Zeitschrift: Helvetica Physica Acta

Band: 33 (1960)

Heft: VIII

Artikel: Über Maser-Wirkung im optischen Spektralgebiet und die Möglichkeit absolut negativer Absorption für einige Fälle von Molekülspektren (Licht-Lawine)

Autor: Houtermans, F.G.

DOI: https://doi.org/10.5169/seals-113107

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 10.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Über *Maser-Wirkung* im optischen Spektralgebiet und die Möglichkeit absolut negativer Absorption für einige Fälle von Molekülspektren (Licht-Lawine)

von **F. G. Houtermans**
Physikalisches Institut der Universität Bern

Als *Maser* werden Anordnungen bezeichnet, in welchen die Population eines energetisch höheren Zustands eines atomaren Systems pro Einheit des statistischen Gewichts absolut höher ist als diejenige in einem energetisch tieferen Zustand. In solchen Systemen ist durch den Elementarprozess der erzwungenen Emission (E 11) die Möglichkeit gegeben, das System zu kohärenten Schwingungen anzuregen oder zur Verstärkung eingestrahlter Frequenzen zu benützen. In allen Fällen setzt die *Maser*-Wirkung die Existenz eines extremen thermodynamischen Nicht-Gleichgewichts voraus, das durch Einstrahlung geeigneter Frequenzen in einem Hohlraum-Oszillatore, optischer Pumpen oder Elektronenstoss-Anregung bewirkt und durch eine für das Verhältnis der Populationen des höheren und tieferen Anregungszustandes massgebende relative negative Temperatur charakterisiert wird.

Während im Mikrowellenbereich die *Maser*-Technik bis zu hoher Vollkommenheit ausgearbeitet ist und zum Beispiel auf dem Gebiete der Radioastronomie bereits wichtige Anwendungen gefunden hat, ist die Anwendung der erzwungenen Emission auf das infrarote und optische Spektralgebiet erst kürzlich durch SCHAWLOW und TOWNES und andere (PRO 58, SCH 58) diskutiert worden.

Die erwähnten Arbeiten diskutieren Fälle von Atomspektren, vornehmlich der Alkalien oder Edelgase, in welchen die *Maser*-Bedingungen der Überpopulation eines energetisch höheren von zwei angeregten Zuständen durch optisches Pumpen oder durch geeignete Bedingungen der Elektronenstoss-Anregung oder durch Stösse zweiter Art eines Zusatzgases erreicht wird. Die Publikation dieser Arbeiten veranlasst mich, einige Überlegungen zu publizieren, die ich 1932 vorgeschlagen und seither mit zahlreichen Freunden und Kollegen diskutiert, aber aus technisch bedingten Gründen niemals zu publizieren Gelegenheit gefunden habe.

Es gibt nämlich in der Molekularspektroskopie eine Anzahl von Emissionsspektren von angeregten Molekülen, die *automatisch* die oben er-

wähnte *Maser*-Bedingung der absoluten Überpopulation eines Zustandes höherer Energie gegenüber dem Endzustand erfüllen.

Es handelt sich hier um Spektren, in denen im oben definierten Sinne der Fall einer praktisch unendlich hohen negativen *relativen* Temperatur zwischen zwei Zuständen automatisch realisiert ist.

Diejenigen Molekularspektren, für welche die *Maser*-Bedingungen automatisch erfüllt sind, sind die unter Emission eines Photons produzierten Spektren eines angeregten Moleküls, die zu einem Endzustand auseinanderfliegender Atome führen, deren relative kinetische Energie weit über der mittleren kinetischen Energie der in der Gasentladung vorliegenden Dissoziations- und translatorischen Gastemperatur liegt.

Es sind dies die in der Nomenklatur von FINKELNBURG (FI 38a) als Emissionsspektren der Typen I, II und III bezeichneten Spektren, die namentlich bei solchen Elementen auftreten, die im Grundzustand keine oder nur locker gebundene van-der-Waals-Moleküle bilden, aber relativ stark gebundene angeregte Molekülzustände besitzen. Es sind dies vor allem die Edelgase, die Erdalkalien sowie die Elemente Mg, Cd, Hg sowie das Triplettsystem des Wasserstoffs und der Alkalimoleküle.

Als typisches Beispiel eines solchen kontinuierlichen molekularen Zerfallsspektrums mag das 1865 von PLÜCKER und HITTORF (PL 1865) entdeckte H_2-Kontinuum dienen, das sich von λ 5000 Å bis 1200 Å mit einem Maximum bei 2500 Å erstreckt (FI 38a, S. 185) und als kontinuierliche Lichtquelle für Absorptionsmessungen im UV in der Wasserstofflampe vielfache Anwendung gefunden hat.

Nach der von WINAUS und STUECKELBERG (WI 28) gegebenen Deutung stellt das genannte grosse Wasserstoffkontinuum einen Übergang aus dem dem Triplettsystem angehörigen Zustand $1\,s\,\sigma\,2\,s\,\sigma\,{}^3\Sigma_g$ in den Zustand $1\,s\,\sigma\,2\,p\,\sigma\,{}^3\Sigma_u$ dar. Der letztgenannte Zustand ist jedoch nach dem Pauliprinzip nicht stabil, sondern ist repräsentiert durch zwei neutrale H-Atome im Grundzustand, die mit parallelem Spin mit einer relativen kinetischen Energie zwischen etwa 2 eV und etwa 8 eV auseinanderfliegen. Unter den für die Emission des Wasserstoffkontinuums in Frage kommenden Bedingungen hinsichtlich Druck und Temperatur kommen aber freie Atome, die sich mit solchen Energien und parallelem Spin aufeinander zu bewegen, praktisch überhaupt nicht vor, da die Population dieses Zustandes durch die Dissoziationstemperatur und die Translationstemperatur des Gases gegeben ist, die hinreichend niedrig gehalten werden können. Überdies wird die durch die Emission des Wasserstoffkontinuums den entstehenden neutralen H-Atomen erteilte Vorzugsenergie schon beim ersten Zusammenstoss dissipiert. Für alle praktischen Zwecke kann also die Population des Zustandes 1 (Fig. 1) vollkommen vernachlässigt werden, so dass eine echte optische Reabsorption zufolge

der Existenz der Einsteinschen Übergangswahrscheinlichkeit B_{12} vollkommen vernachlässigt werden kann. Die Population des Zustandes 2 relativ zu 1 lässt sich also durch eine praktisch unendlich hohe relative negative Temperatur beschreiben. Hingegen wird der Zustand 2 durch

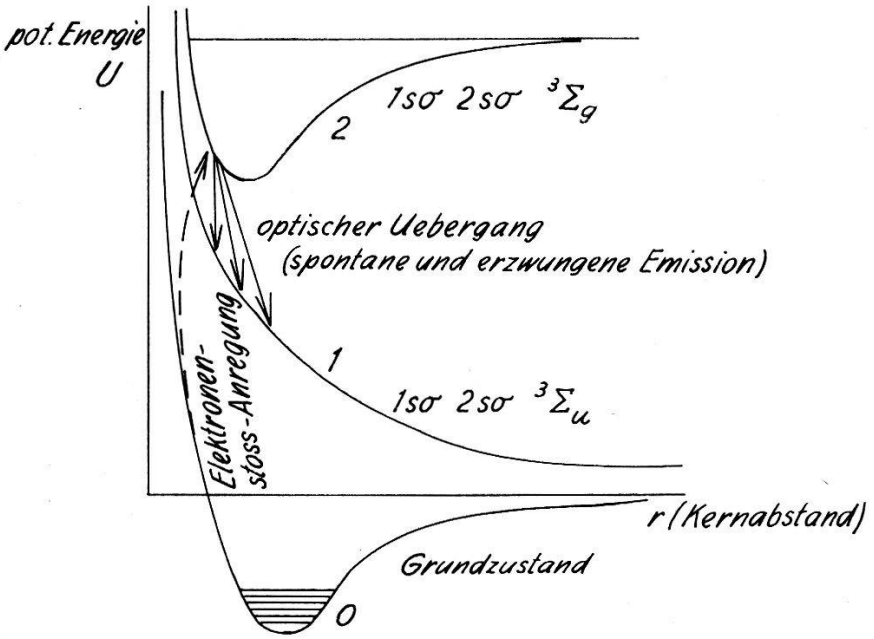

Fig. 1
Übergangsschema des kontinuierlichen H_2-Spektrums nach WINAUS und STUECKELBERG (Wi 28).

Elektronenstoss-Anregung aus dem gebundenen Grundzustand des Moleküls angeregt und unter normalen Bedingungen, solange die erzwungene Emission neben der spontanen Emission keine wesentliche Rolle spielt, durch spontane Emission mit der Wahrscheinlichkeit A_{21} entleert. Da, wie oben begründet, eine optische Reabsorption durch den Zustand 1 nicht stattfindet, werden Photonen der fraglichen Frequenz, die in ein das H_2-Kontinuum emittierendes Plasma eingesandt werden, aber natürlich auch die von diesem spontan emittierten Photonen erzwungene Emission der Moleküle des Zustandes 2 auslösen, die genau die Richtung des die erzwungene Emission auslösenden Lichtquants hat (E 11).

Ein in ein solches Plasma, das sich zum Beispiel in einer zylindrischen Röhre befinde, in axialer Richtung eintretender Lichtstrom der Intensität I_0 wird demnach nach einer durchstrahlten Schichtdicke x auf die Intensität

$$I(x) = I_0 \, e^{+\mu x} \tag{1}$$

anwachsen. Die Entwicklung einer solchen «Lichtlawine» findet erst dadurch ihre Grenze, dass der hier geschilderte Prozess der erzwungenen Emission selbst, die Dissoziations- und Translationstemperatur des

Plasmas, das sich ursprünglich in einem extremen Nicht-Gleichgewichtszustand befindet, soweit erhöht, dass sich schliesslich ein Boltzmannsches Gleichgewicht einstellt, in welchem echte Reabsorption des Zustandes (1) einsetzt.

Die spektrale Verteilung eines durch die negative Absorption einer «Lichtlawine» verstärkten Spektrums bildet das vollständige Gegenstück der bekannten Abflachung einer Spektralverteilung durch positive Reabsorption (vgl. zum Beispiel Mi 34, S. 104). Da in jedem Spektralintervall der Breite $d\nu$ der Koeffizient der erzwungenen wie der echten Absorption streng proportional der spontanen Emissionswahrscheinlichkeit im gleichen Spektralintervall ist, ist der negative Absorptionskoeffizient der spontanen Emissionswahrscheinlichkeit pro Frequenzeinheit streng proportional. Eine spektrale Verteilung der spontanen Emission mit einem, wenn auch flachen Maximum wird daher durch eine hinreichende Schichtdicke erzwungener Emission verstärkt zu einem Spektrum mit einem immer steiler werdenden Maximum, schliesslich zu einer «scheinbaren Spektrallinie» in seiner relativen Verteilung deformiert.

Wir sehen also (Fig. 1), dass ein Plasma, in welchem ein Zerfallsspektrum eines Moleküls aus dem Zustand 2 in Zustand 1 emittiert wird, automatisch die Bedingung eines 3-Zustands-*Masers* erfüllt. Aus dem Grundzustand 0 wird durch Elektronenstoss der Zustand 2 aufgefüllt, dessen Population damit pro Einheit des statistischen Gewichts diejenige des Zustands 1 bei weitem übersteigt, da dessen Population wegen seiner Kurzlebigkeit praktisch völlig zu vernachlässigen ist. Photonen des Übergangs $2 \rightarrow 1$ bewirken daher erzwungene Emission des Zustandes 2 und Auslösung einer Lichtlawine.

Um wenigstens eine rohe Abschätzung der Grössenordnung des negativen Absorptionskoeffizienten μ^- für einen Übergang $2 \rightarrow 1$ in einem solchen Plasma vorzunehmen, wollen wir folgende vereinfachende Annahmen machen: 1. Wir fassen alle Oszillations- und Rotationszustände des Elektronenzustandes 2 zu einem zusammen und ordnen diesem ein mit den Populationen gemitteltes statistisches Gewicht $\overline{G}_2$ zu. 2. Wir setzen das statistische Gewicht des Zustandes *1* $G_1 = \overline{G}_2$. 3. Wir vernachlässigen vollständig die im Plasma vorhandene Population N_1 des Zustandes 1 gegen diejenige N_2 des Zustandes 2, das heisst, wir beschreiben das Verhältnis der Populationen von 2 und 1, N_2/N_1 durch eine unendlich hohe relative negative Temperatur. 4. Wir approximieren die spektrale Verteilung der spontanen Emission von 2 nach 1 durch eine Rechtecksverteilung der «ganzen» Breite $\Delta\nu$, indem wir, wenn $I(\nu)$ die im Intervall zwischen ν und $\nu + d\nu$ ausgestrahlte Intensität dieses spontanen Übergangs bedeutet,

$$\int_0^\infty I(\nu)\, d\nu = I_0 \Delta\nu \tag{2}$$

schreiben, wo I_0 die Intensität bei derjenigen Frequenz ν_0 sei, bei welcher das Intensitätsmaximum des Spektrums der spontanen Emission $2 \to 1$ liegt. 5. Wir nehmen an, die ganze mittlere Breite des Emissionsspektrums $2 \to 1$, $\Delta\nu$, sei

$$\Delta\nu \ll \nu_0 \tag{3}$$

eine Voraussetzung, die zum Beispiel für das oben angeführte grosse H_2-Kontinuum sicher nicht gut erfüllt ist, aber für die später zu diskutierenden Kontinua einigermassen erfüllt ist. Unter den Voraussetzungen 1.–5. gestaltet sich die Abschätzung der Grössenordnung des Koeffizienten der negativen Absorption, bzw. der negativen Strahlungslänge der Lichtlawine Λ^-

$$\Lambda^- = \frac{1}{\mu^-} = \frac{1}{N_2\, \sigma^-} \tag{4}$$

überaus einfach.

Bezeichnen wir mit σ_n^- den Wirkungsquerschnitt eines Moleküls im Zustand 2 für erzwungene Emission, wenn seine Spektralverteilung durch die natürliche Linienbreite

$$\gamma = A_{21} \tag{5}$$

gegeben wäre, wo A_{21} die spontane Übergangswahrscheinlichkeit ist und

$$u = \frac{4\pi}{\gamma}(\nu - \nu_0) \tag{6}$$

dann ist

$$\sigma_n(u) = \sigma_{n,0} \cdot \frac{1}{1+u^2} \tag{7}$$

wo

$$\sigma_{n,0} = \frac{\lambda_0^2}{2\pi} \tag{8}$$

den Wirkungsquerschnitt der positiven Absorption von $1 \to 2$, sowie denjenigen der erzwungenen Emission $2 \to 1$ unter der Voraussetzung 2. in der Linienmitte bedeutet.

In Wirklichkeit ist die tatsächliche Breite des spontanen Emissions-Spektrums $2 \to 1$ nicht durch die natürliche Linienbreite, sondern durch die Verteilung der Eigenfunktion des Moleküls im Zustand 2, die von dessen Quantenzahlen abhängt, sowie durch die Verbreiterung gegeben, die durch die quantenmechanische Formulierung des Franck-Condon-Prinzips gegeben ist. Diese führt zum Beispiel für den Fall des Plücker-Hittorfschen Wasserstoffkontinuums zu einer Spektralbreite von vielen

tausend Ångström. In jedem Falle gilt jedoch gemäss der Voraussetzung 4., dass

$$\sigma_{21}^{-} \Delta\nu = \int_0^{\infty} \sigma_n(\nu)\, d\nu = \frac{\gamma}{4\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_n(u)\, du \tag{9}$$

$$\sigma_{21}^{-} \Delta\nu = \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \gamma \tag{10}$$

und

$$\sigma_{21}^{-} = \frac{\lambda_0^2 \gamma}{8\pi \Delta\nu} \tag{11}$$

ist unter den genannten Voraussetzungen der Wirkungsquerschnitt des Zustandes 2 für erzwungene Emission.

Nachdem wir somit einen überaus einfachen Ausdruck für σ_{21}^{-} gewonnen haben, wenden wir uns einer Abschätzung der Population N_2 des Zustandes 2 zu. Diese gewinnen wir aus der spontanen Emission $2 \rightarrow 1$. Ist nämlich W_{21} unter den im Plasma herrschenden Bedingungen die im ganzen Spektrum pro Sekunde und Kubikzentimeter spontane emittierte Leistung, so ist gemäss Voraussetzung 5.

$$W_{21} = h\, \nu_0\, L_{21} \tag{12}$$

wo L_{21} die Anzahl der pro Sekunde und Kubikzentimeter vom Plasma emittierten Lichtquanten des Spektrums $2 \rightarrow 1$ ist. Da nun

$$L_{21} = N_2 \cdot A_{21} = N_2\, \gamma \tag{13}$$

wird

$$N_2 = \frac{L_{21}}{\gamma} = \frac{W_{21}}{h\, \nu_0\, \gamma} \tag{14}$$

und die Ver-*e*-fachungslänge der Lichtlawine, Λ^-

$$\Lambda^- = \frac{1}{N_2\, \sigma_{21}^{-}} = \frac{8\pi hc}{\lambda_0^3} \cdot \frac{\Delta\nu}{W_{21}} \,. \tag{15}$$

Bemerkenswert an (15) ist, dass Λ^- sich als unabhängig von der spontanen Übergangswahrscheinlichkeit $A_{21} = \gamma$ erweist, da diese sowohl in W_{21} wie in σ_{21}^{-} eingeht und sich daher heraushebt.

Einige Fälle von Zerfallsspektren angeregter Moleküle. Eine gute Zusammenstellung der älteren Literatur über kontinuierliche Molekülzerfallsspektren, die in Emission auftreten, findet sich bei FINKELNBURG (FI 38a). Das erwähnte grosse Wasserstoffkontinuum, das hier zur Erläuterung des Bestehens der 3-Stufen-*Maser*-Bedingung diente, selbst, dürfte für eine praktische Realisierung zunächst wohl kaum in Frage kommen, weil seine effektive spektrale Breite $\Delta\nu$ so gross ist, dass Λ^- für praktische Zwecke zu hohe Werte annehmen würde, wenn es nicht gelingt, ganz spezielle Anregungsbedingungen, etwa bei hohen Drucken und in sehr kondensierten Entladungen, zu finden, die Λ^- hinreichend herabsetzen. Die Existenz eines analogen Kontinuums des H_2^+-Ions zwischen

5300 Å und 4150 Å ist noch umstritten (BR 29, HE 27, HU 31, STE 36). Eine weitere Möglichkeit bieten die Emissionskontinua der Edelgase, so das des Heliums zwischen 1100 Å und 600 Å (HO 30a, HO 30b, HEN 32), sowie ein langwelliges Kontinuum (WEI 31, TO 32, SP 31), dessen Deutung noch unsicher ist.

Interessant sind in diesem Zusammenhang gleichfalls die bei höheren Drucken auftretenden Kontinua der Edelgase Neon und Argon (MC 32, MC 33, JO 32) sowie besonders von Krypton und Xenon (FI 38b), doch ist auch hier zu wenig bekannt, um detaillierte Rechnungen zu ermöglichen. Das gleiche gilt von einigen Emissionskontinua der Alkalien, zum Beispiel dem des Natriumdampfes mit Maxima bei 4364 Å und 4526 Å (BA 31, KU 32). Am besten untersucht sind die Kontinua der Moleküle der zweiwertigen Metalle. Während die Molekülkontinua der Metalle Be_2, Mg_2, Ca_2, Sc_2 und Ba_2 wenig bekannt sind, liegen über diejenigen der Moleküle Zn_2, Cd_2 und vor allem Hg_2 eine ganze Anzahl von Arbeiten vor (Übersicht über die ältere Literatur FI 38a, p. 193ff.). Über die Emissionsbanden des Hg_2 gibt MROZOWSKI (MR 37a, MR 37b) eine gute Übersicht.

Um wenigstens für einen, wahrscheinlich recht ungünstigen Fall, eine numerische Abschätzung vorzunehmen, nehmen wir das Hg_2-Kontinuum in Emission mit dem Maximum bei $\lambda = 4850$ Å, das nach MROZOWSKI einer Emission $^3O_u \rightarrow 6\,^1S + 6\,^3Po$ [Nr. 1 seiner Nomenklatur, (FI 38a), p. 196, p. 204] entspricht.

Nehmen wir für dieses Spektrum $\lambda_0 = 4850$ Å, $\Delta\nu = 200$ Å und $W_{21} \approx 10^{-3}$ Watt/cm³ an, so ergibt sich $\Lambda^- \sim 1{,}3 \cdot 10^8$ cm.

Es ist nicht das Ziel dieser Arbeit, die Plasmabedingungen im einzelnen zu diskutieren, die eine eventuelle Realisierung eines optischen *Masers* unter Ausnützung molekularer Zufallsspektren ermöglichen könnten, sondern lediglich auf die bisher anscheinend nicht beachtete Tatsache aufmerksam zu machen, dass für diese Spektren die *Maser*-Bedingung automatisch erfüllt ist. Im übrigen ist es nicht nötig, die Länge eines Entladungsrohres von der Grössenordnung von Λ^- zu wählen, wenn dieses mit spiegelnden Wänden versehen wird, deren Reflexionsverlust kleiner ist als die durch negative Absorption bei einem Durchgang durch die Entladung gewonnene Verstärkung (PRO 58).

Für zahlreiche anregende Diskussionen über den Gegenstand dieser Arbeit danke ich in erster Linie W. PAULI, dessen Andenken diese Arbeit gewidmet ist, aber auch H. KOPFERMANN, K. KREBS, L. D. LANDAU, G. RUMER, R. ROMPE, R. JAECKEL, W. PAUL, W. FINKELNBURG, M. SCHÖN, H. FRIEDBURG, W. THIRRING, E. C. G. STÜCKELBERG und C. H. TOWNES. Herrn G. CVIJANOVICH danke ich für seine wertvolle Hilfe bei der Fertigstellung des Manuskripts.

Literaturverzeichnis

Ba 31 H. Bartels, Z. Phys. *73* 203 (1931).

Br 29 C. J. Brasefield, Phys. Rev. *33*, 925 (1929).

E 11 A. Einstein Ann. d. Physik. *37*, 832, (1912). T. Weber, Rev. Mod. Phys. *31* 681 (1959).

Fi 38a W. Finkelnburg, Kontinuierliche Spektren (Verlag J. Springer, Berlin 1938).

Fi 38b W. Finkelnburg und B. Vogel, Z. Phys. 999 (1939).

Hei 54 W. Heitler, Quantum Theory of Radiation, 3rd. ed. (1954).

Hen 32 H. J. Henning, Ann. Phys., Lpz. (5) *13*, 599 (A8) (1932).

Her 27 G. Herzberg, Ann. Phys. Lpz. (4) *84*, 553 (1927).

Ho 30a J. J. Hopfield, Phys. Rev. *35*, 1133 (1930).

Ho 30b J. J. Hopfield, Phys. Rev. *36* 784 (1930).

Hu 31 Y. Hukumoto, Phys. Rev. *37*, 1552 (1931).

Jo 32 P. Johnson, Phil. Mag. *13*, 487 (A98) (1932).

Ku 32 H. Kuhn, Z. Phys. *76* 782 (Na, K, Cs) (1932).

Mc 32 S. P. McCallum, L. Klatzow und J. E. Keyston, Nature, London 810 (A 98) (1932).

Mc 33 S. P. McCallum, L. Klatzow und J. E. Keyston, Phil. Mag. *16* 193 (A 98) (1933).

Mi 34 A. Mitchell and M. Zemansky, Resonance Radiation and Excited Atoms (Cambridge University Press 1934).

Mr 37a S. Mrozoswki, Z. Phys. *104* 288 (1937).

Mr 37b S. Mrozowski, Z. Phys. *106*, 458 (1937).

Pl 65 J. Plücker und J. W. Hittorf, Phil. Trans. roy. soc., London *155*, *22* (1965).

Pro 58 A. M. Prokhoyov, Jetp *34*, 1658 (1958).

Sp 31 R. C. Spencer, Phys. Rev. *38*, 618 (1931).

Sch 58 Schowlow und Townes, Phys. Rev. *112* 1940 (1958).

Ste 36 G. Steensholt, Z. Phys. *100*, 547 (1936).

To 32 J. S. Townsend und M. H. Pakkala, Phil. Mag. *14*, 418 (A98) (1932).

Wei 31 W. Weizel, Handbuch d. Exp.physik, Erg. Bd. *I*, Bandenspektren (1931).

Wi 28 J. G. Winaus und Stueckelberg, Proc. nat. Acad. Amer. *14*, 867 (1928).