

# Eine anomale Temperaturabhängigkeit der Schwelle bei einem quasikontinuierlich betriebenen Rubinlaser

G. ZEIDLER

Zentral-Laboratorium für Nachrichtentechnik der Siemens AG, München

(Z. Naturforschg. 22 a, 566—570 [1967]; eingegangen am 17. Januar 1967)

Kurze Rubinstäbe wurden quasikontinuierlich bei variabler Kühlmitteltemperatur betrieben. Der Temperaturgang von Schwelle, Wirkungsgrad und Emissionsspektrum wurde gemessen. Dabei ergab sich ein unerwarteter Effekt: Bei einem VERNEUILLE-Stab nahm die Schwelle unterhalb einer Kühlmitteltemperatur von  $-5^{\circ}\text{C}$  stark zu, während sie bei einem nach dem CZOCHRALSKI-Verfahren gezogenen Stab den Erwartungen gemäß abnahm. Erklärungsmöglichkeiten sind Anregungsprozesse in hochliegenden Energieniveaus und vom Herstellungsverfahren abhängige, durch das Pumplicht induzierte Absorptionszentren, deren Lebensdauer mit sinkender Temperatur zunimmt.

Beim kontinuierlichen Betrieb von Rubinlasern spielt die Kühlung des Kristalls eine entscheidende Rolle. Erst in jüngster Zeit konnte Röss eine Temperaturdifferenz von etwa  $50^{\circ}\text{C}$  zwischen dem Kristall im gepumpten und im ungepumpten Zustand abschätzen<sup>1</sup>. Bei einer Kühlung des Kristalls mit Leitungswasser bedeutet diese erhöhte Temperatur eine erhebliche Verringerung des Quantenwirkungsgrades, da dieser bekanntlich mit wachsender Temperatur abnimmt<sup>2</sup>. Es lag deshalb nahe, den Kristall mit einer Flüssigkeit zu kühlen, deren Gefrierpunkt tiefer liegt als der vom Wasser. Dabei sollte bereits bei einer Kühlmitteltemperatur von  $-30^{\circ}\text{C}$  eine erhebliche Erniedrigung der Schwelle und eine Erhöhung der Ausbeute eintreten.

Dieses den Erwartungen entsprechende Verhalten konnten wir auch in mehreren Experimenten bestätigen, doch beobachteten wir überraschenderweise bei einem Rubin ein vollständig entgegengesetztes Temperaturverhalten: Bei tieferen Kühlmitteltemperaturen wurde die Laserleistung immer niedriger; bereits bei einer Kühlmitteltemperatur von  $-20^{\circ}\text{C}$  konnte der Rubinstab in unserer Anordnung nicht mehr über die Schwelle gepumpt werden. Schwellenergie, Ausgangsleistung und Spektrum wurden deshalb als Funktion der Temperatur näher untersucht.

## 1. Versuchsaufbau

In einem Ellipsoidspiegel als Pumpsystem<sup>3</sup> mit einem Abstand von 25 mm zwischen Brennpunkt und

Scheitel wurden Rubin und Pumplampe in zwei getrennten Kreisläufen gekühlt (Abb. 1). Die Lampe wurde wie üblich mit Leitungswasser von etwa  $+10^{\circ}\text{C}$  gekühlt und hatte somit während der Versuche konstante Betriebsbedingungen. Der Rubinstab wurde in

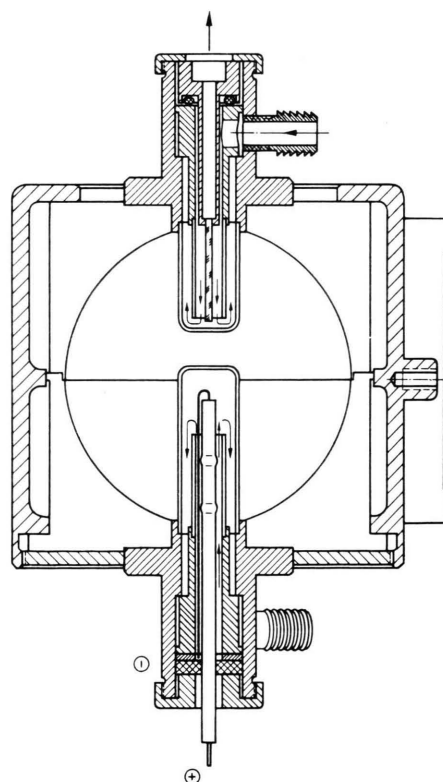


Abb. 1. Ellipsoidspiegel mit getrennter Kühlung für Blitzlampe und Laserstab.

<sup>1</sup> D. Röss, J. Appl. Phys. 37, 3587 [1966].

<sup>2</sup> D. Röss, Laser, Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt am Main 1966, S. 521.

<sup>3</sup> D. Röss, Appl. Opt. 3, 259 [1964].

<sup>4</sup> D. Röss u. G. ZEIDLER, Electronics, 5. Sept. 1966, p. 115.



einem geschlossenen Kreislauf mit reinem Alkohol gekühlt, dessen Temperatur mit einem leistungsstarken Thermostaten zwischen  $+30^\circ\text{C}$  und  $-30^\circ\text{C}$  eingestellt werden konnte. Die Kühlmitteltemperatur wurde mit einem Kupfer-Konstantan-Thermoelement gemessen, das knapp hinter dem Kristall im Kühlmittelstrom hing.

Die Stirnflächen der Kristalle waren direkt verspiegelt. Für die Messungen wählten wir die von uns jüngst beschriebene quasikontinuierliche Betriebsart<sup>4</sup>. Dabei wird eine Quecksilberhochdrucklampe mit einer Blitzfolge von 70 bis 100 Hz betrieben. Bei diesen verhältnismäßig hohen Repetitionsfrequenzen sind, wegen der größeren thermischen Zeitkonstanten, die Temperaturverhältnisse im Rubin quasistationär; in erster Näherung kann mit einer konstanten Rubintemperatur gerechnet werden.

Die Impulsenergie konnte bei der speziellen Blitzlampe zwischen 9 Ws und 14 Ws variiert werden. Die verwendeten Rubinstäbe konnten dabei im wesentlichen nicht unter der Schwelle betrieben werden. Die Schwellenergie wurde deshalb indirekt bestimmt.

Dazu wurde das Photomultipliersignal des Pumplichtes über ein RC-Glied mit einer Zeitkonstante von 3 ms, entsprechend der Fluoreszenzlebensdauer des Chromions, integriert. Dieses Faltungsintegral der Pumpenergie wurde zusammen mit dem Signal der Laseremission eines zweiten Multipliers am Oszillographen beobachtet. Aus dem Zeitpunkt des Einsatzes der Laseremission ergab sich so der Wert der Pumpenergie an der Schwelle. Durch numerisches Auswerten von Stromspannungsszillogrammen war zuvor der absolute Wert des Faltungsintegrals bestimmt worden.

## 2. Beobachtung einer inneren Dämpfung mit einem anomalen Temperaturgang

Als erstes wurde der in <sup>1</sup> benutzte 10 mm lange Rubinstab durchgemessen. Bei Kühlung mit Leitungswasser von etwa  $10^\circ\text{C}$  lag die Schwellenergie dieses Stabs etwas über 3 Ws. Mit steigender Kühlmitteltemperatur nahm die Schwellenergie den Erwartungen nach zu, während sie mit sinkenden Kühlmittelttemperaturen abnahm.

Unerwarteterweise stieg sie jedoch unterhalb von  $-5^\circ\text{C}$  wieder sehr steil an (Abb. 2). Bei einer Alkoholtemperatur von  $-20^\circ\text{C}$  konnte der Laser nicht mehr über die Schwelle gepumpt werden. Dieser deutliche Effekt konnte auch in der Ausgangsleistung, die wir mit einem Kalorimeter bestimmten, beobachtet werden. In Abb. 3 ist die bei höchster Pumpleistung erreichbare maximale Ausgangsleistung als Funktion der Alkoholtemperatur gezeichnet.

Die Ausgangsleistung hat ein Maximum in der Nähe der niedrigsten Schwellenergie bei  $-5^\circ\text{C}$ . Das langsame Abfallen mit höheren Temperaturen ist den

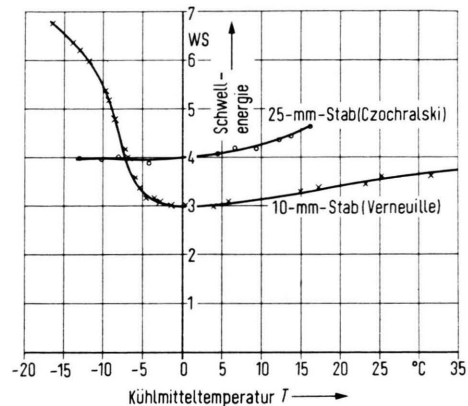


Abb. 2. Schwellenergie als Funktion der Kühlmitteltemperatur. Der 10 mm lange Stab, der nach dem VERNEUILLE-Verfahren hergestellt ist, zeigt für tiefe Kühlmitteltemperaturen ein ausgeprägtes, anomales Verhalten, während die Schwelle des 25 mm langen CZOCHRALSKI-Rubins monoton mit der Temperatur fällt.

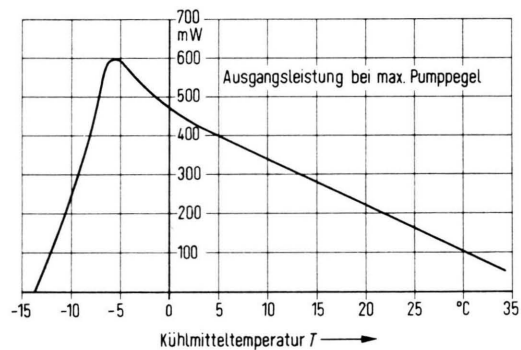


Abb. 3. Ausgangsleistung des 10 mm langen Stabs bei maximaler Pumpleistung als Funktion der Kühlmitteltemperatur. Bei der Temperatur der niedrigsten Schwelle wird auch die maximale Ausgangsleistung erreicht.

üblichen Erkenntnissen nach erklärbar, nicht aber das steile Absinken bei Kühlmittelttemperaturen unter  $-5^\circ\text{C}$ .

Eine Veränderung des optischen Resonators scheidet unseren Beobachtungen nach als Erklärungsmöglichkeit für diesen Effekt aus, denn wir konnten sowohl bei tiefen als auch bei hohen Temperaturen eine ähnliche Ausbildung des Fernfeldes feststellen. Nahe der Schwelle setzte die Emission mit transversalen Moden niedriger Ordnung eines thermisch gekrümmten Resonators<sup>1</sup> ein, um bei erhöhter Pumpleistung in eine Multimodeemission überzugehen, bei der sich die einzelnen Transversalmoden hoher Ordnung zu einem stationären, kreisrunden Fleck ohne erkennbare Nullstellen überlagerten.

Eine andere Erklärungsmöglichkeit, die Verringerung des Absorptionsquerschnittes für das Pumplicht, scheidet unseren Messungen nach ebenfalls aus. Zu diesem Zweck wurde die Ausgangsleistung als Funktion der Pumpleistung für verschiedene Temperaturen gemessen. Die Kurven wurden alle auf die entsprechenden Schwellenergien normiert, konnten aber dadurch nicht zur Deckung gebracht werden, was bei einer temperaturabhängigen, effektiven Pumpleistung der Fall sein müßte.

Es muß also ein anomal temperaturabhängiger Prozeß im Rubingitter stattfinden, der die wirksame Verstärkung verändert. Diese spezielle Materialeigenschaft wurde nur bei dem 10-mm-Rubin beobachtet. Der 2 mm dicke Stab war aus einem nach dem VERNEUILLE-Verfahren hergestellten 90°-Rubin mit 0,035% Cr<sup>3+</sup> herausgeschnitten worden.

Bei einem nach dem CZOCHRALSKI-Verfahren gezogenen Stab mit 25 mm Länge wurde der Effekt im Temperaturbereich von +30 °C bis -30 °C nicht beobachtet (Abb. 2). Die Schwelle nahm bei diesem Kristall stetig mit der Temperatur ab, was den Erwartungen entsprach.

Die normale Temperaturabhängigkeit der Rubinlaser wird durch mehrere Effekte hervorgerufen: Die Besetzungszahlen der R1- und der R2-Linie sind temperaturabhängig. Die beiden dazugehörigen Niveaus sind auf Grund des Frequenzabstandes von 870 GHz unterschiedlich besetzt<sup>5</sup>. Berechnet man die Besetzungszahlen für 300 °K und für 330 °K nach einer BOLTZMANN-Verteilung, so sieht man, daß bei der höheren Temperatur nur etwa 1% mehr Chromionen an der Schwelle der R1-Linie angeregt werden müssen als bei 300 °K.

Man kann bei beiden Temperaturen innerhalb der Meßgenauigkeit annehmen, daß etwa die Hälfte der Atome in die beiden oberen Terme angeregt sind und daß die Schwelleninversion vergleichsweise dazu klein ist. Der Temperatureinfluß dieses Vorganges ist bei einer Erklärung der Meßergebnisse nach Abb. 2 klein.

Ähnliches gilt auch für die Linienverbreiterung. Wie man leicht abschätzen kann, steigt die Schwelleninversion bei einer mittleren Temperatur von 300 °K durch eine Temperaturerhöhung von 30 °C und eine dadurch hervorgerufene Linienverbreiterung von 7 GHz nur um etwa 3% an, was für unseren Fall einer gegen die Gesamtzahl aller Ionen noch kleinen

Inversion zu einer vernachlässigbaren Erhöhung der Schwellenergie führt. Der Anstieg der Schwellenergie für positive Kühlmitteltemperaturen in Abb. 2 läßt sich hauptsächlich mit dem Temperaturgang des Quantenwirkungsgrades erklären. Aus<sup>1</sup> entnimmt man zum Beispiel einen Temperaturgradienten der Schwelle von 0,58%/grd für eine Rubintemperatur über 25 °C. Dies würde bei einer Temperaturänderung von -5 °C auf +15 °C ein Ansteigen der Schwelle um 11,6% bedeuten. Nach Abb. 2 steigt sie in unserer Messung beim 25 mm-Rubin in diesem Temperaturbereich von 4,0 Ws auf 4,6 Ws an, was einem Anstieg von 15% entspricht. Für positive Kühlmitteltemperaturen verhält sich der 10-mm-Stab ähnlich. Von 0 °C bis 35 °C ergibt die Rechnung einen Anstieg der Schwelle um 20%, während sie nach Abb. 2 von 3,0 Ws auf 3,75 Ws ansteigt, was 25% entspricht.

Dabei wird vorausgesetzt, daß sich die Rubintemperatur linear mit der Kühlmitteltemperatur ändert, was durch eine Messung des Ausgangsspektrums (siehe Kap. 3) bestätigt wurde.

Der steile Anstieg der Schwelle bei dem 10 mm-VERNEUILLE-Stab bei tiefen Kühlmitteltemperaturen scheint auf einer unbekannten Materialeigenschaft zu beruhen.

Daß der Effekt im Einzelimpuls-Betrieb nicht beobachtet wurde, könnte dadurch verursacht werden, daß Vorgänge auftreten, die die effektive Verstärkung des Rubins vermindern und deren temperaturabhängige Lebensdauer in der Größenordnung unserer Impulsabstände (10 bis 20 ms) liegt. Im quasikontinuierlichen Betrieb summiert sich deren Wirkung auf.

Es ist beispielsweise denkbar, daß durch hochenergetische Pumplichtquanten die Chromionen in energetisch hochliegende Niveaus angehoben werden, deren Lebensdauer mit sinkender Temperatur zunimmt. Ein Teil der Chromionen ist dann „eingefroren“ und steht dem Laserprozeß nicht mehr zur Verfügung.

Wahrscheinlicher dürfte die Anregung absorbierender Zentren im Kristall sein, da eine solche Erklärung die beobachtete Abhängigkeit von den Herstellungsbedingungen berücksichtigen würde.

Der spektrale Bereich des Pumplichtes, der den Effekt verursacht, muß bis ins Sichtbare reichen, da kein gravierender Unterschied im Temperaturverlauf festzustellen war, als wir die Quarzkühlrohre durch normale Glasrohre ersetzten, so daß der ultraviolette

<sup>5</sup> D. Röss<sup>2</sup>, S. 45.

Teil der Lampenemission nicht in den Rubin gelangen konnte.

Eine Verminderung der Laseremission durch ultraviolett und violett Pumplicht wurde in der Literatur öfter beschrieben. Röss beschrieb einen Sättigungseffekt der Ausgangsleistung in gekühltem Rubin<sup>6</sup> und eine hellrote Verfärbung mancher Rubine bei mittlerer Temperatur mit einer Verschlechterung der Laserfunktion. Durch längeres Heizen konnte diese Verfärbung wieder rückgängig gemacht werden<sup>7</sup>. Weitere Beobachtungen dieser Art wurden in<sup>8-10</sup> beschrieben.

All diese Experimente waren mit Einzelimpuls-lasern ausgeführt worden. Bei unserem quasikontinuierlichen Betrieb sollten bereits kleine Effekte durch die Summation meßbar sein.

### 3. Spektrale Messungen

Um weitere Kenntnisse, vor allem über die echte Temperatur des Rubins zu erhalten, haben wir das Spektrum des 10 mm-Lasers untersucht.

Die axialen Moden des 10 mm-Lasers haben einen Abstand von 8,4 GHz. Sie wurden mit einem PEROT-FABRY-Interferometer untersucht. Der Plattenabstand betrug 1,74 mm; die Reflexion der dielektrisch belegten Platten 97%. Für den 10 mm-Laser ergab sich damit ein Auflösungsbereich von mehr als 17 Modenabständen ohne Überlappen der einzelnen Ordnungen.

Mit Fernrohr und Fadenkreuz wurde die Verschiebung des Spektrums und der Resonanzfrequenz des Lasers in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen. Abb. 4 zeigt eine Meßreihe.

Mit der konstanten Pumpenergie von 9 Ws pro Impuls wird die Schwelle bei etwa  $-15^{\circ}\text{C}$  erreicht. Die Emission beginnt unmittelbar mit 4 Moden. Mit steigender Temperatur (d. h. hier mit sinkender Schwelle!) nimmt die Zahl der Moden zu, während zugleich eine Frequenzverschiebung eintritt.

Die Linienmitte verschiebt sich mit  $6,3\text{ GHz/grd}$  mit wachsender Temperatur zum langwelligeren Bereich. Bei den einzelnen Moden beträgt diese Verschiebung etwa  $8,6\text{ GHz/grd}$ .

Aus der Literatur<sup>4</sup> entnimmt man für die Verschiebung der Linienmitte den kleineren Wert von  $4,3\text{ GHz/grd}$ .

<sup>6</sup> D. Röss, Vortrag auf der Physikertagung in Stuttgart 1962 (siehe auch Phys. Verh. 1962).

<sup>7</sup> D. Röss, Z. Angew. Phys. **15**, 473 [1963].

<sup>8</sup> G. V. SCHULTZ, Phys. Letters **9**, 4 [1964].

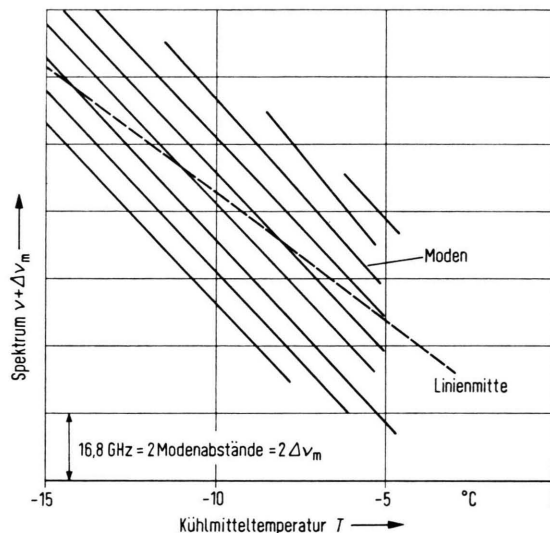


Abb. 4. Spektrum der Emission des 10 mm langen Stabs als Funktion der Kühlmitteltemperatur. Der Abstand der axialen Moden beträgt 8,4 GHz.

Für die Verschiebung der Resonanzfrequenzen  $\nu_R$  gilt<sup>1</sup>

$$\frac{d\nu_R}{dT} = \nu_R \left( \frac{1}{l} \frac{dl}{dT} + \frac{1}{n} \cdot \frac{dn}{dT} \right).$$

Mit den entsprechenden Werten<sup>1</sup> für den Ausdehnungskoeffizienten und dem Brechungsindex für Rubin erhält man eine Verschiebung von  $8,16\text{ GHz/grd}$ , was mit obigem Meßwert sehr gut übereinstimmt.

Die echte Temperatur des Lasers wurde ähnlich wie in<sup>1</sup> abgeschätzt:

Das axiale Modenspektrum wurde dazu als Funktion der Pumpleistung gemessen. Die Temperatur des Kühlmittels betrug dabei  $-5^{\circ}\text{C}$ , die Pumpenergie wurde von 9 Ws bis 10 Ws variiert. Die Impulsfrequenz betrug 100 Hz. Abb. 5 zeigt das Ergebnis: Die Linienmitte verschiebt sich mit  $0,2\text{ GHz/W}$  zu niedrigeren Frequenzen hin.

Diese Verschiebung ist nicht so groß wie die in<sup>1</sup> beim kontinuierlichen Betrieb gemessene Frequenzverschiebung desselben Stabes. Dies ist plausibel, denn dort wurde eine Quecksilberkapillarlampe mit 100 Hz-Halbwellen (10 ms) betrieben, während hier die Dauer der Pumpimpulse 2,5 ms war.

Nimmt man die oben gemessene Verschiebung der Linienmitte, so erhält man eine Temperaturerhöhung

<sup>9</sup> G. V. SCHULTZ, Z. Angew. Phys. **16**, 73 [1965].

<sup>10</sup> R. L. GREENE, J. L. EMMETT u. A. L. SCHAWLOW, Appl. Opt. **5**, 350 [1966].



von 3,3 grd/100 W Pumpleistungserhöhung. Eine grobe Extrapolation ergibt also bei einem Pumppegel von 900 W eine Temperatur, die um 29 °C höher liegt als im ungepumpten Zustand.

In <sup>1</sup> hatte sich für die andere Pumpart ein Temperaturunterschied von etwa 50 °C ergeben.

Aus Abb. 5 entnimmt man die Verschiebung eines einzelnen Mode zu 0,32 GHz/W. Mit dem oben ermittelten Wert der Temperaturerhöhung von 3,2 grd/W ergibt sich eine Temperaturverschiebung von 10 GHz/grd für eine Resonanzfrequenz. Dies stimmt recht gut mit dem oben dafür bestimmten Wert überein.

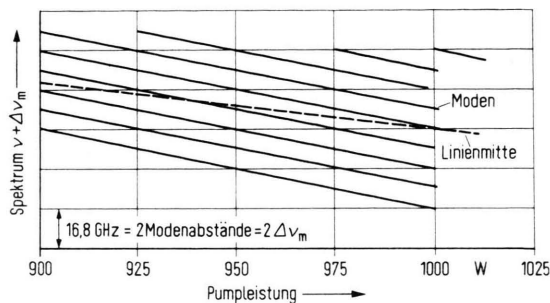


Abb. 5. Spektrum des 10 mm langen Stabs als Funktion der Pumpleistung.

Dieser Versuch zeigt erneut, daß die wirksame Rubintemperatur, abhängig von der Pumpenergie, erheblich über der Temperatur des Kühlmittels liegt. Rechnungen über die Temperaturverteilung zeigen dabei, daß nur etwa 3 °C bis 10 °C (je nach Pumpart) im Kristall abfallen und so eine den Resonator

bestimmende thermische Schichtung erzeugen, während der größere Rest der Temperaturdifferenz an der Grenzschicht der Kühlmittelströmung abfällt.

#### 4. Schlußfolgerung

Die oben ermittelte Temperaturdifferenz von etwa 30 °C zwischen Rubin und Kühlflüssigkeit liefert mit den Messungen nach Abb. 2 den Zusammenhang zwischen Schwelle und wahrer Rubintemperatur. Danach tritt die anomale Erhöhung der Schwelle beim 10 mm-Rubin zwischen +25 °C und +15 °C auf.

Der Versuch zeigt weiter, daß die Kühlung des Kristalls mit kaltem Leitungswasser für die meisten Anwendungen der kontinuierlichen Rubinlaser ausreicht. Dabei ist aber eine forcierte Kühlung des Kristalls mit hohen Strömungsgeschwindigkeiten anzustreben, da die Temperaturdifferenz nach weiteren Messungen des Spektrums von der Durchflußmenge, also von der Strömungsgeschwindigkeit abhängt.

Das anomale Temperaturverhalten des 10 mm langen Rubins konnte hier zwar gemessen werden, doch sind für eine endgültige Erklärung des Effekts noch weitere Experimente nötig. Vor allem sollte das Absorptionsspektrum von Rubinen bei tiefen Temperaturen und nach unterschiedlicher Bestrahlung mit Pumplicht gemessen werden.

Herrn Dr. D. Röss, der dieses Experiment anregte, danke ich für seine vielseitige Hilfe während der Versuchsarbeiten. Dem Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung danken wir für die finanzielle Unterstützung der Arbeit.