

Institut für Angewandte Physik
der Universität Bonn

Wegelerstraße 8
53115 Bonn

Ein lasergekühlter Indiumatomstrahl zur atomaren Nanostrukturierung

von
Claudia Weber

Diplomarbeit in Physik

angefertigt im
Institut für Angewandte Physik

vorgelegt der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität
Bonn
im November 2005

Referent: Prof. Dr. D. Meschede
Korreferent: Prof. Dr. K. Buse

Inhaltsverzeichnis

Einführung	1
1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht	3
1.1 Indium	3
1.2 Ratengleichungen	5
1.3 Dichtematrix	8
1.4 Laserkühlung	11
1.4.1 Dopplerkühlung	11
1.4.2 Subdopplerkühlung	14
1.5 Lichtmaske	17
2 Versuchsaufbau	21
2.1 Lasersysteme	21
2.1.1 Diodenlaser	21
2.1.2 Titan:Saphir-Laser und Frequenzverdopplung	21
2.2 Spektroskopie	27
2.2.1 Sättigungsspektroskopie	27
2.2.2 2-Farben-Spektroskopie	28
2.3 Ofen und Vakuumsystem	30
3 Charakterisierung des Indiumatomstrahls	33
3.1 Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung	33
3.2 Atomfluss	36
4 Experimente zur Wechselwirkung zwischen Indium und Licht	41
4.1 Optisches Pumpen	41
4.2 Laserkühlung von Indium	50
5 Deposition	55
5.1 Direkte Deposition von Indium	55
5.2 Deposition im Resistverfahren	58
5.2.1 Bestimmung der minimalen Dosis von Indium	62
6 Zusammenfassung und Ausblick	65

Inhaltsverzeichnis

A Clebsch-Gordan-Koeffizienten für Indium	67
B Sättigungsintensitäten für Indium	69
Literatur	71

Einführung

Die technologische Entwicklung der letzten Jahre verlangt nach immer kleineren Strukturen. Größere Speicherdichten, schnellere Schaltzeiten, Dotierung von Halbleitermaterialien sind nur einige Beispiele. Verschiedene Verfahren wie z. B. die optische Lithographie werden zur Zeit zur Herstellung kleiner Strukturen eingesetzt. Die Auflösung der durch die optische Lithographie erzeugten Strukturen ist durch Beugung auf die halbe Wellenlänge des Lichts limitiert. Daher beschäftigt sich die Forschung zur Zeit mit der EUV-Lithographie, welche Licht mit Wellenlängen im ultravioletten Bereich nutzt. Diese ist jedoch sehr kostspielig, da wegen der hohen Absorption von Licht der Wellenlänge unterhalb 200 nm, eine spezielle Optik (Spiegeloptik) genutzt werden muss. Weitere Möglichkeiten zur Herstellung von Submikrometerstrukturen bieten die Elektronen- und Ionenstrahlolithographie, die maskenfrei arbeiten, daher aber auch serielle Verfahren sind. Eine Alternative ist die Kombination von Lithographie und Atomoptik zur Atomolithographie.

Zwar sagte Einstein [1] schon 1917 den durch Lichtfelder auf Atome ausgeübten Strahlungsdruck voraus, welcher im Jahr 1933 auch von Frisch [2] experimentell bestätigt wurde, doch erst durch die Erfindung des Lasers, durch die uns eine intensive, monochromatische und kohärente Lichtquelle zur Verfügung steht, war die Grundlage für die Entwicklung der Atomoptik geschaffen. Der eigentliche Durchbruch gelang dann mit der Erfindung der Laserkühlung [3, 4], die es ermöglicht Atomstrahlen mit Lichtkräften zu kollimieren.

In der atomaren Nanostrukturierung [5] ist es möglich, mit neutralen Atomen Strukturen mit Periodenlängen im Nanometerbereich parallel auf wenige Quadratmillimeter zu schreiben. Ein Beugungslimit, wie bei der optischen Lithographie, kann hier wegen der im Pikometerbereich liegenden deBroglie-Wellenlängen der Atome vernachlässigt werden. Das parallele Schreiben ermöglicht kurze Belichtungszeiten. Die Strukturen werden hier durch Manipulation der Atome mit Lichtkräften hergestellt. Lichtmasken sind defektfrei, also perfekt periodisch, und wirken elementselektiv. Die einfachste immaterielle Maske ist eine eindimensionale Stehwelle, bei der Strukturen mit einer Periodizität der halben Wellenlänge des Lichts geschrieben werden. Durch Atomolithographie erzeugte Nanostrukturen sind schon für viele Elemente (Cäsium [6], Helium [7], Neon [8], Chrom [9], Natrium [10]) erreicht worden. An dem Atomolithographieexperiment in Bonn wird erstmalig das technologisch interessante Indium eingesetzt. Als Element der III. Hauptgruppe bildet es zusammen mit Elementen der V. Hauptgruppe, wie Arsen und Phosphor, einen III-V-Halbleiter. Außerdem ist es an der Atmosphäre stabil, so dass ei-

ne direkte Deposition im Einschrittverfahren möglich ist. Das Ziel unseres Experiments ist die Co-Deposition [11] von Indium und Aluminium zur Erzeugung einer periodischen Brechungsindexmodulation. Die Elementselektivität der Lichtmaske ermöglicht homogenes Aufdampfen eines Materials (hier: Aluminium) und gleichzeitige periodische Dotierung mit Indium. Zusammen mit Arsen könnten dann z. B. photonische Kristalle mit Energiebandlücken im nahinfraroten Wellenlängenbereich hergestellt werden.

Die Atomlithographie mit Indium setzt sich aus der Strahlpräparation und der Deposition von Indium auf Substraten zusammen, die in dieser Diplomarbeit beide behandelt werden.

Der erste Teil der Arbeit beschäftigt sich mit der Wechselwirkung zwischen Indium und Licht, also der Strahlpräparation. Wie in der Optik zur guten Fokussierung eines Lichtstrahls ein kollimierter Strahl erforderlich ist, so ist in der Atomoptik zur Kanalisierung der Atome durch Dipolkräfte ein kollimierter Atomstrahl nötig. Die Kollimierung erfolgt hier durch dissipative Lichtkräfte, die Laserkühlung. Da zur Erzeugung der Lichtmaske nur ein Laserstrahl genutzt werden soll, werden nur Atome eines Niveaus angesprochen. Daher müssen die Atome alle optisch in dieses Niveau gepumpt werden, um adressiert werden zu können. Zum Verständnis der Laserkühlung und der Präparation der internen Zustände wird in dieser Arbeit das optische Pumpen theoretisch und experimentell analysiert.

Der zweite Teil der Arbeit beschäftigt sich mit der Deposition. Um eine gute Auflösung der Nanostrukturen zu erreichen, ist es wichtig, die Mobilität der Indiumatome auf Substraten zu untersuchen. Um die Auflösung von Strukturen, die mit einer Lichtmaske geschrieben sind, analysieren zu können, wird zunächst ein für andere Elemente schon bekanntes Resistverfahren eingesetzt, welches sich durch kurze Belichtungszeiten und eine gute Tiefenschärfe auszeichnet. Die zur effektiven Beschädigung des Resists benötigte Indiumdosis wird bestimmt.

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

1.1 Indium

Indium ist ein Element der III. Hauptgruppe des Periodensystems mit der Ordnungszahl $Z = 49$ und hat zwei Isotope ^{113}In und ^{115}In , die mit einer Häufigkeit von 4,3 % und 95,7 % vorkommen. Der Schmelzpunkt des an der Luft stabilen Indiums liegt bei $156\text{ }^\circ\text{C}$, der Siedepunkt bei $2080\text{ }^\circ\text{C}$. Der sehr niedrige Dampfdruck p von Indium bei Raumtemperatur erfordert ein Erhitzen auf eine Temperatur T von etwa $1200\text{ }^\circ\text{C}$, um eine ausreichende Atomflussdichte von 10^{13} Atomen/ cm^2s zu erhalten. Für die Spektroskopie genügen Temperaturen in der Größenordnung $600\text{ }^\circ\text{C}$. Die Dampfdruckkurve, die durch die folgende empirische Formel [12] beschrieben wird, ist in Abbildung 1.1 dargestellt.

$$\lg \frac{p}{\text{Torr}} = 8,003 - \frac{12180\text{ K}}{T + 273\text{ K}} \quad (1.1)$$

Das in Abbildung 1.2 gezeigte Energieniveauschema des Isotops ^{115}In , das in diesem Experiment verwendet wird, zeigt die zwei stabilen Grundzustände $5P_{\frac{1}{2}}$ und $5P_{\frac{3}{2}}$, sowie den

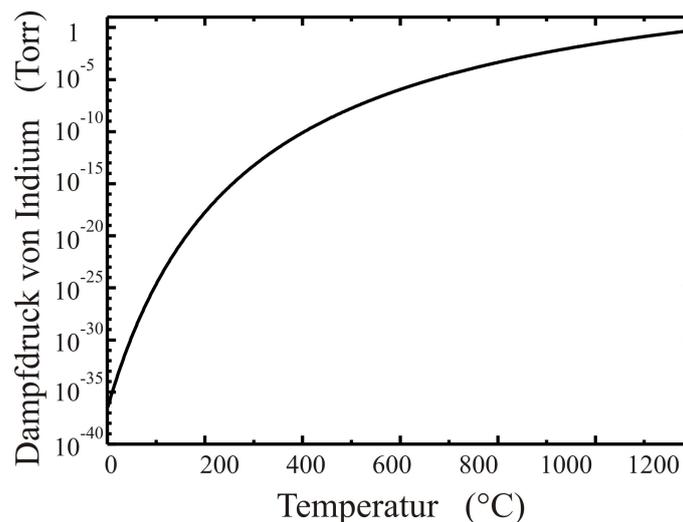


Abbildung 1.1: Dampfdruckkurve von Indium

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

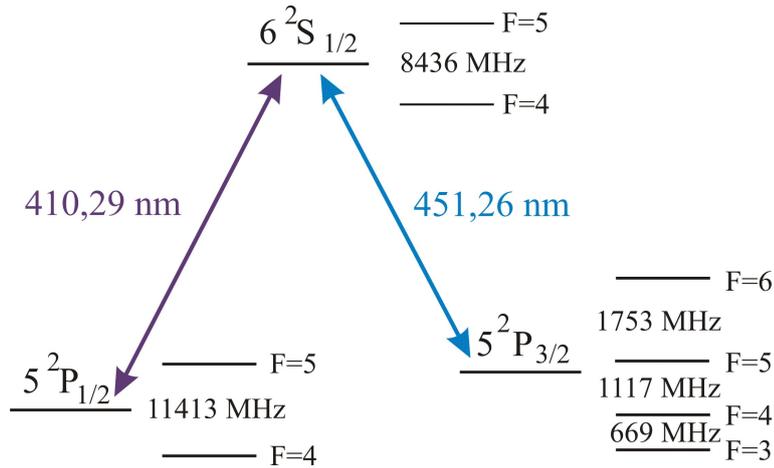


Abbildung 1.2: Energieniveauschema von Indium

angeregten Zustand $6S_{\frac{1}{2}}$ mit den dazugehörigen Hyperfeinniveaus. Die Energieabstände der Übergänge $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ und $5P_{\frac{3}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ entsprechen Wellenlängen von 410,29 nm und 451,26 nm im Vakuum [13], die Energieabstände der Hyperfeinniveaus liegen im GHz-Bereich. Das angeregte Niveau $6S_{\frac{1}{2}}$ hat eine mittlere Lebensdauer von 6,33 ns, was einer Zerfallsbreite von

$$\Gamma = 2\pi \cdot 25,1 \text{ MHz} \quad (1.2)$$

entspricht. Diese setzt sich aus den Linienbreiten der beiden Übergänge $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ ($\Gamma_{410} = 2\pi \cdot 8,9 \text{ MHz}$) und $5P_{\frac{3}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ ($\Gamma_{451} = 2\pi \cdot 16,2 \text{ MHz}$) zusammen. Die Wechselwirkung der Indiumatome mit Licht wird im nächsten Abschnitt als Vorbereitung zum Verständnis der Laserkühlung beim komplexen Energieniveausystem von Indium behandelt.

1.2 Ratengleichungen

Optisches Pumpen und Laserkühlung beruhen auf der Wechselwirkung zwischen Atomen und einem elektromagnetischen Feld. Die klassische Beschreibung der Wechselwirkung erfolgt durch Ratengleichungen. Dabei werden nur die Besetzungszahländerungen der einzelnen Energieniveaus betrachtet, wobei jedes Niveau mit der Rate Γ_{ge} durch Absorption oder stimulierte Emission von Photonen be- und entvölkert wird. Die spontane Emission des angeregten Zustands $|e\rangle$ in den Grundzustand $|g\rangle$ wird durch die natürliche Zerfallsrate γ_{ge} beschrieben. Zunächst wird ein 2-Niveau-System betrachtet. Die Ratengleichungen lauten hier

$$\begin{aligned}\frac{dN_g(t)}{dt} &= -\Gamma_{ge}N_g(t) + \gamma_{ge}N_e(t) + \Gamma_{ge}N_e(t) \\ \frac{dN_e(t)}{dt} &= +\Gamma_{ge}N_g(t) - \gamma_{ge}N_e(t) - \Gamma_{ge}N_e(t),\end{aligned}\quad (1.3)$$

wobei $N_g(t)$ die Population des Grundzustandes und $N_e(t)$ die des angeregten Niveaus zur Zeit t angibt.

Die Wahrscheinlichkeit, ein Atom im Zustand $|g\rangle$ oder $|e\rangle$ zu finden, ist eins:

$$N_g(t) + N_e(t) = 1 \quad (1.4)$$

Die Besetzungszahldifferenz

$$\Delta(t) = N_g(t) - N_e(t), \quad (1.5)$$

die sich im Gleichgewichtszustand $\dot{\Delta}(t) = 0$ nicht ändert, kann geschrieben werden als

$$\Delta = \frac{\gamma_{ge}}{2\Gamma_{ge} + \gamma_{ge}} = \frac{1}{1 + S}, \quad (1.6)$$

wobei der Sättigungsparameter S unter Berücksichtigung einer Verstimmung δ der Frequenz des elektromagnetischen Felds gegenüber der atomaren Resonanz definiert wird als:

$$S = \frac{S_0}{1 + \left(\frac{4\delta}{\gamma_{ge}}\right)^2} \quad (1.7)$$

mit

$$S_0 = \frac{2\Gamma_{ge}}{\gamma_{ge}} = \frac{I}{I_{sat}}, \quad (1.8)$$

der Sättigungsintensität I_{sat} des atomaren Übergangs und der Intensität I des Laserlichts. Somit ergibt sich für die Pumprate Γ_{ge} mit (1.3) und (1.7):

$$\Gamma_{ge} = \gamma_{ge}N_e(1 + S) = \frac{\gamma_{ge}}{2} \cdot S \quad (1.9)$$

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

Betrachtet man ein System mit Hyperfeinstruktur, so muss die Entartung $g_i = 2F_i + 1$ des i -ten Zustands, die das relative Verhältnis zwischen der Rate der stimulierten Emission und der der Absorption angibt, berücksichtigt werden. Die Ratengleichungen werden dann folgendermaßen modifiziert:

$$\begin{aligned}\frac{dN_g}{dt} &= -\Gamma_{ge}N_g(t) + \gamma_{ge}N_e(t) + \frac{g_g}{g_e}\Gamma_{ge}N_e(t) \\ \frac{dN_e}{dt} &= +\Gamma_{ge}N_g(t) - \gamma_{ge}N_e(t) - \frac{g_g}{g_e}\Gamma_{ge}N_e(t).\end{aligned}\quad (1.10)$$

Daraus ergibt sich mit (1.5) und (1.10) die neue Besetzungszahldifferenz

$$\Delta = \frac{\gamma_{ge} - 2\Gamma_{ge}(1 - \frac{g_g}{g_e})N_e}{2\Gamma_{ge} + \gamma_{ge}} \quad (1.11)$$

und die Pumprate

$$\Gamma_{ge} = \frac{\gamma_{ge}Sg_e}{g_e(2 + S) - g_gS}. \quad (1.12)$$

Zur Berechnung der Besetzungszahlen der acht Hyperfeinniveaus von Indium muss das Gleichungssystem auf acht Gleichungen erweitert werden. Für Indium erhalten wir somit für die sechs Hyperfeingrundzustände $|g_k\rangle$ und die zwei angeregten Zustände $|e_j\rangle$ folgende Differentialgleichungen:

$$\begin{aligned}\frac{dN_{g_k}}{dt} &= \sum_{j=1}^2 (-\Gamma_{g_k e_j} N_{g_k} + \gamma_{g_k e_j} N_{e_j} + \frac{g_{g_k}}{g_{e_j}} \Gamma_{g_k e_j} N_{e_j}) \\ \frac{dN_{e_j}}{dt} &= \sum_{k=1}^6 (\Gamma_{g_k e_j} N_{g_k} - \gamma_{g_k e_j} N_{e_j} - \frac{g_{g_k}}{g_{e_j}} \Gamma_{g_k e_j} N_{e_j}).\end{aligned}\quad (1.13)$$

Den Sättigungsparameter S_{kj} des Übergangs vom Grundzustand $|g_k\rangle$ in den angeregten Zustand $|e_j\rangle$ erhält man durch Summation über die Anzahl l der eingestrahnten Laserstrahlen mit einer Intensität I_l :

$$S_{kj} = \sum_l \frac{I_l}{I_{sat,kj}} \frac{1}{1 + (\frac{2(\delta + \omega_{lk})}{\gamma_{kj}})^2}. \quad (1.14)$$

Der Frequenzabstand des Hyperfeingrundzustandes $|g_l\rangle$ zum Grundzustand $|g_k\rangle$ wird durch ω_{lk} und die Verstimmung der Laserfrequenz gegenüber der Resonanz des atomaren Übergangs durch δ beschrieben. Leitet man die Ratengleichungen aus den optischen Bloch-Gleichungen [14] durch Vernachlässigen der zeitlichen Veränderung der Nichtdiagonalelemente her, so erhält man für die Pumprate

$$\Gamma_{ge} = \frac{\Omega_R^2}{\gamma_{ge}} \quad (1.15)$$

mit der Rabi-Frequenz Ω_R . Die in Anhang B aufgeführte Sättigungsintensität I_0 muss somit um den Faktor γ_{ge}/Γ modifiziert werden, wobei $\Gamma = 2\pi \cdot 25,1$ MHz die gesamte Linienbreite des angeregten Niveaus $6S_{1/2}$ ist. In Abbildung 1.3 ist die Population für die acht Hyperfeinniveaus des Indiumatoms in Abhängigkeit der Zeit für ein Lichtfeld mit 5 Frequenzen simuliert, die in Resonanz mit den atomaren Übergängen sind, welche an das angeregte Hyperfeinniveau $F = 5$ koppeln. Bei den Sättigungsparametern $S_{4 \rightarrow 5}^{410} = 0,15$, $S_{5 \rightarrow 5}^{410} = 0,21$, $S_{4 \rightarrow 5}^{451} = 0,28$, $S_{5 \rightarrow 5}^{451} = 0,20$ und $S_{6 \rightarrow 5}^{451} = 0,25$ ist das System nach einer Zeit von etwa $400 \Gamma^{-1}$ im Gleichgewicht. Die Anfangswerte für $t = 0$ entsprechen der thermischen Population der Niveaus für 1100°C . 80% der Indiumatome befinden sich im Grundzustand $5P_{1/2}$ und 20% im Niveau $5P_{3/2}$. Die Besetzungszahlen der Hyperfeinniveaus sind nach der Anzahl der Zeemann-Niveaus gewichtet. Die Zeitentwicklung der Population

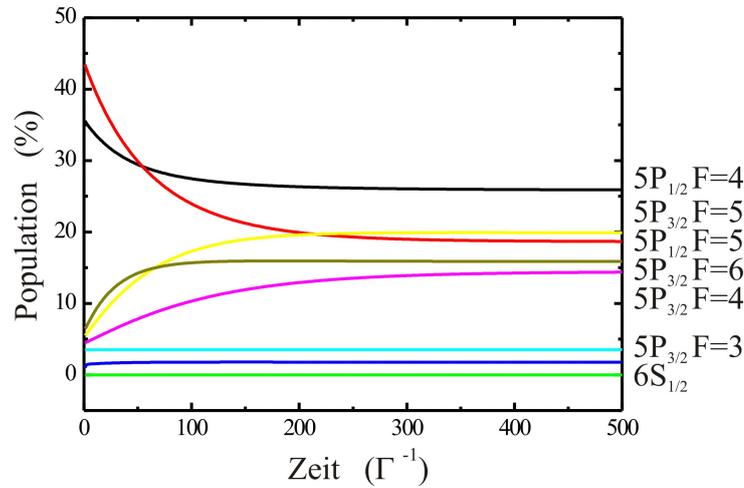


Abbildung 1.3: Population der Hyperfeinniveaus von Indium für die Sättigungsparameter $S_{4 \rightarrow 5}^{410} = 0,15$, $S_{5 \rightarrow 5}^{410} = 0,21$, $S_{4 \rightarrow 5}^{451} = 0,28$, $S_{5 \rightarrow 5}^{451} = 0,20$ und $S_{6 \rightarrow 5}^{451} = 0,25$ in Resonanz. Die Anfangspopulation entspricht der thermischen Population der Niveaus bei 1100°C .

zeigt wie erwartet eine sehr geringe Besetzung der angeregten Zustände $6S_{1/2}$ auf. Da die hier betrachteten Laserfrequenzen nur in das Hyperfeinniveau $F = 5$ anregen, finden aufgrund der Auswahlregel $\Delta F = 0, \pm 1$ sowohl kein Zerfall durch spontane Emission in den Zustand $F = 3$, als auch keine stimulierten Prozesse im Zusammenhang mit dem Grundzustand $F = 3$ statt, so dass dessen Population konstant ist. Die Reihenfolge der übrigen Niveaus ordnet sich nach der Größe der einzelnen Sättigungsparameter. Da die Streurrate proportional zum Sättigungsparameter ist, werden Atome aus stark gekoppelten Niveaus eher herausgepumpt, so dass deren Population im Gleichgewichtszustand unterhalb der Besetzungszahl der schwach gekoppelten Niveaus liegt. Die spontane Emission spielt hier dann nur noch eine untergeordnete Rolle.

1.3 Dichtematrix

Für große Sättigungsparameter S und Verstimmungen δ der Laserfrequenz gegenüber der atomaren Resonanz genügt die Wechselwirkung zwischen Atomen und elektromagnetischem Feld nicht mehr der klassischen Theorie. Die theoretische Beschreibung erfolgt nun durch die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung:

$$H(t)|\psi(\vec{r}, t)\rangle = i\hbar\frac{\partial}{\partial t}|\psi(\vec{r}, t)\rangle \quad (1.16)$$

mit

$$H(t) = H_{Atom} + H_{ww}(t), \quad (1.17)$$

wobei H_{Atom} der zeitunabhängige, ungestörte Hamiltonoperator ist, dessen Energieeigenwerte $E_n = \hbar\omega_n$ mit den dazugehörigen Eigenfunktionen ϕ_n bekannt sind und $H_{ww}(t)$ die Wechselwirkung zwischen Atom und Strahlungsfeld beschreibt. Die Gesamtwellenfunktion $|\psi\rangle$ des Systems kann als Entwicklung der ungestörten Zustände geschrieben werden.

$$|\psi(\vec{r}, t)\rangle = \sum_n c_n(t)|\phi_n(\vec{r})\rangle e^{i\omega_n t} \quad (1.18)$$

Die $|c_n|^2$ geben die Wahrscheinlichkeit an, das Atom im Zustand $|\phi_n\rangle$ vorzufinden. Somit lässt sich (1.16) mit (1.18) schreiben als

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}c_j = \sum_n c_n(t)H_{ww}(t)_{jn}e^{i\omega_{jn}t} \quad (1.19)$$

mit dem Matrixelement $H_{ww}(t)_{jn} \equiv \langle\phi_j|H_{ww}(t)|\phi_n\rangle$ und der Energiedifferenz zweier Niveaus $|j\rangle$ und $|n\rangle$ $\Delta E_{jn} = \hbar(\omega_j - \omega_n) = \hbar\omega_{jn}$. Bei einem Lichtfeld der Frequenz $\omega_l/2\pi$ und einer elektrischen Feldamplitude E_0 wird der zeitabhängige Anteil des Hamiltonoperators zu:

$$H_{ww}(t)_{jn} = \hbar\Omega_{jn} \cos(kz - \omega_l t) \quad (1.20)$$

mit der Rabi-Frequenz

$$\Omega_{jn} = -\frac{eE_0}{\hbar}\langle\phi_j|r|\phi_n\rangle\frac{g_j}{g_n}. \quad (1.21)$$

Die g_i bezeichnen die Anzahl der m_f -Untersubzustände des i -ten Niveaus. In der *rotating wave*-Näherung werden die Terme schneller Oszillation ($e^{i(\omega_{jn}+\omega_l)}$) im Hamiltonoperator vernachlässigt. Ebenso wird nach der Dipolnäherung die räumliche Abhängigkeit des elektrischen Feldvektors vernachlässigt. Daraus ergibt sich für die zeitliche Veränderung der Übergangsamplituden:

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}c_j(t) = \sum_n c_n(t)\hbar\Omega_{jn}e^{-i\delta_{jn}t} \quad (1.22)$$

Die $\delta_{jn} = \omega_{jn} - \omega_l$ sind die Verstimmungen des Lasers gegenüber der Resonanzfrequenz ω_{jn} des Übergangs $|j\rangle$ nach $|n\rangle$.

Eine Möglichkeit hiermit quantenmechanische Vielteilchensysteme zu beschreiben, ist die Einführung der Dichtematrix ρ . Sie ist definiert als

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi|. \quad (1.23)$$

Ihre Einträge ergeben zusammen mit (1.18)

$$\rho_{jk} = \langle\phi_j|\rho|\phi_k\rangle = c_j c_k^*. \quad (1.24)$$

Das Diagonalelement ρ_{ii} gibt somit die Wahrscheinlichkeit an, dass sich das Atom im Zustand $|i\rangle$ befindet. Die Nichtdiagonalelemente hängen von der Phasendifferenz zwischen c_j und c_k ab und werden Kohärenzen genannt. Mit (1.24) und (1.22) wird die zeitliche Veränderung der Dichtematrixeinträge durch

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho_{ij} = \frac{\hbar}{2} \sum_k (\rho_{kj}(t) \Omega_{ik} e^{-i\delta_{ik}t} - \rho_{ik}(t) \Omega_{jk}^* e^{i\delta_{jk}t}) \quad (1.25)$$

berechnet. Hier wurde die Annahme gemacht, dass jeder atomare Übergang nur durch jeweils einen Laserstrahl beeinflusst wird. Sollen mehrere elektromagnetische Felder verschiedener Verstimmungen pro Übergang berücksichtigt werden, wie zum Beispiel beim Verstimmen der Laser über einen großen Frequenzbereich oder bei sehr kleinen Energieabständen der Grundzustände, muss zusätzlich über die Anzahl m der Laserfrequenzen summiert werden.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho_{ij} = \frac{\hbar}{2} \sum_k \left(\sum_m (\rho_{kj}(t) \Omega_{ik,m} e^{-i\delta_{ik,m}t} - \rho_{ik}(t) \Omega_{jk,m}^* e^{i\delta_{jk,m}t}) \right) \quad (1.26)$$

Neben der stimulierten Emission muss auch die spontane Emission berücksichtigt werden, die nach [14] zu (1.25) hinzuaddiert werden kann. Man erhält die Liouville-von Neumann-Gleichung:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{ij} = -\frac{i}{2} \sum_k (\rho_{kj}(t) \Omega_{ik} e^{-i\delta_{ik}t} - \rho_{ik} \Omega_{jk}^* e^{i\delta_{jk}t}) + (L\rho)_{ij} \quad (1.27)$$

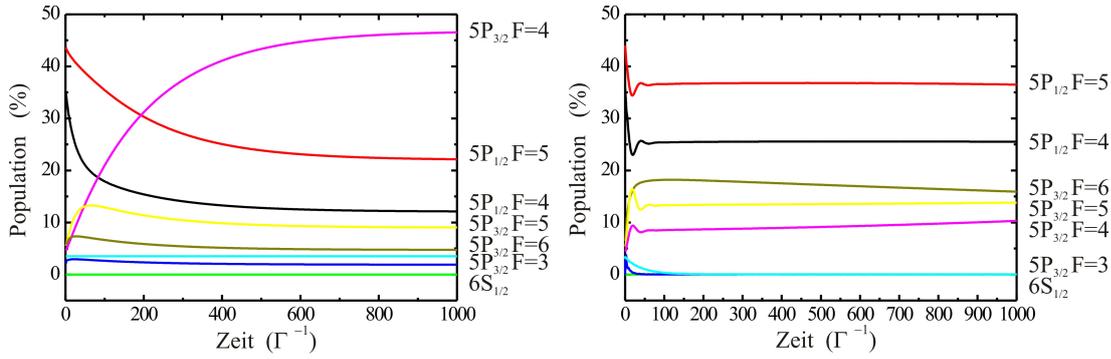
wobei $(L\rho)_{ij}$ die ij -te Komponente der Verlustmatrix

$$L\rho = \sum_{k,n} \left(\gamma_{kn} |\phi_k\rangle\langle\phi_n| \rho |\phi_n\rangle\langle\phi_k| - \frac{1}{2} \gamma_{kn} (|\phi_n\rangle\langle\phi_n| \rho + \rho |\phi_n\rangle\langle\phi_n|) \right) \quad (1.28)$$

in Lindblad-Form ist.

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

In Abbildung 1.4 werden die Simulationen der zeitlichen Entwicklung der Hyperfeinniveaupopulation der Indiumatome durch Ratengleichungen (Abbildung 1.4(a)) und durch Dichtematrix (Abbildung 1.4(b)) verglichen. Die Wechselwirkung der Atome mit fünf gleichzeitig eingestrahlten Laserfrequenzen, die um $0,1 \Gamma$ ($\Gamma = 25,1 \text{ MHz}$) gegenüber den atomaren Resonanzen mit dem angeregten Zustand $6S_{1/2}$ verstimmt sind, wird dabei untersucht. Die Sättigungsparameter ($S = I/I_0$) der einzelnen Übergänge werden gewählt als $S_{4 \rightarrow 5}^{410} = 0,35$, $S_{5 \rightarrow 5}^{410} = 0,24$, $S_{4 \rightarrow 5}^{451} = 0,20$, $S_{5 \rightarrow 5}^{451} = 0,54$ und $S_{6 \rightarrow 5}^{451} = 1,07$. Die Simulatio-



(a) Simulation der Zeitentwicklung der Popula-
tion mit Ratengleichungen

(b) Simulation der Zeitentwicklung der Popula-
tion mit Dichtematrix

Abbildung 1.4: Simulationen ((a) Ratengleichung und (b) Dichtematrix) zur zeitlichen Entwicklung der Hyperfeinniveaupopulationen von Indium. Es werden fünf Laserfrequenzen mit einer Verstimmung von $\delta = 0,1 \Gamma$ mit $\Gamma = 25,1 \text{ MHz}$ eingestrahlt. Die Anfangspopulation entspricht der thermischen Population der Niveaus bei $1100 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Sättigungsparameter der einzelnen Übergänge auf Resonanz sind: $S_{4 \rightarrow 5}^{410} = 0,35$, $S_{5 \rightarrow 5}^{410} = 0,24$, $S_{4 \rightarrow 5}^{451} = 0,20$, $S_{5 \rightarrow 5}^{451} = 0,54$, $S_{6 \rightarrow 5}^{451} = 1,07$

nen, deren Anfangsbedingungen der thermischen Besetzung der einzelnen Niveaus bei $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ entsprechen, zeigen deutliche Unterschiede im zeitlichen Verlauf der Besetzungszahlen. Die Verteilungen der Population bei $1000 \Gamma^{-1}$ weichen deutlich von einander ab. Die Lösung der Ratengleichungen zeigt auch bei einer Verstimmung aller Laserfrequenzen den Sättigungsparametern entsprechende Besetzungswahrscheinlichkeiten der einzelnen Niveaus. Das System befindet sich hier nach etwa $1000 \Gamma^{-1}$ im Gleichgewicht, wohingegen das halbklassisch berechnete System den Gleichgewichtszustand noch nicht erreicht hat, was eindeutig an den $5P_{3/2}$ -Zuständen zu erkennen ist. Andererseits zeigt die Dichtematrixlösung im Gegensatz zur Ratengleichungslösung schon nach etwa $100 \Gamma^{-1}$ nur noch eine geringe Abweichung von der Endpopulation. Bei kleinen Zeiten zwischen 0 und $100 \Gamma^{-1}$ sind zudem gedämpfte Oszillationen erkennbar, die durch die Kohärenzen hervorgerufen werden. Ein weiterer Einfluss der Kohärenzen zeigt sich in der Besetzungszahländerung des nicht direkt durch Licht gekoppelten Niveaus $5P_{3/2} F=3$. Der Vergleich der beiden Graphen lässt auf einen nicht zu vernachlässigenden Einfluss der Kohärenzen in dem hier betrachteten Energieniveausystem von Indium schließen.

1.4 Laserkühlung

Die Atomlithographie erfordert einen gut kollimierten Atomstrahl und eine hohe Flussdichte. Mit auf die Atome wirkenden Lichtkräften kann die transversale Geschwindigkeit der Indiumatome des Atomstrahls reduziert und die Phasenraumdicke erhöht werden. Von Laserkühlung spricht man, da die mittlere kinetische Energie $\langle E_{kin} \rangle$ und damit die Geschwindigkeit mit der Temperatur T korreliert ist.

1.4.1 Dopplerkühlung

Absorbiert ein Atom ein Photon aus einem Lichtfeld, wird der Impuls $\hbar k$ des Photons in Ausbreitungsrichtung des Lichts auf das Atom übertragen. Bei anschließender spontaner Emission in beliebige Richtung, die bei Lichtfeldern kleiner Intensitäten gegenüber der stimulierten Emission dominiert, erfährt es einen Rückstoß entgegengesetzt zum emittierten Photon. Über viele Streuvorgänge gemittelt findet so kein Nettoimpulsübertrag durch spontane Emission statt. Für die Annahme vieler Streuungen ist ein geschlossener optischer Übergang erforderlich. Die Kraft, die durchschnittlich auf das Atom durch Absorption und spontane Emission ausgeübt wird, ist nach [14]:

$$\vec{F} = \frac{\hbar \vec{k} S_0 \frac{\gamma}{2}}{1 + S_0 + \left(\frac{2(\delta - \omega_D)}{\gamma}\right)^2}, \quad (1.29)$$

wobei $S_0 = \frac{I}{I_{sat}}$ der Sättigungsparameter, γ die natürliche Linienbreite des angeregten Zustands, δ die Verstimmung des Laserlichts gegenüber der atomaren Resonanz und $\omega_D = \vec{k} \cdot \vec{v}$ mit der Geschwindigkeit \vec{v} des Atoms die Dopplerverschiebung sind. Der größte Streuquerschnitt eines ruhenden Atoms tritt bei Resonanz der Laserfrequenz mit dem atomaren Übergang auf. Atome streuen daher wegen des Dopplereffekts Photonen aus einem entgegengesetzt zu ihrer Ausbreitungsrichtung laufenden Strahl eher, wenn dieser negativ (rot) gegenüber der atomaren Resonanz verstimmt ist (Abbildung 1.5). Nach vielen Streuprozessen nimmt so die Geschwindigkeit des Atoms ab, da im Mittel ein Impulsübertrag entgegen seiner Bewegungsrichtung stattfindet. Betrachtet man ein Atom in zwei entgegengesetzt laufenden Laserstrahlen gleicher Frequenz, so addieren sich die von den Lichtfeldern auf das Atom ausgeübten Kräfte zu:

$$\vec{F} = \vec{F}_+ + \vec{F}_- \quad (1.30)$$

Unter Vernachlässigung von Termen ab der Ordnung $\left(\frac{kv}{\gamma}\right)^4$ ergibt sich

$$\vec{F} \cong \frac{8\hbar k^2 \delta S_0 \vec{v}}{\gamma(1 + S_0 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2)} \equiv -\beta \vec{v} \quad (1.31)$$

Bei Rotverstimmung ($\delta < 0$) der Laserfrequenz wirkt die Kraft der Bewegung des Atoms entgegen und führt zur Dämpfung (siehe Abbildung 1.6). Dies entspricht einer

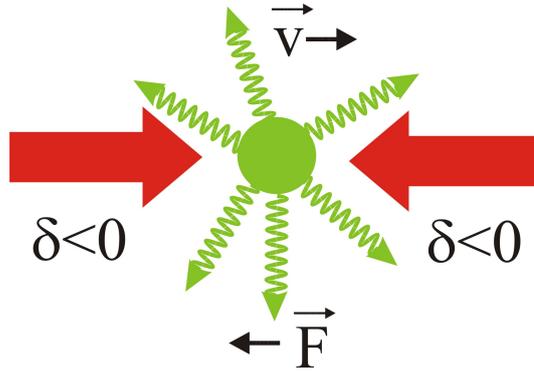


Abbildung 1.5: Ein sich mit Geschwindigkeit \vec{v} bewegendes Atom in einem Lichtfeld zweier entgegengesetzt laufender, rotverstimmter ($\delta < 0$) Laserstrahlen. Die spontane Emission erfolgt in eine beliebige Richtung.

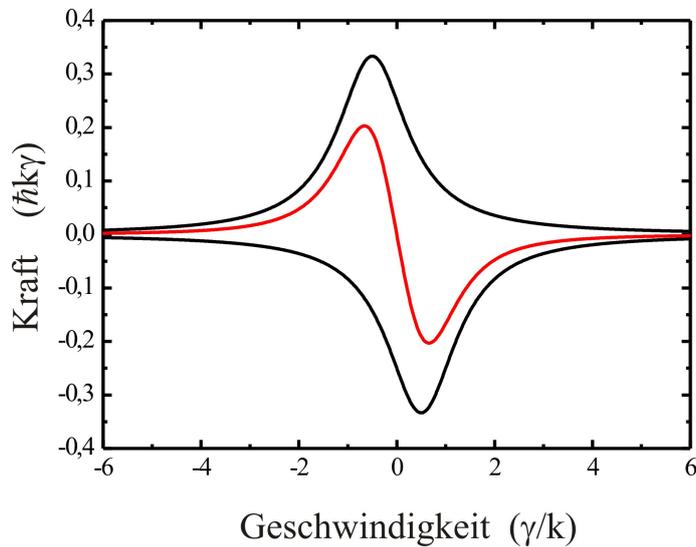


Abbildung 1.6: Dämpfende Kraft in Abhängigkeit der Geschwindigkeit des Atoms für eine Verstimmung $\delta = -\gamma/2$ und einen Sättigungsparameter $S_0 = 2$. Die Kräfte F_{\pm} der einzelnen Laserstrahlen (schwarz) addieren sich zur Gesamtkraft F (rot).

zur Geschwindigkeit proportionalen Reibungskraft mit einem Reibungskoeffizienten β . Die Laserkühlung wird auch als eindimensionale optische Melasse bezeichnet. Die Kraft erreicht ihr Maximum bei der Verstimmung von $\delta = -\gamma/2$ und einem Sättigungsparameter von $S_0 = 2$. Sie wird also durch die natürliche Linienbreite beschränkt. Diesem von Hänsch und Schawlow [3] entdeckten Kühlvorgang wirkt der durch die spontane Emission verursachte, in seiner Richtung zufällige, Impulsübertrag als Heizprozess entgegen, so dass die Temperatur von 0 K nicht erreicht werden kann. Das entsprechende Tempe-

raturminimum T_D wird als Dopplertemperatur oder auch als Dopplerlimit bezeichnet.

$$T_D = \frac{\hbar\gamma}{2k_B}. \quad (1.32)$$

Bei Indium sind zur Realisierung eines geschlossenen Übergangs fünf Wellenlängen erforderlich, um die Atome in den entsprechenden Kühlübergang zurückzupumpen. Man unterscheidet dann die Dopplertemperaturen T_D^{410} und T_D^{451} und die entsprechenden Dopplergeschwindigkeiten v_D^{410} und v_D^{451} je nach Kühlübergang in den Grundzustand $5P_{\frac{1}{2}}$ oder $5P_{\frac{3}{2}}$.

$$T_D^{410} = 214 \mu\text{K} \Rightarrow v_D^{410} = 17,5 \frac{\text{cm}}{\text{s}}$$

$$T_D^{451} = 389 \mu\text{K} \Rightarrow v_D^{451} = 23,6 \frac{\text{cm}}{\text{s}}$$

Nur ein kleiner Geschwindigkeitsbereich ($\pm 0,66 \gamma/\text{k}$) erfährt die Reibungskraft in der Näherung (1.31). Für Indiumatome berechnet sich der Einfangbereich mit linearer Abhängigkeit der Kraft von der transversalen Geschwindigkeit der Atome je nach Kühlübergang zu

$$v_{410} = 2,4 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad (1.33)$$

$$\text{oder } v_{451} = 4,8 \frac{\text{m}}{\text{s}} \quad (1.34)$$

bei einer Verstimmung von $\delta = -\gamma/2$ und einem Sättigungsparameter von $S_0 = 2$. Die transversale Geschwindigkeit der Indiumatome des thermischen Atomstrahls liegt mit etwa 2 m/s darunter, so dass alle Atome adressiert werden können.

1.4.2 Subdopplerkühlung

Polarisationsgradientenkühlen

Um Temperaturen unterhalb des Dopplerlimits zu erreichen, kann Polarisationsgradientenkühlen eingesetzt werden [15]. Hier wird nun die von Dalibard und Cohen-Tannoudji [16] theoretisch behandelte lin \perp lin-Konfiguration vorgestellt.

Propagieren zwei linear orthogonal zueinander polarisierte Laserstrahlen gleicher Frequenz antiparallel, so ergibt die Superposition der beiden Strahlen eine Polarisationsänderung des gesamten Lichtfeldes von positiv zirkular (σ^+) zu linear, zu (σ^-), zu linear und zurück zu (σ^+) innerhalb der halben Wellenlänge der Laserstrahlen (siehe Abbildung 1.7). Ein Atom in einem elektrischen Feld erfährt wegen des Stark-Effekts eine Verschie-

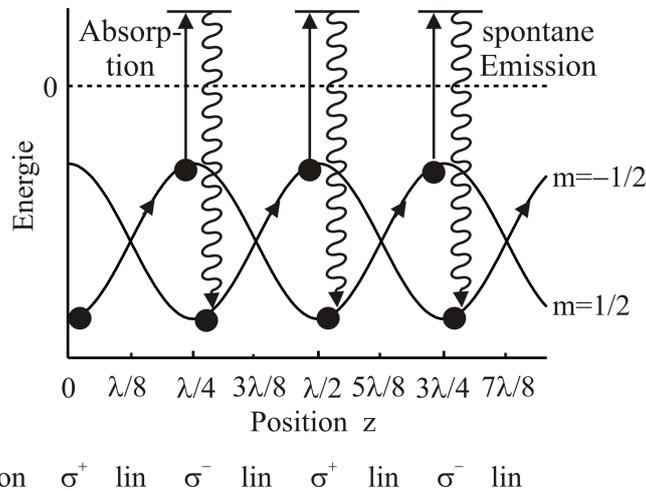


Abbildung 1.7: Polarisationsgradientenkühlen: Die Unterniveaus erfahren aufgrund Intensitäts- und Polarisationsgradienten eine ortsabhängige Energieverschiebung. Durch Umwandeln der kinetischen Energie in potentielle, optisches Pumpen und anschließende spontane Emission verlieren sie Energie und werden gekühlt.

bung der Energie der magnetischen Unterniveaus. Diese Energieänderung ist nach

$$\Delta E_g = \frac{\hbar \delta S_0 C_{ge}^2}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \quad (1.35)$$

abhängig vom Clebsch-Gordan-Koeffizienten C_{ge} und damit auch von der magnetischen Quantenzahl des Atoms und der Polarisation des Lichts. Aus einer negativen Verstimmung ($\delta < 0$) des Lasers gegenüber der Resonanz resultiert eine negative Energieverschiebung und aus einer positiven Frequenzverstimmung eine positive Energieverschiebung. Betrachtet man nun den einfachsten Fall, den Übergang $J_g = \frac{1}{2} \rightarrow J_e = \frac{3}{2}$ eines Atoms mit Kernspin 0, dann tritt das Subdopplerkühlen bei negativer Verstimmung durch den in Abbildung 1.7 dargestellten Vorgang auf. Das Atom bewegt sich in z-Richtung und ist bei $z = 0$ im Lichtfeld positiv zirkularer Polarisation. Die Atome werden

aufgrund der Auswahlregel $\Delta m = +1$ für die Absorption von σ^+ -Licht und anschließender Emission ($\Delta m = 0, \pm 1$) in das Unterniveau $m_g = \frac{1}{2}$ gepumpt. Bei Annahme geringer Intensitäten ($S_0 < 1$) kann die stimulierte Emission vernachlässigt werden. Da die Energie des $m_g = \frac{1}{2}$ -Niveaus wegen der Polarisationsänderung zu σ^- nach einer Strecke von $\frac{\lambda}{4}$ größer wird, läuft das Atom in Richtung Potenzialmaximum, und seine kinetische Energie wird in potentielle Energie konvertiert. Die Geschwindigkeit des Atoms nimmt somit ab. Das σ^- -polarisierte Licht pumpt das Atom optisch in das $m_g = -\frac{1}{2}$ -Niveau, welches nun eine geringere Energie hat. Die Energiedifferenz der beiden Zustände geht durch spontane Emission in Strahlungsenergie über. Dieser Vorgang der Konversion der kinetischen Energie in potentielle und anschließende Abgabe als Strahlung wiederholt sich, bis die kinetische Energie nicht mehr ausreicht, das Potenzialmaximum zu überwinden. Effizientes Subdopplerkühlen ist nur für einen kleinen Geschwindigkeitsbereich möglich, da Atome mit zu hoher Geschwindigkeit das Potenzialmaximum überwinden ohne optisch gepumpt zu werden (Abbildung 1.8). Das hier beschriebene Subdopplerkühlen durch Rotverstimmen der Frequenz ist nur für Übergänge $F \rightarrow F + 1$ gültig. Bei $F \rightarrow F - 1$, wie dies bei Indium auftreten kann ($5P_{\frac{3}{2}} F=6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$), ändern sich die Eigenschaften der Clebsch-Gordan-Koeffizienten für die Zeemann-Niveaus m_F bei zirkularer Polarisation, wie in Anhang A aufgeführt, so dass Kühleffekte durch Blauverstimmen auftreten.

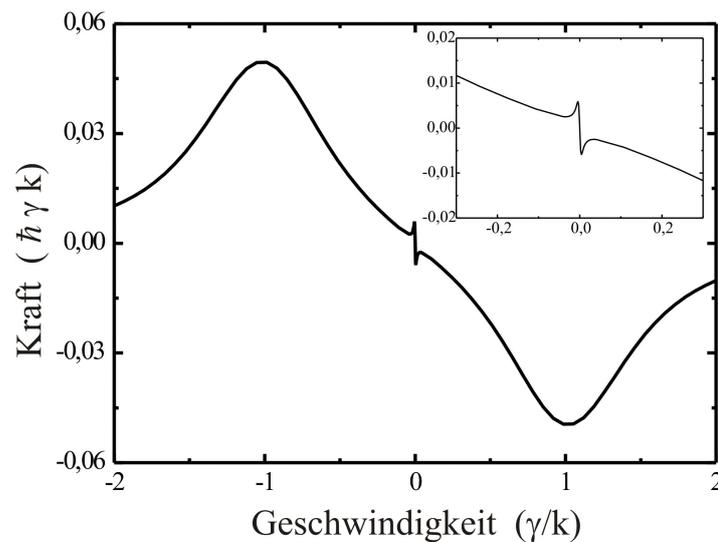
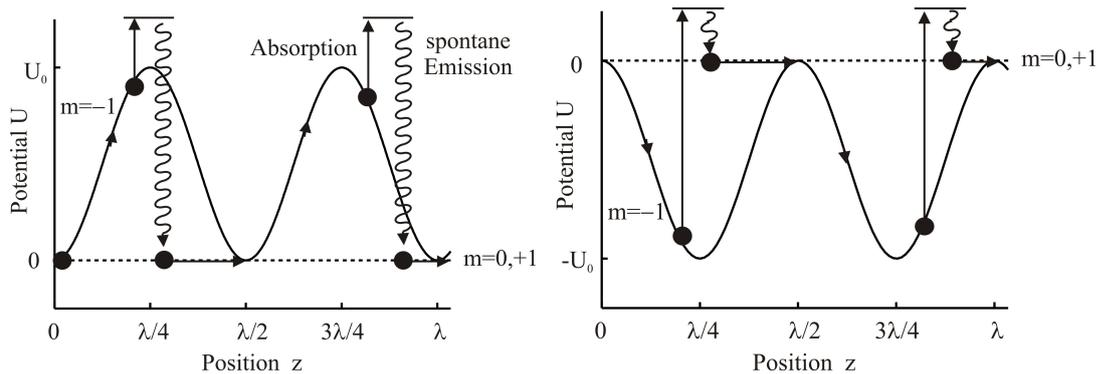


Abbildung 1.8: Kraft in Abhängigkeit der Geschwindigkeit für den Übergang $\frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2}$ für Polarisationsgradientenkühlen in $\text{lin} \perp \text{lin}$ -Konfiguration: Zusätzlich zur Kraft des Dopplerkühlens ist eine Substruktur bei kleinen Geschwindigkeiten erkennbar.

Transientes Laserkühlen

In der Atomlithographie mit Indium soll eine transversale Kühlung des Atomstrahls erreicht werden. Die Atome haben also nur eine endliche Wechselwirkungszeit mit dem Licht, so dass auch transiente Effekte in Betracht gezogen werden müssen. Eine Möglichkeit, hierbei Temperaturen unterhalb des Dopplerlimits zu erhalten, ist das transiente Laserkühlen [17] mit niedrigen Intensitäten. Hier wird die Verschiebung der Energieniveaus durch den Stark-Effekt zusammen mit optischem Pumpen in mit dem Licht nicht resonante Zustände, sogenannte Dunkelzustände, ausgenutzt. Das System befindet sich also nicht im Gleichgewicht, und Grundzustände mit vielen Unterniveaus sind erforderlich. Atome, deren Geschwindigkeitskomponenten parallel zur Ausbreitungsrichtung k des Laserstrahls klein sind, wie es bei der transversalen Kühlung eines Atomstrahls der Fall ist, erfahren in einer Stehwelle zweier Laserstrahlen eine räumlich variierende Energieverschiebung mit dem Potenzial $U(z) = U_0 \cdot \sin^2(kz)$. U_0 verhält sich proportional zur Intensität des einfallenden Lichtfeldes, und sein Vorzeichen ist abhängig von der Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanzfrequenz. Die sinusförmige Kraft wirkt auf ein Atom, bis es in einen Dunkelzustand gepumpt wird. Die Zeitskala des Kühlens ist somit von der Pumprate $\Gamma = \Gamma_0 \cdot \sin^2(kz)$ abhängig. Im Knoten der Stehwelle verschwindet Γ_0 , so dass die Atome nahe des Knotens im Gegensatz zu Atomen in der Nähe des Bauches lange Zeit ohne Wechselwirkung im Lichtfeld bleiben. Bei einer Verstimmung $\delta > 0$ wird kinetische Energie des Atoms in potentielle umgewandelt, wenn sich das Atom vom Knoten des Lichtfeldes in Richtung Bauch bewegt (siehe Abbildung 1.9(a)). Bei umgekehrter Bewegungsrichtung wird kinetische Energie gewonnen. Die potentielle Energie wird durch spontane Emission in Dunkelzustände abgestrahlt. Der Energieverlust überwiegt den Energiegewinn wegen der geringen Pumprate in Knotennähe. Die Atome werden daher gekühlt. Bei negativer Verstimmung ist das Verhalten genau entgegengesetzt (Abbildung 1.9(b)), was zu einem Heizen führt.



(a) Potenzialverlauf in Abhängigkeit der Position für $\delta > 0$ (b) Potenzialverlauf in Abhängigkeit der Position für $\delta < 0$

Abbildung 1.9: Transientes Kühlen an einem Beispiel für positiv zirkulares Licht für einen Hyperfeinniveauübergang $F = 1 \rightarrow F = 0$

1.5 Lichtmaske

Zusätzlich zur in Kapitel 1.4 erläuterten dissipativen Kraft wirkt auf Atome in elektromagnetischen Feldern großer Intensitätsgradienten die Dipolkraft. Befindet sich ein Atom in einem Lichtfeld, so wird in dem Atom ein elektrisches Dipolmoment induziert, welches mit dem Lichtfeld wechselwirkt. Das Dipolmoment in einem elektromagnetischen Wechselfeld, wie es Laserstrahlen sind, oszilliert wie ein harmonischer Oszillator. Die Kraft \vec{F}_{Dipol} , die auf das Atom wirkt, ist im Gegensatz zur spontanen Streukraft konservativ und kann daher als Gradient eines Potentials U geschrieben werden. Sie wird durch [18]

$$\vec{F}_{Dipol} = -\nabla U \quad (1.36)$$

gegeben und ergibt als Näherung für große Verstimmungen δ gegenüber der natürlichen Linienbreite Γ

$$U(x) \propto \frac{\Gamma}{\delta} I(x) \quad (1.37)$$

und

$$\vec{F}_{Dipol}(x) = -\frac{\hbar\Gamma^2}{8\delta} \frac{\nabla I(x)}{I_{sat}}. \quad (1.38)$$

Sie ist proportional zum Intensitätsgradienten $\nabla I(x)$ des Lichtfeldes und umgekehrt proportional zur Verstimmung δ des Lasers gegenüber der atomaren Resonanz des Dipolmoments. Die Richtung der Kraft ist vom Vorzeichen der Verstimmung abhängig. Für einen blauverstimmtten Laser ($\delta > 0$) wirkt die Kraft in Richtung Intensitätsminimum, für negative Verstimmung (rotverstimmt) in Richtung Intensitätsmaximum. Ein Lichtfeld mit großem Intensitätsgradienten wird zum Beispiel durch eine optische Stehwelle realisiert, deren ortsabhängige Intensität mit einer Periodizität von $\lambda/2$

$$I(x) = I_0 \cdot \sin^2(kx) \quad (1.39)$$

variiert. Je größer die Intensität I_0 der Lichtstrahlen ist, desto tiefer ist der Potenzialtopf und desto stärker der Gradient und damit die auf das Atom wirkende Kraft.

Ein solches Stehwellenfeld wird in der Atomlithographie als immaterielle Maske zur Erzeugung von Nanostrukturen eingesetzt. Es wirkt auf die Atome wie ein Feld aus Zylinderlinsen und kanalisiert sie je nach Verstimmung entlang der Intensitätsmaxima oder Minima. Es folgt eine periodische Flussdichteverteilung parallel zur Lichtmaske. Da die spontane Emission in beliebige Richtung erfolgt und somit zu einem Heizen führt, muss die Streurrate

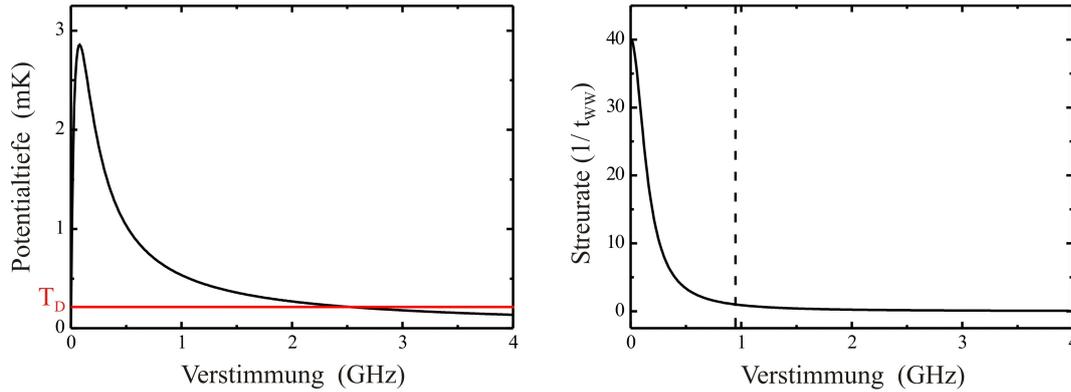
$$\Gamma_P \propto \frac{I}{\delta^2} \quad (1.40)$$

der Photonen reduziert werden. Die Streurrate nimmt im Gegensatz zum Potenzial U (Gleichung (1.37)) quadratisch mit δ ab, weshalb große Verstimmungen erforderlich sind,

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

wobei die resultierende Kraftverringerung durch Erhöhung der Intensität kompensiert werden kann.

Betrachtet man für Indium eine Stehwelle, deren Frequenz relativ zu dem Übergang $5P_{1/2} F=4 \rightarrow 6S_{1/2} F=5$ verstimmt ist, so ergibt sich für eine typische Laserleistung von 10 mW und eine typische Strahltaile von $140 \mu\text{m}$ der in Abbildung 1.10(a) dargestellte Verlauf der Potentialtiefen in Abhängigkeit der Verstimmung. Für eine effektive Kana-



(a) Potenzialverlauf (schwarz) in Abhängigkeit von der Verstimmung, rot: Dopplertemperatur, gestrichelt: maximale Verstimmung zur effektiven Fokussierung
 (b) Mittlere Anzahl gestreuter Photonen pro Atom bei einer Wechselwirkungslänge von $140 \mu\text{m}$, gestrichelt: minimale Verstimmung, die einer mittleren Streurrate von einem Photon während der Wechselwirkungszeit $0,5 \mu\text{s}$ entspricht

Abbildung 1.10: Bestimmung einer geeigneten Verstimmung

lisierung der Atome muss die Potentialtiefe oberhalb der Dopplertemperatur (rot) von $T_D^{410} = 214 \mu\text{K}$ liegen, so dass sich eine obere Grenze von 2,5 GHz ergibt. Die in Abbildung 1.10(b) aufgetragene mittlere Anzahl gestreuter Photonen pro Atom bei einer typischen Wechselwirkungslänge von $140 \mu\text{m}$, welches bei einer Geschwindigkeit der Atome von 544 m/s einer Wechselwirkungszeit t_{WW} von $0,5 \mu\text{s}$ entspricht, setzt die untere Grenze des Verstimmungsbereichs fest. Um die Streurrate vernachlässigen zu können, muss die Wahrscheinlichkeit, dass ein Atom ein Photon während seiner Durchflugzeit durch das Lichtfeld streut, kleiner eins sein. Daraus ergibt sich zusammen mit der Dopplertemperatur ein Verstimmungsbereich von 950 MHz bis 2,5 GHz.

Die Auflösung der Strukturen wird durch Abbildungsfehler wie in der klassischen Optik limitiert. Entscheidend sind vor allem die Divergenz des Atomstrahls sowie die sphärische und chromatische Abberation. Die Fokusbreite verhält sich proportional zur Divergenz des Atomstrahls. Daher ist eine gute Kollimierung des Atomstrahls, die durch die in Kapitel 1.3 beschriebene transversale Laserkühlung erreicht werden kann, unbedingt erforderlich. Ein thermischer Atomstrahl hat neben der transversalen Geschwindigkeitsverteilung auch eine relativ große longitudinale Geschwindigkeitsverteilung. Atome unter-

schiedlicher Geschwindigkeitsklassen werden an unterschiedlichen Positionen fokussiert. Dieser Linsenfehler wird als chromatische Abberation bezeichnet. Da nur das Zentrum einer Linse durch ein harmonisches Potenzial beschrieben werden kann, werden Atome, die am Rand der Linse eintreffen, wegen des dort nur flachen Potenzials nicht rechtzeitig fokussiert. Diese sphärische Abberation kann durch hohe Intensitäten minimiert werden. Die beugungsbegrenzte Auflösung kann in der Atomoptik vernachlässigt werden, da die deBroglie-Wellenlänge im Pikometerbereich liegt.

1 Wechselwirkungen zwischen Indium und Licht

2 Versuchsaufbau

2.1 Lasersysteme

Die im vorigen Kapitel beschriebene Laserkühlung erfordert einen geschlossenen Übergang, für den beim Indiumatom fünf Frequenzen benötigt werden. In diesem Abschnitt werden nun die Lasersysteme zur Erzeugung der entsprechenden Frequenzen vorgestellt.

2.1.1 Diodenlaser

Zur Erzeugung des Lichts der Wellenlänge von 410 nm für den Übergang $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ werden Diodenlaser von Toptica (Model: DL100) mit GaN-Dioden von Nichia mit einer Ausgangsleistung von 25 mW eingesetzt. Durch die Gitterstabilisierung in Littrow-Anordnung wird die Linienbreite der Laser auf 10 MHz reduziert, wobei die Leistung hinter dem Gitter noch 8 mW beträgt. Ihre Frequenz kann durch Variation des Stroms, der Temperatur und der Position des Gitters eingestellt werden. Der am Gitter befestigte Piezo dient zur Winkeländerung des Gitters relativ zum Laserlicht und wird für die Verstimmung der Laserfrequenz benutzt. Durch Vorwärtskopplung des Stroms (feed-forward-current), der proportional zur am Piezo angelegten Spannung dem Diodenstrom hinzuaddiert wird, wird ein großer modensprungfreier Verstimmungsbereich von etwa 20 GHz gewährleistet.

2.1.2 Titan:Saphir-Laser und Frequenzverdopplung

Das 451 nm-Licht für den Übergang $5P_{\frac{3}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ wird durch die Frequenzverdopplung des Laserlichts der Wellenlänge 902 nm eines Titan:Saphir-Lasers (Microlase Optical Systems: Model MBR-110) erzeugt. Zur Minimierung der Absorption des Laserlichts durch Wasser in der Absorptionsbande bei 880 nm bis 980 nm wird der Ringresonator des Titan:Saphir-Lasers (Ti:Sa) mit Stickstoff gespült. Bei einer Pumpleistung von 10 W mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser der Wellenlänge 532 nm wird eine Ausgangsleistung von typischerweise 800 mW bei 902 nm erzielt. Dieses Licht muss frequenzverdoppelt werden, um die gewünschte Wellenlänge von 451 nm zu erlangen.

Frequenzverdopplung

Die optische Frequenzverdopplung wurde experimentell erstmals 1961 von Franken et al. [19] nachgewiesen und ein Jahr später theoretisch durch Armstrong et al. [20] beschrieben. In unserem Experiment wird sie angewendet, um Licht der Wellenlänge 451 nm aus 902 nm Licht des Ti:Sa-Lasers zu generieren. Durchläuft ein Laserstrahl hoher Intensität ein anisotropes Medium, so treten nichtlineare Effekte auf. Zusätzlich zur linearen Abhängigkeit der Polarisierung P des Mediums vom einfallenden elektrischen Feld E tritt nun ein Anteil höherer Ordnung,

$$P(2\omega, \vec{k}_{2\omega}) = \frac{1}{2}\varepsilon_0 \sum \chi_{jk}(2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega, \vec{k}_\omega) E_k^*(\omega, \vec{k}_\omega) \quad (2.1)$$

auf, da im Gegensatz zu isotropen Materialien, die inversionssymmetrisch sind, die Polarisierung 2. Ordnung nicht verschwindet. Die Suszeptibilität χ , die eine Materialkonstante ist, ist bei anisotropen Materialien ein Tensor 3. Stufe. Das elektrische Feld E_ω einer ebenen, elektromagnetischen Welle der Frequenz $\omega/2\pi$ mit Wellenvektor \vec{k}_ω in Ausbreitungsrichtung \vec{r} kann folgendermaßen beschrieben werden:

$$E_\omega(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}[E(\omega, \vec{k}_\omega)e^{i(\omega t - \vec{k}_\omega \vec{r})} + c.c.]. \quad (2.2)$$

Daraus ergibt sich durch Entwicklung der Polarisierung nach Potenzen der elektrischen Feldstärke zusammen mit Gleichung (2.1) für die 2. Ordnung der Polarisierung:

$$P^2(\vec{r}, t) \propto \varepsilon_0^2 \chi^2 [2EE^* + (E^2 e^{2i(\omega t + \vec{k}_\omega \vec{r})} + c.c.)] \quad (2.3)$$

Der erste Summand gibt die optische Gleichrichtung an, die einem statischen Feld entspricht. Die beiden anderen Summanden beschreiben die Frequenzverdopplung, also die Erzeugung einer elektromagnetischen Welle der Frequenz 2ω . Die Intensität $I_{2\omega}$ einer frequenzverdoppelten Welle nach einem Kristall der Länge L ist proportional zu

$$I_{2\omega} \sim E_{2\omega}(L)E_{2\omega}^*(L) \quad (2.4)$$

$$= \frac{\mu_0 d^2 \omega^2}{\varepsilon_0 n_{2\omega}^2} I_\omega^2 L^2 \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (2.5)$$

Eine hohe Konversionseffizienz erfordert daher einen möglichst langen Kristall, einen großen nichtlinearen Koeffizienten d , eine hohe Intensität I_ω der fundamentalen Welle und Phasenanpassung, d.h.:

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega = \frac{2\omega}{c}(n_{2\omega} - n_\omega) = 0 \quad (2.6)$$

Die n_ω und $n_{2\omega}$ sind die Brechungsindizes für die fundamentale und frequenzverdoppelte Lichtwelle im Kristall. Die Phasenfehlanpassung tritt durch Dispersion auf, da die fundamentale und 2. harmonische Welle wegen ihrer unterschiedlichen Frequenzen

auch verschiedene Phasengeschwindigkeiten innerhalb des frequenzverdoppelnden Kristalls haben. Möglichkeiten der Phasenanpassung sind Winkelanpassung, Temperaturanpassung, sowie die Quasi-Phasenanpassung. Bei der ersten Methode wird die Abhängigkeit des ordentlichen (elektrisches Feld senkrecht zur optischen Achse) oder außerordentlichen (elektrisches Feld enthält Komponente parallel zur optischen Achse) Brechungsindex vom Winkel des einfallenden Strahls zur optischen Achse des Kristalls ausgenutzt. Im zweiten Verfahren greift man auf die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex zurück. Für einige Materialien kann Phasenanpassung nicht durch Winkelanpassung oder Temperaturanpassung erreicht werden. Die Leistung oszilliert dann nach Gleichung (2.5) zwischen der fundamentalen und der 2. harmonischen Welle. Eine Lösung bietet die Quasiphasenanpassung (QPM), die in diesem Experiment eingesetzt wird. Der nichtlineare Koeffizient des Kristalls wechselt periodisch sein Vorzeichen, so dass eine periodische Domänenstruktur entsteht. Die optimale Periodenlänge wird durch die Bedingung für die Quasiphasenanpassung angegeben:

$$\Delta k = m \cdot \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (2.7)$$

für ganzzahlige m , da die Wellen nach der Kohärenzlänge $\Lambda = \pi/\Delta k$ um π außer Phase sind. Hergestellt werden die periodisch gepolten, ferroelektrischen Kristalle durch Anlegen eines elektrischen Feldes zwischen Elektroden, die gitterförmig angeordnet sind, wodurch die Spontanpolarisierung beim Überschreiten der Koerzitivfeldstärke umgeklappt wird. Nach der Kohärenzlänge Λ wird somit das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten gewechselt.

Resonator

Zur Steigerung der frequenzverdoppelten Leistung, die sich nach Gleichung (2.5) quadratisch mit der Intensität des einfallenden Strahls verhält, wird der Kristall in einen Resonator gebracht, dessen Auskoppelspiegel transmittierend für das frequenzverdoppelte Licht und reflektierend für die fundamentale Welle ist. Die maximal erreichbare Leistung des frequenzverdoppelten Lichts ergibt sich nach [21] aus:

$$P_{2\omega} = \frac{16T^2 P_{\omega} \eta_{sp}}{(2 - \sqrt{1 - T}(2 - A - \sqrt{\eta_{sp} P_{2\omega}}))^4} \quad (2.8)$$

wobei T die Transmission des Einkopplungsspiegels, A die Absorption des Resonators und $\eta_{sp} = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2}$ die Verdopplungseffizienz nach einem einfachen Durchgang ist (single-pass). Der in unserem Experiment benutzte periodisch gepolte KTP-Kristall (ppKTP) mit einem effektiven nichtlinearen Koeffizienten $d = 10 \text{ pm/V}$, einer Größe von $(5 \times 1 \times 10) \text{ mm}^3$ und einer Periodenlänge von $5, 15 \mu\text{m}$ (1. Ordnung QPM, $m = 1$) hat eine gemessene Single-Pass-Effizienz von 10^{-3} W^{-1} . Die typische Konversionseffizienz mit Resonator liegt bei 18 %. Bei einer Ausgangsleistung des Ti:Sa-Lasers von 700 mW erhält man eine Leistung von etwa 130 mW bei 451 nm. Höhere Leistungen können zwar erreicht werden, es ist jedoch wegen auftretender thermischer Effekte keine Stabilisierung möglich [22].

Hänsch-Couillaud-Stabilisation

Die Längenstabilisierung des im letzten Abschnitt beschriebenen Resonators zur Steigerung der Konversionseffizienz des Lichts der Wellenlänge 451 nm erfolgt durch Polarisationspektroskopie nach Hänsch und Couillaud [23]. Das einfallende Licht ist linear polarisiert. Die parallele und senkrechte Komponente des elektrischen Feldes relativ zur Polarisationssebene des Resonators werden durch (2.9) und (2.10) beschrieben:

$$E_{ein}^{\parallel} = E_{ein} \cos \theta \quad (2.9)$$

$$E_{ein}^{\perp} = E_{ein} \sin \theta, \quad (2.10)$$

wobei θ der Winkel zwischen der Polarisation der einfallenden fundamentalen Welle und der Kristallachse des doppelbrechenden Kristalls ist. Der senkrechte Anteil wird unabhängig von der Frequenz vom ersten Resonatorspiegel reflektiert und dient als Referenz. Die parallele Komponente hingegen oszilliert im Resonator, und wenige Prozent werden am ursprünglichen Einkopplungsspiegel ausgekoppelt. Die Phase relativ zur senkrechten Komponente ist von der Resonatorlänge abhängig. Im Resonanzfall verschwindet die Phasendifferenz der beiden Komponenten, so dass ein linear polarisierter Strahl resultiert. Außerhalb der Resonanz tritt eine Phasendifferenz auf. Die lineare Polarisation geht somit in eine elliptische über, wobei die Händigkeit der Polarisation vom Vorzeichen der Verstimmung gegenüber der Resonanz abhängig ist. Der reflektierte Strahl wird durch Kombination einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte und eines Polarisationsstrahlteilerwürfels in die

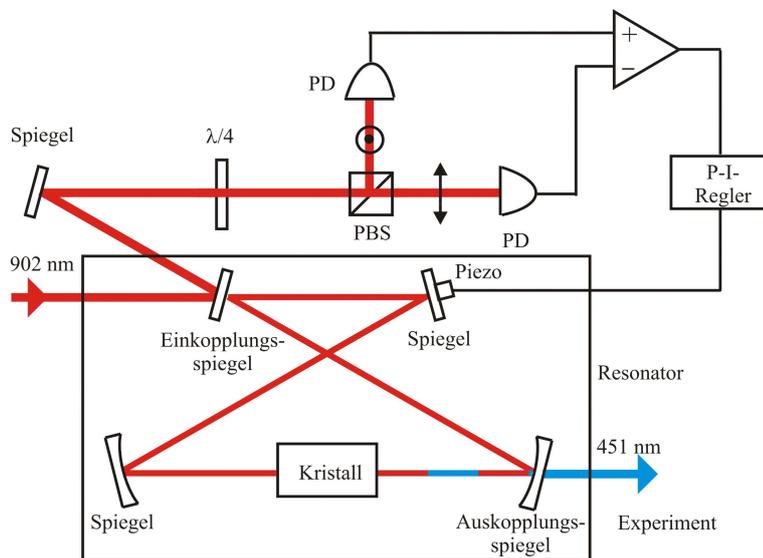


Abbildung 2.1: Aufbau der Hänsch-Couillaud Stabilisation zur Längenstabilisierung des Frequenzverdopplungsresonators: PD: Photodiode, PBS: polarisierender Strahlteilerwürfel, Kristall: periodisch gepolter KTP-Kristall, P-I-Regler: Proportional-Integral-Regler, $\lambda/4$: $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte

beiden linearen Komponenten aufgeteilt. Die Leistung der Ausgänge werden von zwei Photodioden detektiert und anschließend mit einem Differenzverstärker subtrahiert, dabei wird die $\frac{\lambda}{4}$ -Verzögerungsplatte so eingestellt, dass im Resonanzfall die Leistungen der beiden Anteile identisch sind, welches einem Nulldurchgang des Differenzverstärkersignals entspricht. Das Fehlersignal wird über einen elektronischen Proportional-Integral-Regler zurück an einen Piezokristall gegeben, welcher an einem Spiegel des Resonators befestigt ist. Die Temperaturabhängigkeit der Doppelbrechung des Kristalls führt bei Temperaturänderungen zu Schwankungen der Ausgangsleistung, daher befindet sich der ppKTP-Kristall in einem Ofen mit Peltierelement, der den Kristall auf eine Temperatur von 18 °C stabilisiert. Das mit dieser Methode erhaltene dispersive Signal besitzt eine steile Flanke und ermöglicht so eine gute Längenstabilisierung des Resonators.

Modulation des Laserlichts der Wellenlänge 451 nm

Die Frequenzverdopplung liefert nur eine einzige Frequenz. Zum Laserkühlen ist jedoch ein geschlossener Übergang nötig, so dass drei Wellenlängen von ungefähr 451 nm erzeugt werden müssen. Die Frequenzen der atomaren Übergänge, die sich um wenige GHz unterscheiden, werden durch einen akustooptischen (AOM) sowie einen elektrooptischen Modulator (EOM) erzeugt. Die Trägerfrequenz, d.h. die Frequenz, die

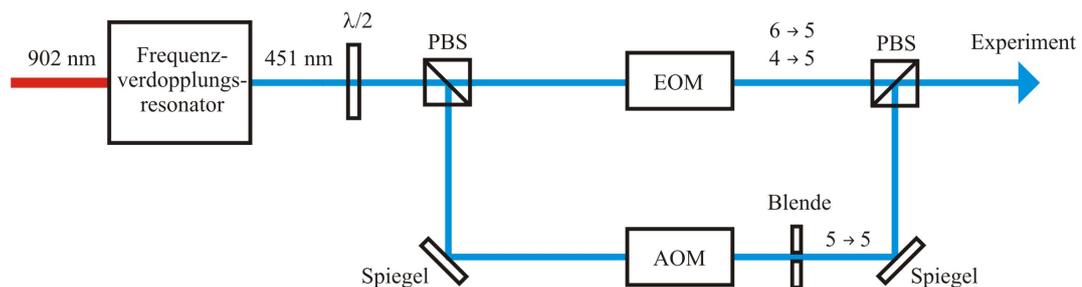
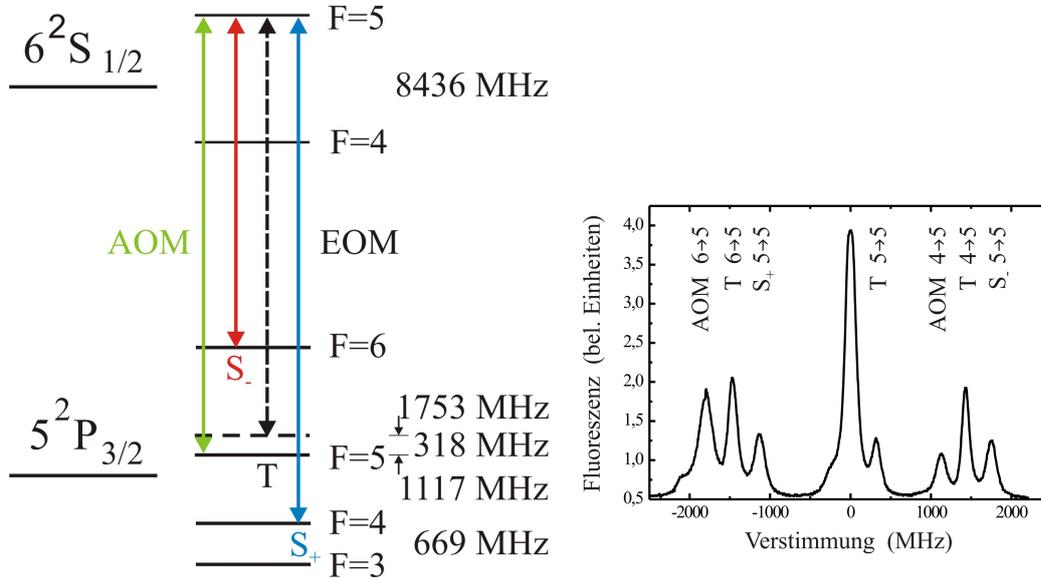


Abbildung 2.2: Aufbau zur Frequenzmodulierung des 451 nm-Laserlichts: AOM: akustooptischer Modulator, EOM: elektrooptischer Modulator, PBS: polarisierender Strahlteilerwürfel, $\lambda/2$: $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte

aus dem Frequenzverdopplungsresonator ausgekoppelt wird, liegt 318 MHz unterhalb des ($5P_{\frac{3}{2}} F=5 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$)-Übergangs. Der linear polarisierte Laserstrahl wird durch einen polarisierenden Strahlteilerwürfel (PBS) aufgeteilt. Das Leistungsverhältnis der beiden Ausgänge des PBS wird durch Rotation einer $\frac{\lambda}{2}$ -Verzögerungsplatte eingestellt. Um die Frequenz des ($5P_{\frac{3}{2}} F=5 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$)-Übergangs zu erreichen, geht das Licht eines Ausgangs durch den AOM (AA, Optoelectronics, Modell AA.ST.318), wo dessen 1. Ordnung eine Frequenzverschiebung um 318 MHz erfährt mit einer Leistungseffizienz von 86 %. Eine Irisblende blockiert die übrigen Ordnungen. Das Licht des zweiten Ausgangs des PBS wird in den EOM (New Focus, Modell 4421) eingekoppelt, der mit einer Radiofrequenz von 1435 MHz Seitenbänder erzeugt. Die Ausgangsleistung teilt sich zu je 33 % auf die beiden Seitenbänder (S_+ und S_-) und die Trägerfrequenz (T) auf. Mit

2 Versuchsaufbau

einem weiteren Polarisationsstrahlteiler werden die Laserstrahlen des AOM und EOM rekombiniert. Die Seitenbänderfrequenzen entsprechen den Frequenzen der Übergänge $5P_{3/2} F = (4,6) \rightarrow 6S_{1/2} F = 5$. Wird die Frequenz des Ti:Sa-Lasers verstimmt, so entspricht das einer simultanen Verstimmung der Laserstrahlen der Wellenlänge 451 nm. In Abbildung 2.3(b) ist die von einem Sekundärelektronenvervielfacher detektierte Fluoreszenz des Atomstrahls beim Verstimmen des Ti:Sa-Lasers aufgetragen. Die hohen Intensitäten der Laserstrahlen führen zu einer starken Sättigungsverbreiterung der Signale.



(a) Niveausystem mit erzeugten Frequenzen: T (schwarz): Trägerfrequenz, S_+ (blau) und S_- (rot): Seitenbänder durch elektrooptischen Modulator mit Radiofrequenz von 1435 MHz generiert, AOM (grün): akustooptisch modulierte Laserstrahl (AOM) und die beiden Seitenbänder (S_+ und S_-) des EOM mit den Frequenz um 318 MHz verschoben
 (b) Fluoreszenzspektrum beim Verstimmen des modulierte Laserstrahl (AOM) und die beiden Seitenbänder (S_+ und S_-) des EOM mit den optischen Übergängen des Indiumatoms in Resonanz. T: Trägerfrequenz

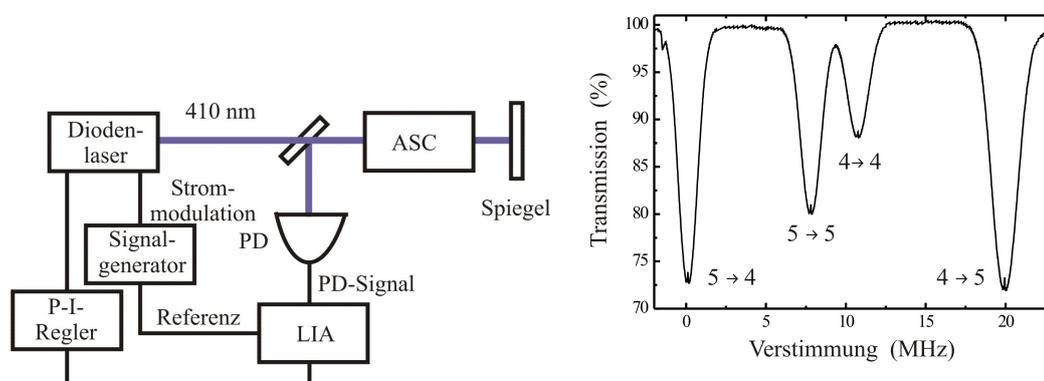
Abbildung 2.3: Frequenzmodulation des Laserlichts der Wellenlänge 451 nm

2.2 Spektroskopie

Zur Frequenzstabilisierung der Diodenlaser und als Frequenzreferenz für das 451 nm-Licht werden in diesem Experiment die dopplerfreie Sättigungs- und 2-Farben-Spektroskopie eingesetzt. Eine mit Indium gefüllte, an der Armenia Academy of Science hergestellte Saphirzelle (ASC) wird auf 620 °C erhitzt, so dass der für die Spektroskopie benötigte Dampfdruck von $2 \cdot 10^{-6}$ Torr erzeugt wird.

2.2.1 Sättigungsspektroskopie

Die Sättigungsspektroskopie, welche 1971 von Smith und Hänsch [24] entwickelt wurde, wird zur Frequenzstabilisierung der Diodenlaser auf die Hyperfeinübergänge $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ eingesetzt. Durchläuft ein Laserstrahl, der über den atomaren Übergang verstimmmt wird, einmal die Saphirzelle, so ist das detektierte Absorptionssignal auf 1,5 GHz verbreitert. Diese inhomogene Linienverbreiterung beruht auf dem Dopplereffekt zwischen elektromagnetischer Strahlung und Atomen, die der Maxwell-Boltzmann-Geschwindigkeits-Verteilung unterliegen. Bei der Sättigungsspektroskopie wird der die Saphirzelle durchlaufende, starke Pumpstrahl als Nachweisstrahl in sich zurückreflektiert. Ist der Laser in Resonanz mit einem Übergang, so werden die Indiumatome aus der Geschwindigkeitsklasse mit $v = 0$ in Richtung beider propagierenden Laserstrahlen gesättigt, und im Zentrum des Dopplersignals entsteht der sogenannte Lambdip. Aufgrund der spektra-



(a) Aufbau der Sättigungsspektroskopie mit Strommodulation zur Frequenzstabilisierung des 410 nm-Lichts: LIA: Lock-In-Verstärker, gang 5 \rightarrow 4
 ASC: Saphirzelle, PD: Photodiode, P-I-Regler: Proportional-Integralregler

Abbildung 2.4: Aufbau und Spektrum der Sättigungsspektroskopie mit 410 nm-Licht

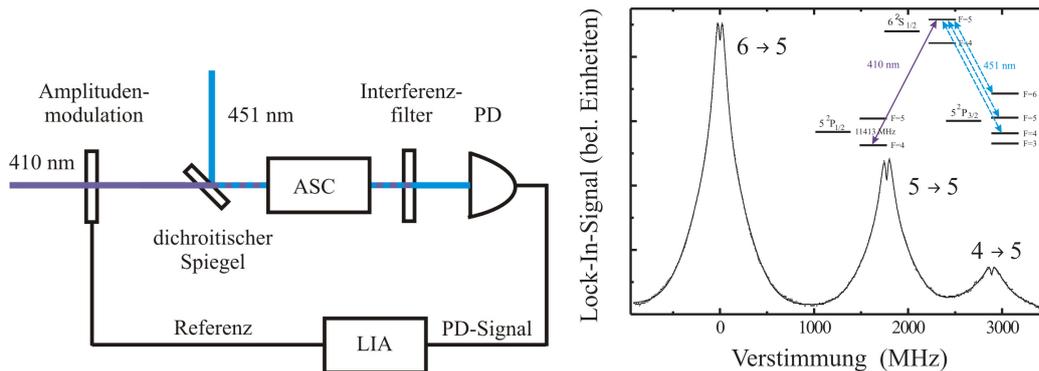
len Linienbreite des Lasers von 10 MHz wird für eine typische Pumpleistung von $70 \mu\text{W}$ ($S_{410} = 0,1$) eine Halbwertsbreite des Lambdips von 40 MHz gemessen, die also etwas

größer als die natürliche Linienbreite des angeregten Niveaus von 25 MHz ist. Mit dieser Methode lässt sich ein dopplerfreies Signal generieren, so dass eine Stabilisierung des Lasers auf die Flanke des Signals möglich ist.

Zur Stabilisierung auf die Resonanz wird die Methode der Strommodulation angewendet, welches einer Modulation der Frequenz entspricht. Das modulierte Spektroskopiesignal wird in einem Lock-In-Verstärker mit der Modulationsfrequenz gemischt. Das resultierende dispersive Signal entspricht der 1. Ableitung des Spektroskopiesignals und damit dem Nulldurchgang des dispersiven Signals der Resonanz. Das sinusförmige Modulationssignal hat eine Frequenz von etwa 14 kHz und eine Amplitude von 500 mV (Spitze-Spitze), was einer Modulationsbreite von etwa einem Megahertz entspricht.

2.2.2 2-Farben-Spektroskopie

Für 451 nm-Licht kann wegen der sehr geringen thermischen Population des $5P_{3/2}$ -Niveaus von nur 6% bei einer Temperatur von 630 °C die Sättigungsspektroskopie nicht eingesetzt werden. Daher wird als Frequenzreferenz für diese Wellenlänge die 2-Farben-Spektroskopie [25] benutzt. Dazu werden die beiden Laserstrahlen der Wellenlänge 410 nm

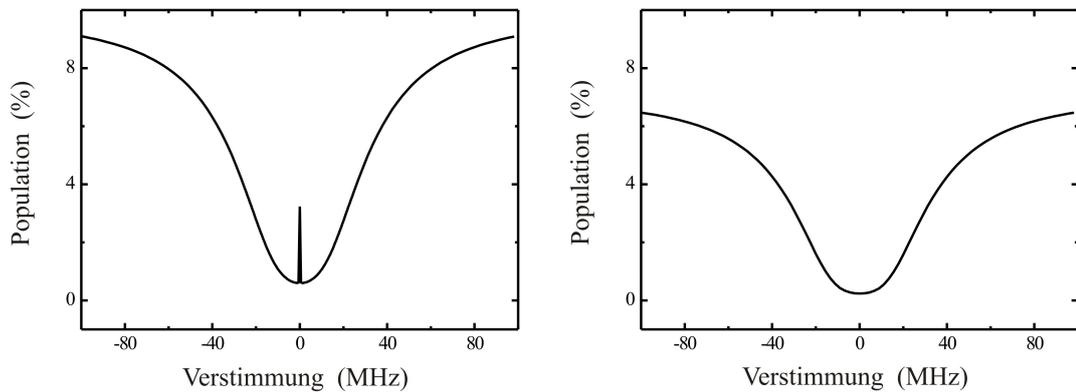


(a) Aufbau der 2-Farben-Spektroskopie mit (b) Demoduliertes Signal der 2-Farben-410 nm- und 451 nm- Licht als Frequenzreferenz Spektroskopie in Abhängigkeit der Verstimmung für das 451 nm- Licht: LIA: Lock-In-Verstärker, mung relativ zum Übergang $6 \rightarrow 5$
ASC: Saphirzelle, PD: Photodiode

Abbildung 2.5: Aufbau und demoduliertes Spektrum der 2-Farben-Spektroskopie

und 451 nm mit einem dichroitischen Spiegel überlagert. Das amplitudenmodulierte 410 nm-Licht mit einem Sättigungsparameter von $S = 0,7$, welches resonant mit dem Übergang $5P_{1/2} F = 4 \rightarrow 6S_{1/2} F = 5$ ist, pumpt die Atome in das $5P_{3/2}$ -Niveau. Dabei wird die Absorption des 451 nm-Lichts ($S = 0,2$) von 6% auf mehr als 10% erhöht. Das Pumplicht wird nach der Spektroskopiezelle von einem Interferenzfilter blockiert und das Photodiodensignal durch einen Lock-In-Verstärker demoduliert. Dieses untergrundfreie Spektrum weist bei Verstimmung der Laserfrequenz über die Übergänge $5P_{3/2} F = (4,5,6) \rightarrow 6S_{1/2} F = 5$ im Zentrum jedes Absorptionssignals einen Einbruch auf. Regen die 410 nm-

und 451 nm-Laser verschiedene Hyperfeinniveaus an, so treten diese Einbrüche nicht auf. Kohärente Zweiphotonenprozesse sind eine mögliche Erklärung [25]. Die Halbwertsbreite der Einbrüche von 20 MHz liegt deutlich unter der Dopplerbreite und dient hier somit als Referenz für die Resonanz der Hyperfeinübergänge im 451nm-Übergang von Indium. Die Einbrüche werden theoretisch durch die Lösung der Dichtematrix bestätigt. Die Population des $5P_{3/2}$ -Zustands in Abhängigkeit der Verstimmung des 451 nm-Lasers über den Übergang $5P_{3/2} F = 5 \rightarrow 6S_{1/2} F = 5$ zeigt diesen Einbruch ebenfalls, wenn der 410 nm-Laserstrahl in Resonanz mit $5P_{1/2} F = 4 \rightarrow 6S_{1/2} F = 5$ ist. Bei großer Verstimmung gibt das theoretisch berechnete Signal eine hohe Population des $F = 5$ -Zustands an, d.h. die Atome sind hier durch den 410 nm-Laser in dieses Niveau gepumpt worden. Der 451 nm-Laser ist so weit verstimmt, dass nur eine geringe Absorption stattfindet. Näher an der Resonanz nimmt die Absorption zu und damit die Population ab, wie in Abbildung (2.6(a)) bestätigt wird. Im Resonanzfall nimmt die Absorption wieder ab, was durch die steigende Population ebenfalls beschrieben wird. Es werden also weniger Atome aus dem $F = 5$ -Niveau herausgepumpt. Die Halbwertsbreite des Einbruchs von 345 kHz und des Absorptionssignals von 52 MHz liegen deutlich unterhalb der gemessenen. Stöße zwischen Indiumatomen untereinander und mit den Wänden der Saphirzelle verursachen eine Stoßverbreiterung, die hier nicht berücksichtigt wird. Koppeln der 410 nm- und der 451 nm-Laserstrahl an zwei unterschiedliche angeregte Zustände, so wird in der Dichtematrixlösung 2.6(b) kein Einbruch beobachtet. Dies entspricht damit ebenfalls den experimentellen Ergebnissen.



(a) Population des Hyperfeingrundzustands $5P_{3/2} F = 5$ bei Anregung in dieselben Hyperfeinniveaus
 (b) Population des Hyperfeingrundzustands $5P_{3/2} F = 5$ bei Anregung in verschiedene Hyperfeinniveaus

Abbildung 2.6: Population des Hyperfeingrundzustands $5P_{3/2} F = 5$ als Vergleich zum 2-Farben-Spektroskopie-Signal

2.3 Ofen und Vakuumsystem

Der schon in Abschnitt 2.1 erwähnte niedrige Dampfdruck von Indium erfordert ein Erhitzen des Indiums auf etwa 1200 °C , um nach einer Strecke von 89 cm eine maximale Flussdichte von $1 \cdot 10^{13}\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ zu erhalten, wobei ein Hintergrundgasdruck von $5 \cdot 10^{-8}\text{ Torr}$ durch zwei Turbomolekularpumpen (Turbo-V250 und 750, Varian) gewährleistet wird. Die hier benutzte Effusionszelle (Abbildung 2.7) besteht aus einem Keramiktiegel (PBN = pyrolytisches Bor-Nitrid), der durch Tantalwendel geheizt wird. Ein zusätzlich am Ausgang des Ofens angebrachter Heizdraht (Hotlip) soll das Kondensieren des Indiums an der Ofenöffnung, die einen Durchmesser von 1 mm hat, verhindern. Oberhalb der Ofenöffnung befindet sich eine wassergekühlte Kupferblende, deren Öffnung einen Durchmesser von 5 mm hat und das Vakuumsystem vor Indium schützt. Eine Apertur ($\text{Ø} = 0,5\text{ mm}$) im Abstand von 10 cm kollimiert den thermischen Indiumatomstrahl vor. Durch diese Blendenanordnung wird die Divergenz des Atomstrahls auf etwa $8,8\text{ mrad}$ reduziert. Das neue (alte) Vakuumsystem besteht aus zwei Kammern. In der unteren Kammer mit vier antireflexbeschichteten Fenstern finden das optische Pumpen und die Laserkühlung statt, die obere Kammer in einem Abstand von 63 cm (60 cm) wird als Nachweisregion und zur Deposition genutzt. Die Kammern des neuen Aufbaus, in dem die Experimente zur Laserkühlung durchgeführt wurden, sind durch ein Ventil verbunden, so dass ein Austausch der Substrate in der Depositionskammer möglich ist, ohne das ganze System der Atmosphäre auszusetzen. Die größere Depositionskammer dient als Vorbereitung der Deposition mit einer Lichtmaske.

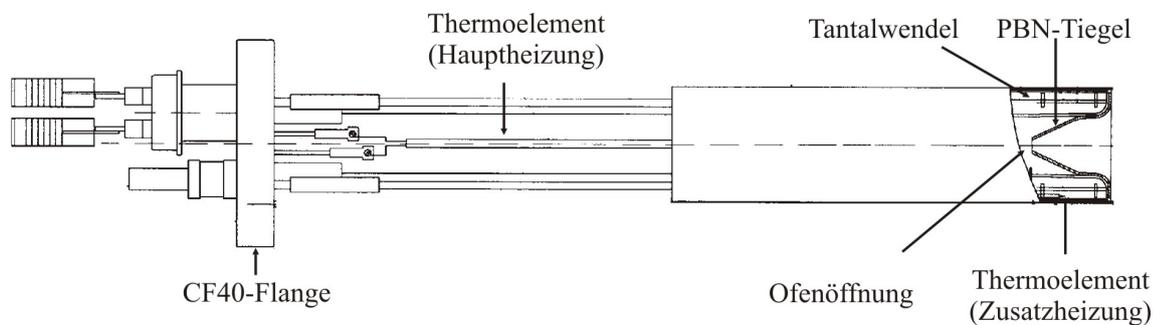


Abbildung 2.7: Aufbau der Effusionszelle um 90° rotiert: [26]

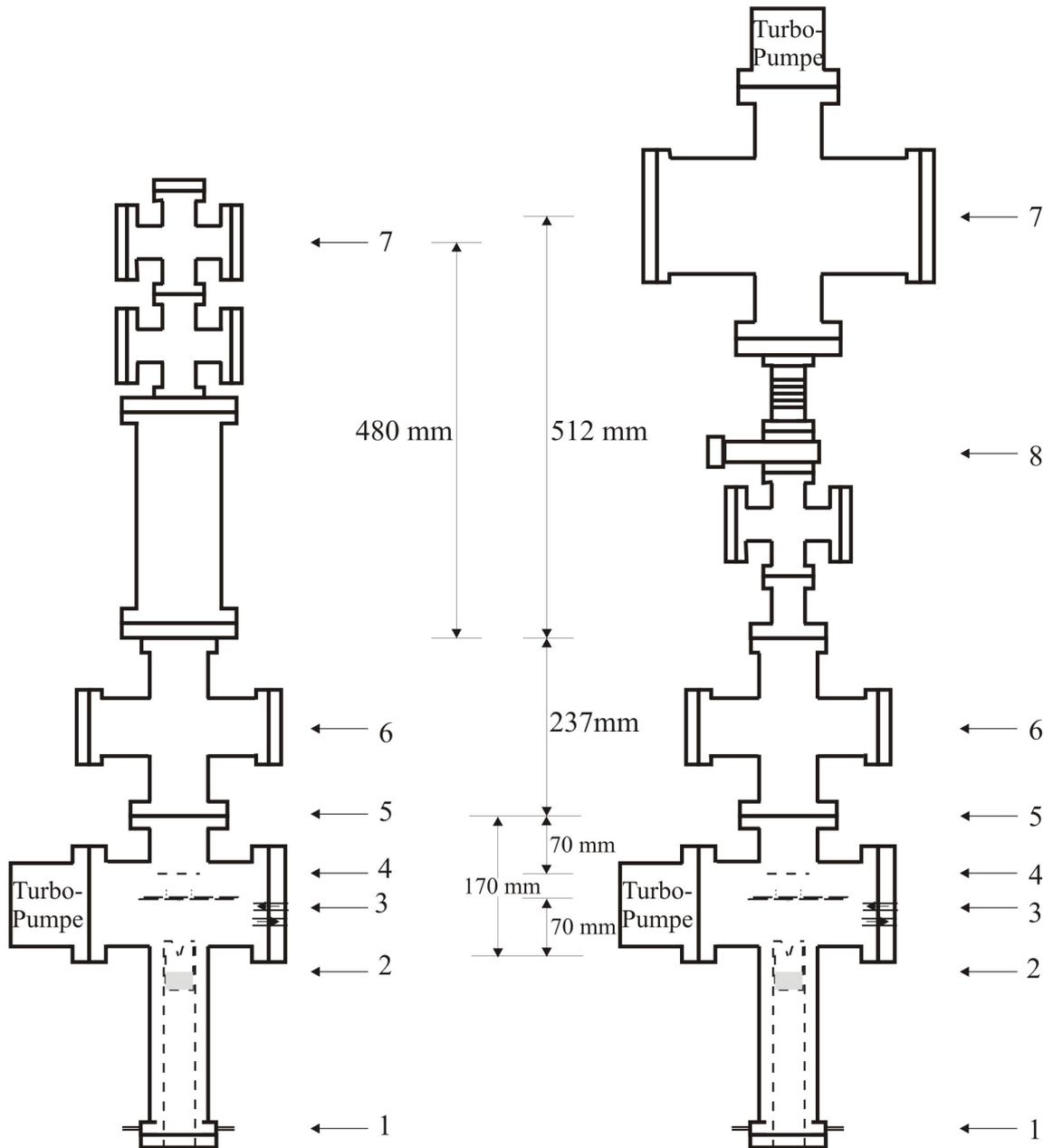


Abbildung 2.8: Aufbau der alten (links) und neuen (rechts) Vakuumapparatur mit der Effusionzelle: 1 Wasserkühlung, 2 Effusionszelle, 3 wassergekühlte Blende, 4 Blende, 5 Apertur, 6 Pump- und Kühlregion, 7 Nachweis- und Depositionsregion, 8 Ventil

3 Charakterisierung des Indiumatomstrahls

Für die Atomlithographie ist es wichtig, die Eigenschaften des Atomstrahls zu bestimmen, um dann eine optimale Präparation dieses Strahls vornehmen zu können. Hier werden nun die Geschwindigkeitsverteilung und der Atomfluss experimentell bestimmt.

3.1 Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung

Zur Bestimmung der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung des Indiumatomstrahls wird eine Flugzeitmessung durchgeführt. Ein auf den Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$

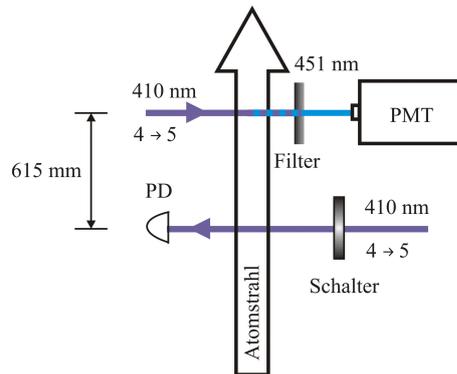


Abbildung 3.1: Aufbau zur Messung der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung:
PMT: Sekundärelektronenvervielfacher, PD: Photodiode

resonant eingestellter Laserstrahl entleert den Zustand $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ durch optisches Pumpen. Das mechanische Ein- und Ausschalten des Laserstrahls hat eine Veränderung der Population des $F = 4$ -Niveaus zur Folge, welche von einem weiteren Laserstrahl, der auf denselben Übergang stabilisiert ist, nach einer Flugstrecke der Atome von $L = 61,5$ cm nachgewiesen wird. Aus dem zeitabhängigen Fluoreszenzsignal, welches von einem Sekundärelektronenvervielfacher (PMT) detektiert wird, kann die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung ermittelt werden. Ein 451 nm-transmittierendes Filter vor dem PMT minimiert die Detektion von Streulicht des eingestrahlteten 410 nm Lichts. Für Atomstrahlen ergibt sich die Maxwell-Boltzmann-Geschwindigkeitsverteilung zu [14]

$$f(v)dv = \frac{9}{2} \frac{v^3}{v_{mp}^4} e^{-\frac{3}{2} \frac{v^2}{v_{mp}^2}} dv. \quad (3.1)$$

3 Charakterisierung des Indiumatomstrahls

Das Fluoreszenzsignal $S(t)$ stellt das Integral der Maxwell-Boltzmann-Verteilung dar:

$$S(t) = \int_0^{t=\frac{L}{v}} f(v') dv' = 1 - e^{-\frac{1}{2} \frac{3L^2}{t^2 v_{mp}^2} \left(\frac{3L^2}{2t^2 v_{mp}^2} + 1 \right)}, \quad (3.2)$$

wobei v_{mp} die wahrscheinlichste Geschwindigkeit und $t = \frac{L}{v}$ die Flugzeit der Atome sind. Als Referenz für den Zeitpunkt 0 dient ein Photodiodensignal des 1. Lasers. Ein typi-

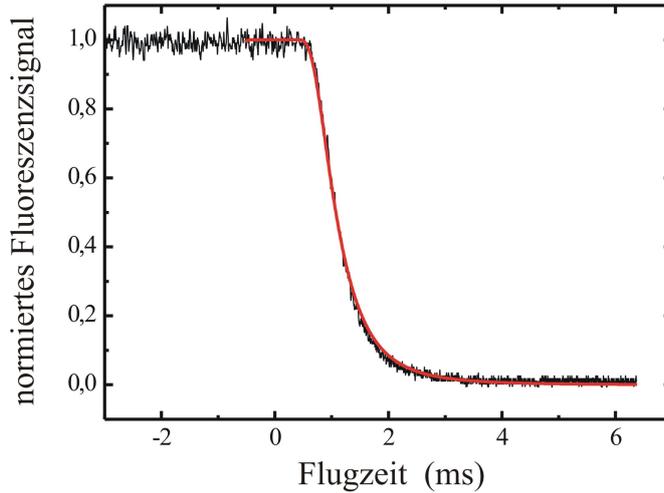


Abbildung 3.2: Normiertes Fluoreszenzsignal (schwarz) in Abhängigkeit der Flugzeit der Indiumatome: Dieses entspricht dem Integral der Maxwell-Boltzmann-Geschwindigkeitsverteilung, deren Parameter an die Messwerte angepasst wurden (rot).

ches über 128 Aufnahmen gemittelt Fluoreszenzsignal ist in Abbildung (3.2) dargestellt. Die Anpassung des Integrals der Maxwell-Boltzmann-Verteilung an das gemessene Fluoreszenzsignal liefert eine wahrscheinlichste Geschwindigkeit von $v_{mp} = (532 \pm 22) \frac{m}{s}$. Der Fehler setzt sich aus der endlichen Wechselwirkungsstrecke in der Kühlregion von etwa 3 mm und der endlichen Schaltzeit des mechanischen Schalters von ungefähr $55 \mu s$ zusammen. Letzteres entspricht einer Flugstreckenunsicherheit von $\Delta L = 2,5$ cm und ist Grund dafür, dass der aus der Messung bestimmte Wert für v_{mp} nur einen unteren Grenzwert angibt. Die Breite der Geschwindigkeitsverteilung setzt sich aus der apparativen und der tatsächlichen Breite zusammen. Theoretisch wird die longitudinale wahrscheinlichste Geschwindigkeit des thermischen Atomstrahls, die über die mittlere Energie

$$\frac{3}{2} k_B T_{Atom} = \frac{1}{2} m_{In} v_{mp}^2 \quad (3.3)$$

mit der Temperatur korreliert ist, bei einer Ofentemperatur von $1200^\circ C$ zu $v_{mp} = 560$ m/s bestimmt. Dabei sind k_B der Boltzmann-Faktor, T_{Atom} die Temperatur der Atome und

3.1 Longitudinale Geschwindigkeitsverteilung

$m_{In} = 114,8 \cdot 1,67 \cdot 10^{-27}$ kg die Masse eines Indiumatoms. Die gemessene wahrscheinlichste Geschwindigkeit $v_{mp} = 532 \frac{m}{s}$ entspricht also einer Temperatur von $(1040 \pm 110) ^\circ C$. Die gemessene Temperatur liegt unterhalb der theoretisch bestimmten. Dies liegt, wie bereits erwähnt, an der endlichen Schaltzeit. Bei einer Divergenz θ des Atomstrahls von 8,8 mrad, die aus der Blendenanordnung berechnet wird, ergibt sich damit eine theoretische transversale Geschwindigkeit von

$$v_{trans} = v_{mp} \tan \frac{\theta}{2} = 2,5 \frac{m}{s}. \quad (3.4)$$

3.2 Atomfluss

Zur weiteren Charakterisierung des Atomstrahls und zur Vorbereitung der Bestimmung der minimalen Dosis (siehe Kapitel 5) von Indium, die benötigt wird, um Strukturen mittels des Resistverfahrens zu schreiben, wird der Atomfluss des thermischen Indiumatomstrahls ermittelt. Die genaueste Möglichkeit, den Atomfluss zu messen, bietet eine Mikrowaage. Da diese nicht zur Verfügung steht, wird die Atomflussdichte bei einer Ofentemperatur von 1100 °C und einer Temperatur der Zusatzheizung von 1200 °C durch Fluoreszenzmessung mit einem kalibrierten Sekundärelektronenvervielfacher (PMT) bestimmt. Dazu wird in der Kühlregion, da dort auch die Bestimmung der minimalen Dosis stattfindet, die Frequenz eines Lasers, der mit einer Linse auf den Atomstrahl fokussiert wird, über den optischen Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ verstimmt. Dabei werden die Atome aus dem $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Zustand angeregt. Die resultierende Fluoreszenz wird von einem PMT detektiert (Abbildung 3.3). Da die Depositionsexperimente über einen längeren Zeitraum stattfinden, wird auch hier eine Langzeitmessung von 500 s durchgeführt, so dass Flussschwankungen des Ofens berücksichtigt werden. Wie in Ab-

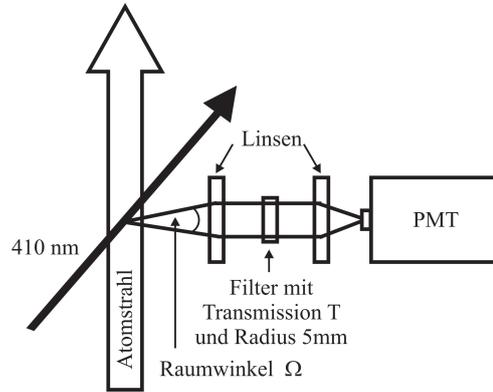


Abbildung 3.3: Aufbau zur Messung des Atomflusses: PMT: Sekundärelektronenvervielfacher

bildung 3.3 dargestellt, detektiert der PMT nur die in einen bestimmten Raumwinkel (Ω) abgestrahlte Fluoreszenz. Desweiteren muss die thermische Population (Pop) des Grundzustandes $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$, die Transmission (T) des Filters und das Verzweungsverhältnis (Z) des angeregten Zustands berücksichtigt werden. Für einen Atomfluss Φ folgt die gesamte Strahlungsleistung für Atome, die im Mittel während der Wechselwirkungszeit n_{Photon} Photonen der Energie hc/λ streuen, aus

$$P_{gesamt} = n_{Photon} \cdot \frac{hc}{\lambda} \cdot \Phi. \quad (3.5)$$

Die detektierte Leistung P_{PMT} muss dafür folgendermaßen korrigiert werden:

$$P_{gesamt} = \frac{P_{PMT}}{\Omega \cdot T_{451} \cdot Z \cdot Pop}. \quad (3.6)$$

Die einzelnen Korrekturfaktoren werden in den nächsten Abschnitten bestimmt.

Kalibrierung des Sekundärelektronenvervielfachers

Um die absolute Intensität des Fluoreszenzsignals angeben zu können, muss der PMT kalibriert werden. Dazu werden die PMT-Signale in Volt für verschiedene Laserintensitäten gemessen, und die lineare Regression ergibt eine Sensitivität des Sekundärelektronenvervielfachers von $(1,53 \pm 0,07) \cdot 10^7 \frac{\text{V}}{\text{W}}$ (Abbildung 3.4).

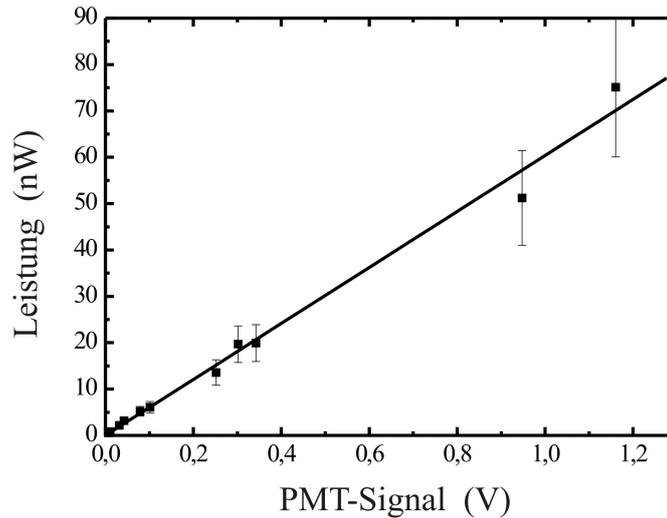


Abbildung 3.4: Kalibrierung des Sekundärelektronenvervielfachers

Effektiver Raumwinkel

Der im Abstand $R = (15 \pm 1)$ cm stehende PMT mit einem Öffnungsradius $r = 1,25$ cm detektiert nur einen Bruchteil der Fluoreszenz der angeregten Atome, da er nur einen kleinen Raumwinkel abdeckt. Dieser lässt sich aus geometrischen Abschätzungen mit

$$\Omega = \frac{\pi \left((R - \sqrt{R^2 - r^2})^2 + 2r^2 \right)}{2\pi R^2} \quad (3.7)$$

berechnen. Dem PMT sind zwei Linsen mit Linsendurchmessern von 2,1 cm zur Fokussierung des einfallenden Lichts vorgebaut. Der effektive Öffnungsradius wird wegen Abberationen der Linsen und einem 451 nm transmittierenden Filter mit einem Radius von 0,5 cm durch Variation einer Irisblende gemessen (Abbildung 3.5). Bei Radien der Irisblende größer als 4,6 mm ist die erwartete quadratische Abhängigkeit der einfallenden Intensität von r nicht mehr gegeben, und das PMT-Signal ist konstant, wobei keine Sättigung des PMT vorliegt. Der PMT deckt somit einen effektiven Raumwinkel von $(0,47 \pm 0,05) \text{‰}$ ab.

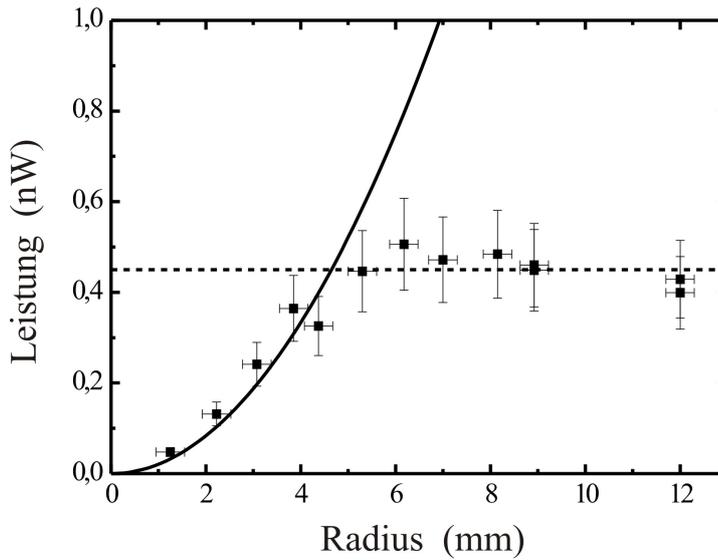


Abbildung 3.5: Bestimmung des effektiven Radius: Leistung in Abhängigkeit des Öffnungsradius

Durchschnittliche Anzahl gestreuter Photonen pro Atom

Der Sättigungsparameter wird zu $S = 6$ bestimmt, so dass man davon ausgehen kann, dass alle Atome, die sich ursprünglich im Zustand $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ befinden, angesprochen werden. Wegen des Verzweigungsverhältnisses Z von 2:3 des 410 nm-Übergangs gegenüber dem des 451 nm-Übergangs, findet man nur $2/5$ dieser Atome nach einem Streuvorgang in dem $5P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand vor, wobei aufgrund der Übergangsstärke des Übergangs $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ von $3/5 \cdot \Gamma_{410}$ nur $3/5$ hiervon in den Zustand $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ zerfallen. Dies entspricht also einer Wahrscheinlichkeit von 24 %, dass ein Atom ein zweites Mal mit einem Photon streut. Aus der geometrischen Reihe folgt, dass ein Atom in diesem Experiment durchschnittlich $n_{Photon} = 1,32$ Photonen streut.

Fluoreszenzmessung

Die absolute Intensität der Fluoreszenz beim Verstimmen der Laserfrequenz über den Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ wird aus der mittleren Signalhöhe von $(7,19 \pm 0,46)$ mV, die einer Leistung P_{PMT} von $(4,7 \pm 0,4) \cdot 10^{-7}$ mW entspricht, ermittelt. Wegen des 451 nm-Licht transmittierenden Filters wird das 410 nm-Fluoreszenzlicht blockiert, so dass das Zerfallsverhältnis Z erneut berücksichtigt werden muss. Die Transmission T_{451} des Filters für die Wellenlänge von 451 nm beträgt $(59,8 \pm 0,1)$ %. Der PMT detektiert also nur 35,9 % der totalen Fluoreszenz.

Der Laser regt nur die Atome im Zustand $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ an. Bei einer Temperatur von 1200°C beträgt die thermische Population (Pop) dieses Niveaus $\frac{9}{20} \cdot 80$ %. Die emittierte

Leistung muss durch diesen Wert dividiert werden, um die Strahlungsleistung P_{gesamt} aller Atome zu erhalten:

$$P_{gesamt} = \frac{P_{PMT}}{\Omega \cdot T_{451} \cdot Z \cdot P_{Op}} = (7,6 \pm 0,9) \cdot 10^{-3} \text{mW}. \quad (3.8)$$

Ein einzelnes Indiumatom, welches beim Durchfliegen des elektromagnetischen Feldes durchschnittlich n_{Photon} Photonen streut, setzt eine Strahlungsenergie von

$$E_{Atom} = n_{Photon} \frac{hc}{\lambda} = 5,7 \cdot 10^{-16} \text{mJ} \quad (3.9)$$

frei, so dass sich der gesamte Atomfluss mit Gleichung (3.5) zu

$$\Phi = \frac{P_{gesamt}}{E_{Atom}} = (1,33 \pm 0,16) \cdot 10^{13} \frac{\text{Atome}}{\text{s}} \quad (3.10)$$

berechnet.

Mit der Querschnittsfläche $A = \pi \cdot r_{St}^2$ des Atomstrahls, dessen Radius $r_{St} = (0,7 \pm 0,1) \text{mm}$ dem von der CCD-Kamera aufgenommenen Fluoreszenzbild (Abbildung 3.6) entnommen wird, beträgt die Flussdichte

$$P_{\Phi} = \frac{\Phi}{A} = (8,7 \pm 2,2) \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}. \quad (3.11)$$

Die Atomflussdichteverteilung entspricht dem Verlauf der auf die Achse projizierten

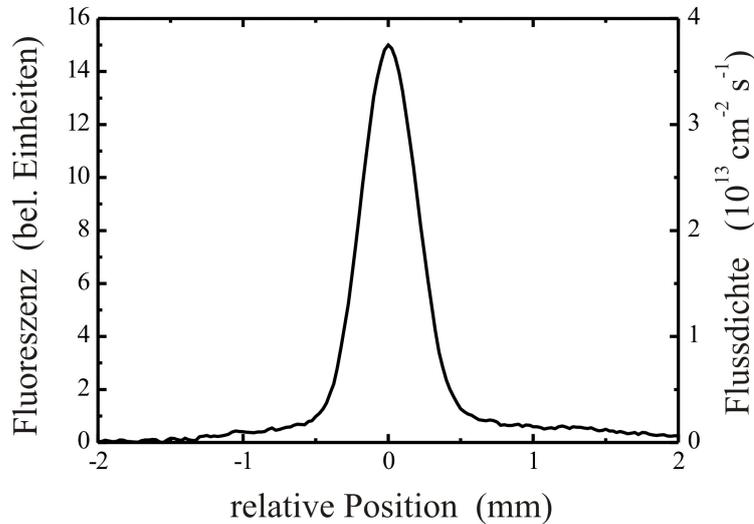


Abbildung 3.6: Auf eine Achse projizierte Fluoreszenzaufnahme des Indiumatomstrahls mit einer CCD-Kamera

Fluoreszenzaufnahme und ist in Abbildung 3.6 auf der rechten Ordinate aufgetragen. Die maximale Flussdichte im Zentrum des Atomstrahls und in einem Abstand von 29 cm zur Ofenöffnung ergibt sich damit zu $3,7 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Dieses entspricht nach [27] einer Ofentemperatur von etwa 1100 °C.

3 Charakterisierung des Indiumatomstrahls

4 Experimente zur Wechselwirkung zwischen Indium und Licht

4.1 Optisches Pumpen

Zur atomaren Nanostrukturierung mit einer Lichtmaske ist eine sorgfältige Präparation des Atomstrahls erforderlich. Die in Kapitel 1 erläuterte Dipolkraft, die zur Änderung der lokalen Flussdichte ausgenutzt werden soll, erfordert einen gut kollimierten Atomstrahl, also eine geringe Divergenz, und, damit alle Atome durch die Lichtmaske adressiert werden, einen gemeinsamen internen Zustand. Letzterer kann durch optisches Pumpen erreicht werden, das nun experimentell untersucht wird und mit der in Kapitel 1 entwickelten Theorie für das Indiumatom verglichen wird. Dabei soll der Einfluss der Kohärenzen herausgestellt werden durch Vergleich der Population, die durch Raten-gleichungen und der, die durch Dichtematrizen erhalten wird. Gleichzeitig dient dies als Vorbereitung zum Verständnis der Laserkühlung für das komplexe Energieniveausystem von Indium.

Das optische Pumpen wird zunächst für den einfachsten Fall, in dem nur ein Laserstrahl (Pumplaser) den Atomstrahl durchquert, betrachtet. Der Laserstrahl der Wellenlänge

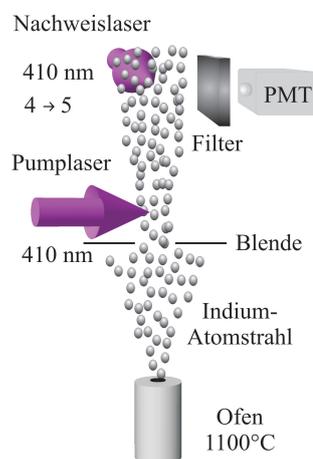
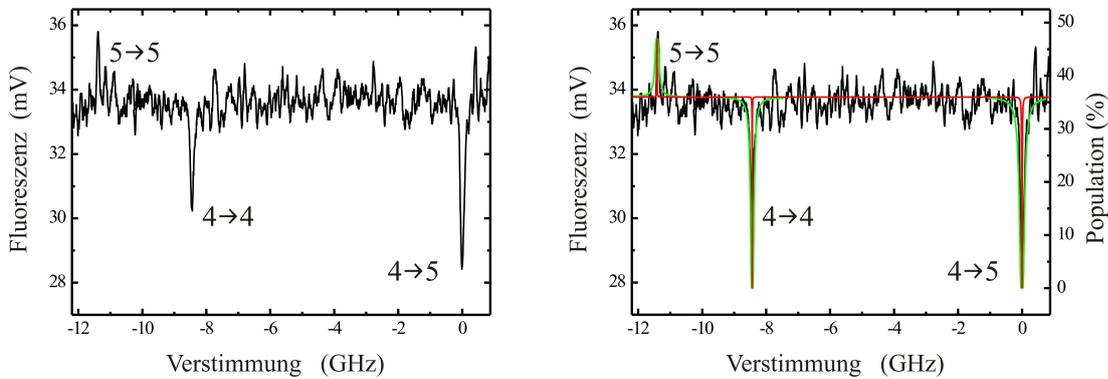


Abbildung 4.1: Aufbau des Optischen Pumpens mit einem Laserstrahl der Wellenlänge 410 nm

410 nm, dessen räumliche Strahlqualität durch das Fokussieren durch ein Pinhole mit einem Durchmesser von $90\ \mu\text{m}$ verbessert wird, fällt in der Kühlregion senkrecht zum

Atomstrahl ein und wird dort über alle möglichen Hyperfeinübergänge von $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ verstimmt. In einem Abstand von etwa 61 cm durchquert ein weiterer Laserstrahl (Nachweislaser) der Wellenlänge 410 nm, welcher sowohl orthogonal zum Atomstrahl als auch orthogonal zum ersten Laserstrahl verläuft, den Atomstrahl. Seine Laserfrequenz ist resonant mit dem optischen Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F=4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$. Die dort erzeugte Fluoreszenz wird von einem Sekundärelektronenvervielfacher (PMT) detektiert, wobei ein 451 nm-Licht transmittierendes Filter Streulicht des Nachweislasers im 410 nm-Bereich blockiert. Beim Verstimmen der Frequenz des Pumplasers ändert sich die Population der Energieniveaus, daraus resultiert eine Änderung des Fluoreszenzsignals in der Nachweisregion, welches proportional zur Population des $5P_{\frac{1}{2}} F=4$ -Niveaus ist. Die Frequenz des Pumplasers wird über einen Bereich von 16 GHz verstimmt, so dass die Übergänge $5P_{\frac{1}{2}} F=(4,5) \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$ und $5P_{\frac{1}{2}} F=4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=4$ abgedeckt werden. In Abbildung 4.2 ist die Fluoreszenz in Abhängigkeit der Verstimmung relativ zur Resonanz vom $5P_{\frac{1}{2}} F=4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$ -Übergang aufgetragen. Bei $\Delta=0$ MHz (Resonanz 410 nm:



(a) Fluoreszenzmessung zum optischen Pumpen bei Verstimmen eines Lasers der Wellenlänge 410 nm relativ zum Übergang 4→5 (b) Vergleich der Messung und Theorie des optischen Pumpens bei Verstimmen einer Laserfrequenz

Abbildung 4.2: Population des $F=4$ -Niveaus in Abhängigkeit der Verstimmung relativ zum Übergang 4→5: schwarz: Fluoreszenzmessung, rot: Lösung der Ratengleichung, grün: Lösung der Dichtematrix

$F=4 \rightarrow F=5$) werden die Atome aus dem Niveau $5P_{\frac{1}{2}} F=4$ gepumpt, so dass die Population des Niveaus abnimmt und damit auch die Fluoreszenz in der Nachweisregion. Ebenso ist dies bei einer Rotverstimmung der Pumplaserfrequenz von 8436 MHz der Fall, welche dem Übergang 410 nm $F=4 \rightarrow F=4$ entspricht. Eine negative Verstimmung von 11413 MHz entleert das $F=5$ -Niveau, so dass die Besetzungszahl der $F=4$ -Niveaus steigt und damit auch das Fluoreszenzsignal. Zum Vergleich sind die Lösungen der Ratengleichung (rot) und der Dichtematrix (grün) mit den Parametern des Experiments eingezeichnet. Zu berücksichtigende Parameter sind die Sättigungsparameter und die Wechselwirkungszeit des Lichts mit den Atomen in der Pumpregion. Bei einer Leistung $P=2$ mW und einer durch Amplitudenmodulation gemessenen Strahltaile von 3,5 mm

erhält man mit

$$I_{max} = \frac{2P}{\pi w^2} \quad (4.1)$$

eine maximale Intensität von $10,4 \text{ mW/cm}^2$. Daraus ergibt sich für den Übergang $5P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ ein Sättigungsparameter von $S_{410} = 0,6$. Die Wechselwirkungszeit berechnet sich mit dem Strahldurchmesser und einer Geschwindigkeit der Atome von 544 m/s bei einer Temperatur von $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ zu $12,9 \mu\text{s}$, also $2029 \Gamma^{-1}$. Die Messung wird qualitativ gut durch die Dichtematrixsimulation beschrieben. Abweichungen in der Breite und Höhe der Signale sind auf die Vereinfachung des Indiumenergieniveausystems auf ein 8-Niveausystem zurückzuführen. Die m_F -Zeemanniveaus sind hier nicht berücksichtigt worden, und damit wird auch die lineare Polarisation des Lichts vernachlässigt. Die Berechnungen für einen Verstimmungsbereich $\pm 700 \text{ MHz}$, der in *Mathematica* [28] programmierten Simulation, dauert für den einfachsten Fall mit nur einem Laserstrahl bis zu 40 Stunden. Bei Erweiterung des Programms von 8^2 auf 80^2 -Differentialgleichungen würde sich die Simulationszeit, die sich bei einer $n \times n$ -Matrix proportional zu n^2 verhält, auf mehrere Monate verlängern. Eine Möglichkeit zur Reduzierung des Rechenaufwands besteht durch Anwenden einer Monte-Carlo-Simulation.

In Resonanz befindet sich das System bei der Wechselwirkungszeit von $2029 \Gamma^{-1}$ in Sättigung, wie aus der zeitlichen Entwicklung der Population des $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Niveaus ersichtlich (Abbildung 4.3) ist. Ist die Laserfrequenz jedoch gegenüber der atomaren Resonanz

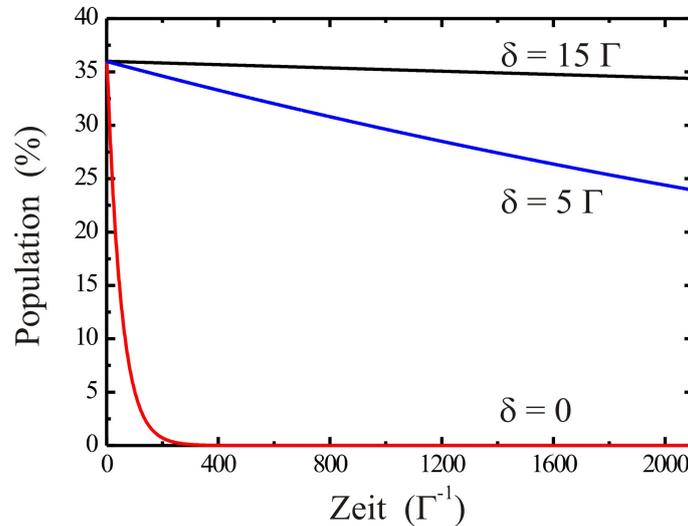


Abbildung 4.3: Zeitentwicklung der Population des $F = 4$ -Niveaus bei Resonanz (rot) und bei Verstimmungen von $\delta = 5\Gamma$ (blau) und $\delta = 15\Gamma$ (schwarz) mit $\Gamma = 25,1 \text{ MHz}$

verstimmt, so tritt der Gleichgewichtszustand bei den experimentellen Parametern erst bei größeren Wechselwirkungszeiten auf. Dieses ist sicherlich eine weitere Fehlerquelle,

da eine kleine Unsicherheit in der Wechselwirkungslänge einen relativ großen Einfluss auf die Breite der Signale hat. Das gleiche gilt für Unsicherheiten der Intensität. Der Intensitätsverlauf des gaußschen Laserstrahls, der als zeitliche Variation der Intensität in die Rabi-Frequenz eingehen müsste, ist bei den Simulationen vernachlässigt worden. Es wurde mit den maximalen Intensitäten gerechnet, welche eine zusätzliche Sättigungsverbreiterung hervorrufen. Der durch die Divergenz des Atomstrahls auftretende Dopplereffekt (Breite des Atomstrahls etwa 12 MHz) und die Linienbreite des Lasers (10 MHz) sind ebenfalls nicht in die Simulation eingegangen und würden zu einer Verbreiterung des theoretisch berechneten Signals führen.

Zur quantitativen Analyse wird die Intensität des Nachweislasers variiert und die Laserfrequenz über die einzelnen Übergänge verstimmt. In Abbildung 4.4 sind die theoretisch berechneten Halbwertsbreiten des $F = 4 \rightarrow F = 5$ -Übergangs gegen die gemessenen Breiten aufgetragen. Die lineare Regression zeigt, dass das Verhalten der theoretisch und

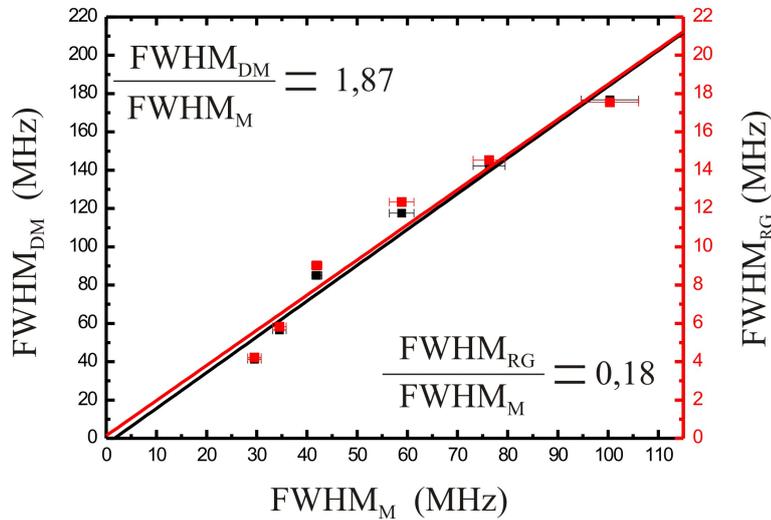
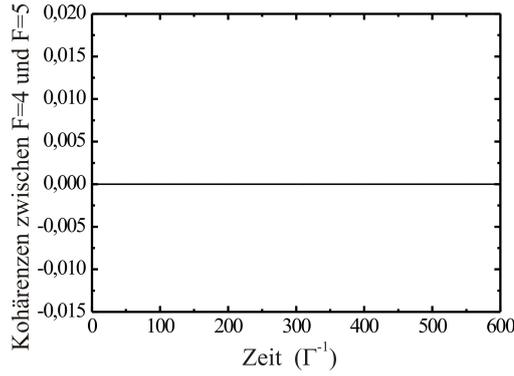


Abbildung 4.4: Vergleich der experimentell gemessenen Linienbreite ($FWHM_M$) des Übergangs $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ mit der durch Ratengleichung ($FWHM_{RG}$) und Dichtematrix ($FWHM_{DM}$) berechneten für verschiedene Intensitäten

der gemessenen Halbwertsbreiten übereinstimmt. Der absolute Wert der Ratengleichung weicht jedoch deutlich von dem gemessenen ab.

Die Theorie der Ratengleichungen stimmt offensichtlich nur in der Höhe der Signale mit der Dichtematrixlösung überein. Die Halbwertsbreite ist um einen Faktor 10 kleiner als die der Dichtematrix. Zur Analyse dieses Verhaltens wird der zeitliche Verlauf der Kohärenzen zwischen den Grundzuständen $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ und dem angeregten Zustand $6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ für die atomare Resonanz ($\delta = 0$) des Übergangs $F = 4 \rightarrow F = 5$ und für verschiedene Verstimmungen ($\delta = (2, 15, 30) \Gamma$) relativ zu dieser Resonanz betrachtet. Bei $\delta = 0$ und $\delta = 30 \Gamma$ ist der Effekt der Kohärenz vernachlässigbar, und die klassische Lösung der Ratengleichung stimmt mit der Lösung der Dichtematrix überein. Für $\delta = 2 \Gamma$ und



(a) Kohärenz bei Resonanz

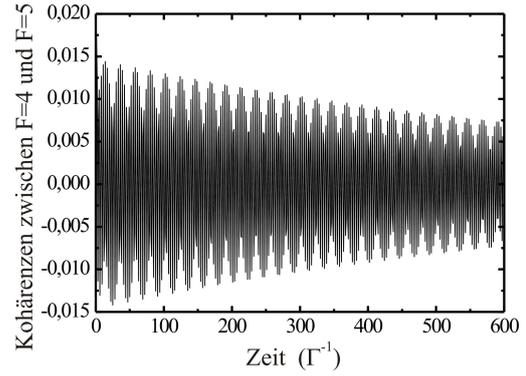
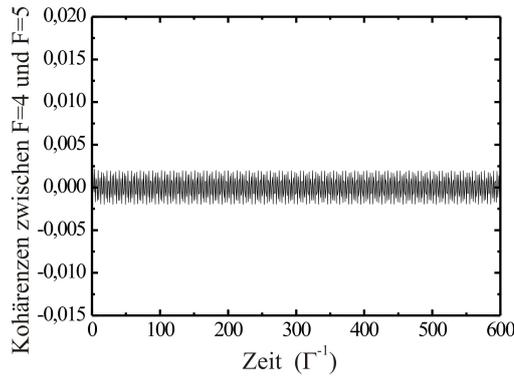
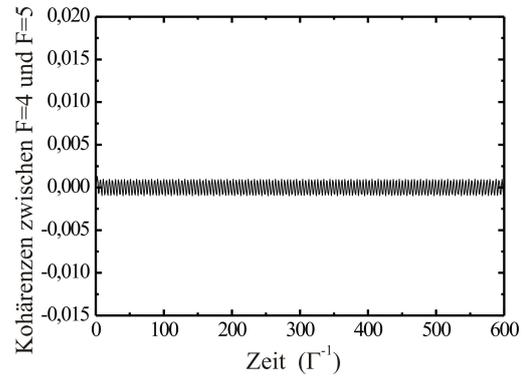
(b) Kohärenz bei einer Verstimmung von $\delta = 2\Gamma$ (c) Kohärenz bei einer Verstimmung von $\delta = 15\Gamma$ (d) Kohärenz bei einer Verstimmung von $\delta = 30\Gamma$

Abbildung 4.5: Einfluss der Kohärenzen zwischen $5P_{\frac{1}{2}} F=4$ und $6S_{\frac{1}{2}} F=5$ bei verschiedenen Verstimmungen relativ zum Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F=4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$

$\delta = 15\Gamma$ haben die Kohärenzen einen großen Einfluss, welches auch die unterschiedliche Linienbreite der simulierten Signale erklärt. In den Ratengleichungen wird die Sättigungsverbreiterung nicht berücksichtigt, da diese durch die Nicht-Diagonalelemente des Hamiltonoperators, also den Kohärenzen, beschrieben wird.

Optisches Pumpen mit sechs Frequenzen

Das optische Pumpen wurde bis jetzt nur durch einen Laser der Frequenz 410 nm untersucht. Im nächsten Abschnitt soll das optische Pumpen mit mehreren einfallenden Laserstrahlen im 410 nm- und 451 nm-Wellenlängenbereich behandelt werden. Der hierfür benutzte Aufbau (Abbildung 4.6) ist dem vorigen sehr ähnlich. In der Pumpregion werden

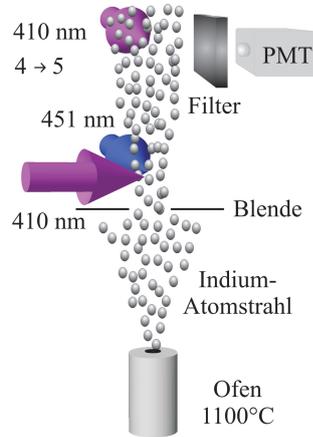
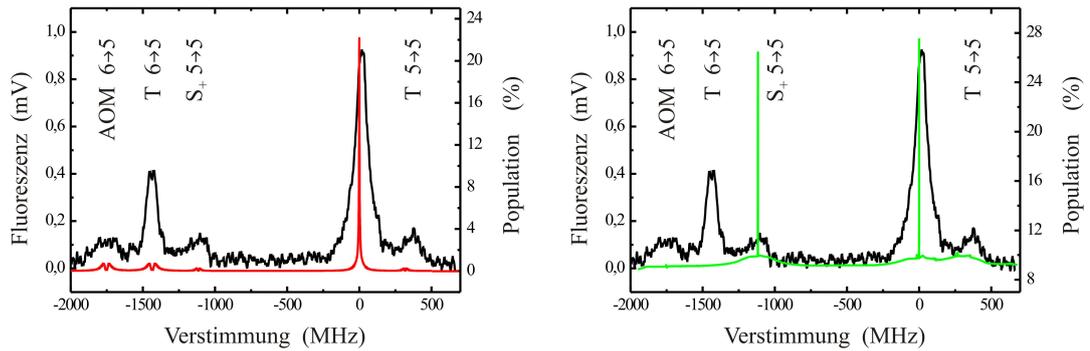


Abbildung 4.6: Aufbau des Optischen Pumpens mit Laserstrahlen der Wellenlängen 410 nm und 451 nm

senkrecht zum Atomstrahl zwei Laserstrahlen der Wellenlänge 410 nm, die zuvor durch einen PBS überlagert werden, eingestrahlt. Orthogonal zu diesen und zum Atomstrahl fällt Licht der Wellenlänge 451 nm ein, welches sich aus zwei überlagerten Strahlen, wie in Kapitel 1 beschrieben, zusammensetzt, deren einer durch akustooptische Modulation in Resonanz mit $F = 4 \rightarrow F = 5$ ist und deren anderer durch elektrooptische Modulation mit $F = (5, 6) \rightarrow F = 5$ resonant ist. Der letztere enthält außerdem die Trägerfrequenz, die 318 MHz unterhalb des Übergangs $F = 4 \rightarrow F = 5$ ist. Die Unsicherheit in der Überlagerung beträgt wenige hundert μm . Durch zwei Rasierklingen wird der Strahldurchmesser der 410 nm- und 451 nm-Laserstrahlen, der zunächst durch Teleskope aufgeweitet wird, auf 1 cm begrenzt, so dass eine definierte Wechselwirkungslänge vorliegt. Wie auch beim Optischen Pumpen mit einem Laserstrahl, wird im Abstand von 61 cm die Fluoreszenz eines Laserstrahls, der in Resonanz mit dem 410 nm $F = 4 \rightarrow F = 5$ -Übergang ist, detektiert. Durch Verstimmen der Frequenz des Titan:Saphir-Lasers werden alle vier Frequenzen des 451 nm-Lichts simultan verstimmt. Abbildung 4.7 zeigt ein typisches Spektrum für eine simultane Verstimmung des 451 nm-Laserlichts über eine Frequenz von etwa 3 GHz. 318 MHz oberhalb des Resonanzsignals ist ein kleines Signal erkennbar, welches der Resonanz der Trägerfrequenz mit dem Übergang 451 nm: $5 \rightarrow 5$ entspricht. Drei weitere Signale, die bei Rotverstimnungen von 1117 MHz, 1435 MHz und 1753 MHz auftreten, gehören zur Resonanz des Seitenbandes (S_+) mit dem Übergang $F = 5 \rightarrow F = 5$, der Trägerfrequenz (T) mit $F = 6 \rightarrow F = 5$ und dem akustooptischmodulierten Signal (AOM) mit $F = 6 \rightarrow F = 5$. Da auch hier die Fluoreszenz proportional zur Population des $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Niveaus ist, sind als Vergleich die Lösungen der Raten-



(a) Vergleich der Fluoreszenzmessung (schwarz) mit der Lösung der Rategleichung (rot) (b) Vergleich der Fluoreszenzmessung (schwarz) mit der Lösung der Dichtematrix (grün)

Abbildung 4.7: Population des $F = 4$ Niveaus in Abhängigkeit der Verstimmung relativ zur Resonanz aller Laserstrahlen: Die 451 nm-Laserstrahlen werden simultan verstimmt.

gleichung (rot) und der Dichtematrixberechnung (grün) eingetragen. Die Messung kann durch die theoretischen Spektren nicht beschrieben werden. Auch hier werden bei den Simulationen die Zeemanniveaus und damit auch die lineare Polarisation der Lichtfelder vernachlässigt. Wie bei der Simulation mit einem Laserstrahl, wird hier mit der konstanten Intensität (der maximalen) gerechnet, so dass auch bei dieser Simulation des Spektrums eine zusätzliche Verbreiterung zu erwarten ist. Andererseits wird die Divergenz des Atomstrahls und die Linienbreite der Laser nicht berücksichtigt. Eine Zeitentwicklung (Abbildung 4.9) zeigt, dass das System auch bei Resonanz nicht im Gleichgewicht ist. Die Hauptursache der deutlichen Abweichungen zwischen Messung und Theorie liegt an der anfangs beschriebenen nicht möglichen exakten Überlagerung der Laserstrahlen. Es wird beobachtet, dass kleine Abweichungen der Höhe der Laserstrahlen relativ zueinander eine deutliche Änderung im Spektrum ergeben. Dieses ist äußerst sensitiv gegenüber der letzten Wechselwirkung der Atome mit dem elektromagnetischen Feld. Wählt man die Population bei einer Rotverstimmung von 1753 MHz nach einer Wechselwirkungszeit von $2899 \Gamma^{-1}$, was einer Wechselwirkungslänge von 1 cm entspricht, als Anfangspopulation für eine Wechselwirkungslänge von 2 mm mit nur zwei Laserfrequenzen, dem akustooptisch moduliertem Laserstrahl und dem, der resonant mit $5P_{\frac{1}{2}} F = 5 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ ist, dann ändert sich die Population des $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Niveaus sehr deutlich. Nach einer Wechselwirkungslänge von 0,5 mm hat die Population von 9% auf 12% zugenommen. Die Empfindlichkeit der Atome auf den "letzten" Laserstrahl kann hier nicht ignoriert werden. Zur exakten Überlagerung könnten die Laserstrahlen alle in eine optische Faser gekoppelt werden, jedoch ist dies bei vier Laserstrahlen nur mit geringer Effizienz möglich.

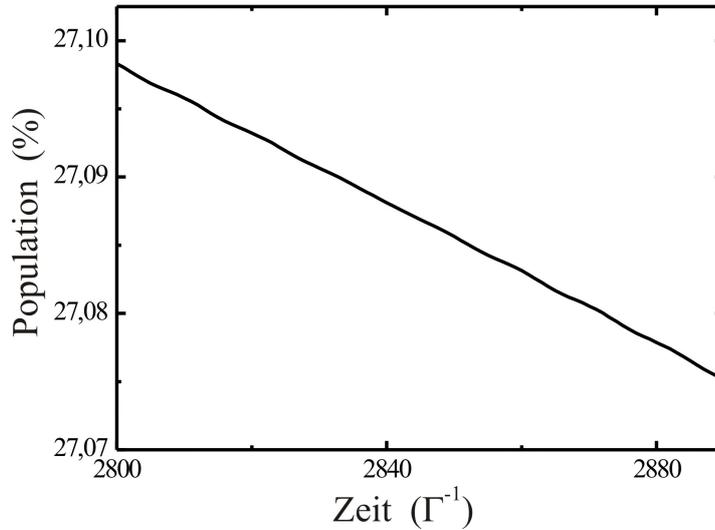


Abbildung 4.8: Zeitentwicklung der Population des $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Niveaus für ein Zeitfenster um die hier benutzte Wechselwirkungszeit bei einer Verstimmung der vier Frequenzen um -1117 MHz

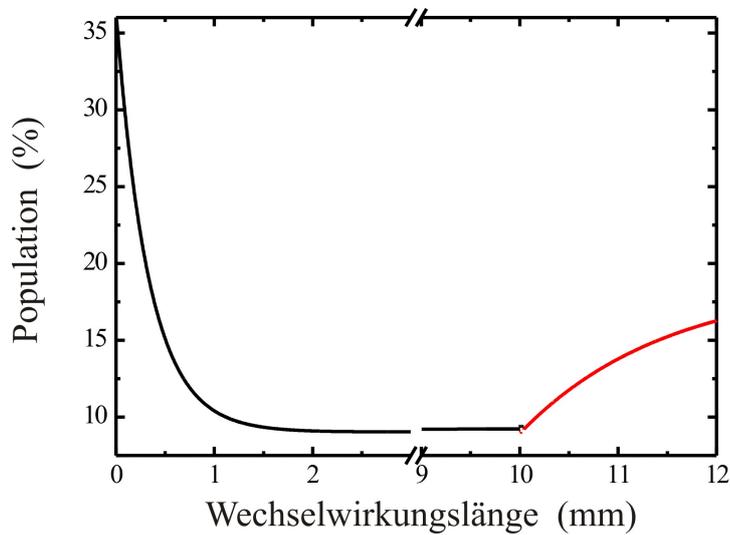
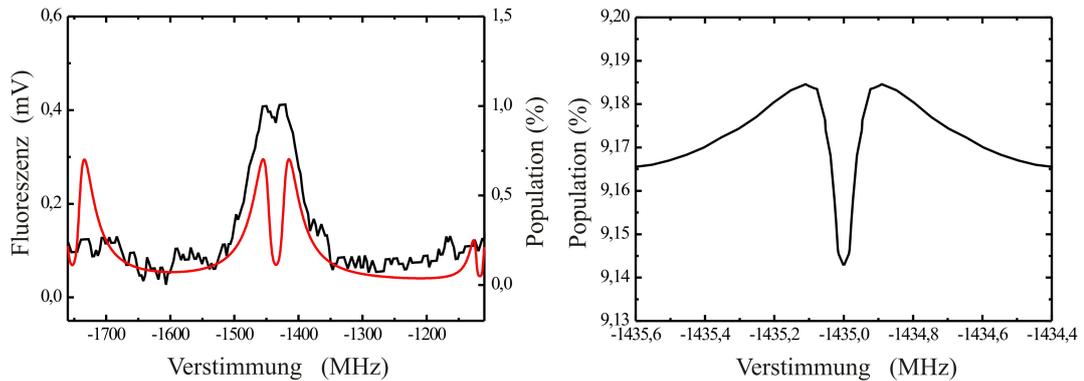


Abbildung 4.9: Zeitentwicklung der Population des $5P_{\frac{1}{2}} F = 4$ -Niveaus für eine Verstimmung der 451 nm-Laser um -1753 MHz. Für die Wechselwirkungslänge von 10 mm bis 12 mm (rot) sind nur zwei Laserstrahlen eingestrahlt.

Eine interessante Beobachtung sind die Einbrüche der gemessenen und theoretischen Signale auf Resonanz des Trägers mit dem Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F = 6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$, also einer Verstimmung der Frequenzen um 1435 MHz. Da sowohl die Lösung der Dichtematrix als auch die der Ratengleichung diese Einbrüche zeigen, können sie nicht nur auf Kohärenzeffekten beruhen. Vielmehr können sie durch die endliche Wechselwirkungslänge und damit auch durch die endliche Wechselwirkungszeit erklärt werden. Die zeitliche Abfolge des Be- und Entvölkerns der Zustände verursacht dieses Phänomen.



(a) Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 4.7(a) für einen Verstimmungsbereich von -1760 MHz bis -1110 MHz: Eine Verstimmung von -1435 MHz entspricht der Resonanz der Trägerfrequenz mit $5P_{\frac{1}{2}} F = 6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$. (b) Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 4.7(b) (Lösung der Dichtematrix) für einen Verstimmungsbereich von -1435,6 MHz bis -1434,4 MHz: Eine Verstimmung von -1435 MHz entspricht der Resonanz der Trägerfrequenz mit $5P_{\frac{1}{2}} F = 6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$.
 schwarz: Messung, rot: Ratengleichung

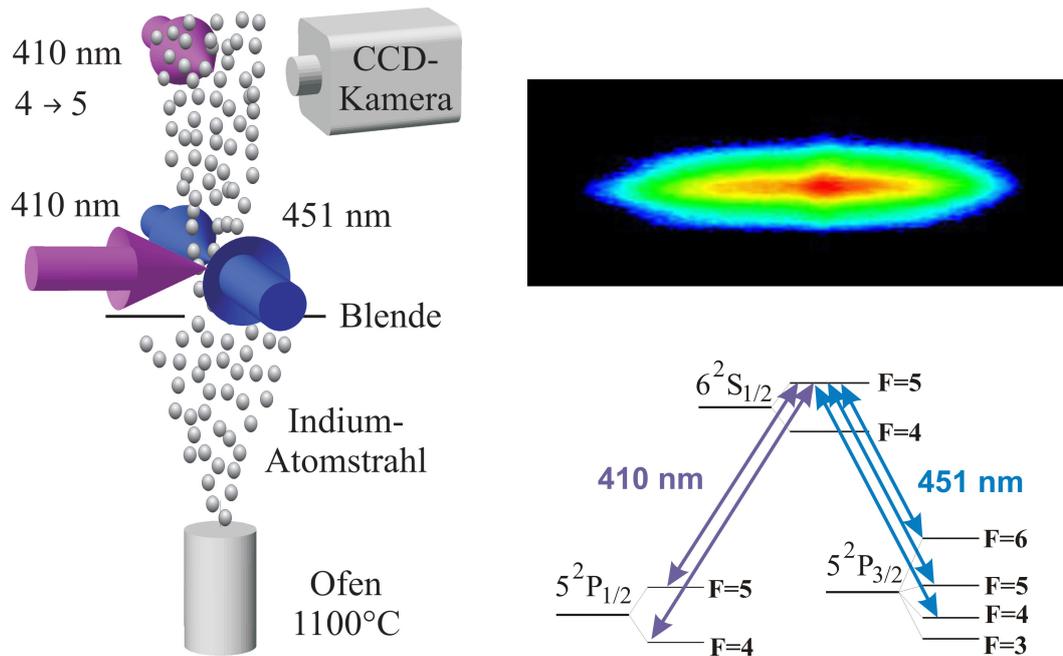
Abbildung 4.10: Vergrößerung der Abbildung 4.7

4.2 Laserkühlung von Indium

Ein weiterer Schritt zur Nanolithographie mit Indium ist die Kollimation des thermischen Atomstrahls mittels Laserkühlung. Gleichzeitig wird hierbei die lokale Flussdichte erhöht und somit die Belichtungszeit beim Lithographie-Prozess verkürzt. Wie in Kapitel 1 beschrieben, ist zur Realisierung effektiver Laserkühlung, also der Erhöhung der Phasenraumdichte, ein geschlossener atomarer Übergang erforderlich, um die Atome zurück in den entsprechenden Kühlübergang zu pumpen. Bei den in diesem Experiment betrachteten Niveaus von Indium kann ein solcher geschlossener Übergang nur mit mindestens fünf Frequenzen erreicht werden.

Blauverstimmtes Kühlen

Im ersten Experiment werden die 451 nm-Übergänge, die die Atome in den $6S_{\frac{1}{2}} F=5$ -Zustand anregen, als Kühlübergänge gewählt. Dementsprechend werden zwei Laserstrahlen der Wellenlänge 410 nm ($F=4 \rightarrow F=5$, $F=5 \rightarrow F=5$) als Rückpumper eingesetzt. Ähnlich dem optischen Pumpen fallen die Laserstrahlen der Wellenlänge 410 nm und 451 nm senkrecht zueinander und senkrecht zum Atomstrahl ein und regen die Indiumatome in das $6S_{\frac{1}{2}} F=5$ -Niveau an (Abbildung 4.11(a)). Die Laserstrahlen der Wellenlänge 451 nm werden in sich zurück reflektiert, so dass sie eine Stehwelle bilden. Alle Laserstrahlen in der Kühlregion werden durch Teleskope aus Zylinderlinsen auf 2,1 cm Strahldurchmesser parallel zur Atomstrahlrichtung aufgeweitet. Damit wird die Wechselwirkungslänge und -zeit der Indiumatome mit dem Laserlicht um einen Faktor 7 erhöht. Bei nicht aufgeweiteten Laserstrahlen befindet sich das System in Sättigung, so dass durch Vergrößern des Strahldurchmessers die Anzahl der Photonenstreuungen wächst und die Atome häufiger durch das Kühlaserlicht adressiert werden. Mit dem Nachweislaser im Abstand von etwa 60 cm, der wieder resonant mit dem Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F=4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$ ist, werden die Atome des Niveaus $5P_{\frac{1}{2}} F=4$ angeregt und deren Fluoreszenz wird mit einer CCD-Kamera detektiert. Die Kühlaser (Wellenlänge 451 nm) werden durch Verstimmten des Ti:Sa-Lasers aus der Resonanz gebracht. Bei einer Verstimmung des Ti:Sa-Lasers um 24 MHz, welche einer Verstimmung von 48 MHz des frequenzverdoppelten Lichts entspricht, also $3\gamma_{451}$, tritt ein maximaler Kühleffekt ein. Das CCD-Kamerabild zeigt eine Atomflussdichteerhöhung im Zentrum des Atomstrahls, die durch die Projektion dieses Bildes auf eine Achse (Abbildung 4.12) bestätigt wird. Starke Atomflussschwankungen wirken sich negativ auf die Qualität der Bilder aus. Als Vergleich zum gekühlten Atomstrahl ist in Abbildung 4.12 in schwarz die Fluoreszenz des nichtgekühlten Atomstrahls bei einfachem Durchgang aller Laserstrahlen aufgetragen. Es ist gut erkennbar, dass beim Rückreflektieren des Laserstrahls Atome gekühlt werden, da die Fluoreszenz nur im Zentrum zunimmt. Ebenso zeigt der Vergleich der Signale die auf die Atome wirkenden Lichtkräfte dadurch, dass die Position des gekühlten Atomstrahls um etwa 0,1 mm in Richtung negativer Abszisse verschoben ist. Der reflektierte Laserstrahl fällt aus Richtung positiver Abszisse ein. Beim Verstimmten des Ti:Sa-Lasers um -24 MHz (rotverstimmt), welches einer Verstimmung



(a) Aufbau zur Laserkühlung mit blauverstimmttem, retroreflektiertem Licht der Wellenlänge 451 nm

(b) Oben: Mit der CCD-Kamera aufgenommenes Fluoreszenzbild des Atomstrahls bei blauverstimmtm Kühlen. Unten: Niveauschema mit eingestrahltm Frequenzen

Abbildung 4.11: Blauverstimmtes Kühlen

mung von -48 MHz ($-3\gamma_{451}$) gegenüber der atomaren Resonanz des frequenzverdoppelten Lichts entspricht, geht das Kühlsignal in ein Heizsignal (Abbildung 4.13) über. Dieses bedeutet, dass die Atome aus dem Zentrum des Atomstrahls herausgedrückt werden und somit die Atomflussdichte dort abnimmt. Im auf die Achse projizierten Fluoreszenzbild der CCD-Kamera ist dieses als Einbruch bei der Position 0 mm sichtbar. Die hier beobachteten Heiz- und Kühleffekte lassen sich offensichtlich nicht durch die in Kapitel 1 beschriebenen Mechanismen Dopplerkühlen und Polarisationsgradientenkühlen erklären. Bei der Dopplerkühlung streuen Atome mit Photonen aus einem rotverstimmtm Laserstrahl, der die entgegengesetzte Ausbreitungsrichtung der Atome besitzt. Polarisationsgradienten liegen in diesem Experiment nicht vor, da die einfallende und reflektierte Welle identisch polarisiert sind.

Auch Laserkühlung durch stimulierte Prozesse, bei denen Atome in Lichtfeldern hoher Intensität in Stehwellenkonfiguration dadurch gekühlt werden, dass sie Photonen zwischen den beiden Lichtfeldern umverteilen [29], sind wegen der geringen Sättigungsparameter unwahrscheinlich.

Das in Kapitel 1 beschriebene transiente Kühlen, bei dem Atome in elektromagnetischen Stehwellenfeldern geringer Intensität eine ortsabhängige Energieniveaushiftung im Intensitätsgradientenfeld aufgrund des Starkeffekts erfahren, ist eine mögliche Erklärung. Durch optisches Pumpen in nicht-kohärente Dunkelzustände innerhalb einer Strecke von $\lambda/2$ wird die in potentielle Energie umgewandelte kinetische Energie durch spontane

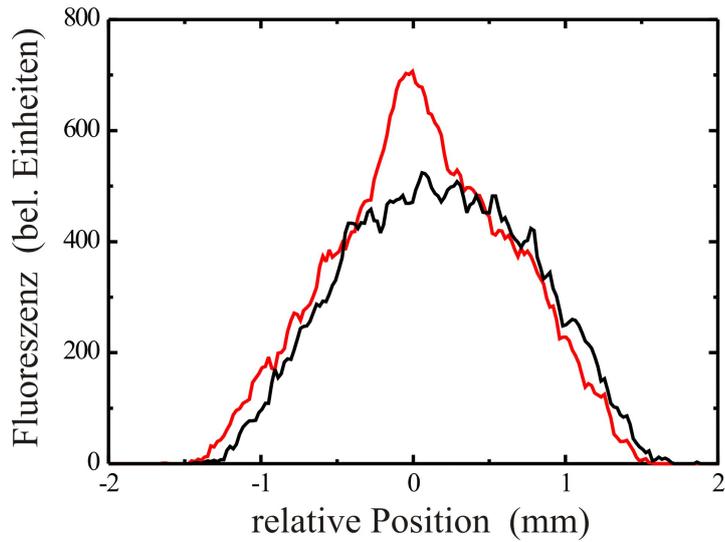


Abbildung 4.12: Auf eine Achse projiziertes Fluoreszenzsignal der CCD-Kamera: Die schwarze Linie ist das Fluoreszenzsignal bei einfachem Durchgang der Laserstrahlen der Wellenlänge 451 nm, der rote Graph ist das Kühlsignal bei retroreflektierten, blauverstimten Laserstrahlen der Wellenlänge 451 nm.

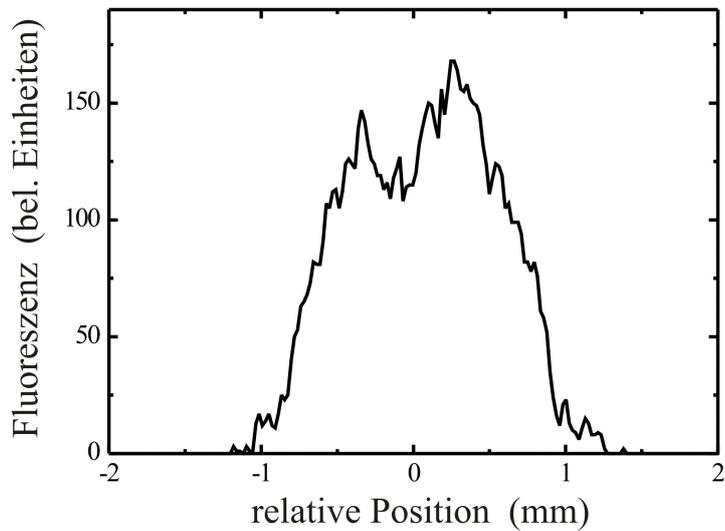


Abbildung 4.13: Auf eine Achse projiziertes Fluoreszenzsignal der CCD-Kamera zeigt das Heizsignal bei retroreflektierten, rotverstimten Laserstrahlen der Wellenlänge 451 nm. Die Atomflussdichte ist um einen Faktor 4 kleiner als bei der Aufnahme des gekühlten Atomstrahls.

Emission als Strahlung freigesetzt. Ein Anzeichen für diesen Prozess ist die relative Position der senkrecht zueinander einfallenden Kühl- und Pumpulaserstrahlen, die durch die Aufnahme eines Bildes mit einer CCD-Kamera in der Kühlregion bestimmt wird. Aus Abbildung 4.14 ist zu erkennen, dass die 410 nm-Laserstrahlen deutlich (6,5 mm) unterhalb der 451 nm-Strahlen den Atomstrahl durchqueren. Überlagert man die Strahlen, so nimmt das Kühlsignal ab bis es verschwindet. Das Blockieren des 410 nm-Laserstrahls führt ebenfalls zum Verschwinden des Kühlsignals. Entscheidend ist also, dass die Indiumatome, die bei 1100 °C zu etwa 80 % im $5P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand sind, in den Kühlübergang $5P_{\frac{3}{2}} \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}}$ optisch gepumpt werden, damit sie vom Kühllaserlicht adressiert werden können. Das Zurückpumpen während des Kühlens ist jedoch von Nachteil. Das könnte also darauf schließen lassen, dass eine Art transientes Kühlen vorliegt, bei dem das $5P_{\frac{1}{2}}$ -Niveau als nicht-kohärenter Dunkelzustand dient. Einfache Abschätzungen der Kraft wie in [17] können hier nicht durchgeführt werden, da Atome, die in den Grundzustand $5P_{\frac{1}{2}}$ gepumpt worden sind, nicht weiter gekühlt werden. Zerfällt ein Atom jedoch in den Zeemannzustand $5P_{\frac{3}{2}} F = 5 m_F = 5$, so kann das Atom im Knotenpunkt der Stehwelle seinen m_F -Zustand wechseln und verliert somit erneut kinetische Energie.

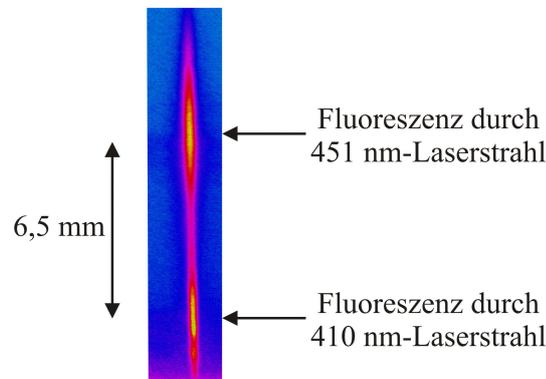


Abbildung 4.14: *Fluoreszenzsignal in der Kühlregion: Die Fluoreszenz des 451 nm-Laserlichts ist etwa 6,5 mm oberhalb der des 410 nm-Lichts*

Nun werden durch Einsetzen von $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Verzögerungsplatten Polarisationsgradienten erzeugt, was jedoch keinen Effekt bzw. eine Verschlechterung des Kühlsignals hervorruft. Dieses bedeutet, dass die durch den Polarisationsgradienten erzeugten Kräfte dem blauverstimmten Kühleffekt entgegenwirken. Eine Verbesserung in Kombination mit einem Magnetfeld, welches sowohl senkrecht als auch parallel zur Ausbreitungsrichtung des 451 nm-Laserstrahls angelegt wird, wird nicht erreicht.

Rotverstimmtes Kühlen

Desweiteren werden die auf die Atome ausgeübten Lichtkräfte mit nur einem Kühlübergang ($5P_{\frac{3}{2}} F = 6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$) untersucht, wobei die beiden Laserstrahlen der Wellenlänge 410 nm wieder als Rückpumpulaser dienen. Wie im vorigen Abschnitt fallen auch hier die Pumpstrahlen und der Kühlstrahl senkrecht zueinander und zum Atomstrahl ein

und werden jeweils auf 2,1 cm aufgeweitet. Der Übergang $5P_{\frac{3}{2}} F=6 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F=5$ hat die größte Übergangsstärke der 451 nm-Übergänge, so dass hier die meisten Photonen gestreut werden. In dieser Konfiguration liegt kein geschlossener Übergang vor, da die Atome in die $5P_{\frac{3}{2}} F=(4,5)$ -Niveaus zerfallen können, welche nicht durch das elektromagnetische Feld gekoppelt sind. Bei einem Sättigungsparameter von 3 für den Übergang $F=6 \rightarrow F=5$ und einer negativen Verstimmung von etwa einem Γ_{451} wird hier ein Kühlsignal beobachtet, wobei die Pumpstrahlen und der Kühlaserstrahl am Ort des Atomstrahls überlagert sind. Eine Aufnahme mit der CCD-Kamera konnte wegen starker Schwankungen des Atomflusses und der Atomstrahlposition aufgrund von an der Ofenöffnung kondensiertem Indium nicht gemacht werden. Im Gegensatz zum blauverstimmteten Kühlen wird hier eine geringe Verbesserung des Kühlsignals durch Polarisationsgradienten festgestellt. Durch eine $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte vor dem Spiegel wird die lineare Polarisation des reflektierten Strahls des 451 nm-Lichts um 90° gegenüber dem einfallenden Strahl gedreht. Es liegt somit die in Kapitel 1 beschriebene $\text{lin} \perp \text{lin}$ Polarisationskonfiguration vor. Das Anlegen eines Magnetfeldes erhöht das Kühlsignal nicht. Durch Dopplerkühlung wird sich das beobachtete Kühlsignal wegen der vielen Verlustkanäle nicht erklären lassen. Hier ist ein geschlossenes System von großer Bedeutung, damit möglichst viele Streuprozesse stattfinden.

5 Deposition

Atomlithographie mit neutralen Atomen ermöglicht paralleles Schreiben von Strukturen im Nanometerbereich auf einer Fläche von mehreren Quadratmillimetern. Zur erfolgreichen Realisierung der Nanostrukturierung mit Indium ist zusätzlich zur Präparation des Atomstrahls, also der Kollimierung, lokalen Flussdichteerhöhung und Zustandspräparation, die durch Laserkühlung und optisches Pumpen erreicht werden, auch die Untersuchung der Wechselwirkung der Indiumatome mit dem Substrat erforderlich. Eine gute Strukturauflösung (Kantenschärfe) setzt eine Wechselwirkung zwischen Indiumatom und Substrat voraus, die auf den Ort beschränkt ist, an dem das Indiumatom auf das Substrat trifft. Hier werden nun zwei Lithographieverfahren, die direkte Deposition und das Resistverfahren, vorgestellt und diskutiert.

5.1 Direkte Deposition von Indium

An der Atmosphäre stabile Atome wie Indium können direkt auf Substrate abgeschieden werden. Die direkte Deposition, bei der mit einem gekühlten Atomstrahl und einer Lichtmaske Strukturen geschrieben werden, wurde bereits mit Aluminium [31], Natrium [10] und Chrom [9] durchgeführt. In diesem Experiment wird die Mobilität von Indium auf Galliumarsenid (GaAs) und Silizium (Si) qualitativ untersucht. Bei einer Ofentemperatur von 1200 °C und einem Hintergrundgasdruck von $2 \cdot 10^{-7}$ mbar werden die Substrate in einem Abstand von 89 cm von der Ofenöffnung für vier Stunden beschrieben (Abbildung 5.1). Der theoretisch berechnete Fluss bei 1200 °C beträgt $1,5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. In den Substrathalter können vier Substrate mit einer maximalen Größe von $5 \times 10 \text{ mm}^2$ parallel gelegt werden. Die Öffnungsschlitze zur Belichtung sind $125 \mu\text{m}$ breit. Einkerbungen am äußeren Rand des Halters auf der Höhe der Schlitze vereinfachen das Justieren. Die Position des Atomstrahls wird durch Fluoreszenzmessung mit einem Laser markiert, so dass zur Deposition der Substrathalter so weit in den Versuchsaufbau geschoben wird, bis der Laser die Einkerbung am Substrathalter trifft. Nach der Entnahme aus dem Vakuum sind mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM) im Nicht-Kontakt-Modus Aufnahmen der bedampften Substrate gemacht worden (siehe Abbildung 5.2(b) und 5.2(a)). Die Aufnahmen beider Substrate zeigen eine starke Tropfenbildung von Indium. Die Tropfengröße des Indiums ist abhängig von der Grenzflächenspannung zwischen Indium und dem Substratmaterial und liegt bei dem Siliziumsubstrat (Abbildung 5.2(a)) im Bereich von 500 nm. Der Indiumtropfen hat somit eine größere Ausdehnung als die Periodenlänge von 205 nm der in Kapitel 1.5 beschriebenen Stehwelle, die als Lichtmaske dienen soll. Daher ist Silizium als Substrat zur direkten Deposition bei Raumtemperatur nicht ge-

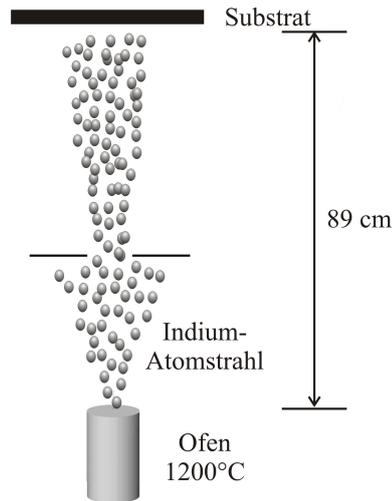


Abbildung 5.1: Aufbau zum Bedampfen von Si- und GaAs-Substraten mit Indium

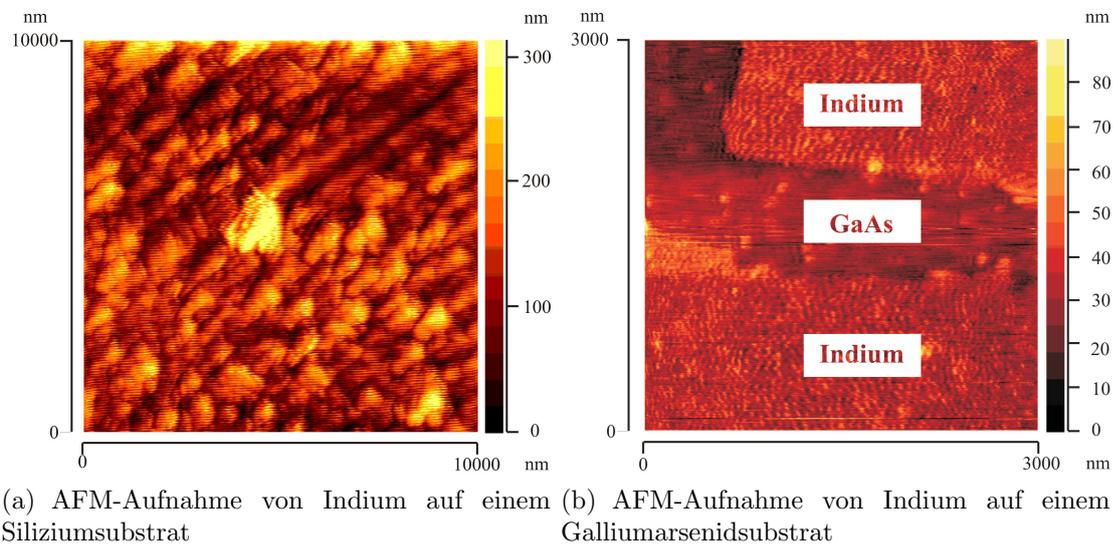


Abbildung 5.2: AFM-Aufnahmen von Indium auf GaAs und Silizium

eignet. Auch auf GaAs bildet Indium Tropfen, jedoch mit Durchmessern unterhalb von 30 nm, also deutlich unterhalb der Periodenlänge der Stehwelle. Die Grenzflächenspannung von GaAs liegt somit oberhalb derjenigen von Silizium, so dass GaAs als Substrat zur direkten Deposition eingesetzt werden kann.

Quantitative Untersuchungen zur Mobilität des Indiums auf den Substraten sind zu diesem Zeitpunkt noch nicht durchgeführt worden. Diffusion von Atomen auf Substraten kann verschiedene Ursachen haben, die in verschiedenen Arbeitsgruppen mit neutralen Atomen untersucht wurden. Die Abhängigkeit der Strukturschärfe von der Temperatur des Substrats wurde von Jurdik [33] festgestellt. Ebenso wurde gezeigt, dass hochreine Substrate im Ultrahochvakuum zum Strukturschreiben nur bedingt geeignet sind, da Schmutzpartikel wie Kohlenwasserstoff und Sauerstoff die Diffusion unterbin-

den und somit zur Nanolithographie bei Raumtemperatur erforderlich sind [34]. Die aus der Festkörperphysik bekannte Ehrlich-Schwoebel-Barriere, die besagt, dass sich Atome an Terrassengrenzen bevorzugt in die Horizontale setzen, so dass sie mehr direkte Nachbarn erhalten, kann ebenso zur Erhöhung der Strukturbreite führen [35]. Desweiteren kann eine Kontrastreduzierung auftreten, da Atome, die sich der Substratoberfläche bei der Deposition nähern, ein attraktives Potenzial spüren und somit in Richtung des Substrats beschleunigt werden. Genügt die Energie der Atome, die Stoßpartner zu versetzen, so nimmt die Kantenschärfe ab (ICD = impact cascade diffusion) [36]. Diese Analysen werden am sinnvollsten an einer durch eine Lichtmaske erzeugten Nanostruktur durchgeführt. Dann kann die Divergenz des Atomstrahls, der lasergekühlt ist, vernachlässigt werden. Die durch die Lichtmaske erzeugten Strukturunschärfen sind deutlich kleiner als die bei einer materiellen Maske, daher wurden diese Untersuchungen noch nicht durchgeführt und werden erst an den Nanostrukturen vorgenommen.

5.2 Deposition im Resistverfahren

Sehr lange Belichtungszeiten wie bei der direkten Deposition können durch die Atomlithographie im Resistverfahren umgangen werden. Ein durch ein Resist geschütztes Substrat wird mit Atomen belichtet, diese beschädigen das Resist, und die geschriebenen Strukturen werden beim anschließenden Ätzprozess auf das Substrat übertragen. Mit wenigen Indiumatomen kann eine Struktur hoher Tiefenschärfe geschrieben werden. Zusätzlich wird hier die im vorigen Abschnitt beschriebene Tropfenbildung von Indium auf einem Substrat vermieden. Aus diesen Gründen soll dieses Verfahren zur Untersuchung der durch eine Lichtmaske geschriebenen Strukturen eingesetzt werden. Im Rahmen dieser Diplomarbeit werden Strukturen mit verschiedenen materiellen Netzen hergestellt und die Indiumdosis bestimmt, die nötig ist, um das Resist zu schädigen.

Eigenschaften des Resists

Als Resist für die Atomlithographie mit Indium dient ein monomolekularer Film organischer Moleküle (Nonanethiol: $(\text{CH}_3(\text{CH}_2)_8\text{SH})$), die sich selbst zu Monolagen anordnen (SAM=self assembled monolayer). Das verwendete Substrat besteht aus einer 30 nm dicken Goldschicht, die auf einen Siliziumwafer aufgedampft ist. Eine 1,5 nm dicke Chromschicht zwischen dem Silizium und dem Gold dient der besseren Haftung des Goldes auf dem Silizium. Das Substrat wird zunächst in einer Piranhalösung (25 % H_2O_2 (35 %ig) und 75 % H_2SO_4 (konzentriert)) von jeglichen organischen Verunreinigungen befreit. Anschließend wird es für mindestens 24 Stunden in eine Lösung von 1 mM Nonanethiol in Ethanol gegeben, in der sich die selbstanordnenden Monolagen bilden [37]. Dieses Resist ist stark hydrophob und schützt so die Goldschicht vor wässrigen Lösungen. Bei der Belichtung mit Indium wird das Resist durch chemische Prozesse [38] lokal beschädigt und schützt dort das Gold nicht mehr ausreichend (Abb. 5.3). Das bedampfte Substrat wird für einige Minuten in eine wässrige Goldätzlösung gegeben, in der die ungeschützten Stellen des Goldes weggeätzt werden. Die geschriebenen Strukturen werden dabei auf das Substrat übertragen. Zunächst wird hier das Verhalten von

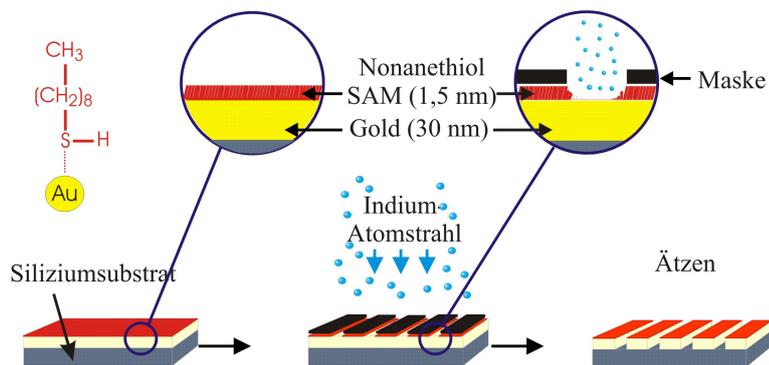


Abbildung 5.3: Lithographieprozess von Indium auf einem mit Gold beschichteten Siliziumsubstrat [6]

Gold auf Chrom nach dem Belichten mit Indium im Resistverfahren untersucht. Der Aufbau entspricht dem der direkten Deposition (Abbildung 5.1). Da ionisierte Teilchen das organische Resist zerstören, dürfen Ionisationsröhren zur Hintergrundgasdruckmessung nicht genutzt werden, wenn sich das SAM in der Vakuumapparatur befindet. Aus Messungen ohne SAM wird ein Druck von 10^{-6} mbar vermutet. Ein mit SAM beschichtetes Substrat wird 60 Minuten mit Indium belichtet und anschließend wie beschrieben in einer Goldätzlösung 14 Minuten geätzt. Das Substrat wird mit destilliertem Wasser von der Ätzlösung befreit und mit Druckluft getrocknet, um den Ätzprozess kontrolliert zu beenden. Abbildung 5.4 zeigt eine Rasterkraftmikroskopaufnahme (AFM) des Substrats nach dem Ätzen. Die horizontalen Linien sind wahrscheinlich durch mangelhafte Erdung der Abtastnadel entstanden. Nach dem Ätzprozess sind auf der belichteten Seite (links) des Substrats wie auch bei der direkten Deposition auf GaAs und Si Tropfen erkennbar. Die Tropfengröße liegt unterhalb von 100 nm. Hier bildet im Gegensatz zur

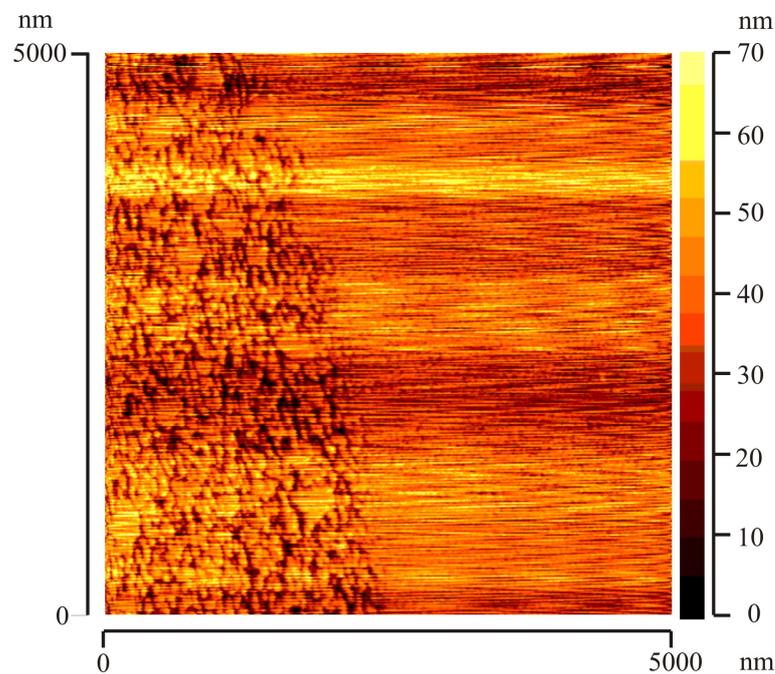
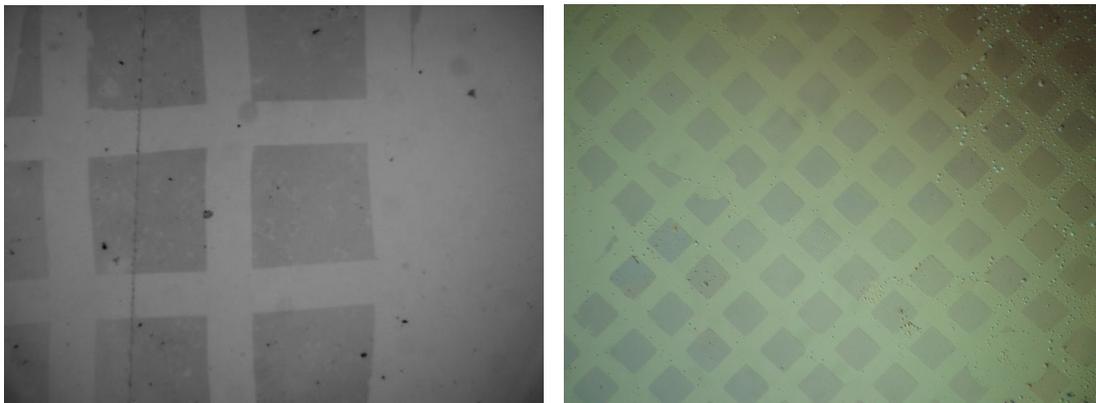


Abbildung 5.4: Tropfenbildung von Gold nach dem Ätzen eines mit Indium bedampften SAM-Substrats: Links: Bedampfter Teil des Substrats. Das nicht mehr geschützte Gold ist fast vollständig weggeätzt. Rechts: Nichtbedampfter Substratteil: Die von SAM bedeckte Goldschicht wird durch den Ätzprozess nicht beschädigt.

direkten Deposition das Gold, was nicht vollständig weggeätzt ist, die Tropfen, was auf der Grenzflächenspannung zwischen Gold und Chrom beruht. Die rechte Seite, welche nicht belichtet wurde, zeigt weiterhin die mit SAM beschichtete Goldschicht. Zur Untersuchung der Auflösung geschriebener Strukturen auf einem mit SAM beschichteten Substrat wird dieses mit Indium belichtet. Die Strukturen werden hier noch nicht durch eine Lichtmaske, sondern durch materielle Masken, die auf dem Substrathalter unterhalb des Substrats befestigt sind, erhalten. Die hier verwendeten Netze aus Kupfer und

5 Deposition

Nickel haben Stegbreiten von $7\ \mu\text{m}$ bzw. $10\ \mu\text{m}$ und eine Periodizität von $16,9\ \mu\text{m}$ bzw. $100\ \mu\text{m}$. Sie berühren das Substrat nicht, um eine Beschädigung des organischen Resists zu vermeiden. Bei einer Ofentemperatur von $1200\ ^\circ\text{C}$ wird das SAM-beschichtete Substrat mit einem Netz der Periodizität von $100\ \mu\text{m}$ 30 Minuten mit Indium belichtet und anschließend für 15 Minuten wie oben beschrieben geätzt. In Abbildung 5.5(a) ist eine Aufnahme mit einem optischen Mikroskop vom Substrat nach dem Ätzen dargestellt. Die Strukturen sind gut übertragen. Die Stegbreite, das heißt, der nicht geätzte Bereich, kann zu etwa $27,6\ \mu\text{m}$ und die Öffnung zu $72,4\ \mu\text{m}$ abgelesen werden. Die Abweichung der Strukturabmessungen vom benutzten Netz wird auf die Divergenz des Atomstrahls zurückgeführt, da die materielle Maske in einem Abstand von $2\ \text{mm}$ vom Substrat entfernt befestigt wurde. Bei einer Divergenz der Atomstrahlen von $8,8\ \text{mrad}$ wird daher eine Unsicherheit von $17\ \mu\text{m}$ erwartet. Strukturen geringerer Periodenlänge sind mit ei-



(a) Mikroskopaufnahme: Deposition von Indium auf eine Goldschicht mit einem Netz der Periodenlänge $100\ \mu\text{m}$, Depositionsbelichtungszeit: 30 min, Atomflussdichte: $1,4 \cdot 10^{13}\ \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
(b) Mikroskopaufnahme: Deposition von Indium auf eine Goldschicht mit einem Netz der Periodenlänge $16,9\ \mu\text{m}$, Depositionsbelichtungszeit: 45 min, maximaler Atomfluss: $1,4 \cdot 10^{13}\ \text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

Abbildung 5.5: Aufnahme beschriebener Substrate mit einem optischen Mikroskop nach der Deposition von Indium auf eine Goldschicht im Resistverfahren

nem Netz mit einer Periode von $16,9\ \mu\text{m}$ geschrieben worden. Die Belichtungszeit beträgt hier 45 Minuten bei derselben Ofentemperatur von $1200\ ^\circ\text{C}$. Nach 15 Minuten Ätzen wird mit dem optischen Mikroskop das folgende Bild 5.5(b) aufgenommen. Dies ist eine hundertfache Vergrößerung im Modus Phasenkontrast. Die Breite der nichtgeätzten Stege wird zu $7\ \mu\text{m}$ und die Kantenlänge der geätzten Quadrate zu $10\ \mu\text{m}$ bestimmt. Das Netz lag hier näher an der Oberfläche des Substrats, so dass die Divergenz des Atomstrahls, im Gegensatz zur Messung mit dem grobmaschigeren Netz, vernachlässigt werden kann. Die Kantenschärfe der geschriebenen Struktur wird mit Hilfe einer AFM-Aufnahme (Abbildung 5.6) der Strukturen, die bei Belichtung mit dem Netz der Periode $100\ \mu\text{m}$ entstehen, bestimmt. Das über einen Bereich von $150\ \text{nm}$ gemittelte Linienprofil der Goldoberflächenstruktur senkrecht zur Kante ist in Abbildung 5.7 aufgetragen.

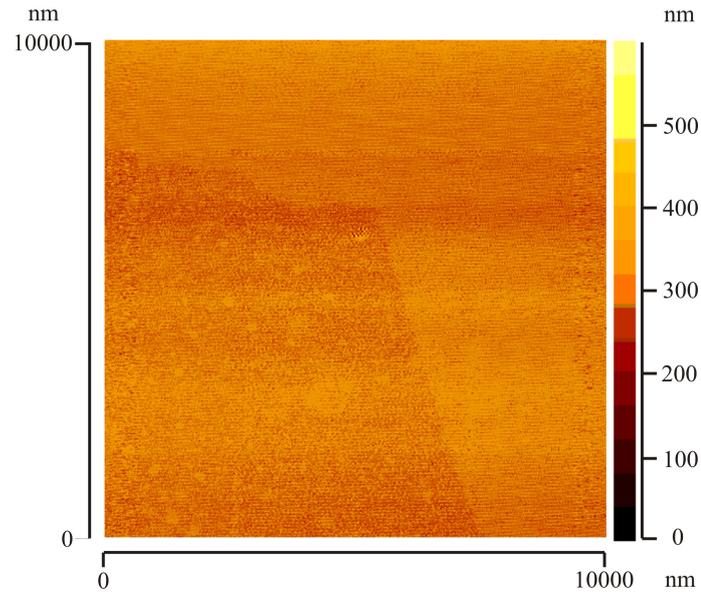


Abbildung 5.6: AFM-Aufnahme nach dem Ätzen einer mit Indium bedampften Goldschicht im Resistverfahren: Die Belichtung erfolgte durch ein Netz der Periodenlänge $100\ \mu\text{m}$. Im linken Teil ist das Resist durch das Indium zerstört worden. Rechts befand sich ein Steg des Netzes, so dass hier kein Ätzen stattfand.

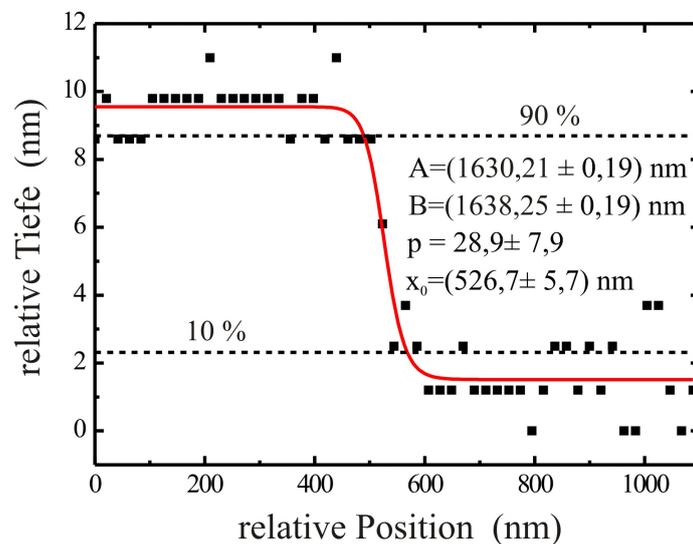


Abbildung 5.7: Bestimmung der Kantenschärfe bei der Deposition von Indium auf Gold im Resistverfahren mit einem Kupfernetz der Periodenlänge $100\ \mu\text{m}$ in einem Abstand von $2\ \text{mm}$ zum Substrat

Zur Bestimmung des Kontrasts wird die Funktion

$$rT(x) = A + \frac{B - A}{1 + \left(\frac{x}{x_0}\right)^p} \quad (5.1)$$

an die Daten angepasst. Die einzelnen Parameter sind in der Abbildung angegeben. Die Kantenschärfe ist als die Strecke definiert, in der die relative Tiefe von 90 % auf 10 % abfällt und wird hier zu (78 ± 12) nm bestimmt.

5.2.1 Bestimmung der minimalen Dosis von Indium

Die minimale Dosis Indium, die benötigt wird, um das Resist zu beschädigen und somit durch anschließendes Ätzen Strukturen auf ein Substrat übertragen zu können, wird hier bestimmt. Bei bekanntem Atomfluss kann dann die Belichtungszeit optimiert werden. Zur Messung wird der in Abbildung 5.8 dargestellte Aufbau genutzt. Bei einer Ofentemperatur von 1100°C und einer Temperatur der Zusatzheizung von 1200°C wird ein mit einem SAM beschichtetes Siliziumsubstrat mit Goldschicht in einem Abstand von 29 cm zur Ofenöffnung für 35 Minuten in den Atomstrahl gebracht. Die Position des Atomstrahls wird vorher durch Fluoreszenzmessung zweier orthogonal zueinander und zum Atomstrahl stehender Laserstrahlen markiert, so dass das Substrat an den Schnittpunkt der beiden Laserstrahlen geschoben werden kann. Nach einer Belichtungszeit von

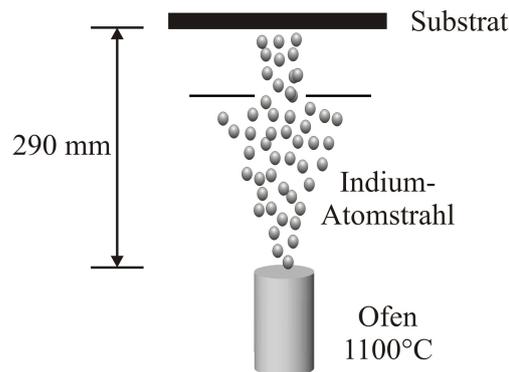


Abbildung 5.8: Aufbau der Deposition zur Bestimmung der Indiumdosis

35 Minuten wird das Substrat entnommen und für 10 Minuten in die in Abschnitt 5.1.2 beschriebene Goldätzlösung gegeben. Die Struktur des Flecks wird durch Messung der Reflektivität des beschriebenen Substrats ausgemessen. Ein Helium-Neon-Laserstrahl der Wellenlänge 633 nm wird auf das Substrat fokussiert und dessen Reflektivität unter wenigen Grad mit Hilfe eines Leistungsmessers bestimmt. Das Substrat ist auf einem x-y-Verschiebetisch (orthogonal zum Tisch) befestigt und kann somit relativ zum Laserstrahl verschoben werden, was einem Abtasten des Substrats mit dem Laserstrahl entspricht. Die Strahltaile, die durch Amplitudenmodulation gemessen wird, beträgt $40\ \mu\text{m}$. Der vom Substrat reflektierte HeNe-Strahl wird mit einer Linse auf ein Leistungsmessgerät fokussiert. Die Leistung von $622\ \mu\text{W}$ direkt vor dem Substrat wird als 100 % definiert.

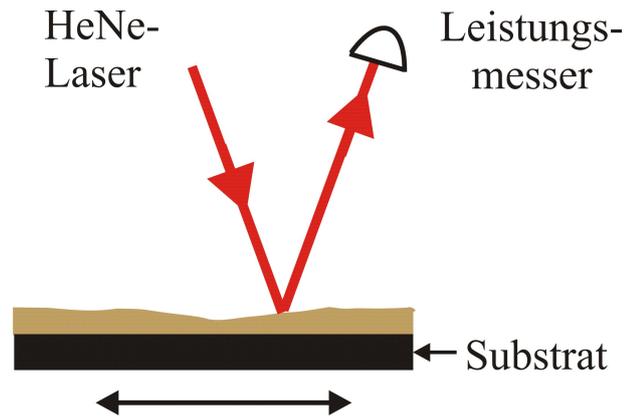


Abbildung 5.9: Aufbau zur Reflexionsmessung mit einem HeNe-Laser

Die Reflektivität beim Abtasten des Substrats ist in Abbildung 5.10 gegen die Position des Laserstrahls auf dem Substrat aufgetragen. Aus Kapitel 3.2 ist die gesamte Fluss-

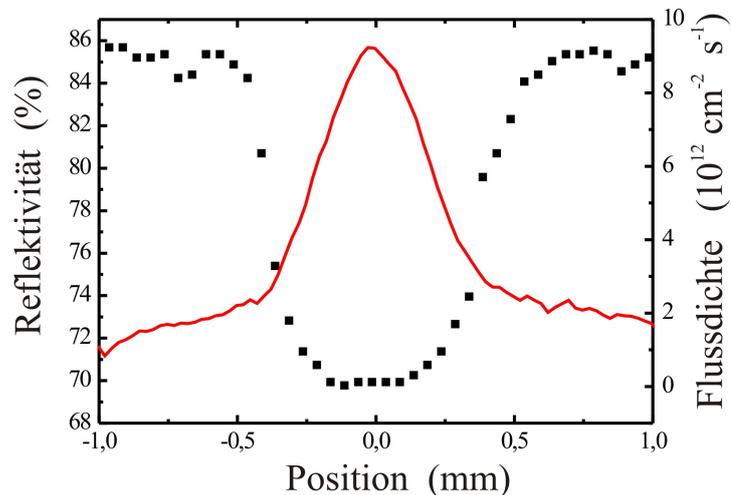


Abbildung 5.10: Reflektivität und Flussdichte in Abhängigkeit der Position auf dem Substrat

dichte des Atomstrahls bei einer Ofentemperatur von 1100°C bekannt. Der Vergleich zweier von der CCD-Kamera am Ort der Deposition aufgenommenen Fluoreszenzbilder zeigt, dass die Flussdichte am Tag der Deposition um einen Faktor 2,22 kleiner war als bei der Flussdichtemessung. Der zur Anregung der Atome benutzte Laserstrahl hat beide Male dieselbe Leistung von etwa 2,5 mW. Die Abweichung der Flussdichten lässt auf eine Dejustierung der Kühlblende schließen. Für die weiteren Berechnungen wird daher die Flussdichte um den Faktor 2,2 nach unten korrigiert. Aus Abbildung 5.10 ist ersichtlich, dass die Reflektivität des Substrats maximal ist an Stellen, wo die Flussdichte während der Deposition gegen 0 geht und minimal an Orten maximaler Flussdichte. Der

Verlauf der Reflektivitätskurve lässt sich in drei Bereiche unterteilen: Im ersten Teil ist die Reflektivität konstant und entspricht der der Goldschicht. Hier hat die Belichtung nicht ausgereicht, um das organische Resist zu beschädigen. Daran schließt sich ein etwa linearer Bereich an. Der dritte, der der Mitte des Flecks entspricht, ist gesättigt. Die Goldschicht scheint hier vollständig weggeätzt zu sein, so dass die gemessene Reflektivität der des Chroms gleichkommt. Aus der Flussdichteverteilung, der Belichtungszeit von 35 Minuten und der Oberflächendichte der SAM-Moleküle wird die Indiumdosis an jeder Stelle des Substrats in Einheiten von Monolagen berechnet. Eine Monolage Indium entspricht hier einer Oberflächendichte von $4,6 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$ der SAM-Moleküle. In Abbildung 5.11 ist die Reflektivität gegen die Dosis aufgetragen. Hieraus kann die Schwellendosis, die als Dosis bei halber relativer Reflektivität definiert ist, zu (10 ± 3) Monolagen [39] abgelesen werden. Diese Schwelle wird als die minimale Dosis bezeichnet. Bei ei-

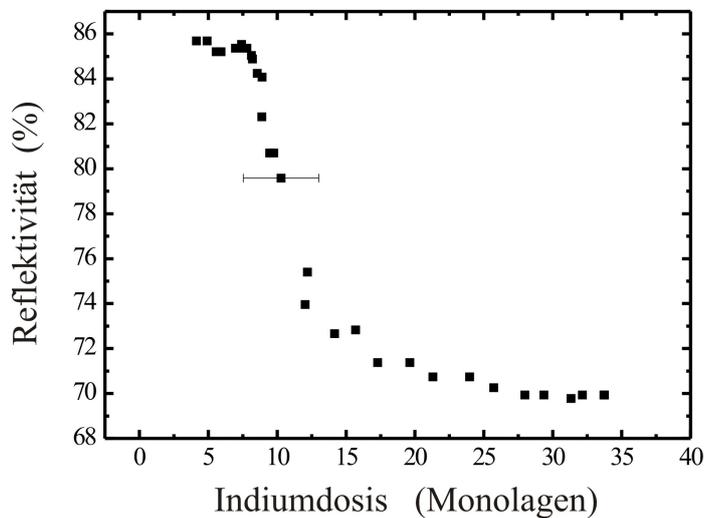


Abbildung 5.11: *Reflektivität des Substrats in Abhängigkeit der Indiumdosis*

ner maximalen Flussdichte von $3,7 \cdot 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ entspricht das Belichtungszeiten von etwa fünf Minuten. Die benötigte Belichtungszeit liegt hier also deutlich unterhalb der Zeit der direkten Deposition (vier Stunden), so dass der Vorteil des Resistverfahrens zur Stehwellenanalyse bestätigt wird. Schwellenwerte für andere Atomsorten liegen mit 3 Monolagen bei Cäsium ([40],[41]), 2 Monolagen bei Barium [42] und 5 Monolagen bei Gallium [39] in der gleichen Größenordnung.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im ersten Teil meiner Diplomarbeit habe ich die Wechselwirkung zwischen Indium und Licht theoretisch und experimentell analysiert. Das optische Pumpen wurde zur Präparation der internen Zustände und zum Verständnis der Laserkühlung des komplexen Energieniveausystems von Indium untersucht. Der hier entwickelte Dichtematrixformalismus für acht Hyperfeinniveaus beschreibt die Messergebnisse des optischen Pumpens mit einer Laserfrequenz gut. Hier wurde ein großer Einfluss der Kohärenzen bei einer kleinen Verstimmung gegenüber der atomaren Resonanz herausgestellt. Der Vergleich von Theorie und Messung mit sechs Frequenzen zeigt, wie kritisch die experimentellen Parameter sind. Eine Erweiterung der Theorie auf die Zeemanstruktur ist prinzipiell mit dem geschriebenen Programm einfach möglich, jedoch wegen fehlender Rechenleistung unserer Computer hier nicht durchgeführt worden.

Während meines Diplomarbeitsjahrs haben wir außerdem die Laserkühlung zur Kollimierung und lokalen Flussdichteerhöhung des Indiumatomstrahls erreicht. Die besten Ergebnisse zur Laserkühlung erhielten wir interessanterweise durch Blauverstimmen der Laserfrequenzen. Die endliche Wechselwirkungszeit zwischen Indiumatomen und dem Lichtfeld und die relative Position der Pump- und Kühllaser am Ort des Atomstrahls lassen uns auf transiente Effekte schließen. Energieverschiebungen aufgrund des Stark-Effekts und optisches Pumpen in nicht gekoppelte Zustände sind eine mögliche Erklärung.

Der zweite Teil der Diplomarbeit beschäftigt sich mit der Deposition von Indium auf Substraten. Qualitative Analysen der Mobilität von Indium auf Silizium- und Galliumarsenidsubstraten zeigen eine durch die Grenzflächenspannung hervorgerufene Tröpfchenbildung des Indiums bei Raumtemperatur. Der Vergleich der Stehwellenperiode von 205 nm mit dem Tröpfchendurchmesser des Indiums unterhalb von 30 nm auf Galliumarsenid und etwa 500 nm auf Silizium zeigt, dass nur Galliumarsenid als Substrat zur direkten Deposition geeignet ist. Als Vorbereitung zur Charakterisierung mit einer Stehwelle geschriebener Strukturen wurde die Lithographie im Resistverfahren untersucht. Es wurde gezeigt, dass dies auch mit Indium möglich ist und mit materiellen Netzen geschriebene Strukturen mit guter Kantenschärfe übertragen werden können. Der Atomstrahl wurde durch Bestimmung der Geschwindigkeitsverteilung und des Atomflusses charakterisiert, so dass zusammen mit einer Reflektivitätsmessung die minimale Indiumdosis, die zur effizienten Resistbeschädigung benötigt wird, zu 10 Monolagen bestimmt wurde. Bei einer typischen Flussdichte von 10^{13} Atome/s ist somit nur eine Belichtungszeit von 5 Minuten erforderlich. Nicht auftretende Tröpfchenbildung, gute Tiefenschärfe und extrem kurze Belichtungszeiten bestätigen den Vorteil des Resistverfahrens zur Charakterisierung der

Stehwelle gegenüber der direkten Deposition.

Der nächste Schritt dieses Experiments wird das Verstehen des blauverstimmten Laserkühlens sein, um dann effizienter, möglichst mit fünf Frequenzen, Kühlen zu können. Anschließend soll eine eindimensionale Stehwelle als immaterielle Maske realisiert werden. Der dafür benötigte Substrathalter ist schon angefertigt. Zwei 90° -Prismen sind an einem Spiegel als Substratablage befestigt. Ein Laserstrahl, der relativ zum Übergang $5P_{\frac{1}{2}} F = 4 \rightarrow 6S_{\frac{1}{2}} F = 5$ verstimmt ist, wird direkt unterhalb des Substrats vom Spiegel in sich zurück reflektiert. Eine elektrische Durchführung ermöglicht es, die Position und die Neigung des Spiegels zu variieren.

A Clebsch-Gordan-Koeffizienten für Indium

Die Entartung der Hyperfeinniveaus wird bei Atomen in einem elektromagnetischem Feld aufgehoben, da die Zeemann-Unterniveaus eine Energieverschiebung aufgrund des Stark-Effekts erfahren. Diese berechnet sich durch

$$\Delta E_g = \frac{\hbar \delta S_0 C_{ge}^2}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \quad (\text{A.1})$$

und ist wegen der Proportionalität zum Quadrat der Clebsch-Gordan-Koeffizienten von der Polarisation des Licht und der magnetischen Quantenzahl des Unterniveaus abhängig. In den Tabellen A.1, A.2 und A.3 sind die Quadrate der Clebsch-Gordan-Koeffizienten [46] für die Zeemann-Zustände des Niveaus $5P_{\frac{3}{2}} F = (4,5,6)$ für die zirkulare Polarisationen (σ^+ und σ^-) und die lineare Polarisation (π) des Lichtfeldes aufgeführt.

F \ m _F	-6	-5	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	5	6
4→5	-	-	$\frac{1}{45}$	$\frac{1}{15}$	$\frac{2}{15}$	$\frac{2}{9}$	$\frac{1}{3}$	$\frac{2}{9}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{28}{45}$	$\frac{4}{5}$	-	-
5→5	-	$\frac{1}{6}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{2}{5}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{2}{5}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{1}{6}$	0	-
6→5	$\frac{11}{13}$	$\frac{55}{78}$	$\frac{15}{26}$	$\frac{6}{13}$	$\frac{14}{39}$	$\frac{7}{26}$	$\frac{5}{26}$	$\frac{5}{39}$	$\frac{1}{13}$	$\frac{1}{26}$	$\frac{1}{78}$	0	0

Tabelle A.1: Quadrate der Clebsch-Gordon-Koeffizienten für positiv zirkular polarisiertes Licht

F \ m _F	-6	-5	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	5	6
4→5	-	-	1	$\frac{4}{5}$	$\frac{28}{45}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{1}{3}$	$\frac{2}{9}$	$\frac{2}{15}$	$\frac{1}{15}$	$\frac{1}{45}$	-	-
5→5	-	0	$\frac{1}{6}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{2}{5}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{2}{5}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{1}{6}$	-
6→5	0	0	$\frac{1}{78}$	$\frac{1}{26}$	$\frac{1}{13}$	$\frac{5}{39}$	$\frac{5}{26}$	$\frac{7}{26}$	$\frac{14}{39}$	$\frac{6}{13}$	$\frac{15}{26}$	$\frac{5}{78}$	$\frac{11}{13}$

Tabelle A.2: Quadrate der Clebsch-Gordon-Koeffizienten für negativ zirkular polarisiertes Licht

A Clebsch-Gordan-Koeffizienten für Indium

F \ m _F	-6	-5	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	5	6
4→5	-	-	$\frac{1}{5}$	$\frac{16}{45}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{8}{15}$	$\frac{5}{9}$	$\frac{8}{15}$	$\frac{7}{15}$	$\frac{16}{45}$	$\frac{1}{5}$	-	-
5→5	-	$\frac{5}{6}$	$\frac{8}{15}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{2}{15}$	$\frac{1}{30}$	0	$\frac{1}{30}$	$\frac{2}{15}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{8}{15}$	$\frac{5}{6}$	-
6→5	0	$\frac{11}{78}$	$\frac{10}{39}$	$\frac{9}{26}$	$\frac{16}{39}$	$\frac{35}{78}$	$\frac{6}{13}$	$\frac{35}{78}$	$\frac{16}{39}$	$\frac{9}{26}$	$\frac{10}{39}$	$\frac{11}{78}$	0

Tabelle A.3: Quadrate der Clebsch-Gordon-Koeffizienten für linear polarisiertes Licht

B Sättigungsintensitäten für Indium

Die Übergangsstärken $\Gamma_{F_e \rightarrow F_g}$ von einem angeregten Hyperfeinniveau F_e in einen Hyperfeinniveaugrundzustand F_g ergeben sich aus [43] zu

$$\Gamma_{F_e \rightarrow F_g} = \Gamma_{J_e \rightarrow J_g} (2J_e + 1)(2F_g + 1) \left\{ \begin{array}{ccc} J_g & F_g & I \\ F_e & J_e & 1 \end{array} \right\}^2, \quad (\text{B.1})$$

wobei $I = 9/2$ der Kernspin des Indiumatoms und $\Gamma_{J_e \rightarrow J_g}$ die Linienbreiten der Feinniveauübergänge sind.

von/nach	$5P_{\frac{1}{2}} \text{ F}=4$	$5P_{\frac{1}{2}} \text{ F}=5$	$5P_{\frac{3}{2}} \text{ F}=3$	$5P_{\frac{3}{2}} \text{ F}=4$	$5P_{\frac{3}{2}} \text{ F}=5$	$5P_{\frac{3}{2}} \text{ F}=6$
$6S_{\frac{1}{2}} \text{ F}=4$	$\frac{4}{15}$	$\frac{11}{15}$	$\frac{7}{18}$	$\frac{11}{30}$	$\frac{11}{45}$	-
$6S_{\frac{1}{2}} \text{ F}=5$	$\frac{3}{5}$	$\frac{2}{5}$	-	$\frac{6}{55}$	$\frac{3}{10}$	$\frac{13}{22}$

Tabelle B.1: Übergangsstärken der Hyperfeinniveaus von Indium in Einheiten der entsprechenden Feinniveaulinienbreiten $\Gamma_{6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 5P_{\frac{1}{2}}} = 2\pi \cdot 8,9 \text{ MHz}$ und $\Gamma_{6S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 5P_{\frac{3}{2}}} = 2\pi \cdot 16,2 \text{ MHz}$.

Mit der longitudinalen Relaxationsrate $\Gamma = 2\pi \cdot 25,1 \text{ MHz}$ des $6S_{\frac{1}{2}}$ -Niveaus von Indium und der transversalen Relaxation von $\Gamma_t = \frac{\Gamma}{2}$ wird der Sättigungsparameter in semiklassischer Betrachtung zu [44]

$$S_0 = \frac{I}{I_0} = \frac{\Omega^2}{\Gamma\Gamma_t} = \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2} \quad (\text{B.2})$$

definiert. Unter Berücksichtigung der Entartung g_F des Hyperfeinniveaus $|F\rangle$ erhält man für die Rabi-Frequenz vom angeregten Zustand $|e\rangle$ in den Grundzustand $|g\rangle$

$$\Omega_{ge}^2 = \frac{3\lambda^3}{2\pi\hbar c} \gamma_{eg} I = \frac{I}{2I_0} \Gamma^2 \quad (\text{B.3})$$

mit der Intensität I des elektromagnetischen Feldes und der Sättigungsintensität

$$I_0 = \frac{\pi\hbar c}{3\lambda^3} \frac{\Gamma^2}{\gamma_{eg}}. \quad (\text{B.4})$$

Der Einsteinkoeffizient für die spontane Emission (A_{eg}) steht mit den Einsteinkoeffizien-

B Sättigungsintensitäten für Indium

von/nach	$5P_{\frac{1}{2}} F=4$	$5P_{\frac{1}{2}} F=5$	$5P_{\frac{3}{2}} F=3$	$5P_{\frac{3}{2}} F=4$	$5P_{\frac{3}{2}} F=5$	$5P_{\frac{3}{2}} F=6$
$6S_{\frac{1}{2}} F=4$	503,75	183,18	142,58	151,22	226,83	-
$6S_{\frac{1}{2}} F=5$	223,89	335,84	-	508,27	184,83	93,83

Tabelle B.2: Sättigungsintensitäten der Hyperfeinniveauübergänge von Indium in mW cm^{-2}

ten für die stimulierte Emission (B_{eg}) und die Absorption (B_{ge}) unter Berücksichtigung der Entartung g_F des Hyperfeinniveaus $|F\rangle$ in folgender Relation [45]

$$A_{eg} = \frac{8\pi h}{\lambda^3} B_{eg} \quad (\text{B.5})$$

und

$$B_{ge} = \frac{g_e}{g_g} B_{eg} \quad (\text{B.6})$$

Daraus erhält man für die Rabi-Frequenz vom Grundzustand $|g\rangle$ in den angeregten Zustand $|e\rangle$

$$\Omega_{eg}^2 = \frac{1}{2} \frac{I}{I_0} \frac{g_e}{g_g} \Gamma^2 \quad . \quad (\text{B.7})$$

Literaturverzeichnis

- [1] A. Einstein, *Zur Quantentheorie der Strahlung*, Phys. Z. **18** 121 (1917)
- [2] O. Frisch, *Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrückstoßes*, Z. Phys. **86** 42 (1933)
- [3] T. Hänsch und A. Schawlow, *Cooling of gases by laser radiation*, Optics Communication **13**, 68-69 (1975)
- [4] D. Wineland und H. Dehmelt, *Proposed $10^{14} \Delta\nu < \nu$ laser fluorescence spectroscopy on Tl^+ mono-ion oscillator III*, Bull. Am. Phys. Soc. **20** 637 (1975)
- [5] D. Meschede und H. Metcalf, *Atomic nanofabrication: atomic deposition and lithography by laser and magnetic forces*, J. Phys. D **36** R17 (2003)
- [6] F. Lison, H.J. Adams, D. Haubrich, M. Kreis, S. Nowak und D. Meschede, *Nanoscale atomic lithography with a cesium atomic beam*, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **65**, 419 (1997)
- [7] S. Nowak, T. Pfau und J. Mlynek, *Nanolithography with metastable helium*, Appl. Phys. B: **63**, 203 (1996)
- [8] S.J. Rehse, A.D. Glueck, S.A. Lee, A.B. Goulakov, C.S. Menoni, D.C. Ralph, K.S. Johnson und M. Prentiss, *Nanolithography with metastable neon atoms: Enhanced rate of contamination resist formation for nanostructure fabrication*, Appl. Phys. Lett. **71**, 1427 (1997)
- [9] J.J. McClelland, R.E. Scholten, E.C. Palm und R.J. Celotta, *Laser-Focused Atomic Deposition*, Science **262**, 877 (1993)
- [10] G. Timp, R.E. Behringer, D.M. Tennant, J.E. Cunningham, M. Prentiss und K.K. Berggren, *Using light as a Lens for Submicron, Neutral-Atom Lithography*, Phys. Rev. Lett. **69**, 1636-1639 (1992)
- [11] Th. Schulze, T. Mütter, D. Jürgens, B. Brezger, M.K. Oberthaler, T. Pfau and J. Mlynek, *Structured doping with light forces*, Appl. Phys. Lett. **78**, 1781 (2001)
- [12] A.N. Nesmeyanov, *Vapor pressure of the chemical elements*, Elsevier Publishing Company, Amsterdam (1963)

- [13] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Handbook/Tables/indiumtable1.htm>
(08.11.2005)
- [14] H. Metcalf und P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping*, Springer, New York (1999)
- [15] P. Lett, R. Watts, C. Westbrook, W. Phillips, P. Gould und H. Metcalf, *Observation of Atoms Laser Cooled Below the Doppler Limit*, Phys. Rev. Lett. **61** 169 (1988)
- [16] J. Dalibard und C. Cohen-Tannoudji, *Laser cooling below the Doppler limit by polarization gradients: simple theoretical models*, J. Opt. Soc Am. B **6**, 2023-2045 (1989)
- [17] S. Padua, C. Xie, R. Gupta, H. Batelaan, T. Bergeman und H. Metcalf, *Transient Laser Cooling*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3217 (1993)
- [18] R. Grimm, M. Weidemüller und Y.B. Ovchinnikov, *Optical Dipole Traps for Neutral Atoms*, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **42**, 95 (2000)
- [19] P.A. Franken, A.F. Hill, C.W. Peters und G. Weinreich, *Generation of Optical Harmonics*, Phys. Rev. Lett. **7**, 188 (1961)
- [20] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing und P.S. Pershan, *Interaction between light waves in a nonlinear dielectric*, Phys. Rev. **127**, 1918-1939 (1962)
- [21] A. Ashkin, G. Boyd und J. Dziedzic, *Resonant Optical Second Harmonic Generation and Mixing*, IEEE J. Quant. Electronics QE-2 **6**, 109-123 (1966)
- [22] F. Torabi-Goudarzi und E. Riis, *Efficient cw high-power frequency doubling in periodically poled KTP*, J. Phys. D Appl. Phys. **28**, 1747-1763 (1995)
- [23] T.W. Hänsch und B. Couillaud, *Laser Frequency Stabilization by Polarization Spectroscopy of a Reflecting Reference Cavity*, Optics Communications **35**, 441-444 (1980)
- [24] P.W. Smith und T.W. Hänsch, *Cross-relaxation effects in the saturation of the 6328 Å neon-laser line*, Phys. Rev. Lett. **26**, 740-743, (1971)
- [25] U. Rasbach, J. Wang, R. dela Torre, V. Leung, B. Klöter, D. Meschede, T. Varzhapetyan und D. Sarkisyan. *One- and Two-Color Spectroscopy in an Indium All-Sapphire Cell*, Phys. Rev. A **70**, 33810, (2004)
- [26] CreaTec GmbH, *Effusionszelle: DFC-35/25-SH*, Erligheim, Deutschland
- [27] N.F. Ramsey, *Molecular Beams*, Oxford Science Publications, Oxford (1963)
- [28] Stephen Wolfram, *Mathematica 4*, Wolfram Research **Version 4.2** (2002)

- [29] A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C. Salomon und C. Cohen-Tannoudji, *Cooling Atoms with Stimulated Emission*, Phys. Rev. Lett. **57**, 1688 (1986)
- [30] C. Di Valentin, A. Scagnelli und G. Pacchioni, *Theory of Nanoscale Atomic Lithography. An ab Initio Study of the Interaction of "cold" Cs Atoms with Organthiols Self-assembled Monolayers on Au(111)*, J. Phys. Chem. B **109**, 1815-1821 (2004)
- [31] R.W. McGowan, D.M. Giltner und S.A. Lee, *Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminium atoms*, Opt. Lett. **20**, 2535 (1995)
- [32] B. Fazio, O.M. Maragò, E. Arimondo, C. Spinella, C. Bongiorno und G. D'Arrigo, *Superlattices and Microstructures*, **36**, 219 (2004)
- [33] E. Jurdik, Th. Rasing, H. van Kempen, C.C. Bradley und J.J. McClelland, *Surface growth in laser-focused atomic deposition*, Phys. Rev. B **60**, 1543 (1999)
- [34] R.E. Behringer, V. Natarajan und G. Timp, *Surface diffusion limitation in laser focused atomic deposition*, Appl. Surf. Sci. **104/105**, 291 (1996)
- [35] E. te Sligte, K.M.R. van der Stam, B. Smeets, P. van der Straten, R.E. Scholten, H.C.W. Beijerinck und K.A.H. van Leeuwen, *Barrier-limited surface diffusion in atom lithography*, J. Appl. Phys. **95**, 1749 (2004)
- [36] R.M. Bradley, A. Eschmann und S.A. Lee, *Theory of feature broadening in direct-write optical lithography*, J. Appl. Phys. **88**, 3316 (2000)
- [37] M. Kreis, *Lithographie mit Cäsiumatomen*, Diplomarbeit, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn (1997)
- [38] C. O'Dwyer, G. Gay, B. Viaris de Lesegno, J. Weiner, K. Ludolph, G. Georgiev und E. Oesterschulze, *Writing SAMs with Cs: optimization of atomic nanolithography imaging using selfassembled monolayers on gold substrates*, to be published (2004)
- [39] A. Camposeo, O.M. Marago, B. Fazio, B. Klöter, D. Meschede, U. Rasbach, C. Weber und E. Arimondo, *Resist-assisted Atom Lithography with Group III Elements*, to be published (2005)
- [40] F. Lison, *Atomlithographie und reflexive Atomoptik mit laserpräparierten Atomen*, Dissertation, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn (1998)
- [41] K.K. Berggren, R. Younkin, E. Cheung, M. Prentiss, A.J. Black, G.M. Whitesides, D.C. Ralph, C.T. Black und M. Tinkham, *Demonstration of a Nanolithographic Technique Using a Self-Assembled Monolayer Resist for Neutral Atomic Cesium*, Adv. Mat. **9**, 52 (1997)
- [42] A. Camposeo, A. Fioretti, F. Tantussi, S. Gozzini, E. Arimondo und C. Gabbanini, *Patterning nonanethiol protected gold films by barium atoms*, Appl. Phys. B **79**, 539 (2004)

- [43] R. dela Torre, *Laser Manipulation of Indium Atoms*, Dissertation, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn (2005)
- [44] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*, Teubner Verlag, Leipzig (1999)
- [45] W. Demtröder, *Grundlagen und Techniken der Laserspektroskopie*, Springer-Verlag, Berlin (1977)
- [46] I.I. Sobelman, *Atomic Spectra and Radiative Transitions*, Springer Verlag, Berlin (1979)

Danke

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die mich während meines Studiums und vor allem im letzten Jahr unterstützt haben.

An erster Stelle danke ich Prof. Meschede, der mir die Möglichkeit gegeben hat, an einem aktuellen und interessanten Forschungsprojekt mitzuarbeiten und darüber meine Diplomarbeit zu schreiben.

Bedanken möchte ich mich auch bei Prof. Buse für die Übernahme des Korreferats.

Die Arbeit im Labor hat mir viel Freude gemacht, was ich nicht zuletzt den beiden Doktoranden des Indiumteams, Jae-Ihn Kim und Bernhard Klöter, verdanke, die für meine Fragen immer ein offenes Ohr hatten. Dr. Ulrich Rasbach hat mir den Einstieg in das Projekt erleichtert.

Insbesondere Bernhard Klöter danke ich für seine gute Betreuung und die Geduld, die er mir gegenüber aufgebracht hat. Bei meiner Diplomarbeit hat er mich mit seiner konstruktiven Kritik unterstützt.

Herzlichen Dank auch an Dr. Dietmar Haubrich, der ein ständiger Ansprechpartner bei auftretenden Schwierigkeiten war und meine Diplomarbeit Korrektur gelesen hat.

Das BEC-Büro hat mir in den Wochen vor Abgabe für meine Berechnungen ihre beiden Computer zur Verfügung gestellt. Danke!

Besonders bedanken möchte ich mich natürlich bei meinen Eltern, die mir das Studium erst ermöglicht haben und mich während dieser Zeit in jeglicher Weise unterstützt haben.

Hiermit versichere ich, dass ich die Diplomarbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt, sowie Zitate kenntlich gemacht habe.

Referent: Prof. Dr. D. Meschede
Korreferent: Prof. Dr. K. Buse