

Lösungen organischer Farbstoffe als optische Schalter zur Erzeugung von Laser-Riesenimpulsen

Von FRITZ P. SCHÄFER und WERNER SCHMIDT

Physikalisch-Chemisches Institut der Universität Marburg/Lahn

(Z. Naturforsch. 19 a, 1019–1020 [1964]; eingegangen am 5. Juni 1964)

Führt man in einen Laser-Resonator zwischen aktivem Material und Reflektor einen optischen Schalter ein, der den Lichtweg erst frei gibt, nachdem durch die Wirkung des Pumplichts sich bereits ein großer Teil des Laser-Materials in angeregtem Zustand befindet, so wird bei genügend schnellem Schalten ein Riesenimpuls erzeugt¹. Als einfachen optischen Schalter haben wir die Lösung eines organischen Farbstoffs in der im folgenden beschriebenen Weise verwendet.

In der einen Brennpunktlinie eines elliptischen Glaszylinders G (Abb. 1) mit dielektrischem reflektierenden Belägen (Type b, Jenaer Glaswerk Schott u. Gen., Mainz) befand sich eine Blitzlampe L (Type

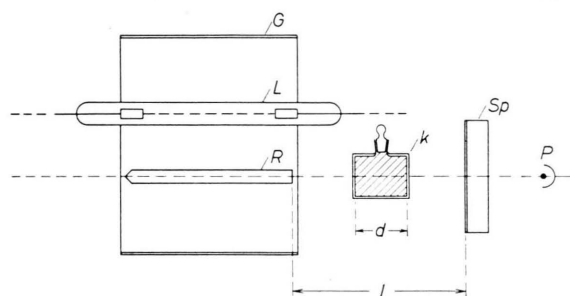
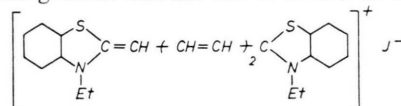


Abb. 1. Skizze der Versuchsanordnung. G elliptischer Glaszylinder mit dielektrischem Spiegelbelag, L Blitzlampe, R Rubin, K Küvette mit Farbstofflösung, Sp Planglasplatte mit Silberbelag, P Photozelle.

G 1005, Sylvania Vakuumtechnik G.m.b.H., Erlangen) zum Pumpen eines zylindrischen Rubinstabes R (Adolf Meller Co., Providence, U.S.A., $\frac{1}{4}'' \times 3''$, TIR-Configuration, Anti-Reflection-Coating, 90°-Orientation, 0,04% Cr-Gehalt, außen poliert), dessen geometrische Achse mit der zweiten Brennpunktlinie von G zusammenfiel. Die Blitzlampe wurde unter Vorschaltung einer Induktivität von 80 μ Hy von einer Kondensatorbatterie von 2000 μ F gespeist (50 \times 40 μ F Bosch-MP-Kondensatoren), die jeweils auf 800 bis 1200 Volt aufgeladen wurde. Im Abstand $l = 13,0$ cm von der ebenen Endfläche des Rubins und parallel zu dieser war als Reflektor eine Planglasplatte Sp in Feinjustierung aufgestellt, deren dem Rubin zugewandte Oberfläche mit einer Silberschicht von etwa 3% Durchlässigkeit bedampft war. In den Lichtweg zwischen Rubin und Reflektor hatten wir eine Küvette K (Type 120 OS, Hellma G.m.b.H., Mülheim/Baden) gestellt, deren Schichtdicke d in den meisten Experimenten 2 cm

betrug. War die Küvette mit einem Lösungsmittel gefüllt, das das Laser-Licht von 6943 Å nicht absorbierte, so erhielten wir bei Pumplichtblitzen von beispielsweise 800 W eine Laser-Emission, die sich aus der üblichen unregelmäßigen Folge von Einzelblitzen (Spikes) zusammensetzte. Dabei hatten die Einzelblitze eine zeitliche Halbwertsbreite von etwa 0,5 μ sec. Die Beobachtung des (entsprechend abgeschwächten) Laser-Lichts erfolgte mit der Photozelle P (Type 90 CV, Valvo G.m.b.H., Hamburg) mit 50 Ω Arbeitswiderstand und einem Oszillographen (Tektronix 555 mit Einschub L) mit 12 nsec Anstiegszeit. Wurde nun die Küvette beispielsweise mit einer methanolischen Lösung des Farbstoffs I mit der Konzentration 10 mg/l gefüllt, so daß die gefüllte Küvette bei 6943 Å eine Transmis-



sion von 30% zeigte, so erhielten wir eine Laser-Emission, die aus einem einzigen hohen Impuls bestand, dessen scheinbare Halbwertsbreite etwa 25 nsec beträgt und vermutlich durch die zu geringe Bandbreite des verwendeten Oszillographen verfälscht ist. Aus diesem Grunde war uns auch eine Messung der Spitzenleistung nicht möglich; jedoch ließ sich die wesentlich höhere Spitzenleistung des Einzelblitzes durch die folgende Beobachtung nachweisen. Die Silberschicht des Reflektors Sp zeigte bei mit Lösungsmittel gefüllter Küvette, also normalen Laser-Blitzen, erst nach 10- bis 15-maligem Blitzen leichte Beschädigungen in Form feiner, nadelstichähnlicher Löcher. War jedoch die Küvette mit der o. a. Farbstofflösung gefüllt, so wurde die Silberschicht bereits durch den dabei entstehenden Einzelblitz stark beschädigt, indem mehrere mm² große Flächenelemente verdampft wurden. Die aus diesen Flächenelementen aufgebaute Figur bildet eine Photographie des Nahfeldes des Laser-Blitzes. Sie zeigt eine interessante Feinstruktur, die offenbar besagt, daß nur wenige Moden während dieses Einzelblitzes angeregt gewesen sein können. Abb. 2 ist eine vergrößerte Wiedergabe einer solchen Figur.

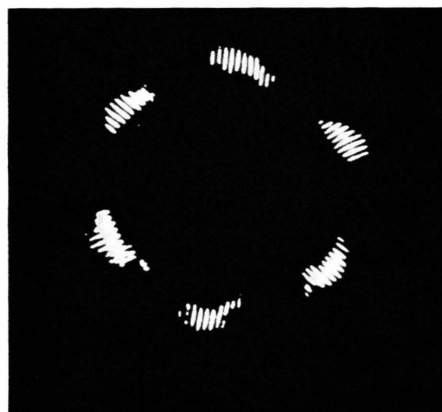


Abb. 2. Durch einen einzelnen Riesenimpuls erzeugte Einbrennfigur in der Silberschicht der Planglasplatte Sp.

¹ Siehe z. B. F. J. McCLUNG u. R. W. HELLWARTH, Proc. IEEE 51, 46 [1963].



Das Zustandekommen des Riesenimpulses kann folgendermaßen kurz erklärt werden. Während des Pumplichtblitzes wächst die Inversion im Rubin an und es setzt Laser-Emission ein, wenn die mittlere Verstärkung eines Lichtquants beim Durchlaufen des Rubins die Verluste ausgleicht, die durch die Absorption in der Farbstofflösung und die unvollkommene Reflexion an der Silberschicht hervorgerufen werden. Die Absorption der Farbstofflösung wird jedoch immer kleiner, da durch die Absorption des Laser-Lichts mehr Farbstoffmoleküle pro Zeiteinheit in den angeregten Zustand versetzt werden, als durch die möglichen Desaktivierungsprozesse wieder in den Grundzustand zurückkehren und die angeregten Farbstoffmoleküle im allgemeinen bei anderen Wellenlängen absorbieren als die Moleküle im Grundzustand. Dadurch wird eine Verbesserung der Resonatorgüte erreicht, die ihrerseits einen beschleunigten Anstieg der Anzahl der Quanten im Resonator bewirkt, was die Absorption der Farbstofflösung weiter erniedrigt. Durch diese Rückkopplung zwischen Anstieg der Quantenzahl im Hohlraum und Erniedrigung der Absorption in der Farbstofflösung wird der durch die Farbstofflösung gebildete optische Schalter außerordentlich schnell geöffnet.

Nachdem die Inversion des Rubins durch die Erzeugung der hohen Spitzenleistung auf Null abgeklungen ist, fällt die Ausgangsleistung des Impulses mit der Zeitkonstante t_c des Resonators ab. Diese ist jedoch im vorliegenden Fall nicht konstant, sondern verkleinert sich laufend, da ein ständig größerer Bruchteil von Molekülen in den Grundzustand zurückkehrt, wodurch der optische Schalter den Lichtweg wieder verschließt. Dadurch wird im Gegensatz zu den anderen Methoden zur Erzeugung von Riesenimpulsen auch die Rückflanke des Impulses steil und verhindert, daß Nachimpulse auftreten. Erst nachdem im weiteren Verlauf des Pumpvorganges die Inversion des Rubins wieder den ursprünglichen Schwellwert erreicht hat, kann ein neuer Impuls auftreten. Wir konnten durch schrittweises Verdünnen der Farbstofflösung bei festgehaltener Pumpenergie verfolgen, wie die Laser-Emission vom Fall des einzelnen Riesenimpulses über eine einstellbare Zahl von großen Impulsen in den normalen Fall einer großen Zahl unregelmäßig aufeinanderfolgender Einzelblitze überging (Abb. 3). Ferner haben wir diesen Effekt noch an einer Reihe von anderen Farbstofflösungen beobachtet, so z. B. an einigen anderen Cyaninen in Methanol, Methylenblau in Wasser und Phthalocyanin in α -Chlornaphthalin. Dagegen konnten wir keine Laser-Emission beobachten, wenn wir die Küvette mit einer nicht fluoreszierenden Lösung eines anorganischen Salzes (z. B. CuSO_4) füllten, so daß die Transmission der Lösung wieder 30% betrug, oder wenn wir an Stelle der Küvette ein Grau- oder Farbfilter mit dieser Transmission bei der Laser-Wellenlänge einfügten.

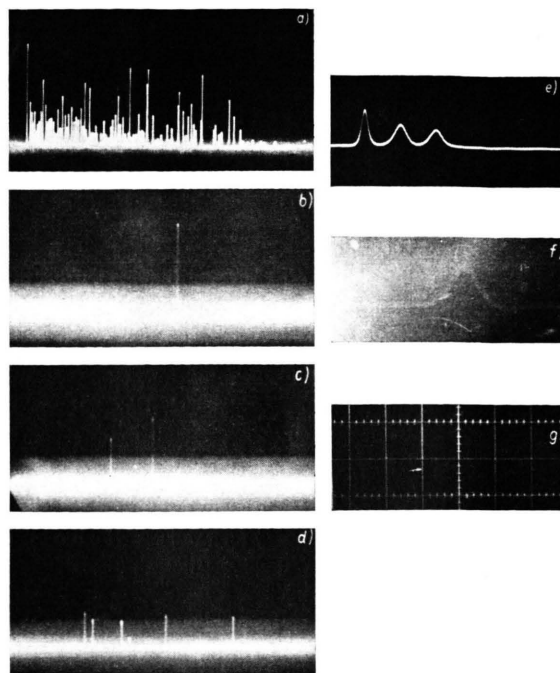


Abb. 3. Oszillogramme. a) normale Laser-Emission, keine Küvette im Strahlengang; b) Riesenimpuls, Küvette mit methanolischer Lösung von Farbstoff I (Konzentration 10 mg/l) gefüllt; c) wie b), jedoch Konzentration 5 mg/l; d) wie b), jedoch Konzentration 2 mg/l. Zeitmaßstab in a) bis d) 50 $\mu\text{sec/cm}$; e) normale Laser-Emission, Zeitmaßstab 1 μsec pro cm; f) Riesenimpuls, Zeitmaßstab 20 nsec/cm; g) Skala des Oszillographenschirms im gleichen Abbildungsmaßstab wie a) bis f).

Durch die hier beschriebene Methode zur Erzeugung von Riesenimpulsen ergibt sich auch eine Möglichkeit, das Absorptionsspektrum von organischen Molekülen zu messen, die sich im ersten angeregten Singlett-Zustand befinden: Die Küvette K wird senkrecht zum Laser-Strahl von einem Meßlichtstrahl durchsetzt, der die Absorptionsänderung der Lösung während der Laser-Emission in Abhängigkeit von der Wellenlänge mißt. Über diese und weitere Versuche werden wir an anderer Stelle ausführlicher berichten.

An m. b. d. Korr.: Durch eine Anmerkung bei der Korrektur zu der Arbeit von J. I. MASTERS, Ruby Laser De-Excitation Losses, Nature, Lond. **202**, 1092 [13. Juni 1964], wurde uns bekannt, daß der in der obigen Notiz mitgeteilte Effekt auch noch von zwei anderen Arbeitsgruppen gefunden worden ist: 1.) P. KAFALAS, J. I. MASTERS u. E. M. E. MURRAY, J. Appl. Phys., August 1964, im Druck; 2.) P. P. SOROKIN, J. J. LUZZI, J. R. LANBARD u. C. O. PETTIT, IBM-J. Res. Develop., April 1964, p. 182.