialer und sagittaler Richtung. Da die Differenz der beiden Foki mit $1,8 \text{ cm}$ bedeutend geringer als die Rayleigh-Länge ist, wird dieser Abbildungsfehler nicht weiter berücksichtigt. Zur experimentellen Überprüfung des im Abschnitt 5.1.3 vorgestellten Absorptionsmodells wurde der Versuchsaufbau nach Abb. 6.7 verwendet. Die Pumpstrahlung wird von einem konkaven Spiegel mit einem Krümmungsradius von $r = -713 \text{ mm}$ in ei-



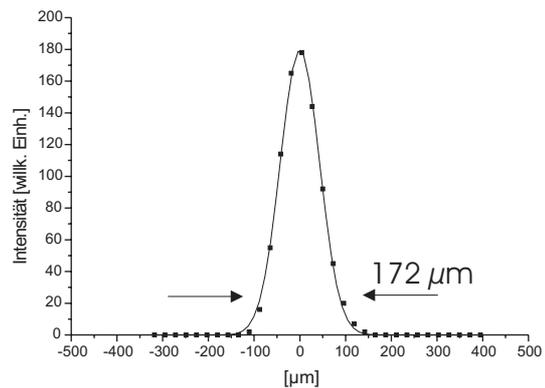
(a) Sagittaler Schnitt durch den unfokussierten Strahl an Position 1 in Abb. 6.7



(b) Tangentialer Schnitt durch den unfokussierten Strahl an Position 1 in Abb. 6.7



(c) Sagittaler Schnitt durch den fokussierten Strahl an Position 2 in Abb. 6.7



(d) Tangentialer Schnitt durch den fokussierten Strahl an Position 2 in Abb. 6.7

Abbildung 6.8.: Strahlprofil und $\frac{1}{e^2}$ Breite des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser in der Einfallsebene des Laserstrahls (tangential, Ebene parallel zur Ebene des optischen Tisches) und der senkrechten Ebene dazu (sagittal). (a) und (b) nach ca. 3 m freier Propagation, (c) und (d) nach Fokussierung mit einem konkaven Spiegel des Krümmungsradius $r = -713$ mm unter einem Winkel von 8° .

ne 15 cm lange temperaturstabilisierte Jodzelle fokussiert. Die Jodzelle ist dabei symmetrisch um den Fokus der Pumpstrahlung positioniert. Die transmittierte Leistung wird hinter der Zelle von einem Leistungsmeßgerät aufgezeichnet. Zur Eliminierung von Leistungsschwankungen des Pumpasers wird ein Teil der Pumpstrahlung durch eine Glasplatte vor der Jodzelle ausgekoppelt und zur Normierung des Transmissionsignals verwendet. Zur Überprüfung des Modells wurde der Frequenzbereich von 18788,30 bis 18788,475 cm^{-1} gewählt. Dieser Abschnitt des Durchstimmbereichs des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers bietet den Vorteil, daß in diesem geringen Frequenzintervall drei starke Absorptionslinien liegen. Die $R(56)(30-0)$ als isolierte Linie und die $P(103)(34-0)$ - sowie die $P(53)(32-0)$ -Linie, die stark überlappen. Zwischen beiden Linien befinden sich zwei weitere Übergänge mit geringer Absorption ($P(127)(40-1)$ und $P(127)(39-0)$). Zur Frequenzkalibrierung wurde während des langsamen thermischen Durchstimmens des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers parallel ein Sättigungsspektrum aufgenommen.

In Abb. 6.9 sind einige Transmissionsspektren für eine eingestrahlte Pumpleistung von 150 mW bei unterschiedlichen Dampfdrücken dargestellt. Die Kreuze entsprechen den Meßpunkten, wobei hier nur jeder 30. Meßpunkt dargestellt ist. Die durchgezogene Linie zeigt den berechneten Verlauf der Transmission für eine Pumpleistung von 150 mW, einen Strahldurchmesser im Fokus von 240 μm und dem jeweiligen Dampfdruck. Der obere Teil der Abb. 6.9 zeigt die Position der einzelnen Hyperfeinstrukturkomponenten der beteiligten Rotationsvibrationsübergänge, wobei die Länge der einzelnen Hyperfeinstrukturkomponenten die thermische Besetzung der Übergänge repräsentiert. In Abb. 6.9 läßt sich erkennen, daß die gemessene Transmission gut durch das Modell beschrieben wird. Um die Abweichung zwischen berechneter und gemessener Transmission besser beurteilen zu können, ist in Abb. 6.10 die Differenz (obs-cal) zwischen Messung und Rechnung in % gegen die Frequenz aufgetragen. Man erkennt, daß die Abweichung zwischen beiden Kurven maximal etwa 5% beträgt. Auffällig ist, daß die Abweichungen eine Struktur zeigen, die bei allen Dampfdrücken ähnlich ist und mit steigendem Dampfdruck an Amplitude gewinnt. In Abb. 6.10 sind zur besseren Orientierung für die Linien $R(56)(32-0)$ und $P(103)(34-0)/P(53)(32-0)$ die Frequenzpositionen maximaler Absorption eingezeichnet. Insbesondere an den Flanken des doppler-verbreiterten Absorptionsprofils wird (obs-cal) häufig negativ, d.h. die berechnete Transmission an den Flanken der Linien ist größer als die gemessene. Die berechnete Linienform ist somit schmaler als die tatsächlich beobachtete. Die Ursache hierfür liegt höchstwahrscheinlich an der Vereinfachung, die

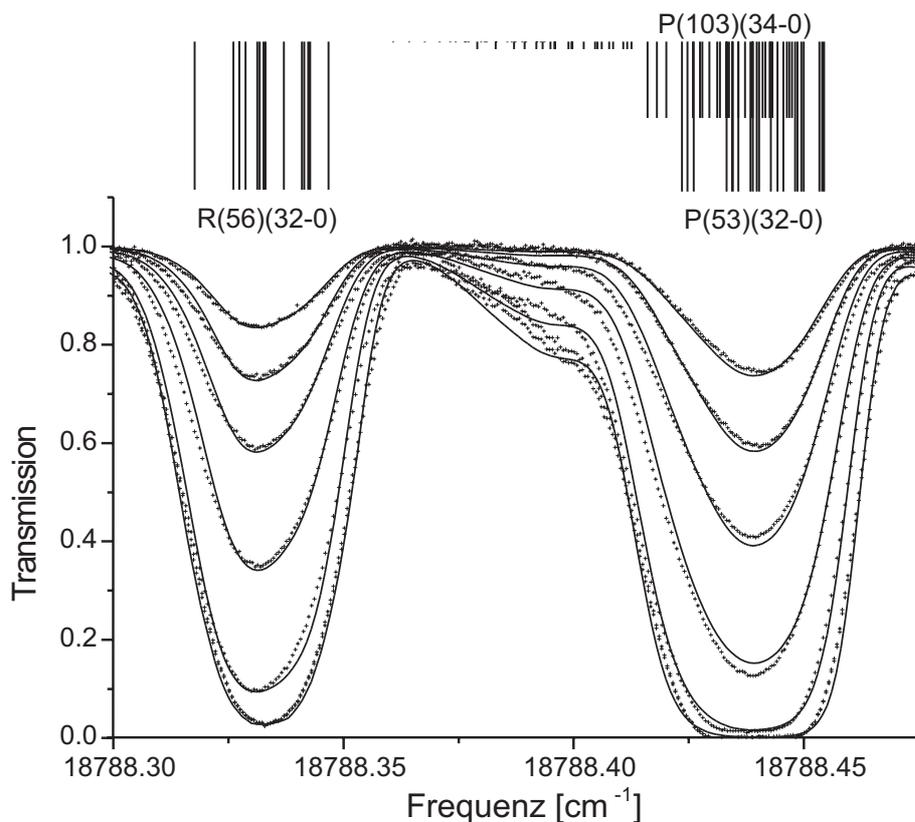


Abbildung 6.9.: Berechnete Transmissionskurven (durchgezogene Linie) und gemessene Transmissionskurve (Kreuze) für eine feste Pumpleistung von 150 mW. Es ist nur jeder 30. Meßpunkt dargestellt. Mit geringer werdender Transmission entsprechen die Kurven folgenden Joddampfdrücken: 14 Pa, 21 Pa, 32 Pa, 49 Pa, 62 Pa, 74 Pa. Der obere Teil der Abbildung zeigt die Position der Hyperfeinstrukturkomponenten der beteiligten Absorptionslinien.

bei der Berechnung der Profile gemacht wurde. In Formel (5.25) auf Seite 81 wird ein Gaußprofil für die Beschreibung der Absorption jeder doppler-verbreiterten Hyperfeinstrukturkomponente verwendet. Alle anderen Verbreiterungsmechanismen werden nicht berücksichtigt. Dadurch wird das Linienformprofil geringfügig zu schmal angenommen, was sich insbesondere an den Flanken der Absorptionslinien auswirkt, wo häufig nur eine Hyperfeinstrukturkomponente wesentlich zur Absorption beiträgt. Die Zunahme von (obs-cal) an den Flanken der Absorptionslinien mit steigendem Dampfdruck resultiert dann aus der geringer werdenden Transmission des Mediums.

Als weiterer Test des Absorptionsmodells wurden die Messungen nach Abb. 6.9 für

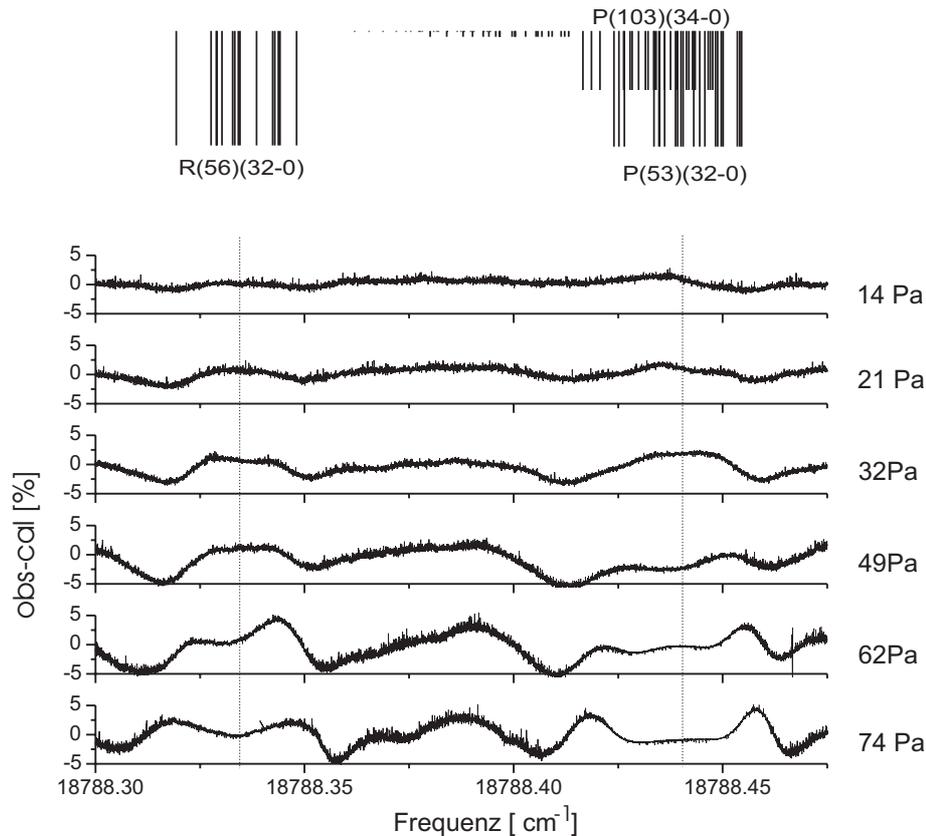


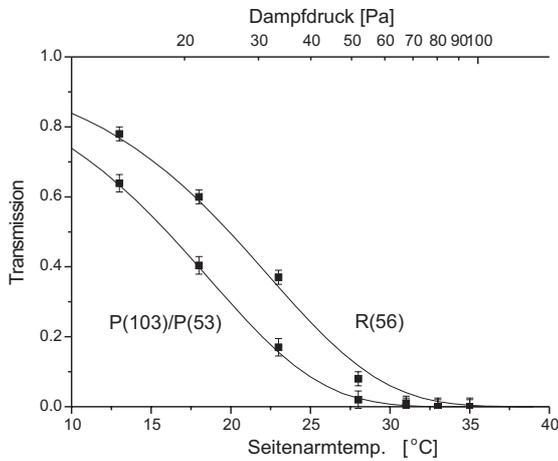
Abbildung 6.10.: Abweichung der gemessenen Transmissionskurve von der Rechnung. Die Abweichung ist in % angegeben. Die punktierten Linien geben die Frequenzpositionen der maximalen Absorption der beiden starken Absorptionsübergänge an.

unterschiedliche Pumpleistungen wiederholt. In Abb. 6.11 (a)–(d) werden die Transmissionsmessungen mit dem berechneten Kurvenverlauf für eingestrahelte Pumpleistungen von 50, 100, 200 und 300 mW für den Übergang $R(56)(32-0)$ (Kurve mit der größeren Transmission) und $P(103)(34-0)/P(53)(32-0)$ verglichen. Der Fehler bei den Meßpunkten wird mit 2,5% angenommen und ergibt sich aus der Wiederholgenauigkeit des Experimentes. In Abb. 6.11 (a)–(d) erkennt man, daß die Modellrechnung die experimentell erhaltenen Werte gut wiedergibt. Nur einige Meßpunkte liegen im Rahmen ihrer Fehler nicht auf dem berechneten Verlauf der Transmissionskurve.

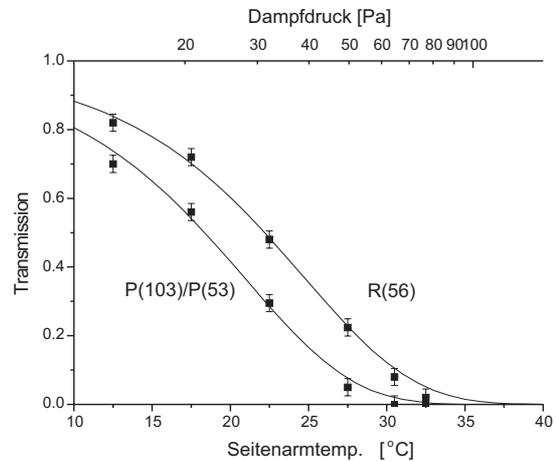
Durch die vorgestellten Messungen zum Pumpstrahlungsprofil und zur Absorption der Pumpstrahlung in der Jodzelle wird es möglich, den Verlauf der Pumpintensität innerhalb des Mediums zu beschreiben, was insbesondere für die Modellierung der Verstär-

6. Experimentelle Untersuchungen

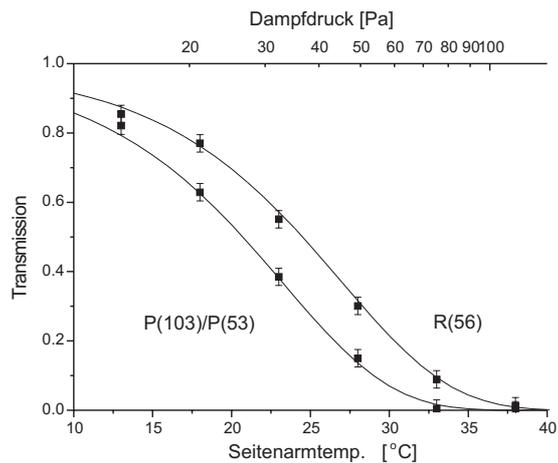
kungskoeffizienten von Bedeutung ist.



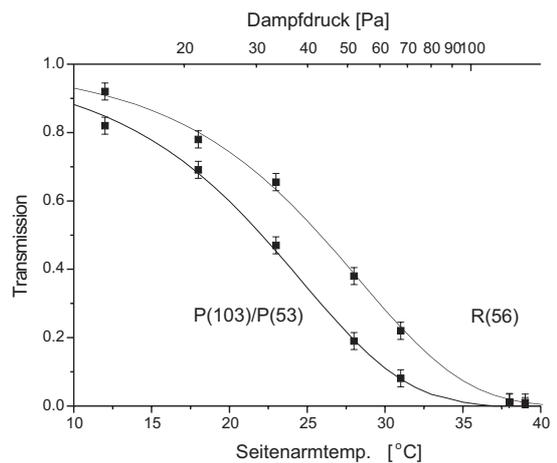
(a) Pumpleistung: 50 mW



(b) Pumpleistung: 100 mW



(c) Pumpleistung: 200 mW



(d) Pumpleistung: 300 mW

Abbildung 6.11.: Vergleich von gemessener Transmission mit der Rechnung für unterschiedliche Pumpleistungen. Die obere Kurve in den Graphen entspricht der Rechnung für die maximalen Absorption für den Übergang $R(56)(32 - 0)$, die untere Kurve für die Übergänge $P(103)(34 - 0)/P(53)(32 - 0)$. Die Fehler für die Messung wurden mit 2,5% angenommen.

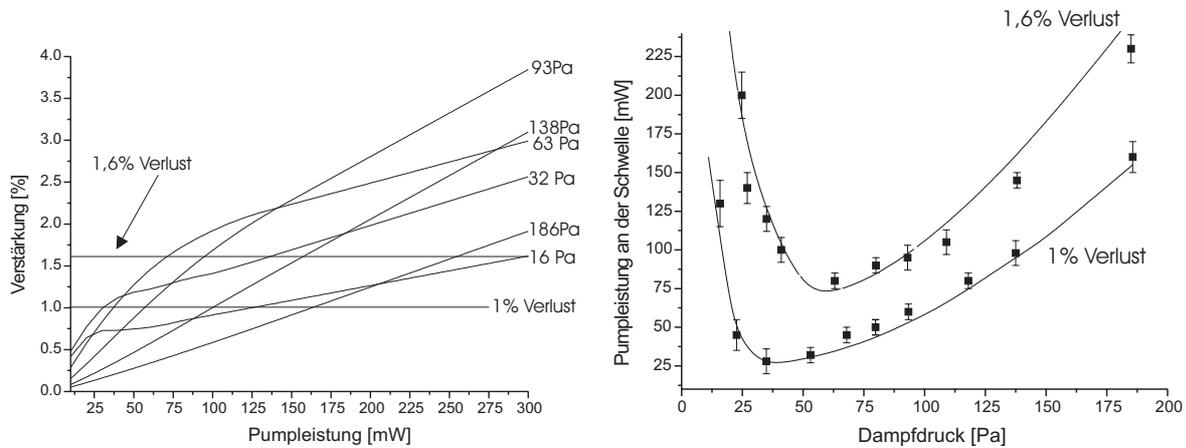
6.4. Eigenschaften der Single-Mode-Laser

Im folgenden wird auf die Eigenschaften der Single-Mode-Ramanlaser in Ringresonatoren eingegangen. Für die vorgestellten Experimente wurde als Pumpübergang hauptsächlich der R(56)(32-0)-Übergang verwendet. Dieser Pumpübergang liegt nahezu im Zentrum des Durchstimmbereichs des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers, wodurch hier die maximale Ausgangsleistung des Lasersystems für den Betrieb der Ramanlaser zu Verfügung steht. Am Rand des Durchstimmbereichs ($\approx \pm 0,5 \text{ cm}^{-1}$) (siehe Abb. 4.4 auf Seite 50) kann die Ausgangsleistung des Pumplasers auf 50% der Nominalleistung von maximal 500 mW abgefallen sein. Ein Betrieb der Ramanlaser auf Pumpübergängen am Rand des Durchstimmbereiches ist daher nur in einem eingeschränkten Parameterbereich möglich. Der R(56)(32-0)-Übergang weist als Übergang mit geradem J'' nur 15 Hyperfeinstrukturkomponenten auf, die in 6 Gruppen (siehe Abb. 4.11(b)) als Konsequenz eines „mittleren“ J'' ($J'' \approx 50$) angeordnet sind. Dabei treten die Komponenten a_1, a_{10} und a_{15} als isolierte Einzellinien im Spektrum auf, die anderen Komponenten sind jeweils in Vierergruppen in einem kleinen Frequenzbereich angeordnet. Bedingt durch die Struktur der Aufspaltung können in den Experimenten Aussagen über den Einfluß der einzelnen Linien bzw. Gruppen von Linien gemacht werden. Vorteilhaft ist in diesem Zusammenhang die Tatsache, daß dem R(56)(32-0)-Übergang keine weiteren Linien überlagert sind, so daß nur ein (Rotationsvibrations-)Niveau gepumpt wird. Bei Übergängen mit ungeradem J'' treten 21 Komponenten auf. Bei „mittleren“ Werten von J'' (z.B. Abb. B.1 R(57)(32-0)) sammeln sich die Hyperfeinstrukturkomponenten zwar auch in Gruppen, isoliert stehende Einzelkomponenten, wie bei dem R(56)(32-0)-Übergang, treten allerdings nicht auf. Bei hohen ungeraden Werten von J'' ($J'' > 100$), wie sie im Durchstimmbereich des Pumplasers auftreten (z.B. P(119)(35-0) in Abb. B.1), verteilt sich die Hyperfeinstruktur nahezu gleichmäßig über den gesamten Frequenzbereich des Übergangs. Ungeeignet für den effektiven Betrieb der Ramanlaser sind überlagerte Linien, wie z.B. bei den Übergängen P(53)(32-0)/P(103)(34-0) (mittleres Sättigungsspektrum in Abb. B.3). Auf diesem Übergang sind zwei Linien mit ungeradem J'' so überlagert, daß sich ein dichter Kamm von 42 Komponenten in einem Gebiet von 1 GHz ergibt, die auf unterschiedlichen (Rotationsvibrations-)Niveaus im Zustand $|3\rangle$ enden. Entsprechend verteilt sich die durch den Pumplaser induzierte Verstärkung auf viele Hyperfeinstrukturübergänge und zusätzlich 2 Niveaus im Zustand $|3\rangle$. Effektiver Ramanlaserbetrieb auf überlagerten Übergängen ist somit nicht zu erwarten. Betrachtet man

das Sättigungsspektrum des R(56)(32-0)-Übergangs in Abb. 4.11(b), erkennt man, daß die Komponente a_3/a_4 stark überlagert und im Rahmen der Auflösung der Sättigungsspektroskopie nicht auflösbar sind. Die beiden Komponenten haben wegen $\Delta F = \Delta J$ allerdings keine gemeinsamen Niveaus und erscheinen auf Grund nahezu identischer Energiedifferenzen im Sättigungsspektrum als eine Komponente (Vergleiche auch Abs. 5.1.1 auf Seite 75). Beim Pumpen dieser beiden Komponenten sollten sich minimale Schwellen und maximale Ausgangsleistungen des Ramanlasers ergeben. Die nachfolgenden Untersuchungen beschränken sich auf den Betrieb der Ramanlaser auf dem Pumpübergang R(56)(32-0), sowie auf den Ramanübergang R(56)(32-31) bei 12803 cm^{-1} ($\approx 781\text{ nm}$). Für diesen Bereich standen ein guter Spiegelsatz und geeignete frequenzselektive Elemente zur Verfügung. Die Detektion der Ramanlaserstrahlung kann durch handelsübliche Silizium-Photodioden erfolgen, die in diesem Spektralbereich maximale Empfindlichkeit aufweisen. Die Messungen zur Schwelle der Ramanlaser in Abhängigkeit vom Dampfdruck des Mediums werden im folgenden Abs. 6.4.1 vorgestellt und mit den Ergebnissen des Simulationsprogramms, wie es in Kap. 5 beschrieben wurde, verglichen. Anschließend werden in Abs. 6.4.2 Messungen zur Ausgangsleistung der Ramanlaser präsentiert und in Abs. 6.4.4 das Verhalten der Ausgangsleistung der Ramanlaser bei unterschiedlicher Frequenzposition des Pumplasers innerhalb des Pumpübergangs untersucht. Im Anschluß daran wird die Form der Ausgangsleistungsprofile unter verschiedenen Betriebsbedingungen diskutiert. Gegen Ende des Kapitels werden Messungen zur Beatlinienbreite der Ramanlaser und damit zu den spektralen Eigenschaften der Laser vorgestellt.

6.4.1. Laserschwelle

Zur Bestimmung der Schwelle der Ramanlaser wurde ein Resonator mit möglichst geringen Verlusten nach Abb. 6.4 aufgebaut. Durch den Einsatz hochreflektierender Spiegel, Jodzellen mit Brewsterfenstern und verlustarmer frequenzselektiver Elemente lassen sich die Verluste im Resonator minimieren und auf etwa 1% abschätzen. In Abb. 6.12(b) sind die experimentell erhaltenen Werte durch die Meßpunkte mit ausgefüllten Quadraten gegen den Dampfdruck dargestellt. Der Pumplaser war bei dieser Messung auf die Komponenten a_3/a_4 der R(56)(32-0) stabilisiert. Die Fehlerbalken der Meßwerte ergeben sich aus der Reproduziergenauigkeit der Messung. Bei kleinen Dampfdrücken steigt der Meßfehler für die Schwellleistung stark an, da hier nur geringe Ausgangsleistun-



(a) Berechnete Verstärkungswerte für den Pumpübergang auf der Komponente a_3/a_4 der R(56)(32-0) und dem Ramanübergang R(56)(32-31) für den Dampfdruckbereich von 16 bis 186 Pa in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung vor der Jodzelle. Ein-gezeichnet ist die Laserschwelle für Resonatorverluste von 1% und 1,6%.

(b) Vergleich der experimentellen Schwellleistungswerte für die Komponenten a_3/a_4 der R(56)(32-0) mit den Schwellleistungswerten wie sie sich aus Abb. 6.12(a) ergeben.

Abbildung 6.12.: Verlauf der Verstärkung bei unterschiedlichen Dampfdrücken und Vergleich der experimentell bestimmten Schwellleistungen mit den numerisch bestimmten Werten für die Verstärkung auf den Komponenten a_3/a_4 des Übergangs R(56)(32-0), dem Ramanübergang R(56)(32-31), bei Verwendung einer 15 cm langen Zelle und der Resonatorkonfiguration nach Abb. 6.4.

gen oberhalb der Schwelle erreicht werden, wodurch der eigentliche Punkt der Schwelle schwer zu reproduzieren ist. In einer weiteren Messung wurde die Schwellleistung für eine Resonatorkonfiguration mit höheren Verlusten bestimmt. Die zusätzlichen Verluste wurden durch Einbringen einer Glasplatte verursacht. Durch Verdrehen der Glasplatte aus dem Brewster-Winkel können dann gezielt höhere Verluste im Resonator erzeugt werden (in diesem Fall angenommener Verlust: 1,6%). Wie man in Abb. 6.12(b) erkennt, ergeben sich durch die höheren Verluste im Resonator höhere Schwellleistungen, die sich zu höheren Dampfdrücken verschieben. Bei einem Resonatorverlust von 1% ergibt sich eine minimale Schwelle von 30 mW bei 28 Pa, bei Verlusten von 1,6% ist die Schwelle bereits auf 62 mW bei einem Dampfdruck von 80 Pa angestiegen.

Um die gemessenen Schwellpumpleistungen mit der Theorie vergleichen zu können, wird

wie folgt vorgegangen: Die Verstärkung wird in Abhängigkeit von der Pumpleistung für verschiedene Dampfdrücke numerisch berechnet. Die Ergebnisse dieser Berechnung sind in Abbildung 6.12(a) für Dampfdrücke zwischen 27 und 186 Pa (dies entspricht Seitenarmtemperaturen von 20° bis 44° C) und für Pumpleistungen zwischen 10 und 300 mW für die Komponenten a_3/a_4 dargestellt, wobei in den Berechnungen der Frequenzoffset in der Stabilisierung durch den Einsatz des AOMs berücksichtigt wurde (vergl. Abs. 4.5.1). Für den Fall, daß die berechnete Verstärkung die Verluste übersteigt, befindet sich der Ramanlaser oberhalb der Schwelle. Die angenommenen Verluste sind als Geraden in Abb. 6.12(a) für Verluste von 1% und 1,6% eingezeichnet. Die berechneten Schwellleistungen können dann unmittelbar aus dem Graphen abgelesen werden. Die daraus numerisch bestimmte Schwellkurve ist als durchgezogene Linie in Abb. 6.12(b) eingezeichnet. Man erkennt für den Verlust von 1% eine recht gute Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentell erhaltenen Werten. Bei Resonatorverlusten von 1,6% ist der Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment nicht ganz so gut. Zwar wird die Verschiebung der minimalen Schwelle zu höheren Dampfdrücken qualitativ wiedergegeben, allerdings scheint durch die berechnete Kurve das Minimum nicht korrekt beschrieben zu werden. Bei höheren Dampfdrücken ergeben sich für Verluste von 1,6% sogar deutliche Abweichungen der experimentellen Werte vom berechneten Verlauf. Dies deutet darauf hin, daß die hier angenommenen Resonatorverluste um ca. 0,1 bis 0,2% zu klein sind. Nimmt man die Verluste im Resonator etwas größer an, so kann der Verlauf der theoretischen Kurve bei höheren Dampfdrücken besser beschrieben werden.

Für einen Vergleich der hier beobachteten Schwelle mit anderen in der Literatur veröffentlichten Angaben (siehe Tab. 2.2 auf Seite 24) kann nur das Experiment von Jones u. a. [1996] herangezogen werden. Jones u. a. [1996] verwendeten ebenfalls Single-Mode-Ringresonatoren. Dabei wurde bei Betrieb der Ramanlaser auf dem Pumpübergang P(13)/R(15)(43-0) bei 514 nm Schwellen von 50 mW bei einer Zelllänge von 70 cm und Dampfdrücken um 30 Pa erreicht. Die Schwellleistungen von Jones u. a. [1996] und die hier gemessenen liegen also um weniger als einen Faktor 2 auseinander. Ein konkreter Vergleich der Messungen ist allerdings nicht unmittelbar möglich, da ein anderer Pumpübergang verwendet wurde. Desweiteren läßt sich aus den in der Veröffentlichung angegebenen Resonatordaten schließen, daß Jones eine deutlich stärkere Fokussierung und ein kleineres Modenvolumen im Resonator verwendet hat, vermutlich um die starke Absorption der Pumpstrahlung in der 70 cm langen Zelle durch kleinere Pump- und

Resonatorvolumina zu kompensieren.

Betrachtet man noch einmal Abb. 6.12(a), so wird deutlich, daß ein Senken der Resonatorverluste durch Einsatz verlustärmerer Spiegel und frequenzselektiver Elemente die Schwellleistung deutlich verringern kann. Bei Halbierung der hier minimal erreichten Verluste auf 0,5% sollten bei sonst konstanten Bedingungen, Schwellen von 10 mW möglich sein. Verzichtet man auf jegliche Frequenzselektion und betreibt die Ramanlaser in 2-Spiegel-Stehwellenresonatoren, so kann man die Verluste durchaus auf 0,2% senken und somit Schwellen von einigen mW Pumpleistung realisieren, wie von Luhs u. a. [1983] mit 4 mW Schwellleistung in einer 25 cm langen Zelle demonstriert werden konnte.

6.4.2. Ausgangsleistung der Laser

Neben der Messung der Schwellleistung eines Ramanlasers auf dem Ramanübergang R(56)(32-31) ($\lambda \approx 781 \text{ nm}$) wurde auch die Ausgangsleistung des Ramanlasers in Abhängigkeit von der eingestrahlt Pumplleistung bei unterschiedlichen Dampfdrücken des Mediums untersucht, wobei der Pumplaser, wie auch schon bei den Schwellleistungsmessungen, auf die Komponente a_3/a_4 der R(56)(32-0) stabilisiert war. Die Messungen sind in Abb. 6.13 und Abb. 6.14 dargestellt. In Abb. 6.13 und 6.14(a) betragen die Verluste im Resonator 1%, die Messungen in Abb. 6.14(b) wurden bei Resonatorverlusten von 1,6% vorgenommen. Die einzelnen Kreuze stellen die erhaltenen Ausgangsleistungen dar, die durchgezogene Linie in Abb. 6.13 und 6.14 ist eine Ausgleichsgerade, die insbesondere die Orientierung in der halblogarithmischen Darstellung in Abb. 6.13 erleichtern soll. Für alle erhaltenen Meßpunkte in Abb. 6.13 erkennt man ein monotonen und nahezu lineares Ansteigen der Ausgangsleistung mit der Pumplleistung, wobei bei einem niedrigen Dampfdruck von 27 Pa die Ausgangsleistung (siehe Abb. 6.13) des Ramanlasers bei maximaler Pumplleistung von 350 mW nur $0,2 \mu\text{W}$ beträgt. Mit steigendem Dampfdruck steigt auch die ausgekoppelte Leistung, wobei bei einem Dampfdruck von 137 Pa die maximale Ausgangsleistung in dieser Resonatorconfiguration von etwa $400 \mu\text{W}$ erreicht wird. Der Verlauf der Ausgangsleistung gegen den Dampfdruck ist in Abb. 6.15 noch einmal graphisch dargestellt. Bei Dampfdrücken größer 137 Pa fällt die Ausgangsleistung bei konstanter Pumplleistung von 300 mW ab, diese hat sich bei 215 Pa auf $290 \mu\text{W}$ reduziert. Messungen bei Dampfdrücken größer 215 Pa waren nicht möglich, da bei Dampfdrücken oberhalb ca. 240 Pa das Jodreservoir im Seitenarm vollständig aufgebraucht ist und somit keine höheren Dichten eingestellt werden konnten. Unter den vorliegenden Betriebsbedingungen wird die Ausgangsleistung bei einem Dampfdruck von $\approx 140 \text{ Pa}$ maximal.

In Abb. 6.14(b) ist die Ausgangsleistung des Ramanlasers für Dampfdrücke von 63, 93 und 137 Pa bei Verlusten im Resonator von 1,6% dargestellt. Wie man in Abb. 6.14 erkennt, sind die Ausgangsleistungen bei Resonatorverlusten von 1,6% bei gleichen Dampfdrücken und gleicher Pumplleistung bereits deutlich geringer. Z.B. bei 137 Pa und 300 mW beträgt die Ausgangsleistung bei Resonatorverlusten von 1% $400 \mu\text{W}$ und bei 1,6% Verlust $250 \mu\text{W}$. Dies deutet daraufhin, daß die optimale Auskopplung hier bereits überschritten ist. Das in Abb. 6.13 und Abb. 6.15 dargestellte Verhalten ist typisch auch für andere Ramanlaserübergänge, wobei bei Betrieb der Ramanlaser im langwelligen

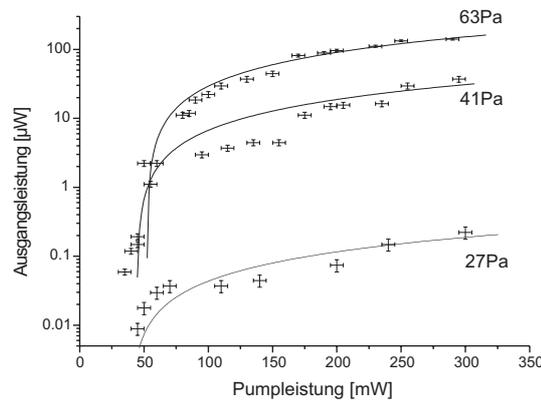
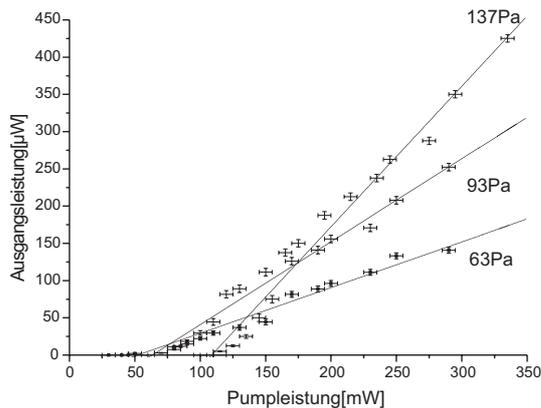
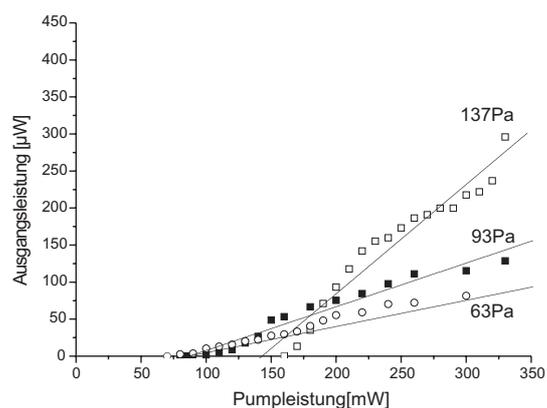


Abbildung 6.13.: Halblogarithmische Darstellung der Ausgangsleistung des Ramanlasers gegen die eingestrahlte Pumpleistung für Dampfdrücke von 27, 41 und 63 Pa im Medium. Die Verluste des Resonators betragen 1%. Der Pumplaser war auf die Komponente a_3/a_4 der R(56)(32-0) stabilisiert, die Ramanlaseremission erfolgte auf dem Übergang R(56)(32-31) bei $\lambda \approx 781$ nm.



(a) Darstellung der Ausgangsleistung des Ramanlasers in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung für Dampfdrücke von 63, 93 und 137 Pa im Medium. Die Verluste des Resonators betragen 1%.



(b) Darstellung der Ausgangsleistung des Ramanlasers in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung für Dampfdrücke von 63, 93 und 137 Pa im Medium. Die Verluste des Resonators betragen 1,6%.

Abbildung 6.14.: Ausgangsleistung der Ramanlaser für unterschiedliche Dampfdrücke und Verluste von 1% und 1,6%. Der Pumplaser war auf die Komponente a_3/a_4 der R(56)(32-0) stabilisiert, die Ramanlaseremission erfolgte auf dem Übergang R(56)(32-31) bei $\lambda \approx 781$ nm.

6. Experimentelle Untersuchungen

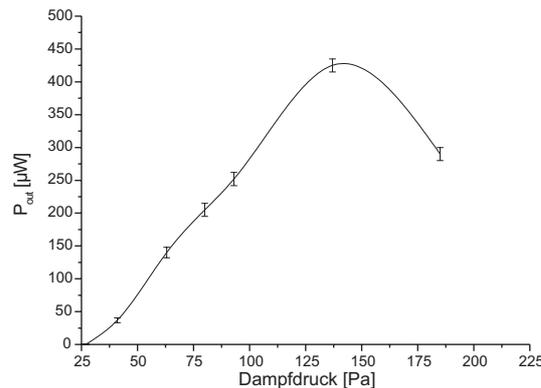


Abbildung 6.15.: Verlauf der Ausgangsleistung des Ramanlasers bei konstanter Pumpleistung und 1% Verlust im Resonator. Der dargestellte Bereich des Dampfdrucks entspricht einer Seitenarmtemperatur von 293 bis 320 K.

Bereich um 1300 nm deutlich höhere Ausgangsleistungen von maximal 3 mW erreicht werden können (vergleiche auch Abb. 6.3). Für einen Vergleich der gemessenen Ausgangsleistungen und dessen Abhängigkeit von der Pumpleistung und vom Dampfdruck mit der Theorie muß für eine vollständige Beschreibung des Ramanlasers oberhalb der Schwelle die vollständige Lösung des Verstärkungskoeffizienten, wie sie in Gl. (A.39) auf Seite 151 angegeben ist, benutzt werden. Für die Berechnung der Ausgangsleistung eines Lasers muß neben der Berechnung des Verstärkungskoeffizienten auch der Einfluß des im Resonator umlaufenden erzeugten Laserfeldes betrachtet werden, wodurch die erzeugte Leerlaufverstärkung (also ohne Laserfeld) verringert wird. Hierbei müssen auch Propagationseffekte wie z.B. der Strahlverlauf des umlaufenden Feldes berücksichtigt werden, da sie zu einem uneinheitlichen Abbau der Verstärkung im Medium führen. Desweiteren ist der Überlapp zwischen gepumptem Volumen und der Lasermode zu berücksichtigen, was experimentell schwer zu kontrollieren ist. Es genügt dabei nicht nur die Kenntnis des Strahlverlaufs von Pump- und erzeugter Laserstrahlung. Z.B. kann es durch nicht optimale Justage zu einem kleinen Winkeln zwischen Pump- und erzeugter Laserstrahlung kommen, der den Überlapp zwischen beiden Volumina deutlich verringert. Es wurde versucht diese Situation in den vorliegenden Experimenten durch Optimierung der Ausgangsleistung ($\hat{=}$ optimaler Überlapp der Volumina) bei sonst konstanten Bedingungen zu vermeiden. Auf eine komplette Beschreibung der Ramanlaser oberhalb der Schwelle, mit dem Ziel die Ausgangsleistung exakt zu modellieren, ist wegen der Komplexität der experimentellen sowie theoretischen Probleme verzichtet worden. Allgemeine Theorien

zur Beschreibung eines Lasers oberhalb der Schwelle, die auch ortsabhängige Beiträge berücksichtigt sind z.B. in Svelto [1998] zu finden.

Um z.B. die Abhängigkeit der Ausgangsleistung vom Dampfdruck bei konstanter Pumpleistung wie er in Abb. 6.15 dargestellt ist, jedoch qualitativ verstehen zu können, können einfache Grundgleichungen der Laserphysik, die Propagationseffekte und unvollständigen Modenüberlapp nicht berücksichtigen, angewendet werden.

Als Ausgangspunkt für eine vereinfachte Betrachtung kann der Kleinsignalverstärkungskoeffizient g_0 (in Kap. 5 als α_d bezeichnet; in Lehrbüchern ist g_0 für die Leerlaufverstärkung gebräuchlich) dienen, der in Kap. 5 berechnet wurde. Das entsprechende Kleinsignalverstärkungsprofil $g_0(\nu)$ ist auf Grund der Sub-Doppler-Anregung und des Ramanverstärkungsprozesses ein homogenes Verstärkungsprofil. Infolge dessen ist auch ein homogenes Sättigungsverhalten der Verstärkung bei vorhandenem Ramanlaserfeld gemäß [Yariv 1976]

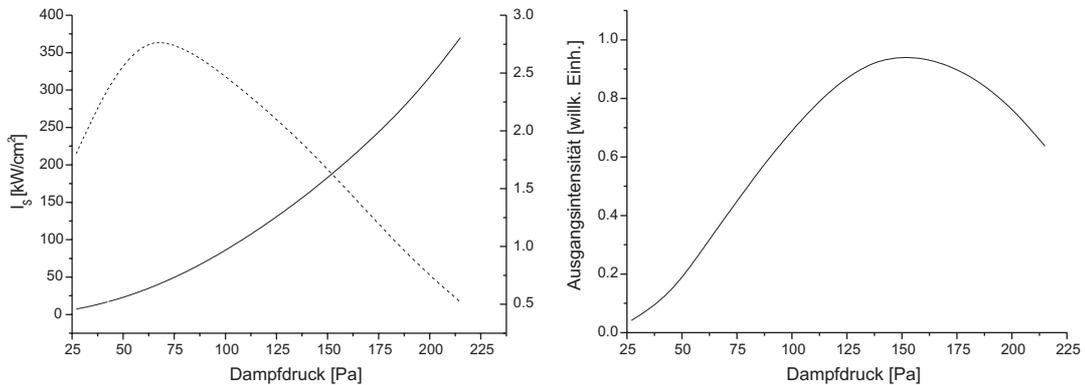
$$g(\nu) = \frac{g_0(\nu)}{1 + \frac{I_d}{I_s}} \quad (6.1)$$

zu erwarten, wobei I_d die Intensität des Ramanlaserfeldes innerhalb des Resonators und I_s die Sättigungsintensität auf dem Laserübergang ist. Führt man nun die Annahme, daß $g_0(\nu)$ und $g(\nu)$ im Medium konstant sind (dies bedeutet, das Propagationseffekte für Pump- und Ramanlaserfeld nicht betrachtet werden und somit I_d als konstant angenommen wird) ein, so können $g_0(\nu)$ und $g(\nu)$ durch die makroskopischen Verstärkungen V_0 und V ersetzt werden. Setzt man wie schon in Abs. 6.4.1 die Verstärkung V gleich den Verlusten L , so ergibt sich:

$$I_d = I_s \left(\frac{V}{L} - 1 \right) \quad (6.2)$$

Den Term $\frac{V}{L} - 1$ kann man mit Hilfe der bekannten Leerlaufverstärkung und den bekannten Verlusten im Resonator berechnen. Die Sättigungsintensität auf dem Laserübergang I_s ($|3\rangle \rightarrow |2\rangle$) kann man analog zur Sättigungsintensität auf dem Pumpübergang nach Gl. (A.53) abschätzen, in dem man hier die entsprechenden Dipolmomente und Relaxationsraten für den Laserübergang verwendet. Bei dieser Abschätzung werden keine verbreiternden Effekte durch das starke Pumplaserfeld auf dem Übergang ($|1\rangle \rightarrow |3\rangle$) berücksichtigt. In Abb.6.16(a) ist der Verlauf von $\frac{V}{L} - 1$ für eine konstante Pumpleistung

6. Experimentelle Untersuchungen



(a) gestrichelte Kurve und rechte y-Achse:
Verlauf des Terms $(\frac{V}{L} - 1)$ aus Gleichung (6.2)
durchgezogene Kurve: Verlauf der Sättigungsintensität auf dem Laserübergang.

(b) Verlauf der Ausgangsintensität in willkürlichen Einheiten in Abhängigkeit vom Dampfdruck.

Abbildung 6.16.: Verlauf des Terms $(\frac{V}{L} - 1)$, der Sättigungsintensität und der Ausgangsintensität in Abhängigkeit vom Dampfdruck des Mediums.

von 300 mW als gestrichelte Linie dargestellt. Die benutzten Leerlaufverstärkungen entsprechen den in Abb. 6.12(a) dargestellten Kurvenverläufen. Man erkennt, daß der Term $\frac{V}{L} - 1$ bereits für einen Dampfdruck von 70 Pa maximal wird. Die durchgezogene Linie gibt den Verlauf der Sättigungsintensität wieder. Bedingt durch die Druckverbreiterung steigt die Sättigungsintensität mit steigendem Dampfdruck an. Der qualitative Verlauf der Ausgangsleistung ergibt sich aus dem Produkt beider Kurven und ist in Abb. 6.16(b) dargestellt, wobei diese Kurve auf Grund der idealisierten Annahmen keine quantitativen Aussagen über die zu erwartenden Ausgangsintensitäten trifft. In Abb. 6.16 erkennt man, daß die Ausgangsintensität bzw. Ausgangsleistung für einen Dampfdruck von 150 Pa maximal sein sollte. Dies stimmt mit den experimentellen Ergebnissen gut überein (Vergleiche hierzu die Abb. 6.15 mit den experimentellen Werten auf Seite 110). Durch die obigen Überlegungen, die stark vereinfacht das Laserverhalten oberhalb der Schwelle beschreiben, ist es also durchaus möglich, die experimentell erhaltene Ausgangsleistungskurve qualitativ zu verstehen.

6.4.3. Durchstimmverhalten

Durch den Ramanprozess werden Pumpfeld und Ramanlaserfeld miteinander gekoppelt, und es ergibt sich gegenüber konventionellen Lasern ein anderes Durchstimmverhalten. Zum einen kann bei fester Pumpfrequenz durch den Pumplaser ein im Frequenzraum festliegendes Verstärkungsprofil induziert werden, dessen Form und Breite von einer Vielzahl von Parametern abhängig ist (vergleiche Kap. 5). Der Ramanlaser kann dann abhängig von den Resonatorverlusten in einem mehr oder weniger großen Bereich dieses Verstärkungsprofils verstimmt werden. Zum anderen kann auch der Pumplaser verstimmt werden. Dies führt zu einer entsprechenden Verstimmung des Verstärkungsprofils und damit auch zu einer Verstimmung der Ramanlaserfrequenz. Wird z.B. die Ramanlaserfrequenz durch eine Stabilisierung auf das Maximum des Verstärkungsprofils festgehalten, folgt die Ramanlaserverstimmung dem Pumplaser gemäß $\Delta\nu_R = \Delta\nu_p \frac{k_d}{k_p}$, wobei $\Delta\nu_R$ und $\Delta\nu_p$ die entsprechenden Verstimmungen von der Resonanz sind. Diese Beziehung ist gültig für Frequenzen in der Nähe der Resonanz für nicht aufgespaltene Verstärkungsprofile [Beterov und Chebotaev 1974]. In der Praxis kann die Verstimmung $\Delta\nu_R$ sehr viel größer als die Dopplerbreite der Übergänge und auch die Breite des Verstärkungsprofils sein. Grundsätzlich kann ein Ramanlaser auch sehr weit von der Resonanz betrieben werden. Dann gilt schließlich $\Delta\nu_R = \Delta\nu_p$ [Beterov und Chebotaev 1974].

Im folgenden werden zunächst Untersuchungen zur Verstimmung der Pumplaserfrequenz diskutiert. Dabei wird die Ausgangsleistung des Ramanlasers gegen $\Delta\nu_p$ gemessen, nicht aber die Verstimmung $\Delta\nu_R$ (auch ohne Stabilisierung liegt die jeweilige Ramanlaserfrequenz in der Nähe des Maximums des Verstärkungsprofils). Anschließend werden dann Experimente zur Verstimmung des Ramanlasers bei fester Pumplaserfrequenz beschrieben. Die Charakterisierung des Ramanlasers wurde für den Pumpübergang R56(32-0) und den Ramanübergang R(56)(32-31) bei $\lambda \approx 781$ nm untersucht. Zur Kalibration der Frequenzachse diente ein gleichzeitig detektiertes Sättigungsspektrum. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 6.17 und 6.18 für eine feste Pumpleistung von 300 mW und Dampfdrücke zwischen 21 und 186 Pa dargestellt. Die obere Abbildung stellt jeweils die gemessene Ausgangsleistung in Abhängigkeit von der Pumplaserfrequenz dar, wobei bei dieser Messung keine Leistungskalibrierung vorgenommen wurde, die angegebenen Intensitäten sind allerdings maßstäblich. Der Nullpunkt der dargestellten Frequenzachse wird durch die erste Hyperfeinstrukturkomponente a_1 festgelegt. Die jeweils untere Ab-

bildung ergibt sich aus numerischen Rechnungen und wird erst im Anschluß diskutiert. Bei einem Dampfdruck von 21 Pa erkennt man, daß nur in einem kleinen Bereich von 300 bis 450 MHz Ramanlaseremission zu beobachten ist. Bei einem Dampfdruck von 29 Pa hat sich dieser Bereich bereits auf 400 MHz (150 bis 550 MHz) ausgedehnt, zusätzlich beobachtet man von 600 bis 900 MHz ein weiteres Gebiet mit Ramanlaseremission. Bei 45 und 68 Pa kann über einen Bereich von 75 bis 950 MHz Ramanlaseremission beobachtet werden, wobei die Ausgangsleistung bei 68 Pa bereits 80-mal größer als bei 21 Pa ist. Die erhaltene Struktur der Ausgangsleistung ähnelt sich zwischen 29 und 68 Pa stark, es ergeben sich zwei Ausgangsleistungsmaxima bei etwa 350 und 750 MHz, wobei das Ausgangsleistungsmaximum bei 350 MHz deutlich größer ist. Bei einem Dampfdruck von 93 Pa (Abb. 6.18 oben) hat sich diese Struktur geändert. Es tritt ein drittes Maximum in der Ausgangsleistung auf und an der Frequenzposition 350 MHz ein lokales Minimum. Die Maxima der Ausgangsleistung haben sich zu niedrigen bzw. höheren Frequenzen verschoben (Niederfrequentes Maximum: 350 MHz(68 Pa) \rightarrow 270 MHz(93 Pa); höherfrequentes Maximum: 750 MHz(68 Pa) \rightarrow 770 MHz(93 Pa)). Bei 138 Pa wird diese Situation noch deutlicher: Es gibt drei ausgeprägte Maxima, wobei die beiden Maxima, die bei Dampfdrücken zwischen 29 und 68 Pa bei 350 und 750 MHz zu beobachten waren, sich jetzt deutlich nach 225 und 800 MHz verschoben haben. Die maximale Ausgangsleistung liegt jetzt nicht mehr bei 350 MHz, wie es bei niedrigeren Dampfdrücken zu beobachten war, sondern bei 800 MHz. Bei einem noch höheren Dampfdruck von 186 Pa hat sich die maximale Ausgangsleistung weiter zu höheren Frequenzen verschoben und liegt jetzt deutlich in der Leistung reduziert bei 860 MHz. Im Zentrum des Pumpübergangs (350 bis 650 MHz) kann bei 186 Pa keine Laseroszillation mehr beobachtet werden. Dieses komplexe Verhalten der Ausgangsleistungsprofile in Abhängigkeit vom Dampfdruck soll zunächst durch einige qualitative Argumente erläutert werden. Betrachtet man noch einmal die Abb. 6.17 und 6.18, so fällt insbesondere auf, daß bei der Frequenz 0 MHz (also auf den Komponente a_1) bei keiner der gezeigten Messungen Ramanlaseremission zu beobachten ist. Dies deutet darauf hin, daß die Verstärkung, die durch die einzelnstehenden Hyperfeinkomponenten a_1 , a_{10} und a_{15} induziert wird, nicht ausreicht, den Ramanlaser oberhalb der Schwelle zu betreiben. Vielmehr läßt sich vermuten, daß die gemessenen Ausgangsleistungskurven durch Überlagerung einzelner Komponenten bzw. Komponentengruppen hervorgerufen wird, die durch die Restdopplerbreite, die Druckverbreiterung, aber auch die Leistungsverbreiterung durch das eingestrahlte Pumpfeld überlagern. Werden durch diese Verbreiterungsmechanismen die Relaxationsraten iden-

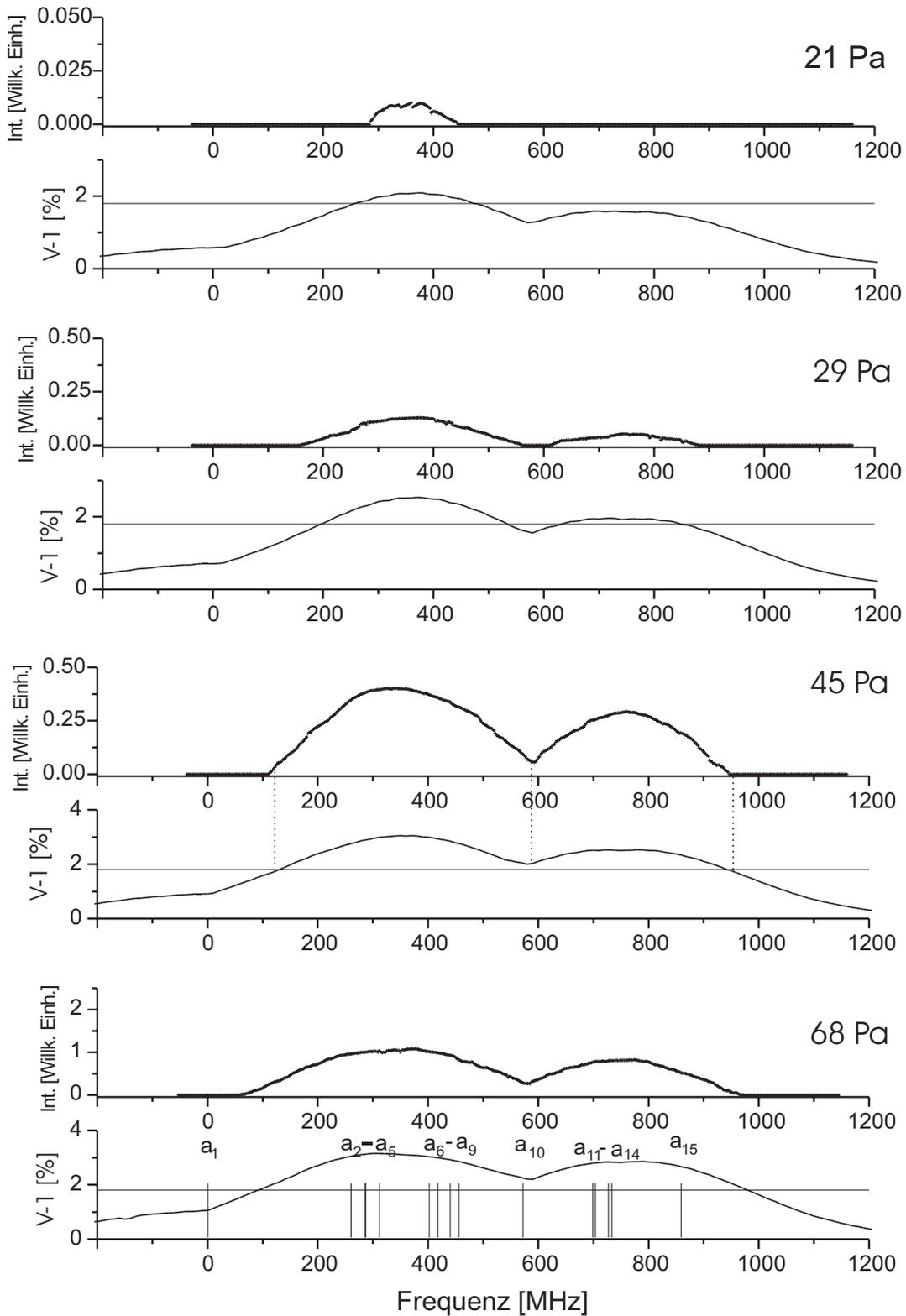


Abbildung 6.17.: Erläuterungen siehe Abb. 6.18

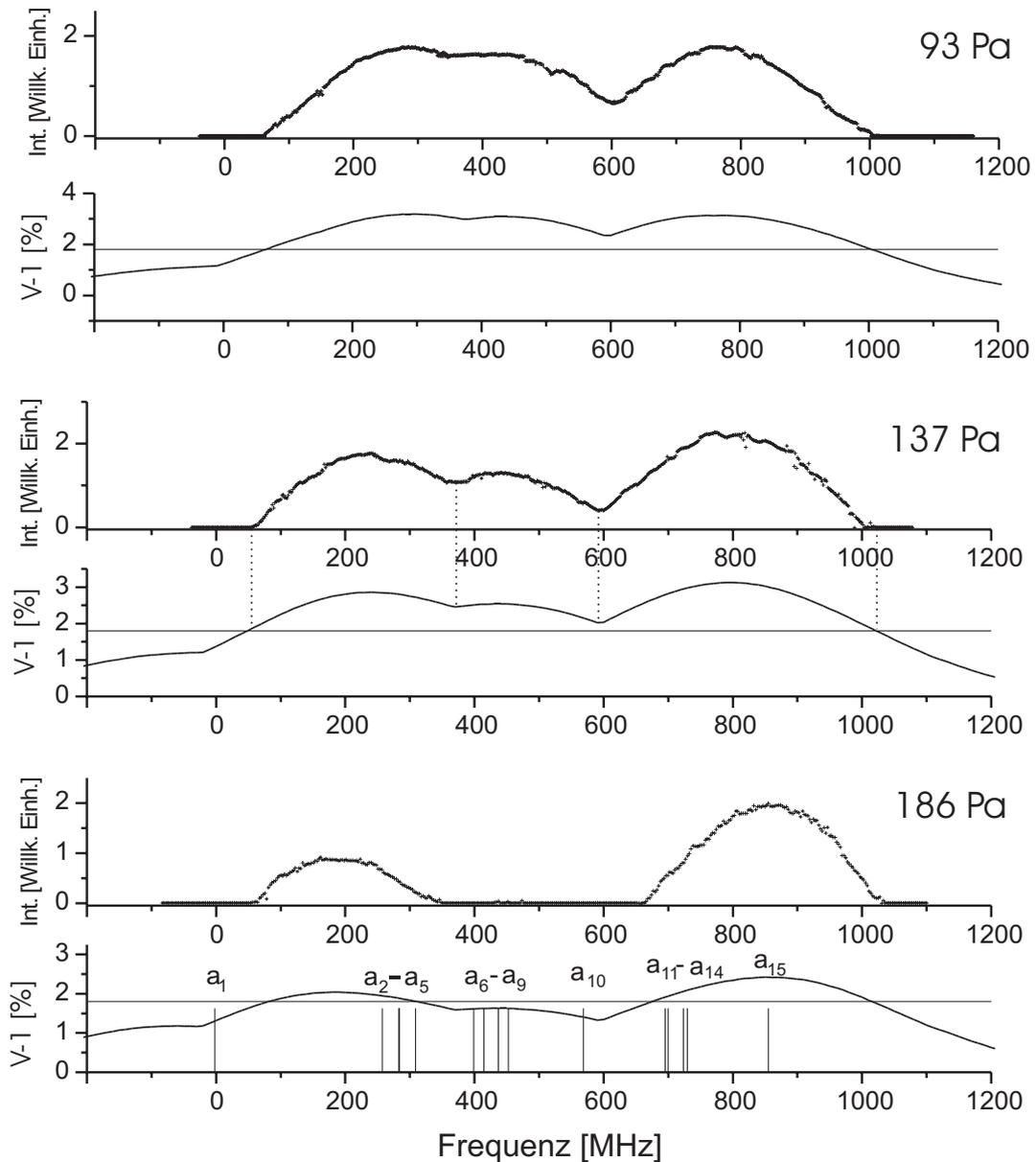


Abbildung 6.18.: Erhaltene Ausgangsleistungsprofile für den Ramanlaser auf dem Übergang $R(56)(32-31)$ bei $\lambda \approx 781$ nm beim Durchstimmen des Pumplasers über den Übergang $R(56)(32-0)$ bei 300 mW Pumpleistung und Dampfdrücken zwischen 21 und 68 Pa in Abb 6.17, sowie 93 und 186 Pa in dieser Abbildung. Die obere Abb. zeigt zu jedem Dampfdruck jeweils das Ergebnis der Messung, der untere Teil jeweils das numerisch berechnete Verstärkungsprofil. Die Balken im untersten Koordinatensystem geben die Positionen der Hyperfeinstrukturübergänge auf dem Pumpübergang wieder. Die Bezeichnungen der Hyperfeinstrukturkomponenten sind analog zu Abb. 4.11(b). Weitere Erläuterungen im Text.

Komp.	$\delta\nu$ [MHz]	$\delta\nu \approx \gamma_3$ bei [Pa]
$a_2 - a_3$	26	138
$a_6 - a_7$	15	73
$a_{11} - a_{12}$	5	24

Tabelle 6.1.: Vergleich der Frequenzdifferenzen einiger eng benachbarter Hyperfeinstrukturübergänge auf dem Ramanübergang und der Relaxationsrate γ_3 .

tisch oder größer als der Frequenzabstand der einzelnen Hyperfeinstrukturübergänge, so werden mehrere Hyperfeinübergänge gleichzeitig gepumpt. Dies führt auf dem Ramanübergang zu einem Verstärkungsprofil hoher Amplitude, da die Hyperfeinübergänge auf dem Ramanübergang fast vollständig überlagern (siehe auch Diskussion im Abs. 5.1.1). Der am einfachsten zugängliche Verbreiterungsmechanismus ist die Druckverbreiterung. Betrachtet man die Frequenzdifferenzen für einige eng benachbarte Komponenten und vergleicht diese mit der Druckverbreiterung auf dem Ramanübergang (γ_3), so kann man qualitative Aussagen zum beobachteten Verhalten machen. In Tab. 6.1 sind einige Frequenzdifferenzen für eng benachbarte Hyperfeinstrukturübergänge auf dem Ramanübergang aufgelistet. Die dritte Spalte der Tabelle gibt an, ab welchem Dampfdruck die Relaxationsrate γ_3 gleich der Frequenzaufspaltung der Hyperfeinstrukturübergänge ist. Für die Komponente a_{11}/a_{12} ist dies ab 24 Pa der Fall. Betrachtet man die Messung, so tritt bei der Messung mit einem Dampfdruck von 29 Pa auf dem Komponenten a_{11}/a_{12} Ramanlaseremission auf. Die Komponenten a_6/a_7 überlagern erst ab einem Dampfdruck von 73 Pa, in den dargestellten Messungen treten signifikante Anteile dieser Übergänge bei 93 Pa auf. Durch diese qualitativen Argumente kann das Verhalten der Ausgangsleistungsprofile bis zu einem gewissen Punkt verstanden werden. Allerdings lassen sich durch anschauliche Argumentation keine Aussagen über die genaue Profilform machen, da durch die doppler-verbreiterte Absorption und die Strahlpropagation im Medium das Verhalten sehr komplex ist.

Deshalb wurde das beobachtete Verhalten der Ausgangsleistung mit der in Kap. 5 vorgestellten Theorie und den daraus entwickelten Programmen simuliert und mit den erhaltenen Messungen verglichen. Dazu berechnet das Programm bei einer festen Pumplaserfrequenz das Verstärkungsprofil auf dem Ramanübergang und speichert den Maximalwert der Verstärkung ab. Auf dem Pumpübergang wird dabei mit einer Auflösung von

10 MHz gerechnet, das induzierte Verstärkungsprofil wird in 2 MHz Schritten bestimmt¹. Um die Messungen mit den Ergebnissen der Rechnung vergleichen zu können, sind die Rechenergebnisse jeweils zu jedem Dampfdruck unterhalb der Messung dargestellt. Die durchgezogene Linie in den Graphen gibt die Resonatorverluste an, die in diesem Fall bei 1,8% liegen. Für 45 und 137 Pa sind einige markante Stellen der Profile durch senkrechte (gestrichelte) Linien miteinander verbunden, um den Vergleich zwischen Messung und Rechnung zu erleichtern und die gute Übereinstimmung zu verdeutlichen. Bei den Simulationsrechnungen mußte auf dem Ramanübergang $v' = 32 \rightarrow v'' = 31$ die Aufspaltung der Hyperfeinstruktur gegenüber der Aufspaltung der Hyperfeinstruktur auf dem Pumpübergang $v' = 32 \rightarrow v'' = 0$ angepaßt werden, um die beobachteten Profile beschreiben zu können. Die Bestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung auf dem Ramanübergang wird erst später beschrieben, zunächst sollen die Auswirkungen auf die Durchstimmprofile erläutert werden: In Abb. 6.19 ist die Situation für 137 Pa nochmals dargestellt. Die obere Abb. 6.19(a) zeigt die Meßpunkte, wie sie auch in Abb. 6.18 dargestellt sind, Teil (b) der Abb. zeigt das berechnete Profil oberhalb der Schwellverstärkung für identische Hyperfeinstrukturaufspaltung auf Pump- und Ramanübergang, und Teil (c) zeigt das Ergebnis der Rechnung für unterschiedliche Hyperfeinstruktur von Pump- und Ramanübergang oberhalb der Schwelle. Die senkrechten gestrichelten Linien verbinden wieder markante Stellen der Profile. Man erkennt eine deutlich bessere Übereinstimmung zwischen der Simulation in Abb. 6.19(c) und der Messung (6.19(a)). Das Einsetzen der Laseremission bei etwa 50 MHz (alle Frequenzen relativ zur ersten Hyperfeinstrukturkomponente des Pumpübergangs) und das Ende der Laseremission bei ≈ 1020 MHz wird gut wiedergegeben. Besonders auffällig ist, daß bei Annahme unterschiedlicher Hyperfeinstrukturaufspaltung auf Pump- und Ramanübergang das lokale Minimum bei ≈ 600 MHz durch die Anpassung der Hyperfeinstruktur auf dem Ramanübergang gut beschrieben werden kann. Bei Berechnung des Profils mit gleicher Hyperfeinstrukturaufspaltung liegt das lokale Minimum etwa 25 MHz niedriger. Betrachtet man die Amplituden der berechneten Verstärkungsprofile in Abb. 6.19(b), so erkennt man, daß die Verstärkung am ersten Maximum bei etwa 225 MHz und am dritten Maximum bei 800 MHz ungefähr gleich ist. An diesen beiden Frequenzpositionen ist daher auch ungefähr die gleiche Ausgangsleistung zu erwarten. Die Messung zeigt aber bei 800 MHz eine deutlich größere Ausgangsleistung, als bei 225 MHz. Dieser Unterschied in den Am-

¹Die typische Rechenzeit für die in Abb. 6.17 und 6.18 dargestellten Profile liegt bei etwa 3 Stunden (Athlon XP1800 mit 1 GB DDR333 RAM).

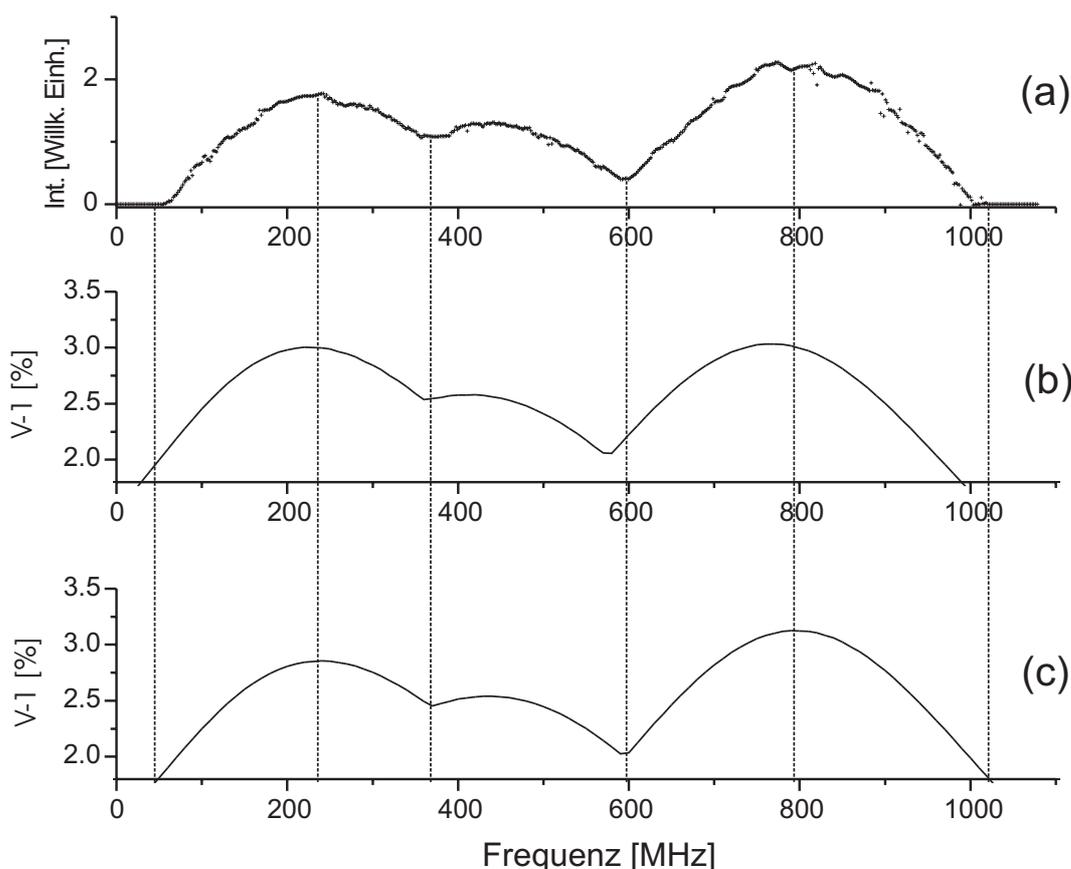


Abbildung 6.19.: Vergleich von gemessener Durchstimmkurve bei einem Dampfdruck von 137 Pa und einer Pumpleistung von 300 mW. (a) Meßwerte, (b) numerische Berechnung der Verstärkung oberhalb der Schwelle unter Verwendung identischer Hyperfeinstrukturaufspaltung für Pump- und Ramanübergang, (c) Verstärkung unter Verwendung der Hyperfeinstruktur nach Tab. 6.2.

plituden wird durch die Rechnung in Abb. 6.19(c) gut wiedergegeben. Die geänderte Hyperfeinstrukturaufspaltung zwischen Pump- und Ramanübergang ist bei dieser Form der Messung also deutlich sichtbar und kann nicht vernachlässigt werden.

Über die Hyperfeinstrukturaufspaltung höher gelegener Vibrationsniveaus im Grundzustand ist wenig bekannt. Eine genaue Beschreibung der Hyperfeinstruktur mit Unsicherheiten deutlich unter 100 kHz liegt nur für den Bereich $v'' = 0 \dots 17$ vor und ist umfassend in [Bodermann 1998] beschrieben. Oberhalb dieses Bereichs liegen keine präzisen Messungen vor. Für höher gelegene Vibrationsniveaus im Grundzustand können übliche Methoden der Sättigungsspektroskopie der Übergänge wegen der geringen thermischen

Besetzung der Niveaus selbst bei hohen Zelltemperaturen von 900 K (zur Verschiebung der Grundzustandsbesetzung in höhere Niveaus) nicht mehr angewendet werden. Bis lang gibt es nur eine Arbeit [Bacis u. a. 1980], in der durch Untersuchung der Linienform der Fluoreszenz von angeregten Jodmolekülen vom Niveau $v' = 43, J' = 12, 14$ Daten über die Hyperfeinstruktur höherer Niveaus ermittelt wurden. Die veröffentlichten Daten erstrecken sich über den Bereich von $v'' = 26 \dots 107$. Die in [Bacis u. a. 1980] veröffentlichten Aufspaltungen (bzw. die Parameter, die die Aufspaltung beschreiben) wurden als Ausgangspunkt für die Berechnung der Hyperfeinstrukturaufspaltung auf dem Ramanübergang genommen². Für die in Tab. 6.2 angegebene Hyperfeinstrukturaufspaltung wurde die beste Übereinstimmung mit den erhaltenen Messungen erzielt. Zum Vergleich ist in der zweiten Spalte der Tabelle die Aufspaltung auf dem Pumpübergang und in der vierten Spalte die jeweilige Differenz zwischen den einzelnen Hyperfeinübergängen angegeben.

Für die Berechnung der in Tab. 6.2 angegebenen Hyperfeinstrukturaufspaltung auf dem Pumpübergang wurden die in [Hong u. a. 2001] veröffentlichten Daten für Grund- und angeregten Zustand benutzt, die die derzeit präzisesten Daten zur Beschreibung der Hyperfeinstrukturaufspaltung der R(56)(32-0) darstellen. Die Berechnung der Hyperfeinstruktur auf dem Ramanübergang erfolgte mit den Daten aus [Bacis u. a. 1980], wodurch eine gute Übereinstimmung zwischen simulierten Profilen und den Messungen erzielt werden konnte. Auf die Details der verwendeten Parameter zur Berechnung der Hyperfeinstruktur soll im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter eingegangen werden. Die Parameter zur Bestimmung der Hyperfeinstrukturaufspaltung sind in der Unterschrift zu Tab. 6.2 angegeben.

Die obigen Betrachtungen zeigen, daß das Verhalten der Ramanlaserausgangsleistung beim Durchstimmen des Pumpasers über den Pumpübergang durch Vergleich mit numerischen Berechnungen des Verstärkungsprofils unter Berücksichtigung einer möglichen Änderung der Hyperfeinstruktur auf dem Ramanübergang gut verstanden werden kann. Der Einfluß der geänderten Hyperfeinstruktur ist dabei in der numerischen Rechnung, wie auch in der Messung deutlich erkennbar. Diese Form der Experimente stellt allerdings keine hochpräzise Methode zur Ermittlung der Hyperfeinstrukturaufspaltung auf dem Ramanübergang dar, da bei dieser experimentellen Methode nur die „Einhüllende“

²Details zur Berechnung der Hyperfeinstruktur findet man in [Broyer u. a. 1978, Bodermann 1998].

Komp.	Frequenz R(56)(32-0) [MHz]	Frequenz R(56)(32-31) [MHz]	Differenz [MHz]
a_1	0	0	0
a_2	259,697	268,947	9,25
a_3	285,509	295,748	10,2
a_4	286,218	296,057	9,8
a_5	311,367	322,275	10,9
a_6	401,477	416,031	14,5
a_7	416,993	431,706	14,7
a_8	439,627	455,076	15,4
a_9	455,343	470,957	15,6
a_{10}	571,542	591,627	20,0
a_{11}	698,054	722,707	24,6
a_{12}	702,754	727,690	24,9
a_{13}	726,031	751,307	25,2
a_{14}	732,207	757,729	25,5
a_{15}	857,954	888,061	30,1

Tabelle 6.2.: Hyperfeinstrukturaufspaltung auf dem Pumpübergang R(56)(32-0) berechnet nach den derzeit genauesten Daten von [Hong u. a. 2001]. Zur Berechnung der Aufspaltung des Übergangs R(56)(32-0) wurden folgende Daten verwendet: $eqQ_X = -1919$ MHz, $C_X = 3,306$ kHz, $d_x = 1,524$ kHz, $\delta_x = 3,705$ kHz, sowie für den B-Zustand: $eqQ_B = -544,751$ MHz, $C_B = 896,56$ kHz, $d_B = -4,2701$ kHz, $\delta_B = -6,943$ kHz. Dabei gibt $eqQ_{X/B}$ den Wert für die elektrische Quadrupolwechselwirkung, $C_{X/B}$ die Spin-Rotations-, $d_{X/B}$ und $\delta_{X/B}$ die tensorielle bzw. skalare Spin-Spin- Wechselwirkung an. Die Frequenzen für den Ramanübergang wurden auf Grundlage der Daten von [Bacis u. a. 1980] mit einem $eqQ_X = -2520(50)$ MHz berechnet. Alle anderen Parameter des Grundzustandes wurden Null gesetzt. Die beste Übereinstimmung zwischen der Theorie und der Simulation wurde für einen Wert von $eqQ_X = -2500$ MHz erreicht. Eine Fehlerabschätzung des hier ermittelten Wertes ist allerdings schwer möglich. Der hier bestimmte Wert liegt aber in den von [Bacis u. a. 1980] angegebenen Fehlergrenzen. Die dritte Spalte gibt die Differenzen der Hyperfeinstrukturaufspaltung zwischen Pump- und Ramanübergang an.

der Ausgangsleistung gemessen wird. Die in diesem Abschnitt vorgestellten Messungen und die daraus resultierende Änderung der Hyperfeinstrukturaufspaltung stimmt mit den Werten von [Bacis u. a. 1980] überein. Eine wesentliche Steigerung der Genauigkeit der Parameter, die in [Bacis u. a. 1980] angegeben werden, ist durch die hier vorgestellten Messungen nicht zu erwarten.

6.4.4. Form der Ausgangsleistungsprofile

Wie in Abs. 6.4.3 erläutert, wird bei festgehaltener Pumpfrequenz ein Ramanverstärkungsprofil induziert. Die Form des Profils für eine feste Pumpintensität ergibt sich aus den in Kap. 5 erläuterten Berechnungen. Das makroskopische Verstärkungsprofil ergibt sich dann aus der Integration über die Länge des Mediums unter Berücksichtigung der Pumpintensitätsverteilung. Um dieses makroskopische Profil zu messen, müßte die Verstärkung mit einem durchstimmbaren Probeleraser frequenz aufgelöst abgefragt werden, was in der experimentellen Durchführung außerordentlich aufwendig ist. Stattdessen kann die Ramanlaseroszillation selbst benutzt werden, um die Profile oberhalb der Schwellverstärkung abzufragen. Es ergibt sich dann ein Ausgangsleistungsprofil des Ramanlasers, daß näherungsweise das makroskopische Verstärkungsprofil wiedergibt. Dazu wurde der Pumplaser auf verschiedene Hyperfeinkomponenten des Pumpübergangs $R(56)(32-0)$ stabilisiert und die Länge des Ringresonators (Abb. 6.4(a)) durch Anlegen einer linearen Spannungsrampe am Piezo (hinter Spiegel $M4$) definiert durchgestimmt. Die Spannungsrampe wurde von einem Dreiecksgenerator und einem Hochspannungsverstärker erzeugt. Im Abstand des freien Spektralbereiches des Ringresonators ergibt sich dann eine periodisch wiederkehrende Struktur der Ausgangsleistungsprofile, wodurch Aussagen über die Breite und den Frequenzabstand der Profile gewonnen werden können. In Abb. 6.20, 6.22 und 6.25 sind die Ergebnisse dieser Messungen für unterschiedliche Betriebsbedingungen der Ramanlaser dargestellt. Abb. 6.20 zeigt die erhaltenen Ausgangsleistungsprofile bei einer festen Pumpleistung von 200 mW und einem Dampfdruck von 93 Pa. In den Abb. 6.20(a) bis 6.20(f) sind Ausgangsleistungsprofile an unterschiedlichen Frequenzpositionen innerhalb des Pumpübergangs dargestellt. Die Angaben in Abb. 6.20(a) und 6.20(b) sind relativ zur Lage der ersten Hyperfeinstrukturkomponente a_1 angegeben, bei allen anderen Messungen wurde der Pumplaser direkt auf eine Hyperfeinstrukturkomponente des Pumpübergangs stabilisiert. Wie schon im vorherigen Abschnitt 6.4.3 kann unter den hier vorliegenden experimentellen Bedingungen kein Ramanlaserbetrieb auf den einzelstehenden Komponenten a_1 , a_{10} und a_{15} realisiert werden. Abb. 6.20(a) zeigt das erhaltene Ausgangsleistungsprofil bei einer Pumplaserfrequenz von ca. 80 MHz (der Laser war bei dieser und der nachfolgenden Messung in Abb. 6.20(b) nicht stabilisiert).

Das erhaltene Ausgangsleistungsprofil in Abb. 6.20(a) entsteht durch Überlagerung der Verstärkungsbeiträge der Komponenten $a_2 - a_5$, die an dieser Frequenzposition zwi-

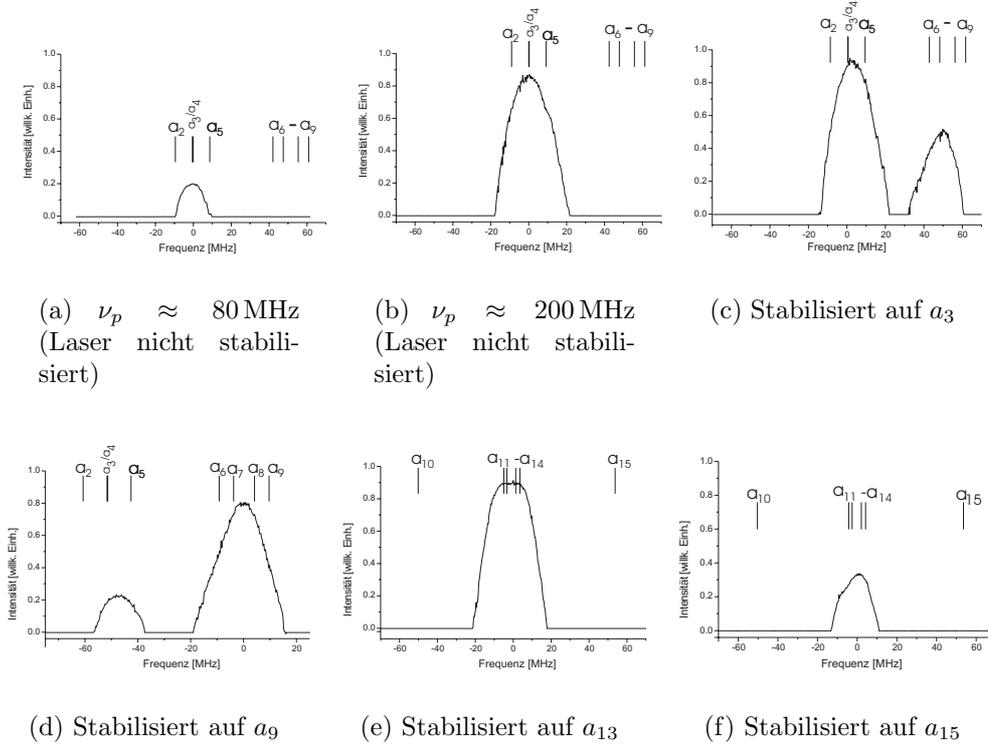


Abbildung 6.20.: Form der Ausgangsleistungsprofile bei unterschiedlicher Frequenz ν_p des Pumplasers, bei 93 Pa und einer Pumpleistung von 200 mW. Die Pumplaserfrequenz ν_p ist relativ zur ersten Hyperfeinstrukturkomponente des Pumpübergangs angegeben, die Frequenzangaben in den Graphen sind relativ zum Maximum der Ausgangsleistungsprofile angegeben. Die Frequenzangaben in Abb. 6.20(a) bis 6.20(f) beziehen sich auf die Pumplaserfrequenz relativ zur ersten Hyperfeinstrukturkomponente des R(56)(32-0) Übergangs. Abb. 6.20(a) und 6.20(b) wurden bei nichtstabilisiertem Betrieb des Pumplasers aufgenommen. Die Frequenzangaben in den Abb. 6.20(a) und 6.20(b) sind auf ≈ 5 MHz genau. Alle anderen Abbildungen wurden bei stabilisiertem Betrieb des Pumplasers aufgenommen.

schen 180 MHz (a_2) und 230 MHz (a_5) off-resonant gepumpt werden. Bei einer Pumplaserfrequenz von ≈ 200 MHz entsteht das Ausgangsleistungsprofil wiederum durch die Komponenten $a_2 - a_5$, die jetzt nur noch 60 bis 100 MHz off-resonant gepumpt werden. Die induzierte Gesamtverstärkung ist größer, entsprechend wird das gemessene Ausgangsleistungsprofil höher und breiter. Strahlt man den Pumplaser resonant auf der Komponente a_3 ein, so ergeben sich zwei voneinander getrennte Ausgangsleistungsprofile. Das höhere Profil stellt die Ausgangsleistung durch Beitrag der Komponenten $a_2 - a_5$ dar,

das kleinere Profil ergibt sich bereits durch die off-resonanten Komponenten $a_6 - a_9$. An Hand dieser Abbildungen wird deutlich, daß nur durch Überlagerung von einzelnen Hyperfeinstrukturkomponenten eine hinreichend große Verstärkung induziert werden kann. Der Betrieb auf einzelnen bzw. einzelstehenden Komponenten ist nicht möglich. Dieser Sachverhalt soll durch Abb. 6.21 verdeutlicht werden. Abb. 6.21 zeigt für die experimentelle Situation in Abb. 6.20(b) das berechnete frequenz aufgelöste Verstärkungsprofil für die Komponenten a_2 , a_3/a_4 und a_5 , sowie die Summe der Beiträge aller drei Profile (gestrichelte Kurve). Man erkennt, daß unter den vorliegenden experimentellen Bedingungen für einzelne Komponenten ein Verstärkungsgewinn ($V - 1$) von 0,5% erreicht wird. Die überlagerte Komponente a_3/a_4 erreicht etwa den doppelten Verstärkungsgewinn. Durch Überlagerung der einzelnen Komponenten im Frequenzraum kommt es zur Ausbildung eines glatten Verstärkungsprofils mit einem maximalen Verstärkungsgewinn von 1,8%.

Die Struktur der einzelnen beteiligten Hyperfeinstrukturkomponenten ist nicht mehr auflösbar. Dieses Verhalten gilt analog für alle Hyperfeinstrukturgruppen der R(56)(32-0). Die gemessenen Profile in den Abb. 6.20(d) bis 6.20(f) können auf die gleiche Weise erklärt werden. Stabilisiert man den Pumplaser auf die Komponente a_9 (Abb. 6.20(d)) des Pumpübergangs, so hat sich die Situation im Vergleich zu Abb. 6.20(c) genau umgekehrt. Die größte Ausgangsleistung erhält man für die Komponenten $a_6 - a_9$. Die Ausgangsleistung durch die Komponenten $a_2 - a_5$ ist durch das off-resonante Pumpen deutlich unterdrückt. Bei Stabilisierung auf die Komponenten a_{13} bzw. a_{15} erhält man ein Ausgangsleistungsprofil, das sich nur aus Verstärkungsbeiträgen durch die Komponenten $a_{11} - a_{14}$ ergibt.

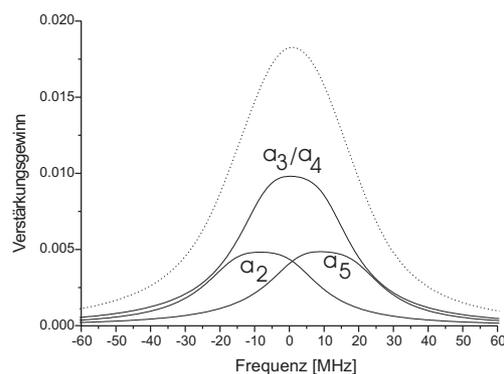


Abbildung 6.21.: Berechnete Verstärkungskurven für die Komponenten a_2 , a_3/a_4 und a_5 . Die gestrichelte Kurve gibt die Gesamtverstärkung an.

6.4.4.1. Dynamischer Stark-Effekt

Für die weiteren Untersuchungen zur Form der Ausgangsleistungsprofile wurde der Pumplaser auf den Komponenten $a_{11} - a_{14}$, die die geringste Aufspaltung im Multiplett aufweisen, betrieben. Da bei dieser Pumplaserfrequenz nur ein Ausgangsleistungsprofil zu beobachten ist, wird die Interpretation der experimentellen Ergebnisse einfacher. In Abb. 6.22 sind einige Ausgangsleistungsprofile bei einem festen Dampfdruck von 68 Pa und variabler Pumpleistung dargestellt. Bei einer geringen Pumpleistung von 80 mW befindet sich der Ramanlaser knapp oberhalb der Schwelle, und man erhält ein Ausgangsleistungsprofil mit nur einem Maximum. Bereits ab einer Pumpleistung von 160 mW beobachtet man eine Aufspaltung des Profils, die in diesem Fall 15 MHz beträgt und mit wachsender Pumpleistung ansteigt. Bei 300 mW Pumpleistung beträgt die Aufspaltung bereits 30 MHz. Die Ausgangsleistung zwischen den Maxima verringert sich mit steigen-

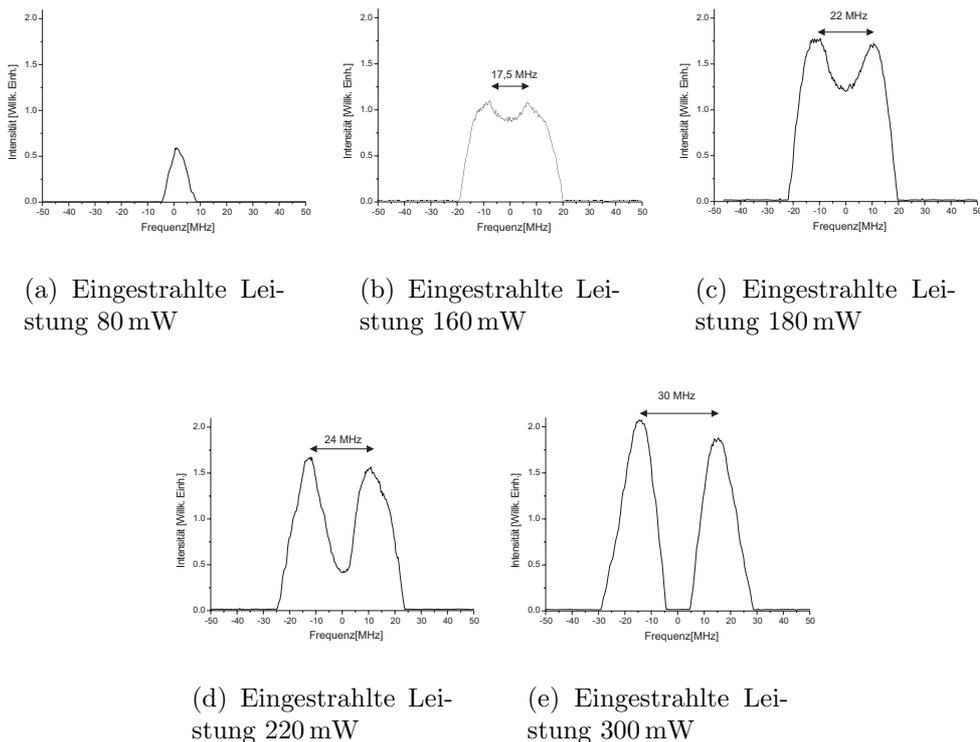


Abbildung 6.22.: Beobachtete Ausgangsleistungsprofile bei Stabilisierung des Pumplasers auf die Komponente a_{12} der R(56)(32-0) bei einem Dampfdruck in der Jodzelle von 68 Pa.

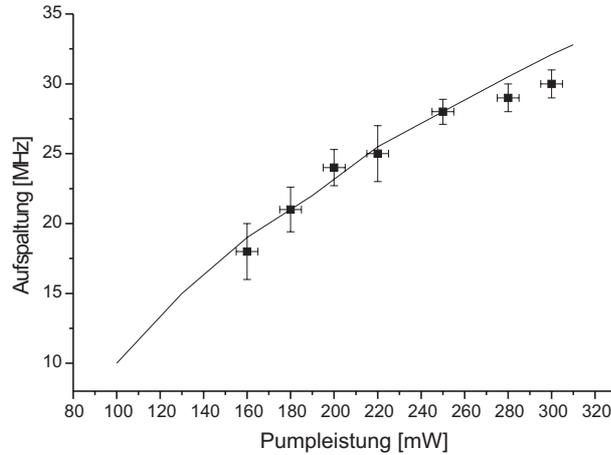
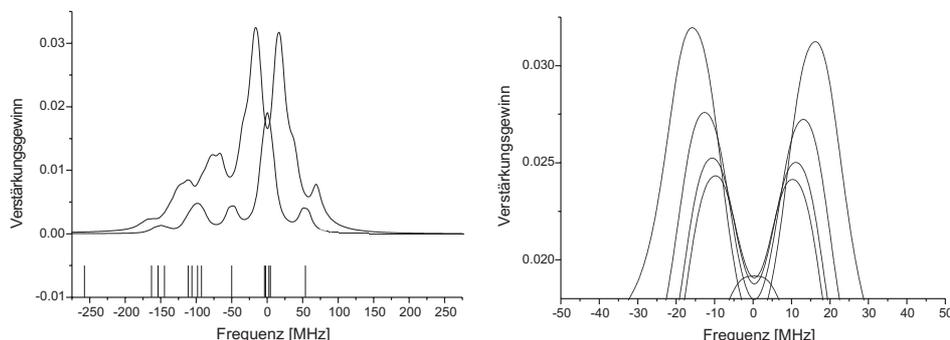


Abbildung 6.23.: Vergleich der beobachteten Aufspaltung der Ausgangsleistungsprofile mit der numerisch berechneten Aufspaltung.

der Aufspaltung des Ausgangsleistungsprofils und der Ramanlaser erreicht bei maximaler Pumpleistung zwischen den beiden Maxima nicht mehr die Schwellverstärkung.

Dieser Effekt ist als dynamischer Stark-Effekt (AC-Stark-Effekt) oder Autler-Townes-Aufspaltung [Autler und Townes 1955] bekannt. Hierbei handelt es sich um eine Aufspaltung des oberen Niveaus $|3\rangle$ durch ein starkes Pumpfeld. Der dynamische Stark-Effekt kann für einfache Systeme (keine doppler-verbreiterten Medien, keine Absorption, keine Propagationseffekte) durch eine einfache Beziehung beschrieben werden. Die Aufspaltung der Maxima ist proportional zur Wurzel aus dem Dipolmatrixelement des Übergangs und der Intensität des Pumpfeldes ($\delta\nu_{AC} \propto \sqrt{|p_{ij}|^2 |E_p|^2}$). In den hier vorliegenden Experimenten ist das eingestrahlte Feld durch Absorption der Pumpstrahlung und die Strahlpropagation ortsabhängig, wobei die Situation durch die Überlagerung mehrerer Übergänge zu einem Profil weiter verkompliziert wird.

Durch numerische Simulation der Verstärkungsprofile für die vorliegenden experimentellen Bedingungen wurde die berechnete Aufspaltung mit den experimentellen Werten verglichen. Die Ergebnisse dieses Vergleichs sind in Abb. 6.23 dargestellt. Die Kreuze stellen die erhaltenen Meßwerte dar. Dabei ergibt sich die Unsicherheit in der Bestimmung der Aufspaltung zum einen durch die Bestimmung des freien Spektralbereichs des Ringresonators, als auch wesentlich durch die Nichtlinearität der Längenänderung des Piezotubusses beim Durchlaufen der Spannungsrampe. Die durchgezogene Linie stellt den berechneten Verlauf der Aufspaltung in Abhängigkeit von der eingestrahlt-



(a) Berechnetes Verstärkungsprofil für den Übergang $R(56)(32-0) \rightarrow R(56)(32-31)$ bei Stabilisierung des Pumplasers auf die Komponente a_{12} . Die untere Kurve gibt das Verstärkungsprofil für eine Pumpleistung von 80 mW wieder, die obere Kurve die Verstärkung für eine Pumpleistung von 300 mW. Die Balken stellen die Position der einzelnen Hyperfeinstrukturkomponenten dar.

(b) Ausschnitt aus dem zentralen Teil der Verstärkungsprofile für einen festen Dampfdruck von 63 Pa und eingestrahelten Leistungen zwischen 80 und 300 mW. Die Profile wurden für folgende Pumpleistungen berechnet: 80, 160, 180, 220, 300 mW.

Abbildung 6.24.: Verstärkungsprofile für den Übergang $R(56)(32-31)$.

ten Pumpleistung dar, wobei hier eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Werten und dem berechneten Verlauf zu erkennen ist. In Abb. 6.24(a) ist das berechnete Verstärkungsprofil für zwei unterschiedliche Pumpleistungen dargestellt, wobei der Pumplaser für die Berechnung resonant mit der Komponente a_{12} des $R(56)(32-0)$ Übergangs war. Für eine Pumpleistung von 80 mW erkennt man auf den benachbarten Komponenten $a_{11} - a_{14}$ ein glattes Verstärkungsprofil und nur geringe Verstärkungen auf den benachbarten Komponenten. Bei einer Pumpleistung von 300 mW ist der zentrale Teil des Profils deutlich aufgespalten. Ebenso erkennt man, daß durch die Aufspaltung der benachbarten Hyperfeinstrukturübergänge die Flanken des zentralen Teils des Verstärkungsprofils verändert werden. Abb. 6.24(b) zeigt den zentralen Teil des Verstärkungsprofils für einige Pumpleistungen wie sie auch in den Experimenten verwendet wurden, wobei nur der Teil des Profils oberhalb der Schwelle dargestellt ist. Vergleicht man die berechnete Struktur des Verstärkungsprofils mit den gemessenen Ausgangsleistungsprofilen, so fällt auf,

6. Experimentelle Untersuchungen

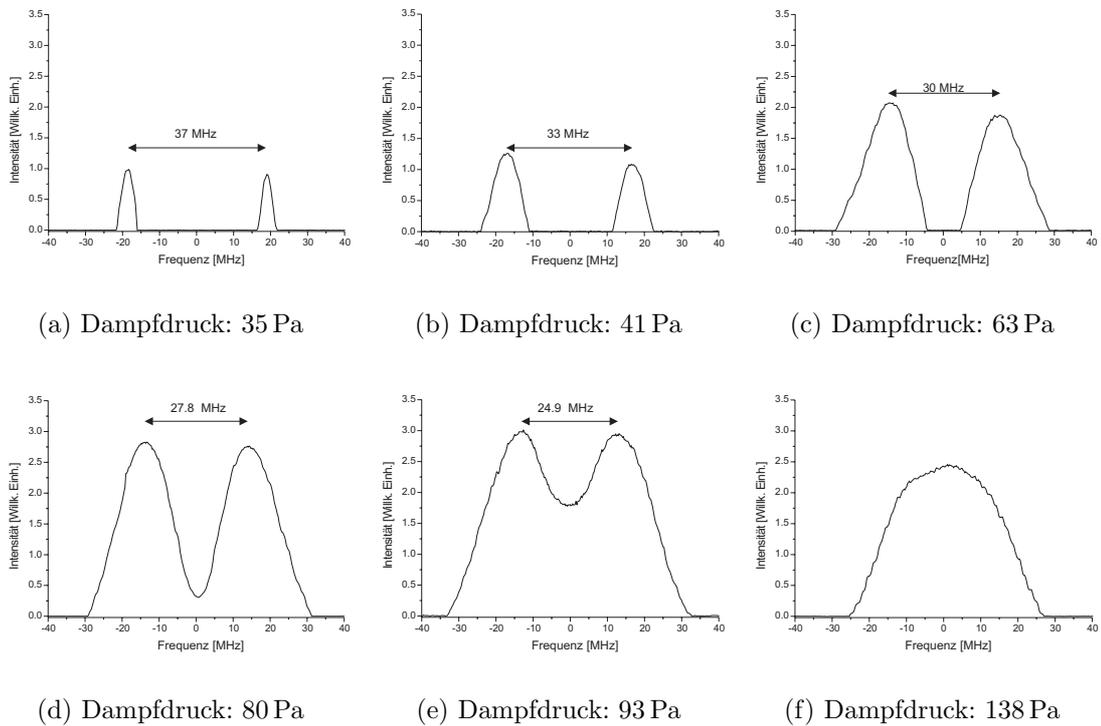
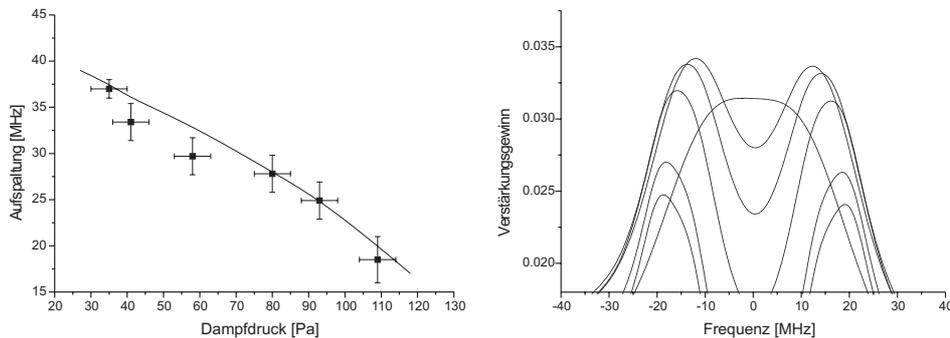


Abbildung 6.25.: Gemessene Ausgangsleistungsprofile bei Stabilisierung des Pumplasers auf die Komponente a_{12} der R(56)(32-0) bei fester Pumpleistung von 300 mW.

daß die Breiten der berechneten Profile gut mit den gemessenen Breiten der Ausgangsleistungsprofile übereinstimmen und hier nur Abweichungen im Bereich weniger MHz zu beobachten sind. Auch die leicht unterschiedlichen Amplituden der aufgespaltenen Ausgangsleistungsprofile (das niederfrequente Maximum hat grundsätzlich eine höhere Ausgangsleistung) kann durch die berechneten Verstärkungsprofile bestätigt werden.

Um den Einfluß des dynamischen Stark-Effekts weiter zu untersuchen, wurde wie in Abb. 6.25 die Pumpleistung bei 300 mW konstant gehalten und der Dampfdruck innerhalb der Zelle variiert. Mit steigendem Dampfdruck ist hierbei eine Abnahme der Stark-Aufspaltung zu beobachten. Bei einem Dampfdruck von 35 Pa beträgt die Aufspaltung der Profile 37 MHz, bei 93 Pa hat sich die Aufspaltung auf 25 MHz verringert. Bei einem Dampfdruck von 138 Pa (Abb. 6.25(f)) ist keine Aufspaltung des Profils mehr zu beobachten. Zur Verringerung der Aufspaltung tragen mehrere Effekte bei. Zum einen ist bei kleinen Dampfdrücken die Teilchendichte im Medium gering und die Transmission der Pumpstrahlung groß (70% bei 35 Pa). Durch den geringen Dampfdruck in der



(a) Vergleich der gemessenen Aufspaltung der Profile (Kreuze), mit dem Verlauf der numerisch berechneten Aufspaltung für die Bedingungen wie in Abb. 6.26(b).

(b) Ausschnitt aus dem zentralen Teil der Verstärkungsprofile für eine feste Pumpleistung von 300 mW und variablem Dampfdruck. Die Profile wurden für folgende Dampfdrücke berechnet: 35, 41, 63, 80, 93 und 138 Pa. Die Aufspaltung der Profile wird mit größer werdendem Dampfdruck geringer.

Abbildung 6.26.: Vergleich von numerisch berechneter Aufspaltung mit den experimentellen Ergebnissen und Profilform der numerisch berechneten Verstärkungsprofile.

Jodzelle ist die Druckverbreiterung klein, und es können im Medium große Pumpparameter erreicht werden. Der maximale Pumpparameter bei 35 Pa beträgt $P \approx 60$ und wird in der Zellmitte erreicht. Mit steigendem Dampfdruck nimmt die Teilchendichte und die Druckverbreiterung der Übergänge zu, was zu steigender Absorption und geringeren Pumpparametern führt. Die Aufspaltung der Profile sollte also mit steigendem Dampfdruck abnehmen. Bei 93 Pa beträgt die Transmission nur noch 14%, und es wird ein maximaler Pumpparameter von $P \approx 9$ erreicht. Die Position des maximalen Pumpparameters liegt jetzt nicht mehr in der Mitte der Zelle (an der Fokusposition), sondern der maximale Wert wird bereits nach 1/3 der Zelle erreicht, was auf die starke Absorption der Pumpstrahlung zurückzuführen ist. Bei 138 Pa wird die Pumpstrahlung nahezu vollständig absorbiert, wobei der maximale Pumpparameter bereits am Anfang der Zelle erreicht wird. Durch die Absorption der Pumpstrahlung und die Strahlpropagation im Medium kann der Pumpparameter innerhalb des Mediums bis um eine Größenordnung variieren³. Das beobachtete Ausgangsleistungsprofil ergibt sich somit als Überlagerung

³Zu den Auswirkungen des Pumpparameters auf die Form des Verstärkungsprofils in Vorwärtsrichtung

von Profilen unterschiedlicher Aufspaltung.

In Abb. 6.26(a) sind die beobachteten Aufspaltungen der Profile (Kreuze) mit den Ergebnissen der numerischen Simulation der Aufspaltung verglichen. Man erkennt einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen der Abnahme der Aufspaltung und dem Dampfdruck, sowie eine gute Übereinstimmung mit den beobachteten Aufspaltungen. Abb. 6.26(b) zeigt die berechnete Form der einzelnen Profile oberhalb der Schwelle für unterschiedliche Dampfdrücke. Vergleicht man die berechneten Profile mit den gemessenen Profilen, so ergibt sich auch hier wieder eine gute Übereinstimmung zwischen gemessenen und gerechneten Profildreiten.

In diesem Abschnitt wurden einige Eigenschaften der molekularen Jod-Ramanlaser, die in Single-Mode-Ringresonatoren im nahinfraroten Bereich um 780 nm betrieben wurden, gezeigt. Dabei zeigte sich, daß das beobachtete Schwellwertverhalten, der Durchstimmbereich, die Form der Ausgangsleistungsprofile, sowie Niveauaufspaltungen und deren Kompensation nur teilweise durch qualitative Argumentation verständlich gemacht werden können. Um quantitativere Aussagen gewinnen zu können, ist eine vollständige Beschreibung des Lasersystems mit dem Dichtematrixformalismus inklusive der Modellierung der Pumpabsorption notwendig, die schließlich auf numerische Rechenprogramme führt. Die daraus gewonnenen Verstärkungskurven und Verstärkungsprofile für den Kleinsignalfall wurden in diesem Abschnitt mit den experimentellen Beobachtungen verglichen. Hierbei ist eine meist gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Ergebnissen und der teilweise aufwendigen numerischen Simulation festzustellen.

siehe auch Abb. 5.2 auf Seite 74.

6.4.5. Linienbreite und Frequenzstabilität der Ramanlaser

Wie schon in Abs. 2.2 und Kap. 5 diskutiert, setzt sich die Verstärkung eines Ramanlasers aus einem inkohärenten Einphotonen-(Inversions-) und einem kohärentem Zweiphotonen-(Raman)-Beitrag zusammen, wobei der kohärente Zweiphotonen-Beitrag in Vorwärtsrichtung dominiert. Der Einphotonenbeitrag verkörpert dabei die „konventionellen“ Lasereigenschaften. Bei einem konventionellen Laser liegt ein Verstärkungsprofil (meist bestimmt durch einen Übergang) vor, innerhalb dessen ein Laser noch zur Oszillation gebracht werden kann. Die Linienbreite, die die relative Frequenzstabilität des Lasers bestimmt, wird dabei im wesentlichen durch das technische Rauschen des Resonators bestimmt (vom Quantenrauschen wird hier abgesehen), während die absolute Stabilität vom Laserübergang abhängt. Beim Ramanlaser werden Lage und Form des Verstärkungsprofils durch den Pumplaser bestimmt, und deshalb ist hier zusätzlich zum Beitrag des Ramanlaserresonators auch ein Beitrag der Pumplaserfrequenzfluktuationen zur Linienbreite des Ramanlasers zu erwarten. Außerdem ist die absolute Frequenzstabilität jetzt nicht mehr durch den Laserübergang, sondern durch den Pumplaser bestimmt. Da hier der Pumplaser auf eine Hyperfeinstrukturkomponente des Jodmoleküls stabilisiert wird, ist letztlich die absolute Stabilität dann durch die Stabilität des Jodübergangs festgelegt. Untersuchungen zur absoluten Stabilität waren hier jedoch nicht vorgesehen. Stattdessen sollte die Linienbreite des Jodramanlasers bestimmt werden. Aufgrund des hier dominanten Ramanverstärkungsbeitrages und der obigen Diskussion ist dabei zu erwarten, daß im günstigsten Fall die Ramanlaserlinienbreite gleich der Pumplaserlinienbreite ist, da jegliche Pumplaserfluktuationen zu einer entsprechenden Verschiebung des induzierten Verstärkungsprofils führen und die Ramanlaserfrequenz auf das Maximum des Verstärkungsprofils stabilisiert wird (vergleiche Abs. 6.2.2). Da die Pumplaserlinienbreite (Abs. 4.3) bei etwa 10 kHz für Meßzeiten von 100 ms liegt, sind zur Messung der Ramanlaserlinienbreite geeignete hochauflösende Verfahren anzuwenden. Im folgenden sollen zunächst einige geeignete Verfahren diskutiert werden.

Eine naheliegende Möglichkeit zur Messung der Linienbreite der Ramanlaser ist die Verwendung der Flanke einer High-Finesse-Cavity als Frequenzdiskriminator. Da im Institut keine geeignete Cavity zu Verfügung stand, wurde von Experimenten mit einer High-Finesse-Cavity jedoch abgesehen. Der experimentelle Aufwand und die Kosten für eine Messung der Linienbreite der Ramanlaser wären sehr hoch gewesen. Neben der Cavity werden zur Erzeugung eines Pound-Drever-Signals auch noch Modulatoren und Mischer

benötigt, um die Messung der Linienbreite von Amplitudenschwankungen der Ramanlaser unabhängig zu machen. Sonst würden bei Messung der Linienbreite eines Lasers an der Flanke eines Resonators ohne Modulationstechniken Amplitudenschwankungen als Frequenzschwankungen interpretiert (vergleiche hierzu auch Abs. 4.5.2). Desweiteren benötigt man einen durchstimmbaren AOM und einen entsprechenden Frequenzgenerator, um die Ramanlaserstrahlung mit der Cavity in Resonanz zu bringen.

Als weitere Methode bietet sich die Möglichkeit, die Ramanstrahlung mit einem anderen stabilen (d.h. festfrequenten) und schmalbandigen Laser mittels Beat-Messung zu vergleichen. Da die erwartete Linienbreite der Ramanlaser in der Größenordnung der Linienbreite des Pumplasers liegt, werden an das Vergleichslasersystem hohe Anforderungen gestellt. Um Aussagen über die Linienbreite der Ramanlaser treffen zu können, muß die Linienbreite des Vergleichslasers genau bekannt sein und geringer oder mindestens in der gleichen Größenordnung der erwarteten Linienbreite der Ramanlaser liegen. Ein weiteres Problem stellt dabei die absolute Frequenz des Vergleichslasers dar. Neben der geforderten geringen Linienbreite des Vergleichslasers muß auch die absolute Frequenz des Lasers durch Stabilisierung des Lasers auf eine stabile Referenz kompensiert werden. Im Institut stehen einige auf Rubidium stabilisierte schmalbandige Diodenlaser-Systeme zur Verfügung, die diese Anforderungen durchaus erfüllen. Um die Durchführbarkeit eines Vergleiches von Ramanlaser und stabilem Vergleichslaser mit einer Beat-Messung zu überprüfen, wurden deshalb zufällige Koinzidenzen von Ramanlaserfrequenzen mit der Rubidium D_1 - , D_2 - und dem Rubidium-Zweiphotonenübergang überprüft. Leider ergab sich bei Betrachtung aller verfügbarer Pumpübergänge und den daraus folgenden Ramanlaserfrequenzen keine Koinzidenz (Koinzidenz meint hier Frequenzabweichungen von maximal 25 GHz, die durch im Hause verfügbare schnelle Photodioden detektiert werden können) zwischen den genannten Rubidium-Frequenzen und realisierbaren Ramanlasern. Die gleiche Situation ergibt sich bei Vergleich von möglichen Ramanlasern mit der Frequenz eines zur Verfügung stehenden Jod-stabilisierten He-Ne-Lasers. Ein Vergleich der Ramanlaser mit verfügbaren Referenzlasern, die auf atomare oder molekulare Referenzen stabilisiert sind, konnte somit nicht erfolgen.

Eine weitere Möglichkeit bietet sich durch Vergleich eines Ramanlasers mit der Grundwelle des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers mittels Beat-Messung, wodurch direkt die spektralen Eigenschaften des Pumplasers mit dem Ramanlaser verglichen werden können. Deshalb wurden auf allen erreichbaren Pumpübergängen des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers nach Ramanlasern gesucht, die in der Nähe der Grundwelle des fre-

quenzverdoppelten Nd:YAG-Lasern betrieben werden können. Die beste Koinzidenz wurde auf dem Pumpübergang $P(48)(32-0)$ im $^{127}I^{129}I$ erreicht, wobei der Ramanlaser auf dem Übergang $R(46)(31-54)$ betrieben wurde. Abb. 6.27 verdeutlicht die Situation durch eine Gittermonochromatoraufnahme des interessierenden Spektralbereichs. Die zu messende Differenzfrequenz von ≈ 150 GHz liegt jedoch außerhalb des Meßbereichs von heute kommerziell erhältlichen Photodetektoren (derzeit etwa 60 GHz) und ist daher nicht detektierbar.

Um dennoch Aussagen über die spektralen Eigenschaften der Ramanlaser gewinnen zu können, wurde das folgende Konzept verfolgt: Die Pumpstrahlung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers wurde durch einen Strahlteiler in 2 Teilstrahlen aufgespalten und zum Betrieb von zwei möglichst identischen Ramanlasern benutzt, wobei beide Ramanlaser nach dem im Abs. 6.2.2 vorgestellten Verfahren auf das induzierte Verstärkungsprofil stabilisiert wurden. Die Ausgangsstrahlung beider Ramanlaser wurde zur weiteren Analyse in einen Monochromator und ein Fabry-Perot-Interferometer eingekoppelt. Zur Messung der Beatfrequenz der Ramanlaser wurde Laserstrahlung aus beiden Ramanlasern überlagert, auf eine Avalanche-Photodiode fokussiert und von einem Spektrum-Analysator fouriertransformiert. Die verwendete Avalanche-Photodiode hat eine Bandbreite (3 dB) von 1 GHz. Als Pumpübergang wurde der $R(56)(32-0)$ Übergang gewählt, wobei die Frequenzposition des Pumplasers so eingestellt wurde, daß zwei getrennte Ausgangsleistungsprofile zur Stabilisierung des Ringresonators zur Verfügung standen. Dieser Fall liegt bei Betrieb des Pumplasers zwischen den Komponenten a_3 bis a_9 vor (vergleiche Abb. 6.20(c) und 6.20(d)), wobei die beiden Profile einen Frequenzabstand von etwa 45 MHz aufweisen. Durch Stabilisierung der beiden Ringresonatoren auf jeweils unterschiedliche Profile kann somit eine Beatfrequenz von ≈ 45 MHz erzeugt werden. Eine

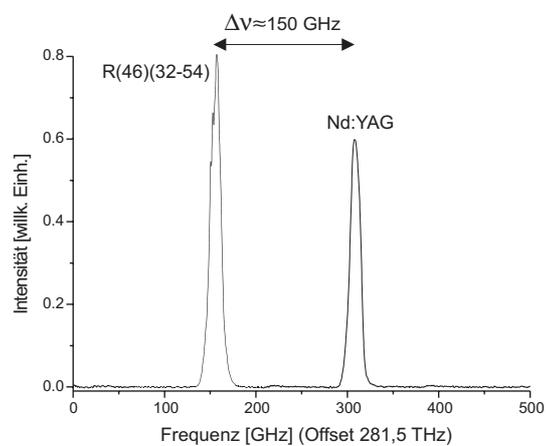


Abbildung 6.27.: Gittermonochromatoraufnahme zur Abschätzung des Frequenzabstandes zwischen der Grundwelle des Nd:YAG-Lasers und der $R(46)(32-54)$ im $^{127}I^{129}I$.

Stabilisierung der beiden Ringresonatoren auf das gleiche Ausgangsleistungsprofil ist technisch nicht praktikabel, da bei dieser Form der Messung eine zentrale Beatfrequenz von ≈ 0 zu erwarten ist. Da die erwartete Linienbreite des Beatsignals in der Größenordnung von einigen kHz liegt, müßte somit bei sehr niedrigen Frequenzen die Fouriertransformation durchgeführt werden. Der Niederfrequenzbereich ist für Beatmessungen allerdings nicht geeignet, da in diesem Frequenzbereich zahlreiche Störquellen das eigentlich zu messende Signal überlagern können. Z.B. können niederfrequente Abstrahlungen von Schaltnetzteilen aus eingesetzten Laborgeräten in die Meßapparatur mit hohen Signalamplituden einkoppeln. Desweiteren liegen die Amplitudenfluktuationen des Pump- und folglich auch des Ramanlasers in diesem Frequenzbereich (< 1 MHz), wodurch ein breiter Frequenzuntergrund im Niederfrequenzbereich entsteht. Im Frequenzbereich von einigen 10 MHz wird das Spektrum nicht mehr durch technische Geräte im näheren Laborumfeld oder durch Amplitudenschwankungen des Pumplasers gestört. Für eine Beatmessung mit gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis werden typischerweise einige hundert μ W Ausgangsstrahlung pro Laser benötigt, wobei für ein optimales Beatsignal beide Laser die gleiche Intensität und Polarisierung haben sollten. Da bei Einsatz des bislang verwendeten Pumplasers aber pro Ramanlaser nur weniger als 150 mW Pumpleistung zur Verfügung stehen, wurde für kurze Zeit ein in den spektralen Eigenschaften identisches System mit höherer Ausgangsleistung geliehen, so daß für jeden Ramanlaser eine Pumpleistung von etwa 250 mW zur Verfügung stand und somit Ausgangsleistungen der Ramanlaser deutlich über 100μ W bei Dampfdrücken von 120 Pa möglich waren. Unter diesen Bedingungen tritt keine Verbreiterung oder Aufspaltung durch den dynamischen Stark-Effekt auf. In Abb. 6.28 ist das erhaltene Beatspektrum, wie es sich durch Überlagerung der beiden Ramanlaser ergibt abgebildet. Die Aufnahme wurde mit einer Filterbandbreite des Spektrum-Analysators von 1 kHz und einer Meßzeit („Sweeptime“) von 220 ms aufgenommen. Das Beatsignal hat eine spektrale Breite (bei einem Abfall von 3 dB) von 4,5 kHz. Nimmt man ein lorentzförmiges Profil für die spektrale Verteilung der beiden Ramanlaser an, so ergibt sich eine Linienbreite von 3,2 kHz für einen Ramanlaser. Das detektierte Signal liegt etwa 30 dB über dem Rauschen (Signal-zu-Rausch-Verhältnis 1 : 1000). Die Mittelung solcher Spektren über 600 aufeinanderfolgenden Messungen (entspricht einer Meßzeit von über 2 Minuten) ergibt eine 3 dB Halbwertsbreite von 40 kHz.

Um dieses Ergebnis interpretieren zu können, sollen die Einflüsse von Frequenzfluktuationen des Pumplasers auf das induzierte Verstärkungsprofil etwas genauer betrachtet

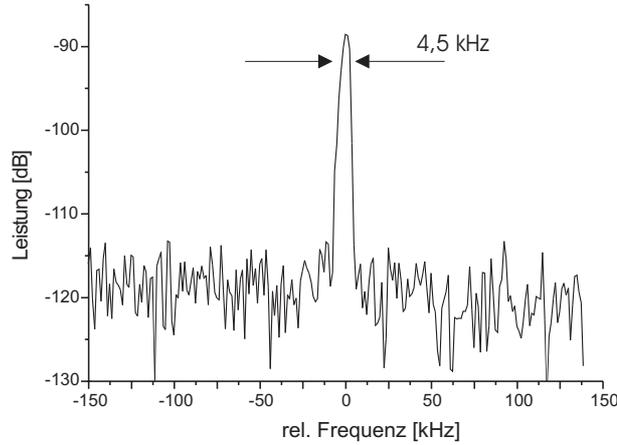


Abbildung 6.28.: Typisches Beatspektrum bei Überlagerung zweier stabilisierter Single-Mode-Ringlaser. Die Detektionsbandbreite des Spektrum-Analysators beträgt 1 kHz, die „Sweeptime“ 220 ms.

werden. Wie die in Abs. 2.2 erläuterten Gleichungen angeben, verschiebt sich das Zentrum des Verstärkungsprofils (die Ramanfrequenz) mit der Pumplaserfrequenz gemäß

$$\nu_d = \nu_{32} + \frac{k_d}{k_p}(\nu_p - \nu_{31}) \quad . \quad (6.3)$$

Dabei sind ν_{31} und ν_{32} die molekularen Übergangsfrequenzen, ν_p und ν_d die Zentralfrequenzen von Pump- und Ramanlaser, sowie $k_{p/d}$ die entsprechenden Wellenvektoren. Durch Frequenzfluktuationen $\Delta\nu$ des Pumplasers um die Frequenz $\nu_p \approx \nu_{31}$ verschiebt sich das induzierte Verstärkungsprofil um den Faktor $\frac{k_d}{k_p} \Delta\nu$ und führt bei zeitlicher Mittelung zu einer Verbreiterung des Profils. Zunächst sollen die Auswirkungen auf die Linienbreite der Ramanlaser betrachtet werden, sofern diese durch zwei statistisch unabhängige, aber in ihren spektralen Eigenschaften identische Pumplaser betrieben werden. Sofern die Stabilisierungsregelung den Frequenzfluktuationen des Pumplasers instantan folgen kann, erwartet man eine Reduktion der Frequenzschwankungen $\Delta\nu_p$ des Pumplasers um den Faktor $\frac{k_d}{k_p}$ wodurch sich für die Linienbreite des Ramanlasers dann folgende Beziehung

$$\Delta\nu_d = \frac{k_d}{k_p} \Delta\nu_p \quad \text{ergibt.} \quad (6.4)$$

Geht man von einer gemessenen Kurzzeitlinienbreite des Pumplasers von 10 kHz aus (Abs. 4.3), so ergibt sich eine Linienbreite des Ramanlasers von 7 kHz (bei Betrieb des Ramanlasers auf einem Übergang $v' = 32 \rightarrow v'' = 31$). Durch Überlagerung beider Linienbreiten hätte das Beat-Signal zwischen beiden Ramanlasern dann eine Breite von 10 kHz. Neben dem Beitrag zur Linienbreite des Ramanlasers durch die endliche Linienbreite des Pumplasers kämen noch Beiträge durch die nicht vollständige Ausregelung von Resonatorstörungen, sowie Beiträge durch die Frequenzmodulation des Lasers hinzu. In dem vorliegenden Experiment wurden beide Ramanlaser durch einen Pumplaser betrieben. Die auf die Verstärkungsprofile übertragenen Frequenzfluktuationen des Pumplasers sind somit nicht mehr statistisch unabhängig, beide Verstärkungsprofile unterliegen den gleichen Frequenzschwankungen. Die beiden Ramanlaser erfahren somit die gleichen Frequenzfluktuationen, die sich im Beat-Spektrum im Idealfall vollständig kompensieren sollten. Unter Vernachlässigung des Einflusses der Stabilisierungsregelung ist die resultierende spektrale Breite des gemessenen Spektrums dann nur noch durch die minimale Filterbandbreite des Spektrum-Analysators begrenzt. Das in Abb. 6.28 dargestellte Beat-Spektrum zeigt nur die Beiträge zur Linienbreite der Ramanlaser, die durch kurzzeitige Fluktuationen der Frequenz des Ramanresonators hervorgerufen werden. Diese Fluktuationen können nur durch besseren mechanischen Aufbau („monolithische“ Resonatoren) und Regelungen mit größerer Bandbreite, die derzeit durch die verwendeten Piezotubusse begrenzt werden, verbessert werden.

Zur Messung der tatsächlichen Linienbreite eines einzelnen Ramanlasers, können z.B. zwei statistisch unabhängige Ramanlasersysteme aufgebaut und durch eine Beat-Messung miteinander verglichen werden. Alternativ können auch die experimentellen Vorschläge vom Anfang dieses Abschnittes konkretisiert werden.

Das vorliegende Experiment zeigt somit, daß prinzipiell schmalbandige Ramanlaser realisiert werden können. Bei stabilisiertem Pumplaser können damit auch absolut hochstabile Ramanlaser mit geringen Linienbreiten und einer starken Frequenzkorrelation zwischen Pump- und Ramanlaser betrieben werden. Im vorliegenden Fall ergibt sich bereits eine Frequenzstabilität von $\frac{\Delta\nu}{\nu} \approx 5 \cdot 10^{-10}$, die durch Optimierung von mechanischem Aufbau und elektronischer Regelung deutlich verbessert werden kann.

7. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden frequenzstabile kontinuierliche Ramanlasersysteme im Jodmolekül untersucht und die experimentellen Ergebnisse mit theoretischen Vorhersagen verglichen.

Schritte zur Realisation waren der Aufbau und die Charakterisierung eines frequenzstabilen Pumplasers, sowie der Betrieb von Ramanlasern in geeigneten Resonatoren. Für die theoretische Beschreibung der Ramanlaser wurde der Dichtematrixformalismus verwendet.

Charakterisierung und Stabilisierung des Pumplasers:

Bei dem verwendeten Lasersystem handelt es sich um einen frequenzverdoppelten monolithischen diodengepumpten Nd:YAG-Ringlaser, der durch Stehwellen-Verdopplung maximale Ausgangsleistungen von 500 mW für die Experimente zur Verfügung stellt, wobei der Laser im freilaufenden Betrieb bereits eine Linienbreite von 10 kHz bei 100 ms Meßzeit erreicht. Typische Frequenzdriften des Lasers liegen bei weniger als 100 MHz pro Stunde. Der Laser läßt sich gezielt über einen Bereich von 120 GHz durchstimmen, wobei zahlreiche für den Ramanlaserbetrieb geeignete Pumpübergänge im Jodmolekül erreicht werden können. Die Stabilisierung des Pumplasers erfolgte durch dopplerfreie Frequenzmodulationsspektroskopie auf Hyperfeinstrukturübergänge des Jodmoleküls. Dabei konnten relative Stabilitäten von $\frac{\Delta\nu}{\nu} = 3 \cdot 10^{-13}$ mit Stabilisierungszeiten von mehreren Stunden durch Regelung nur eines einzigen Frequenzstellelementes erreicht werden.

Theoretische Modellierung der Ramanverstärkung:

Zur Beschreibung des Ramanverstärkungskoeffizienten im Kleinsignalfall wurde ein semi-klassischer Dichtematrixformalismus verwendet, der erstmals von [Wellegehausen 1979] vollständig für Ramanlaser formuliert wurde. Der Formalismus zur Beschreibung der ma-

kroskopischen Kleinsignalverstärkung wurde im Rahmen dieser Arbeit um verschiedene wesentliche Aspekte erweitert. So wurde zur korrekten Beschreibung des Kleinsignalverstärkungskoeffizienten die Hyperfeinstrukturaufspaltung von Pump- und Ramanübergang mit in die Berechnung einbezogen und erstmals wurde auch die Propagation und Absorption der Pumpstrahlung im Medium in der Berechnung des Kleinsignalverstärkungskoeffizienten berücksichtigt. Hierzu wurden vorhandene Absorptionsmodelle um Strahlpropagation und Sättigungseffekte erweitert. Da die Berechnung des Verstärkungskoeffizienten für den hier vorliegenden doppler-verbreiterten Fall auf nicht analytische Lösungen führt, wurde der makroskopische Verstärkungskoeffizient unter Berücksichtigung der Hyperfeinstruktur, der Propagation und Absorption der Pumpstrahlung und der Resonatormode des Ramanlasers numerisch integriert. Diese Berechnungen stellen die bislang vollständigste Beschreibung des Ramanverstärkungskoeffizienten für den Kleinsignalfall dar. Die zur Berechnung des Verstärkungskoeffizienten notwendigen molekülspezifischen Daten, wie z.B. Dipolmomente, Franck-Condon-Faktoren, Einstein-A-Koeffizienten und Stoßraten wurden durch Analyse umfangreicher Literaturdaten beschafft, bewertet und für die numerische Berechnung als Eingabeparameter verwendet.

Betrieb der Ramanlaser:

Die Ramanlaser wurden in Stehwellen- und Ringresonatoren betrieben. Die Jodmoleküle werden dabei in abgeschmolzenen Quarzglaszellen mit 15 cm Länge als reiner molekularer Dampf erzeugt. Es wurden Ramanlaser im Spektralbereich von 544 bis 1343 nm demonstriert. Unter Verwendung aller erreichbaren Übergänge im Durchstimmbereich des Pumpasers lassen sich mehrere hundert Ramanlaserlinien erzeugen. Neben dem Betrieb der Ramanlaser in isotopenreinem $^{127}I_2$ konnte auch Ramanlaseremission in $^{127}I^{129}I$ und $^{129}I_2$ über einen ähnlich weiten Spektralbereich realisiert werden. Insgesamt handelt es sich hierbei um die erstmalige Realisation von kontinuierlichen Ramanlasern unter Verwendung eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers.

Für spezifische Untersuchungen zu Abhängigkeiten der Laserschwelle und der Ausgangsleistung von der Pumpleistung und vom Dampfdruck und für die Ermittlung von Verstärkungs- und Verstimmungsprofilen und Einflüssen der Hyperfeinstruktur wurde der nichtüberlagerte Pumpübergang R(56)(32-0) bei 532 nm, dessen Komponenten teilweise auch als sekundärer Frequenzstandard vorgeschlagen sind [Quinn 1999], ausgewählt. Als Ramanübergang wurde der R(58)(32-31) Übergang bei 781 nm verwendet. Der Be-

trieb des Ramanlasers erfolgte in Einrichtungs-Single-Mode-Ringresonatoren, die durch Stabilisierung auf das durch den Pump laser induzierte Ramanverstärkungsprofil Amplitudenstabilitäten von 5% erreichen. Für den Ramanlaser bei 781 nm konnten minimale Schwellen von 30 mW und maximale Ausgangsleistungen von $450 \mu\text{W}$ erreicht werden. Das beobachtete Schwellenleistungsverhalten und die Parameterabhängigkeiten der Ausgangsleistung konnten durch numerische Berechnung der makroskopischen Verstärkung und unter Benutzung eines einfachen Sättigungsmodells für die Ausgangsleistung qualitativ und für die Schwellenleistung quantitativ wiedergegeben werden.

Besondere Aufmerksamkeit galt dem Einfluß der Hyperfeinstruktur auf die Verstärkung und die Verstimmbarkeit des Ramanlasers. Dazu wurde die Form der Ausgangsleistungsprofile, die näherungsweise die Form des Verstärkungsprofils wiedergeben, in Abhängigkeit von der Pump laserfrequenz und -leistung, sowie vom Dampfdruck untersucht. Es ergeben sich teilweise recht komplexe Verstärkungsprofile, die durch anschauliche Argumentation nur qualitativ beschrieben werden können. Erst die Berücksichtigung von Strahlproagation und Absorption im Medium und die numerische Simulation des Verstärkungsprofils ermöglichen quantitative Aussagen über die Form und Größe des Verstärkungsprofils, die in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen stehen. Dabei konnte nachgewiesen werden, daß die Verstärkung durch einzelne Hyperfeinstrukturübergänge unter den hier vorliegenden experimentellen Bedingungen nicht ausreicht, den Laser oberhalb der Schwelle zu betreiben. Erst die Überlagerung mehrerer (mindestens 2) Hyperfeinstrukturkomponenten im Frequenzraum des Ramanübergangs führt zu einer hinreichend großen Verstärkung. Bei den Untersuchungen konnte auch die Änderung der Hyperfeinstrukturaufspaltung zwischen Pump- und Ramanübergang nachgewiesen und mit Daten aus [Bacis u. a. 1980] verglichen werden.

Wenn ein starkes Pumpfeld resonant Übergänge miteinander koppelt, kommt es zu einer Aufspaltung der Niveaus durch den dynamischen Stark-Effekt. Die Aufspaltung der Niveaus durch den dynamischen Stark-Effekt wurde in den Experimenten demonstriert. Durch die numerische Simulation konnte dieser in Abhängigkeit verschiedener Parameter quantitativ zufriedenstellend wiedergegeben werden.

Da sich die Verstärkung eines Ramanlasers aus einem inkohärentem (Einphotonen-) Inversionsbeitrag und einem in Richtung der Pumpstrahlung dominierenden kohärenten (Zweiphotonen-) Ramananteil zusammensetzt, werden Frequenzposition und Form des induzierten Verstärkungsprofils durch den Pump laser bestimmt. Deshalb ist zusätzlich zum Einfluß des Laserresonators auf die Frequenzposition und Linienbreite des Raman-

lasers auch ein Einfluß des Pumplasers auf die Linienbreite zu erwarten. Zur Messung der Linienbreite und Frequenzstabilität des Ramanlasers bei 781 nm wurden zwei identische Ramanlasersysteme durch Aufteilen der Pumpstrahlung eines Pumplasers in zwei Teilstrahlen betrieben und durch Beatfrequenzmessung miteinander verglichen. Dabei konnte eine Beatfrequenzlinienbreite beider Ramanlaser von 4,5 kHz bei einer Meßzeit von 220 ms, sowie 40 kHz bei Mittelung von 600 aufeinanderfolgenden Messungen erreicht werden. Durch die Beatfrequenzmessungen konnte gezeigt werden, daß prinzipiell sehr schmalbandige und frequenzstabile Ramanlaser realisiert werden können. Im vorliegenden Fall ergibt sich für den Ramanlaser bei 781 nm bereits eine Frequenzstabilität von $\frac{\Delta\nu}{\nu} \approx 5 \cdot 10^{-10}$.

Die hier für den Ramanlaser bei 781 nm exemplarisch durchgeführten Untersuchungen und dabei erhaltenen Ergebnisse lassen sich grundsätzlich auf andere mögliche Ramanübergänge übertragen. Ausgehend von einem stabilen, auf einen spezifischen Hyperfeinübergang des Jodmoleküls stabilisierten Pumplaser sollten sich somit hochstabile Ramanlaserlinien in einem weiten Spektralbereich bereitstellen lassen. Für weiter im Infraroten liegende Laserlinien sollten dabei aufgrund größerer Frank–Condon–Faktoren auch höhere Ausgangsleistungen möglich sein.

Ausblick

Um die Möglichkeiten von Jodramanlaserlinien für Transferstandards weitergehend zu klären, sind absolute Aussagen zur Stabilität der aufgebauten Lasersysteme erforderlich. Dazu eignet sich ein Vergleich des stabilisierten frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers mit einem bereits auf seine absolute Stabilität charakterisierten System, wie es z.B. bei der PTB in Braunschweig zur Verfügung steht. Genauere Aussagen zur Frequenzstabilität der Ramanlaser können z.B. durch Aufbau zweier vollkommen unabhängiger Ramanlasersysteme (d.h. zwei unabhängige Pumplaser) gewonnen werden. Hierbei können durch gleichzeitige Messung der Linienbreite bzw. Beatfrequenz von Pump- und Ramanlaser, der Einfluß von Pumpfrequenzschwankungen und der Ramanlaserregelung, sowie die Auswirkungen von unterschiedlichen Betriebsparametern (z.B. Pumpleistung und Dampfdruck) auf die Stabilität der Ramanlasersysteme näher untersucht und die Lasersysteme gegebenenfalls optimiert werden.

Grundsätzlich neue Möglichkeiten für präzise Stabilitätsuntersuchungen an Jodramanlasern und auch für präzisionsspektroskopische Experimente am Jodmolekül selbst bietet die in den letzten Jahren entwickelte Technik der präzisen Messung optischer Frequenzen mit Femtosekunden-Oszillatoren. Die derzeit mit dieser Methode erreichten Genauigkeiten in der Frequenzmessung wird nur durch die Genauigkeit der eingesetzten Frequenzstandards zur Kalibration des Femtosekunden-Oszillators begrenzt. Bei der Frequenzmessung mit Femtosekunden-Oszillatoren [Telle u. a. 2001] wird ein dichtes Spektrum von Referenzfrequenzen auf Basis eines Titan-Saphir-Oszillators mit anschließender Selbstphasenmodulation in photonischen Fasern über einen Bereich von mehr als einer Oktave (450 bis 1200 nm) erzeugt. Die absolute Frequenz aller Moden des Frequenzkammes kann durch eine bekannte Referenzfrequenz (z.B. dem Cäsium-Standard) festgelegt werden [Stenger u. a. 2001]. So konnte z.B. die Absolutfrequenz der Komponente a_{10} der R(56)(32-0) mit einer Unsicherheit von 1,2 kHz [Nevsky u. a. 2001] bestimmt werden. Das erreichbare Spektrum des Frequenzkammes von 450 bis 1200 nm stellt zum einen eine unmittelbare Konkurrenz für die hier vorgestellten Experimente dar, kann aber zum anderen zur weiteren Untersuchung der Ramanlasersysteme verwendet werden. Der Frequenzkamm bietet den großen Vorteil, daß sowohl die Strahlung des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers, als auch fast der gesamte Emissionsbereich der Ramanlaser vom Femtosekundenkamm abgedeckt wird. Bedingt durch das breite Spektrum des Frequenzkammes können hiermit die Frequenz des frequenzverdoppelten

Nd:YAG-Lasers und die Ramanlaserfrequenz simultan gemessen werden. Hierbei lassen sich dann, ohne Aufbau von doppelten Ramanlasersystemen, in einer Messung Aussagen über die Frequenzstabilität des Pump- und Ramanlasers gewinnen, wodurch auch unmittelbar Aussagen über die Stabilität der Differenzfrequenz und damit über die Kopplung von Pump- und Ramanlaser gewonnen werden können. Ein interessanter Aspekt für die Molekülspektroskopie ist hierbei, daß diese Methode die Absolutfrequenz der Ramanlaserstrahlung bestimmt. Hierdurch kann die Genauigkeit der Absolutfrequenz von Übergängen zwischen den Rotationsvibrationsübergängen von $v' = 32 \dots 37$ und zahlreichen hochgelegenen Vibrationsniveaus im Grundzustand um mehrere Größenordnungen verbessert werden. Die Genauigkeit der Übergangsfrequenzen liegt derzeit nur bei 150 MHz (vergleiche Tab. 3.1).

Für praktische Anwendungen des Jodramanlasers ist ein effizienterer Ramanlaser mit höheren Ausgangsleistungen wünschenswert. Die einfachste Möglichkeit höhere Ausgangsleistungen zu erhalten, ist die Verwendung längerer Medien, wodurch auch Ramanlaseremission auf einzelstehenden Hyperfeinkomponenten möglich werden sollte. Die numerische Rechnung zeigt, daß die Verstärkung auf einzelstehenden Hyperfeinkomponenten in ca. 35 cm langen Jodzellen dafür ausreicht. Aber auch der Betrieb von Ramanlasern in vollkommen anderen Resonatorkonfigurationen erscheint vielversprechend und könnte zu deutlich höheren Ausgangsleistungen der Ramanlaser führen. So konnte z.B. Ramanlaseremission in einer 25 cm langen mit Joddampf gefüllten Kapillare mit einem Innendurchmesser von 200 μm bei Schwellleistungen von 30 mW [Klug u. a. 2001] demonstriert werden. In diesem Zusammenhang erscheinen auch photonische Fasern [Wadsworth u. a. 2002] für den Einsatz in kontinuierlichen Ramanlasern zur Steigerung der Konversionseffizienz geeignet. Sowohl Kapillaren als auch photonische Fasern bieten den Vorteil, daß in den Kapillaren bzw. photonischen Fasern der Modenüberlapp zwischen Pump- und Ramanlaser über die gesamte Länge des Mediums ideal ist, und höhere transversalen Moden durch die Geometrie der Kapillaren stark unterdrückt werden. Durch die Führung der Pump- und Ramanlaserstrahlung in der Kapillare sollten sich sehr geringe Schwellleistungen bei niedrigem Joddampfdruck erreichen lassen, wodurch auch Pumplaser mit geringen Ausgangsleistungen eingesetzt werden könnten.

Teilergebnisse wurden bereits vor Fertigstellung dieser Arbeit veröffentlicht [Klug u. a. 2000].

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

A.0.6. Einleitung

Die Beschreibung eines Ensembles von Dreiniveausystemen durch die Schrödingergleichung ist nicht möglich, da die Anfangsbedingungen jedes einzelnen Systems nicht bekannt sind. Die einzigen Informationen, die zur Verfügung stehen sind Erwartungswerte des gesamten Ensembles, z.B. der Erwartungswert das in einem Ensemble ein bestimmter Energiezustand besetzt ist. In diesem Zusammenhang kann die Wechselwirkung des Ensembles mit einem elektromagnetischen Feld durch Einführen eines Hamiltonoperators berechnet werden, der die Erwartungswerte für die Polarisation des Ensembles bestimmt. Aus der Polarisation können Absorption und Verstärkung berechnet werden. Zur Beschreibung des Vielteilchen-Problems wird der Dichtematrixformalismus verwendet. Eine weitgehend vollständige Beschreibung des Dichtematrixformalismus ist z.B. in [Letokhov und Chebotaev 1960] zu finden.

A.0.7. Berechnung des Verstärkungskoeffizienten

Die nachfolgende Darstellung folgt den Berechnungen von [Wellegehausen 1979], wobei die Notation vollständig übernommen wurde. Allerdings sind für die Berechnung des Verstärkungskoeffizienten im Kleinsignalfall einige weitergehende Umformungen enthalten, um die numerische Berechnung des Verstärkungskoeffizienten zu vereinfachen.

Das für die Berechnung zu Grunde liegende Dreiniveauschema ist in Abb. (A.1) dargestellt. Angenommen wird für die Berechnung ein Einfrequenz-Wanderwellen-Pumpfeld mit der Frequenz ω_p , das mit den Zuständen $|1\rangle$ und $|3\rangle$ wechselwirkt. Das erzeugte Laserfeld ω_d wird in gleicher Weise als Einfrequenz-Wanderwellen-Feld angenommen, wobei dieses mit den Zuständen $|3\rangle$ und $|2\rangle$ wechselwirkt. Das Laserfeld kann in Richtung des Pumpfeldes ($\varepsilon = +1$) oder entgegen der Richtung des Pumpfeldes ($\varepsilon = -1$) pro-

A. Herleitung des Verstärungskoeffizienten

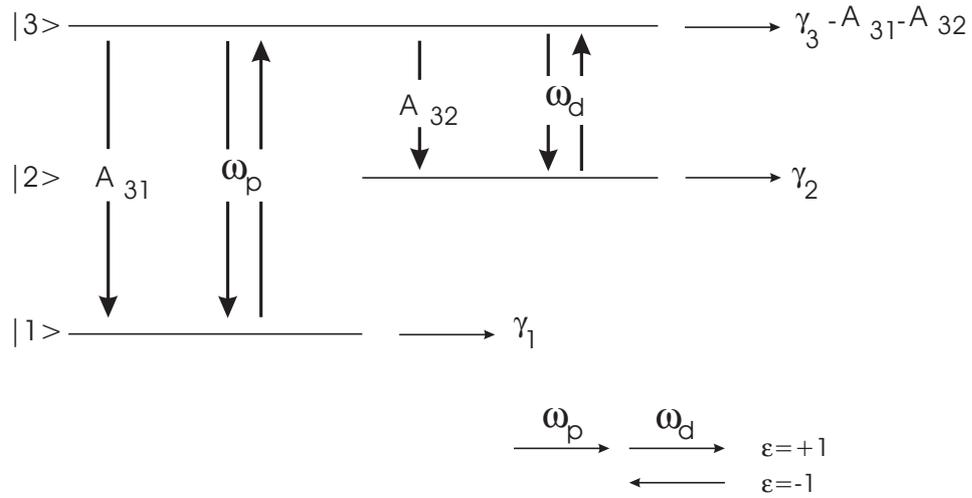


Abbildung A.1.: Darstellung des verwendeten Dreiniveau-Lambdaschema inklusive aller strahlenden und strahlungslosen Relaxationen.

pagieren. Beide Felder werden linear polarisiert mit konstanten Amplituden in gleichen Gebieten angenommen, der Einfluß der Gaußschen Feldverteilung wird nicht berücksichtigt, sowie der Einfluß von weiteren Zuständen, die nicht zu diesem Schema gehören. γ_i ($i = 1 \dots 3$) bezeichnet die gesamte Relaxationsrate aus dem Zustand i , also strahlende und nicht strahlende Prozesse.

Die vollständige Zeitentwicklung der Dichtematrix mit allen Relaxations- und Anregungsprozessen für Moleküle der Geschwindigkeitsklasse v für das in Abb. (A.1) dargestellte Schema lautet:

$$\frac{\partial}{\partial t'} \rho = \left[\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} \right] \rho = -\frac{i}{\hbar} [H\rho - \rho H] + \rho(\text{exec.}) - \rho(\text{rel.}) \quad (\text{A.1})$$

$$\text{mit } \rho = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{pmatrix}, \quad (\text{A.2})$$

wobei hier die Teilchen in dem Bezugssystem der Geschwindigkeit v ruhen, d.h. $t' \rightarrow t + \frac{v}{z}$

$$\rho(\text{exec.}) = \begin{pmatrix} A_{31}\rho_{33} & 0 & 0 \\ 0 & A_{32}\rho_{33} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

$$\text{und } \rho(\text{rel.}) = \begin{pmatrix} \gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^v) & \gamma_{12}\rho_{12} & \gamma_{13}\rho_{13} \\ \gamma_{12}\rho_{21} & \gamma_2(\rho_{22} - \rho_{22}^v) & \gamma_{23}\rho_{23} \\ \gamma_{13}\rho_{31} & \gamma_{23}\rho_{32} & \gamma_3\rho_{33} \end{pmatrix} . \quad (\text{A.4})$$

ρ ist die 3×3 -Dichtematrix des Systems, und ρ_{ii}^v ist die thermische Besetzungsdichte im Zustand $|i\rangle$ für die Moleküle mit der Geschwindigkeit v . $\rho(\text{exec.})$ beschreibt die Anregungsprozesse, die nicht direkt von Pump- und Laserfeld abhängen. Die Besetzung von Zustand $|1\rangle$ und $|2\rangle$ geschehen durch spontane Emission vom Zustand $|3\rangle$. Schließlich beschreibt $\rho(\text{rel.})$ das Relaxationsverhalten der Dichtematrixkomponenten mit $\gamma_{ij} = \frac{1}{2}(\gamma_i + \gamma_i^d + \gamma_j + \gamma_j^d)$, wobei $\gamma_{i,j}^d$ die Raten für phasenändernde Stöße vom jeweiligen Laserniveau sind.

Der Hamiltonoperator aus Gleichung (A.1) ist gegeben durch

$$H = H_0 - pE \quad , \quad (\text{A.5})$$

mit H_0 als ungestörtem Hamiltonoperator; pE stellt die Wechselwirkung der Moleküle mit dem elektromagnetischen Feld in Dipolnäherung dar. Da Dipolübergänge zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|2\rangle$ nicht erlaubt sind, sind p_{12} und p_{21} gleich Null. Weiterhin haben homonukleare Moleküle kein permanentes Dipolmoment. Somit sind die Komponenten p_{ii} ebenfalls Null.

Das eingestrahelte elektromagnetische Feld hat die Form:

$$\begin{aligned} E(z, t) &= \frac{1}{2}E_p(z)\exp(-i(\omega_p t - k_p z)) \\ &+ \frac{1}{2}E_d(z)\exp(-i(\omega_d t - \varepsilon k_d z)) \\ &+ \text{c.c.} \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Die Indizes p und d stehen für Pump- und Laserfeld. Die Amplituden $E_p(z)$ und $E_d(z)$ sind verglichen mit den Exponentialtermen langsam variierende Funktionen und werden folglich als zeitunabhängige Parameter angenommen. Unter stationären Bedingungen

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

und in Resonanznähe ($\omega_p \approx \omega_{31}$ und $\omega_d \approx \omega_{32}$), können die Dichtematrixkomponenten in folgender Weise ausgedrückt werden:

$$\begin{aligned}
 \rho_{11}(z, t) &= \rho_{11}(z) \quad , \\
 \rho_{13}(z, t) &= \rho_{13}(z) \exp(i(\omega_p t - k_p z)) \quad , \\
 \rho_{23}(z, t) &= \rho_{23}(z) \exp(i(\omega_d t - \varepsilon k_d z)) \quad , \\
 \rho_{12}(z, t) &= \rho_{12}(z) \exp(i((\omega_p - \omega_d)t - (k_p - \varepsilon k_d)z)) \quad , \\
 \rho_{ij} &= \rho_{ji}^* \quad .
 \end{aligned} \tag{A.7}$$

Diese Gleichungen beschreiben das Ramanlaserfeld als Wanderwelle, z.B. in Ringresonatoren. Räumliches Lochbrennen, das z.B. in Stehwellenresonatoren auftritt, wird mit diesen Gleichungen nicht beschrieben. Die Dichtematrixkomponenten $\rho_{ij}(z)$ sind auch langsam veränderliche Funktionen und können ebenso als zeitunabhängig angenommen werden. Die Gleichungen für die Dichtematrixkomponenten ρ_{ij} können in dieser „Rotating wave approximation“ (RWA) wie folgt beschrieben werden:

$$[H\rho - \rho H] = [H_0, \rho] - E[p, H] \tag{A.8}$$

$$[H_0, \rho] = (H_0\rho - \rho H_0) \tag{A.9}$$

$$[p, \rho] = (p\rho - \rho p) \tag{A.10}$$

$$\text{mit den induzierten Dipolen} \quad p = \begin{pmatrix} 0 & 0 & p_{13} \\ 0 & 0 & p_{23} \\ p_{31} & p_{32} & 0 \end{pmatrix} \tag{A.11}$$

$$\text{und} \quad H_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 & 0 \\ 0 & E_2 & 0 \\ 0 & 0 & E_3 \end{pmatrix} \tag{A.12}$$

Nach Einsetzen und Ausmultiplizieren der Matrizen in Gleichung (A.9) und (A.10) erhält man

$$[H_0, \rho] = \begin{pmatrix} 0 & \rho_{13}(E_1 - E_2) & \rho_{12}(E_1 - E_3) \\ \rho_{21}(E_2 - E_1) & 0 & \rho_{23}(E_2 - E_3) \\ \rho_{31}(E_3 - E_1) & \rho_{32}(E_3 - E_2) & 0 \end{pmatrix} \tag{A.13}$$

und

$$[p, \rho] = \begin{pmatrix} (p_{13}\rho_{31} - p_{31}\rho_{13}) & (p_{13}\rho_{32} - p_{32}\rho_{31}) & (p_{13}\rho_{33} - p_{13}\rho_{11} - p_{23}\rho_{12}) \\ (p_{23}\rho_{31} - p_{31}\rho_{23}) & (p_{23}\rho_{32} - p_{32}\rho_{23}) & (p_{23}\rho_{33} - p_{13}\rho_{21} - p_{23}\rho_{22}) \\ (p_{31}\rho_{11} + p_{32}\rho_{21} & (p_{31}\rho_{12} + p_{32}\rho_{22}) & (p_{31}\rho_{13} + p_{32}\rho_{23} - p_{13}\rho_{31} \\ - p_{31}\rho_{31}) & - p_{32}\rho_{33}) & - p_{23}\rho_{21}) \end{pmatrix}. \quad (\text{A.14})$$

Um die Zeitabhängigkeit für die einzelnen Dichtematrixkomponenten zu erhalten, setzt man die Matrizen aus Gleichung (A.3), (A.4), (A.13) und (A.14) in Gleichung (A.1) ein. Zum Beispiel ergibt sich so als Differentialgleichung für die Zeitentwicklung der Besetzung des Grundzustandes (ρ_{11})

$$\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = i(p_{13}\rho_{31} - p_{31}\rho_{13})\frac{E}{\hbar} - \gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^v) + A_{31}\rho_{33} \quad . \quad (\text{A.15})$$

Zur Berechnung des Verstärkungskoeffizienten $\alpha_{d/p}^v$ aus den Dichtematrixgleichungen sind noch einige Umformungen notwendig. Setzt man die Komponenten ρ_{13} und ρ_{31} aus Gl. (A.7), sowie das elektromagnetische Feld aus Gl. (A.6) ein und berücksichtigt, daß $\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = 0$ ist, wird aus der vorherigen Gleichung:

$$-A_{31}\rho_{33} + \gamma_1(\rho_{11} - \rho_{11}^v) = -i\frac{E_p}{2\hbar}(p_{31}\rho_{13} - p_{13}\rho_{31}) \quad (\text{A.16})$$

Die schnell oszillierenden Terme $p_{31}\rho_{13} \exp(2i(\omega_p t - k_p z))$ und $p_{13}\rho_{31} \exp(2i(\omega_p t - k_p z))$ werden in der „Rotating wave approximation“ vernachlässigt.

Für die Nichtdiagonalelemente erhält man dann z.B.:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{13}}{\partial t} \exp(i(\omega_p t - k_p z)) &= i\rho_{13} \exp(i(\omega_p t - k_p z))\omega_{31} \\ &- \gamma_{13}\rho_{13} \exp(i(\omega_p t - k_p z)) \\ &+ i\frac{E_p}{2\hbar} [\exp(-i(\omega_p t - k_p z)) + \exp(i(\omega_p t - k_p z))] p_{13} [\rho_{33} - \rho_{11}] \\ &- i\frac{E_d}{2\hbar} [\exp(-i(\omega_d t - \varepsilon k_d z)) + \exp(-i(\omega_d t - \varepsilon k_d z))] \\ & p_{23}\rho_{12} \exp(-i[(\omega_p - \omega_d)t - (k_p - \varepsilon k_d)z]) \end{aligned}$$

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

Berücksichtigt man, daß

$$\frac{\partial \rho_{13}}{\partial t} \exp(i(\omega_p t - k_p z)) = -i [\omega_p - k_p v] \rho_{13} \exp(i(\omega_p t - k_p z))$$

und $\exp(-i[(\omega_p - \omega_d)t - (k_p - \varepsilon k_d)z]) = \exp(i(\omega_p t - k_p z)) \exp(i(\omega_d t - \varepsilon k_d z))$

ist, ergibt die Division durch $i \exp(i(\omega_p t - k_p z))$ und Vernachlässigung von allen schnell oszillierenden Termen

$$[-\Omega_p + k_p v + i\gamma_{13}] \rho_{13} = -\frac{E_p}{2\hbar} p_{13} (\rho_{33} - \rho_{11}) + \frac{E_d}{2\hbar} p_{23} \rho_{12} \quad , \quad (\text{A.17})$$

$$\text{mit } \Omega_p = \omega_p - \omega_{31} \quad (\text{A.18})$$

$$\text{und } \omega_{31} = \frac{E_3 - E_1}{\hbar} \quad .$$

Die weiteren fünf benötigten Gleichungen können durch ähnliche Umformungen erhalten werden. Dadurch erhält man folgendes Gleichungssystem

$$-A_{31} \rho_{33} + \gamma_1 [\rho_{11} - \rho_{11}^v] = -i [V_p^* \rho_{13} - V_p \rho_{31}] \quad , \quad (\text{A.19})$$

$$-A_{32} \rho_{33} + \gamma_2 [\rho_{22} - \rho_{22}^v] = -i [V_d^* \rho_{23} - V_d \rho_{32}] \quad , \quad (\text{A.20})$$

$$\gamma_2 \rho_{33} = i [V_p^* \rho_{13} - V_p \rho_{31}] + i [V_d^* \rho_{23} - V_d \rho_{32}] \quad , \quad (\text{A.21})$$

$$\Delta_{13} \rho_{13} = -[\rho_{33} - \rho_{11}] V_p + V_d \rho_{12} \quad , \quad (\text{A.22})$$

$$\Delta_{23} \rho_{23} = [\rho_{33} - \rho_{22}] V_d + V_p \rho_{21} \quad , \quad (\text{A.23})$$

$$\Delta_{12} \rho_{12} = -V_p \rho_{32} + V_d^* \rho_{13} \quad , \quad (\text{A.24})$$

wobei die Abkürzungen

$$V_d = p_{23} \frac{E_d}{2\hbar}, \quad V_d^* = p_{23} \frac{E_d}{2\hbar},$$

$$V_p = p_{13} \frac{E_p}{2\hbar}, \quad V_p^* = p_{31} \frac{E_p}{2\hbar},$$

und

$$\Delta_{13} = -\Omega_p + k_p v + i\gamma_{13} \quad , \quad (\text{A.25})$$

$$\Delta_{23} = -\Omega_d + \varepsilon k_p v + i\gamma_{23} \quad ,$$

$$\Delta_{12} = -\Omega_p + \Omega_d + v [k_p - \varepsilon k_d] k_p v + i\gamma_{12} \quad ,$$

verwendet wurden.

Der Erwartungswert der Polarisation $\langle p \rangle$ läßt sich durch die Dichtematrix wie folgt ausdrücken:

$$\langle p \rangle = \rho_{13}p_{31} + \rho_{31}p_{13} + \rho_{23}p_{32} + \rho_{32}p_{23} \quad . \quad (\text{A.26})$$

Die komplexen Suszeptibilitäten χ_p und χ_d lauten

$$\begin{aligned} \varepsilon_0 \chi_p \frac{E_p}{2} &= \rho_{13} p_{13} \quad , \\ \varepsilon_0 \chi_d \frac{E_d}{2} &= \rho_{23} p_{23} \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.27})$$

Die Koeffizienten für Absorption und Verstärkung ergeben sich aus den Imaginärteilen der Suszeptibilitäten

$$\begin{aligned} \alpha_p^v &= -k_p \Im \chi_p \\ \alpha_d^v &= -k_d \Im \chi_d \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

Dabei führen positive Werte von α_d^v und α_p^v zur Absorption der elektromagnetischen Strahlung und negative Werte zur Verstärkung. Für den doppler–verbreiterten Fall, wie er hier vorliegt, müssen α_d^v und α_p^v über alle Geschwindigkeitsklassen integriert werden. Dazu muß die doppler–verbreiterte Geschwindigkeitsverteilung für ρ_{11}^v und ρ_{22}^v in die Gleichungen eingesetzt werden. Die Gesamtverstärkung erhält man durch Integration von α_d^v und α_p^v über die Länge des aktiven Mediums.

A.0.8. Allgemeine Lösung

Zur Bestimmung der doppler-verbreiterten Verstärkungskoeffizienten sind noch einige Umformungen notwendig, deren Verlauf im folgenden kurz vorgestellt wird.

Schreibt man $i [\rho_{13}V_p^* - \rho_{31}V_p]$ um in $i [\rho_{13}V_p^* - (\rho_{31}V_p^*)^*]$ und benutzt Gleichung (A.25) und (A.27), um für ρ_{13} den Ausdruck $\rho_{13} = \hbar\varepsilon_0 V_p \chi_p / |p_{13}|^2$ zu bekommen, kann man $i [\rho_{13}V_p^* - \rho_{31}V_p]$ umschreiben in $\hbar\varepsilon_0 |V_p|^2 / |p_{13}|^2 [i\chi_p - i\chi_p^*]$. Nutzt man nun weiter Gleichung (A.28) und $[i\chi_p - i\chi_p^*] = -2\Im(\chi_p)$ folgt

$$i [\rho_{13}V_p^* - \rho_{31}V_p] = \frac{2\varepsilon_0 \hbar}{|p_{13}|^2 k_p} \alpha_p^v V_p^2 = A_p^v V_p^2 \quad (\text{A.29})$$

$$\text{und } i [\rho_{23}V_d^* - \rho_{32}V_d] = \frac{2\varepsilon_0 \hbar}{|p_{23}|^2 k_d} \alpha_d^v V_d^2 = A_d^v V_d^2 \quad . \quad (\text{A.30})$$

Aus den Gleichungen (A.19)–(A.21) können nun die Diagonalelemente der Dichtematrix berechnet werden

$$\rho_{11} = \rho_{11}^v - \frac{A_p^v V_p^v}{\gamma_1} + \frac{A_{31}\rho_{33}}{\gamma_1} \quad , \quad (\text{A.31})$$

$$\rho_{22} = \rho_{22}^v - \frac{A_d^v V_d^v}{\gamma_2} + \frac{A_{32}\rho_{33}}{\gamma_2} \quad , \quad (\text{A.32})$$

$$\rho_{33} = \frac{A_p^v V_p^v}{\gamma_3} + \frac{A_d^v V_d^v}{\gamma_3} \quad . \quad (\text{A.33})$$

Subtrahiert man Gl. (A.31) von Gl. (A.33), substituiert ρ_{33} aus Gl. (A.33) und bildet die Differenz $\Delta\rho_{13} = \rho_{11} - \rho_{33}$, so erhält man Gl. (A.34). Subtrahiert man ebenso Gl. (A.32) von Gl.(A.33), substituiert ρ_{33} aus Gl. (A.33) und bildet die Differenz $\Delta\rho_{32} = \rho_{33} - \rho_{22}$ so ergibt sich:

$$\Delta\rho_{13} = \rho_{11}^v - A_p^v V_p^2 \frac{\gamma_1 + \gamma_3}{\gamma_1 \gamma_3} - A_d^v V_d^2 \frac{1 - A_{31}/\gamma_1}{\gamma_3} \quad , \quad (\text{A.34})$$

$$\Delta\rho_{32} = \rho_{22}^v + A_p^v V_p^2 \frac{1 - A_{32}/\gamma_2}{\gamma_3} + A_d^v V_d^2 \frac{\gamma_2 + \gamma_3}{\gamma_2 \gamma_3} \quad . \quad (\text{A.35})$$

Die Terme $[A_{31}A_p^v V_p^2 / (\gamma_1 \gamma_3)]$ und $[A_{32}A_d^v V_d^2 / (\gamma_2 \gamma_3)]$ wurden dabei gegen $[A_p^v V_p^2 (\gamma_3 + \gamma_1) / (\gamma_1 \gamma_3)]$ und $[A_d^v V_d^2 (\gamma_3 + \gamma_2) / (\gamma_2 \gamma_3)]$ vernachlässigt. Um nun Gleichungen für die Verstärkungskoeffizienten zu erhalten, müssen (A.22), (A.23) und (A.24) weiter

umgeformt werden. Dazu nimmt man das konjugiert Komplexe von Gl. (A.23) und substituiert ρ_{12} in Gleichung (A.22).

$$\Delta_{13}\rho_{13}V_p^* = -\Delta\rho_{13} + \Delta_{13}^*\rho_{32}V_d + \Delta\rho_{32}V_d^2 \quad (\text{A.36})$$

Substituiert man in Gl. (A.24) ρ_{12} , benutzt Gl. (A.22) und multipliziert beide Seiten mit ΔV_d^* , dann ist

$$\Delta_{23}^*\rho_{32}V_d = \frac{\Delta_{23}^*V_d^2\rho_{13}}{V_p} - \frac{\Delta_{23}^*\Delta_{12}\Delta_{13}\rho_{13}}{V_p} - \Delta\rho_{31}\Delta_{12}\Delta_{23}^* \quad (\text{A.37})$$

Durch anschließendes Substituieren von Gl. (A.37) in Gl. (A.36), Ausklammern von ρ_{13} und Multiplizieren mit V_p erhält man

$$\rho_{13}\frac{V_p^*}{V_p^2} = \Delta\rho_{13}\frac{V_p^2 + \Delta_{12}\Delta_{23}^*}{N} + \Delta\rho_{32}\frac{V_d^2}{N} \quad (\text{A.38})$$

mit $N = \Delta_{12}\Delta_{13}\Delta_{23}^* + \Delta_{13}V_p^2 - \Delta_{23}^*V_d^2$.

Mit $A_p^v = -2\Im(\rho_{13}V_p^*/V_p^2)$ ergibt sich dann der allgemeine Ausdruck für den doppler–verbreiterten Verstärkungskoeffizienten für das Pumpfeld A_p^v zu

$$A_p^v = -2\Delta\rho_{13}A - 2\Delta\rho_{32}B$$

mit $A = \Im\left(\frac{\Delta_{12}\Delta_{23}^* + V_p^2}{N}\right)$ (A.39)

und $B = \Im\left(\frac{V_d^2}{N}\right)$.

Den doppler–verbreiterten Verstärkungskoeffizienten für das Ramanfeld erhält man durch eine ähnliche Rechnung. Substitution von ρ_{21} in Gl. (A.23), wobei das komplex Konjugierte von Gl. (A.22) benutzt werden muß, führt auf

$$\Delta_{23}\rho_{23}V_d^* = -\Delta_{23}V_d^* + V_p\Delta_{13}^*\rho_{13}^* + \Delta\rho_{31}V_p^2 \quad (\text{A.40})$$

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

Formt man das komplex Konjugierte von Gl. (A.24) um, wobei man ρ_{21} mit Hilfe von Gl. (A.23) substituiert und mit $V_p \Delta_{13}^*$ multipliziert, so ergibt sich

$$\Delta_{13}^* \rho_{13}^* V_p = V_p^2 \Delta_{13}^* \rho_{23} + \frac{1}{V_d} \Delta_{12}^* \Delta_{13}^* \Delta_{23} \rho_{23} + \Delta_{13}^* \Delta_{12}^* \Delta \rho_{32} \quad . \quad (\text{A.41})$$

Setzt man Gl. (A.41) in Gl. (A.40) ein und multipliziert sie mit V_d^2 erhält man:

$$\rho_{23} \frac{V^* d}{V_d^2} = \frac{\Delta \rho_{32}}{N^*} (V_d^2 - \Delta_{13}^* \Delta_{12}^*) + \frac{1}{N^*} \Delta \rho_{13} V_p^2 \quad (\text{A.42})$$

Mit $\Im \left(\rho_{23} \frac{V_d^*}{V_d^2} \right) = -\frac{A_d^v}{2}$ läßt sich durch Gl. (A.42) der doppler-verbreiterte Verstärkungskoeffizient für das Ramanfeld wie folgt ausdrücken:

$$\begin{aligned} A_d^v &= -2\Delta \rho_{32} C - 2\Delta \rho_{13} D & (\text{A.43}) \\ \text{mit } C &= \Im \left(\frac{1}{N^*} (V_d^2 - \Delta_{13}^* \Delta_{12}^*) \right) \\ \text{und } D &= \Im \left(\frac{V_p^2}{N^*} \right) \end{aligned}$$

Setzt man die Gleichungen (A.34), (A.35), (A.39) und (A.43) zusammen, so erhält man die allgemeine Lösung für beliebige Intensitäten von Pump- und Ramanlaserfeld. Vernachlässigt man ρ_{12} und ρ_{21} in Gl. (A.22) und (A.23), die den Zweiphotonen-(Raman)-Prozess beschreiben, so erhält man die Lösung des Ratengleichungsmodells. Dabei ist Verstärkung nur dann möglich, wenn eine echte Besetzungsinversion vorliegt, d.h. $\gamma_2 > A_{32}$.

A.0.9. Kleinsignalverstärkung

Um das Verhalten des Lasers an der Schwelle zu beschreiben, wird das Ramanfeld (V_d^2) gleich Null gesetzt. Setzt man in den Gleichungen (A.34), (A.35), (A.39) und (A.43) aus Abschnitt A.0.8 den Term für das Ramanlaserfeld Null, so erhält man die folgenden einfacheren Beziehungen:

$$\Delta\rho_{13} = \rho_{11}^v - A_p^v V_p^2 \gamma_{13} \quad (\text{A.44})$$

$$\Delta\rho_{32} = -\rho_{22}^v + A_p^v V_p^2 \left[1 - \frac{A_{32}}{\gamma_2} \right] / \gamma_3 \quad (\text{A.45})$$

$$A_p^v = -2\Delta\rho_{13}A \quad (\text{A.46})$$

$$A_d^v = -2\Delta\rho_{32}C - 2\Delta\rho_{13}D \quad (\text{A.47})$$

mit

$$A = \Im \left[[\Delta_{12}\Delta_{23}^* + V_p^2] / N \right]; \quad C = \Im \left[\Delta_{13}^*\Delta_{12}^* / N^* \right]; \quad D = \Im \frac{V_p^2}{N^*}$$

und

$$N = \Delta_{12}\Delta_{13}\Delta_{23}^* + \Delta_{13}V_p^2; \quad \Gamma_{13} = \frac{\gamma_1 + \gamma_3}{\gamma_1\gamma_3} .$$

Durch Substitution von A_p^v in (A.44) mit Hilfe von (A.46) ergibt sich:

$$\Delta\rho_{13} = \frac{\rho_{11}^v}{1 - 2AV_p^2\Gamma_{13}} \quad (\text{A.48})$$

In gleicher Weise erhält man durch Ersetzen von A_p^v in (A.45) mit Hilfe von (A.44) und (A.48):

$$\Delta\rho_{32} = -\rho_{22}^v - \frac{\rho_{11}^v 2V_p^2 (1 - A_{32}/\gamma_2) / \gamma_3}{1 - 2AV_p^2\Gamma_{13}} \quad (\text{A.49})$$

Der Ausdruck $A = \Im \left[[\Delta_{12}\Delta_{23}^* + V_p^2] / N \right]$ läßt sich durch längliche Umformungen in $A = -\gamma_{13} / \left[[k_p V - \Omega_p]^2 + \gamma_{13}^2 \right]$ vereinfachen. Führt man nun die lorentzförmige Linienformfunktion

$$\delta_{13} = \frac{1}{1 + [(\Omega_p - k_p v) / \gamma_{13}]^2} \quad (\text{A.50})$$

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

ein und setzt sie in den Ausdruck für A ein, so ergibt sich folgende einfache Beziehung:

$$A = -\frac{\delta_{13}}{\gamma_{13}} \quad (\text{A.51})$$

Führt man jetzt die Ausdrücke I_p für Pump- und I_p^0 für die Sättigungsintensität ein

$$I_p = \epsilon_0 c \frac{E_p^2}{2} \quad (\text{A.52})$$

$$I_p^0 = \frac{\hbar^2 \epsilon_0 c \gamma_{13} \gamma_1 \gamma_3}{(\gamma_1 + \gamma_3) |P_{13}|^2} \quad (\text{A.53})$$

und ersetzt V_p^2 durch

$$V_p^2 = P \gamma \quad , \quad (\text{A.54})$$

$$\gamma = \frac{\gamma_{13}}{2\Gamma_{13}} \quad (\text{A.55})$$

$$\text{und } P = \frac{I_p}{I_p^0}, \quad (\text{A.56})$$

so läßt sich der Ausdruck für den Verstärkungskoeffizienten weiter vereinfachen. Setzt man die Gleichungen (A.48), (A.49), (A.51) und (A.54) in Gleichung (A.47) ein und berücksichtigt, daß

$$\alpha_d^v = A_d^v \sigma_d^v \gamma_{32} / 2$$

mit

$$\sigma_d^v = k_d |P_{32}|^2 / (\epsilon_0 \hbar \gamma_{32})$$

(σ_d^v wird als maximaler homogener Absorptionsquerschnitt bezeichnet) ist, dann erhält man den Ausdruck für den Verstärkungskoeffizienten im Kleinsignalfall α_d^v , ohne die Ausdrücke für $\Delta\rho_{13}$, $\Delta\rho_{32}$ und A_p^v

$$\begin{aligned} \alpha_d^v = & +\sigma_d^v \rho_{22}^v C \gamma_{23} \\ & -\sigma_d^v \rho_{11}^v C \gamma_{23} P \frac{\delta_{13}}{1 + P \delta_{13}} \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_3} [1 - A_{32}/\gamma_2] \\ & -\sigma_d^v \rho_{11}^v D \gamma_{23} \frac{1}{1 + P \delta_{13}} \quad . \end{aligned} \quad (\text{A.57})$$

Der erste Term in Gleichung (A.57) repräsentiert die Selbstabsorption des Mediums durch die thermische Besetzung ρ_{22}^0 im Endniveau des Laserzyklus. Dieser Beitrag kann gewöhnlich vernachlässigt werden, da das Endniveau $|2\rangle$ energetisch höher liegt. Der erste Term gewinnt allerdings bei hohen Betriebstemperaturen oder bei Laserübergängen, die energetisch dicht am Zustand $|1\rangle$ liegen an Bedeutung. Der zweite Term führt nur dann zu einer Verstärkung, wenn die Bedingung $\gamma_2 > A_{32}$, die gleichbedeutend mit einer echten Besetzungsinversion ist, erfüllt ist. Diesen Verstärkungsbeitrag bezeichnet man als Inversions- oder „Einphotonen“-Verstärkung. Der dritte Term hängt nicht von einer Schwellbedingung ab und kann als „Zweiphotonen“- oder Ramanverstärkung bezeichnet werden. Deshalb ist eine Verstärkung auch ohne Inversionsverstärkung möglich, wenn Pumplaserfeld und erzeugtes Laserfeld durch ein gemeinsames Niveau verknüpft sind. Gleichung (A.57) kann nun weiter vereinfacht werden.

Formt man $C = \Im [\Delta_{13}^* \Delta_{12}^* / N^*]$ weiter um nach

$$C = \Im \left[-\frac{\Delta_{12}^*}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \right] , \quad (\text{A.58})$$

sowie $D = \Im \frac{V_p^2}{N^*}$ nach

$$D = \frac{P\gamma}{|\Delta_{13}|^2} \Im \left[\frac{\Delta_{13}}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \right] . \quad (\text{A.59})$$

und nutzt die relevanten Gleichungen aus (A.24) bekommt man:

$$\frac{1}{|\Delta_{13}|^2} = \frac{\delta_{13}}{\gamma_{13}^2} . \quad (\text{A.60})$$

$$(\text{A.61})$$

Aus Gleichung (A.59) wird somit

$$D = P\gamma \frac{\delta_{13}}{\gamma_{13}^2} \Im \left[\frac{\Delta_{13}}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \right] . \quad (\text{A.62})$$

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

Der Ausdruck $\frac{\delta_{13}}{1+P\delta_{13}}$ aus dem zweiten Summanden von Gl. (A.57) kann umgeschrieben werden als $\frac{1}{\left[1+\left[\frac{\Omega_p-k_p v}{\gamma_{13}\sqrt{1+P}}\right]^2\right](1+P)}$, woraus sich

$$\frac{\delta_{13}}{1+\delta_{13}P} = \frac{\delta_{13}^P}{1+P} \quad \text{ergibt,} \quad (\text{A.63})$$

mit δ_{13}^P als leistungsverbreiterte Linienformfunktion

$$\delta_{13}^P = \frac{1}{1+\left[\frac{\Omega_p-k_p v}{\gamma_{13}\sqrt{1+P}}\right]^2} . \quad (\text{A.64})$$

Setzt man nun (A.58), (A.62), und (A.63) in (A.57) ein, erhält man für den homogenen Verstärkungskoeffizienten α_d^v :

$$\begin{aligned} \alpha_d^v &= \sigma_d^v \rho_{22}^v \Im \frac{-\Delta_{12}^* \gamma_{23}}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \\ &\quad - \sigma_d^v \rho_{11}^v (1 - A_{32}/\gamma_2) \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_3} \frac{P}{1+P} \delta_{13}^P \Im \frac{-\Delta_{12}^* \gamma_{23}}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \\ &\quad - \sigma_d^v \rho_{11}^v \frac{\gamma_1 \gamma_3}{\gamma_{13} (2\gamma_1 + \gamma_3)} \frac{P}{1+P} \delta_{13}^P \Im \frac{\Delta_{12}^* \gamma_{23}}{\Delta_{12}^* \Delta_{23} + P\gamma} \end{aligned} \quad (\text{A.65})$$

Um den Verstärkungskoeffizienten α_d für den doppler-verbreiterten Fall aus (A.65) zu bekommen, muß über alle Geschwindigkeitsklassen integriert werden. Die Geschwindigkeitsverteilung ist

$$\rho_{11}^v = \frac{n_i}{v_m \sqrt{\pi}} \exp -(v/v_m) \quad (\text{A.66})$$

$$\text{mit } v_m = \sqrt{2kT/M} \quad , \quad (\text{A.67})$$

wobei v_m die wahrscheinlichste thermische Geschwindigkeit für ein Molekül der Masse M ist. n_i ist die totale Besetzungsdichte des Zustandes $|i\rangle$. Setzt man Gleichung (A.66) in den Ausdruck für den homogenen Verstärkungskoeffizienten ein, wobei man folgende Abkürzungen einführt

$$\Delta_{13} = T + i\gamma_{13}, \quad T = -\Omega_p + k_p v, \quad (\text{A.68})$$

$$\Delta_{12} = R - i\gamma_{12}, \quad R = -\Omega_p + \Omega_d - v(k_p - \varepsilon k_d), \quad (\text{A.69})$$

$$\Delta_{23} = S + i\gamma_{23}, \quad S = -\Omega_d + \varepsilon_d k_d v, \quad (\text{A.70})$$

$$Z = RS + P\gamma + \gamma_{12}\gamma_{23}, \quad Q = R\gamma_{23} - S\gamma_{12} \quad , \quad (\text{A.71})$$

so erhält man den endgültigen Ausdruck für den doppler-verbreiterten Verstärkungs-
koeffizienten α_d

$$\begin{aligned} \alpha_d = & + \frac{\sigma_d n_2}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{RQ + Z\gamma_{12}}{Z^2 + Q^2} \exp -(v/v_m)^2 dv \\ & - \frac{\sigma_d n_1}{\pi} (1 - A_{32}/\gamma_2) \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + \gamma_3} \frac{P}{1 + P} \\ & \int_{-\infty}^{+\infty} \delta_{13}^P \frac{RQ + Z\gamma_{12}}{Z^2 + Q^2} \exp -(v/v_m)^2 dv \quad (\text{A.72}) \\ & - \frac{\sigma_d n_1}{\pi} \frac{\gamma_1 \gamma_3}{2\gamma_{13}(\gamma_1 + \gamma_3)} \frac{P}{1 + P} \\ & \int_{-\infty}^{+\infty} \delta_{13}^P \frac{Z\gamma_{13} - TQ}{Z^2 + Q^2} \exp -(v/v_m)^2 dv \end{aligned}$$

mit $\sigma_d = \frac{k_d |P_{23}|^2 \sqrt{\pi}}{\varepsilon \hbar v_m}$. Analytische Lösungen sind nur für den Fall

$$\frac{\gamma_{13} \sqrt{1 + P}}{k_p v_m} \ll 1 \quad (\text{A.73})$$

möglich. In diesem Fall ist die Linienbreite des leistungsverbreiterten Lorentzprofils des Pumpübergangs klein gegen die Dopplerbreite. Die Exponentialfunktion kann in Bezug auf die Breite der Lorentzkurve als konstant angenommen werden. Der Wert der Exponentialfunktion wird am Maximum der Lorentzkurve bestimmt, die durch die Verstimmung des Pumplasers vom molekularen Übergang gegeben ist. In diesem Fall kann die Exponentialfunktion vor das Integral gezogen werden und die Form $\exp -(\Omega_p/k_p v_m)^2$ annehmen. Hierbei ist $\Omega_p = k_p v$ die Verstimmung des Pumplasers vom molekularen

A. Herleitung des Verstärkungskoeffizienten

Übergang. Für das I_2 -Molekül ist numerische Integration notwendig, da

$$\frac{\gamma_{13}\sqrt{1+P}}{k_p v_m} < 1 \quad . \quad (\text{A.74})$$

Hier muß die Exponentialfunktion in die Integration mit einbezogen werden, da der Bereich der zu berücksichtigenden Geschwindigkeitsklassen der Gauß'schen Kurve nicht als konstant angenommen werden kann, ohne signifikante Fehler im Ergebnis zu erhalten. Gleichung (A.72) wird verwendet um den Verstärkungskoeffizienten auszurechnen. Der erste Term von Gleichung (A.72) wird bei diesen Berechnungen nicht berücksichtigt, da die thermische Besetzung n_2 im Endniveau $|2\rangle$ zu vernachlässigen ist.

B. Sättigungsspektren

Die nachfolgenden Abbildungen B.1 bis B.4 zeigen Sättigungsspektren einiger starker Absorptionsübergänge im $^{127}\text{I}_2$ -Molekül im Durchstimmbereich des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers. Die Spektren wurden mit dem in Abb. 4.6 auf Seite 54 beschriebenen Aufbau aufgenommen. Die Zelllänge betrug $l = 10$ cm, die Seitenarmtemperatur 2°C . Das Pump-Probe-Verhältnis war auf 1 : 4 eingestellt, bei einer Pumpleistung von etwa 1 mW. Die Liniennummer der einzelnen Übergänge entspricht der Zuordnung aus [Gerstenkorn u. a. 1978]. Für den Betrieb der Ramanlaser wurde hauptsächlich die Linie 1110 verwendet, da es sich hier um eine Linie mit hohem geradem J'' handelt, und somit die Hyperfeinstrukturaufspaltung des Übergangs gut aufgelöst ist und dieser Übergang nicht durch weitere Übergänge überlagert ist.

Die Tabellen B.1 bis B.3 geben die HFS-Aufspaltungen der Linien R(56)(32-0), P(83)(33-0) und der stark überlagerten P(53)(32-0) und P(103)(34-0) an, wie sie teilweise im theoretischen und experimentellen Teil dieser Arbeit verwendet werden. Die Aufspaltungen und relativen Linienstärken der HFS-Komponenten wurden mit dem Programm *Iodinespec* [IodineSpec 2000] berechnet.

B. Sättigungsspektren

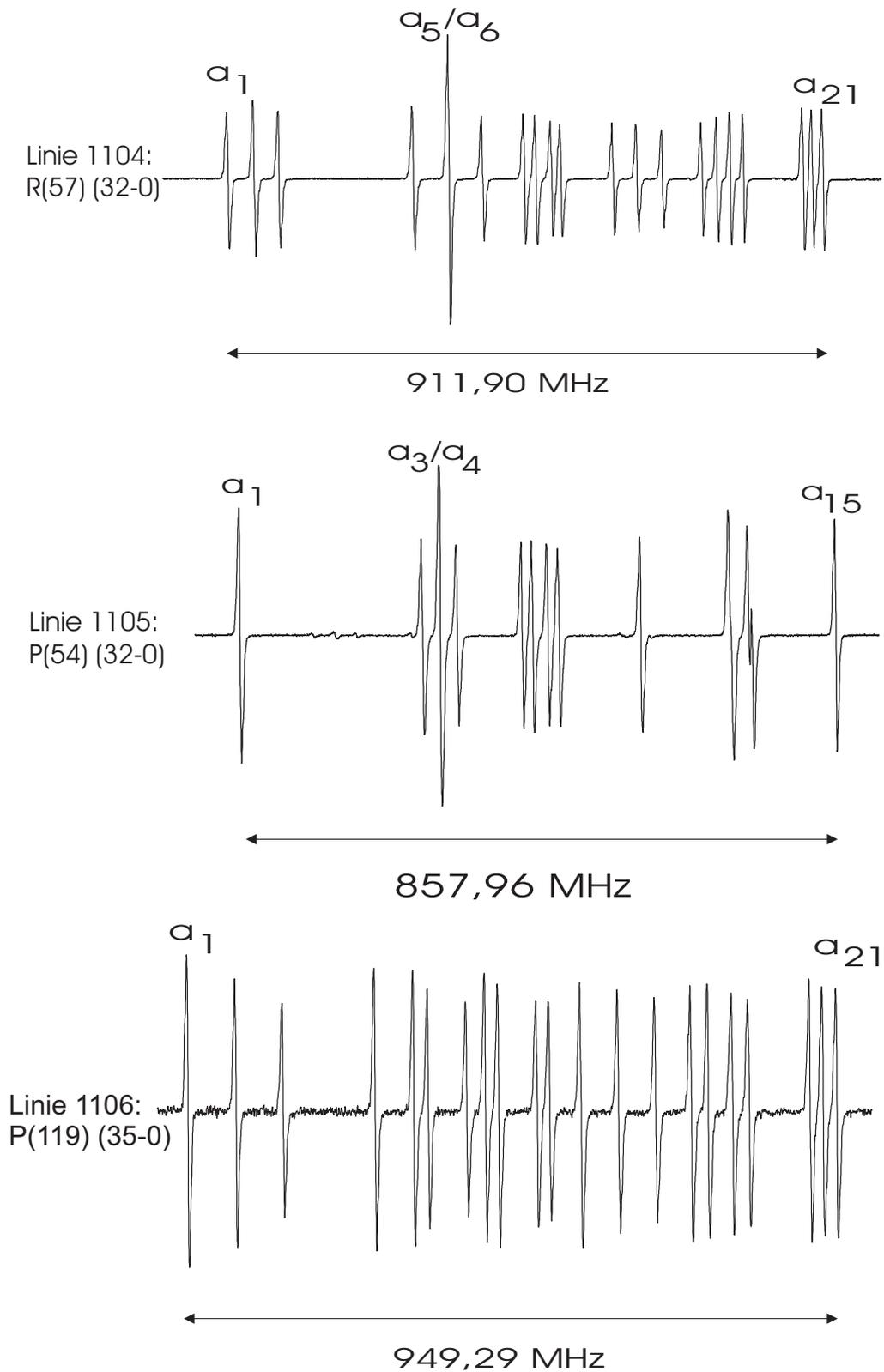


Abbildung B.1.: Gemessene Sättigungsspektren der Linien 1104 bis 1106.

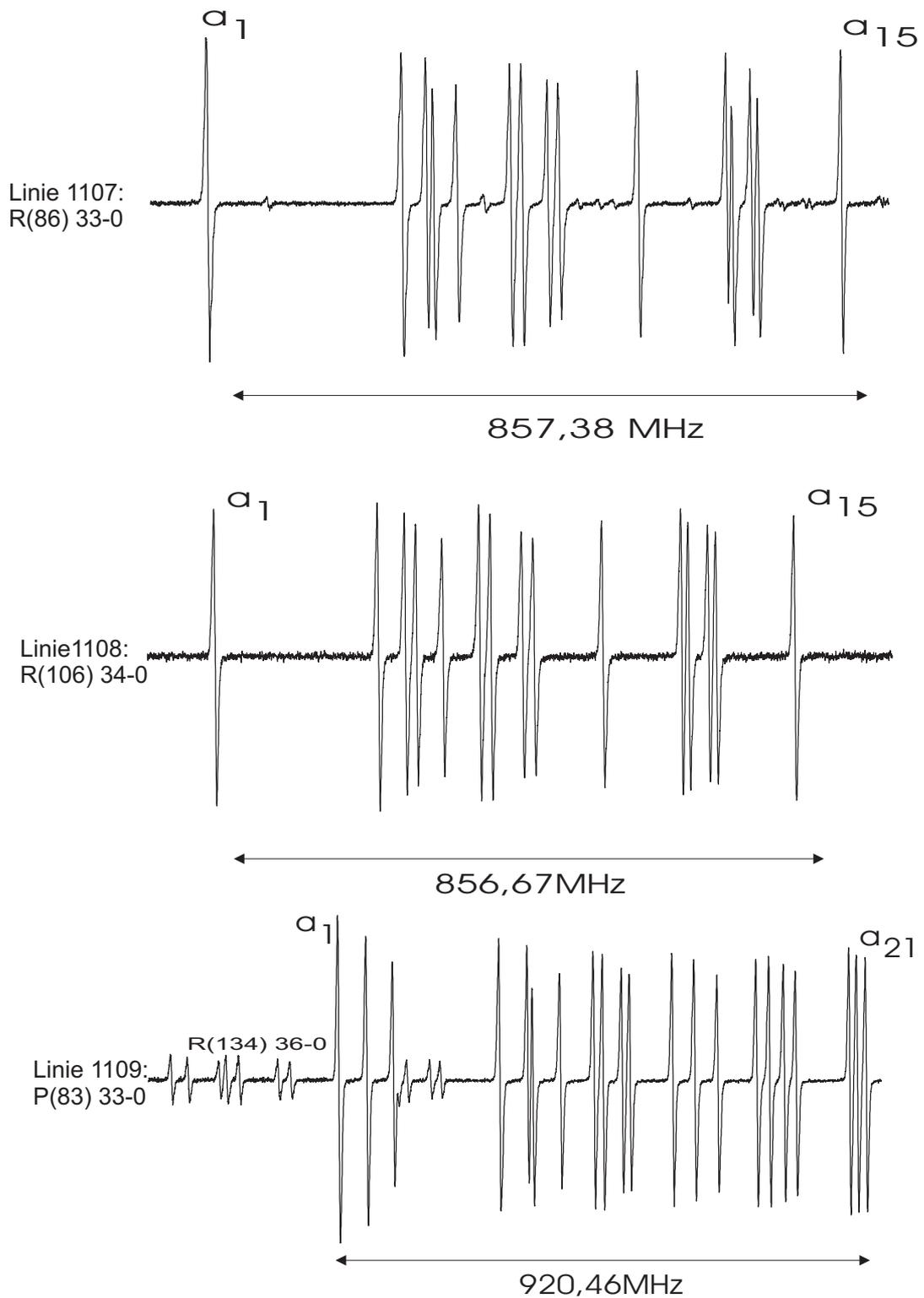


Abbildung B.2.: Gemessene Sättigungsspektren der Linien 1107 bis 1109.

B. Sättigungsspektren

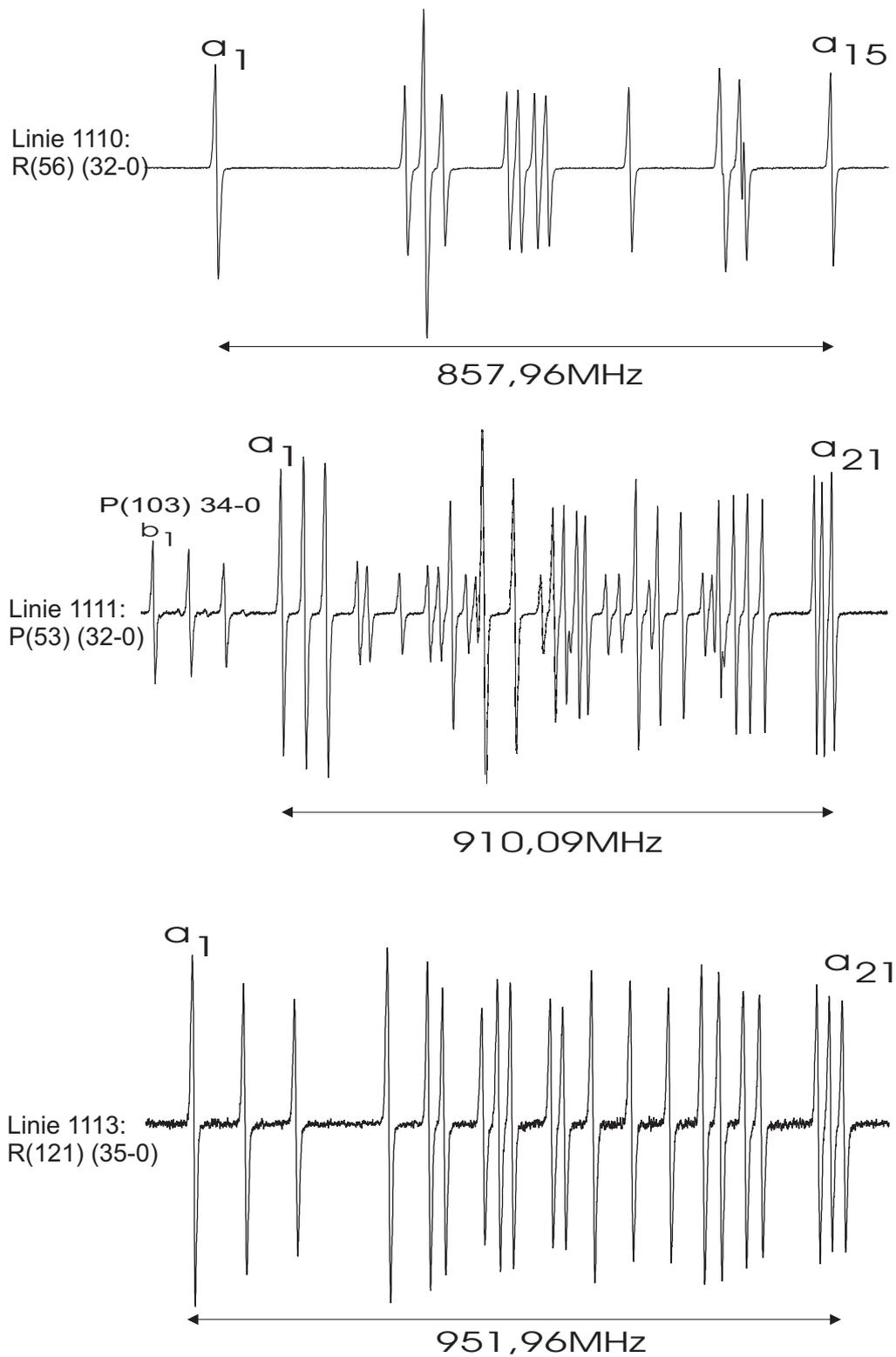


Abbildung B.3.: Gemessene Sättigungsspektren der Linien 1110 bis 1113.

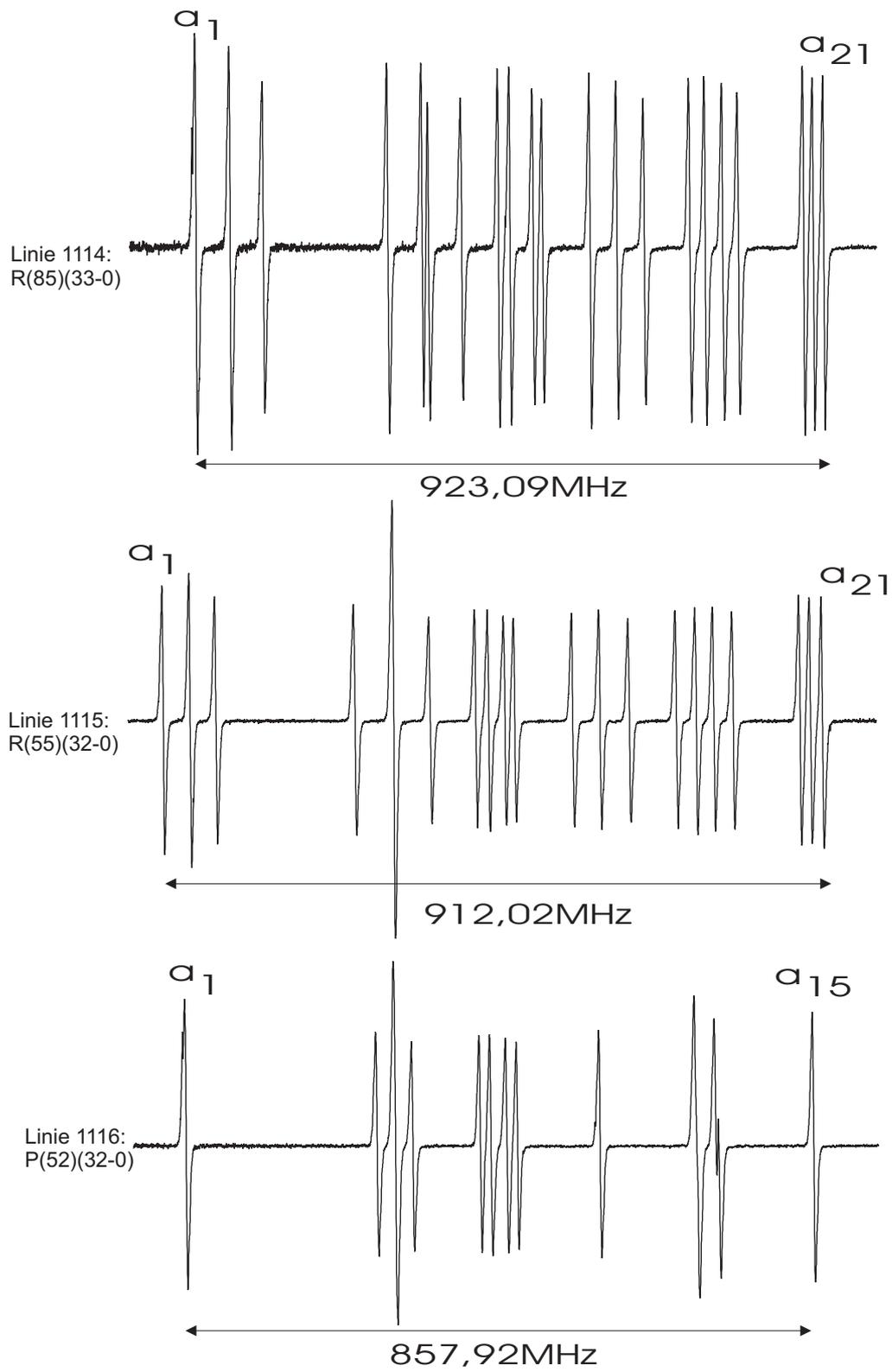


Abbildung B.4.: Gemessene Sättigungsspektren der Linien 1114 bis 1116.

B. Sättigungsspektren

Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]	Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]
a_1	0,94	0,0	a_9	0,98	455,34
a_2	0,87	259,69	a_{10}	0,93	571,54
a_3	0,95	285,50	a_{11}	0,90	698,05
a_4	0,92	286,21	a_{12}	0,92	702,75
a_5	1,00	311,37	a_{13}	0,95	726,03
a_6	0,88	401,48	a_{14}	0,97	732,21
a_7	0,90	416,99	a_{15}	0,93	857,95
a_8	0,97	439,63			

Tabelle B.1.: Hyperfeinstrukturaufspaltung der Linie R(56)(32-0).

Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]	Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]
a_1	0,88	0,00	a_{12}	0,91	581,39
a_2	0,94	49,20	a_{13}	0,94	620,48
a_3	1,00	96,68	a_{14}	0,98	660,60
a_4	0,90	281,42	a_{15}	0,92	728,29
a_5	0,93	330,55	a_{16}	0,93	750,44
a_6	0,95	339,16	a_{17}	0,95	775,29
a_7	0,98	386,58	a_{18}	0,96	796,70
a_8	0,91	444,50	a_{19}	0,93	891,01
a_9	0,92	460,75	a_{20}	0,94	905,10
a_{10}	0,97	494,12	a_{21}	0,95	920,96
a_{11}	0,98	508,21			

Tabelle B.2.: Hyperfeinstrukturaufspaltung der Linie P(83)(33-0).

Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]	Komp.	Linien- stärke	Frequenz [MHz]
b_1	0,16	-212,16	a_9	0,87	455,47
b_2	0,17	-150,50	b_{14}	0,17	465,63
b_3	0,17	-90,37	a_{10}	0,94	476,79
a_1	0,82	0,00	a_{11}	0,96	490,49
a_2	0,91	37,86	b_{15}	0,16	526,02
a_3	1,00	73,75	b_{16}	0,16	548,41
b_4	0,16	74,22	a_{12}	0,86	572,57
b_5	0,11	127,08	b_{17}	0,17	577,16
b_6	0,11	142,76	b_{18}	0,17	598,66
b_7	0,17	193,96	a_{13}	0,91	609,39
b_8	0,16	237,92	a_{14}	0,96	649,50
b_9	0,16	255,27	b_{19}	0,16	689,22
a_4	0,84	271,40	b_{20}	0,17	704,96
b_{10}	0,17	299,64	a_{15}	0,87	713,15
b_{11}	0,17	315,44	b_{21}	0,17	722,11
a_5	0,93	322,76	a_{16}	0,89	739,52
a_6	0,89	324,71	a_{17}	0,92	763,03
a_7	0,98	373,78	a_{18}	0,94	788,90
b_{12}	0,16	375,52	a_{19}	0,89	879,38
b_{13}	0,17	420,34	a_{20}	0,91	893,29
a_8	0,86	437,04	a_{21}	0,92	910,50

Tabelle B.3.: Hyperfeinstrukturaufspaltung der überlagerten Linie P(53)(32-0) (a-Komponenten) und der P(103)(34-0) (b-Komponenten).

C. Realisierte Ramanlaser

In diesem Abschnitt sind einige der realisierten Ramanlaser für unterschiedliche Pumpübergänge im Jodmolekül aufgelistet. Die Daten über die realisierten Ramanlaser wurden hauptsächlich in Multi-Line Stehwellenresonatoren nach Abb. 6.1 auf Seite 85 gewonnen. Aufgelistet ist nur eine Auswahl von realisierten Ramanlasern auf je einem Pumpübergang im $^{127}I_2$, $^{129}I_2$ und $^{127}I^{129}I$. Generell können auf allen Pumpübergängen, die in Tab. 4.1 und Tab. 4.2 auf Seite 48 und 49 in ähnlicher Weise Ramanlaser betrieben werden.

v''	Frequenz in cm ⁻¹		FCF ·10 ³
	R(56)	P(58)	
2	18363,67	18355,15	13,7
4	17943,98	17935,51	8,0
5	17736,01	17727,57	5,9
11	16515,02	16506,75	9,2
13	16118,46	16110,26	8,6
15	15727,29	15719,12	7,1
20	14773,425	14765,41	6,7
22	14401,79	14393,84	8,0
24	14035,99	14028,10	8,1
26	13676,17	13668,34	6,6
29	13147,91	13140,19	5,5
31	12803,62	12795,96	7,8
33	12465,82	12458,23	8,8
35	12134,68	12127,16	7,9
38	11650,90	11643,49	5,5
40	11337,29	11329,96	8,6
42	11031,08	11023,83	10,2
44	10732,51	10725,35	9,6
47	10299,55	10292,52	6,2
49	10021,25	10014,31	10,3
51	9751,58	9744,74	13,1
53	9490,86	9484,12	13,5
54	9363,95	9357,27	2,1
55	9239,41	9232,78	11,5
56	9117,28	9110,71	6,7
57	8997,60	8991,08	7,7
58	8880,42	8873,96	12,8
60	8653,72	8647,38	19,2
62	8437,54	8431,33	24,5
64	8232,23	8226,15	27,0
66	8038,10	8032,17	24,9
67	7945,33	7939,47	24,2
68	7855,47	7849,69	14,7
69	7768,53	7762,83	64,2
71	7603,57	7598,03	137,0
72	7525,57	7520,12	219,0
73	7450,59	7445,22	84,4

Tabelle C.1.: Realisierte Raman-Laser auf dem Pumpübergang R56(32-0) in ¹²⁷I₂ (Frequenzen berechnet mit den Daten von [Martin u. a. 1986]).

v''	Frequenz in cm ⁻¹		FCF ·10 ³
	R(75)	P(77)	
2	18379,45	18368,08	13,1
4	17963,50	17952,42	7,8
5	17757,39	17746,34	5,5
6	17552,52	17541,51	4,5
7	17348,90	17337,92	7,0
9	16945,46	16934,55	8,2
11	16547,13	16536,30	8,7
13	16154,01	16143,25	8,4
15	15766,18	15755,49	7,3
17	15383,72	15373,11	5,5
22	14451,75	14441,33	7,2
24	14088,92	14078,59	7,9
26	13731,97	13721,72	7,3
28	13381,03	13370,86	5,6
31	12866,19	12856,16	6,1
33	12530,93	12520,99	8,0
35	12202,22	12192,37	8,5
37	11880,26	11870,51	7,5
38	11721,87	11712,17	2,5
39	11565,25	11555,60	5,2
40	11410,40	11400,80	5,4
42	11106,22	11096,72	8,3
44	10809,54	10800,15	10,0
46	10520,62	10511,35	10,0
48	10239,75	10230,59	8,2

Tabelle C.2.: Realisierte Raman-Laser auf dem Pumpübergang P77(33-0) in ¹²⁹I₂ (Frequenzen berechnet mit den Daten von [Cerny u. a. 1986]).

v''	Frequenz in cm ⁻¹		FCF ·10 ³
	R(78)	P(80)	
4	17960,67	17949,06	8,8
6	17548,24	17536,71	5,5
7	17343,92	17332,42	6,0
9	16939,09	16927,67	7,4
11	16539,43	16528,08	8,3
13	16145,01	16133,75	8,5
15	15755,95	15744,76	7,8
17	15372,28	15361,18	6,4
18	15182,52	15171,45	2,5
22	14437,54	14426,63	6,5
24	14073,69	14062,87	7,7
26	13715,77	13705,05	7,8
28	13363,92	13353,28	6,6
33	19135,08	19135,08	7,2
35	19135,08	19135,08	8,5
37	19135,08	19135,08	8,3
39	11544,31	11534,21	6,6
42	11084,62	11074,69	7,0
43	10935,15	10925,28	1,5
44	10787,62	10777,80	9,5
46	10498,47	10488,77	10,5

Tabelle C.3.: Realisierte Raman-Laser auf dem Pumpübergang P80(33-0) in ¹²⁷I¹²⁹I (Frequenzen berechnet mit den Daten von [Cerny u. a. 1986]).

Literaturverzeichnis

- [Acef 1997] ACEF, O.: Metrological properties of CO_2/OsO_4 optical frequency standard. In: *Opt. Comm.* 134 (1997), S. 479
- [Allan 1966] ALLAN, D.W.: Statistics of atomic frequency standards. In: *Proc. IEEE* 54 (1966), S. 221
- [Anders 2000] ANDERS, H.: Interferenzfilter für Industrie und Forschung. Dr. Hugo Anders, Schwarzacher Str. 27, 92507 Nabburg, 2000. – Forschungsbericht
- [Arie und Byer 1993] ARIE, A. ; BYER, B.: Laser heterodyne spectroscopy of $^{127}I_2$ hyperfine structure near 532 nm. In: *JOSA B* 10 (1993), S. 1990
- [Autler und Townes 1955] AUTLER, S.H. ; TOWNES, C.H.: Stark effect in strongly varying fields. In: *Phys. Rev.* 100 (1955), S. 703
- [Bacis u. a. 1980] BACIS, R. ; BROYER, M. ; CHURASSY, S. ; VERGÈS, J. ; VIGUÉ, J.: eQq measurements in the $X, 1g, O_g^+$ and B state of I_2 : A test of the electronic molecular eigenfunctions. In: *J. Chem. Phys.* 73 (1980), S. 2641
- [Bartels 1960] BARTELS, J.: *Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie und Astronomie*. Bd. 2. 6. Auflage. Springer, 1960
- [Barwood u. a. 1997] BARWOOD, G.P. ; GILL, P. ; KLEIN, H.A. ; ROWLEY, W.R.C.: Clearly resolved secular sidebands on the $^2S_{1/2} - ^2D_{5/2}$ 674 nm clock transition in a Single Trapped Sr^+ ion. In: *IEEE Trans. Instrum. Meas.* 46 (1997), S. 133
- [Barwood und Marx 1982] BARWOOD, G.P. ; MARX, P. G. B.: Molecular Iodine Laser optically pumped at 521 nm and 531 nm. In: *Opt. Comm.* 41 (1982), S. 195
- [Beterov und Chebotaev 1974] BETEROV, I.M. ; CHEBOTAEV, V.P.: *Progress in Quantum Electronics*. Bd. 3 Part 1. Pergamon Press, 1974

-
- [Bhale u. a. 1985] BHALE, G.L. ; AHMED, S.F. ; REDDY, S.P.: A study of variation of electronic transition moment of the B–X system of I₂ from its laser–excited fluorescence spectrum. In: *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 18 (1985), S. 645
- [Bienfang u. a. 2002] BIENFANG, J.C. ; RUDOLPH, W. ; ROOS, P.A. ; MENG, L.S. ; CARLSTEN, J.L.: Steady–state thermo optic model of a continuous–wave Raman laser. In: *JOSA B* 19 (2002), S. 1318
- [Bode 1999] BODE, M.: *Abstimmbare Einfrequenz–Strahlenquellen hoher Stabilität im nahen infraroten, sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich*, Universität Hannover, Dissertation, 1999
- [Bodermann 1998] BODERMANN, B.: *Untersuchung zur Realisierung eines durchstimmbaren, hochpräzisen Frequenzstandards im NIR und zur Erweiterung des Spektralbereiches mit Hilfe des ¹²⁷I₂–Moleküls*, Universität Hannover, Dissertation, 1998
- [Bordé u. a. 1979] BORDÉ, C.J. ; CAMY, G. ; DECOMPS, B.: Measurement of the recoil shift of saturation resonances of ¹²⁷I₂ at 5145 Å: A Test of accuracy for high resolution saturation spectroscopy. In: *Phys. Rev. A* 20 (1979), S. 254
- [Brasseur u. a. 1998] BRASSEUR, J.K. ; REPARSKY, K.S. ; CARLSTEN, J.L.: Continuous–wave Raman laser in H₂. In: *Opt. Lett.* 23 (1998), S. 367
- [Braxmaier 1997] BRAXMAIER, C.: *Frequenzstabilisierung eines Nd:YAG–Lasers auf Hyperfeinübergänge von molekularem Jod*, Universität Konstanz, Diplomarbeit, 1997
- [Brown und Klemperer 1964] BROWN, R.L. ; KLEMPERER, W.: Energy transfer in the fluorescence of iodine excited by the sodium D lines. In: *J. Chem. Phys.* 41 (1964), S. 3072
- [Broyer u. a. 1975] BROYER, M. ; VIGÚE, J. ; LEHMANN, J.C.: Direct evidence of the natural predissociation of the I₂ B state through systematic measurements of lifetimes. In: *J. Chem. Phys.* 63 (1975), S. 5428
- [Broyer u. a. 1978] BROYER, M. ; VIGÚE, J. ; LEHMANN, J.C.: Effective hyperfine Hamiltonian in homonuclear diatomic Molecules. Application to the B state of molecular iodine. In: *J. de Phys.* 39 (1978), S. 591

- [Bugrim u. a. 1974] BUGRIM, E.D. ; MAKRENKO, S.N. ; TSIKORA, I.L.: Efficiency of the vibrational deactivation and quenching of an electronically excited I_2 molecule. In: *Opt. Spectrosc.* 37 (1974), S. 610
- [Bugrim u. a. 1977] BUGRIM, E.D. ; MAKRENKO, S.N. ; TSIKORA, I.L.: Temperature dependence of the efficiency of the deactivation of the $B^3\Pi(O_u^+)$ state of iodine and bromine molecules excited by a He–Ne laser. In: *Opt. Spectrosc.* 43 (1977), S. 250
- [Byer u. a. 1972] BYER, R.L. ; HERBST, R.L. ; KILDAL, H. ; LEVENSON, M.D.: Optically pumped molecular Iodine Vapor–Phase Laser. In: *Appl. Phys. Lett.* 20 (1972), S. 463
- [Cerny u. a. 1986] CERNY, D. ; BACIS, R. ; VERGÈS, J.: Laser induced Fluorescence Fourier transform spectroscopy of the XO_g^+ State of I_2 : Extensive analysis of the $BO_g^+ \rightarrow XO_g^+$ fluorescence spectrum of $^{127}I^{129}I$ and $^{129}I_2$. In: *J. Mol. Spec.* 116 (1986), S. 458
- [Clark und McCaffery 1978] CLARK, R. ; MCCAFFERY, A.J.: Laser fluorescence studies of molecular iodine II. Relaxation of oriented ground and excited molecules. In: *J. Chem. Phys.* 63 (1978), S. 617
- [Coherent] COHERENT: Coherent Deutschland GmbH, Dieselstr. 5b, D–64807 Dieburg. – Forschungsbericht
- [De Voe und Brewer 1982] DE VOE, R.G. ; BREWER, R.G.: Coherence phenomena in phase modulation laser spectroscopy. In: *Phys. Rev. A* 26 (1982), S. 2606
- [Demtröder 1996] DEMTRÖDER, W.: *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*. 2. Auflage. Springer, 1996
- [Derouard und Sadeghi 1983] DEROUARD, J. ; SADEGHI, S.: Collisional processes and corresponding rate constants in the $B^3\Pi(O_u^+)$, $\nu' = 15$ state of I_2 . In: *Chem. Phys. Lett.* 102 (1983), S. 324
- [Dunham 1932] DUNHAM, J.L.: The energy levels of a rotating vibrator. In: *Phys. Rev.* 41 (1932), S. 721
- [Eickhoff und Hall 1995] EICKHOFF, M.L. ; HALL, J.L.: Optical frequency standard at 532 nm. In: *IEEE Trans. on instrument. and meas.* 44 (1995), S. 155

-
- [Forkey u. a. 1997] FORKEY, J.N. ; LEMPert, W.R. ; MILES, B.: Corrected and calibrated I₂ absorption model at frequency doubled Nd:YAG laser wavelength. In: *Appl. Opt.* 36 (1997), S. 6729
- [Fraser 1954] FRASER, P.A.: A method of determining the electronic transition moment for diatomic molecules. In: *Can. J. Phys.* 32 (1954), S. 515
- [Galzerano u. a. 1999] GALZERANO, G. ; BAVA, E. ; BISI, M. ; BERTINETTO, F. ; SVELTO, C.: Frequency stabilization of frequency-doubled Nd:YAG lasers at 532 nm by frequency modulation spectroscopy technique. In: *IEEE Trans. on instrument. and meas.* 48 (1999), S. 540
- [Gerstenkorn und Luc 1985] GERSTENKORN, S. ; LUC, P.: Molecular constants describing the $B^3\Pi_{0u}^+ - X^1\Sigma_g^+$ transition of $^{127}I_2$. In: *J. Phys.* 46 (1985), S. 867
- [Gerstenkorn u. a. 1978] GERSTENKORN, S. ; LUC, P. ; CHEVILLARD, J.: *Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode*. Laboratoire Aimé Cotton, Edition du CNRS II, Paris, 1978. – (a) Atlas I: 11000-14000 cm⁻¹ (1982)
(b) Gerstenkorn, S. und Luc, P.
Atlas II: 1400-15600 cm⁻¹ (1978)
Atlas III: 14800-19978 cm⁻¹ (1978)
Atlas IV: 19700-20035 cm⁻¹
- [Gerstenkorn u. a. 1991] GERSTENKORN, S. ; LUC, P. ; LE ROY, R.J.: Molecular constants describing the $B^3\Pi_{0u}^+ - X^1\Sigma_g^+$ transition of $^{127,129}I_2$ and $^{129,129}I_2$. In: *Can. J. Phys.* 69 (1991), S. 1299
- [Haken und Wolf 1994] HAKEN, H. ; WOLF, H.C.: *Molekülphysik und Quantenchemie: Eine Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen*. 2.Auflage. Springer, 1994
- [Hamilton 1989] HAMILTON, M.W.: An introduction to stabilized lasers. In: *Cont. Phys.* 30 (1989), S. 21–33
- [Hänsch u. a. 1971] HÄNSCH, T.W. ; LEVENSON, M.D. ; SCHAWLOW, A.L.: Complete hyperfine structure of a molecular iodine line. In: *Phys. Rev. Lett* 26 (1971), S. 946

- [Hefter u. a. 1985] HEFTER, U. ; EICHERT, J. ; BERGMANN, K.: An optically pumped supersonic Iodine beam laser. In: *Opt. Comm.* 52 (1985), S. 330
- [Hellwege 1974] HELLWEGE, Karl H.: *Einführung in die Physik der Molekeln*. Springer, 1974
- [Herzberg 1950] HERZBERG: *Spectra of diatomic molecules*. 1. Auflage. London : Van Nostrand, 1950. – Hönl–London–Formeln in Abs. 4.4
- [Hinze u. a. 2000] HINZE, U. ; CHICHKOV, B.N. ; TIEMANN, E. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Resonant continuous four–wave mixing parametric amplification. In: *JOSA B* 17 (2000), S. 2001
- [Hinze u. a. 1999] HINZE, U. ; MEYER, L. ; CHICHKOV, B.N. ; TIEMANN, E. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Continuous parametric amplification in a resonantly driven double Λ –system. In: *Opt. Comm.* 166 (1999), S. 127
- [Hong u. a. 2001] HONG, F.L. ; YE, J. ; MA, L.S. ; PICARD, S. ; BORDE, C.J. ; HALL, J.L.: Rotation dependence of electric quadrupole hyperfine interaction in the ground state of molecular iodine by high–resolution laser spectroscopy. In: *JOSA B* 18 (2001), S. 379
- [Infrared-Detectors] INFRARED-DETECTORS: *Hamamatsu*. Hamamatsu Photonics Deutschland GmbH, Arzbergstr. 10, 82211 Herrsching am Ammersee. – Typ: G5832-01, InGaAs PIN Photodiode, 700–1700 nm
- [IodineSpec 2000] IODINESPEC: *Institut für Quantenoptik, Universität Hannover*. 2000. – Lizenz erhältlich bei: Toptica Photonics AG, Fraunhoferstr. 14, 82152 Martinsried
- [Jones u. a. 1996] JONES, D.R. ; Ó SHAUGHNESSY, S.M. ; LAINÉ, D.C.: Enhanced operation of a CW optically pumped molecular iodine cell laser operating in the visible and near infrared spectrum. In: *Opt. Comm.* 131 (1996), S. 203
- [Kirillov 1983] KIRILLOV, D.: Intensity of overtones in resonant raman scattering in I_2 Vapor. In: *J. Mol. Spectrosc.* 99 (1983), S. 228

-
- [Klug u. a. 2001] KLUG, M. ; KABLUKOV, S. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Operation of I₂-Raman lasers in hollow waveguides. In: *Europhysics conference abstracts* 25B (2001), S. 194
- [Klug u. a. 2000] KLUG, M. ; SCHULZE, K. ; HINZE, U. ; APOLONSKI, A. ; TIEMANN, E. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Frequency stable I₂ Raman laser excited by a frequency doubled monolithic Nd:YAG laser. In: *Opt. Comm.* 184 (2000), S. 215
- [Kneubühl und Sigrist 1991] KNEUBÜHL, F.K. ; SIGRIST, M.W.: *Laser*. 3.Auflage. Stuttgart : Teubner Studienbücher, 1991
- [Kobtsev 2000] KOBTSEV, S.M.: Interference filters / Laboratory of laser systems. Novosibirsk state university, 2. Pirogov st, Novosibirsk, 90, 630090, 2000. – Forschungsbericht
- [Koffend u. a. 1979] KOFFEND, J.B. ; BACIS, R. ; FIELD, R.W.: The electronic transition moment of the $BO_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ system of I₂ through gain measurements of an I₂ optically pumped laser. In: *J. Chem. Phys.* 70 (1979), S. 2366
- [Koffend und Field 1977] KOFFEND, J.B. ; FIELD, R.W.: Cw optically pumped molecular iodine laser. In: *J. Appl. Phys.* 48 (1977), S. 4468
- [Koffend u. a. 1980] KOFFEND, J.B ; WODARCZYK, F.J. ; BACIS, R. ; FIELD, R.W.: Collisional relaxation of highly excited vibrational levels of the I₂ $X\Sigma_g^+$ state using an I₂ optically pumped laser. In: *J. Chem. Phys.* 72 (1980), S. 478
- [Kogelnik und Li 1966] KOGELNIK, H. ; LI, T.: Laser Beams and Resonators. In: *Appl. Optics* 5 (1966), S. 1550
- [Kurzel u. a. 1972] KURZEL, R.B. ; DEGENKOLB, E.O. ; STEINFELD, J.I.: Energy transfer processes in monochromatically excited iodine. VI. Quenching and vibrational relaxation in $\nu' = 6$. In: *J. Chem. Phys.* 56 (1972), S. 1784
- [Kurzel und Steinfeld 1970] KURZEL, R.B. ; STEINFELD, J.I: Energy-transfer processes in monochromatically excited iodine molecules. III. Quenching and multiquantum transfer from $\nu' = 43$. In: *J. Chem. Phys.* 53 (1970), S. 3292

- [Kurz u. a. 1971] KURZEL, R.B. ; STEINFELD, J.I. ; HATZENBUHLER, D.A. ; LEROI, G.E.: Energy-transfer processes in monochromatically excited iodine Molecules. V. Rotational energy transfer in Argon-excited I_2 . In: *J. Chem. Phys.* 55 (1971), S. 4822
- [Lamrini u. a. 1994] LAMRINI, M. ; BACIS, R. ; CERNY, D. ; CHURASSY, S. ; CROZET, P. ; ROSS, A.J.: The electronic transition dipole moment of the $BO_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ transition in iodine. In: *J. Chem. Phys.* 100 (1994), S. 8780
- [Lehmann 1976] LEHMANN, J.C.: Investigation of excited-state lifetimes and predissociation of iodine molecules by selective excitation. In: *Sov. J. Quantum Electron.* 6 (1976), S. 442
- [Letokhov und Chebotaev 1960] LETOKHOV, V.S. ; CHEBOTAEV, V.P.: *Springer series in optical science*. Bd. 4: *Nonlinear laser spectroscopy*. Springer, 1960
- [Luhs u. a. 1983] LUHS, W. ; HUBE, M. ; SCHOTTELIUS, U. ; WELLEGEHAUSEN, B.: He-Ne Laser pumped dimer laser. In: *Opt. Comm.* 48 (1983), S. 265
- [Luhs und Wellegehausen 1983] LUHS, W. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Raman tuning of optically pumped continuous dimer lasers. In: *Opt. Comm.* 46 (1983), S. 121
- [Lutz und Wendt 1998] LUTZ, H. ; WENDT, W.: *Taschenbuch der Regelungstechnik*. 2.Auflage. Frankfurt am Main : Harri Deutsch, 1998
- [Martin u. a. 1986] MARTIN, F. ; BACIS, R. ; CHURASSY, S. ; VERGÈS, J.: Laser-induced-Fluorescence Fourier transform spectroscopy of the $BO_g^+ \rightarrow XO_g^+$ State of I_2 : Extensive analysis of the Fluorescence spectrum of $^{127}I_2$. In: *J. Mol. Spec.* 116 (1986), S. 71
- [Martinez u. a. 1989] MARTINEZ, E. ; BASTERRECHEA, F.J. ; BEITIA, F. ; CASTANO, F. ; MARTINEZ, M.T. ; SANTOS, L.: Validity of the electronic transition moment functions for the B-X transitions of I_2 from radiative lifetimes. In: *Spectrosc. Lett.* 22 (1989), S. 1007
- [Nevsky u. a. 2001] NEVSKY, A.Yu ; HOLZWARTH, R. ; REICHERT, J. ; UDEM, Th. ; HÄNSCH, T.W. ; ZANTHIER, J.von ; WALTHER, H. ; SCHNATZ, H. ; RIEHLE, F. ; POKASOV, P.V. ; SKVORTSOV, M.N. ; BAGAYEV, S.N.: Frequency comparison and

-
- absolute frequency measurement of I_2 -stabilized lasers at 532 nm. In: *Opt. Comm.* 192 (2001), S. 263
- [Nicholls 1972] NICHOLLS, R.W.: The r-centroid approximation and generalised functions. In: *Chem. Phys. Lett.* 17 (1972), S. 252
- [Niering u. a. 2000] NIERING, M. ; HOLZWARTH, R. ; REICHERT, J. ; POKASOV, P. ; UDEM, Th. ; WEITZ, M. ; HÄNSCH, T.W. ; P.LEMONDE ; SANTARELLI, G. ; ABGRALL, M. ; LAURENT, P. ; SALOMON, C. ; CLAIRON, A.: Measurement of the $1S-2S$ transition frequency by phase coherent comparison with a microwave cesium fountain clock. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), S. 5496
- [Ohlenbusch 1987] OHLENBUSCH, J.: *Entwicklung eines kostengünstigen, mikroprozessorgesteuerten Wavemeters*, Institut für Quantenoptik, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1987
- [Paisner und Wallenstein 1974] PAISNER, J.A. ; WALLENSTEIN, R.: Rotational lifetime and self-quenching cross section in the $B^3\Pi_{0u}^+$ state of $^{127}I_2$. In: *J. Chem. Phys.* 61 (1974), S. 4317
- [Pickelmann 2001] PICKELMANN: *Piezoaktoren*. 2001. – verwendete Piezo Typen: HPST500/10-5/5/VS18 und PST150/7/7/VS12
- [Pinnau 1990] PINNAU, S.: *Theoretische und experimentelle Untersuchung der Durchlasskurven eines zum Abstimmen von Viellinienlasern geeigneten doppelbrechenden Filters mit beliebiger Orientierung der optischen Achse*. Ruhr-Universität Bochum, Diplomarbeit, 1990
- [Polanyi 1958] POLANYI, J.C.: In: *Can. J. Chem.* 36 (1958), S. 121
- [PTB] PTB: verfügbare Jodzellen:
PTB 26/98 : 150 mm
PTB 27/98 : 100 mm
PTB 31/98 : 60 mm
PTB 19/99 : 150 mm.
- [Quinn 1993/1994] QUINN, T.J.: Recommendation adopted by the Comité International des Poids et Mesures at its 86th meeting. In: *Metrologia* 30 (1993/1994), S. 523

- [Quinn 1999] QUINN, T.J.: Practical realization of the definition of the metre (1999). In: *Metrologia* 36 (1999), S. 211
- [Richling 1990] RICHLING, H.: *Aufbau eines Diodenlaserspektrometers für die hochauflösende Molekülspektroskopie*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1990
- [Riehle u. a. 1999] RIEHLE, F. ; SCHNATZ, H. ; LIPPHARDT, B. ; ZINNER, G. ; TREBST, T. ; HELMKE, J.: The optical calcium frequency standard. In: *IEEE Trans. Instrum. Meas.* 48 (1999), S. 613
- [Sakurai u. a. 1976] SAKURAI, K. ; TAIEB, G. ; BROIDA, H.P.: Lifetime measurement of a single rotational transition of the $B^3\Pi_u^+$ to $X^1\Sigma_g$ transition of iodine. In: *Chem. Phys. Lett.* 41 (1976), S. 39
- [Sarkisyan u. a. 2000] SARKISYAN, D. ; HINZE, U. ; MEYER, L. ; B.WELLEGEHAUSEN: Efficient cw sodium dimer Raman laser operation in a high temperature sapphire cell. In: *Appl. Phys. B* 70 (2000), S. 351
- [Schenzle u. a. 1982] SCHENZLE, A. ; DE VOE, R.G. ; BREWER, R.G.: Phase modulation spectroscopy. In: *Phys. Rev. A* 25 (1982), S. 2606
- [Schnatz 1999] SCHNATZ, P.: private Mitteilung. (1999)
- [Schulze 2000] SCHULZE, Kai: *Aufbau eines frequenzstabilisierten kontinuierlichen Jod-Ramanlasers*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 2000
- [Shotton und Chapman 1972] SHOTTON, K.C. ; CHAPMAN, G.G.: Lifetimes of $^{127}\text{I}_2$ molecules excited by the 632.8 nm He-Ne laser. In: *J. Chem. Phys.* 56 (1972), S. 1012
- [Si-Photodiodes 1998] SI-PHOTODIODES: *Hamamatsu*. Hamamatsu Photonics Deutschland GmbH, Arzbergstr. 10, 82211 Herrsching am Ammersee, 1998. – Typ: S4011-02, Si Photodiode, 320–1100 nm
- [Skribanowitz u. a. 1971] SKRIBANOWITZ, N. ; FELD, M.S. ; FRANKE, R.E. ; KELLY, M.J. ; JAVAN, A.: Possibility of an unidirectional laser amplifier produced by monochromatic optical pumping of a coupled Doppler-broadened transition. In: *Appl. Phys. Lett.* 19 (1971), S. 161

-
- [Steinfeld 1966] STEINFELD, J.I.: Wavelength Dependence of the Quenching of iodine Fluorescence. In: *J. Chem. Phys.* 44 (1966), S. 2740
- [Steinfeld 1981] STEINFELD, J.I.: *Molecules and Radiation: An Introduction to modern molecular spectroscopy*. MIT, Cambridge, Mass., 1981
- [Stenger u. a. 2001] STENGER, J. ; TAMM, C. ; HAVERKAMP, N. ; WEYERS, S. ; TELLE, H.R.: Absolute frequency measurement of the 435.5 nm $^{171}\text{Yb}^+$ clock transition with a Kerr-lens mode-locked femtosecond laser. In: *arXiv:physics* 2 (2001), S. 0103040
- [Svelto 1998] SVELTO, Orazio: *Principles of Lasers*. 4. Auflage. Plenum Press, 1998
- [Telle und Telle 1982] TELLE, H.H. ; TELLE, U.: FCFRKR – A procedure to evaluate Franck-Condon type integrals for diatomic molecules. In: *Computer Phys. Com.* 28 (1982), S. 1. – Programm erhältlich unter: <http://www.cpc.cs.qub.ac.uk/cpc/summaries/AAOR>
- [Telle u. a. 2001] TELLE, H.R. ; LIPPHARDT, B. ; STENGER, J.: Kerr-lens mode-locked lasers as transfer oscillators for optical frequency measurements. In: *arXiv:physics* 1 (2001), S. 0107037
- [Tellinghuisen 1978] TELLINGHUISEN, J.: Intensity factors for the I_2 B \leftrightarrow X band system. In: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 19 (1978), S. 149
- [Tellinghuisen 1982] TELLINGHUISEN, J.: Transition strengths in the visible-infrared absorption spectrum of I_2 . In: *J. Chem. Phys.* 76 (1982), S. 4736
- [Thorlabs 2002] THORLABS: *Thorlabs Catalogue*. Bd. 14. Thorlabs Inc., Laubacher Weg 27, 35305 Grünberg, 2002. – Thorlabs PDA 255: InGaAs Photodiode, 0,7 bis 1,7 μm , Bandbreite 50 MHz an 50 Ω , Verstärkung 10^4 V/A
- [Touahri u. a. 1997] TOUAHRI, D. ; ACEF, O. ; CLARION, A. ; ZONDY, J.J ; FELDER, R. ; L.HILICO ; BEAUVOIR, B. de ; BIRABEN, F. ; NEZ, F.: Frequency measurement of the $5S_{1/2}$ ($F = 3$)– $5D_{5/2}$ ($F = 5$) two-photon transition in rubidium. In: *Opt. Comm.* 133 (1997), S. 471
- [Townes und Schawlow 1975] TOWNES, C.H. ; SCHAWLOW, A.L.: *Microwave spectroscopy*. New York : Dover, 1975

- [Tubes 1997] TUBES, Photomultiplier: *Hamamatsu*. Hamamatsu Photonics Deutschland GmbH, Arzbergstr. 10, 82211 Herrsching am Ammersee, 1997. – Typ: R1509 mit Photokathode 500K, 300–820 nm
- [Vigúe u. a. 1981] VIGÚE, J. ; BROYER, M. ; LEHMANN, J.C.: Natural hyperfine and magnetic predissociation of the I_2 - B -state. In: *J. de Phys.* 42 (1981), S. 961
- [Wadsworth u. a. 2002] WADSWORTH, W.J. ; PERCIVAL, R.M. ; BOUWMANS, G. ; KNIGHT, J.C. ; RUSSELL, P.St.J.: High power air clad photonic crystal fibre laser. In: *Opt. Exp.* 11 (2002), S. 48
- [Weiss u. a. 1988] WEISS, C.O. ; KRAMER, G. ; LIPPHARDT, B. ; GARCIA, E.: Frequency measurement of a CH_4 Hyperfine line at 88 THz. In: *IEEE J. Quant. Electron.* 24 (1988), S. 1970
- [Wellegehausen 1979] WELLEGEHAUSEN, B.: Optically pumped cw dimer laser. In: *IEEE J. Quant. Opt.* 10 (1979), S. 1108
- [Wellegehausen u. a. 1978a] WELLEGEHAUSEN, B. ; FRIEDE, D. ; STEGER, G.: Optically pumped continuous Bi_2 and Te_2 lasers. In: *Opt. Comm.* 26 (1978), S. 391
- [Wellegehausen u. a. 1977] WELLEGEHAUSEN, B. ; STEPHAN, K.H. ; FRIEDE, D. ; WELLING, H.: Optically pumped continuous I_2 molecular laser. In: *Opt. Comm.* 2 (1977), S. 157
- [Wellegehausen u. a. 1978b] WELLEGEHAUSEN, B. ; WELLING, H. ; STEPHAN, K.H. ; HEITMANN, H.H.: In: *Proceedings of the 10th Quantum Elect. Conference, Atlanta* (1978)
- [Welling u. a. 1977] WELLING, H. ; WELLEGEHAUSEN, B. ; STEPHAN, K.H.: Optically pumped continuous alkali dimer lasers. In: *Springer Series in Optical Science* 7 (1977), S. 365
- [Yariv 1976] YARIV, A.: *Introduction to optical electronics*. 2. Auflage. Holt, Rinehart and Winston, 1976
- [Ye u. a. 1997] YE, J. ; MA, L.S. ; HALL, J.L.: Ultrastable Optical frequency Reference at 1064 nm using a C_2HD molecular overtone transition. In: *IEEE Trans. on instrument. and meas.* 46 (1997), S. 2

[Ye u. a. 1999] YE, J. ; ROBERTSON, L. ; PICARD, S. ; MA, L.S. ; HALL, J.L.: Absolute frequency atlas of molecular I_2 lines at 532 nm. In: *IEEE Trans. on instrument. and meas.* 48 (1999), S. 544

[Yvon] YVON, Jobin: Bretonischer Ring 13, 85630 Grasbrunn bei München, www.jygmbh.de. – 0,5 m Monochromator Spektralbereich 300 bis 1350 nm (nähere Informationen nicht verfügbar)

Lebenslauf

Persönliche Daten

Manuel Klug
geboren am 12.10.1970 in Auetal
Eltern: Dieter Klug
Inge Klug, geb. Schmidt

Schulausbildung

1976 - 1981 Grundschule in Heeßen
1981 - 1983 Orientierungsstufe in Bückeburg
1983 - 1990 Gymnasium Adolfinum Bückeburg,
Abschluß Abitur

Zivildienst

07/1990-09/1991 Zivildienst beim Diakonischen Werk in Minden (Westfalen)

Hochschulausbildung

1991 - 1999 Studium der Physik an der Universität Hannover
03/1998 Abschluß des Studiums als Diplom-Physiker
04/1998 - 09/2000 Stipendiat im Graduiertenkolleg „Photonen, atomare Teilchen
und deren Wechselwirkungen“ im Fachbereich Physik der
Universität Hannover
10/2000 - 10/2001 Wissenschaftlicher Mitarbeiter des Sonderforschungsbereiches
„Quantenlimitierte Meßprozesse“ im Institut für Quantenoptik
der Universität Hannover
seit 10/2001 Wissenschaftlicher Mitarbeiter im Institut für Quantenoptik
der Universität Hannover

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde auf Anregung von Herrn Prof. Dr. B. Wellegehausen und Herrn Prof. Dr. E. Tiemann am Institut für Quantenoptik der Universität Hannover angefertigt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. B. Wellegehausen und Herrn Prof. Dr. E. Tiemann. Ihre Bereitschaft zu hilfreichen Diskussionen und die Unterstützung in allen Phasen der Arbeit haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Herrn Dr. S. Kablukov danke ich für die interessante Zeit im Labor und die Diskussionen auch neben der Physik.

Herrn Dr. H. Knöckel danke ich für die Bereitstellung des einen oder anderen „Progrämmchens“.

Mein Dank gilt ebenso allen jetzigen und inzwischen ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe „Kurzwellige Laser“, insbesondere Kai Schulze, Ulf Hinze, Carsten Reinhardt, Michael Born und Lothar Koch, sowie allen, die ich hier nicht namentlich erwähnt habe.

Auch allen anderen Mitarbeitern des Instituts, besonders Herrn Heidekrüger, Herrn Scholz, Herrn Witzlau, Herrn Dohm und Herrn Gaul sei an dieser Stelle für ihre Hilfsbereitschaft gedankt.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Eltern für die Unterstützung während meines Studiums und meiner Promotion bedanken.

Meiner Freundin Tanja danke ich für ihre Unterstützung und ihren Sachverstand und dafür, daß sie da ist.