

# Untersuchung der Emission eines 50 Hz-Rubin-Pulslasers

D. RÖSS und G. ZEIDLER

Zentrallaboratorium für Nachrichtentechnik der Siemens AG, München

(Z. Naturforschg. **22 a**, 1398—1401 [1967]; eingegangen am 31. Mai 1967)

Die quasikontinuierliche Emission eines 1-Zoll-Rubinlasers mit 50 Hz Impulsfolgefrequenz wurde näher untersucht. Die mittlere Leistung von 1 W wird in Einzelimpulsen von 1,3 ms Dauer abgegeben, deren Zeitverlauf besser als 2% reproduzierbar ist, abgesehen von Kurzzeinstabilitäten mit einer Zeitkonstante kleiner als 100  $\mu$ s (Spikes).

Das Fernfeld besteht aus Moden bis zur 16. transversalen Ordnung, die sich jedoch glatt summieren, so daß eine zeitlich stationäre Emission ohne erkennbare räumliche Minima entsteht. Die Winkelverteilung wird näherungsweise durch eine GAUSS-Funktion gegeben.

Der im kalten Zustand planparallele Resonator verhält sich auf Grund von thermischen Effekten wie ein allgemein konfokaler Resonator mit 100 cm Krümmungsradius der Stirnflächen. Dies führt zu einer Strahlöffnung von etwa 1°, während die echte Divergenz bei 20' liegt.

Der zeitliche Einsatz der Laseremission ist wegen der räumlichen und zeitlichen Variation der Pumplichtverteilung eine Ortsfunktion im Strahlquerschnitt. Dies ist im Nah- und Fernfeld gleichermaßen zu beobachten.

Das elektromagnetische Emissionsspektrum wurde mit einer schnellen Photodiode und mit Meßempfängern in einem Frequenzbereich von 10 kHz bis 1 GHz analysiert. Das Spektrum der „spikes“ liegt zwischen 10 kHz und 1 MHz, während die Wechselwirkung der transversalen Moden zu Linien bei einigen 100 MHz führt.

## 1. 50 Hz-Rubinlaser

Mit gepulsten Quecksilber-Höchstdrucklampen als Pumplichtquelle gelingt es, Rubinlaser mit Impulsfolgefrequenzen von 40 – 120 Hz bei Zimmertemperatur zu betreiben<sup>1</sup>. Die weitgehend ideale Anpassung des Emissionsspektrums an die Absorptionsbänder des Rubins führt zu niedrigen Schwellenergien von 3 – 4 Ws; die geringe Elektrodenverdampfung bei hohem Gasdruck resultiert in einer Lebensdauer der Lichtquelle von 10<sup>6</sup> bis 10<sup>7</sup> Impulsen. Der Betrieb dieser Lichtquelle erfordert eine sorgfältig angepaßte Stromversorgung.

An einem für kommerzielle Zwecke entwickelten Gerät dieser Art für 50 Hz-Betrieb (Siemens) wurde der Zeitverlauf der Emission im einzelnen gemessen; die Stabilität und Reproduzierbarkeit wurde untersucht.

Der verwendete Rubin mit einer Dotierung von 0,035% Cr<sup>3+</sup> hatte einen Durchmesser von 2 mm bei 25 mm Länge; der Zylinderumfang war poliert. Die c-Achse des Kristalls war unter 60° zur Stabachse orientiert. Die beiden ebenen, planparallelen Endflächen waren mit dielektrischen Spiegeln von 98,5 und 95% Reflexion belegt. Der Rubin wurde rotationssymmetrisch in einem Ellipsoidspiegel nach<sup>2</sup>

gepumpt. Die Lichtquelle und der Kristall wurden mit Leitungswasser gekühlt.

## 2. Zeitverlauf und Stabilität der Gesamtemission

In Abb. 1 \* ist neben den etwa 2 ms langen Pumpimpulsen der Verlauf der Laseremission bei der höchstmöglichen Pumpleistung aufgezeichnet. Der Abstand zwischen den Pumpimpulsen von 20 ms ist groß gegen die spontane Lebensdauer der angeregten Chromionen, so daß jeder Impuls praktisch wie ein Einzelimpuls mit alleiniger Besetzung des Grundzustandes beginnt. Innerhalb eines Zeitintervalls von 900  $\mu$ s wird die Gleichbesetzung und Schwellinversion erreicht; die Laseremission folgt dann der Pumpleistung, bis diese auf den Wert der Schwellleistung gefallen ist. Der Laserimpuls ist 1,2 ms lang.

Abb. 2 zeigt Aufnahmen der Laseremission bei 4 verschiedenen Werten der mittleren Pumpleistung. Zur Unterdrückung der statistischen Modulation durch „spikes“ wurden die Kurven mit einer Zeitkonstanten von 100  $\mu$ s geglättet. Bei höherer Pumpenergie wird die Schwellinversion früher erreicht; die Emissionskurven überlagern sich ohne Anomalien<sup>3</sup>. Wegen des steilen Abfalls der Pumpleistung fällt der Endpunkt der Emission für alle Pumppegel

<sup>1</sup> D. Röss u. G. Zeidler, Electronics **39**, Nr. 18, S. 115 [1966].

<sup>2</sup> D. Röss, Appl. Optics **3**, 259 [1964].

\* Abb. 1 – 3 auf Seite 1398 a, b

<sup>3</sup> D. Röss, Laser-Lichtverstärker und -Oszillatoren, Akademische Verlagsges., Frankfurt/Main 1966, S. 285 – 291.



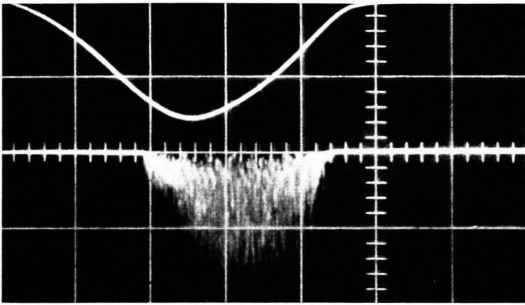


Abb. 1. 0,5 ms/cm; oben: Pumplicht, unten: Laseremission.

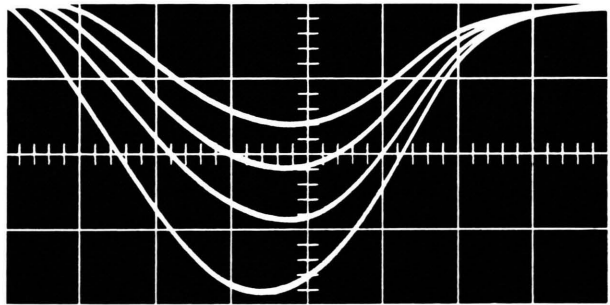


Abb. 2. 0,2 ms/cm; Laseremission bei 4 verschiedenen Pumppegeln, mit einer Zeitkonstante von  $100 \mu\text{s}$  geglättet.

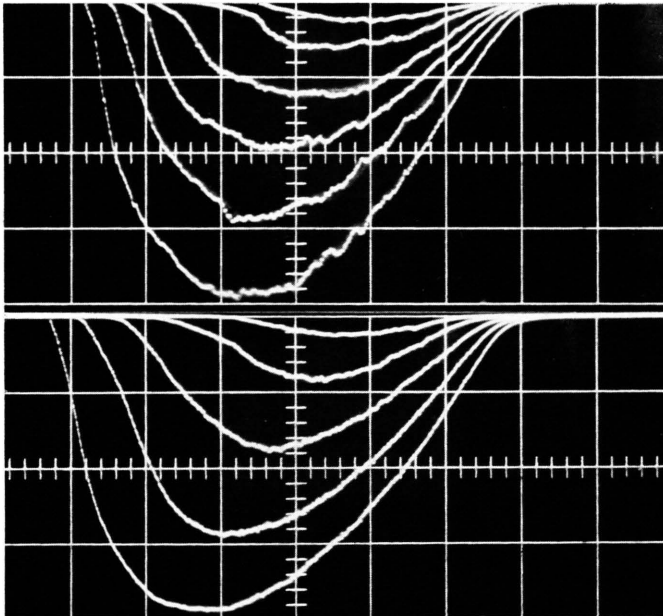


Abb. 5. Zeitverlauf der Emission für verschiedene Punkte von Nah- und Fernfeld, mit einer Zeitkonstante von  $50 \mu\text{s}$  geglättet, 0,2 ms/cm.

Abb. 5 a. Fernfeld, in der Strahlöffnung in 1 m Entfernung gemessen. Die maximale Kurve gibt den Zeitverlauf der Emission in Richtung der Resonatorachse an. Die nächste Kurve wurde in einer um  $14'20''$  dazu geneigten Richtung gemessen. Alle weiteren Kurven entsprechen Raumrichtung, die jeweils um  $3'40''$  zueinander geneigt sind.

Abb. 5 b. Nahfeld. Die maximale Kurve entspricht der Mitte der Kristalloberfläche, die nächste Kurve einem um 0,2 mm davon entfernten Meßpunkt. Alle anderen entsprechen Meßpunkten, die jeweils um 0,1 mm auseinander liegen.

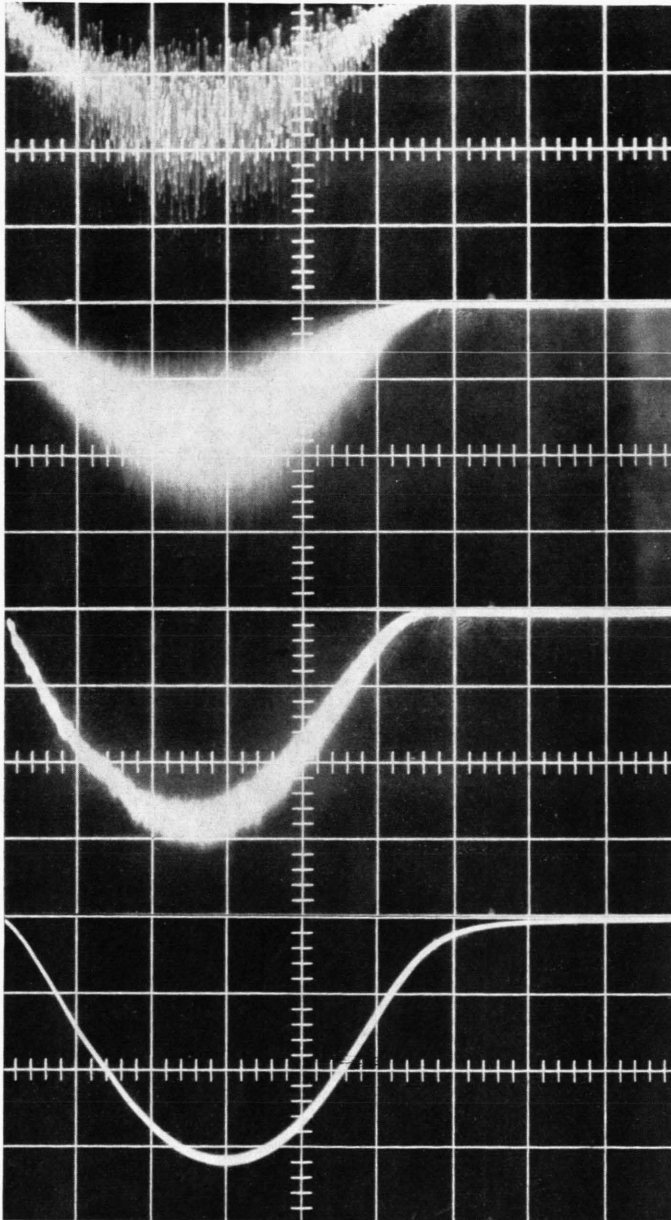


Abb. 3 a. Einzelimpuls.

Abb. 3 b. 250 Impulse übereinander.

Abb. 3 c. 250 Impulse, mit einer Zeitkonstante von  $5 \mu\text{s}$  geglättet.

Abb. 3 d. 250 Impulse, mit einer Zeitkonstante von  $100 \mu\text{s}$  geglättet.

Abb. 3. Zeitliche Stabilität.  $0,2 \text{ ms/cm}$ .

nahezu zusammen; das ist ein Zeichen dafür, daß die Spitzenpumpleistung groß gegen die Schwelleistung ist.

In den Aufnahmen von Abb. 3 wird die zeitliche Stabilität der Emission untersucht. Abb. 3 a zeigt einen Einzelimpuls; er ist stark durch die bekannten Relaxationsimpulse moduliert. Abb. 3 b zeigt in gleicher Weise die Überlagerung von 250 aufeinanderfolgenden Impulsen. Die Modulation ist im einzelnen nicht reproduzierbar. In Abb. 3 c und 3 d ist durch Zeitkonstanten von  $5 \mu\text{s}$  und  $100 \mu\text{s}$  dieser Schwankungsvorgang dezimiert worden. Man erkennt, daß die Emission bis auf die Relaxationsimpulse außerordentlich gut reproduzierbar in Zeitverlauf und Impulsenergie ist. Die in Abb. 3 d erkennbare restliche Schwankung der Spitzenleistung um  $\pm 2\%$  kann voll durch Netzspannungsschwankungen erklärt werden.

Interessant ist die Genauigkeit der Periodizität der Impulse. Für einen Punkt auf der Mitte der Anstiegsflanke wurde eine Schwankung um  $\pm 30 \mu\text{s}$  bei 1000 Impulsen beobachtet. Dies entspricht, bezogen auf den Impulsstand von 20 ms, einer Reproduzierbarkeit von  $\pm 1,5 \cdot 10^{-3}$ .

### 3. Nahfeld und Fernfeld der Emission

Der hohen zeitlichen Reproduzierbarkeit entspricht eine im Rahmen der Beobachtungsgenauigkeit völlig stabile Intensitätsverteilung im Nah- und Fernfeld.

In Abb. 4 a ist ein Querschnitt der Nahfeldverteilung auf der Kristalloberfläche, integriert über die Emissionsdauer, aufgezeichnet. Bei symmetrischer Orientierung liegt in der Stabmitte ein Maximum der Emission, die beidseitig in guter Näherung GAUSSISCH abfällt. Es treten keine markanten Maxima oder Minima auf. Dies ist bemerkenswert, weil die Emission aus der Superposition einer ganzen Zahl transversaler Moden besteht.

Abb. 4 b zeigt die zugehörige Fernfeldverteilung. Sie entspricht einem gesamten Öffnungswinkel von  $1^\circ$ . Dieser relativ große Wert setzt sich aus zwei Komponenten zusammen:

- a) der Divergenz der Laseremission bei Anregung transversaler Moden höherer Ordnung,
- b) einer endlichen Öffnung des Grundmode in dem durch thermische Effekte gekrümmten Resonator<sup>4</sup>.

Zur Elimination des zweiten, in der Praxis nicht weiter interessierenden Effektes wurde der Strahl zunächst mit 9 mm Durchmesser parallel gerichtet und dann das Fernfeld aufgenommen. Die zweite in Abb. 4 b angegebene Kurve kennzeichnet also die echte Divergenz des Strahls, die für 9 mm Durchmesser bei  $20'$  liegt.

Auch im Fernfeld ist die Verteilung grob GAUSSISCH, ohne ausgeprägte Extrema.

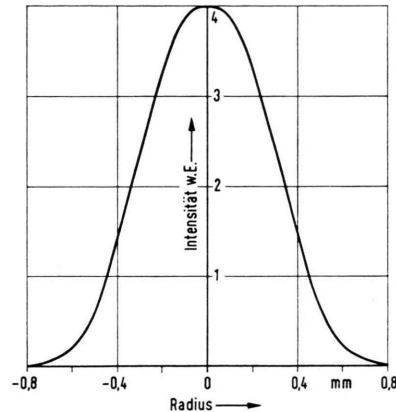


Abb. 4 a. Nahfeld des 2 mm-dicken Rubinstabs bei einem mittleren Pumpepegel.

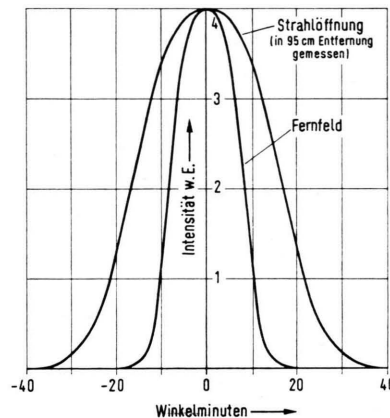


Abb. 4 b. Strahlöffnung und Fernfeld des durch thermische Effekte allgemein konfokal ausgebildeten Resonators.

### 4. Analyse der transversalen Modenzahl

Aus den gemessenen Werten der Strahlöffnung und der Nahfeldgröße kann nach den bekannten Beziehungen der optischen Resonatortheorie (siehe z. B.<sup>5, 6</sup>) auf die höchste transversale Ordnung der

<sup>4</sup> D. Röss, J. Appl. Phys. **37**, 3587 [1966].

<sup>5</sup> D. Röss<sup>3</sup>, S. 200—202.

<sup>6</sup> V. P. BYKOV u. L. A. VAINSHTEIN, Soviet Phys.-JETP **20**, 338 [1965].



schwingenden Moden geschlossen werden. Es sei  $x_m'$  der Radius des Nahfeldes,  $\xi_m$  die Öffnung des Mode mit der Ordnungszahl  $m$ .

In dem betrachteten, nominell ebenen, durch thermische Effekte gekrümmten Resonator ist der Krümmungsradius groß gegen die Resonatorlänge. Damit ist der Fleckradius nur unwesentlich größer als der Tailenradius in der Stabmitte und wir erhalten die einfache Beziehung:

$$2m + 1 = (2\pi/\lambda_0) x_m' \xi. \quad (1)$$

Aus den beobachteten Werten folgt eine Anregung von Moden bis zur transversalen Ordnung  $m = 16$ . Der thermische Krümmungsradius folgt zu  $R = 99$  cm.

Besonders auffallend ist, daß die Nahfeldverteilung der Superposition zahlreicher Moden gerade eine Gaussische Verteilung ergibt, wie sie dem Grundmode in einem homogen invertierten Material entspricht. Hier handelt es sich um eine zufällige Ähnlichkeit; im wesentlichen ist die radiale Abhängigkeit der Emission durch die Verteilung der Pumplichtdichte bestimmt.

Die Ergebnisse dieser Analyse sind in guter Übereinstimmung mit früheren Untersuchungen an kontinuierlich gepumpten Rubinlasern <sup>4</sup>.

### 5. Zeitabhängigkeit der Nahfeld- und Fernfeldverteilung

Die Pumplichtenergiedichte hat ein Maximum in der Stabmitte und fällt radial ab <sup>4</sup>. Dies folgt einmal aus der nichthomogenen Energiedichteverteilung des Quecksilberbogens, zum anderen aus Verzeichnungen im Pumpsystem und im Rubinstab.

Infolgedessen setzt zeitlich die Laserfunktion zuerst in der Stabmitte ein, dehnt sich dann radial aus und kontrahiert schließlich wieder.

Da in dem effektiv gekrümmten Resonator einem größeren Fleckradius im Nahfeld eine höhere transversale Ordnungszahl der Moden entspricht, pulsiert das Fernfeld im gleichen Rhythmus.

Dieses Verhalten ist in Abb. 5 \* dargestellt. Es sind, bei konstanter mittlerer Pumpleistung, die Zeitverläufe der Emissionen an verschiedenen Stellen im Nahfeld bzw. Fernfeld aufgezeichnet. Zur Unterdrückung der Spikes wurde mit einer Zeitkonstanten von 50  $\mu$ s gemittelt.

Der zeitliche Verlauf entspricht ganz dem oben beschriebenen Modell. Der zeitliche Verzug des Lasereinsatzes mit wachsendem Abstand von der Ellipsoidachse spiegelt die Ortsabhängigkeit der Pumplichtenergiedichte wider. Aus dem Leistungsverlauf folgt die integrierte Verteilung von Abb. 4 a. In den Fernfeldaufnahmen von Abb. 5 b sind reproduzierbare Sprünge zu beobachten, die jeweils dem Anschwingen einer neuen Modeordnung entsprechen <sup>7</sup>.

### 6. Überlagerungsspektrum

Das Spektrum der axialen Moden solcher Laser entspricht den früheren Messungen an kontinuierlich gepumpten Lasern <sup>4</sup>. Es treten 10–20 axiale Moden auf, deren Frequenz sich während eines Impulses durch die thermische Resonatorausdehnung über mehr als einen Modenabstand verschiebt.

Wir haben das Spektrum der Emission innerhalb der Bandbreite eines axialen Mode genauer untersucht. Dazu wurde das Ausgangssignal einer von

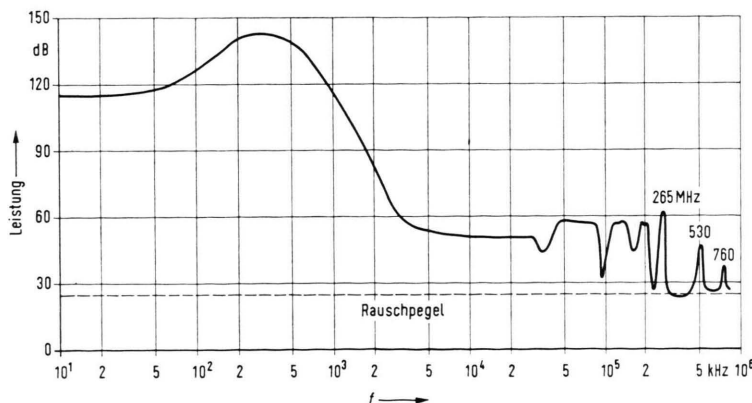


Abb. 6. Überlagerungsspektrum bei einem mittleren Pumpepegel, gemessen mit einer schnellen Photodiode und verschiedenen Empfängern.

<sup>7</sup> D. Röss, Z. Naturforsch. **20 a**, 1655 [1965].

\* Abb. 5 auf Seite 1398 a.

der gesamten Laserstrahlung getroffenen Photodiode mit Spektrumanalysator und Überlagerungsempfänger untersucht.

In Abb. 6 sind die wesentlichen Ergebnisse vereinfacht dargestellt. Im Bereich 50 kHz bis 1 MHz ist das Rauschspektrum durch die Komponenten der Spikemodulation gekennzeichnet. Weiter sind bei 265 MHz, 530 MHz und 760 MHz klar drei Überlagerungslinien erkennbar, die den Differenzfrequenzen der ersten Transversalmoden entsprechen. Aus dem nichtkonstanten Frequenzunterschied dieser Linien kann bereits geschlossen werden, daß der gegebene Resonator nicht identisch mit dem ideal ebenen sein kann.

Die Anteile im Bereich 10 – 200 MHz bedürfen noch der Erklärung; vielleicht entsprechen sie Mischfrequenzen von Moden mit konstanter Indexsumme,

deren Eigenfrequenzen infolge der Anisotropie des Resonators nicht entartet sind.

## 7. Schlußbemerkung

Der Betrieb unter wohldefinierten thermischen Verhältnissen führt zu einer für Festkörperlaser ungewöhnlichen Stabilität und Reproduzierbarkeit der Gesamt-Emission.

Wie insbesondere die Untersuchung der Zeitabhängigkeit im Nah- und Fernfeld zeigt, ist ein solcher Impulslaser hoher Modenzahl ein außerordentlich komplizierter Oszillator. Die Stabilität integraler Größen wird durch schnelle dynamische Ausgleichsvorgänge erzeugt, welche den zeitlichen Wechsel zwischen zahlreichen verschobenen axialen und transversalen Moden überdecken.

# Röntgenspektroskopische Untersuchung der chemischen Bindung in Oxiden

HANS-ULRICH CHUN und DIETER HENDEL \*

Institut für Physikalische Chemie der Universität Frankfurt a. M.

(Z. Naturforsch. 22 a, 1401–1407 [1967]; eingegangen am 3. Mai 1967)

This paper reports about the fine structure in the O–K-spectra of the oxides BeO, MgO, CaO, SrO, BaO, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NiO and ZnO. The spectra show the satellite lines  $\alpha_3$ ,  $\alpha_4$ ,  $\alpha_5$ ,  $\alpha_6$  on the short wavelength side of the main line  $\alpha_{1,2}$  and a shoulder  $\beta'$  on its long wavelength side. The wavelengths of all lines depend on the nature of the oxide. For the positions of the lines  $K_{\alpha_{1,2}}$  in the spectra no systematic relation to other data of the oxides is observed. On the other hand the distance of the  $\alpha_4$ -satellite from the  $\alpha_{1,2}$ -line decreases with increasing electronegativity of the metal atom in the oxide. This distance can be used as a measure for the ionic character of the metal-oxygen bond in these compounds.

Seit der ersten Untersuchung der komplexen Natur der RÖNTGEN-K-Linien durch SIEGBAHN und STENSTRÖM<sup>1</sup> ist bekannt, daß auf der kurzwelligen Seite der Diagrammlinie  $K_{\alpha_{1,2}}$ , die dem Übergang  $K \rightarrow L_{III,II}$  entspricht, eine Reihe von Satellitenlinien auftritt, die sich nicht in ein Niveauschema einordnen lassen und deren Ursprung bis jetzt noch nicht sicher geklärt ist. Diese Satellitenlinien tragen nach SIEGBAHN die Bezeichnungen  $\alpha'$ ,  $\alpha_3$ ,  $\alpha_4$ ,  $\alpha_5$ ,  $\alpha_6$ , wobei  $\alpha'$  die der Diagrammlinie  $K_{\alpha_{1,2}}$  am nächsten liegende Linie ist.

Einer Untersuchung von NORDFORS<sup>2</sup> zufolge unterscheiden sich bei Al-Metall und Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> die Wellenlängen und das Intensitätsverhältnis der Al–K-Satelliten  $\alpha_3$  und  $\alpha_4$ . BAUN und FISCHER<sup>3,4</sup> sowie DEMJOCHIN und SATSCHENKO<sup>5</sup> beobachteten bei Mg-, Al- und Si-Verbindungen ebenfalls einen Zusammenhang zwischen den Intensitätsverhältnissen der  $K_{\alpha}$ -Satelliten von Mg, Al, Si und der chemischen Bindung.

O'BRYAN und SKINNER<sup>6</sup> sowie TYRÉN<sup>7</sup> zeigten schon von längerer Zeit, daß auch bei Fluoriden und

\* Der experimentelle Teil dieser Untersuchung wurde im Rahmen der Diplomarbeit von D. HENDEL, Frankfurt a. M. 1967, ausgeführt.

<sup>1</sup> M. SIEGBAHN u. W. STENSTRÖM, Phys. Z. 75, 319 [1916].

<sup>2</sup> B. NORDFORS, Arkiv Fysik 10, 279 [1956].

<sup>3</sup> W. L. BAUN u. D. W. FISCHER, Advances X-Ray Analysis 8, 371 [1965].

<sup>4</sup> W. L. BAUN u. D. W. FISCHER, Spectrochim. Acta 21, 1471 [1965].

<sup>5</sup> W. F. DEMJOCHIN u. W. P. SATSCHENKO, Röntgenspektren und chem. Bindung, Vortr. intern. Sympos., Leipzig 1965; 58 [1966].

<sup>6</sup> H. M. O'BRYAN u. H. W. B. SKINNER, Proc. Roy. Soc. London A 176, 229 [1940].

<sup>7</sup> F. TYRÉN, Nova Acta Regiae Soc. Sci. Upsaliensis Ser. IV, 12, No. 1 [1940].