

Institut für Angewandte Physik
der Universität Bonn

Wegelerstr. 8
53115 Bonn

Optisches Pumpen am Indium-Atom mit einem frequenzverdoppelten Titan-Saphir-Laser

von
Tobias Junglen

Diplomarbeit in Physik

angefertigt im
Institut für Angewandte Physik

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität
Bonn
im November 2000

Referent: Prof. Dr. Dieter Meschede
Korreferent: Prof. Dr. Ewald Paul

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Atomlithographie mit einer optischen Stehwelle	6
3	Kollimation eines Indium-Atomstrahls	9
3.1	Die transversale Kühlung	9
3.2	Computersimulation	11
3.3	Entwurf eines Kollimators	13
4	Laserquellen	14
4.1	Der Diodenlaser	14
4.2	Der frequenzverdoppelte Pulslaser	15
4.2.1	Titan-Saphir Laser	15
4.2.2	Autokorrelator	16
4.2.3	Frequenzverdopplung	18
4.2.4	Frequenzverdopplung eines modengekoppelten Lasers	21
4.2.5	Phasenanpassung	22
4.2.6	Phasenanpassung in Kaliumniobat ($KNbO_3$)	24
4.2.7	Kristallofen	27
4.2.8	Frequenzverdopplung Gaußscher Strahlen	29
4.2.9	Experimenteller Aufbau	32
4.2.10	Verdopplungseffizienz	35
4.2.11	Akzeptanzen	38

5	Optisches Pumpen am Indium-Atom	39
5.1	Das Element Indium	39
5.2	Hohlkathodenlampe	40
5.3	Optisches Pumpen in der Hohlkathodenlampe	42
5.3.1	Die Pumprate	44
5.3.2	Experimentelle Ergebnisse	45
6	Zusammenfassung und Ausblick	48
A	Die optischen Bloch-Gleichungen	50

Kapitel 1

Einleitung

Die Fortschritte bei der Miniaturisierung elektronischer Bauteile und Chips haben in den letzten Jahren zu einer rasanten Entwicklung in der Mikroelektronik geführt. Hierbei haben Verbesserungen bestehender Lithographietechniken sowie die Entwicklung neuer Verfahren einen entscheidenden Beitrag geleistet. Eine der jüngsten Techniken ist die Atomlithographie, die Atomstrahlen zur Erzeugung von Nanostrukturen auf Oberflächen verwendet. Das Prinzip der Atomlithographie besteht in der gezielten Deposition von Atomen aus einem niederenergetischen Atomstrahl auf einer zu strukturierenden Oberfläche. Diese Technik bietet gegenüber anderen Lithographieverfahren eine Reihe von interessanten Möglichkeiten. So stellt die Beugung in der Atomlithographie aufgrund der sehr kleinen de-Broglie Wellenlänge der Atome ($\leq 10^{-11}$ m) anders als bei Lichtlithographie-Verfahren keinen die Auflösung begrenzenden Faktor mehr dar. Des weiteren bietet die Atomlithographie die Möglichkeit, große Flächen in einem parallelen Schreibprozeß bei hohen Flußdichten zu strukturieren, was z.B. bei der Elektronenstrahlolithographie, die ebenfalls nicht beugungsbegrenzt ist, durch das Auftreten von Raumladungseffekten erschwert wird. Darüber hinaus können Strukturen direkt, unter Umgehung bisher üblicher Resisttechniken, auf Oberflächen aufgetragen werden.

Die Strukturierung in der Atomlithographie erfolgt durch Masken, die die Atome unmittelbar vor dem Auftreffen auf die Oberfläche durchqueren. In dem hier vorgestellten Experiment wird eine nahresonante optische Stehwelle als Maske verwendet. Die grundlegende Idee dieses Verfahrens besteht darin, daß die in einer nahresonanten, optischen Stehwelle wirkende Dipolkraft zur Fokussierung der Atome eines thermischen Atomstrahles genutzt werden kann. Je nach Verstimmung der Frequenz des Lichtfeldes zur Resonanzfrequenz des atomaren Übergangs werden die Atome in die Intensitätsmaxima oder -minima fokussiert. Auf diese Weise können Linienstrukturen mit einer Periodizität der halben Wellenlänge erzeugt

werden. Die ersten Experimente zur Atomlithographie mit einer optischen Stehwelle wurden 1992 in den Gruppen von Timp (AT&T Bell Laboratories) und Prentiss (Harvard University) [12] durchgeführt. Es wurde mit einem Natriumatomstrahl demonstriert, daß mit Hilfe einer optischen Stehwelle periodische, eindimensionale Strukturen mit Breiten unterhalb 50nm erzeugt werden können. Die ersten Experimente dieser Art wurden hauptsächlich mit Alkali-Elementen durchgeführt, da es für deren Resonanzwellenlängen bereits geeignete Laserlichtquellen gab und deren Termschema vergleichsweise einfach ist, was die Präparation des Atomstrahls mit Hilfe von Lasern wesentlich erleichtert. Die Verwendung interessanter Materialien, wie Metalle und Halbleiter, wird zumeist dadurch erschwert, daß diese Elemente vorwiegend Resonanzwellenlängen im blauen und violetten Spektralbereich haben, für die geeignete Laserquellen nur eingeschränkt zur Verfügung stehen. So gibt es bisher nur Experimente mit Chrom und Aluminium. Von besonderer Bedeutung ist die Erweiterung dieses Verfahrens auf Halbleiterelemente. In ein- bzw. zweidimensionalen Anordnungen könnte so die Zusammensetzung binärer Halbleiter elementselektiv periodisch verändert werden. Dieses Verfahren eignet sich auch zur Herstellung dreidimensionaler Strukturen, indem sukzessive Schichten mit unterschiedlicher Elementzusammensetzung und Strukturierung aufgebracht werden können. Eine in diesem Zusammenhang interessante Anwendung wäre die Herstellung von Kristallen, die eine periodische räumliche Modulation des Brechungsindex mit Periodizitäten im optischen Wellenlängenbereich aufweisen, den sogenannten photonischen Kristallen.

Bei dem in dieser Arbeit beschriebenen Experiment soll die Atomlithographie mit Indium-Atomen demonstriert werden. Das Element Indium ist gerade deshalb interessant, weil seine Verbindungen mit Elementen der fünften Hauptgruppe, wie z.B. Gallium und Arsen, Halbleitereigenschaften aufweisen. Dieses Experiment befindet sich in der Aufbauphase, und es wurde bisher eine Effusionszelle zur Bereitstellung eines Indium-Atomstrahles sowie eine Hohlkathode zur Spektroskopie am Indium in Betrieb genommen. Des weiteren gibt es bereits einen blauen Diodenlaser, der auf der Indiumresonanzlinie bei 410 nm emittiert, mit dem in dieser Arbeitsgruppe bereits erfolgreich Spektroskopie am Indium betrieben wurde. Der nächste Schritt ist die transversale Kühlung des Atomstrahles, da die transversale Geschwindigkeitskomponente im Atomstrahl die Strukturbreite und den Kontrast entscheidend limitiert. Die Kühlung erfolgt durch die Anwendung spontaner Lichtkräfte. Damit die Kühlung effizient ist, müssen die Atome zyklisch angeregt werden können. Es muß also ein geschlossener atomarer Kühlzyklus präpariert werden. Der geschlossene Übergang vom $5^2P_{3/2}$ -Niveau zum $5^2D_{5/2}$ -Niveau ($\lambda = 325$ nm) würde sich im Prinzip als Kühlübergang eignen, jedoch fehlt hier ein geeigneter Laser. Daher wird angestrebt, den Übergang vom $5^2P_{1/2}$ -Niveau zum $6^2S_{1/2}$ -Niveau als Kühlübergang

zu präparieren. Da die Atome vom $6^2S_{1/2}$ -Niveau auch in das $5^2P_{3/2}$ -Niveau übergehen können, muß der Kühlzyklus mit Hilfe eines Rückpumpasers ($\lambda = 451$ nm), der die Atome aus dem $5^2P_{3/2}$ -Niveau in das $6^2S_{1/2}$ -Niveau zurückpumpt, wieder geschlossen werden. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Bereitstellung einer breitbandigen, bei $\lambda = 451$ nm emittierenden Laserquelle, die für die Präparation des Zwei-Niveau-Systems benötigt wird. Mit dieser Laserquelle soll anschließend optisches Pumpen am Indium-Atom nachgewiesen werden.

Kapitel 2

Atomlithographie mit einer optischen Stehwelle

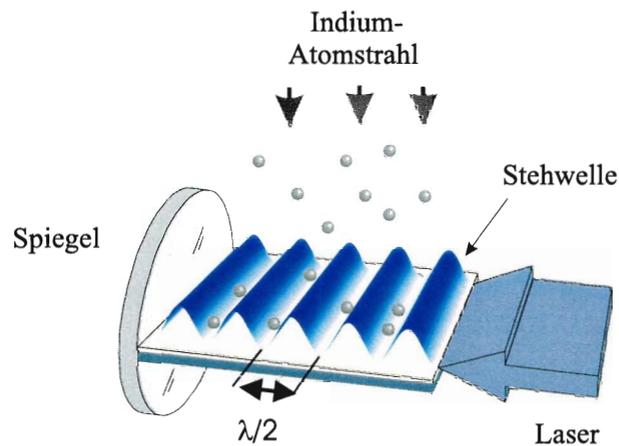


Abbildung 2.1: Erzeugung eindimensionaler Strukturen durch Fokussierung in einer Stehwelle

Das Ziel des in dieser Arbeit beschriebenen Experimentes ist die Demonstration der Atomlithographie mit Indium, wobei eine optische Stehwelle als Maske benutzt wird. Bei diesem Verfahren wird ein thermischer Atomstrahl durch Lichtfelder strukturiert und auf einer Oberfläche abgeschieden. Die grundlegende Idee besteht darin, die Dipolkraft in einer nahresonanten, optischen Stehwelle zur Manipulation eines kollimierten, thermischen Atomstrahles zu nutzen. Die Stehwelle wirkt auf die Atome wie ein Feld aus Zylinderlinsen mit einer Periodizität von $\lambda/2$. Auf einem unmittelbar hinter der Stehwelle angebrachten Substrat können somit periodische Linienstrukturen mit einer Periodizität von ebenfalls $\lambda/2$ erzeugt werden (Abb. 2.1). Die Fokussierung durch die Dipolkraft kann mit einem einfachen klassischen Modell be-

schrieben werden: Eine nahresonante, elektromagnetische Stehwelle induziert in den Atomen einen elektrischen Dipol. Durch die Wechselwirkung dieser oszillierenden, elektrischen Dipole mit dem magnetischen Feld der Stehwelle, wirkt eine resultierende Kraft auf die Atome, deren Richtung von der Phase des Dipols bezüglich des Lichtfeldes abhängt. Für diese Kraft gilt:

$$\text{Kraft} = \text{Dipolmoment} \cdot \nabla \text{Feldstärke}$$

Ist die Frequenz des Lichtfeldes gegenüber der Resonanzfrequenz des atomaren Überganges rotverstimmt (blauverstimmt), so werden die Atome in die Intensitätsmaxima (-minima) der Stehwelle beschleunigt.

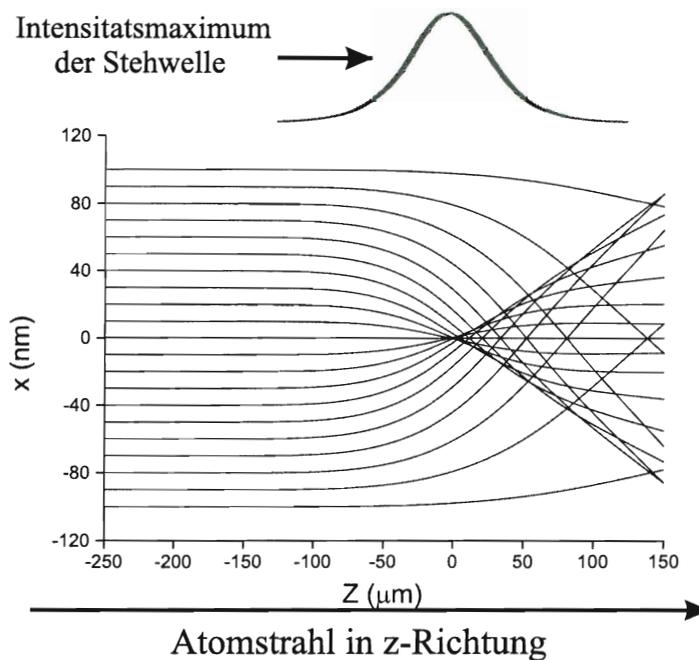


Abbildung 2.2: Einfluß der Dipolkraft auf die Bewegung der Atome

Der Einfluß der Dipolkraft in einer optischen Stehwelle auf die Bewegung der Atome ist in Abb. 2.2 dargestellt. Hier werden die Trajektorien von Indium-Atomen mit einer Longitudinalgeschwindigkeit von 500 m/s simuliert, die ein Intensitätsmaximum des Stehwellenfeldes durchlaufen. Dabei wird die Bewegung der Atome klassisch durch die Integration der Newtonschen Bewegungsgleichungen berechnet, was aufgrund der im Vergleich zu den Dimensionen der Stehwelle ($\lambda = 205 \text{ nm}$) kleinen de Broglie Wellenlänge der Atome (etwa 10^{-11} m) gerechtfertigt ist. Die Atome werden in Richtung der Intensitätsmaxima ($z = 0$) beschleunigt und bewirken dort eine Erhöhung der atomaren Flußdichte.

8KAPITEL 2. ATOMLITHOGRAPHIE MIT EINER OPTISCHEN STEHWELLE

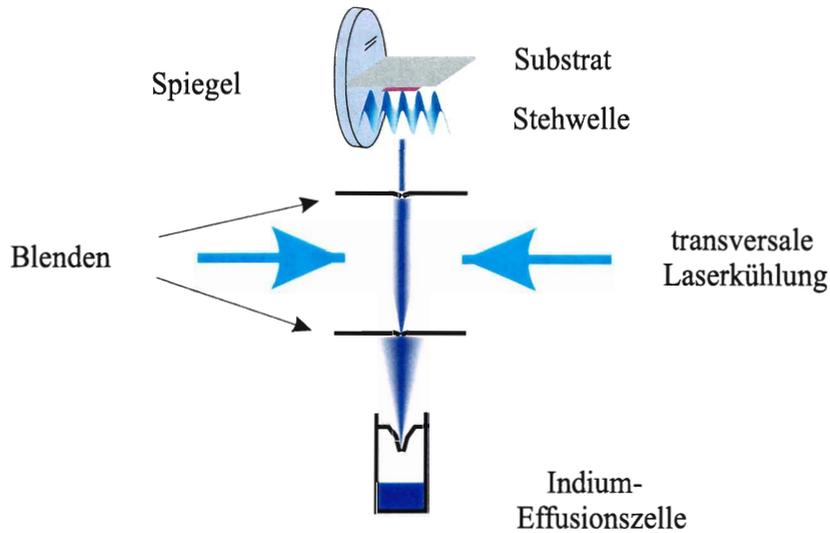


Abbildung 2.3: Aufbau eines Atomlithographie-Experimentes mit Indium

Abb. 2.3 zeigt den schematischen Aufbau des geplanten Atomlithographie-Experimentes mit Indium. Im unteren Teil des Bildes sieht man die Effusionszelle, aus deren Öffnung ($\varnothing = 1 \text{ mm}$) ein thermischer Atomstrahl mit einem Fluß von etwa $10^{12} \text{ Atomen}/(\text{s}\cdot\text{mm}^2)$ entweicht. Die Temperatur in der Effusionszelle beträgt dabei 1200° C . Da der Strahl noch sehr divergent ist, wird er zunächst durch eine Blende ($\varnothing = 500 \mu\text{m}$) vorkollimiert. Nach dieser Blende soll der Atomstrahl mit Hilfe von Lichtkräften transversal gekühlt und somit kollimiert werden. Die transversale Kühlung ist von großer Bedeutung, da die Auflösung des Verfahrens durch die verbleibende transversale Geschwindigkeit begrenzt wird. Darüber hinaus trägt sie auch zu einer Erhöhung des Atomflusses bei. Die transversale Kühlung am Indium-Atom wird im nächsten Kapitel ausführlich behandelt.

Nachdem der Strahl die Kühlzone und eine weitere Blende ($\varnothing = 1 \text{ mm}$) passiert hat, gelangt er zur optischen Stehwelle, in der die Atome fokussiert werden bis sie schließlich auf ein Substrat auftreffen.

Kapitel 3

Kollimation eines Indium-Atomstrahls

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Strahlkollimation erläutert. Des Weiteren wird hierzu eine Computersimulation vorgestellt. Schließlich wird ein Konzept für die Kollimierung eines Indium-Atomstrahls behandelt.

3.1 Die transversale Kühlung

Die Atome, die aus einer Effusionszelle entweichen, haben eine mittlere Geschwindigkeit von etwa $\bar{v} \approx 500$ m/s. Je nach Öffnungswinkel Θ des Atomstrahles können transversale Geschwindigkeiten von $v_t = v \cdot \sin \Theta$ auftreten. In Abb. 2.3 ist zu erkennen, daß zur Kollimation sowohl Blenden als auch Lichtkräfte verwendet werden. Die Blenden dienen zur Vorkollimation, ihre Öffnungen dürfen nicht zu klein sein, da dies den Fluß der Atome erheblich verringert. Die transversale Kühlung erfolgt nach dem Prinzip der eindimensionalen Dopplerkühlung. Die Atome wechselwirken mit einem Lichtfeld, das aus gegenläufigen überlagerten Laserstrahlen gleicher Frequenz besteht. Die Absorptionsraten bezüglich der Photonen aus den beiden gegenläufigen Laserstrahlen mit den Wellenvektoren \vec{k}_i lauten für $I \ll I_{sat}$:

$$\gamma_i = \frac{s_0 \gamma / 2}{1 + s_0 + [2(\delta + \vec{k}_i \cdot \vec{v}) / \gamma]^2} \quad s_0 = I / I_{sat} \quad (3.1)$$

wobei γ die Linienbreite des Überganges, δ die Verstimmung des Lasers und $\vec{k}_i \cdot \vec{v}$ die Dopplerverschiebung ist. Ist die Frequenz des Laserlichtes gegenüber der Resonanz des atomaren Überganges rotverstimmt, so absorbieren bewegte Atome aufgrund

der Dopplerverschiebung mehr Photonen aus dem der Bewegungsrichtung entgegengesetzten Laserstrahl. Bei jeder Absorption wird die transversale Bewegung des Atomes aufgrund des Photonenimpulses gebremst, so daß sich folgende resultierende Kraft auf das Atom ergibt:

$$\vec{F} = \hbar \vec{k} \cdot (\gamma_1 - \gamma_2) \quad (3.2)$$

Um eine effektive Kühlung zu erreichen, müssen möglichst viele Absorption-Emission-Zyklen durchlaufen werden. Die spontane Emission führt hingegen zu einem Heizeffekt, da der Rückstoß der spontan emittierten Photonen statistisch in alle Raumrichtungen verteilt ist. Der daraus resultierende Impulsübertrag ist jedoch im zeitlichen Mittel gleich Null.

Damit ein Atom möglichst viele Anregungen erfahren kann, muß ein geschlossenes atomares Zwei-Niveau-System, ein sogenannter Kühlübergang, präpariert werden. Hierzu betrachtet man den für die Atomlithographie wichtigen Teil des Termschemas für das Indium-Atom in Abb. 3.1.

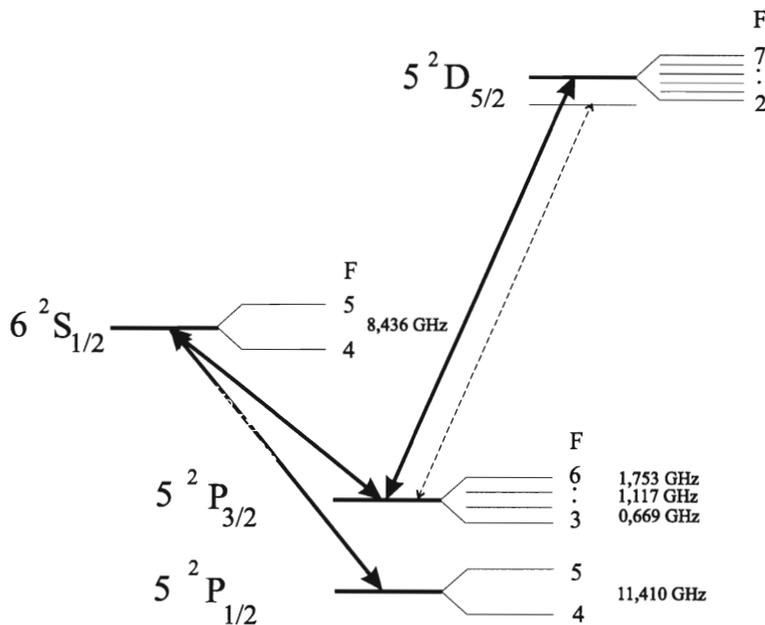


Abbildung 3.1: Termschema des Indium-Atoms mit den für die Atomlithographie relevanten Übergängen und der Hyperfeinstrukturaufspaltung der spektroskopierten Übergänge

Es ist leicht zu sehen, daß der Übergang von $5^2P_{3/2}$ ($F = 6$) zu $5^2D_{5/2}$ ($F = 7$) ein geschlossenes Zwei-Niveau-System darstellt. Hierzu würde allerdings Laserlicht der Wellenlänge $\lambda = 325 \text{ nm}$ benötigt. Da es jedoch bislang keine leistungsstarken Laserquellen bei dieser Wellenlänge gibt, muß auf andere Weise ein Kühlübergang präpariert werden.

Daher betrachtet man den Übergang von $5^2P_{1/2}$ ($F = 4$) zu $6^2S_{1/2}$ ($F = 5$), der als möglicher Kühlübergang dienen könnte. Dieser Übergang kann mit einem blau emittierenden Diodenlaser betrieben werden. Dieses System ist jedoch nicht geschlossen, da Atome vom Hyperfeinstrukturzustand $F = 5$ des $6^2S_{1/2}$ -Niveaus sowohl in die Hyperfeinstrukturzustände $F = 4, 5, 6$ des $5^2P_{3/2}$ -Niveaus, als auch in den Hyperfeinstrukturzustand $F = 5$ des $5^2P_{1/2}$ -Niveaus zerfallen können. Um dieses System zu schließen, müssen die Atome von dort durch optisches Pumpen wieder dem Kühlübergang zugeführt werden. Als Rückpumpulaser für die Atome im $5^2P_{3/2}$ -Niveau ist ein bei $\lambda = 902$ nm emittierender modengekoppelter Titan-Saphir Laser eingeplant, dessen Licht frequenzverdoppelt wird. Durch die große spektrale Breite der Pulse müßte es möglich sein, alle Hyperfeinstrukturzustände des $5^2P_{3/2}$ -Niveaus mit nur einem Laser zu entleeren. Als Rückpumpulaser für die Atome im Hyperfeinstrukturzustand $F = 5$ des $5^2P_{1/2}$ -Niveaus dient ein weiterer blau emittierender Diodenlaser. Die verwendeten Laserquellen werden im nächsten Kapitel gesondert behandelt. Für die entsprechenden Übergangswahrscheinlichkeiten A_i gilt:

$$\begin{aligned} 6^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{1/2} & : A_1 = 0,56 \cdot 10^8 s^{-1} \\ 6^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2} & : A_2 = 1,02 \cdot 10^8 s^{-1} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Daraus läßt sich die natürliche Lebensdauer des $6^2S_{1/2}$ -Niveaus berechnen:

$$\tau = 6,33 \text{ ns} \quad (3.4)$$

3.2 Computersimulation

Um die Effizienz der transversalen Kühlung abschätzen zu können, wurde die Doppler-Kühlung des Atomstrahles anhand eines stark vereinfachenden Modells simuliert. Experimentelle Parameter dieser Monte-Carlo-Simulation sind sowohl die Verstimmung als auch die Leistung des Laserfeldes und die Blendengeometrie.

Die Simulation beschreibt das Verhalten der Atome im Laserfeld wie folgt: Am Kühlprozeß sind nur drei Niveaus beteiligt, die in der Realität den Niveaus $5^2P_{1/2}$, $5^2P_{3/2}$ und $6^2S_{1/2}$ entsprechen. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung wird also völlig vernachlässigt. Bei dem Laserlicht, welches die Atome anregt, wird zwischen einem Dauerstrich-Laser für den Kühlübergang $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$, und einem Pulslaser als Rückpumpulaser für den Übergang $5^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ unterschieden. Jedes Atom bekommt zu Beginn eine Gauß-verteilte longitudinale und transversale Geschwindigkeitskomponente statistisch zugewiesen. Das Laserfeld wird durch die Lichtfelder von Kühl- und Rückpumpulaser simuliert, die von beiden Seiten eingestrahlt werden.

Die Wechselwirkung eines Atoms mit dem Feld des Dauerstrich-Lasers wird simuliert, indem für die jeweilige Position und transversale Geschwindigkeit des Atoms die Absorptionsrate in Bezug auf das Lichtfeld berechnet wird. Anhand der Absorptionsrate wird entschieden, aus welchem der gegenläufigen Laserstrahlen das Atom ein Photon absorbiert. Bei jeder Absorption nimmt das Atom einen Photonenimpuls auf und es befindet sich im Niveau $6^2S_{1/2}$. Die spontane Emission wird simuliert, indem die Atome zunächst einen statistisch verteilten Rückstoß erfahren und anschließend statistisch gewichtet auf die Niveaus $5^2P_{1/2}$ oder $5^2P_{3/2}$ verteilt werden. Befindet sich das Atom im $5^2P_{3/2}$ -Zustand, so wird es alle 12,5 ns, was der Repetitionsfrequenz des Puls lasers entspricht, in den $6^2S_{1/2}$ -Zustand angeregt und somit wieder dem Kühlübergang zugeführt. Auch bei dieser Anregung nimmt das Atom einen Photonenimpuls auf. Dieser Vorgang wiederholt sich solange, bis das Ende der Kühlstrecke erreicht ist. Die transversale Geschwindigkeitsverteilung vor und nach der Kühlstrecke ist in Abb. 3.2 zu sehen. Es ist zu erkennen, daß die transversalen Geschwindigkeitskomponenten hinter der Kühlstrecke deutlich abgenommen haben. Die Verstimmung des Kühllasers zum atomaren Übergang beträgt in diesem Fall 12 MHz bei einer Leistung des Kühllasers von 5 mW. Die Länge der Kühlstrecke beträgt 5 cm.

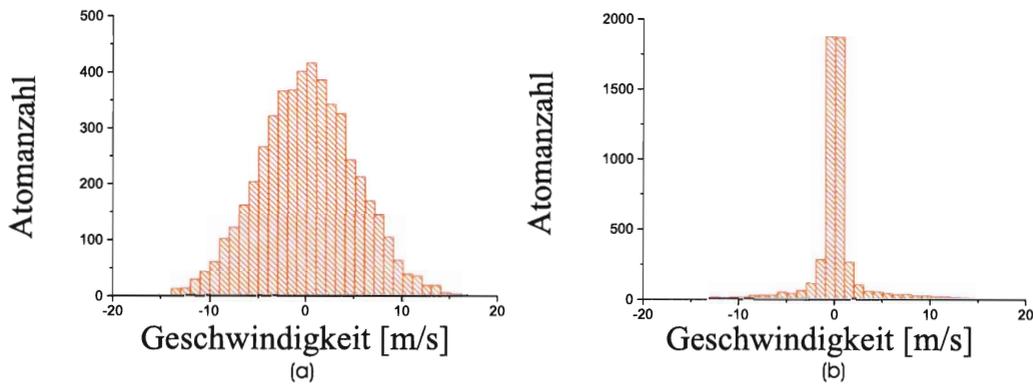


Abbildung 3.2: Transversale Geschwindigkeitsverteilung der Atome vor (a) und nach (b) der transversalen Kühlung.

In dieser Simulation wird davon ausgegangen, daß das Lichtfeld des Kühllasers entlang der gesamten Kühlstrecke eine Leistung von 5 mW besitzt. Der in diesem Experiment eingeplante Diodenlaser kann diese Leistung jedoch nicht über eine so große Kühlstrecke erbringen, wenn sein Strahl aufgeweitet wird. Daher muß eine Kühlaufbau gewählt werden, der auch bei niedrigen Laserleistungen geeignet ist. Im folgenden Kapitel wird ein solcher Aufbau vorgestellt, der sich bereits bei anderen Arbeitsgruppen bewährt hat [7].

3.3 Entwurf eines Kollimators

In Abb. 3.3 ist der Strahlkollimator abgebildet, wie er in diesem Experiment eingesetzt werden soll.

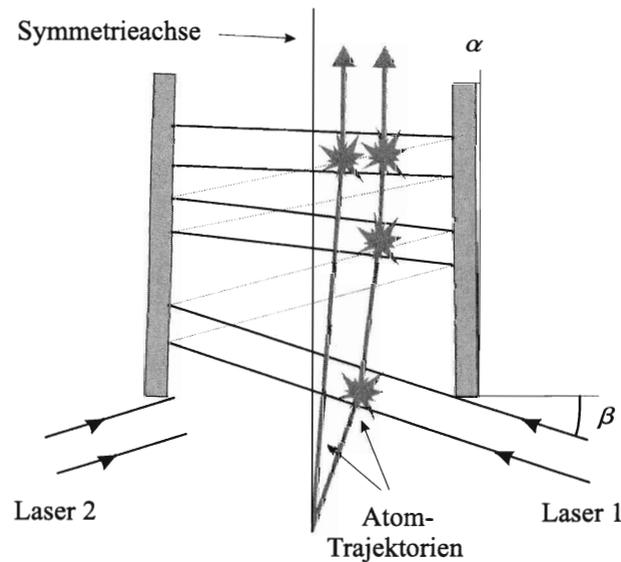


Abbildung 3.3: Entwurf eines Kollimators

Der Kollimator besteht aus zwei Spiegeln, die jeweils um einen kleinen Winkel α gegeneinander geneigt sind. Der Atomstrahl verläuft entlang der Symmetrieachse. In diese Anordnung werden aus entgegengesetzten Richtungen zwei kollimierte Laserstrahlen symmetrisch eingekoppelt, so daß es an den Spiegeln zu Mehrfachreflexionen kommt. Bei jeder Reflexion nimmt der Winkel zwischen den Laserstrahlen und der Ebene senkrecht zum Atomstrahl um den Betrag von 2α ab. Die Laser sind genau auf die Resonanz des atomaren Überganges abgestimmt, was nach der Gleichung (??) dazu führt, daß Atome, die sich senkrecht zum Strahl bewegen, die größte Anregung erfahren. Mit Hilfe der geneigten Spiegel kann erreicht werden, daß die Strahlen über einen großen Bereich senkrecht zum Atomstrahl verlaufen, so daß die Atome entlang der ganzen Kühlstrecke angeregt werden können. Auf diese Weise werden die Atome entlang der ebenen Wellenfronten der Strahlen geführt [7]. Mit dieser Anordnung können selbst Atome, die unter einem großen Eintrittswinkel einlaufen, effizient gekühlt werden, da sie von Beginn an abgelenkt werden, während Atome, die unter kleinen Eintrittswinkeln einlaufen und nur wenig Ablenkung benötigen, erst später beeinflusst werden. Die Vorgänge im Kollimator sind in Abb. 3.3 dargestellt, wobei wegen der besseren Übersichtlichkeit nur zwei Strahlen eingezeichnet sind.

Kapitel 4

Laserquellen

Bei der Betrachtung des Termschemas für das Indium-Atom erkennt man, daß zur Präparation eines geschlossenen Zwei-Niveau-Systems zwei Laserquellen im blauen Spektralbereich benötigt werden. Für den atomaren Übergang bei $\lambda = 410$ nm gibt es seit kurzem leistungsfähige Laserdioden, mit denen in dieser Arbeitsgruppe bereits erfolgreich Spektroskopie am Indium-Atom betrieben wurde [8]. Im folgenden Abschnitt werden kurz die Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Diodenlasers vorgestellt.

Den Hauptteil dieses Kapitels stellt die Frequenzverdopplung des gepulsten Titan-Saphir Lasers dar. Durch die Frequenzverdopplung ist es gelungen, in den Wellenlängenbereich von $\lambda = 451$ nm zu gelangen, für den es bislang noch keine direkt emittierenden Laserquellen gibt.

4.1 Der Diodenlaser

Bei dem verwendeten Gerät handelt es sich um ein Diodenlasersystem der Firma TuiOptics, welches bei einer Wellenlänge von $\lambda = 410$ nm emittiert. Die optische Ausgangsleistung liegt bei 5 mW, und die Linienbreite beträgt etwa 10 MHz [8].

Die Laserfrequenz kann über die Diodentemperatur, den Injektionsstrom und über ein externes Reflexionsgitter in Littrow-Anordnung verändert werden. Die Variation der Diodentemperatur dient in erster Linie zur groben Einstellung des Wellenlängenbereiches. Schnelles Durchstimmen über einen Wellenlängenbereich kann über das Verkippen des Reflexionsgitters mit Hilfe eines Piezoelementes erreicht werden. Durch das periodische Verkippen ändert sich sowohl der Abstand zwischen Gitter und Laserdiode als auch der Winkel. Beides hat einen Einfluß auf die Wellenlänge. Da diese Variationen nicht aufeinander abgestimmt sind, kommt es häufig zu Modensprüngen, die die Durchstimmbarekeit einschränken. Um diese Modensprünge zu

verhindern, wird zusätzlich eine “feed-forward“-Schaltung genutzt, wobei ein zur Piezospaltung proportionaler Strom zum Injektionsstrom addiert wird. Hierdurch läßt sich die Abstimmbarkeit über einen Bereich von etwa 20 GHz ausdehnen. In Abb. 4.1 wird ein Absorptionsspektrum für den Übergang $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ vorgestellt, welches an einer Hohlkathodenlampe (siehe Kap. 5) aufgenommen wurde. Hier läßt sich der modensprungfreie Abstimmbereich gut erkennen.

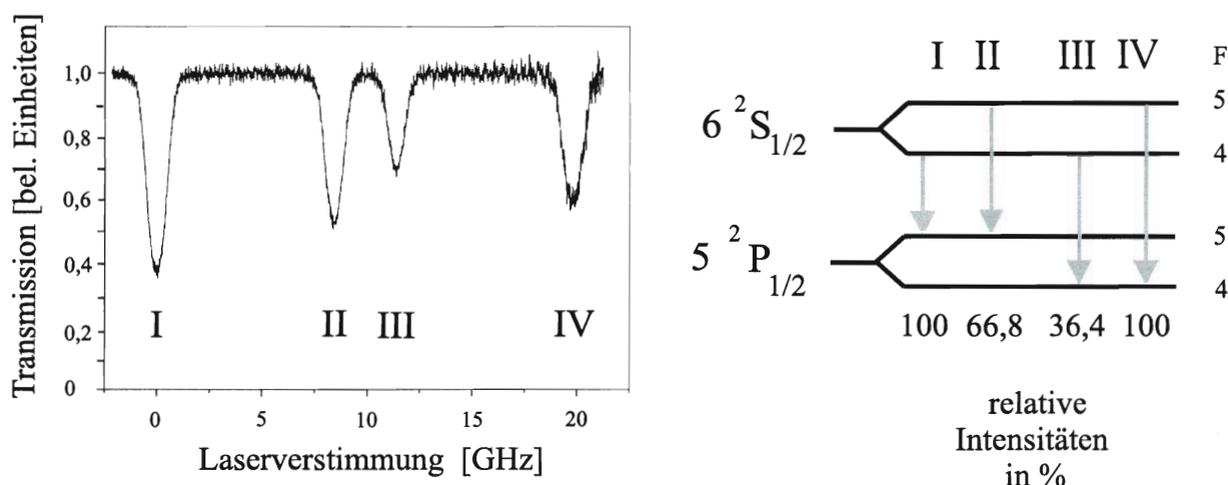


Abbildung 4.1: Aufnahme des Absorptionsspektrums für den Übergang $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ an der Hohlkathodenlampe

4.2 Der frequenzverdoppelte Puls laser

In diesem Kapitel wird der Aufbau einer Frequenzverdopplung für einen modengekoppelten Titan-Saphir Laser beschrieben. Durch eine Frequenzverdopplung ist es möglich, Laserlicht der Wellenlänge $\lambda = 451 \text{ nm}$ zu erzeugen, für die es bislang noch keine direkt emittierenden Laserquellen gibt. Es ist anzunehmen, daß der Puls laser mit seinem breiten Verstärkungsprofil und der damit verbundenen großen spektralen Breite der Pulse in der Lage ist, alle Hyperfeinstruktur-niveaus des $5^2P_{3/2}$ -Zustands zu entleeren.

4.2.1 Titan-Saphir Laser

Bei dem in diesem Experiment verwendeten Titan-Saphir (Ti-Sa) Laser handelt es sich um das Modell TSUNAMI der Firma Spectra Physics mit dem zugehörigen

Pumplasersystem MILLENIA X. Der TSUNAMI ist ein modengekoppelter Pulslaser, der sowohl in Femto- als auch in Pikosekundenkonfiguration betrieben werden kann. Für dieses Experiment ist jedoch nur die Pikosekundenkonfiguration von Interesse.

Der mit Ti^{3+} -Ionen dotierten Al_2O_3 -Kristall wird von einem $Nd : YVO_4$ Laser der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm optisch gepumpt. Die Pumpleistung liegt bei 10,5 Watt. Aufgrund des breiten Verstärkungsprofils ist es möglich, den Laser über einen Spektralbereich von 680 bis 1100 nm unter Verwendung verschiedener Optiken durchzustimmen. Seine Ausgangsleistung liegt dabei zwischen 0,2 und 2 Watt.

Zur Wellenlängenselektion wird ein drehbar gelagertes Drei-Platten-Lyotfilter verwendet. Aufgrund des großen Verstärkungsprofils existieren im Laserresonator sehr viele longitudinale Moden, deren Frequenzen im Frequenzspektrum einen Abstand von $c/2L$ haben, wobei L die Länge des Laserresonators ist. In einem modengekoppelten Laser werden diese longitudinalen Moden durch einen Akusto-Optischen-Modulator (AOM) in Phase gebracht und somit gekoppelt. Wenn die Moden in Phase sind, so entsteht durch konstruktive Interferenz ein Lichtpuls, der mit der Frequenz $c/2L$ im Resonator umherläuft. Der AOM funktioniert wie ein Schalter, der nur dann öffnet, wenn der Puls ankommt. Die Pulsrepetitionsrate beträgt 80 MHz, was zu einer Pulsdauer von 12,5 ns führt.

Die in den optischen Komponenten auftretende Dispersion wird durch ein Gires-Tournois-Interferometer (GTI) ausgeglichen. Das GTI verhindert somit die Verbreiterung der Pulse durch Dispersion.

Die gesamte Anordnung der optischen Komponenten befindet sich in einem Gehäuse, welches bei Bedarf mit Stickstoff gespült werden kann. Eine Stickstoffspülung ist beim Betrieb des Lasers bei Wellenlängen im Bereich von 880 bis 980 nm erforderlich, da es hier zu Sauerstoff- oder Wasserabsorptionen kommen kann, die den Laserprozeß beeinträchtigen. Da für dieses Experiment Licht der Wellenlänge $\lambda = 902$ nm von besonderem Interesse ist, muß der Laser permanent mit Stickstoff gespült werden. Die Ausgangsleistung des Lasers bei dieser Wellenlänge beträgt etwa 1 Watt.

4.2.2 Autokorrelator

Für das Experimentieren mit einem Pulslaser ist die Pulsform bzw. die Pulsbreite von großer Bedeutung. Das übliche Hilfsmittel zur Messung von Femto- oder Pico-sekundenpulsen ist ein Autokorrelator. In Abb. 4.2 ist der Aufbau des verwendeten Gerätes dargestellt.

Der Aufbau eines Autokorrelators ähnelt dem eines Michelson-Interferometers. Ein einlaufender Puls wird durch einen Strahlteiler in zwei gleiche Teile aufgespalten. Einer der beiden Strahlen durchläuft die rotierende Spiegelanordnung. Durch die Rotation wird dieser Teilstrahl gegenüber dem anderen periodisch linear verzögert.

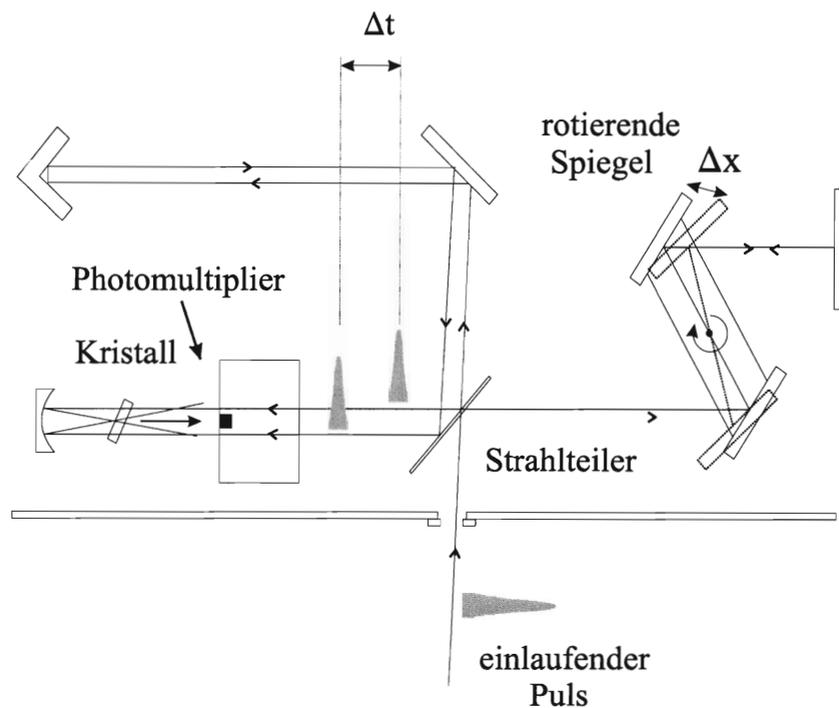


Abbildung 4.2: Aufbau eines Autokorrelators

Der Autokorrelator übersetzt so Unterschiede Δx in der optischen Weglänge in die zeitliche Verzögerung Δt . Beide Teilstrahlen werden wieder zusammengeführt und in einem nichtlinearen Kristall überlagert. Die Intensität der daraus resultierenden zweiten Harmonischen ¹ wird mit einem Photomultiplier gemessen. Die Effizienz der zweiten Harmonischen ist proportional zum Ausmaß der Pulsüberlappung im Kristall. Mit Hilfe eines Oszilloskops kann man die Intensität in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen den beiden Pulsen darstellen. Durch die Faltung eines Pulses mit sich selbst (daher Autokorrelation) ergibt sich eine Korrelationsfunktion, die unmittelbar mit der Pulsbreite verknüpft ist.

¹In dem nichtlinearen Kristall findet eine Frequenzverdopplung (nichtlinearer Prozeß zweiter Ordnung) der einlaufenden Strahlen statt. Das hieraus resultierende Licht mit der doppelten Frequenz ist die zweite Harmonische Oberwelle

4.2.3 Frequenzverdopplung

Im folgenden Teil werden kurz die theoretischen Grundlagen der Frequenzverdopplung in nichtlinearen optischen Medien behandelt.

Nichtlineare Polarisation und Suszeptibilität zweiter Ordnung

Ein lineares dielektrisches Medium wird durch eine lineare Abhängigkeit $P(t) = \epsilon_0 \chi E(t)$ zwischen der Polarisationsdichte $P(t)$ und der elektrischen Feldstärke $E(t)$ charakterisiert, wobei mit ϵ_0 die elektrische Feldkonstante im Vakuum, und mit χ die elektrische Suszeptibilität beschrieben werden.

Ein nichtlineares dielektrisches Medium wird durch eine nichtlineare Abhängigkeit zwischen den Größen $P(t)$ und $E(t)$ charakterisiert. Hierzu wird die Polarisationsdichte $P(t)$ in Potenzen der elektrischen Feldstärke $E(t)$ entwickelt [11]:

$$P(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \dots] \quad (4.1)$$

Die Größen $\chi^{(n)}$ sind die Suszeptibilitäten n-ter Ordnung. Für den Fall einer monochromatischen ebenen Welle mit der Feldstärke

$$E(t) = E e^{-i\omega t} + c.c. \quad (4.2)$$

erhält man für die nichtlineare Polarisation zweiter Ordnung:

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 [2\chi^{(2)} E E^* + (\chi^{(2)} E^2 e^{-2i\omega t} + c.c.)] = P_{dc}^{(2)} + P_{2\omega}^{(2)} \quad (4.3)$$

Der erste Term $P_{dc}^{(2)}$ führt nicht zu einer elektromagnetischen Strahlung, sondern er beschreibt die Erzeugung eines statischen elektrischen Feldes im Kristall. Diesen Effekt nennt man auch optische Gleichrichtung. Der zweite Term beschreibt eine elektromagnetische Welle mit der Kreisfrequenz 2ω .

Im allgemeinen Fall hängen die nichtlinearen Suszeptibilitäten von der Frequenz des elektromagnetischen Feldes ab und werden zu komplexen Tensoren, die die komplexen Amplituden der elektrischen Felder \vec{E} und der Polarisation \vec{P} in Beziehung bringen. Für die i-te Komponente des nichtlinearen Anteils der Polarisation zweiter Ordnung gilt:

$$P_i^{(2)}(\omega = \omega_m + \omega_n) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(mn)} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m + \omega_n; \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) \quad (4.4)$$

Die Notation (nm) steht für eine Summation über die Frequenzkomponenten ω_m und ω_n , bei der die Summe $\omega = \omega_m + \omega_n$ erhalten bleibt.

Suszeptibilitätstensor

Die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung ist ein Tensor dritter Stufe mit 27 Komponenten. Aus den jeweiligen Eigenschaften der verwendeten optischen Medien ergeben sich oft gewisse Symmetrien, die zu einer wesentlichen Vereinfachung der Tensoren führen. Die in der Praxis am häufigsten vorkommende Symmetriefform ist die Kleinman-Symmetrie [3].

Sie tritt auf, wenn die optischen Frequenzen wesentlich geringer sind als die niedrigsten Resonanzfrequenzen des optischen Mediums. Unter diesen Bedingungen ist das Medium annähernd verlustfrei, und die nichtlineare Suszeptibilität ist im wesentlichen frequenzunabhängig. Die Kleinman-Symmetrie besagt nun, daß der Tensor χ_{ijk} symmetrisch und reell ist:

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{jki}^{(2)} = \chi_{kij}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} = \chi_{jik}^{(2)} = \chi_{kji}^{(2)} \quad \chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)*} \quad (4.5)$$

Im Falle der Frequenzverdopplung sind ω_m und ω_n gleich, d.h. der Tensor ist auch in den letzten beiden Indizes symmetrisch.

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)} \quad (4.6)$$

Ist die Kleinman-Symmetrie Bedingung erfüllt, so führt man zur Vereinfachung den Tensor:

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ikj}^{(2)} \quad (4.7)$$

ein. Die Vereinfachung in der Schreibweise besteht darin, daß man statt d_{ijk} die kontrahierte Matrix d_{il} einführt, wobei folgender Zusammenhang zwischen den Indizes besteht:

$$\begin{array}{rcl} jk & = & 11 \quad 22 \quad 33 \quad 23, 32 \quad 31, 13 \quad 12, 21 \\ l & = & 1 \quad 2 \quad 3 \quad 4 \quad 5 \quad 6 \end{array} \quad (4.8)$$

Der nichtlineare Suszeptibilitätstensor kann nun als 3×6 -Matrix geschrieben werden.

$$d_{il} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \quad (4.9)$$

Für die nichtlineare Polarisation gilt somit:

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2\epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_x(\omega)^2 \\ E_y(\omega)^2 \\ E_z(\omega)^2 \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix} \quad (4.10)$$

Wenn Kleinman-Symmetrie vorliegt, können die Indizes von d_{ijk} beliebig vertauscht werden. Somit sind nicht alle 18 Einträge des Tensors d_{il} voneinander unabhängig, es gilt z.B.:

$$d_{12} = d_{112} = d_{212} = d_{26} \quad (4.11)$$

und

$$d_{14} = d_{123} = d_{213} = d_{25} \quad (4.12)$$

Wenn man diese Überlegungen systematisch weiterführt, gelangt man zu dem Schluß, daß es bei gültiger Kleinman-Symmetrie nur 10 voneinander unabhängige Elemente gibt. Aus den Kristallsymmetrien der verwendeten optischen Medien ergeben sich häufig weitere Nebenbedingungen, die die Zahl der unabhängigen Elemente weiter reduzieren können. Oft nehmen viele Tensorkomponenten den Wert Null an.

Im Falle einer punktsymmetrischen Kristallgeometrie verschwinden sogar alle Einträge des Suszeptibilitätstensors zweiter Ordnung, so daß in diesen Kristallen gar keine Frequenzverdopplung möglich ist. Da immerhin 11 der 32 existierenden Kristallklassen Punktsymmetrie aufweisen, kann man schon von vornherein viele Kristalle aufgrund ihrer Kristallklassenzugehörigkeit für die nichtlineare Wechselwirkung zweiter Ordnung ausschließen.

Für eine ausgewählte Geometrie, d.h. unter fest definierten Ausbreitungs- und Polarisationsrichtungen, ist es möglich, eine skalare Beziehung zwischen der Polarisationsdichte und dem elektrischen Feld herzuleiten:

$$P(2\omega) = \epsilon_0 d_{eff} E(\omega)^2 \quad (4.13)$$

Eine allgemeine Vorschrift zur Berechnung von d_{eff} für die jeweiligen Kristallklassen findet man in [13]. Im Falle einer linear polarisierten Welle der Kreisfrequenz ω erhält man für die frequenzverdoppelte Leistung $P_{2\omega}$ in Abhängigkeit der quadratischen Eingangsleistung [14]:

$$P_{2\omega} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{\omega^2 d_{eff}^2 l^2}{n_\omega^3} \frac{\sin^2(\Delta k l / 2)}{(\Delta k l / 2)^2} \frac{1}{A} \cdot P_\omega^2 \quad (4.14)$$

mit der magnetischen Feldkonstante μ_0 , Kristalllänge l , der Strahlquerschnittsfläche A , dem Brechungsindex n_ω für die Grundwelle und der Phasenanpassung :

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega = \frac{2\omega}{c_0} (n_{2\omega} - n_\omega) \quad (4.15)$$

Hierbei sind k_ω und $k_{2\omega}$ die Wellenzahlen der Grund- bzw. Oberwelle.

4.2.4 Frequenzverdopplung eines modengekoppelten Lasers

Die bisherigen Betrachtungen bezüglich der Effizienz der Frequenzverdopplung beziehen sich ausschließlich auf Laserquellen, die im Single-Mode-Betrieb laufen. In diesem Experiment wird jedoch ein modengekoppelter Titan-Saphir Pulslaser mit einem breiten Verstärkungsprofil verwendet. Das Laserlicht besteht also aus streng hintereinander folgenden Pulsen, die einen zeitlichen Abstand von $2L/c$ haben, wobei L die Länge des Resonators ist.

Da die Verdopplungseffizienz vom Mittelwert des Quadrates der Amplituden der elektrischen Feldstärke abhängt und nicht vom Quadrat des Mittelwertes der elektrischen Feldstärke, erwartet man einen merklichen Einfluß der Modenstruktur auf die Verdopplungseffizienz. Dies bestätigt sich auch später im Experiment, denn die Intensität des frequenzverdoppelten Lichtes ist merklich höher, wenn der Laser im Pulsbetrieb arbeitet. Um die Verdopplungseffizienz für einen modengekoppelten Laser abschätzen zu können, beschreibt man zunächst das elektrische Feld E eines solchen Lasers wie folgt [15] :

$$E = \sum_{n=1}^N E_n e^{i(\omega+n\Delta\omega)t} \quad (4.16)$$

$$\Delta\omega = \frac{\pi c}{L} \quad (4.17)$$

N ist die Anzahl der longitudinalen Moden im Resonator, wobei sich benachbarte Moden um $\Delta\omega$ unterscheiden. Für das elektrische Feld der zweiten Harmonischen ergibt sich unter der Annahme, daß eine perfekte Phasenanpassung vorliegt:

$$E(2\omega) = \epsilon_0 \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \chi E_n E_m e^{i[2\omega+(n+m)\Delta\omega]t} \quad (4.18)$$

Daraus folgt für die Intensität:

$$I(2\omega) = \epsilon_0^2 \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \sum_{o=1}^N \sum_{p=1}^N \chi^2 E_n E_m E_o^* E_p^* e^{i(n+m-o-p)\Delta\omega t} \quad (4.19)$$

Nach einer längeren Rechnung ergibt sich schließlich für das Verhältnis der mittleren Intensitäten I_{mk} (modengekoppelt) und I_{kont} (kontinuierlich):

$$\frac{I(2\omega)_{mk}}{I(2\omega)_{kont}} = \frac{2N^2 + 1}{3N} \quad (4.20)$$

Für eine große Anzahl von Moden vereinfacht sich dieser Ausdruck zu $\frac{2}{3}N$. Diese Beziehung erlaubt es, eine grobe Abschätzung der Verdopplungseffizienz für einen

gepulsten Laser vorzunehmen. In einem Titan-Saphir Laser liegt die Modenzahl in der Größenordnung von $N = 100$. Daher erwarten wir im Falle der Frequenzverdopplung eines modengekoppelten Lasers eine Zunahme der Effizienz um etwa eine Größenordnung.

4.2.5 Phasenanpassung

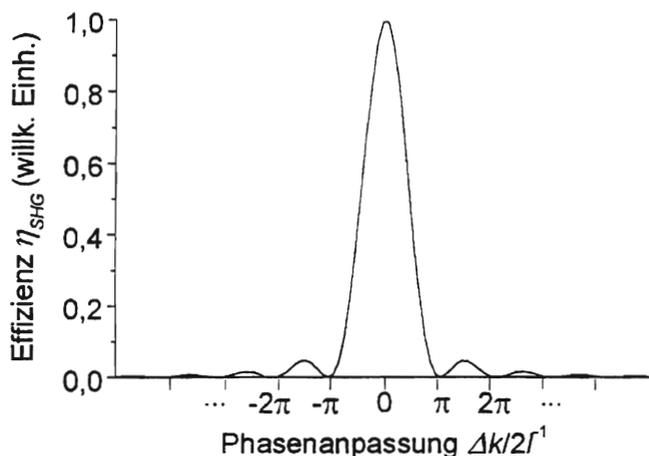


Abbildung 4.3: Effizienz der Frequenzverdopplung in Abhängigkeit der Phasenanpassung für ebene Wellen

Die Leistung des frequenzverdoppelten Lichtes hängt empfindlich von der Phase Δk der beiden wechselwirkenden Lichtfelder ab. Eine effiziente Frequenzverdopplung ergibt sich nur, wenn sich die lokal entstehenden Anteile der Oberwelle zu einer makroskopischen Welle aufaddieren. Dazu müssen die Anteile in Phase sein, d.h. es muß $\Delta k = 0$ gelten.

Ist dies nicht der Fall, so kommt es immer bei einem Gangunterschied von $\Delta k = \pi$ zu einer Auslöschung der im Kristall erzeugten Anteile der Oberwelle. Dies würde zu einer Modulation der Intensität der Oberwelle im Kristall führen, und man würde am Ende nur ein Signal, welches entlang einer Kohärenzlänge erzeugt worden ist, erhalten. Die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ beinhaltet, daß sich die Grund-

und Oberwelle im Kristall mit der selben Phasengeschwindigkeit bewegen, d.h. für die Brechungsindizes muß gelten:

$$n(\omega) = n(2\omega) \quad (4.21)$$

Entsprechend der Gleichung (4.14) weist die Abhängigkeit der Verdopplungseffizienz die Form einer sinc^2 -Funktion² auf, wie sie in Abb. 4.3 zu sehen ist. Die Phasenanpassungsbedingung kann im Bereich der normalen Dispersion in isotropen Materialien nicht erfüllt werden, da der Brechungsindex mit der Frequenz des Lichtes ansteigt. Im Prinzip ließe sich die Phasenanpassung im Bereich der anormalen Dispersion erreichen, indem man den Abfall des Brechungsindex in der Nähe einer Absorption ausnutzt. Dies würde sich jedoch wegen der Absorption negativ auf die Verdopplungseffizienz auswirken.

Im allgemeinen erreicht man die Phasenanpassungsbedingung, indem man sich Materialien mit doppelbrechenden Eigenschaften bedient. In doppelbrechenden Materialien hängt der Brechungsindex von der Polarisation und der Richtung des einfallenden Lichtes ab. Man unterscheidet zwei Arten der Phasenanpassung [3]:

Typ 1, skalare oder kollineare Phasenanpassung: Die Grundwelle breitet sich entweder als außerordentlicher oder ordentlicher Strahl aus, die Oberwelle entsteht dann als ordentlicher oder außerordentlicher Strahl. Die wechselwirkenden Komponenten der Grundwelle haben die selbe Polarisation.

Typ 2, vektorielle Phasenanpassung: Die Grundwelle wird sowohl in ordentlicher als auch in außerordentlicher Polarisation eingestrahlt, die Oberwelle entsteht dann als ordentlicher oder außerordentlicher Strahl. Die Polarisationen der wechselwirkenden Komponenten der Grundwelle stehen senkrecht aufeinander.

Generell gibt es zwei Methoden, mit denen Phasenanpassung erreicht werden kann. Eine Methode ist die Winkelanpassung, bei der es auf die exakte Ausrichtung des Kristalls bezüglich der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls ankommt. Diese Methode wird auch kritische Phasenanpassung genannt, da Grund- und Oberwelle aufgrund der Doppelbrechung im nichtlinearen Kristall divergieren. In diesem Zusammenhang spricht man auch von einem "Walk-Off"-Effekt. Dieser beeinträchtigt die Verdopplungseffizienz und nimmt mit größeren Einfallswinkeln zu.

Die zweite Methode ist die Temperaturanpassung. Bei einigen Kristallen, wie z.B. Kaliumniobat (KNbO_3) oder Lithiumniobat (LiNbO_3) sind die doppelbrechenden Eigenschaften stark temperaturabhängig. Es bietet sich in diesem Fall die Möglichkeit, die kritische Phasenanpassung zu umgehen, indem man den Einfallswinkel Θ

² $\text{sinc}^2 = \frac{\sin^2(x)}{x^2}$

des Lichtes bei 90° festhält und eine Phasenanpassung durch die Variation der Kristalltemperatur herbeiführt. Da hier kein "Walk-Off"-Effekt auftritt, nennt man diese Methode auch unkritische Phasenanpassung. Diese Methode wird im Experiment angewendet, und es erfolgt daher eine ausführliche Behandlung der Phasenanpassung durch die Temperatur im nächsten Kapitel.

4.2.6 Phasenanpassung in Kaliumniobat ($KNbO_3$)

Bei der Auswahl des Verdopplungskristalls spielt neben dem Wellenlängenbereich besonders der nichtlineare Parameter d_{eff} eine entscheidende Rolle, da er quadratisch in die Verdopplungseffizienz eingeht. $KNbO_3$ ist ein negativ zweiachsiger Kristall mit dem höchsten nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} unter den gebräuchlichen anorganischen Kristallen. Daher ist er besonders zur Frequenzverdopplung von Dioden- und Festkörperlasern im mittleren Leistungsbereich geeignet. $KNbO_3$ besitzt eine orthorhombische Gitterstruktur und gehört im Bereich von $55^\circ - 222^\circ C$ der Punktsymmetriegruppe $mm2$ an [16]. Die Transparenz erstreckt sich über einen Bereich von 400-4500 nm, die Absorptionsverluste liegen bei einer Wellenlänge von 900 nm unterhalb von $1\%/cm$. Der verwendete Kristall hat die Maße $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ bei einer Länge von 5 mm. Die Eintrittsfläche ist für 900 nm antireflexbeschichtet.

Ein zweiachsiger Kristall wie $KNbO_3$ besitzt drei verschiedene Brechungsindizes n_x , n_y und n_z , die im Vektorraum des Wellenvektors \vec{k} eine doppelschichtige Struktur beschreiben. Es gibt genau vier Kontaktpunkte, durch die zwei optische Achsen verlaufen. Dies wird in Abb. 4.4 veranschaulicht. Im folgenden werden die physikalischen Kristallachsen (X, Y, Z) so in kristallographische Achsen (a, b, c) transformiert, daß die optischen Achsen in der XZ-Ebene liegen. Für $KNbO_3$ lautet die Zuweisung: $X, Y, Z \rightarrow c, a, b$.

Für die Polarisation in Kaliumniobat gilt entsprechend Gleichung (4.10):

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_x(\omega)^2 \\ E_y(\omega)^2 \\ E_z(\omega)^2 \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix} \quad (4.22)$$

wobei die Einträge folgende Werte annehmen [6]:

$$\begin{aligned} d_{31} &= -11, 5pV/m & d_{32} &= -20, 5pV/m & d_{33} &= -20, 1pV/m \\ d_{24} &= -17, 1pV/m & d_{15} &= -16, 5pV/m & & \end{aligned} \quad (4.23)$$

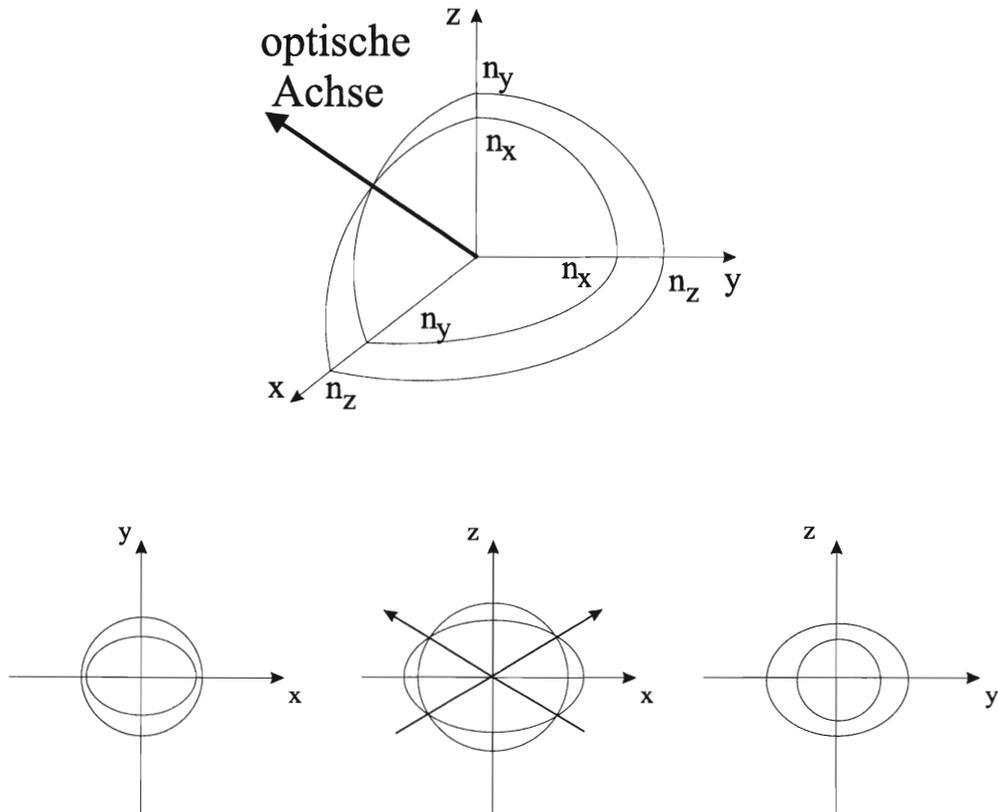


Abbildung 4.4: Brechungsindizes im zweiachsigen Kristall

Diese Werte gelten für eine Wellenlänge von $\lambda = 1064 \text{ nm}$. Für die Wellenlänge $\lambda = 900 \text{ nm}$ müssen diese Werte um etwa 5% nach oben korrigiert werden [6].

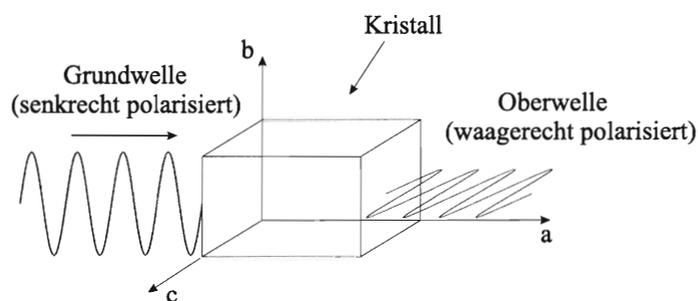


Abbildung 4.5: Frequenzverdopplung im Kaliumniobatkristall

Der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Kristall ist entlang der a -Achse geschnitten (a -cut). Entlang dieser Achse wird nun eine nichtkritische Phasenanpassung vom Typ 1 mit der Grundwelle als ordentlichem Strahl und der Oberwelle als außerordentlichem Strahl durchgeführt. In Abb. 4.5 ist die Phasenanpassung vom Typ 1

skizziert: Die Grundwelle ist in Richtung der b-Achse polarisiert und wird entlang der a-Achse eingestrahlt. Die zweite Harmonische ist somit in Richtung der c-Achse polarisiert. Bei dieser Art der Phasenanpassung ergibt sich für die nichtlineare Effektivität:

$$d_{eff} = d_{32} \cdot \sin(\Theta = 90^\circ) = d_{32} \quad (4.24)$$

Damit die Phasenanpassung gewährleistet ist, müssen die Brechungsindizes der Grundwelle n_b und der zweiten Harmonischen n_c in Übereinstimmung gebracht werden. Dies geschieht im Falle der nichtkritischen Phasenanpassung durch eine geeignete Variation der Kristalltemperatur. Die Abhängigkeit des Brechungsindex n von dem Material, der Wellenlänge λ und der Temperatur T ist für die jeweilige kristallographische Achse durch die Sellmeier-Gleichung gegeben [16]:

$$n^2 - 1 = S_1 \frac{\lambda^2 \lambda_1^2}{\lambda^2 - \lambda_1^2} + S_2 \frac{\lambda^2 \lambda_2^2}{\lambda^2 - \lambda_2^2} - D\lambda^2 \quad (4.25)$$

S_1 und S_2 bezeichnet man als Oszillatorstärken, λ_1 und λ_2 repräsentieren die UV-Oszillator Beiträge und D ist der IR-Korrekturterm. Diese Größen hängen kompliziert von der Temperatur ab und liegen für den jeweiligen Verdopplungskristall tabellarisch vor [16]. Durch Gleichsetzen der Beziehungen für die Brechungsindizes n_c und n_b erhält man die gewünschte Temperatur, bei der die Phasenanpassung erfüllt ist.

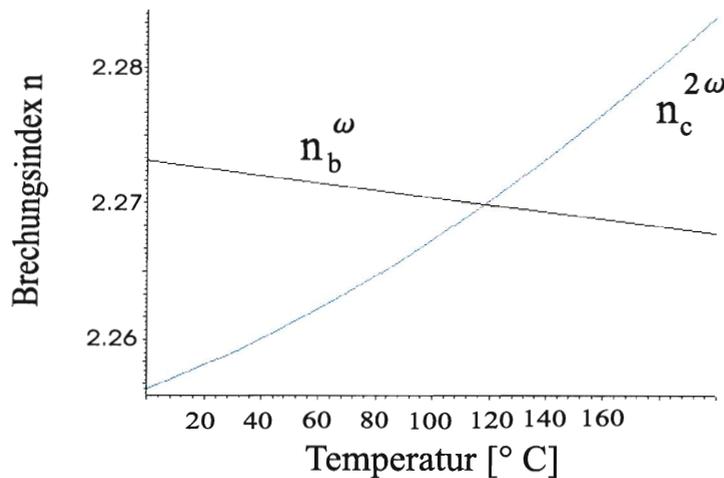


Abbildung 4.6: Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes n_c und n_b

In Abb. 4.6 ist der Verlauf der Brechungsindizes im Temperaturbereich von $0^\circ - 180^\circ$ C dargestellt. Der Brechungsindex n_c steigt mit zunehmender Temperatur, während der Brechungsindex n_b einen negativen Temperaturkoeffizienten besitzt. Die Brechungsindizes stimmen bei einer Temperatur von $117,9^\circ$ C überein. Somit liegt im

Kristall Phasen Anpassung vor, wenn die Kristalltemperatur $117,9^{\circ}\text{C}$ beträgt. Der Kristall muß also mit Hilfe eines Ofens auf diese Temperatur gebracht werden. Das Heizen des Kristalls darf jedoch nicht zu schnell erfolgen, da sonst die Kristalldomänen umklappen, und er somit für die Frequenzverdopplung unbrauchbar wird. Es wird empfohlen, den Kristall nicht schneller als 80°C/h zu heizen, das Abkühlen sollte nicht schneller als 40°C/h erfolgen.

4.2.7 Kristallofen

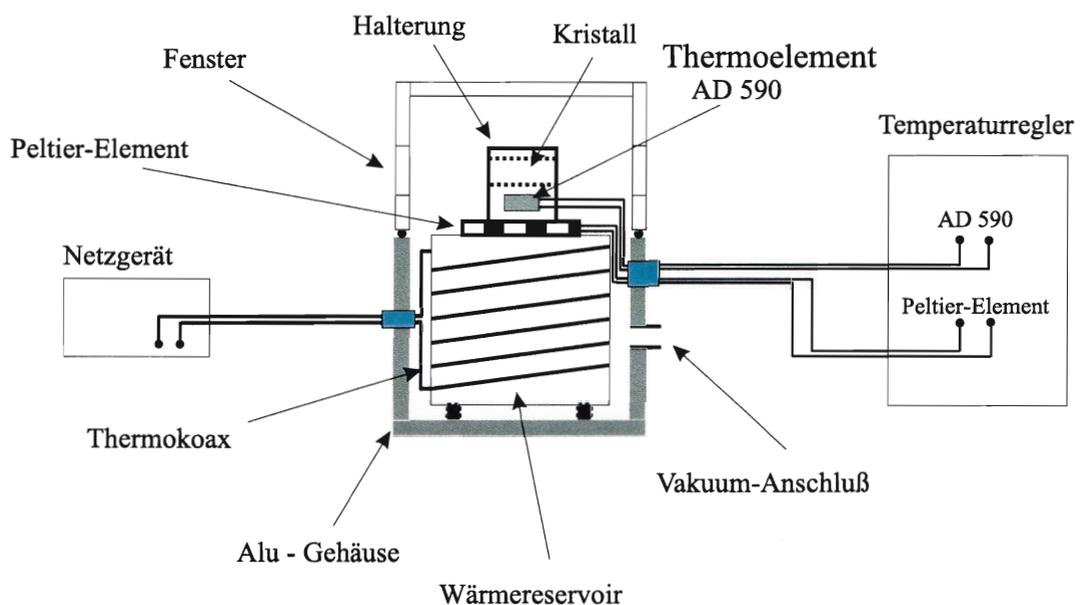


Abbildung 4.7: Schematischer Aufbau des Kristallofens

In Abb. 4.7 ist der schematische Aufbau des verwendeten Kristallofens dargestellt. Der Kristall befindet sich in einer Messinghalterung, die über ein Peltierelement mit einem Wärmereservoir verbunden ist. Das Wärmereservoir besteht aus einem Aluminiumzylinder, der mit einem Thermokoaxialkabel geheizt wird. Die Temperatur des Wärmereservoirs beträgt etwa 80°C . An der Kristallhalterung ist ein Temperatursensor des Typs AD 590 angebracht, der einen zur Temperatur proportionalen Strom liefert. Dieser Strom wird in einem elektronischen Temperaturregler mit dem Strom, der bei der gewählten Solltemperatur fließen müßte, verglichen. Über das Peltierelement kann der Temperaturregler den Kristall so auf die gewünschte Temperatur bringen. Diese Anordnung befindet sich in einem Vakuumbehälter, dessen Unterteil aus Aluminium und dessen Verschluss aus Plexiglas besteht. Als Dichtung zwischen beiden Teilen dient ein Gummiring. Damit der Aluminiumzylinder keine

Wärme durch Kontakt mit dem Vakuumbehälter austauschen kann, steht der Zylinder auf kleinen Keramikstempeln. Die Anschlüsse für die Temperaturregelung und das Thermokoaxialkabel werden durch das Unterteil nach außen gelegt. Der Anschluß für die Vakuumpumpe befindet sich ebenfalls am Unterteil. In der Apparatur herrscht unter Betriebsbedingungen ein Druck von etwa 10^{-2} Torr. Der Kristall befindet sich im Vakuum, damit thermische Effekte wie Konvektion die Temperaturstabilität nicht beeinträchtigen. Außerdem bietet diese Anordnung einen besseren Schutz des Kristalles vor Verunreinigungen. In den Verschuß sind 2 Substrate als Fenster für den Laserstrahl eingearbeitet, die für rotes bzw. blaues Licht antireflexbeschichtet sind.

4.2.8 Frequenzverdopplung Gaußscher Strahlen

Boyd und Kleinman haben theoretische Untersuchungen zur Optimierung der Frequenzverdopplung von Gaußschen Strahlen in TEM_{00} -Mode in einachsigen Kristallen durchgeführt [2]. Dabei wurden Beugung und Doppelbrechung voll berücksichtigt, während die Absorption vernachlässigt wurde. Die Untersuchungen befaßten sich damit, wie man einen Gaußschen Strahl präparieren muß, damit möglichst viel Energie von der Grundwelle zur Oberwelle übertragen wird.

Um das Maß der Fokussierung eines Gaußschen Strahles zu beschreiben, wird der Fokusparameter ξ eingeführt:

$$\xi = \frac{l}{b} \quad (4.26)$$

wobei b der konfokale Parameter des Gaußschen Strahles und l die Länge des Kristalls ist. Ein kleines ξ ($\xi < 1$) bedeutet somit eine schwache Fokussierung und umgekehrt. Dieser Parameter wird optimiert. Für die Leistung des frequenzverdoppelten Lichtes ergibt sich:

$$P_{2\omega} = \frac{2}{\pi} \frac{\omega^3}{\epsilon_0 c_0^4 n_\omega^2} d_{eff}^2 l P_\omega^2 h_m(B, \xi) \quad (4.27)$$

Die Leistung ist abhängig von einem Korrekturfaktor $h_m(B, \xi)$, in den der Doppelbrechungsparameter B und der Fokusparameter ξ eingehen. Der Index m deutet darauf hin, daß die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist. Da in dieser Arbeit eine unkritische Phasenanpassung durchgeführt wird, gilt für den Doppelbrechungsparameter $B = 0$. Die Abb. 4.8 zeigt die Abhängigkeit des Korrekturfaktors von der Fokussierung für verschiedene Werte von B und ξ . Der Korrekturfaktor läßt sich in der Regel nur numerisch bestimmen. Für den Fall, daß keine Doppelbrechung vorliegt, wird er maximal, und es gilt: $h_m(B = 0, \xi = 2,84) = 1,07$.

Bei der Fokussierung von Gaußschen Strahlen in einen Verdopplungskristall unterscheidet man zwischen zwei Extremfällen: Im Falle einer schwachen Fokussierung ($\xi \ll 1$) trägt zwar die gesamte Länge zur Konversion bei, jedoch ist die Intensität der Strahlung im Kristall sehr gering. Bei einer starken Fokussierung ($\xi \gg 1$) wird die Phasenanpassung wegen der starken Divergenz nur für einen kleinen Bereich erfüllt, etwa auf der Länge des konfokalen Parameters b . Somit läßt sich die Abnahme des Korrekturfaktors für große und kleine Werte von ξ erklären. Weiterhin erkennt man, daß die Konversionseffizienz mit größerem Doppelbrechungswinkel abnimmt. Die Ursache hierfür ist der "Walk-Off"-Effekt, der die Grund- und die Oberwelle divergieren läßt.

Da die Leistung der zweiten Harmonischen proportional zur Kristalllänge ist, sind folglich möglichst lange Kristalle zu verwenden, soweit die Absorptionsverluste nicht zu hoch sind und der "Walk-Off" sich in Grenzen hält. Zu hohe Absorption führt

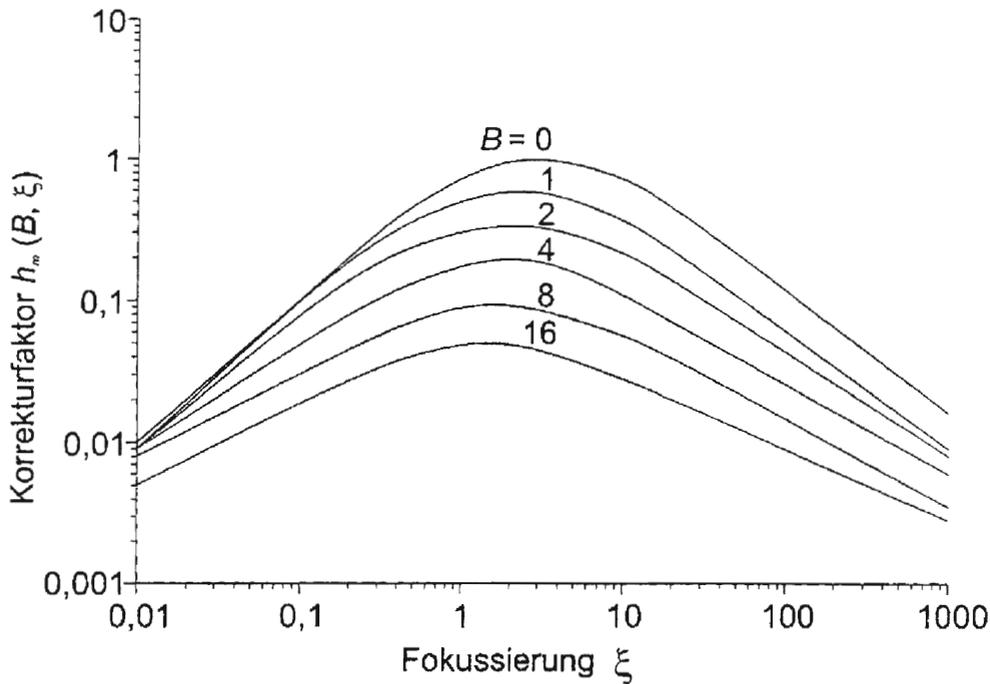


Abbildung 4.8: Effizienz der Frequenzverdopplung $h_m(B, \xi)$ für Gaußsche Strahlen bei erfüllter Phasenanpassung, abhängig von der Fokussierung ξ und dem Doppelbrechungsparameter B .

zu einem lokalen Aufheizen des Kristalls, was sich gerade bei temperaturangepaßten Kristallen negativ auf die Verdopplungseffizienz auswirkt. Eine weitere Beeinträchtigung der Effizienz ist die bei langen Kristallen zumeist verminderte optische Qualität. Man beachte außerdem, daß die Verdopplungseffizienz bei Gaußschen Strahlen nur proportional zur Kristalllänge ist, während bei ebenen Wellen eine quadratische Abhängigkeit vorliegt.

Für Strahlen mit einem Gauß-Profil, wie sie in der Praxis üblich sind, gilt die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ nicht exakt. Der Wert für die Phasenanpassungsbedingung Δk ist zu positiven Werten hin verschoben ($\Delta k > 0$). Dies liegt zum Teil an der Gouy-Phase, denn beim Durchlaufen der Rayleigh-Zone unterliegt die Oberwelle einer Phasenverschiebung von etwa π gegenüber der Grundwelle. Diese Phasenverschiebung verursacht eine destruktive Interferenz. Der Grund für die Verschiebung hin zu positiven Werten läßt sich mit Hilfe der Abb. 4.9 erläutern. Ein fokussierter Gaußscher Strahl hat die Form eines eingeschnürten Strahlenbündels. Wenn es im Zentrum des Bündels Komponenten mit $\Delta k > 0$ gibt, so gibt es immer auch Mischprozesse für die gilt $\Delta k = k'_1 + k''_1 - k_2 = 0$.

In Abb. 4.10 ist die Fokussierung eines Gaußschen Strahles dargestellt. Die Effizienz

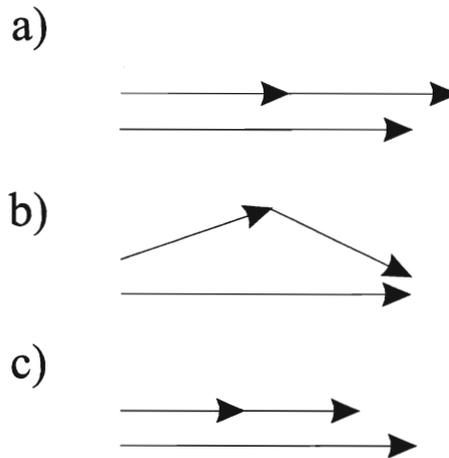


Abbildung 4.9: In (a) ist das Vektordiagramm eines Prozesses zweiter Ordnung dargestellt, in dem keine Phasenanpassung vorliegt ($\Delta k > 0$). Durch die Aufweitung des Strahles können Prozesse, wie sie in (b) dargestellt sind, mit großer Effizienz ablaufen. Im Gegensatz hierzu ist in (c) für den Fall $\Delta k < 0$ keine Phasenanpassung möglich.

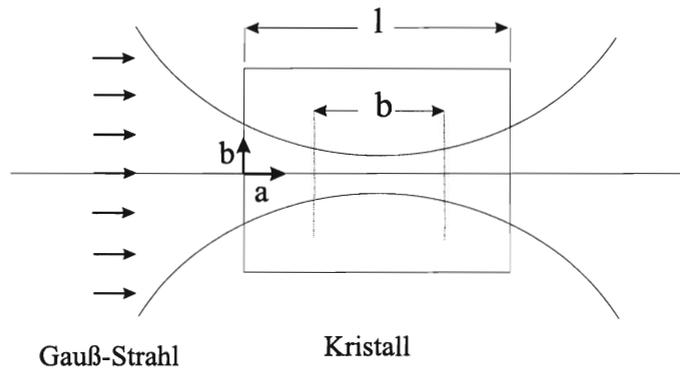


Abbildung 4.10: Die Fokussierung

der Frequenzverdopplung wird maximal, wenn für den Fokusparameter ξ gilt:

$$\xi = 2,84 \quad (4.28)$$

Hieraus folgt für die Rayleigh-Länge:

$$b = \frac{\xi}{l} \quad (4.29)$$

Aus der Rayleigh-Länge läßt sich der Strahlradius ω_0 im Brennpunkt bestimmen:

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{b\lambda}{2\pi}} = \sqrt{\frac{\xi\lambda}{2\pi l}} \quad (4.30)$$

Entfernt man den Kristall mit dem Brechungsindex n und der Länge l aus dem Strahlengang, so bleibt der Strahlradius ω_0 im Brennpunkt unverändert, während die Rayleigh-Länge den Wert b/n annimmt. Außerdem verschiebt sich der Ort des Brennpunktes um $l/2n$ gegen die Strahlrichtung.

Mit diesen Parametern kann der fokussierte Gaußsche Strahl sowohl mit Kristall als auch ohne Kristall im Strahlengang vollständig beschrieben werden. Für den Strahlradius eines Gaußschen Strahles im Abstand z vom Brennpunkt gilt:

$$\omega^2(z) = \omega_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi \omega_0^2} \right)^2 \right] \quad (4.31)$$

Durch diese Gleichung kann man die Brennweite der zur Fokussierung eines kollimierten Strahles benötigten Linse ermitteln. Sie ergibt sich aus dem Abstand z des Strahles vom Brennpunkt bis zu der Stelle, an der der Strahlradius $\omega(z)$ mit dem Radius des einlaufenden, kollimierten Strahles übereinstimmt. Die Vermessung des Strahlprofils und die Berechnung der Linsenbrennweite werden im folgenden Kapitel behandelt.

4.2.9 Experimenteller Aufbau

Vorbereitende Messungen

Der Strahl eines Titan-Saphir Lasers wird über eine polarisationserhaltende Single-Mode Faser an den optischen Tisch mit dem experimentellen Aufbau geführt. Vor der Einkopplung in die Faser wird ein Teil des Strahles ausgekoppelt und in den Autokorrelator geführt, um eine Information über die Pulsstruktur zu erhalten.

Vor den Faserenden sind jeweils ein Polarisator und ein $\lambda/2$ -Plättchen angebracht, mit denen man die transmittierte Leistung optimieren kann. Die Leistung des Titan-Saphir Lasers vor der Einkopplung beträgt etwa 1 W, hinter dem Auskoppler werden 400 mW gemessen. Nach Beendigung der Fasereinkopplung wurde der Strahl durch die Kollimatorlinse am Auskoppler so kollimiert, daß seine Rayleigh-Länge sehr groß im Vergleich zum Strahldurchmesser ist. Dies wird durch die Vermessung des Strahlprofils bei verschiedenen Abständen zur Kollimatorlinse überprüft. In Tab. 4.2.9 werden die Ergebnisse der Messung aufgeführt. Um zu sehen, mit welchem Profil der Strahl aus der Faser kommt, ist in Abb. 4.11 das Strahlprofil bei einem Abstand von 30 cm dargestellt.

Anhand der aufgeführten Meßdaten ist zu erkennen, daß der Strahl gut kollimiert

ist, und sein Strahldurchmesser liegt etwa bei 1mm. Durch die Gleichung 4.31 ist es nun möglich, die Brennweite der zur Fokussierung des kollimierten Strahles benötigten Linse zu ermitteln. Für einen Strahldurchmesser von 1mm ergibt sich für den Abstand z und somit für die Brennweite der Linse ein Wert von $f = 3$ cm. Der aus der Faser kommende Strahl wird dann über zwei Spiegel durch den Kristall geführt. Anschließend wird eine Linse mit der Brennweite $f = 3$ cm, im Abstand ihrer Brennweite vom Kristallzentrum entfernt, in den Strahlengang gebracht. Bei der Positionierung der Linse in den Strahlengang ist darauf zu achten, daß sich der Ort des Brennpunktes um $l/2n$ in Richtung des einlaufenden Strahles verschiebt. Die Linse ist in einem Dreiachsen-Positionierer angebracht, mit dem es möglich ist, die Linse entlang der drei Freiheitsgrade zu verschieben, um so die optimale Fokussierung erreichen zu können.

Abstand [cm]	Durchmesser [μm]
10	964,7
20	985,9
30	1005,9
40	1022,4

Tabelle 4.1: Strahldurchmesser bei verschiedenen Abständen zur Kollimatorlinse

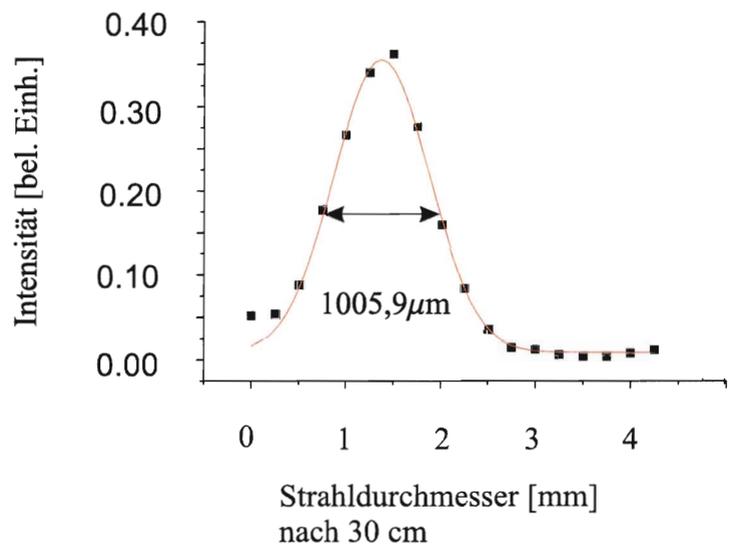


Abbildung 4.11: Strahlprofil des einlaufenden Strahles

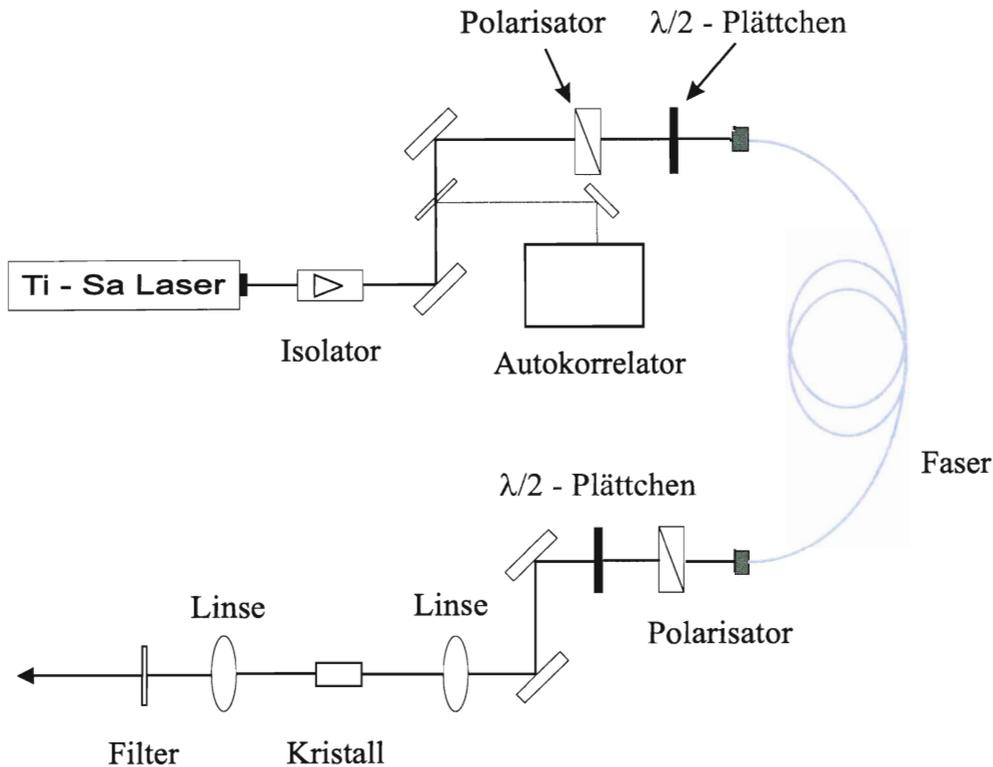


Abbildung 4.12: Schematischer Aufbau der Frequenzverdopplung

Experimenteller Aufbau

In Abb. 4.12 ist der schematische Aufbau der Frequenzverdopplung dargestellt. Mit Hilfe des $\lambda/2$ -Plättchen hinter dem Auskopppler kann man die Polarisationsebene des Strahles einstellen. Sie ist für die Frequenzverdopplung von Bedeutung, da die Polarisation der Grundwelle parallel zur kristallographischen b-Achse sein muß, die mit einer der beiden kurzen Seitenkanten des Kristalls übereinstimmt. Welche der Seitenkanten nun mit der b-Achse übereinstimmt, kann sehr schnell durch Ausprobieren ermittelt werden, da sich dies sehr stark in der Verdopplungseffizienz äußert. Das frequenzverdoppelte Licht wird hinter dem Kristall mit einer Linse kollimiert und durchläuft anschließend einen Kantenfilter der Firma Schott, der bei einer Wellenlänge von $\lambda = 902 \text{ nm}$ eine Transmission in der Größenordnung von 10^{-15} aufweist. Damit ist sichergestellt, daß die Anteile der Grundwelle herausgefiltert werden.

4.2.10 Verdopplungseffizienz

Im Falle der nichtkritischen Phasenanpassung erhält man für die effektive Nichtlinearität entsprechend der Gleichung 4.24:

$$d_{eff} = -20,5 \text{ pV/m} \quad (4.32)$$

Da bei dieser Art der Phasenanpassung keine Doppelbrechung vorliegt ($B = 0$), kann für den Korrekturfaktor $h_m(B, \xi) = 1$ angenommen werden. Dies ist legitim, da der Wert des Korrekturfaktors nicht sehr kritisch von der optimalen Fokussierung abhängt, wie man anhand Abb. 4.8 sehen kann. Im Falle $B = 0$ liegen noch etwa 10% des Maximalwertes in einem Bereich von $1,5 < \xi < 5,3$. Letztendlich ergibt sich für die Konversionseffizienz in dem verwendeten Kaliumniobatkristall:

$$\frac{P_{2\omega}}{P_\omega^2} = \frac{2}{\pi} \frac{\omega^3}{\epsilon_0 c_0^4 n_\omega^2} d_{eff}^2 l h_m(B = 0, \xi = 2.84) = 0,0466 \quad (4.33)$$

Obwohl dieser Wert nur für den Dauerstrichbetrieb gültig ist, dient er hier zur Orientierung für die im Experiment erwartete Leistung. Um eine bessere Vorhersage für die Verdopplungseffizienz eines modengekoppelten Lasers treffen zu können, müßte dieser Wert noch mit dem in Abschnitt 4.2.4 ermittelten Faktor $\frac{2}{3}N$ versehen werden. In einem Titan-Saphir Laser liegt die Zahl N der wechselwirkenden Moden in der Größenordnung von 10^2 , daher erwartet man etwa eine Zunahme der Effizienz um eine Größenordnung.

Nachdem der Aufbau der Frequenzverdopplung abgeschlossen ist, wird eine Messung der Leistung des frequenzverdoppelten Lichtes vorgenommen.

In Abb. 4.13 ist die Leistung $P_{2\omega}$ des frequenzverdoppelten Lichtes in Abhängigkeit von der Eingangsleistung P_ω dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, daß die Meßwerte bei höheren Eingangsleistungen nicht quadratisch, sondern linear ansteigen. Dies deutet darauf hin, daß hier schon eine Sättigung eingetreten ist. Um eine Funktion an die Meßwerte anzupassen, wird folgendes vereinfachtes Modell entworfen: Es wird angenommen, daß die Leistung der Fundamentalen im Kristall quadratisch mit der Intensität abnimmt. Es soll gelten:

$$dI = -I^2(x)dx \quad (4.34)$$

Diese Differentialgleichung hat folgende Funktion als Lösung:

$$I(x) = \frac{cI_0}{1 + cI_0x} \quad (4.35)$$

Sie beschreibt die Intensität der Fundamentalen im Kristall. Für die Leistung der zweiten Harmonischen gilt dann:

$$P_{2\omega} = \int_0^L I^2 dx = \int_0^L \frac{(cI_0)^2}{(1 + cI_0x)^2} dx \quad (4.36)$$

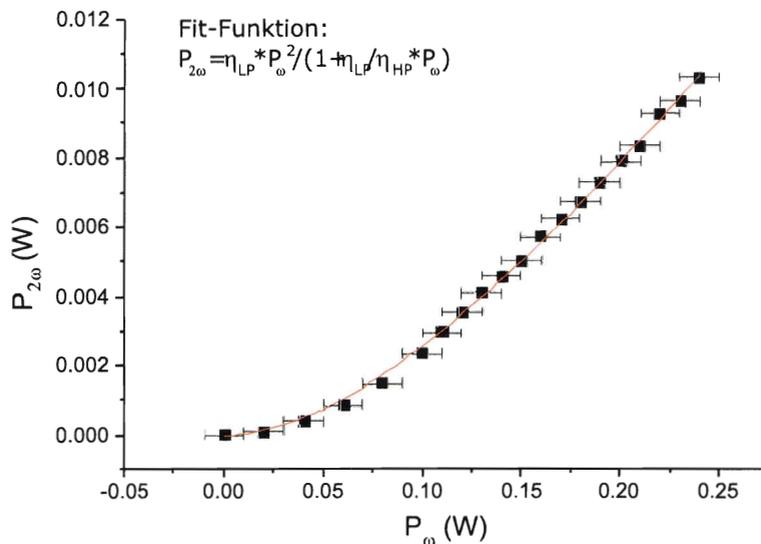


Abbildung 4.13: Leistung $P_{2\omega}$ des frequenzverdoppelten Lichtes in Abhängigkeit von der Eingangsleistung P_{ω}

Hieraus ergibt sich für die Leistung der zweiten Harmonischen:

$$P_{2\omega} = \eta_{LP} \cdot \frac{P_{\omega}^2}{1 + \frac{\eta_{LP}}{\eta_{HP}} P_{\omega}} \quad (4.37)$$

An die gemessenen Daten wird eine Funktion eines solchen Typs angepaßt, woraus sich für die Anpassungsparameter folgende Werte ergeben:

$$\begin{aligned} \eta_{LP} &= 0,38 \\ \eta_{HP} &= 0,08 \end{aligned} \quad (4.38)$$

Der Parameter η_{LP} beschreibt das Kleinsignalverhalten der Effizienz. Es ist hier deutlich zu sehen, daß dieses Kleinsignalverhalten durch die Verwendung eines Puls lasers etwa um eine Größenordnung höher ist, als die in Gleichung 4.33 für kontinuierliches Licht ermittelte Effizienz. Durch den Parameter η_{HP} wird die eintretende Sättigung bei hohen Leistungen in der Grundwelle beschrieben. Wie man in Abb. 4.13 sehen kann, beschreibt dieses einfache Modell recht genau den Verlauf der Effizienzkurve. Durch die quadratische Abnahme der Leistung der Grundwelle beim Durchgang durch den Kristall, fällt die Verdopplungseffizienz bei höheren Leistungen jedoch kleiner aus als erwartet. Somit ist die in diesem Experiment erreichte Verdopplungseffizienz nur um einen Faktor 3 größer als die Effizienz im kontinuierlichen Fall. Eine der Ursachen hierfür ist sicherlich auch in der verminderten optischen Qualität des Kristalls zu suchen, der an den Rändern der Eintrittsfläche schwarze

Flecken aufweist, die von zu starker Fokussierung herrühren. Des weiteren muß die Absorption in den Ofenfenstern berücksichtigt werden, die jedoch nur einen kleinen Beitrag leisten dürfte, da die Transmission der Fenster für rotes bzw. blaues Licht bei über 98% liegt. Eine fehlerhafte Fokussierung dürfte als Ursache ebenso ausscheiden, da die Effizienz nicht sehr kritisch von der Fokussierung des Lichtes abhängt. In der nächsten Messung, die in Abb. 4.14 dokumentiert ist, wurde die Temperaturabhängigkeit der Verdopplungseffizienz untersucht. In dieser Messung wurde die Kristalltemperatur langsam schrittweise um 0.2°C erhöht. Um störende thermische Effekte ausschließen zu können, wurde nach jedem Schritt eine Weile gewartet, so daß sich die Kristalltemperatur stabilisieren konnte. Erst dann wurde der jeweilige Meßwert aufgenommen. Die so vermessene Kurve weist leider nur wenig Ähnlichkeit mit einer sinc^2 -Kurve auf, wie sie für die Abhängigkeit der Verdopplungseffizienz vom Phasenunterschied üblich ist.

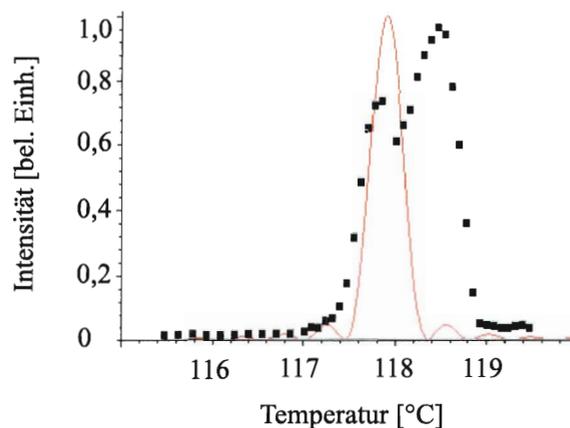


Abbildung 4.14: Temperaturabhängigkeit der Verdopplungseffizienz

Es ist deutlich zu sehen, daß die Phasenanpassungstemperatur von etwa $T = 118,5^\circ\text{C}$ etwas höher liegt als die ermittelte theoretische Temperatur von $T = 117,9^\circ\text{C}$. Dies ist auf die in Abschnitt 4.2.8 behandelte Verschiebung des Phasenunterschiedes Δk hin zu positiven Werten zurückzuführen, die bei der Frequenzverdopplung fokussierter Gaußscher Strahlen auftritt. Bemerkenswert ist, daß die Kurve links vom Maximum ein Nebenmaximum aufweist, wo nach der Theorie eigentlich keine Phasenanpassung stattfinden kann. Dies ist möglicherweise auf im Kristall existierende Temperaturgradienten zurückzuführen, da die obere Seite des Kristalls nicht in so engem Kontakt mit der Halterung ist wie die übrigen Seiten.

4.2.11 Akzeptanzen

In der Realität liegen zumeist Abweichungen der Verdopplungsparameter von den errechneten optimalen Werten vor. So hat der Gaußsche Strahl z.B. im Fokus nicht den optimalen Durchmesser oder die Wellenlänge des Laserlichts weicht geringfügig von der ab, für die die Parameter optimiert wurden. Dies führt dazu, daß die Phasen Anpassungsbedingung nicht mehr exakt erfüllt ist, was sich wiederum nachteilig auf die Verdopplungseffizienz auswirkt. Um diese Abweichungen beurteilen zu können, berechnet man für die Parameter Wellenlänge λ , bzw. Frequenz ν , und die Temperatur T die Akzeptanzen, d.h. die Halbwertsbreiten der Verdopplungseffizienz, $\delta\lambda$, $\delta\nu$ sowie δT . Nach [6] erhält man näherungsweise für den Fall, daß sich die Grundwelle in ordentlicher Polarisation und die Oberwelle in außerordentlicher Polarisation ausbreitet, aus der Phasen Anpassungsbedingung $\Delta k = 0$

$$\delta\nu = \frac{0,443c}{\lambda_\omega l |\delta n_\omega^o / \delta \lambda_\omega - \delta n_{2\omega}^e / \delta \lambda_{2\omega}|} \quad (4.39)$$

$$\delta\lambda = \frac{\lambda^2}{c} \delta\nu \quad (4.40)$$

$$\delta T = \frac{0,443\lambda_\omega}{l |\delta n_\omega^o / \delta T - \delta n_{2\omega}^e / \delta T|} \quad (4.41)$$

Die Abhängigkeit der Brechungsindizes von der Grundwelle und der Oberwelle erhält man aus den Sellmeier-Gleichungen. Es ergibt sich:

$$\delta\nu = 310 \text{ GHz}$$

$$\delta\lambda = 0,86 \text{ nm}$$

$$\delta T = 0,16 \text{ }^\circ\text{C}$$

Anhand dieser Werte läßt sich feststellen, daß die Frequenzverdopplung über einen ausreichenden Wellenlängenbereich effizient ist, so daß diese Lichtquelle nun zur Spektroskopie eingesetzt werden kann.

Kapitel 5

Optisches Pumpen am Indium-Atom

In diesem Kapitel werden zunächst die physikalischen und chemischen Eigenschaften des Elementes Indium aufgeführt. Des Weiteren wird der Aufbau der zur Spektroskopie verwendeten Hohlkathodenlampe behandelt. Schließlich werden die ersten Resultate des optischen Pumpens mit dem frequenzverdoppelten Laser vorgestellt.

5.1 Das Element Indium

Indium ist ein Element der dritten Hauptgruppe und hat die Ordnungszahl 49. Das natürliche Isotopengemisch des Indiums besteht aus zwei Isotopen: ^{115}In (rel. Häufigkeit 95,67%) und ^{113}In (rel. Häufigkeit 4,33%). Das Indiumisotop ^{115}In ist ein schwacher β -Strahler mit einer Halbwertszeit von $6 \cdot 10^{14}$ Jahren. Indium schmilzt unter Normalbedingungen bei $156,61^\circ \text{C}$ und siedet bei 2080°C . Für den Dampfdruck gilt folgende empirisch ermittelte Beziehung [10]:

$$\lg(\rho/\text{Torr}) = 7,4562 - 11221 \cdot (T/K)^{-1} \quad (5.1)$$

Bei einer Temperatur von etwa 1300°C , wie sie in der Effusionszelle für den Atomstrahl vorliegt, ergibt sich z.B. ein Dampfdruck von 0,01 Torr.

Indium ist ein silberweißes, glänzendes, sehr weiches Metall (Mohs-Härte 1,2; zum Vergleich: Zinn: 1,8, Aluminium: 6,0). Man kann das Metall mit dem Messer schneiden, mit der Hand formen und schon unter geringem Druck zu Folien walzen. Es zeigt in seinen Reaktionen und Verbindungen große Ähnlichkeiten mit Gallium und Thallium, den beiden Nachbarn in der dritten Hauptgruppe des Periodensystems.

Indium verändert sich bei Zimmertemperatur an der Luft nicht. Bei Wärme und Feuchtigkeit wird es mit einer Oxidhaut überdeckt. Bei höheren Temperaturen verbrennt Indium in Luft zu weißem bis gelbem In_2O_3 [4]. Mit 0,1 g/t in der äußeren Erdkruste gehört Indium zu den seltenen Metallen. Indium findet Verwendung als Legierungszusatz zu niedrigschmelzenden Loten, Schmelzsicherungen, aber auch als Zusatz zu Lagermetallen, deren Korrosionsbeständigkeit dadurch wesentlich erhöht wird. Eine größere technische Bedeutung erlangte Indium dadurch, daß man die Halbleitereigenschaften einiger seiner Verbindungen ausnutzt (Indiumantimonid, -phosphid, -selenid und -arsenid).

Die Elektronenkonfiguration des Indium-Atoms im Grundzustand ${}^2P_{1/2}$ lautet:

$$[Kr] 4d^{10} 5s^2 5p \quad (5.2)$$

Beide Isotope des Indiums haben eine Kernspinnquantenzahl von $9/2$ und das Ionisationspotential liegt bei 42.000 cm^{-1} .

5.2 Hohlkathodenlampe

Die Spektroskopie an Indium-Atomen wird in erster Linie durch den niedrigen Dampfdruck des Elementes erschwert. In dieser Arbeit wurde eine Hohlkathoden-Gasentladung dazu verwendet, die zu untersuchenden Atome in ausreichender Anzahl in die Gasphase zu überführen, um die Wechselwirkung mit dem Laserlicht untersuchen zu können.

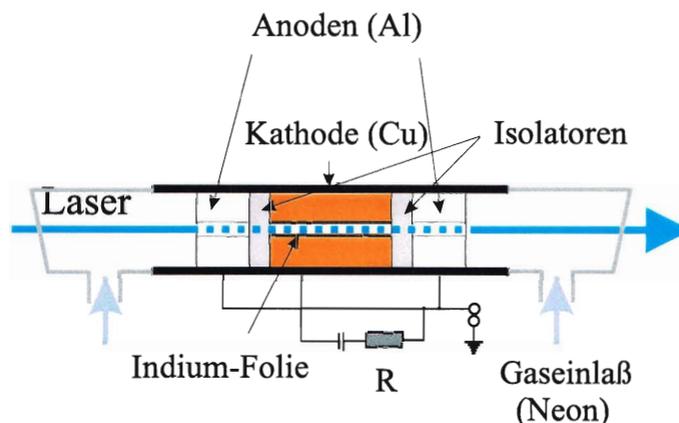


Abbildung 5.1: Prinzipskizze einer Hohlkathodenlampe

Die Hohlkathodenlampe besteht aus einem axial durchbohrten Kupferzylinder als Kathode. Gegenüber seinen Stirnflächen sind die ebenfalls axial durchbohrten Anoden angebracht, die beide mit Masse verbunden sind. Die Bohrungen haben einen

Durchmesser von 3 mm. In Abb. 5.1 ist eine Prinzipskizze dieser Anordnung dargestellt. An die Kathode wird eine Spannung von etwa 300 V angelegt, so daß zwischen den Elektroden eine Gleichstrom-Glimmentladung in Neon betrieben wird. Das zu spektroskopierende Indium befindet sich in Form von Folie an der Innenseite der Kathodenbohrung. Positiv geladene Edelgasionen schlagen nun bei ausreichender Beschleunigung durch das elektrische Feld einzelne Indium-Atome heraus, die dann als freie Atome im Plasma vorliegen. Diesen Vorgang nennt man Kathodenzerstäubung. Die freien Atome können durch elektronische Stöße im Entladungsplasma angeregt werden, so daß verschiedene, auch vom Grundzustand nicht direkt über optische Dipolübergänge zugängliche Niveaus spektroskopiert werden können.

Bei dem in diesem Experiment verwendeten Gerät handelt es sich im wesentlichen um den Nachbau einer Hohlkathodenlampe, wie sie an der Universität der Bundeswehr in Hamburg zur Spektroskopie am gleichen Element verwendet wurde [1]. Zwischen Kathode und Anode sowie zwischen Anoden und äußerem Metallrohr, befinden sich Keramikisolierungen. Als Stromquelle dient ein Mittelspannungsnetzgerät, das eine Spannung bis zu 1250 V bei einem Maximalstrom von 100 mA liefert. Die Stromzufuhr erfolgt durch Kupferdrähte, die durch die Isolierungen zu den Anoden reichen. Das äußere Metallrohr, das Kathode und Anoden enthält, geht an beiden Enden in Glasrohre über, die mit abgeschrägten Glasfenstern vakuumdicht verschlossen werden. Die Neigung der Glasfenster soll unerwünschte Rückreflexe verhindern. Das Vakuumsystem wird über zwei weitere Rohrstutzen angeschlossen. Es besteht aus einer Drehschieberpumpe mit einem Enddruck von etwa 10^{-4} mbar, die über Wellschläuche mit der Hohlkathode verbunden ist, und einem Gaseinlaß, durch den man das Trägergas über einen PVC-Schlauch in die Hohlkathode leiten kann. Die Pumpe kann durch ein Absperrventil von der Hohlkathode getrennt werden, so daß das Trägergas eingelassen werden kann. Ein Wärmeleitungsvakuummeter gibt den Druck in der Hohlkathode an. Als Trägergas der Gasentladung dient Neon, das über ein Nadelventil in die Hohlkathode geleitet werden kann.

Um das äußere Metallrohr der Hohlkathode ist ein Behälter aus Aluminium angebracht, der mit flüssigem Stickstoff zur Kühlung der Hohlkathode gefüllt werden kann. Dadurch wird eine große Brennruhe und eine gleichmäßige Entladung erreicht. Zudem führt die Kühlung zu einer guten Materialökonomie, da das verdampfte Material größtenteils wieder an der Kathode kondensiert.

Die Besetzungsdichte der angeregten Zustände läßt sich durch eine Boltzmann-Verteilung, der eine Anregungstemperatur T_e von etwa 3000 K bis 4000 K zugrunde liegt, beschreiben [1]. Daraus ergibt sich, daß die Besetzung des $5^2P_{3/2}$ -Zustands bei 30% der Besetzung des $5^2P_{1/2}$ -Grundzustands liegt.

Die Anregungstemperatur T_e weicht erheblich von der aus der Dopplerverbreiterung bestimmten gaskinetischen Temperatur ab, die aufgrund der Kühlung nur bei etwa 400 K liegt. Das Hohlkathodenplasma befindet sich im sogenannten lokalen thermodynamischen Gleichgewicht[1]. Mit der oben angenommenen gaskinetischen Tempe-

ratur ergibt sich eine Dopplerverbreiterung von etwa 1,3 GHz. Zur Abstimmung der Laserquellen auf die Indium-Übergänge wird im wesentlichen die Absorptionsspektroskopie angewendet.

5.3 Optisches Pumpen in der Hohlkathodenlampe

Nachdem es gelungen ist, blaues Laserlicht durch Frequenzverdopplung zu erzeugen, wird untersucht, ob optisches Pumpen nachgewiesen werden kann, wenn das Licht mit dem atomaren Übergang $5^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ resonant ist. Dies ist für das Funktionieren der transversalen Kühlung von entscheidender Bedeutung, da die Atome, die dem Kühlübergang durch spontane Emission in das $5^2P_{3/2}$ -Niveau verloren gehen, wieder mittels optischen Pumpens zurückgeführt werden müssen. Der Nachweis des optischen Pumpens geschieht mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers. Hierzu wurde der in Abb. 5.2 dargestellte schematische Aufbau verwendet.

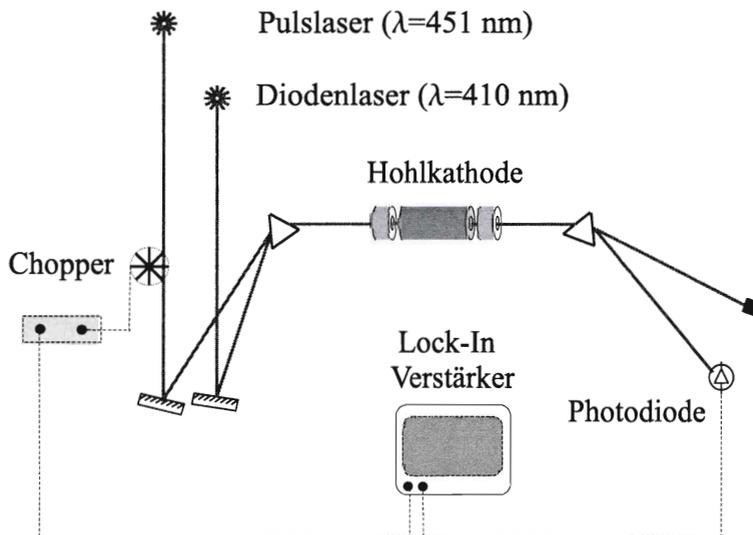


Abbildung 5.2: Schematischer Versuchsaufbau zum Nachweis des optischen Pumpens

Die Laserstrahlen des Diodenlasers und des Pulslasers werden mit einem Prisma überlagert und durch die Hohlkathode geführt. In der Hohlkathode findet eine Gleichspannungs-Glimmentladung in Neon statt. Der Entladungsstrom beträgt 12 mA und der Plasmadruck liegt bei 0,8 Torr. Die Intensität des Pulslaserstrahles wird vor der Hohlkathode durch einen Chopper mit einer Frequenz von etwa 1 kHz rechteckförmig moduliert. Hinter der Hohlkathode werden die überlagerten Strahlen

wieder mit einem Prisma getrennt. Der Strahl des Diodenlasers wird auf eine Photodiode gegeben, deren Signal auf den Eingang eines Lock-In-Verstärkers gegeben wird. Die Chopperfrequenz dient dem Verstärker als Referenzsignal. Der Lock-In-Verstärker filtert aus einem verrauschten Eingangssignal nur die Frequenz des Choppers heraus. Somit wird das Signal aus dem breitbandigen Rauschen herausgefiltert. Zunächst einmal werden die Vorgänge in der Hohlkathoden-Gasentladung behandelt. Der Diodenlaser ist auf die starke Linie von $F = 5 \rightarrow F = 4$ des Überganges $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ abgestimmt. Die Indium-Atome in der Hohlkathode werden somit angeregt und können durch spontane Emission entweder in den Hyperfeinstrukturzustand $F = 4$ und $F = 5$ des Niveaus $5^2P_{1/2}$ oder in die Hyperfeinstrukturzustände $F = 3, 4, 5$ des Niveaus $5^2P_{3/2}$ übergehen, wobei der Übergang zum Niveau $5^2P_{3/2}$ nach Beziehung 3.1 wahrscheinlicher ist. Wenn die Wellenlänge des Puls lasers resonant zum Übergang $5^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ ist, so werden die Atome vom Zustand $5^2P_{3/2}$ wieder dem Übergang $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ zugeführt, was sich in einer erhöhten Absorption des Diodenlasers bemerkbar machen müßte.

Bei all diesen Überlegungen muß abgesichert sein, daß die Zeiten, die die Atome im Überlappungsbereich der Strahlen verbringen, auch ausreichen, um mit dem Licht in Wechselwirkung treten zu können. Ein Vergleich zwischen optischen Zeitskalen, welche im Nanosekundenbereich liegen (Lebensdauer $\tau \approx 7$ ns), mit typischen Aufenthaltszeiten t eines Atomes im Strahl ergibt, daß sich die Atome lange genug im Strahl aufhalten:

$$t = \frac{w}{\bar{v}} = \frac{1\text{mm}}{240\text{m/s}} \approx 4\mu\text{s} \quad (5.3)$$

Hierbei ist w der Durchmesser des Strahles und \bar{v} die Geschwindigkeit, bei der die Maxwell-Boltzmann-Verteilung für eine gaskinetische Temperatur von 400 K ihr Maximum annimmt ($\bar{v} \approx 240$ m/s). Durch dieses kurze Beispiel ist auch belegt, daß die Pulsrepetitionszeit des Puls lasers von 12,5 ns im Vergleich zu den Aufenthaltszeiten der Atome im Überlappungsbereich sehr klein ist, so daß mehrere Anregungen stattfinden können.

5.3.1 Die Pumprate

Neben den zeitlichen Abläufen muß die Wechselwirkung eines breitbandigen Pulses mit vergleichsweise schmalen Linien betrachtet werden. So ist bei einem Puls laser die Intensität auf mehrere Moden verteilt, wobei die Pulse ein breites Frequenzspektrum von etwa 10 GHz abdecken. Zwar werden alle hier interessierenden Übergänge von dem breitbandigen Puls erreicht, jedoch liegen nur wenige Pulsmoden in der Nähe der Resonanzen.

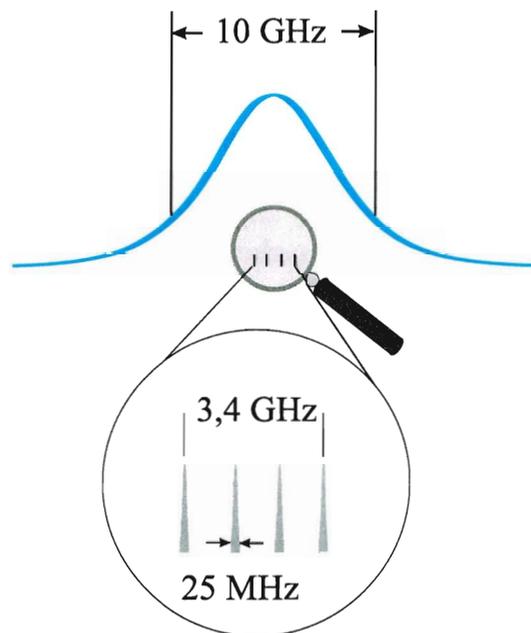


Abbildung 5.3: Zum Vergleich dargestellt sind die Breite des Pulses und die Breite der Linien

Schon bei dieser einfachen Betrachtungsweise erkennt man, daß nur ein kleiner Anteil der vorhandenen Puls-Intensität zur Anregung der einzelnen Übergänge verwendet wird (Abb. 5.3). Daraus ergibt sich das Problem, daß eine sehr große Pulsintensität zum Erreichen von großen Pumpraten benötigt wird, was durch die hohe Sättigungsintensität des Elementes Indium von 47 mW/cm^2 noch verstärkt wird. Eine Abschätzung für die Pumprate kann man aus einem detaillierten Atom-Laser-Wechselwirkungsmodell wie den optischen Bloch-Gleichungen (siehe Anhang) erhalten. Die optischen Bloch-Gleichungen beschreiben ein semiklassisches Modell der Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem nahresonanten Laserfeld. Aufgrund ihrer Vielseitigkeit kann man mit ihnen auch die Wechselwirkung von Atomen mit resonanten Lichtpulsen behandeln. Das Indium-Atom ist zwar kein Zwei-Niveau-System im Sinne der Bloch-Gleichungen, da mehrere Hyperfeinstruktur-Niveaus vorliegen. Dennoch liefern die Bloch-Gleichungen ein einfaches Modell für

den Anregungszustand der Atome und damit auch für die Pumprate. Bei den vorliegenden Bedingungen ergibt sich nach den Bloch-Gleichungen ein Anregungsgrad von etwa einem Prozent.

Bei der Rechnung wurde zur Vereinfachung ein Rechteckpuls der Länge $\tau = 30$ ps mit einer Pulsleistung \hat{I} von $1,2 \text{ W/mm}^2$ verwendet. Die Leistung des Pulses setzt sich aus der mittleren Leistung \bar{I} des Lichtes zusammen (3 mW/mm^2), die mit dem Faktor T/τ multipliziert wurde, wobei die Zeit $T = 12$ ns die Zeit zwischen zwei Pulsen ist.

$$\hat{I} = \bar{I} \cdot \frac{T}{\tau} \quad (5.4)$$

Die Pumprate in das $5^2P_{1/2}$ -Niveau ist gleich $\beta \cdot A_{12} = \beta \cdot 1/3 \cdot \gamma$, wobei β die durch den Puls laser erzeugte Besetzungsdichte des $6^2S_{1/2}$ -Niveaus ist.

proportional zum Anregungsgrad der Atome. Da der Pumpprozess über die spontane Emission des $6^2S_{1/2}$ -Niveaus verläuft, muß die Pumprate noch mit einem Faktor $\frac{1}{3} \cdot \Gamma$ ($\Gamma = 25$ MHz, Linienbreite des angeregten Zustands) versehen werden, da die Wahrscheinlichkeit des Zerfalls in das $5^2P_{1/2}$ -Niveau nur halb so groß ist wie die des Zerfalls in das $5^2P_{3/2}$ -Niveau. Unter diesen Umständen ergeben sich Pumpzeiten, die in der Größenordnung der Aufenthaltszeit der Atome im Strahl liegen. Daher erwartet man keinen deutlichen Rückpumpeffekt bei den hier verwendeten Strahlintensitäten.

5.3.2 Experimentelle Ergebnisse

Mit dem oben beschriebenen Aufbau wurde eine Messung des Absorptionssignals des Diodenlasers bei gleichzeitigem optischem Pumpen mit dem Puls laser durchgeführt (Abb. 5.4). Hierbei wurde die Wellenlänge des Puls lasers kontinuierlich durchgestimmt, wobei es vereinzelt jedoch zu Sprüngen in der Frequenz gekommen ist, die auf Wasserdampf- oder Sauerstoffabsorptionen zurückzuführen sind. Die Wellenlänge des Puls lasers wurde mit einem Wellenlängenmeßgerät der Firma Coherent gemessen, welches eine Genauigkeit von $\Delta\lambda = 0,001$ nm aufweist.

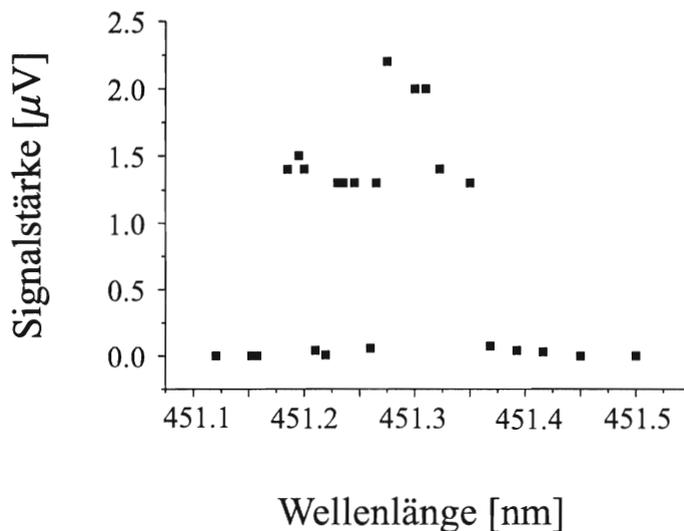


Abbildung 5.4: Auswirkung des optischen Pumpens bei verschiedenen Wellenlängen auf die Absorption des Diodenlasers.

Die Abb. 5.4 zeigt, daß mit Hilfe eines Lock-In Verstärkers ein schwaches Signal zu sehen ist, wenn der Puls laser in die Nähe zur Resonanz des atomaren Überganges bei $\lambda = 451,131$ nm kommt. Diese Signale entsprechen einer Verstärkung der Absorption des 410 nm Lasers auf dem Übergang $5^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$ durch das oben beschriebene optische Pumpen auf dem Übergang $5^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$. Jedoch liegen diese Signale nicht genau bei der erwarteten Wellenlänge von $\lambda = 451,131$ nm, sondern verteilen sich auf einen Wellenlängenbereich von 0,2 nm, was einem Frequenzbereich von 290 GHz entspricht. Dies ist erheblich breiter als die Pulsbreite von 10 GHz oder die maximalen Abstände der Hyperfeinstrukturzustände des $5^2P_{3/2}$ -Niveaus von etwa 3 GHz. Zudem ist es schwierig, diese Signale eindeutig zu reproduzieren, was sicherlich mit der schlechten Durchstimmbarkeit des Puls lasers zusammenhängt. Beim Durchstimmen muß die Pulsform häufig manuell mit dem Gires-Tournois-Interferometer nachgestellt werden. Dies führt stellenweise zu Sprüngen in der Frequenz, die die Messung stark beeinträchtigen. Darüber hinaus ist es äußerst schwierig, über den gesamten Wellenlängenbereich eine schöne, zeitlich konstante Pulsform zu erhalten. Über den Einfluß der sich beim Durchstimmen ständig ändernden Pulsform auf das Experiment herrscht ebenfalls noch Unklarheit.

... Übergang zum folgenden Teil ...

Die Leistungen, die hierzu nötig wären sind wesentlich höher als die Leistung, die der derzeitige Aufbau zu liefern imstande ist. Es muß darüber nachgedacht werden, den Titan-Saphir Laser auf dem selben optischen Tisch zu plazieren, auf dem auch der Versuchsaufbau steht. Hierdurch würde die Faser überflüssig, durch die die

Hälfte der Leistung verloren geht. Da die Leistung der Frequenzverdopplung quadratisch in die Verdopplungseffizienz eingeht, müßte man theoretisch das vierfache an Leistung erhalten, wenn man einmal von den Sättigungseffekten absieht. Darüber hinaus muß ein neuer Verdopplungskristall eingesetzt werden, da der verwendete Kristall Beschädigungen aus anderen Experimenten aufweist. Mit diesen Maßnahmen kann noch einiges an Leistung gewonnen werden, was sicherlich zu besseren Ergebnissen führt.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Konzept für die transversale Kühlung eines thermischen Indium-Atomstrahles zur späteren Verwendung in einem Atomlithographie-Experiment erarbeitet. Dieses Konzept wurde anhand einer Simulation auf seine Verwendbarkeit geprüft. Die mit Hilfe der Simulation ermittelten transversalen Geschwindigkeitsverteilungen der Atome vor und hinter der Kühlstrecke belegen, daß eine transversale Kühlung erreicht werden kann.

Des weiteren wurde eine Frequenzverdopplung für einen Titan-Saphir Pulslaser zur Spektroskopie am Indium aufgebaut. Bei der Frequenzverdopplung handelt es sich um eine Single-Pass-Frequenzverdopplung in einem temperaturangepaßten Kaliumniobatkristall. Da der Kristall auf eine bestimmte Temperatur geheizt werden muß, wurde in einem Vakuumtopf eine heizbare Kristallhalterung aufgebaut. Zur Erhöhung der Verdopplungseffizienz wurde der Laser in den Kristall fokussiert. Hierzu wurden die optimalen Fokussierungsbedingungen ermittelt und realisiert. Mit diesem Aufbau sind Ausgangsleistungen in der zweiten Harmonischen von $P_{2\omega} = 15$ mW erreichbar, die zur Spektroskopie am Indium bzw. für spätere Lichtkraftanwendungen zur Verfügung stehen.

Zur Abstimmung der Laserquelle auf den atomaren Übergang wurde eine Hohlkathodenlampe verwendet. Der spektroskopische Nachweis bestand darin, optisches Pumpen am Indium-Atom nachzuweisen. Die erzielten Ergebnisse deuten jedoch leider darauf hin, daß die Leistung der Laserquelle für das geplante Vorhaben nicht ausreicht. Einer der Gründe ist sicherlich die wider erwarten gering ausgefallene Effizienz der Frequenzverdopplung. Ein weiteres Problem in diesem Zusammenhang besteht darin, daß wegen der großen spektralen Breite der Pulse zu wenig Energie auf die einzelnen Linien zugeteilt wird.

Eine Alternative zum derzeitigen Aufbau wäre die Verwendung von Diodenlasern. Da es jedoch bei dieser Wellenlänge bislang keinen direkt emittierenden Diodenlaser gibt, müßte wiederum eine Frequenzverdopplung für einen in der Nähe von 902 nm emittierenden Diodenlaser aufgebaut werden. Um alle Hyperfeinstruktur-Niveaus des Zustands $5^2P_{3/2}$ zu entleeren bedarf es zweier solcher Diodenlaser, mit denen durch Aufmodulieren von Seitenbändern alle Niveaus entleert werden könnten.

Anhang A

Die optischen Bloch-Gleichungen

Die optischen Bloch-Gleichungen sind ein semiklassisches Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem nahresonanten Laserfeld. Das Atom wird als ein quantenmechanisches System aufgefaßt, welches von einer klassischen elektromagnetischen Welle angeregt wird. Aufgrund der Vielseitigkeit der Bloch-Gleichungen kann mit ihnen auch die Wechselwirkung von Atomen mit resonanten Lichtpulsen beschrieben werden. Die Blochgleichungen sind das Ergebnis der sogenannten Drehwellennäherung der atomaren Dichtematrix. Sie lauten [9]:

$$\begin{aligned}\dot{u} &= \Delta_L v - \frac{\Gamma}{2} u \\ \dot{v} &= -\Delta_L u - \Omega w - \frac{\Gamma}{2} u \\ \dot{w} &= \Omega v - \Gamma (w + 1)\end{aligned}\tag{A.1}$$

- u, v, w : *Komponenten des Blochvektors*
- Δ_L : *Verstimmung des Lasers gegenüber der atomaren Resonanzfrequenz*
- Γ : *Zerfallsrate des angeregten Zustands*
- Ω : *Rabi-Frequenz*

Für die Rabi-Frequenz gilt:

$$\Omega = \Gamma \sqrt{\frac{I}{2I_0}}\tag{A.2}$$

wobei die Sättigungsintensität des atomaren Überganges mit I_0 bezeichnet wird.

Die Blochgleichungen lassen sich wie folgt veranschaulichen: Die Variablen u , v und w können als Komponenten des Blochvektors \vec{S} aufgefaßt werden. Der Blochvektor bewegt sich innerhalb einer Kugel mit dem Radius $r = 1$, der sogenannten Bloch-sphäre (Abb. A.1).

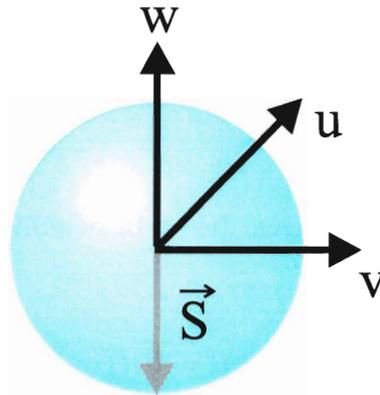


Abbildung A.1: Dargestellt ist die Blochsphäre mit dem Radius $r = 1$. Der senkrecht nach unten zeigende Blochvektor \vec{S} repräsentiert ein vollständig relaxiertes Atom.

Somit gilt für die Komponenten: $u^2 + v^2 + w^2 = 1$. Die w -Komponente beschreibt den Anregungsgrad des Atoms, für $w = -1$ ist das Atom vollständig relaxiert. Die Länge der Projektion des Blochvektors auf die uv -Ebene ist proportional zum Betrag des Dipolmomentes des Atoms.

Im folgenden wird die Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Atoms mit einem rechteckigen Puls der Länge τ mit Hilfe der Bloch-Gleichungen beschrieben. Die Lösung bezieht sich ausschließlich auf den Zeitraum während des Pulses. Es wird angenommen, daß der Puls resonant zum atomaren Übergang ($\Delta_L = 0$) ist und während eines Pulses wird der Dämpfungsterm vernachlässigt. Der Fehler durch die Vernachlässigung des Dämpfungstermes ist vernachlässigbar, da die Lebensdauer des angeregten Zustands von Indium bei etwa 7 ns liegt und somit wesentlich größer ist als die Pulsdauer von $\tau = 30$ ps. Unter diesen Bedingungen vereinfachen sich die Bloch-Gleichungen zu [9]:

$$\begin{aligned} \dot{u} &= 0 \\ \dot{v} &= \Omega w \\ \dot{w} &= -\Omega v \end{aligned} \tag{A.3}$$

Die erste Gleichung beinhaltet, daß sich der Bloch-Vektor in der vw -Ebene bewegt, zudem folgt aus $\vec{S} \cdot \vec{S} = 0$, daß die Länge des Bloch-Vektors erhalten bleibt. Es

wird angenommen, daß das Atom im Anfangszustand ($\vec{S} = (0, 0, -1)$) vollständig relaxiert ist. Demnach lautet die Lösung dieses Gleichungssystems:

$$\begin{aligned} u(t) &= 0 \\ v(t) &= \sin(\Theta(t)) \\ w(t) &= -\cos(\Theta(t)) \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Für $\Theta(t)$ erhält man nach Einsetzen dieser Beziehungen in die Bloch-Bleichungen (A.3):

$$\dot{\Theta}(t) = \Omega(t) \quad (\text{A.5})$$

oder

$$\Theta(t) = \int_0^t \Omega(t') dt' \quad (\text{A.6})$$

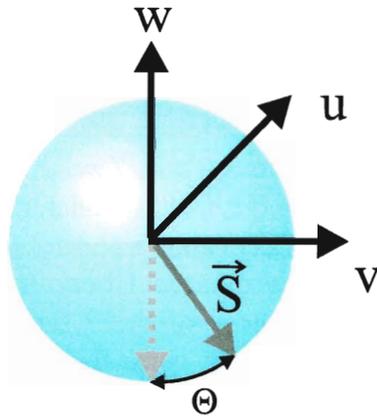


Abbildung A.2: Wenn das Atom angeregt wird, so dreht sich der Blochvektor \vec{S} um den Winkel Θ in der uw -Ebene.

Die Lösung beschreibt die Drehung des Blochvektors in der vw -Ebene um einen Winkel Θ , der über die Gleichung (A.6) mit der Rabi-Frequenz und somit mit der Intensität des anregenden Lichtfeldes zusammenhängt (Abb. A.2). Während eines Lichtpulses führt der Bloch-Vektor eine Rotation um den Winkel Θ aus. Dieser Winkel Θ läßt sich im Falle eines rechteckigen Pulses der Länge τ recht einfach bestimmen, da die Rabi-Frequenz während eines solchen Pulses konstant ist. Somit vereinfacht sich die Gleichung A.6 zu:

$$\Theta = \Omega \cdot \tau = \Gamma \cdot \sqrt{\frac{\hat{I}}{2I_{sat}} \cdot \tau_{Puls}} = \Gamma \cdot \sqrt{\frac{\bar{I}}{2I_{sat}} \cdot \frac{T_{Puls}}{\tau_{Puls}} \cdot \tau_{Puls}} \quad (\text{A.7})$$

Setzt man diesen Winkel in die Gleichungen A.4 ein, so liefert die w -Komponente den Anregungsgrad des Systems nach einer Anregung durch einen Puls. Für $\Theta \ll 1$ kann man w nähern zu $w \approx -1 + \frac{\Theta^2}{2}$, der Anregungsgrad ist somit:

$$\alpha = \frac{w + 1}{2} = \frac{\Theta^2}{4} \quad (\text{A.8})$$

Nimmt man nun an, daß das Atom zwischen den Pulsen genug Zeit hat zu relaxieren, beginnt der Anregungszyklus beim nächsten Puls von neuem. Damit ergibt sich folgende Absorptionsrate für einen Puls:

$$\begin{aligned} \gamma_{Abs} = \alpha \cdot \gamma_{Puls} &= \frac{\Gamma^2}{4} \cdot \left[\frac{\hat{I}}{2I_{sat}} \cdot T_{Puls} \cdot \tau_{Puls} \right] \cdot \gamma_{Puls} \\ &= \frac{\Gamma \cdot s_0}{2} \cdot \frac{\tau_{Puls}}{4\tau_{Atom}} \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Literaturverzeichnis

- [1] A. Baier: Laserinduzierte Hyperfeinstrukturuntersuchungen an einfach ionisiertem Indium und neutralem Osmium, Dissertation, Fachbereich Elektronik, Universität der Bundeswehr, Hamburg, 1998
- [2] G.D. Boyd, D.A. Kleinman: Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams, *Journal of Applied Physics*, Volume 39, Number 8 (1968)
- [3] R.W. Boyd: *Nonlinear Optics*, Academic Press, San Diego (1992)
- [4] H. Breuer: dtv-Atlas zur Chemie, 8. Auflage, Deutscher Taschenbuchverlag (1997)
- [5] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, 2. Auflage, Springer Verlag, Berlin (1991)
- [6] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadayan, D.N. Nikogosyan: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, Springer, Berlin (1991)
- [7] M.D. Hoogerland, J.P.J. Driessen, E.J.D. Vrendenberg, H.J.L. Megens, M.P. Schuwer, H.C.W. Beijerinck, and K.A.H. van Leeuwen: Bright Thermal Atomic-Beams by Laser Cooling - A 1400-Fold Gain in Beam Flux, *App. Phys. B* **62**, 323-327, (1996)
- [8] H. Leinen, D. Gläßner, H. Metcalf, D. Haubrich, D. Meschede: GaN Blue Diode Laser: A Spectroscopist's View, *App. Phys. B* **70**, 567 – 571, (2000)
- [9] L. Mandel, E. Wolf: *Optical Coherence and Quantum Optics*, Cambridge University Press, New York (1995)
- [10] A. N. Nesmeyanov: *Vapor Pressure of Chemical Elements*, Elsevier Publishing Company, Amsterdam (1963)
- [11] M.C. Teich, B.E.A. Saleh: *Fundamentals of Photonics*, John Wiley & Sons, Inc., New York (1991)

- [12] G. Timp, R.E. Behringer, D.M. Tennant, J.E. Cunningham, M. Prentiss, K. Berggren, Phys. Rev. Lett., **69**, S. 1636, (1992)
- [13] J.Q.Yao, T.S. Fahlen, J. Appl. Phys., **55**, S. 65 (1984)
- [14] A. Yariv, Optical Electronics, 4. Auflage, Saunders College Publishing, New York (1991)
- [15] F. Zernike, J.E. Midwinter: Applied Nonlinear Optics, John Wiley & Sons, Inc., New York (1973)
- [16] B. Zysset, I. Biaggio, P. Günther: Refractive Indices of Orthorhombic $KNbO_3$, J. Opt. Soc. Am. B /Vol.9, No. 3 / March 1992

