

# Der Einschwingvorgang und die quasikontinuierliche Emission des $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ -Laser

VON HANS-GEORG HÄFELE

Aus der OSRAM-Studiengesellschaft Augsburg

(Z. Naturforsch. 18 a, 735—738 [1963]; eingegangen am 6. April 1963)

Es wird der Einfluß der Temperatur und der Anregungsenergie auf die Emission eines  $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ -Laser im Bereich von 300 °K bis 20 °K untersucht. Bei 20 °K und Anregung mit dreifacher Schwellenenergie klingen die gedämpften Relaxationsschwingungen wesentlich schneller ab als die Pumpstrahlung der Blitzröhre. Deshalb kann der Einschwingvorgang und der Übergang zur kontinuierlichen Emission auch im Impulsbetrieb untersucht werden. Die Relaxationsschwingungen werden zahlenmäßig analysiert.

Die Schwellenenergie für erzwungene Emission ist beim 3-wertigen Nd-Ion in  $\text{CaWO}_4$  besonders klein, da das untere Fluoreszenzniveau  $^4\text{I}_{11/2}$  fast 2000  $\text{cm}^{-1}$  über dem Grundzustand  $^4\text{I}_{9/2}$  liegt und die Linienbreite bei 77 °K nur etwa 7  $\text{cm}^{-1}$  beträgt<sup>1</sup>. Obwohl die Lebensdauer des angeregten Niveaus mit 0,127 ms relativ kurz ist<sup>2</sup>, war es möglich, Laser mit Neodym in Calciumwolframat bzw. Strontiummolybdat über längere Zeit mit kontinuierlicher Emission zu betreiben<sup>3</sup>.

Wegen der Dynamik der Laser-Schwingungen wird die kontinuierliche Emission stets durch gedämpfte, periodische Oszillationen eingeleitet<sup>4-7</sup>. Bei den Untersuchungen über die Temperaturabhängigkeit der Laser-Emission eines  $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$ -Kristalls zeigt sich, daß man diesen Einschwingvorgang und das Abklingen der gedämpften Relaxationsschwingungen zum stationären Zustand auch im Impulsbetrieb beobachten kann, da bei genügend tiefen Temperaturen die Einschwingzeiten beträchtlich kürzer werden können als die Entladungsdauer der Blitzröhre. Dabei hat man die Möglichkeit mit Pumpenergien bis zur 50-fachen Schwellenenergie anzuregen, was beim Betrieb mit einer kontinuierlichen Lichtquelle zunächst nicht möglich ist.

## Experimentelle Angaben

Der verwendete Calciumwolframat-Kristall ist mit 0,5%  $\text{Nd}^{3+}$  dotiert, ist 4,5 cm lang und hat einen Durchmesser von 6,3 mm. Die Untersuchungen wurden sowohl

mit Spiegeln aus dielektrischen Mehrschichten als auch mit solchen aus Gold durchgeführt. Die Laser-Anordnung in einem Metallkryostat ist in Abb. 1 dargestellt. Der Kristall ist mit gutem Wärmekontakt am Boden des Kühlgefäßes in der einen Brennpunktlinie eines elliptischen Reflektors befestigt. Das Kühlgefäß ist relativ breit und nicht hoch, so daß die Lage des Kristalls durch die Wärmeausdehnung nicht merklich verändert wird.

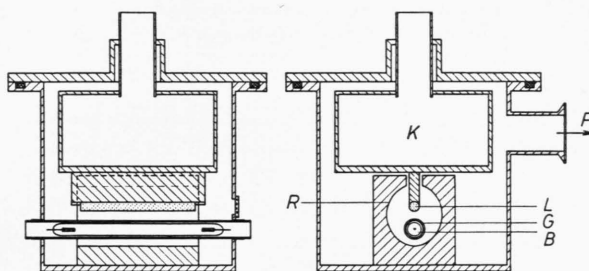


Abb. 1. Laser-Anordnung für Messungen bei Temperaturen zwischen 20 °K und 350 °K. R elliptischer Reflektor, K Kühlbad, P zur Pumpe, L Laser-Kristall, G Glasrohr, B Blitzröhre.

Der elliptische Zylinder ist aus massivem Messing gearbeitet, die Innenfläche mit Aluminium verspiegelt. Die Anregung erfolgt mit einer OSRAM-Blitzröhre Bl 5156, die sich in einem eingekitteten Glasrohr in Atmosphäre befindet. Die Röhre wird mit Elektrolytkondensatoren großer Kapazität bei geringer Spannung (ca. 400 V) betrieben, damit eine möglichst lange Entladungsdauer zustande kommt. Das Laserlicht tritt durch ein Glasfenster aus, wird durch zwei Interferenzfilter (Typ Schott IR-Al) gefiltert, nötigenfalls durch Neutralgläser geschwächt und mit einem Photomultiplier (Typ Maurer Vp 11 UV Ae) empfangen.

<sup>1</sup> L. F. JOHNSON u. K. NASSAU, Proc. Inst. Radio Engrs. 49, 1704 [1961].

<sup>2</sup> K. GÜRS, Z. Naturforsch. 17 a, 883 [1962].

<sup>3</sup> L. F. JOHNSON, G. D. BOYD, K. NASSAU u. R. R. SODEN, Phys. Rev. 126, 1406 [1962].

<sup>4</sup> H. STATZ u. G. DE MARS, Quantum Electronics, Columbia University Press, New York 1960.

<sup>5</sup> I. R. SINGER u. S. WANG, Phys. Rev. Letters 6, 351 [1961].

<sup>6</sup> R. DUNSMUIR, J. Electr. Control 10, 453 [1961].

<sup>7</sup> H. STATZ, C. LUCK, C. SHAFFER u. M. CIFTAN, Advances in Quantum Electronics, Columbia University Press, New York 1961.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

### Die Temperaturabhängigkeit der Emission

Die Schwellenenergie für erzwungene Emission beträgt in der beschriebenen Anordnung bei Zimmertemperatur 6,0 Ws. Kühlt man den Kristall ab, so verringert sich dieser Wert und erreicht bei der Temperatur des flüssigen Wasserstoffes 2,3 Ws (Abb. 2).

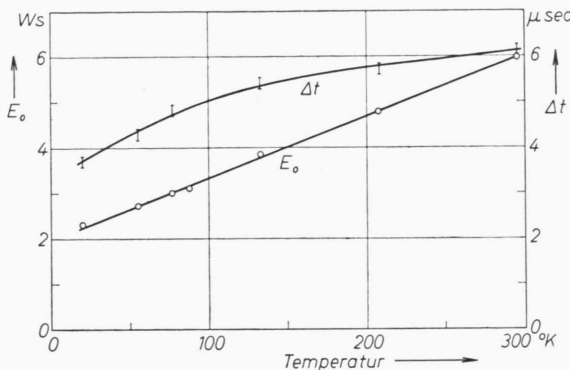


Abb. 2. Temperaturabhängigkeit der Schwellenenergie  $E_0$  für erzwungene Emission und der mittleren Schwingungsdauer  $\Delta t$  bei Anregung mit 1,4-facher Schwellenenergie.

Auch der zeitliche Verlauf der Emission ändert sich mit der Temperatur. Abb. 3 enthält 4 Oszillogramme, die bei 295, 208, 77 bzw. 20 °K aufgenommen wurden. Die Anregung erfolgte jeweils mit dem 1,4-fachen Schwellenwert. Man erkennt, daß die Emission beim Abkühlen des Kristalls unter anderem gleichmäßiger wird. Bei Zimmertemperatur und 208 °K besitzen die Oszillationen noch unterschiedliche Frequenz; mehrere verschiedene Schwingungen lösen sich nacheinander ab.

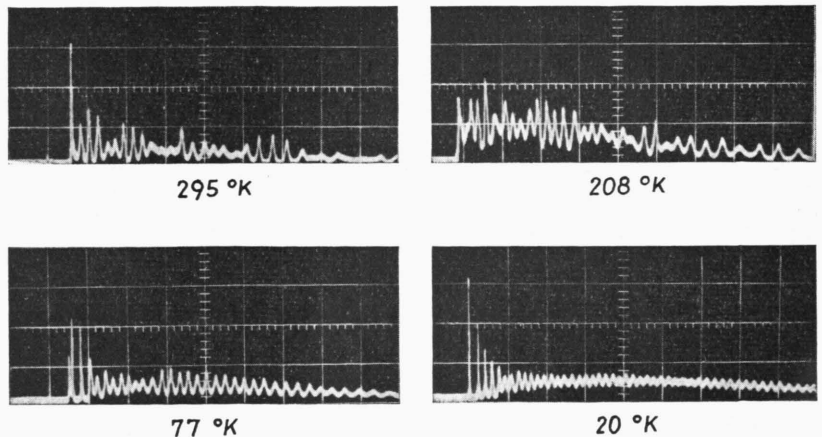


Abb. 3. Zeitlicher Verlauf der  $\text{Nd}^{3+}$ -Laser-Emission bei verschiedenen Temperaturen. Anregung mit 1,4-facher Schwellenenergie. Zeitablenkung 20  $\mu\text{sec}/\text{Skalenteil}$ . Intensitätsmaßstab in willkürlichen Einheiten, jedoch gleich für alle Oszillogramme.

Auch bei 77 °K stellt sich im vorliegenden Beispiel erst nach etwa 50  $\mu\text{sec}$  ein einheitlicher Schwingungszustand ein. Bei der Temperatur des flüssigen Wasserstoffes dagegen bildet sich von Anfang an eine über viele Perioden andauernde Schwingung aus.

Obwohl die Frequenzen bei den höheren Temperaturen nicht einheitlich sind, gibt ihr Mittelwert über einen Blitz ein Maß für den dynamischen Verlauf der Laser-Schwingung. Die für mehrere Temperaturen bei gleicher relativer Anregungsenergie gemessenen Mittelwerte sind in Abb. 2 eingetragen. Die Intensitätsmaxima folgen demnach mit sinkender Temperatur immer rascher aufeinander.

### Die quasikontinuierliche Emission

Steigert man die Anregungsenergie, so verlängert sich u. a. die Dauer der Laser-Impulse. Man beobachtet jedoch bei erhöhten Temperaturen meist während der ganzen Blitzdauer gedämpfte Relaxations-schwingungen. Der Laser-Impuls ist also beendet, ehe die Schwingungen „ausgedämpft“ sind. Kühlt man aber den Kristall, so klingen die Oszillationen schon früher ab und die Emission wird kontinuierlich. Dieser Übergang in den stationären Zustand läßt sich bei 20 °K mit mindestens 3-facher Schwellenenergie herbeiführen. Bei dem in Abb. 4 wiedergegebenen Beispiel ist der Einschwingvorgang nach ca. 60  $\mu\text{sec}$  beendet, während die daran anschließende kontinuierliche Emission rd. 520  $\mu\text{sec}$  dauert. Jedes der vier Einzelbilder erfaßt 50  $\mu\text{sec}$ . Die Oszillogramme schließen zeitlich aneinander an, da sie mit verschiedenen Verzögerungszeiten aufgenommen wurden.

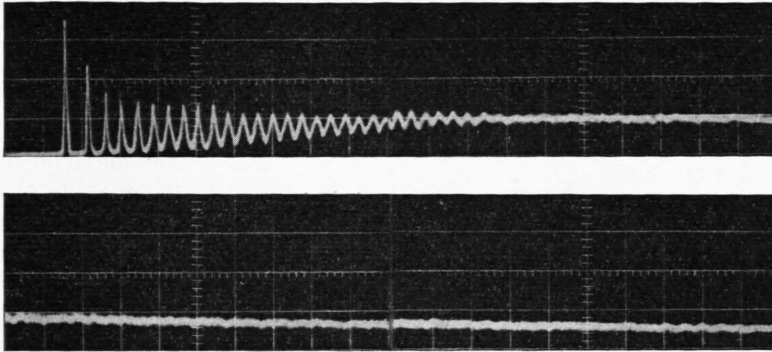


Abb. 4. Zeitlicher Verlauf der  $\text{Nd}^{3+}$ -Laser-Emission bei  $20^\circ\text{K}$  und Anregung mit 3-facher Schwellenenergie (6,9 Ws). Zeitablenkung  $5 \mu\text{sec}/\text{Skalenteil}$ . Von der etwa  $520 \mu\text{sec}$  dauernden Emission sind nur die ersten  $200 \mu\text{sec}$  reproduziert.

An dieser Stelle ist eine Beobachtung zu erwähnen, die den Einfluß der Resonatorgüte auf den Schwingungsverlauf zeigt. Zu Beginn der Messungen bestanden die Spiegel auf dem  $\text{CaWO}_4$ -Kristall aus dielektrischen Mehrfachschichten. Dabei war der Schwingungsverlauf auch schon bei höheren Temperaturen ziemlich gleichmäßig. Die in Abb. 4 dargestellte quasikontinuierliche Emission ergab sich bereits bei der Temperatur des flüssigen Stickstoffs. Nachdem bei Blitzen mit 20- bis 50-facher Schwellenenergie die Mehrfachschichten durch die Laser-Strahlung selbst zerstört wurden, ersetzten wir sie durch Goldspiegel.

Bei der dadurch verringerten Resonatorgüte stellte sich bei  $77^\circ\text{K}$ , auch mit der 10-fachen Schwellenenergie, kein stationärer Zustand ein. Dieser konnte jetzt erst bei  $20^\circ\text{K}$  erreicht werden.

Durch die Abkühlung von  $77^\circ$  auf  $20^\circ\text{K}$  werden demnach die Verstärkungseigenschaften des Kristalls so verbessert, daß die zusätzlichen Reflexionsverluste der Goldspiegel gerade kompensiert werden und sich der frühere Schwingungszustand einstellen kann.

### Der Einschwingvorgang

Im folgenden werden die gedämpften Oszillationen während des Einschwingens quantitativ untersucht. Der zahlenmäßigen Auswertung liegt die theoretische Darstellung von DUNSMUIR<sup>6</sup> zugrunde. Bekanntlich kann man die Relaxationsschwingungen durch die Lösung zweier gekoppelter, nichtlinearer Differentialgleichungen beschreiben. Eine lineare Näherung liefert Sinusschwingungen mit exponentiell abfallenden Amplituden. Dabei setzt man voraus, daß sowohl die Besetzungsdichte  $n$  im oberen Fluoreszenzniveau als auch die Zahl der Quanten  $q$  im Resonator nicht weit vom stationären Zustand  $n_0$ ,  $q_0$  abweichen und vernachlässigt das Produkt

$(n - n_0)(q - q_0)$  als Größe 2. Ordnung. Die Ungenauigkeit der linearen Näherung sollte daher zu Beginn der Laser-Schwingung am stärksten ins Gewicht fallen, da hier die Amplituden am größten sind.

Ein Vergleich zwischen den experimentell gewonnenen und den errechneten Ergebnissen wird im vorliegenden Falle insofern erleichtert, als der Einschwingvorgang mit dem Emissionsmaximum der Blitzröhre zufällig zeitlich zusammenfällt. Die Pumpleistung ist also während dieser kurzen Zeit praktisch konstant, wie es bei der Rechnung vorausgesetzt wird (siehe Abb. 7).

In Abb. 5 sind die gemessenen Schwingungszeiten und die Amplituden für einen Laser-Blitz bei  $20^\circ\text{K}$  dargestellt. Die Ergebnisse aus zahlreichen anderen

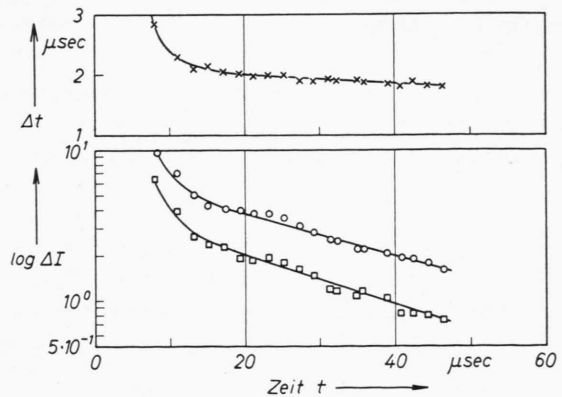


Abb. 5. Schwingungsdauer  $\Delta t$  und Amplituden der Relaxationsschwingungen  $\Delta I$  bei  $20^\circ\text{K}$  und 3-facher Schwellenenergie.  $\bigcirc-\bigcirc-\bigcirc I_{\max}-I_{\min}$ ,  $\square-\square-\square I_{\max}-I_0$ .

Oszillogrammen sind ähnlich. Die Amplituden sind im logarithmischen Maßstab aufgetragen; es sind die Größen  $\Delta I = I_{\max} - I_{\min}$  und  $\Delta I = I_{\max} - I_0$ , wobei  $I_{\max}$  bzw.  $I_{\min}$  die Strahlungsleistungen im Maximum bzw. Minimum der Laser-Schwingung be-

deuten.  $I_0$  ist die Intensität, die sich beim Übergang in den stationären Zustand einstellt.

Man sieht, daß die Schwingungsdauer während des Blitzes nicht ganz konstant ist. Sie ist zu Beginn der Emission am größten und nimmt während der ersten vier bis sechs Perioden merklich, von da an nur noch wenig ab.

Auch die Amplituden verlaufen ähnlich. Der Intensitätsabfall erfolgt ungefähr exponentiell, wie näherungsweise zu erwarten ist. Doch liegen die ersten Maxima wieder zu hoch.

Die Meßergebnisse entsprechen also den theoretischen Erwartungen.

Diese Übereinstimmung erstreckt sich auch auf die strenge numerische Rechnung. Der sich dabei ergebende Emissionsverlauf ist in der genannten Arbeit<sup>6</sup> in Fig. 1 aufgezeichnet. Zum Vergleich ist hier in Abb. 6 ein Oszillogramm mit einer Zeitablenkung von  $2 \mu\text{sec}/\text{Skalenteil}$  wiedergegeben. Die beiden Kurven verlaufen völlig analog. Zahlenmäßig stimmen sie natürlich nicht überein, da die Rechnung mit anderen Parametern durchgeführt wurde.

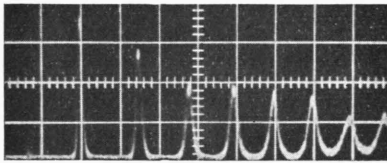


Abb. 6. Zeitlicher Verlauf der  $\text{Nd}^{3+}$ -Laser-Emission bei  $20^\circ\text{C}$  und 3-facher Schwellenenergie. Zeitablenkung  $2 \mu\text{sec}/\text{Skalenteil}$ .

Bekanntlich kann man umgekehrt die Näherungslösung dazu benutzen, diese Parameter zu ermitteln. Aus der Abklingzeit  $t_0$  und der Schwingungsdauer  $\Delta t$  der gedämpften Relaxationsschwingungen erhält man die Zeitkonstante  $t_c$ <sup>6</sup>. Diese ist ein Maß für die Resonatorgüte und gibt an, in welcher Zeit eine Lichtwelle der Fluoreszenzfrequenz im PEROT-FABRY-Resonator auf Grund der verschiedenen Verluste ohne die Verstärkerwirkung durch erzwungene Emission auf den  $e$ -ten Teil geschwächt würde<sup>8</sup>. Man erhält hier aus  $t_0 = 25 \mu\text{sec}$  und  $\Delta t = 1,9 \mu\text{sec}$  den Wert  $t_c = 7,3 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$ . In dieser Zeit hat die Lichtwelle bei einem Brechungsindex  $n$  von rund 1,9 für  $\text{CaWO}_4$ <sup>9</sup> und einer Kristalllänge  $d = 4,5 \text{ cm}$  etwa 13 Hin- und Rückläufe ausgeführt.

### Zur kontinuierlichen Emission

Nach Beendigung des Einschwingvorganges verläuft die Laser-Emission kontinuierlich. Die emittierte Strahlungsleistung wird zwar mit abnehmender Pumpleistung kleiner, aber die Kontinuität bleibt bis zum Schluß erhalten. Der Zusammenhang zwischen der Laser-Emission und der Pumpstrahlung ist in Abb. 7 dargestellt.

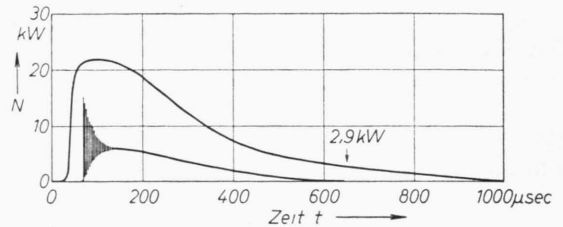


Abb. 7. Übersicht über den zeitlichen Verlauf der  $\text{Nd}^{3+}$ -Laser-Emission und der Strahlungsleistung  $N$  der Blitzröhre.

Die Intensität der Laser-Emission ist in willkürlichen Einheiten angegeben. Der Maßstab für die Pumpleistung ist so normiert, daß das Zeitintegral über den gesamten Blitz die von der Blitzröhre aufgenommene elektrische Energie ergibt. Die Kurve gibt also nicht die vom Kristall wirklich absorbierte, sondern die nominell vorgegebene Leistung an.

Die Laser-Emission setzt im vorliegenden Fall etwa  $70 \mu\text{sec}$  nach der Zündung der Blitzröhre ein. Diese hat dann gerade das Maximum ihrer Strahlungsleistung erreicht. Die Strahlungsleistung beträgt in diesem Moment ca.  $22 \text{ kW}$ . Die kontinuierliche Laser-Emission dauert nach dem Einschwingvorgang noch  $520 \mu\text{sec}$  an, ist also nach insgesamt  $650 \mu\text{sec}$  beendet. Zu diesem Zeitpunkt strahlt die Blitzröhre noch mit einer Leistung von  $2,9 \text{ kW}$ . Man kann daraus entnehmen, daß in der vorliegenden Anordnung eine kontinuierliche Laser-Emission bei einer Dauerleistung von etwas über  $2,9 \text{ kW}$  möglich sein müßte. Dieser Wert stimmt überein mit den Angaben über den kontinuierlichen Betrieb<sup>3</sup>, bei dem  $1,3 \text{ kW}$  benötigt wurden für einen Kristall mit  $5 \text{ cm}$  Länge und nur etwa  $2 \text{ mm}$  Durchmesser.

<sup>8</sup> A. L. SCHAWLOW u. C. H. TOWNES, Phys. Rev. **112**, 1940 [1958].

<sup>9</sup> LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte u. Funktionen, 2. Band, 8. Teil, Springer-Verlag, Berlin 1962.