

grenzen abgestoßen und verläßt den Polykristall. Der Chlorausbau dürfte proportional der spezifischen Kornoberfläche erfolgen, was auf Grund des Übereinstimmens von Kurven über den analysierten Chlorgehalt (s. ⁵, S. 57) und der spezifischen Kornoberfläche in Abhängigkeit von der Temperdauer angenommen werden kann. Infolge dieses Chlorausbau nimmt die Dicke der an Chloratomen reichen Schicht an den Korngrenzen im Verlaufe der Temperung auch nicht zu, und der gemessene Kornwachstumsexponent ist derselbe wie beim Reinstselen.

Die von GOBRECHT, TAUSEND und PLÜMECKE ² gemessene Proportionalität zwischen elektrischer Leitfähigkeit und spezifischer Kornoberfläche konnte nicht reproduziert werden. Auf Grund der vorliegen-

den Messungen wird eher vermutet, daß eine Proportionalität zwischen der Ladungsträgerkonzentration und der spezifischen Kornoberfläche besteht. Von der Ladungsträgerkonzentration weiß man, daß sie bei kurzen Temperzeiten konstant bleibt und dann abnimmt (vgl. ⁵, S. 178). Die Proportionalität von Ladungsträgerkonzentration und spezifischer Kornoberfläche wird auch vom Eggertschen Leitfähigkeitsmodell ⁵, bei dem die freien Selenkettenenden an den Kornoberflächen die Akzeptoren darstellen, gefordert.

Anerkennung

Herrn Dr. HANS-PETER HEMPEL, Nürnberg, sowie den Mitarbeitern des Selenkreises am Physikalischen Institut der Universität Innsbruck möchte ich an dieser Stelle für die vielen hilfreichen Diskussionen danken.

Instabilitäten in der Emissionsverteilung farbstoffgeschalteter Rubinlaser

F. AUSENNEGG

Physikalisches Institut der Universität Graz

P. MÖCKEL

Forschungslaboratorium der Siemens AG München

(Z. Naturforsch. **26 a**, 1201—1205 [1971]; eingegangen am 24. März 1971)

Theoretische Überlegungen zeigen, daß die Emission eines RiesenimpulsLasers mit Farbstoffschalter bei einem kurzen Resonator in einzelne „Filament-Moden“ transversal nullter Ordnung zerfallen kann. Dies kommt dadurch zustande, daß die einzelnen Volumenelemente des Farbstoffschalters unabhängig voneinander den Resonator auf hohe Güte schalten können. Bei langen Resonatoren und beim Schalten mit aktiven Schaltern sollte dieser Effekt nicht auftreten. Es werden Experimente an einem Rubinlaser beschrieben, die diese Überlegungen bestätigen. Filament-Moden bedingen lokal hohe Strahlungsintensitäten und können dadurch zur Zerstörung optischer Bauteile im Resonator führen.

1. Einleitung

Die Möglichkeit, einen Rubinlaser durch Einbringen eines Farbstoffschalters in den Resonator zur Abgabe von Riesenimpulsen zu veranlassen, ist seit langem bekannt ¹⁻³. Der Farbstoff wird durch Absorption von Laserlicht ausgebleicht, wodurch die Verluste im Resonator abnehmen und die Intensität der Strahlung weiter zunimmt. Schließlich wird der Farbstoff für die Laserfrequenz völlig transparent (Maximum des Emissionsimpulses), um nach Abbau der Inversion im aktiven Material wieder in den ursprünglichen Zustand zurückzukehren.

Dieser Mechanismus funktioniert unabhängig für jedes Volumenelement der Farbstofflösung. Es ist daher a priori nicht erforderlich, daß der Farbstoffschalter über den gesamten Strahlquerschnitt öffnet, wenn schon ein lokales Ausbleichen genügen würde, den Laser mit geringer Dämpfung anschwingen zu lassen. Namentlich bei kurzen Resonatoren wird dies leicht möglich sein. In diesem Fall wird nicht mehr der gesamte zur Verfügung stehende Strahlquerschnitt zum Aufbau einer beugungsverlustarmen und daher stabilen Schwingungsform benötigt. Im folgenden wird rechnerisch und experimentell untersucht, unter welchen Bedingungen zahlreiche von-

¹ P. SOROKIN, I. J. LUZZI, J. R. LANKARD u. G. D. PETTIT, IBM J. Res. and Dev. **8**, 182 [1964].

² G. BRET u. F. GIREs, Appl. Phys. Letters **4**, 175 [1964].

³ P. SCHÄFER u. W. SCHMIDT, Z. Naturforsch. **19 a**, 1019 [1964].



einander unabhängige „Filament-Moden“ an Stelle einer sich über den ganzen Querschnitt des aktiven Materials erstreckenden Schwingungsform entstehen.

2. Theoretische Betrachtungen

Die Beugungsverluste an optischen Resonatoren wurden von FOX und LI⁴ rechnerisch untersucht. Sie geben einen Zusammenhang zwischen dem Beugungsverlust δ sowie dem Strahldurchmesser $2a$ und der optischen Resonatorlänge L_{opt} für den Fall $a^2 > L_{\text{opt}} \lambda$ (λ Wellenlänge) an. Entsprechende Angaben werden auch in anderen Werken gemacht^{5, 6}.

Allgemein wurde das Problem der Beugungsverluste von VAINSHTEIN gelöst⁷. Seine Berechnung ist in Abb. 1 für die Rubinlaserwellenlänge ($\lambda = 6943 \text{ \AA}$) und für den Fall des ebenen Fabry-Perot-Resonators graphisch dargestellt. Man erkennt aus dem Diagramm, daß bei einer Wellenlänge von 6943 \AA die Verluste in einem 20 cm langen Resonator bei Verringerung des Strahldurchmessers von 6 mm auf 1 mm von weniger als $0,01$ auf $0,09$ ansteigen, während sie bei einem 1 m langen Resonator im selben Fall von weniger als $0,01$ auf über $0,5$ anwachsen.

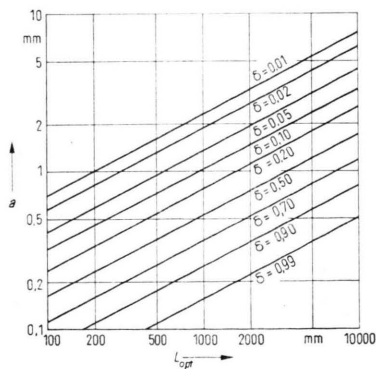


Abb. 1. Zusammenhang zwischen Strahlradius a und Spiegelabstand L_{opt} für verschiedene Beugungsverluste δ des TEM_{00} -Mode bei kreisförmigen ebenen Spiegeln. $\lambda = 6943 \text{ \AA}$.

Wird der über den Querschnitt gleichmäßig emittierende Mode geringfügig inhomogen gedämpft (z. B. durch Staubteilchen, Kondenswassertropfen, optische Inhomogenitäten in Resonatorbauteilen), so kann dies bei einem kurzen Resonator schon ausreichen, daß eine Vielzahl von Moden gleicher transversaler Ordnungszahl (TEM_{00}), die unabhängig

voneinander in den ungestörten Querschnittsbereichen schwingen, kleinere Gesamtverluste aufweist. Bei langen Resonatoren ($L_{\text{opt}} > 1 \text{ m}$, $2a = 6 \text{ mm}$) wird dies jedoch nicht mehr der Fall sein.

Bei einem leicht gestörten kurzen optischen Resonator sind somit die Voraussetzungen für einen Zerfall der über den Querschnitt einheitlichen Emissionsform in einzelne Emissionsbezirke gegeben, doch wird man davon zunächst nichts bemerken, weil bei zunehmender Inversion die schwach gedämpften Querschnittsbereiche ebenfalls sehr rasch anschwingen. Wird aber der eingangs beschriebene Farbstoffschalter als „Q-switch“ verwendet, so wird dieser bevorzugt in jenen Querschnittsbereichen öffnen, in denen eine stärkere Emission auftritt. Bei ständig zunehmender Konzentration des Farbstoffes wird schließlich der Punkt erreicht, an dem der Schalter bei schwächer emittierenden Bereichen gar nicht mehr öffnet, während er es bei stärker emittierenden gerade noch tut. Es tritt somit ein hundertprozentiger Emissionsunterschied zwischen nur schwach unterschiedlich gedämpften Querschnittsbezirken auf. Zwischen diesem räumlich wirkenden Selektionsmechanismus und der bekannten Frequenzselektion durch passive Farbstoffschalter⁸ besteht hiermit eine weitgehende Analogie.

Die vorstehende Abschätzung nach Abb. 1 gilt für den Grenzfall des ebenen Fabry-Perot-Resonators. Im Realfall bildet das aktive Material durch inhomogene Temperaturerhöhung während des Pumpvorganges eine thermische Linse, die den ursprünglich ebenen Resonator zu einem sphärischen Resonator verformt⁹. Da bei einem sphärischen Resonator die Beugungsverluste kleiner sind als bei einem ebenen Resonator mit gleichem Strahldurchmesser, sind im Experiment kleinere Filament-Modendurchmesser möglich, als bei gegebener Reflexion und Verstärkung aus Abb. 1 folgen.

Im Falle einer Güteschaltung durch aktive Elemente (Pockels-Zelle, mechanisch-optischer Schalter) ist der beschriebene Effekt nicht zu erwarten, weil diese Schalter unabhängig von der lokalen Emissionsstärke den gesamten Querschnitt öffnen, weshalb die etwas stärker gedämpften Bezirke – wenn auch weniger intensiv – an der Emission teilnehmen können.

⁴ A. G. FOX u. T. LI, Bell Syst. Techn. J. **40** (2), 453 [1961].

⁵ D. RÖSS, Laser, Akad. Verlagsges. Frankfurt (Main) 1966, S. 166.

⁶ KLEEN/MÜLLER, Laser, Springer-Verlag, Berlin 1969, S. 56.

⁷ I. A. VAINSHTEIN, Sov. Phys. JETP **17**, 709 [1963].

⁸ D. RÖSS, Z. Naturforsch. **20 a**, 696 [1965].

⁹ G. ZEIDLER, Z. Naturforsch. **22 a**, 909 [1967].

3. Experimente

Zur Überprüfung dieser Überlegungen wurden folgende Experimente durchgeführt: Ein Rubinlaser (Rubinstab $3'' \times 1/4''$ achsensymmetrisch durch rotationselliptisches Pumpspiegelsystem¹⁰ beleuchtet) wurde

- a) mit einem Farbstoffschalter,
- b) mit einer Pockels-Zelle,
- c) mit einer Kombination aus beiden

gütegeschaltet, wobei die Resonatorlänge variiert und die Nahfeldverteilung sowie der zeitliche Verlauf der emittierten Impulse beobachtet wurden. Damit in allen Fällen möglichst die gleichen Versuchsbedingungen herrschten, wurde ein einheitlicher Aufbau verwendet (vgl. Abb. 2), wobei im Fall a) die Pockels-Zelle spannungslos blieb, bzw. im Fall b) reines Lösungsmittel in die Farbstoffküvette gegeben wurde.

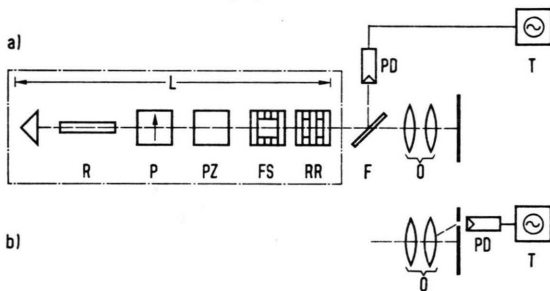


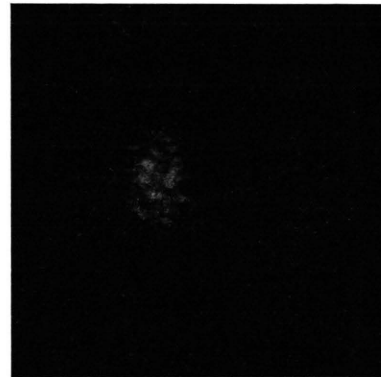
Abb. 2. Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung. a) Beobachtung des Nahfeldes und des Zeitverlaufs des Gesamtimpulses. b) Mit Blende zur Untersuchung des zeitlichen Emissionsverlaufs einzelner Filaments. R Rubinlaser, P Polarisator, PZ Pockelszelle, FS Farbstoffschalter, RR Resonanzreflektor, L geometrische Resonatorlänge, F Graufilter, O Optik zur Nahfeldabbildung, PD Photodiode F 4000 von ITT, T Oszillograph Tektronix 519.

Als Farbstoff wurde Kryptocyanin gelöst in Methanol (Konzentration $3,1 \mu\text{g}/\text{cm}^3$) verwendet. Bei einer Schichtdicke von 6 mm ergab sich eine Anfangstransmission von 16% bei der Wellenlänge des Rubinlasers. Zur Realisierung der geforderten „leichten optischen Störung“ des Resonators wurde ein Rubin minderer Qualität verwendet.

4. Meßergebnisse und Diskussion

Die Abb. 3 a und 3 b zeigen das Nahfeld für den Fall, daß nur der Farbstoffschalter eingesetzt wurde, Abb. 3 c zeigt das Nahfeld beim Schalten mit der Pockels-Zelle. Man erkennt, daß beim Einsatz eines Farbstoffschalters als Güteschalters ein Zerfallen des Nahfeldes in einzelne Emissionsflecken auftritt, deren Durchmesser mit wachsender Resonatorlänge zunimmt. Wird mit der Pockels-Zelle unter sonst gleichen Bedingungen geschaltet, tritt dieser Effekt nicht auf.

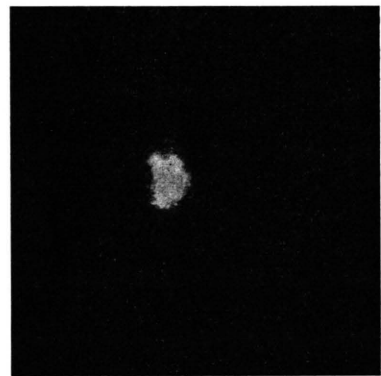
¹⁰ D. Röss, Appl. Opt. 3, 259 [1964].



3 a



3 b



3 c

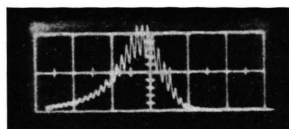
Abb. 3. Nahfeldaufnahmen. a) Farbstoffschalter, $L_{\text{opt}} = 440$ mm; b) Farbstoffschalter, $L_{\text{opt}} = 1470$ mm; c) Pockels-Zelle, $L_{\text{opt}} = 440$ mm.

Den gleichzeitig aufgenommenen zeitlichen Emissionsverlauf des gesamten Querschnittes zeigt Abb. 4. Man ersieht daraus, daß beim Auftreten von Filament-Moden (Resonatorlänge $L_{\text{opt}} = 440$ mm) der zeitliche Verlauf der Gesamtemission unregelmäßig wird (Abb. 4 a). Die Detailstruktur der Impulse än-

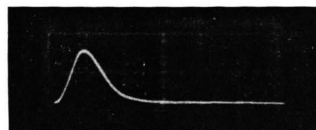
dert sich dabei von Impuls zu Impuls völlig statisch.



4 a



4 b



4 c

Abb. 4. Zeitlicher Emissionsverlauf. a) Farbstoffschalter, $L_{\text{opt}} = 440$ mm; Zeitmaßstab 20 ns/Einheit. b) Farbstoffschalter, $L_{\text{opt}} = 1470$ mm; Zeitmaßstab 100 ns/Einheit. c) Pockels-Zelle; Zeitmaßstab 20 ns/Einheit. Ordinate für a), b) und c) ca. 1 MW/Einheit.

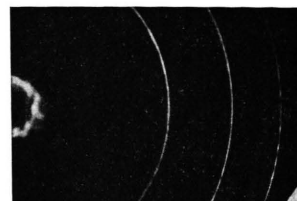
Im Fall eines langen Resonators ($L_{\text{opt}} > 1200$ mm) zeigt sich im Nahfeld nur noch ein einziger Emissionsbezirk (Abb. 3 b); gleichzeitig tritt häufig eine regelmäßige Gesamtstruktur im Zeitverlauf des emittierten Impulses auf (Abb. 4 b). Dies erklärt sich durch eine Phasenkopplung mehrerer axialer Moden, die sich in bekannter Weise in einer gleichförmigen Modulation des Lichtimpulses äußert (vgl. z. B. ¹¹). Die Bedingung, daß der Modulationsspitzenabstand gleich der Umlaufzeit des Resonators ist, ist gut erfüllt. Der mit der Pockels-Zelle geschaltete Laser zeigt dagegen unabhängig von der Resonatorlänge gleichmäßige Emission über dem Querschnitt (Abb. 3 c) und den üblichen Gaußschen Zeitverlauf des Impulses (Abb. 4 c).

Beim Schalten des Lasers mit einer Kombination aus einem schwach konzentrierten Farbstoffschalter ($c = 1,2 \mu\text{g}/\text{cm}^3$; Anfangstransmission 50% bei 6943 Å) und einer Pockels-Zelle erfolgt unabhängig von der Resonatorlänge gleichmäßige Emission über dem Querschnitt bei Gaußschem Zeitverlauf des Impulses. Für den kurzen Resonator ($L_{\text{opt}} = 440$ mm) ergibt die Untersuchung des Frequenzspektrums mit einem Fabry-Perot-Interferometer (Abstand zweier Ordnungen 7,5 GHz; Auflösungsvermögen 330 MHz)

beim Schalten ohne Farbstoffschalter eine Gesamtbreite der Emission von 1,4 GHz (entsprechend 4 axialen Moden; vgl. Abb. 5 a). Beim kombinierten Schalten mit Farbstoffschalter und Pockels-Zelle tritt nur noch ein axialer Mode auf (Bandbreite kleiner als das Auflösungsvermögen des Fabry-Perot-Interferometers; vgl. Abb. 5 b).



5 b



5 a

Abb. 5. Frequenzspektrum der Emission. a) Nur mit Pockels-Zelle geschaltet; b) mit Pockels-Zelle und Farbstoffschalter geschaltet. $L_{\text{opt}} = 440$ mm. Abstand zweier Ordnungen 7,5 GHz; Auflösungsvermögen 330 MHz.

Da die räumliche Emissionsverteilung im Filamentbetrieb über längere Zeit konstant blieb, konnte mit Hilfe einer Lochblende der zeitliche Impulsverlauf einzelner Emissionspunkte untersucht werden (Abb. 2 b). Dabei zeigten sich durchweg Impulse mit Gaußschem Zeitverlauf. Auf Grund dieses Sachverhaltes kann der unregelmäßige zeitliche Verlauf des Gesamtimpulses durch die Überlagerung einzelner Filament-Moden erklärt werden, wobei die Zahl der Moden und ihre zeitliche Lage zueinander von Impuls zu Impuls schwanken.

Aus dem bisher Beschriebenen geht hervor, daß beim Einsatz eines Farbstoffschalters als passiv wirkenden Güteschalters ein Zerfall des einheitlichen Nahfeldes in eine Anzahl kleiner Emissionsbereiche auftreten kann und daß dieser experimentelle Befund mit den entsprechenden theoretischen Überlegungen in gutem Einklang steht. Beim praktischen Betrieb eines auf diese Art gütegeschalteten Rubinlasers mit den üblichen Resonatorabmessungen ($L_{\text{opt}}/a < 150$) kann es demnach zu einem Filament-Modenbetrieb kommen, ohne daß dieser Umstand im Fernfeld sofort erkennbar sein muß, da die einzelnen Moden die gleiche transversale Ordnungszahl und somit gleiche Fernfeldverteilung haben und lediglich der Divergenzwinkel zunimmt. Da nunmehr einzelne Bereiche des aktiven Materials nicht mehr emittieren, nimmt die gesamte Ausgangsleistung des Lasers ab. Dies wird meist mit einer Erhöhung der Pumpleistung kompensiert, was aber auch zu einer – unter Umständen beachtlichen – Zunahme der Intensität in den Fila-

¹¹ P. W. SMITH, Proc. IEEE 58, 1342 [1970].

ments führt. Es treten dann Effekte wie die Beschädigung optischer Bauteile oder die Zersetzung des Farbstofflösungsmittels auf, die Lichtintensitäten von mindestens 10^9 W/cm² erfordern¹², obwohl nur eine *mittlere* Intensität von 10^7 bis 10^8 W/cm² im Resonator festgestellt wird.

¹² F. AUSSENEGG u. P. MÖCKEL, in Vorbereitung.

Auf Grund dieser Gegebenheiten erscheint eine Kombination aus einem aktiven und einem passiven Güteschalter (vgl. Kap. 3, Punkt c) als zweckmäßig, wenn bei einem Laser mit geringer Resonatorlänge außer einer hohen Ausgangsleistung auch die Selektion eines einzigen longitudinalen Mode durch den Farbstoffschalter gewünscht wird.

Das Verhältnis der Flußdichten thermischer und intermediärer Neutronen in der Umgebung von Neutronenquellen im Wasser

H. J. BORTFELDT und M. MATZKE

Mitteilung aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig und Berlin

(Z. Naturforsch. 26 a, 1205—1209 [1971]; eingegangen am 22. April 1971)

Measuring the cadmium-ratio as function of the distance from (α, n)-neutron sources in water we found a clearly distinguishable maximum followed by a small decrease with increasing distance. This behaviour can be explained by a calculation in diffusion approximation using special source terms.

1. Einleitung

Zur Ermittlung der Quellstärke von Neutronenquellen nach der Fermischen Wasserbadmethode¹⁻³ muß die räumliche Verteilung der thermischen Neutronenflußdichte nach Westcott $n_{th}^* v_0 = \varphi_{th}$ bekannt sein. Diese wird nach dem sogen. Cadmium-Differenz-Verfahren ermittelt, wozu die Aktivierungs-sonden sowohl ohne als auch mit Cadmium-Abdeckung am gleichen Ort bestrahlt werden. Der Quotient aus den Sättigungsaktivitäten beider Sonden wird Cadmium-Verhältnis genannt.

Wegen der relativ geringen Flußdichten, die von radioaktiven Neutronenquellen (z. B. Ra-Be- oder Am-Be-Quellen) im Wasser erzeugt werden, liefert die Auswertung der Sondenmessung in größeren Abständen von den Quellen besonders für die Cadmium-bedeckten Sonden zu große Unsicherheiten. Man verzichtet deshalb dort meistens auf diese Messung und ermittelt die Flußdichte thermischer Neutronen aus der Sättigungsaktivität der nicht mit Cadmium abgedeckten Sonde und aus einem extrapolierten Wert des Cadmium-Verhältnisses. Dabei wird vorausgesetzt, daß sich in dem betreffenden Bereich das Cadmium-Verhältnis nicht oder nur wenig mit dem Abstand von der Quelle ändert.

Diese Voraussetzung ist im allgemeinen dann gut erfüllt, wenn die mittlere freie Weglänge der primären Neutronen mit Energien von einigen MeV groß ist gegen die Diffusionslänge der thermischen Neutronen. In diesem Fall wird der räumliche Verlauf der Flußdichte der Neutronen im thermischen und im Resonanzbereich für größere Abstände hauptsächlich durch die räumliche Verteilung der Primärneutronen bestimmt. Das Cadmium-Verhältnis sollte in diesem Fall für Abstände von der Neutronenquelle, die groß gegenüber der mittleren freien Weglänge sind, einen konstanten Wert erreichen.

Wir haben im Rahmen von Quellstärkemessungen den Verlauf des Cadmium-Verhältnisses im Wasser für größere Abstände von (α, n)-Neutronenquellen untersucht. Es zeigte sich, daß das Cadmium-Verhältnis mit zunehmender Entfernung zunächst — wie zu erwarten — ansteigt, dann aber für größere Abstände schwach abfällt, bis es schließlich einen konstanten Wert erreicht. Ein solcher Abfall kann nach der einfachen Gruppendiffusionstheorie mit zwei oder drei Energiegruppen nicht erwartet werden, wenn man die Flußdichte φ_1 der Quellneutronen — wie es in der Diffusionstheorie üblich ist — als $\varphi_1 \sim \exp\{-r/L_1\}/r$ ansetzt, wobei r der Abstand von der Quelle und L_1 die Diffusionslänge der pri-

¹ K. E. LARSSON, Ark. Fys. 7, 323 [1954].

² C. PLANTA u. P. HUBER, Helv. Phys. Acta 29, 375 [1956].

³ A. DE TROYER u. G. C. TAVERNIER, Bull. Acad. R. S. Belg. 40, 150 [1954].