

Atomlithographie mit dissipativen Lichtmasken

Diplomarbeit

Universität Konstanz
Fachbereich Physik
Lehrstuhl Prof. Dr. J. Mlynek

vorgelegt von

Ralf Stützle

Konstanz, Oktober 2001

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Prinzip und experimenteller Aufbau | 7 |
| 2.1 | Prinzip | 7 |
| 2.2 | Experimenteller Aufbau | 10 |
| 2.2.1 | Der Atomstrahl | 10 |
| 2.2.2 | Das Lasersystem | 10 |
| 2.2.3 | Stabilisierung der Laserfrequenz | 12 |
| 2.2.4 | Transversale Laserkühlung | 13 |
| 2.2.5 | Depositionsaufbau | 15 |
| 2.3 | Der zukünftige Aufbau | 16 |
| 3 | Frequenzverdopplung mit Lithiumtriborat | 19 |
| 3.1 | Frequenzverdopplung | 20 |
| 3.1.1 | Phasen Anpassung | 22 |
| 3.1.2 | Lithiumtriborat | 23 |
| 3.1.3 | Boyd-Kleinman Theorie | 26 |
| 3.2 | Der externe Resonator | 28 |
| 3.2.1 | Stabilität und Astigmatismus | 29 |
| 3.2.2 | Resonatortheorie | 34 |
| 3.2.3 | Einkopplung | 36 |
| 3.3 | Experimenteller Aufbau | 38 |
| 3.4 | Hänsch-Couillaud Stabilisierung | 41 |
| 3.5 | Experimentelle Ergebnisse | 45 |
| 3.5.1 | Konversionseffizienz im Einfachdurchgang | 45 |
| 3.5.2 | Charakterisierung des Frequenzverdopplungsresonators | 45 |
| 3.6 | Ausblick | 51 |
| 4 | Theorie der Lichtmasken | 53 |
| 4.1 | Dressed States | 54 |
| 4.2 | Magnetische Unterstruktur | 58 |
| 4.3 | Näherungen | 61 |
| 4.3.1 | Semiklassische Näherung | 61 |
| 4.3.2 | Adiabatische Näherung | 62 |

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 5 | Numerische Simulation | 63 |
| 5.1 | Modell des Atomstrahls | 63 |
| 5.2 | Integration der Bewegungsgleichungen | 65 |
| 5.3 | Entwicklung des internen Zustands - spontane Emission | 66 |
| 5.4 | Simulation | 66 |
| 6 | Ergebnisse der Simulation | 67 |
| 6.1 | Geometrische Fokussierung | 68 |
| 6.2 | Dissipative Lichtmasken | 73 |
| 7 | Zusammenfassung und Ausblick | 81 |
| A | Anhang | 83 |
| | Literaturverzeichnis | 85 |

1 Einleitung

Das Interesse von Wissenschaft und Technik richtet sich seit längerer Zeit auf die Erzeugung immer kleinerer Strukturen. Die Miniaturisierung der Bauteile in der Mikroelektronik ist Grundlage der Leistungssteigerung, um den wachsenden Anforderungen der Datenverarbeitung und Telekommunikation gerecht zu werden. Neben der Erzeugung immer kleinerer elektronischer Schaltkreise in der Halbleiterindustrie sind Strukturen im Nanometerbereich auch Gegenstand der physikalischen Grundlagenforschung. In Anlehnung an die Herstellung von gravierten Platten für den Steindruck werden Techniken, die zur Erzeugung der benötigten lateralen Strukturen an Oberflächen dienen, allgemein als Lithographie bezeichnet.

Das industrielle Standardverfahren zur Strukturierung im Nanometerbereich ist die optische Lithographie. Hierbei wird eine meist durch Elektronenstrahlolithographie erzeugte Maske verkleinert auf eine lichtempfindliche Schicht abgebildet. Anschließend werden die Strukturen durch einen nasschemischen Ätzschritt in das Substrat übertragen. Die minimale Größe der erzeugbaren Strukturen ist aufgrund der Beugung auf die Hälfte der Wellenlänge des zur Abbildung verwendeten Lichts limitiert. Kleinere Strukturen lassen sich deshalb durch Verwendung möglichst kurzer Wellenlängen erreichen. Besonders wichtig war technologisch hierbei die Entwicklung von gepulst arbeitenden Excimerlasern. So konnten die lange verwendeten Quecksilberdampflampen durch KrF-Laser mit einer Wellenlänge von 248 nm abgelöst werden. Der nächste Entwicklungsschritt war die Entwicklung von ArF-Lasern bei 193 nm. Seit diesem Jahr werden die ersten kommerziellen F₂-Excimer-Lasersysteme mit einer Wellenlänge von 157 nm angeboten. Mit solchen Systemen werden sich durch optische Lithographie Strukturgrößen im Bereich von 50 nm erzielen lassen. Hierbei werden sog. Phasenmasken ausgenutzt, um das Beugungslimit zu unterbieten. Eine weitere Möglichkeit das Beugungslimit zu umgehen bzw. es zu reduzieren ist die Verwendung von nicht-klassischen Lichtfeldzuständen aus N verschränkten Photonen. Damit lassen sich theoretisch Strukturen der Größe $\lambda/2N$ erzeugen (Boto *et al.*, 2000). Vor kurzem konnte dies in einem Demonstrationsexperiment mit $N = 2$ verschränkten Photonen gezeigt werden (D'Angelo *et al.*, 2001). Nicht zuletzt aufgrund der noch viel zu geringen Intensität der Lichtquellen liegt die industrielle Anwendung aber noch in ferner Zukunft.

Ein alternatives Verfahren zur großflächigen periodischen Strukturierung von Oberflächen auf Nanometerskala ist Gegenstand dieser Arbeit: Die Atomlithographie nutzt Standardtechniken der Atomoptik zur nanostrukturierten Deposition neutraler Atome auf einem Substrat. Ein Lichtfeld aus miteinander interferierenden Laserstrahlen, dessen Frequenz in der Nähe einer atomaren Resonanz liegt, wirkt als Maske zur Strukturierung eines Atomstrahls. Da die thermische de Broglie-Wellenlänge der Atome im Pikometerbereich liegt, sind die Strukturgrößen i. A. nicht durch Beugungseffekte limitiert. Die

Periodizität der durch Interferenz erzeugten Lichtmasken überträgt sich direkt auf die Strukturen. Deshalb lassen sich hochgradig periodische Strukturen in einem parallelen Prozess erzeugen.

Die Atomlithographie nutzt physikalische Effekte der Atom-Licht-Wechselwirkung. Die Möglichkeit, die Bewegung von Atomen durch Licht zu beeinflussen basiert auf dem Impulsübertrag bei Absorption und nachfolgender spontaner Emission (Einstein, 1917). Von Frisch (1933) konnte diese Kraftwirkung erstmals demonstriert werden, indem er einen Natrium-Atomstrahl mit dem Licht einer Natriumdampflampe ablenkte. Erst mit der Entwicklung des Lasers war es aber möglich, ausreichende Intensitäten im Frequenzbereich atomarer Resonanzen zu erzeugen, um weiterführende Effekte zu untersuchen. Es gelang Linsen, Spiegel, Strahlteiler und Wellenleiter für neutrale Atome zu realisieren (Adams *et al.*, 1994). In der Analogie dieser Elemente zur klassischen Lichtoptik begründet sich der Name „Atomoptik“ dieses Teilgebiets der Physik.

Des Weiteren gelang es auch, Atome mit Lichtkräften zu kühlen und zu fangen. Für ihre Arbeiten auf diesem Gebiet wurde 1997 der Nobelpreis an Steven Chu, Claude N. Cohen-Tannoudji und William D. Phillips verliehen. Ihre Erkenntnisse finden in der Atomlithographie bei der Kollimation des Atomstrahls und zukünftigen dissipativen Lichtmasken ihre Anwendung. Auch die Arbeiten der Laureaten des Jahres 2001 Wolfgang Ketterle, Eric A. Cornell und Carl E. Wieman basieren auf der Physik der Atom-Licht-Wechselwirkung. Die Erzeugung und Untersuchung der von ihnen erstmals erzeugten Bose-Einstein-Kondensate nutzt ebenfalls Techniken der Wechselwirkung von Atomen mit nahresonanten Lichtfeldern. Ihre Arbeiten ermöglichen die Erzeugung kohärenter Atomstrahlen („Atomlaser“), die ebenfalls zukünftige Anwendungen in der Atomlithographie finden könnten.

Die Idee, Atome in stehenden Lichtwellen zu lokalisieren stammt von Letokhov (1968). Experimentell gelang die Fokussierung eines Atomstrahls erstmals Bjorkholm *et al.* (1978). Die Dipolkraft eines ungefähr parallel zum Atomstrahl verlaufenden fokussierten Laserstrahls ermöglichte die Fokussierung des Atomstrahls auf einen Brennfleck mit 28 μm Durchmesser. Die Kanalisierung von Atomen in den Potenzialminima, die in einer senkrecht zum Atomstrahl ausgerichteten stehenden Welle auftreten, gelang Salomon *et al.* (1987). Die Lokalisierung wurde hierbei spektroskopisch nachgewiesen. Sleator *et al.* (1992) nutzten an der Universität Konstanz eine Stehwelle großer Periode als Linse für ein Strahl aus metastabilen Heliumatomen. Die Brennweite betrug 27 cm, der beugungsbegrenzte Brennfleck war 4 μm groß.

Die ersten Experimente zur Atomlithographie gelangen Timp *et al.* (1992) an den AT&T Bell Laboratories (Holmdel, USA) mit der Deposition der in einer stehenden Lichtwelle lokalisierten Natriumatome. Auf diese Weise konnten Linienstrukturen mit einer Periode von $\frac{\lambda}{2}=294,5\text{ nm}$ erzeugt werden. Dieser Gruppe gelang auch die Herstellung der bisher schmalsten Strukturen mit einer Breite von 15 nm (FWHM)¹ (Behringer *et al.*, 1997). Diese Strukturen sind jedoch an Luft nicht stabil und können nur im Ultrahochvakuum untersucht werden. Erste Lithographie-Experimente mit Chrom wurden von McClelland *et al.* (1993) durchgeführt. Es wurden Linienstrukturen mit einer Periode von $\frac{\lambda}{2}=213\text{ nm}$ erzeugt. Diese Strukturen sind auch an Luft stabil und können mit einem Raster-Kraft-Mikroskop untersucht werden. Diese Gruppe realisierte auch die bisher schmalsten Chromlinien mit einer Breite von 28 nm (FWHM) und einer Höhe von

¹Volle Breite beim halben Maximum.

8 nm (Anderson *et al.*, 1999). Ebenfalls gelang dieser Gruppe am National Institute of Standards and Technology in Gaithersburg (USA) die Erweiterung der Atomlithographie auf zweidimensionale Strukturen. Durch rechtwinklige Überlagerung zweier Stehwellen wurden Punkte mit einer Breite von 80 nm auf einem quadratischen Gitter der Periode $\frac{\lambda}{2}=213$ nm realisiert (Gupta *et al.*, 1995). Von dieser Gruppe, die Pionierarbeit auf dem Gebiet der Lithographie geleistet hat, sind aber seit 1999 keine neuen experimentellen Ergebnisse bekannt. Weitere Experimente mit Chrom werden seit kurzem auch in Osaka durchgeführt. Es wurde ein auf frequenzverdoppelten Laserdioden basierendes System aufgebaut. Vor kurzem gelang die erste Deposition von 6 nm hohen Linienstrukturen mit einer Breite von 150 nm (Sun *et al.*, 2001).

Auch andere Elemente sind für die Erzeugung von Nanostrukturen interessant. So wurden mit Aluminium an der Colorado State University erfolgreich Linienstrukturen im Abstand von $\frac{\lambda}{2}=155$ nm deponiert (McGowan *et al.*, 1995). Die Höhe der Strukturen betrug 3 nm auf einem 20 nm hohen Aluminiumuntergrund. In der selben Gruppe werden derzeit Vorarbeiten zu Atomlithographie-Experimenten mit Gallium geleistet (Rehse *et al.*, 2001). Hiermit könnten sich die Eigenschaften von Halbleiterheterostrukturen auf Nanometerskala beeinflussen lassen. Ähnliche Ziele werden an der Universität Bonn mit Indium verfolgt. Dieses Experiment befindet sich aber ebenso wie ein Experiment an der Universität Eindhoven zur Erzeugung magnetischer Nanostrukturen mit Eisen noch in der Aufbauphase. An der Universität Pisa soll in Zukunft mit einem langsamen Atomstrahl (Camposeo *et al.*, 2001) der Aufwuchsprozess bei der Deposition von Cäsium studiert werden.

Ein anderes Konzept zur atomlithographischen Erzeugung von Nanostrukturen ist, die Atome nicht zu deponieren sondern mit ihrer Hilfe eine SAM-Schicht² strukturiert zu beschädigen. An den auf diese Weise „belichteten“ Stellen kann eine Ätzlösung die darunter liegende Goldschicht angreifen und so die Struktur erzeugen. Mit den in metastabilen Zuständen befindlichen Edelgasatomen Argon (Berggren *et al.*, 1995), Helium (Nowak *et al.*, 1996) und Neon (Engels *et al.*, 1999) sowie mit Cäsium (Kreis *et al.*, 1996) gelang es durch Schattenwurf mechanische Masken abzubilden. Auch die Strukturierung mit Lichtmasken gelang auf diese Weise mit Cäsium (Lison *et al.*, 1997) und kürzlich auch mit metastabilem Helium (Petra *et al.*, 2000). Mit Cäsium konnte hierbei auch gezeigt werden, dass die Strukturierung auch mit gepulsten Stehwellen erfolgen kann (Mützel *et al.*, 2000). Damit ist die Erzeugung des notwendigen UV-Lichts durch optische Frequenzverdopplung einfacher, da die Konversionseffizienz proportional zur Spitzenleistung ist.

Das Konstanzer Atomlithographie-Experiment entstand 1993 am Lehrstuhl von Prof. J. Mlynek und wird nun in der Nachwuchsgruppe von M. Oberthaler weitergeführt. Die Forschungsarbeiten finden im Rahmen des Optik-Zentrum Konstanz und des 1996 gegründeten Sonderforschungsbereichs 513 „Nanostrukturen an Grenzflächen und Oberflächen“ statt. Als Element zur direkten Deposition von Nanostrukturen wurde Chrom gewählt. Die Wellenlänge des verwendeten elektronischen Übergangs beträgt 425,6 nm. Nach dem Aufbau des Lasersystems (Maus, 1994) wurden verschiedene Methoden zur eindimensionalen Kollimation des Atomstrahls untersucht (Drewsen *et al.*, 1996). Mit diesem System konnten wenig später die ersten Linienstrukturen mit einer Breite von 66 nm (FWHM) und einer Höhe von 16 nm im Abstand von $\frac{\lambda}{2}=213$ nm erzeugt werden

²engl.: self assembling monolayers.

(Drodofsky *et al.*, 1997a). Die Atomstrahlpräparation wurde daraufhin auf eine zweidimensionale Laserkühlung erweitert. Mit einer Lichtmaske, die durch Überlappen dreier Laserstrahlen erzeugt wurde, gelang es erstmals Strukturen mit hexagonaler Symmetrie zu erzeugen. Abhängig von der Verstimmung der Lichtmaske wurden Punktmuster und Wabenstrukturen mit einer Gitterkonstanten von jeweils $\frac{2\lambda}{3}=283,7$ nm realisiert (Drodofsky *et al.*, 1997b). Die Punkte hatten eine Größe von 120 nm (FWHM) und eine Höhe von 22 nm. Die Wabenstrukturen waren 118 nm breit. Von Schulze *et al.* (1999) wurden durch eine Doppelbelichtungstechnik Linienstrukturen im Abstand von $\frac{\lambda}{2\sqrt{3}}=123$ nm erzeugt. Durch Polarisationsgradientenlichtmasken gelang es, Linien im Abstand von $\frac{\lambda}{4\sqrt{3}}=61$ nm herzustellen. Mit solchen Masken gelang es ebenfalls in zwei Dimensionen die Gitterkonstante des hexagonalen Gitters auf $\frac{\lambda}{3}=142$ nm zu reduzieren (Brezger *et al.*, 1999). Mit einer Vierstrahllichtmaske konnte ein quadratisches Muster mit Punkten im Abstand von $\frac{\lambda}{\sqrt{2}}=301$ nm erzeugt werden. Durch leichtes Verkippen der Strahlen gegeneinander konnte zusätzlich ein Übergitter mit einer Periode von ca. 200 μm realisiert werden (Schulze *et al.*, 2000). Anschließend wurde die Materialelektivität der Lichtmasken ausgenutzt. Dies ermöglicht es in einfacher Weise auch dreidimensionale Strukturen atomlithographisch herzustellen. Mit Magnesiumfluorid wurde hierzu ein zweites Material gleichzeitig mit Chrom verdampft und auf dem Substrat deponiert. Nur die Chromatome wechselwirken resonant überhöht mit der Lichtmaske. Magnesiumfluorid wechselwirkt praktisch nicht mit der Lichtmaske und wird homogen deponiert. Mit einer stehenden Lichtwelle als Maske gelang es auf diese Weise einen Magnesiumfluoridfilm zu erzeugen, der mit einer lateralen Periode von 213 nm mit Chrom dotiert ist (Schulze *et al.*, 2001). Außerdem könnte für ein Materialsystem mit einem entsprechenden Brechungsindexunterschied aufgrund der weitreichenden Periodizität der Dotierung ein Material mit einer dreidimensionalen photonischen Bandlücke erzeugt werden.

Gegenstand der aktuellen Forschungsarbeiten am Projekt Atomlithographie ist es nun nicht mehr noch komplexere Strukturen zu erzeugen. Es soll zukünftig das einfachste System bestehend aus einer stehenden Lichtwelle zur Erzeugung von Linienstrukturen genauer untersucht werden. Neue Konzepte basierend auf dissipativen Lichtmasken lassen erwarten, dass sich schmalere Strukturen mit deutlich reduziertem Untergrund realisieren lassen. Speziell das Problem, dass keine separierten Strukturen auf dem Siliziumsubstrat aufwachsen, sondern stets ein Chromuntergrund auftritt, verhinderte eine technologische Anwendung atomlithographisch erzeugter Strukturen. Die Höhe der Strukturen war zum Teil vergleichbar mit der des Untergrunds (Brezger *et al.*, 1997). McClelland *et al.* (1997) gelang es zwar durch reaktives Ionenätzen den Untergrund im Nachhinein zu entfernen. Die entstehende Verunreinigung der Strukturen erschwert allerdings deren Weiterverwendung. Die neuen Konzepte könnten es ermöglichen die Entstehung des Untergrunds schon beim Aufwuchsprozess zu unterbinden. Die mit den neuen Methoden erzielten Ergebnisse in einer Dimension lassen sich zukünftig direkt auf komplexere Strukturen übertragen.

Diese Arbeit dokumentiert erste Schritte auf dem Weg zur Realisierung neuer Konzepte basierend auf dissipativen Lichtmasken. Die Arbeit gliedert sich wie folgt:

In Kapitel 2 wird das Prinzip der Atomlithographie skizziert und der bisherige experimentelle Aufbau erläutert. Außerdem wird der zukünftige Aufbau zur Realisierung dissipativer Lichtmasken kurz skizziert.

In Kapitel 3 wird die Konzeption und Realisierung eines neuen Frequenzverdopp-

lungssystems basierend auf einem Lithiumtriborat-Kristall beschrieben. Mit diesem System lassen sich nun die hohen Lichtleistungen erzeugen, wie sie für zukünftige Experimente benötigt werden. Die experimentellen Ergebnisse werden mit dem zugrunde liegenden theoretischen Modell verglichen.

Gegenstand von Kapitel 4 ist die theoretische Beschreibung der Atom-Licht-Wechselwirkung in der Lichtmaske. Das beschriebene semiklassische Dressed-State-Modell für Atome mit magnetischer Unterstruktur ist zusammen mit den ebenfalls ermittelten Übergangsraten für spontane Emissionsprozesse Grundlage für eine numerische Simulation.

Das Kapitel 5 beschreibt die Umsetzung einer numerischen Simulation zur Berechnung der Trajektorien von Atomen in stehenden Lichtwellen. Die Modellierung des Atomstrahls, die Integration der Bewegungsgleichungen sowie die Berücksichtigung der spontanen Emission über einen Monte-Carlo-Ansatz werden vorgestellt.

In Kapitel 6 wird die neue Methode der dissipative Lichtmasken theoretisch untersucht. Es werden die erreichbaren Strukturbreiten sowie das Verhältnis von Strukturhöhe zu Untergrund diskutiert. Außerdem wird die Abhängigkeit der Methode von der Präparation des Atomstrahls analysiert und mit der bisherigen Methode verglichen.

Ein Ausblick auf zukünftige Vorhaben schließt in Kapitel 7 die Arbeit ab.

Kapitel 1 Einleitung

2 Prinzip und experimenteller Aufbau

Nach Skizzierung der Grundprinzipien der Methoden der Atomlithographie wird der bisherige experimentelle Aufbau zur Atomlithographie mit Chrom vorgestellt. Da ein Großteil dieser Arbeit als Vorarbeit für zukünftige Experimente dient, wird auch der geplante neue Versuchsaufbau beschrieben.

2.1 Prinzip

Unter Atomlithographie versteht man Verfahren, die atomoptische Techniken zur Strukturierung von Substratoberflächen auf Nanometerskala verwenden. Durch Lichtkräfte - Masken aus Licht - kann gezielt der Fluss der zu deponierenden Atome räumlich strukturiert werden. Hierdurch lassen sich nanostrukturierte dünne Filme erzeugen.

Die Kraftwirkung, die die Fokussierung in einem nahresonanten Lichtfeld ermöglicht, kann man sich im Rahmen eines klassischen Modells verdeutlichen. Der atomare Dipolübergang wird hierbei wie folgt beschrieben: Ein Elektron ist als harmonischer Oszillator mit der Eigenfrequenz ω_0 an den Atomkern gebunden. Ein elektrisches Wechselfeld \mathbf{E} induziert ein Dipolmoment \mathbf{d} in diesem System. Die Wechselwirkungsenergie E_{ww} des Dipols mit dem treibenden Feld ist gegeben durch:

$$E_{\text{ww}} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \quad (2.1)$$

Der getriebene Oszillator schwingt bei Anregung in der Nähe seiner Eigenfrequenz mit resonant überhöhter Amplitude. Liegt die Anregungsfrequenz unterhalb der Eigenfrequenz („rote Verstimmung“), so schwingt der atomare Dipol in Phase mit dem anregenden Feld; liegt die Anregungsfrequenz oberhalb der Eigenfrequenz („blaue Verstimmung“), so schwingen Dipol und Feld gegenphasig. Deshalb wird ein Atom in einem Lichtfeld nicht-konstanter Intensität bei roter Verstimmung ($\mathbf{d} \cdot \mathbf{E} > 0$) in Richtung hoher Intensität beschleunigt („high-field seeker“), bei blauer Verstimmung ($\mathbf{d} \cdot \mathbf{E} < 0$) wirkt die Kraftwirkung in Richtung geringerer Intensität („low-field seeker“). In Kapitel 4 werden solche durch die Atom-Licht-Wechselwirkung erzeugten Potenziale auf Basis der Quantenmechanik berechnet.

Die einfachste Lichtmaske ist eine stehende Welle. In einem solchen Lichtfeld variiert die Intensität periodisch mit der halben Wellenlänge. Ist die stehende Welle senkrecht zum Atomstrahl ausgerichtet, so wirkt die Lichtmaske als ein „Array“ von Zylinderlinsen für die Atome. Auf einem im Brennpunkt positionierten Substrat lassen sich auf diese Weise Linienstrukturen mit einem Abstand der halben Lichtwellenlänge erzeugen. Um eine scharfe Abbildung zu erhalten, ist es wichtig, dass der Atomstrahl möglichst

gut kollimiert ist. Die notwendige Kollimation des Atomstrahls wird durch Reduktion der Transversalgeschwindigkeit der Atome mittels Laserkühlverfahren erreicht. Erzeugte Chromstrukturen lassen sich mit einem Raster-Kraft-Mikroskop (AFM) im Kontaktmodus untersuchen.

In bisherigen Untersuchungen zur Atomlithographie wurde meist folgende Situation betrachtet (Abbildung 2.1): Das Substrat befindet sich im Zentrum einer auf typischerweise $100\ \mu\text{m}$ fokussierten stehenden Welle. Die Parameter der Lichtmaske wurden so bestimmt, dass die Atome nach einem Viertel einer Oszillationsperiode das Substrat erreichen. Das Substrat steht dabei gewissermaßen im Brennpunkt einer dicken Linse. Diese Situation wurde theoretisch (McClelland, 1995) detailliert untersucht. Experimentell wurden mit Chrom Linienbreiten von $28\ \text{nm}$ erreicht. Der beobachtete Untergrund war abhängig von der Höhe der deponierten Strukturen: Bei $3\ \text{nm}$ Strukturhöhe betrug er $1,4\ \text{nm}$, während bei $47\ \text{nm}$ hohen Strukturen ein Untergrund von $7\ \text{nm}$ in Kauf genommen werden musste (Anderson *et al.*, 1999).

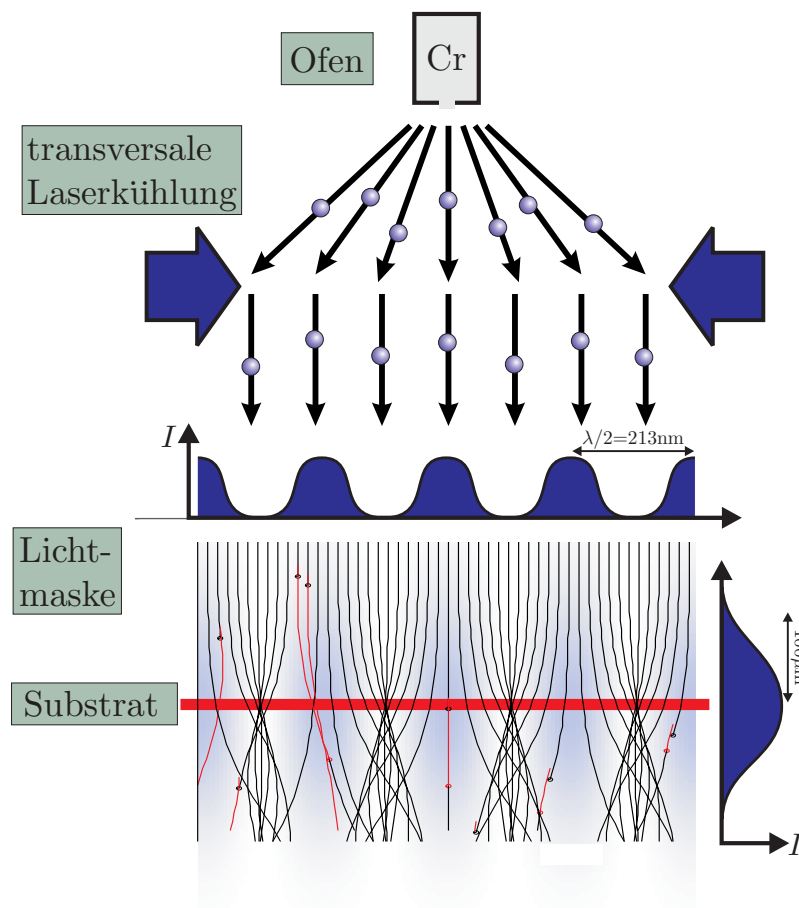


Abbildung 2.1: Prinzip der Atomlithographie: Ein kollimierter Atomstrahl wird durch eine Lichtmaske strukturiert und auf einem Substrat abgeschieden.

Die Frequenz der Lichtmaske wird dabei typischerweise gegenüber dem atomaren Übergang so weit verstimmt, dass der störende Einfluss der spontanen Emission auf die

Fokussierung vernachlässigbar ist. Neue Techniken, die auf der dissipativen Wirkung der spontanen Emission und längeren Wechselwirkungszeiten der Atome mit dem Lichtfeld basieren, werden in Kapitel 6 dieser Arbeit theoretisch untersucht.

Im Konstanzer Lithographie-Projekt wurde Chrom als Depositionsmaterial gewählt. Es haftet sehr gut an Oberflächen, besitzt eine geringe Oberflächenmobilität und hat eine hohe Korrosionsbeständigkeit an Luft. Chrom bildet an Luft eine ca. 1 \AA dünne Oxidschicht. Die Strukturen sind deshalb stabil und können unter einem AFM untersucht werden. Materialien, die solche oder vergleichbare Eigenschaften haben, sind meist sehr hochschmelzend, wodurch die Erzeugung eines Atomstrahls erschwert wird. Die Realisierung einer Verdampfungszelle für Chrom wird in Abschnitt 2.2.1 beschrieben.

Eine weitere wichtige Eigenschaft des verwendeten Elements ist seine Eignung zur Anwendung atomoptischer Techniken. Wichtig ist ein möglichst geschlossener atomarer Übergang, d. h. dass das Atom aus dem angeregten Zustand hauptsächlich wieder in den Grundzustand zurückfallen kann. So wird es möglich, viele Absorptions-Emissions-Zyklen zur Kühlung bzw. zur Fokussierung einzusetzen. Das Niveauschema von Chrom hat mit dem ${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ -Übergang bei $425,6 \text{ nm}$ eine geeignete Resonanz.

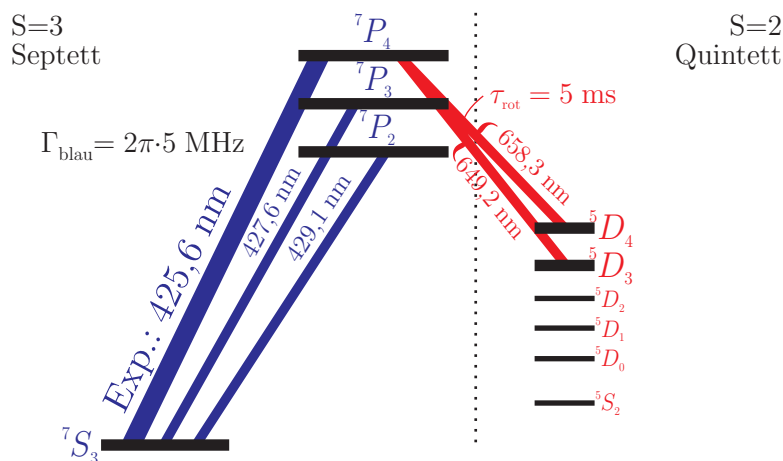


Abbildung 2.2: Ausschnitt aus dem Niveauschema von ${}^{52}\text{Cr}$. Der zur transversalen Laserkühlung und für die Lichtmaske verwendete Übergang ${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ ist fast geschlossen. Interkombinations-Übergänge in die metastabilen D -Niveaus fallen erst für Wechselwirkungszeiten im Millisekunden-Bereich ins Gewicht.

Der Übergang ist zwar nicht vollständig geschlossen, aber der angeregte Zustand hat mit 5 ms eine vergleichsweise lange Lebensdauer für einen Zerfall in eines der metastabilen D -Niveaus (Abbildung 2.2). Atome, die in der Laserkühlzone in metastabile Niveaus fallen, werden nicht weiter kollimiert und sind deshalb am Substrat aus dem Atomstrahl verschwunden. Atome, die erst in der Lichtmaske in metastabile Niveaus übergehen werden nicht weiter fokussiert und gehen in den Untergrund ein. Werden längere Wechselwirkungszeiten der Atome mit dem Licht benötigt, wie es in zukünftigen Experimenten der Fall sein wird (Abschnitt 2.3), so kann es notwendig werden, die Atome durch Einstrahlen der roten Wellenlängen auf den Kühlübergang zurückzupumpen (Stuhler, 2001). Das Niveauschema ist sehr einfach, da ${}^{52}\text{Cr}$ als gg-Kern keinen Kernspin

hat und somit das bei den in der Atomoptik oft verwendeten Alkaliatomen notwendige Zurückpumpen in den gewünschten Hyperfeinzustand entfällt. Weitere Daten des verwendeten Chrom-Dipolübergangs sind im Anhang aufgelistet.

Chrom besteht in seiner natürlichen Zusammensetzung wie sie auch zur Lithographie verwendet wird aus einem Gemisch aus vier verschiedenen Isotopen (siehe Anhang). Der Anteil von ^{52}Cr beträgt knapp 84 %. Dies ist für die Atomlithographie jedoch kein Problem. Die anderen Isotope haben andere Übergangswellenlängen; sie werden deshalb von der Laserkühlung nicht erfasst und sind somit am Ort des Substrats aus dem Chromstrahl verschwunden.

2.2 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau zur Atomlithographie mit Chrom besteht zum einen aus der Vakuumapparatur, in welcher der Chromstrahl erzeugt, kollimiert und deponiert wird. Der zweite Teil ist das Lasersystem zur Erzeugung des Lichts zur atomoptischen Manipulation der Trajektorien der Chromatome im Atomstrahl. Der komplette Aufbau ist in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt.

2.2.1 Der Atomstrahl

Der Atomstrahl wird im ersten Teil der Vakuumapparatur durch Sublimation von Chrom in einer Hochtemperaturzelle erzeugt. Bei der eingesetzten Zelle handelt es sich um eine Spezialanfertigung¹, die aus einer in der Molekularstrahlepitaxie typischen Grundkonstruktion besteht, welche für die besonderen Anforderungen der horizontalen Verdampfung bei unüblich hohen Temperaturen speziell modifiziert wurde. Die Entwicklungsgeschichte der Hochtemperaturzelle wurde detailliert von Schulze (2000) beschrieben.

Im Inneren der Zelle wird ein mit Chrompulver gefüllter Tiegel aus Kalziumoxid-stabilisierter Zirkonoxid-Keramik auf ca. 1700°C aufgeheizt. Die Atome treten mit einer mittleren Geschwindigkeit von ca. 1000 m/s durch ein 1 mm großes Loch im Tiegeldeckel aus. Diese Quelle kann in guter Näherung als effusiv beschrieben werden (Stuhler, 1996). Unmittelbar nach dem Austritt aus dem Tiegel fliegen die Atome durch die ca. 2 mm große Lochapertur eines wassergekühlten Kühlschildes, das die Strahlungswärme abschirmt. Direkt nach der Effusionszelle befindet sich der Aufbau zur transversalen Laserkühlung. Auf einer 4 cm langen Strecke wird der Strahl kollimiert (Abschnitt 2.2.4). Am Ende der Vakuumapparatur befindet sich die Depositionskammer. Diese kann von der Ofenkammer durch einen Vakuumschieber getrennt werden, so dass ein Wechsel des Substrats erfolgen kann, ohne dass die Temperatur der Hochtemperaturzelle heruntergefahren werden muss. In beiden Kammern der Hochvakuumapparatur wird bei Betrieb des Ofens ein Druck von typischerweise $3 \cdot 10^{-6}\text{ mbar}$ erreicht. Die mittlere freie Weglänge beträgt bei diesem Druck mehrere zehn Meter, so dass die Kollimation des Atomstrahls nicht durch Stöße mit dem Hintergrundgas verschlechtert wird.

2.2.2 Das Lasersystem

Für die transversale Laserkühlung und die Lichtmaske wird Licht mit einer Frequenz in der Nähe eines atomaren Übergangs benötigt. Für Chromatome ist der Übergang

¹Fa. CreaTec GmbH

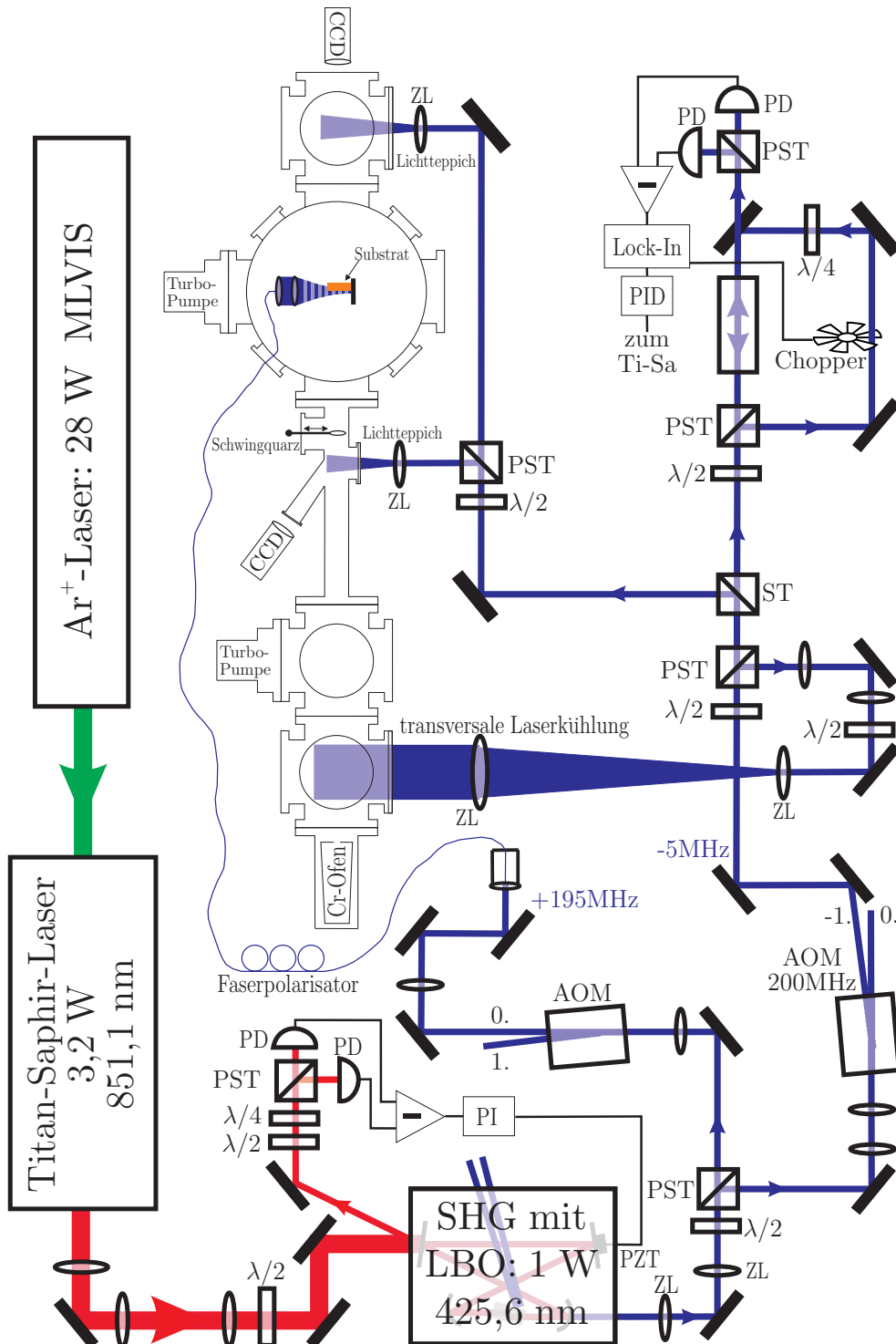


Abbildung 2.3: Prinzip des experimentellen Aufbaus zur Atomlithographie mit Chrom. Bezeichnungen: ZL=Zylinderlinse, PST=polarisierender Strahlteiler, PD=Photodiode, AOM=akusto-optischer Modulator, λ/x =Verzögerungsplatten.

${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ bei 425,6 nm hierfür geeignet. Das benötigte Licht wird in einem mehrstufigen Prozess erzeugt.

Ein Argon-Ionen-Laser² im MLVS-Betrieb (Multi Line Visible) mit bis zu 28 W Ausgangsleistung dient als Pumplaser für einen Titan-Saphir-Ringlaser³. Dieser liefert bis zu 3,2 W infrarotes Licht bei 851,1 nm. Dieses Licht wird in einem externen Überhöhungsresonator frequenzverdoppelt (siehe Kapitel 3). Mit diesem System kann bis zu 1 W blaues Licht bei 425,6 nm erzeugt werden. Dieses Licht wird im Experiment zur Erzeugung der Lichtmaske und zur transversalen Laserkühlung benötigt. Außerdem wird noch ein Teil zur Stabilisierung der Laserfrequenz und zur Fluoreszenzdetektion des Atomstrahls verwendet. Für die verschiedenen Anwendungen werden zum Teil unterschiedliche Verstimmungen des Laserlichts benötigt. Der blaue Hauptstrahl wird deshalb zuerst in zwei Teile aufgeteilt (Abbildung 2.3). Jeder der Teilstrahlen geht durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) mit dessen Hilfe die Frequenz des Laserlichts verschoben werden kann. Jeder AOM dient außerdem als Regelglied zur Intensitätsstabilisierung im jeweiligen Teilstrahl. Hierzu wird durch Steuerung der Modulationsleistung die Beugungseffizienz des AOM verändert. Zur Erzeugung des Regelsignals wird ein geringer Teil des Strahls, dessen Intensität zu stabilisieren ist, auf eine Photodiode geleitet. Mit deren Signal und einem PID-Regler wird ein Regelkreis zur Intensitätsstabilisierung realisiert. Der erste AOM wird typischerweise in der ersten Beugungsordnung betrieben und verschiebt somit die Frequenz um ± 200 MHz. Der zweite AOM wird lediglich zur Intensitätsstabilisierung verwendet und folglich in der nullten Beugungsordnung verwendet.

2.2.3 Stabilisierung der Laserfrequenz

Die Frequenz des Lasers muss während der Zeitspanne einer typischen Deposition von 15-30 min stabil sein. Da die interne Stabilisierung des Titan-Saphir-Lasers kurzzeitig sehr stabil ist, aber auf Minutenskala um einige MHz driftet, ist es notwendig zusätzliche Maßnahmen zur Stabilisierung der Laserfrequenz zu ergreifen. Die Laserfrequenz wird deshalb auf den verwendeten atomaren Übergang im Chromatom aktiv stabilisiert. Dies erfolgt durch Spektroskopie in einer Hohlkathodenzelle.⁴ Zur Erzeugung von Chromdampf brennt in der Zelle eine Gasentladung ($U \approx 650$ V, $I \approx 30$ mA) in einer Argonatmosphäre ($p \approx 0,7$ mbar). Die in der Gasentladung entstehenden Argonionen werden zur Kathode hin beschleunigt. Diese Kathode besteht aus einem Chromröhrchen. Die Argonionen schlagen beim Auftreffen Chromatome aus der Kathode heraus („sputtern“). An diesem Chromdampf wird spektroskopiert.

Um die notwendige Frequenzauflösung zu erhalten, muss eine dopplerfreie Spektroskopietechnik angewendet werden. Die Polarisationspektroskopie (Wieman und Hänsch, 1976) ist eine „Pump- and Probe-Anordnung“ (Abbildung 2.4), die nur Atome mit $v_z = 0$ adressiert und somit ein doppler-freies Signal liefert. Im Folgenden wird eine einfache Erklärung des Prinzips geschildert. Für die ausführliche Diskussion sei auf Demtröder (1993) verwiesen.

Der Pumpstrahl ist zirkular polarisiert und führt durch optisches Pumpen zu einer Umverteilung der Besetzung der magnetischen Unterzustände der Chromatome. Auf

²Fa. Coherent, Modell Innova 200

³Fa. Coherent, Modell 899-21

⁴Früher wurde am Chromstrahl spektroskopiert. Ein unabhängiger Aufbau erwies sich jedoch als vorteilhaft (Drozdofsky, 1997).

diese Weise entsteht ein doppelbrechendes Medium. Der linear polarisierte Probe-Strahl propagiert gegenläufig und näherungsweise koaxial zum Pumpstrahl und überlappt nur innerhalb der Hohlkathodenzelle mit ihm.

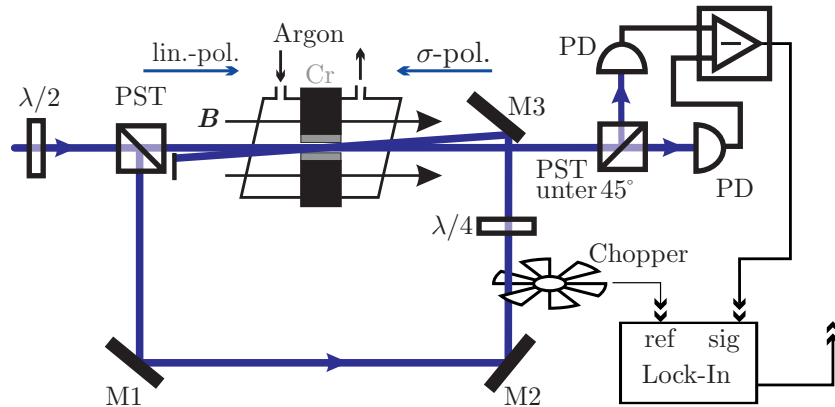


Abbildung 2.4: Aufbau zur Polarisationspektroskopie an Chrom in einer Hohlkathodenzelle.

Die Polarisation des Probe-Strahls erfährt beim Durchgang durch das doppelbrechende Medium eine Drehung der linearen Polarisation. Die Richtung der Drehung hängt vom Vorzeichen der Verstimmung ab. Diese Polarisationsdrehung wird durch einen um 45° zur ursprünglichen linearen Polarisation gedrehten polarisierenden Strahlteiler detektiert. Direkt auf Resonanz wird die Polarisation nicht gedreht. Das Differenzsignal der Photodioden ist daher Null. Bei Abweichung von der Resonanz liefert das Differenzsignal ein vom Vorzeichen der Frequenzverstimmung abweichendes dispersives Signal.

Eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses wird durch Lock-In-Technik erreicht. Die hierfür notwendige Modulation des Signals wird durch periodische Unterbrechung des Pumpstrahls mit einem mechanischen Zerkhacker („Chopper“) erreicht.

Das mit diesem Aufbau erzeugte Fehlersignal mit einem steilen Nulldurchgang wird über einen PID-Regler auf den Regeleingang des Titan-Saphir-Lasers gegeben. Auf diese Weise kann die Frequenz bis auf Restschwankungen von ± 2 MHz stabil gehalten werden.

Die transversale Laserkühlung funktioniert typischerweise optimal, wenn die Frequenz des Laserlichts um ca. 5-10 MHz unterhalb der Resonanzfrequenz liegt. Diese Frequenzverschiebung lässt sich erreichen, indem die Resonanzfrequenz der spektroskopierten Chromatome entsprechend verschoben wird. Dies geschieht durch Anlegen eines homogenen Magnetfelds in Richtung der Spektroskopiestrahlen. Durch den Zeeman-Effekt wird die Resonanz der Atome verschoben.

2.2.4 Transversale Laserkühlung

Der Chromstrahl wird in der Lichtmaske nur gut fokussiert, wenn er hinreichend kollimiert ist. Die erreichbaren Strukturbreiten hängen (theoretisch) stark von der Verteilung der Transversalgeschwindigkeiten im Chromstrahl ab (Kapitel 6). Um den Atomstrahl zu kollimieren kommen bekannte Techniken der Laserkühlung zur Anwendung. In der realisierten Strahlgeometrie (Abbildung 2.5) findet auf dem ${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ -Übergang bei roter

Verstimmung des Laserlichts gleichzeitig Doppler- und Polarisationsgradientenkühlung statt (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1989). Die experimentell verwendete spezielle Lichtfeldgeometrie wurde theoretisch von Berg-Sørensen (1994) untersucht.

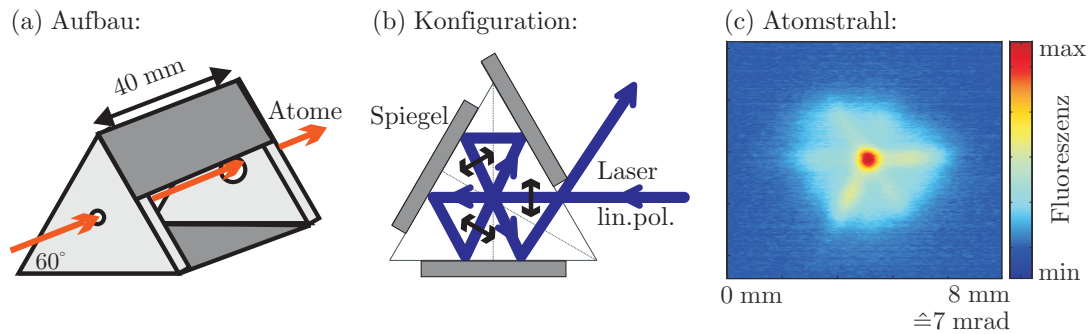


Abbildung 2.5: Aufbau zur transversalen Laserkühlung. In (a) ist der Spiegelaufbau bestehend aus drei in einem Winkel von 60° zueinander angeordneten Spiegeln abgebildet. Der sich im Vakuum befindliche Aufbau kann von außen über vier Achsen justiert werden. Abbildung (b) zeigt den resultierenden Strahlengang: ein auf 3×40 mm aufgeweiteter Laserstrahl linearer Polarisation kreuzt den Chromstrahl dreimal unter einem Winkel von 120° . Teil (c) zeigt ein Fluoreszenzbild des Chromstrahls. Die Geometrie der Laserstrahlen überträgt sich auf die Form des Chromstrahls. In den „escape channels“ findet in dieser Geometrie keine Polarisationsgradientenkühlung statt (Stuhler, 1996).

Grundsätzlich ließe sich der Strahl auch durch eine Anordnung von Blenden in einem hinreichenden Abstand voneinander kollimieren. Durch die transversale Laserkühlung wird aber der Fluss im Zentrum des Strahls erhöht. Eine Blendenanordnung bewirkt den gegenteiligen Effekt. Mit dem so präparierten Atomstrahl werden Aufwachsrate von 1 nm/min erreicht, so dass eine typische Depositionszeit von 15-30 min notwendig ist, um Strukturen mit einer Höhe von 10-25 nm zu erzeugen. Auf dieser Zeitskala ist es möglich, den gesamten experimentellen Aufbau stabil im Griff zu behalten.

Die Justage der Laserkühleinheit kann kontrolliert werden, indem ca. 40 cm nach der Laserkühlzone einen Lichtteppich eingestrahlt wird. Das Fluoreszenzbild wird mit einer CCD-Kamera aufgenommen, so dass die Justage „online“ auf einem Videomonitor überprüft werden kann.

Der integrale Chromfluss kann durch einen Schwingquarz gemessen werden, der in die Flugbahn des Chromstrahls geschoben werden kann (Müther, 2000). Die Eigenfrequenz des Schwingquarzes ändert sich durch aufwachsendes Chrom. Aus der Änderung dieser Eigenfrequenz ergibt sich die Aufwachsrate.

Um die Divergenz des Atomstrahls zu bestimmen, muss von der mittels einer Fluoreszenzaufnahme ermittelten Ortsverteilung auf die Verteilung der Transversalgeschwindigkeiten geschlossen werden können. Zu diesem Zweck kann eine ca. $200 \mu\text{m}$ große Lochapertur ca. 7 cm nach der Laserkühleinheit in den Atomstrahl gebracht werden. Ein Lichtteppich in 1,2 m Entfernung am Ende der Vakuumkammer ermöglicht die Aufnahme eines Fluoreszenzbildes. Hier sind nun die Impulse und Orte der Chromatome miteinander korreliert, und aus der Ortsverteilung kann die Verteilung der Transversalgeschwindigkeiten direkt ermittelt werden (Abbildung 2.6). Dies geschieht durch den Fit

einer gaußschen Geschwindigkeitsverteilung

$$f(v_t) = \text{const} \cdot \exp\left(-\frac{v_t^2}{2\sigma_t^2}\right) \quad (2.2)$$

an einen Schnitt durch die Fluoreszenzaufnahme.

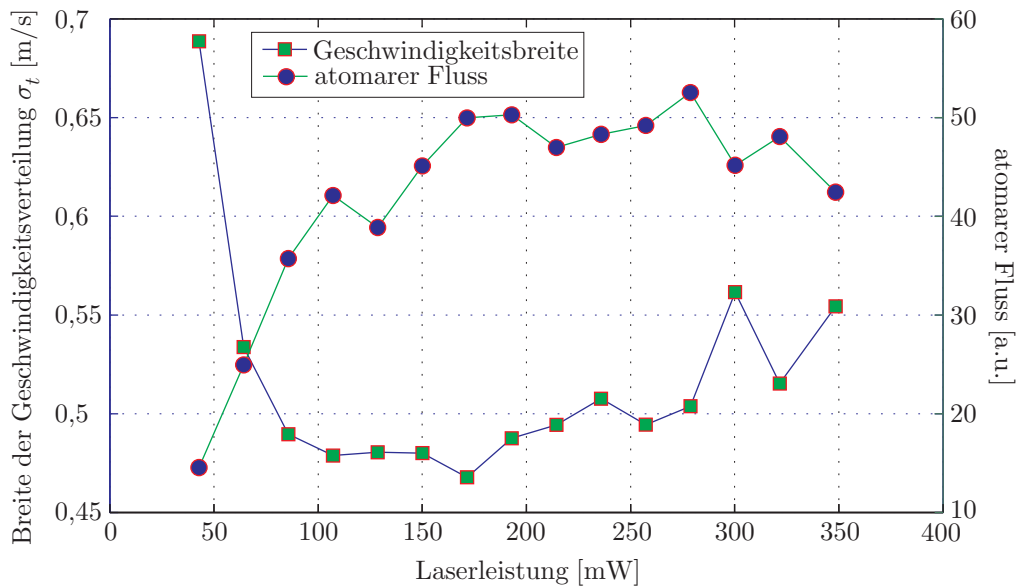


Abbildung 2.6: Messung der Divergenz und des Flusses des Chromstrahls in Abhängigkeit der zur transversalen Kühlung verwendeten Laserleistung. Die Ofentemperatur betrug 1700 °C.

Das Messergebnis zeigt, dass es in Übereinstimmung mit der Theorie (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1989) eine minimale Strahldivergenz für ca. 160 mW Kühlleistung gibt. Die Breite der Geschwindigkeitsverteilung beträgt in diesem Fall⁵ $\sigma_t = 0,48 \text{ m/s} = 26,6 v_{\text{rec}}$. Dies entspricht einer Temperatur von $T = \frac{m\sigma_t^2}{k_B} = 1,4 \text{ mK}$ und einer Strahldivergenz von 1 mrad (voller Winkel). Dieser Wert liegt deutlich über der von Stuhler (1996) gemessenen Breite von $\sigma_t = 10 v_{\text{rec}}$. Mögliche Ursachen sind ein unzureichend kompensiertes Erdmagnetfeld in der Kühlzone sowie Instabilitäten in der Laserleistung.

2.2.5 Depositionsaufbau

Die typische Depositionszeit beträgt 15-30 min. Die Erzeugung von Nanostrukturen kann nur gelingen, wenn während dieser Zeit die Position der Lichtmaske relativ zum Substrat stabil bleibt. Im bisherigen Aufbau wird dies erreicht, indem die Optik zur Realisierung der stehenden Welle und das Substrat komplett auf einer sog. Depositionsplatte aus Edelstahl montiert sind. In dieser Arbeit kommt das von Müther (2000) beschriebene Modell zum Einsatz. Die Depositionsplatte selbst ist auf einem schwingungsisolierenden Halter montiert, der sie von Schwingungen der Vakuumkammer abkoppelt (Weber, 1995). Das

⁵ $v_{\text{rec}} = \hbar k/m = 1,8 \text{ cm/s}$ ist die Geschwindigkeit, auf die ein ruhendes Atom durch den Rückstoß bei einer spontanen Emission beschleunigt wird.

Licht wird über eine Glasfaser in die Vakuumkammer geleitet, wobei der Faserauskoppler ebenfalls fest mit der Depositionsplatte verschraubt ist. Die verwendete Faser ist nicht polarisationserhaltend. Drifts der Polarisation zeigt die Photodiode 2 auf der Depositionsplatte (vgl. Abbildung 2.7) an. Die Polarisation kann in diesem Fall durch einen Faserpolarisator außerhalb des Vakuums durch Ausübung mechanischer Spannungen auf die Faser nachgeregelt werden.

Als Spiegel zur Erzeugung der stehenden Welle dient die entsprechend beschichtete Seitenfläche eines Prismas, das plan auf der Fläche aufliegt, auf welcher auch das Substrat positioniert wird. Das Substrat kann durch einen Inchworm-Motor bewegt werden. So ist es möglich, auf einem Substrat mehrere Depositionen durchzuführen. Zur Justage der Depositionseinheit sind mehrere Punkte zu beachten: Um zu erreichen, dass der Chromstrahl tatsächlich an der Position der Lichtmaske auf das Substrat trifft, befindet sich ein Loch in der Depositionsplatte direkt unterhalb der Lichtmaske. Der Chromstrahl wird nun zuerst durch dieses Loch justiert. Dies gelingt durch leichtes Verkippen des Aufbaus zur transversalen Laserkühlung. Der Erfolg dieser Justage wird durch Beobachtung der Fluoreszenzaufnahme im Lichtteppich am Ende der Apparatur möglich. Nach erfolgreicher Justage wird das Substrat mit dem Inchworm-Motor nach vorne gefahren, bis es das Loch in der Depositionsplatte überdeckt und folglich vom Atomstrahl an der gewünschten Position getroffen wird.

Ein weiterer wichtiger Parameter um möglichst schmale Strukturen zu erreichen, ist der Winkel zwischen Lichtmaske und Atomstrahl. Zur Erzeugung möglichst schmaler Strukturen ist darauf zu achten, dass die stehende Lichtwelle möglichst perfekt senkrecht zum Atomstrahl verläuft (Kapitel 6). Zur Durchführung dieser Justage treffen zwei parallele Laserstrahlen eines Justierlasers auf die Rückseite der Depositionsplatte. Der erste Strahl wird so justiert, dass er durch das Loch in der Depositionsplatte hindurchtreten kann und zentral auf die Kühlblende direkt vor der Chromeffusionszelle trifft. Dieser Strahl definiert somit die Richtung des Chromstrahls. Die Depositionsplatte kann durch Schrittmotoren so verkippt werden, dass der zweite Laserstrahl, der ca. 1 cm neben dem Loch auf die Platte trifft, in sich selbst zurückreflektiert wird. Hiermit lässt sich eine Genauigkeit der Justage von ca. 1 mrad erzielen.

2.3 Der zukünftige Aufbau

Die bisher stets verwendete Methode der Fokussierung erzeugt immer einen Untergrund der Chromstrukturen. Neue Methoden zur Reduzierung des Untergrunds wie sie in Kapitel 6 vorgestellt werden basieren auf deutlich längeren Wechselwirkungszeiten der Atome mit dem Lichtfeld. Eine Möglichkeit, dies zu realisieren, ist die Verwendung ausgedehnterer Lichtmasken. Da die zur Verfügung stehende Lichtleistung aber limitiert ist, gelingt es nicht, die benötigten Intensitäten auch in deutlich größeren Lichtmasken zu erzeugen. Deshalb wird für zukünftige Experimente mit längeren Wechselwirkungszeiten der Atomstrahl abgebremst. Typische erreichbare longitudinale Geschwindigkeiten sollten bei ca. 40 m/s liegen. Experimentell wird dies durch einen Zeeman-Slower (Phillips und Metcalf, 1982) erfolgen. Dem Atomstrahl wird ein rot-verstimmter Laserstrahl entgegen gerichtet. Aufgrund des Dopplereffekts ist das Licht für die sich bewegenden Chromatome jedoch resonant und wird von ihnen absorbiert. Da die anschließende spontane Emission isotrop erfolgt, erfolgt im Mittel bei einem Absorptions-Emissions-Zyklus ein Impulsüber-

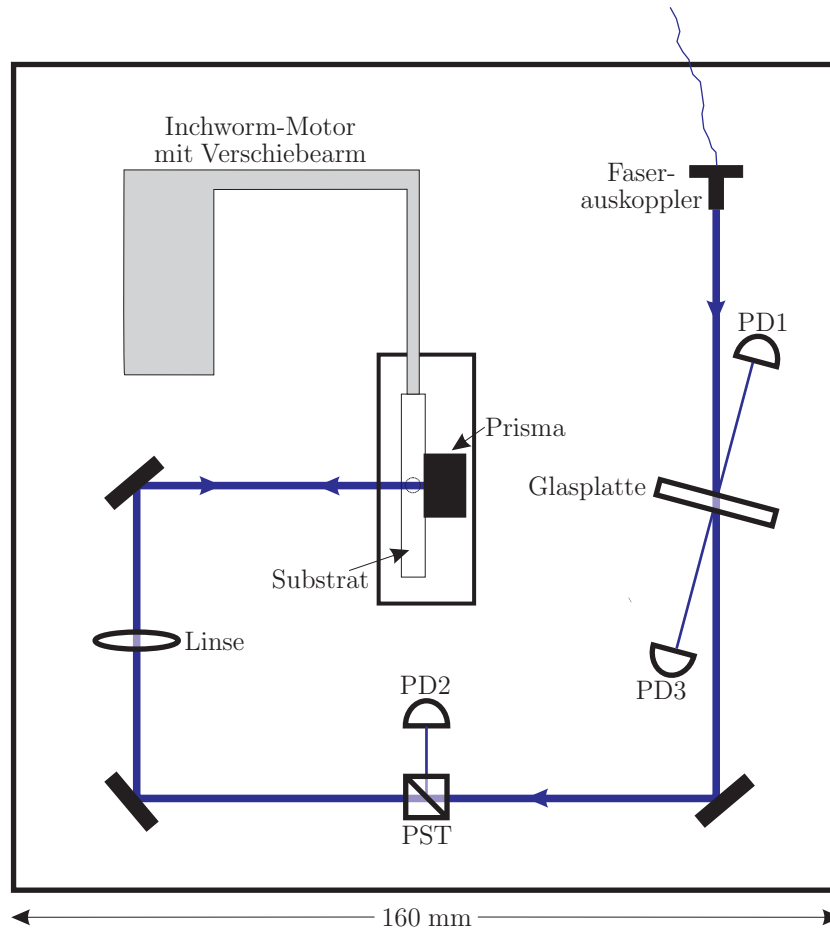


Abbildung 2.7: Skizze der Depositionsplatte. Das aus der Faser ausgekoppelte Licht wird von einem Prisma in sich selbst zurückreflektiert. Auf diese Weise entsteht am Ort des Substrats direkt vor dem Prisma die stehende Lichtwelle. Die Photodiode PD1 dient zur Messung der Eingangsleistung, mit PD2 wird die Polarisation des Lichts überwacht und PD3 misst die Stärke des Rückreflexes. Die stehende Lichtwelle wird so justiert, dass vom Substrat genau die Hälfte des Strahls abgeschnitten wird. Ebenfalls angedeutet ist das Loch in der Depositionsplatte, durch welches der senkrecht zur Zeichenebene ankommende Chromstrahl hindurch justiert wird.

trag auf das Atom entgegen seiner Bewegungsrichtung. Auf diese Weise wird das Atom abgebremst. Mit der Geschwindigkeit des Atoms ändert sich aber auch die Dopplerverschiebung. Dies wird durch ein in Propagationsrichtung des Atomstrahls inhomogenes Magnetfeld kompensiert, so dass es durch die ortsabhängige Zeeman-Verschiebung der atomaren Energieniveaus gelingt, dass das Licht stets resonant ist. Ein solcher Zeeman-Slower für Chrom wurde bereits realisiert (Stuhler, 2001). Es gelang mit einem 50 cm langen Zeeman-Slower Atome von maximal 450 m/s bis auf ca. 30 m/s abzubremesen, so dass sie anschließend in einer magneto-optischen Falle gefangen werden konnten. In dieser Arbeit wurde auch ein wichtiges experimentelles Problem gelöst: Wird der Laserstrahl auf der Achse des Atomstrahls über ein Fenster in die Vakuumkammer geleitet, so wird dieses Fenster nach kurzer Zeit vom Chrom bedampft und ist nicht mehr transparent.

Dieses Problem wurde gelöst, indem das Licht über einen Spiegel in der Vakuumkammer dem Atomstrahl entgegengerichtet wird (vgl. Abbildung 2.8). Dieser Spiegel wird zwar ebenfalls bedampft, jedoch zeigte sich, dass unter den herrschenden Ultra-Hochvakuum-Bedingungen die Reflektivität der entstehenden Chromschicht ausreichend hoch ist.

In longitudinaler Richtung werden die Atome durch den Zeeman-Slower abgebremst. Jedoch wird durch die isotropen spontanen Emissionsereignisse die Kollimation des Strahls verschlechtert. Ein weiteres Problem ist, dass ein im verlangsamten Chromstrahl zu platzierendes Substrat den Zeeman-Slower-Laserstrahl abschneiden würde. Beide Probleme werden wie folgt gelöst: Der Atomstrahl wird am Ende des Zeeman-Slowers durch eine zweidimensionale magneto-optische Falle („Funnel“) (Riis *et al.*, 1990) abgelenkt und komprimiert. Die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung bleibt dabei erhalten und der Fluss wird wieder entsprechend erhöht.

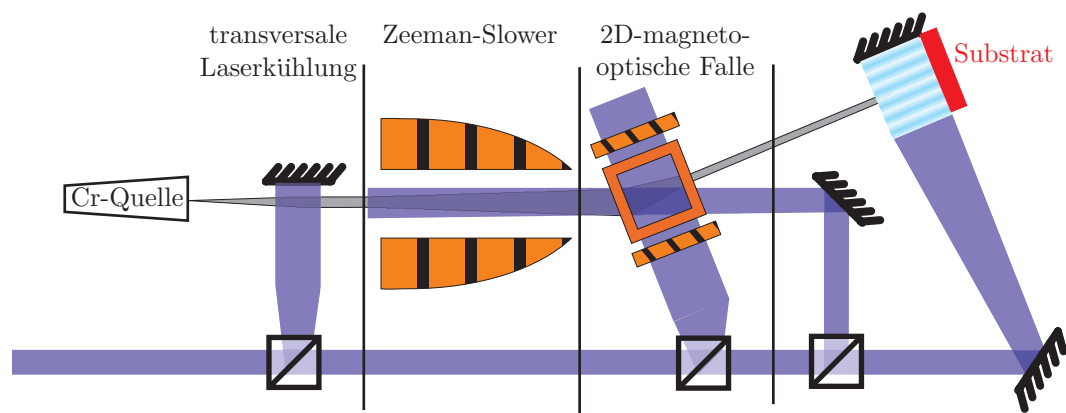


Abbildung 2.8: Prinzip des zukünftigen experimentellen Aufbaus zur Deposition von langsamen Chromatomen. Nach der transversalen Laserkühlung wird der Atomstrahl durch einen Zeeman-Slower abgebremst und anschließend durch eine zweidimensionale magneto-optische Falle abgelenkt und komprimiert. Das Licht zur Erzeugung der Lichtmaske wird nicht mehr über eine Glasfaser in die Depositionskammer geleitet, sondern durch ein Fenster in die UHV-Kammer eingestrahlt.

Eine vergleichbare Apparatur zur Erzeugung eines intensiven Strahls aus langsamen Atomen wurde von Lison *et al.* (1999) für Cäsium-Atome realisiert. Von Engels *et al.* (1999) wurde eine ebenfalls vergleichbare Anlage zur atomlithographischen Strukturierung einer Resistschicht mit metastabilen Neon-Atomen verwendet. Die zukünftige Konstanzer Anlage wird erstmals die direkte Deposition von langsamen Chromatomen erlauben.

Das Lasersystem, die Chrom-Effusionszelle und die transversale Laserkühlereinheit direkt im Anschluß werden weitgehend unverändert bleiben. Es ist jedoch zusätzlich geplant, die Depositionskammer als UHV-Kammer auszulegen. Damit wäre es erstmals möglich reine Chromstrukturen aufzuwachsen. In der bisher verwendeten Hochvakuumkammer war in den Strukturen stets viel Sauerstoff aus dem Hintergrundgas und Kohlenstoff aus Rückständen von Pumpenöl gebunden (Mertens, 1999). Außerdem soll die Möglichkeit geschaffen werden eine Transportkammer anzufanschen. Es wird dann möglich sein, Proben in anderen UHV-Apparaturen vor- oder nachzubehandeln. Konkrete Pläne werden im Ausblick dieser Arbeit skizziert.

3 Frequenzverdopplung mit Lithiumtriborat

Nach einer kurzen Einführung in die Theorie der Frequenzverdopplung und der Diskussion der für Lithiumtriborat relevanten kritischen Phasen Anpassung werden die optimierten Parameter für die Konstruktion eines neuen externen Frequenzverdopplungsresonators herangezogen. Abschließend werden die experimentellen Ergebnisse mit der Theorie verglichen. Mit dem neuen System gelang es erstmals die Grenze von 1 W blauen Lichts zu übertreffen. Die für zukünftige Experimente mit dissipativen Lichtmasken benötigten hohen Lichtleistungen stehen somit nun zur Verfügung.

Zur atomoptischen Manipulation von Chromatomen wird Licht mit einer Wellenlänge in der Nähe des Chrom-Dipolübergangs ${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ bei 425,6 nm benötigt. Um ausreichende Leistungen bei dieser Wellenlänge zu erhalten steht dem Konstanzer Atomlithographie-Projekt ein Titan-Saphir-Lasersystem zur Verfügung. Das hiermit erzeugte Licht der Wellenlänge 851,1 nm wird in einem externen Resonator frequenzverdoppelt. Ein solches System ermöglicht höhere Ausgangsleistungen als beispielsweise blaue Laserdioden, die in der Aufbauphase des Experiments 1993 noch nicht zur Verfügung standen und auch heute noch in ihrer Ausgangsleistung und Zuverlässigkeit limitiert sind. Auch die zweite Alternative, ein UV-gepumpter Farbstofflaser, wie er z. B. am NIST (Anderson *et al.*, 1999) verwendet wurde, ist in seiner Ausgangsleistung auf ca. 250 mW begrenzt.

Der ursprünglich verwendete externe Überhöhungsresonator geht auf Maus (1994) zurück. Es wurden 4,9–10 mm lange Kaliumniobat-Kristalle (KNbO_3) verwendet. Die Vorteile von Kaliumniobat liegen in seinem großen nichtlinearen Koeffizienten von $d_{\text{eff}} = 20,3 \text{ pm/V}$ und der Möglichkeit zur nichtkritischen Phasen Anpassung über einen weiten Wellenlängenbereich. Nachteil ist die starke (lineare) Absorption der Grundwelle, die bei hohen Leistungen noch durch den BLIRA-Effekt (Blue Light Induced Infra Red Absorption, Mabuchi *et al.* (1994)) verstärkt wird. Aufgrund dieser Eigenschaften ist Kaliumniobat das ideale Material zur effektiven Frequenzverdopplung von Diodenlasern geringer Leistung. Bei höheren Pumpleistungen erwärmt sich der Kristall aufgrund der starken Absorption. Dadurch entstehende thermische Linseneffekte und die verschlechterte Phasen Anpassung führen zur Sättigung der Ausgangsleistung bei ca. 200 mW. So war es möglich insgesamt mehr blaues Licht zu erzeugen, indem das Pumplicht auf zwei Verdopplungsresonatoren aufgeteilt wurde.

Mit der Verfügbarkeit des neuen nichtlinearen Materials Lithiumtriborat (LiB_3O_5 , LBO) wurde einer der vorhandenen Resonatoren darauf umgerüstet (Schmidt, 1998). Thermische Effekte treten in LBO aufgrund der wesentlich geringeren Absorption deutlich weniger auf. Die Nachteile von LBO sind der geringe nichtlineare Koeffizient von $d_{\text{eff}} = 0,76 \text{ pm/V}$ und die bei der verwendeten Wellenlänge notwendige kritische Phasen Anpassung. Der Resonator mit einem 15 mm langen Kristall ermöglichte Ausgangslei-

stungen im täglichen Betrieb von 400 mW bei 2 W Pumpleistung (Brezger, 1999).

Das Hauptproblem der ersten Resonatorgeneration war, dass der Pumpstrahl senkrecht auf die Kristallendflächen trifft. Die auf die Endflächen aufgetragenen Antireflexionsbeschichtungen konnten den hohen umlaufenden Leistungen im Resonator nicht standhalten und wurden nach einigen Betriebsstunden zerstört. Deutliche Einbrüche der Konversionseffizienz waren die Folge einer solchen Zerstörung. Der Kristall musste dann so weit verschoben werden, bis der Strahl wieder auf eine intakte Stelle der Antireflexionsschicht traf. Anschließend musste der komplette Strahlengang neu justiert werden.

Dieses Problem lässt sich durch Einsatz eines Kristalls vermeiden, dessen Ein- und Austrittsfläche im Brewster-Winkel für das Pumplicht geschnitten sind. Liegt die Polarisation des im Brewster-Winkel auftreffenden Pumpstrahls in der Einfallsebene, so wird er auf natürliche Weise vollständig transmittiert und auf eine Antireflexionsbeschichtung kann verzichtet werden. Ein solcher Kristall verursacht aber eine astigmatische Verformung des Pumpstrahls. Dieser Astigmatismus muss durch ein geeignetes Design des Resonators kompensiert werden, da er sonst instabil werden kann (Abschnitt 3.2.1).

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuer Frequenzverdopplungsresonator für einen 15 mm langen brewster-geschnittenen LBO-Kristall entwickelt. Optimierungen in der Konzeption des Resonators ließen zudem höhere Effizienzen erwarten. Durch monolithisches Design konnte die mechanische Stabilität verbessert werden. Die Verwendung eines brewster-geschnittenen Kristalls erlaubte zudem die Stabilisierung des Resonators durch das Hänsch-Couillaud-Schema zu realisieren (Abschnitt 3.4).

Beim Aufbau des Systems konnte teilweise auf Erfahrungen, die in einem anderen Projekt der Konstanzer Atomoptik-Gruppe gesammelt wurden zurückgegriffen werden. Für das Experiment „Erzeugung entarteter Bose- und Fermi-Quantengase mit Chromatomen“ wird auch Licht bei einer Wellenlänge von 425,6 nm benötigt. Als Lichtquelle steht dort ebenfalls ein Titan-Saphir-Lasersystem zur Verfügung, dessen Licht in einem externen Resonator mittels eines 10 mm langen brewster-geschnittenen LBO-Kristall frequenzverdoppelt wird (Werner, 2000). Es wurden Ausgangsleistungen von 650 mW blauen Lichts bei 2,6 W Pumpleistung erzielt.

3.1 Frequenzverdopplung

Frequenzkonversionsprozesse, wie sie in dieser Arbeit am Spezialfall der Frequenzverdopplung betrachtet werden, gehören zum Gebiet der „Nichtlinearen Optik“. Betrachtet werden Effekte, die auf der nichtlinearen Antwort eines Mediums auf ein anregendes elektrisches Feld beruhen; so dürfen bei hohen Feldstärken, wie sie durch Laserfelder erzeugt werden können, die höheren Terme der dielektrischen Polarisation nicht mehr vernachlässigt werden. Seit der ersten Frequenzverdopplung eines Rubin-Lasers in einem Quarz-Kristall (Franken *et al.*, 1961) hat sich das Feld der nichtlinearen Optik enorm weiterentwickelt. Die Erzeugung höherer Harmonischer und optischer parametrischer Oszillatoren sowie die Propagation von Solitonen in Glasfasern sind nur einige der grundlegenden Erscheinungen.

Ausgangspunkt der nichtlinearen Optik ist die Wellengleichung im Medium. Für ein homogenes, nichtmagnetisches Dielektrikum kann aus den makroskopischen Maxwell-

Gleichungen die Wellengleichung

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \quad (3.1)$$

hergeleitet werden. Die Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ ist im Allgemeinen nicht proportional zum anregenden elektrischen Feld $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, kann aber in eine Taylorreihe¹ entwickelt werden.

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ij}^{(1)} E_j + \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \varepsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (3.2)$$

Die Entwicklungskoeffizienten $\chi^{(n)}$ werden als Suszeptibilitäten n -ter Ordnung bezeichnet und durch Tensoren $(n+1)$ -ter Stufe dargestellt. Der lineare Anteil der Polarisation führt über $\chi^{(1)}$ zu den Effekten der linearen Optik in Medien wie Brechung und Absorption. Der quadratische Term verursacht u. a. die Frequenzverdopplung die im Folgenden genauer beschrieben wird. Es treten jedoch nicht bei allen Kristallen solche $\chi^{(2)}$ -Effekte auf. Nur Kristalle ohne Inversionssymmetrie besitzen eine nichtverschwindende Suszeptibilität zweiter Ordnung. Bei Inversionssymmetrie gilt $\mathbf{P}(\mathbf{E}) = -\mathbf{P}(-\mathbf{E})$, was auf $\chi^{(2)} = 0$ führt. Der dritte Term ist z. B. für Raman- und Brillouin-Streuung sowie Selbstfokussierung verantwortlich. Diese Einflüsse und höhere Terme werden im Folgenden vernachlässigt.

Üblicherweise verwendet man anstelle von $\chi^{(2)}$ die Nichtlinearität $d = \chi^{(2)}/2$. Da außerdem dem Austausch der Indizes j und k keine physikalische Bedeutung zukommt, kann die Nichtlinearität auf einen Tensor zweiter Stufe reduziert werden:

$$\begin{pmatrix} P_a^{\text{NL}} \\ P_b^{\text{NL}} \\ P_c^{\text{NL}} \end{pmatrix} = 2\varepsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} & \dots & d_{16} \\ \vdots & & \vdots \\ d_{31} & \dots & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_a^2 \\ E_b^2 \\ E_c^2 \\ 2E_b E_c \\ 2E_a E_c \\ 2E_a E_b \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

Hierbei sind a, b, c die kristallographischen Hauptachsenrichtungen.² Je nach Kristallsymmetrie des Mediums können mehrere der Matrixelemente verschwinden.³ Für eine ausgewählte Polarisations- und Kristallorientierung kann man für die nichtlineare Polarisation unter Einführung der effektiven Nichtlinearität d_{eff} zu einer skalaren Gleichung übergehen:

$$P^{\text{NL}} = \varepsilon_0 d_{\text{eff}} E^2 \quad (3.4)$$

Trifft monochromatisches Licht der Frequenz ω auf ein $\chi^{(2)}$ -Medium, so enthält die von der Grundwelle erzeugte nichtlineare Polarisation P^{NL} auch einen Anteil, der mit der Frequenz 2ω oszilliert. Diese Polarisation ist gemäß der Wellengleichung die Quelle eines

¹Summenkonvention beachten: Über gleiche Indizes wird summiert.

²Die d_{ij} werden i. A. im kristallographischen Koordinatensystem definiert. Der Unterschied zum dielektrischen x, y, z Koordinatensystem speziell für LBO wird aus Abbildung 3.2 deutlich.

³LBO beispielsweise ist ein (ortho-) rhombischer Kristall und gehört zur $mm2$ -Punktsymmetriegruppe. Für solche Kristalle sind nur die Koeffizienten d_{31} , d_{32} , d_{33} , d_{24} und d_{15} von Null verschieden.

elektrischen Feldes derselben Frequenz. Die Lösung für **ebene Wellen** ist wohlbekannt und wird z. B. von Saleh und Teich (1991) beschrieben. Bei relativ ineffizienter Wechselwirkung kann man nähern, dass die Fundamentalwelle beim Durchgang durch den Kristall der Länge L kaum abgeschwächt wird. Für die erzeugte Intensität der zweiten Harmonischen erhält man:

$$I_{2\omega} \propto \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n_\omega^2 n_{2\omega}} \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} I_\omega^2 \quad (3.5)$$

Charakteristisch ist in dieser Näherung die quadratische Abhängigkeit von d_{eff} und L . Entscheidend hängt die Konversionseffizienz aber von der Phasenfehlanpassung $\Delta k L$ ab (Abbildung 3.1). Hierbei ist $\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}$ die Differenz der Wellenvektoren zwischen Grund- und Oberwelle.

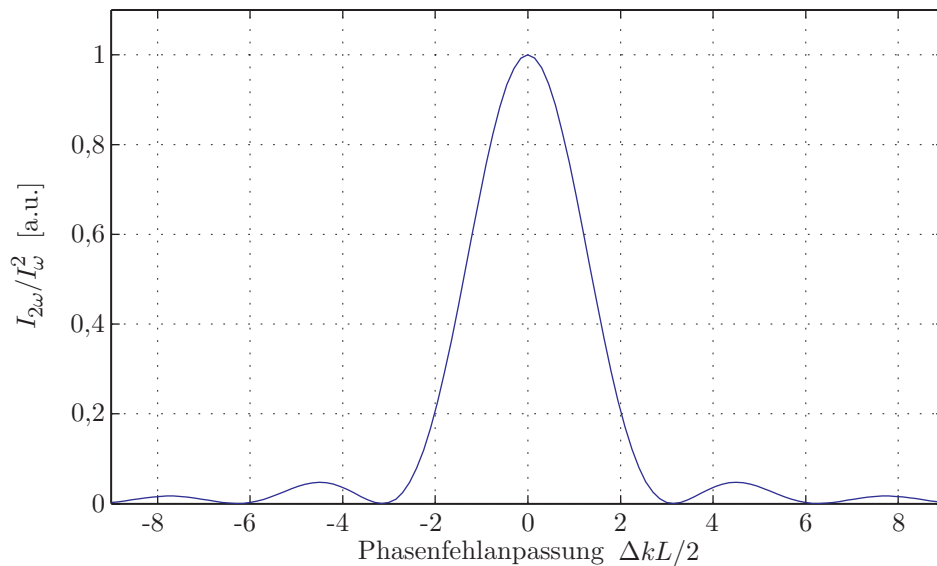


Abbildung 3.1: Abhängigkeit der Konversionseffizienz $I_{2\omega}/I_\omega^2$ von der Phasenfehlanpassung bei ebenen Wellen. Beträgt die Kristalllänge ein ganzzahliges Vielfaches von $\frac{2\pi}{\Delta k}$, so tritt keine frequenzverdoppelte Welle aus dem Kristall aus. Für effiziente Konversion muss die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ realisiert werden. Die Breite des zentralen Maximums in Δk wird umso kleiner je länger der Kristall ist.

3.1.1 Phasenanpassung

Obige Gleichung beschreibt die Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Wechselwirkungsstrecke. Für $\Delta k \neq 0$ oszilliert die erzeugte Intensität mit der Wechselwirkungslänge. Anfangs sind Grund- und Oberwelle in Phase. Aufgrund der verschiedenen Phasengeschwindigkeiten geraten sie aber außer Phase. So hat die Oberwelle, die an einer Position z_1 im Kristall erzeugt wurde und bis zu einer anderen Stelle z_2 propagiert ist, eine andere Phase als jener Teil der Oberwelle, der an der Stelle z_2 erzeugt wurde. Deshalb können diese Anteile destruktiv miteinander interferieren. Dies kann durch die sog. Phasenanpassung verhindert werden. Gelingt es, den Fall $\Delta k = \frac{2\omega}{c}(n_\omega - n_{2\omega}) = 0$

zu realisieren, so baut sich eine zu L^2 proportionale Intensität bei 2ω auf. Bei Phasen-anpassung gilt $2k_\omega = k_{2\omega}$; dies kann anschaulich als Impulserhaltung gedeutet werden. Um dies zu realisieren, muss der Brechungsindex von Grund- und Oberwelle gleich sein. Aufgrund der normalen Dispersion der typischerweise verwendeten Kristalle verläuft der Brechungsindex monoton und die Phasenanpassungsbedingung lässt sich nicht erfüllen. In anisotropen Kristallen kann die Phasenanpassung jedoch durch Ausnutzung der Doppelbrechung geschehen. Es gibt zwei Möglichkeiten, in solchen Kristallen die Bedingung $n_\omega = n_{2\omega}$ zu realisieren. Bei nichtkritischer Phasenanpassung wird die unterschiedliche Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes ausgenutzt. Kritische Phasenanpassung kann erfolgen, indem man den Pumpstrahl unter den richtigen Winkeln zu den Kristallachsen einstrahlt, so dass Grund- und Oberwelle den gleichen Brechungsindex haben. Dabei muss allerdings in Kauf genommen werden, dass sich die effektive Wechselwirkungsstrecke verkürzt, da die Oberwelle aufgrund der Doppelbrechung nicht in die gleiche Richtung propagiert wie die Grundwelle (Walkoff, Abschnitt 3.1.2).

Die Frequenzverdopplung kann auch als Drei-Wellen-Prozess $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ betrachtet werden, bei dem zwei Wellen der Frequenz ω in eine Oberwelle der Frequenz 2ω konvertiert werden. Sind die beiden zu konvertierenden Wellen der Frequenz ω gleich polarisiert, spricht man von Typ-I-Phasenanpassung, wobei die Oberwelle dann senkrecht zu den Grundwellen polarisiert ist. Sind die beiden Wellen senkrecht zueinander polarisiert, liegt Typ-II-Phasenanpassung vor.

3.1.2 Lithiumtriborat

Lithiumtriborat wurde 1988 am „Fujian Institute of Research on the Structure of Matter“ in China entwickelt (Chen *et al.*, 1989). Das neue Material wurde während 20–100 Tagen aus einer $\text{Li}_2\text{O} - \text{B}_2\text{O}_3$ Hochtemperaturschmelze ($755\text{--}833^\circ\text{C}$) mit 90–94 % B_2O_3 -Anteil gezogen. LBO ist ein biaxialer Kristall, dessen Kristallachsen mit den optischen Hauptachsen zusammenfallen. Neben seiner geringen Absorption ist LBO auch aufgrund seiner mechanischer Eigenschaften (hohe Zerstörungsschwelle, nicht hygroskopisch, gute Oberflächeneigenschaften) das ideale Material zur Frequenzverdopplung bei hohen Leistungen.

Bei der Wellenlänge von 851,1 nm der Grundwelle wird in LBO eine kritische Phasen-anpassung vom Typ-I gewählt.⁴ Das Pumplicht fällt in der xy -Ebene ($\Theta = 90^\circ$) unter einem Winkel ϕ zur x -Achse ein und ist in z -Richtung polarisiert (ordentlicher Strahl). Die Polarisation der erzeugten Oberwelle liegt in der xy -Ebene (außerordentlicher Strahl). Man spricht deshalb von einer $o+o \rightarrow e$ -Konfiguration. Das blaue Licht ist also senkrecht zum Pumpstrahl polarisiert. Die zur Realisierung der Phasenanpassung relevanten Brechungsindizes⁵ wurden mittels der Sellmeiergleichungen (Dispersionsgleichungen) von Kato (1990) berechnet. Es ergibt sich: $n_{z,\omega} = 1,6098$, $n_{x,2\omega} = 1,5868$ und $n_{y,2\omega} = 1,6159$. Um den Phasenanpassungswinkel ϕ zu bestimmen, für den $n_\omega = n_{2\omega}$ gilt, muss der Brechungsindex des außerordentlichen Strahls bekannt sein. Man betrachtet hierfür die Indexellipse eines Strahls, der in der xy -Ebene propagiert und dessen

⁴In LBO ist auch eine Typ-II-Phasenanpassung in der $o+e \rightarrow o$ -Konfiguration möglich ($\phi = 90^\circ$, $\Theta = 56,5^\circ$, $d_{\text{eff}} = 0,37 \text{ pm/V}$).

⁵Von den vielen verschiedenen publizierten Werten für Materialparameter werde jene verwendet, die im Übersichtswerk von Dmitriev *et al.* (1999) als die besten angesehen werden. Angegeben ist jeweils das Originalzitat.

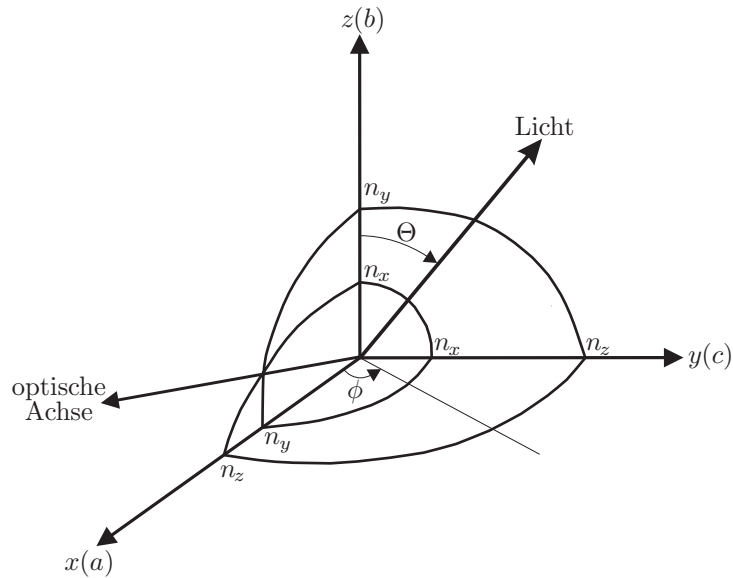


Abbildung 3.2: Abhängigkeit der Brechungsindizes von LBO von der Propagations- und Polarisationsrichtung des Lichts im ersten Oktanten des dielektrischen x, y, z -Koordinatensystems. In der xy -Hauptebene ist LBO mit einem negativen uniaxialen Kristall vergleichbar: Der Brechungsindex von in z -Richtung polarisiertem Licht ist unabhängig von der Propagationsrichtung stets n_z (ordentlicher Strahl). Liegt die Polarisation des Lichts in der xy -Ebene, so ist der Brechungsindex vom Winkel ϕ abhängig (außerordentlicher Strahl). Er kann aus n_x und n_y mittels Gleichung 3.7 berechnet werden.

Polarisation ebenfalls in dieser Ebene liegt. Die Ellipse wird beschrieben durch:

$$\frac{x^2}{n_y^2} + \frac{y^2}{n_x^2} = 1 \quad (3.6)$$

Den Brechungsindex $n_{2\omega}(\phi)$ eines Strahls der Frequenz 2ω , der unter einem Winkel ϕ zur x -Achse propagiert, erhält man mittels des obigen Diagramms ($x = n_{2\omega}(\phi) \cos \phi$, $y = n_{2\omega}(\phi) \sin \phi$) als:

$$\frac{1}{n_{2\omega}(\phi)^2} = \frac{\cos^2 \phi}{n_{y,2\omega}^2} + \frac{\sin^2 \phi}{n_{x,2\omega}^2} \quad (3.7)$$

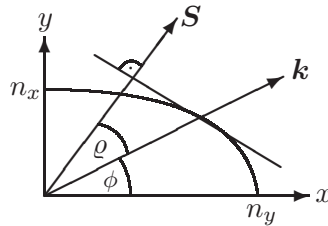
Aus der Phasenanpassungsbedingung $n_{z,\omega} = n_{2\omega}(\phi)$ folgt damit der Phasenanpassungswinkel

$$\sin \phi = \sqrt{\frac{n_{y,2\omega}^2 - n_{z,\omega}^2}{n_{y,2\omega}^2 - n_{x,2\omega}^2} \frac{n_{x,2\omega}}{n_{z,\omega}}} \quad (3.8)$$

Mit den berechneten Brechungsindizes ergibt sich ein Winkel von $\phi = 26,9^\circ$. Der Kristall wurde vom Hersteller so geschnitten, dass die beiden Brewsterendflächen ($\vartheta_{\text{Brewster}} = \arctan(n_{z,\omega}) = 58,15^\circ$) gerade die richtige Orientierung zu den Kristallachsen haben, so dass für den Pumpstrahl Brewster- und Phasenanpassungsbedingung erfüllt sind. Als

effektiven nichtlinearen Koeffizienten erhält man mit $d_{32} = 0,85 \text{ pm/V}$ (Roberts, 1992)⁶: $d_{\text{eff}} = d_{32} \cos \phi = 0,76 \text{ pm/V}$.⁷

Der frequenzverdoppelte Strahl propagiert als außerordentlicher Strahl durch den Kristall. Dabei ist zu beachten, dass in anisotropen Medien die Richtung des Wellenvektors \mathbf{k} im allgemeinen Fall nicht mit der Richtung des Energieflusses (=Richtung des Poyntingvektors \mathbf{S} bzw. „Richtung des Lichtstrahls“) übereinstimmt. Von Boyd *et al.* (1965) wurde gezeigt, dass die Richtung des Energieflusses gegeben ist als die Normale der Tangente an das Indexellipsoid im Schnittpunkt von \mathbf{k} -Vektor und Ellipsoid.



Für einen ordentlichen Strahl ist das Indexellipsoid ein Kreis und die Normale der Tangente fällt mit der Richtung des Wellenvektors zusammen. Für einen außerordentlichen Strahl ist die Indexkurve eine Ellipse und die Normalenrichtung weicht von der \mathbf{k} -Richtung um den Doppelbrechungs- oder Walkoff-Winkel ϱ ab.⁸

Die Grundwelle propagiert als ordentlicher Strahl durch den Kristall, d. h. die Richtungen von \mathbf{S}_ω und \mathbf{k}_ω stimmen überein. Der Wellenvektor $\mathbf{k}_{2\omega}$ der Oberwelle hat die gleiche Richtung wie jener der Grundwelle. Da es sich aber um einen außerordentlichen Strahl handelt, weicht die Richtung von $\mathbf{S}_{2\omega}$ um den Walkoff-Winkel von $\mathbf{k}_{2\omega}$ ab. Deshalb weichen auch die Richtungen der Poyntingvektoren \mathbf{S}_ω und $\mathbf{S}_{2\omega}$ um den Walkoff-Winkel voneinander ab. Der Winkel ϱ kann gemäß Boyd *et al.* (1965) (verallgemeinert) berechnet werden:

$$\tan \varrho = \frac{1}{2} n_{z,\omega}^2 \left(\frac{1}{n_{x,2\omega}^2} - \frac{1}{n_{y,2\omega}^2} \right) \sin(2\phi) \quad (3.9)$$

Der Walkoff-Winkel beträgt für LBO und die betrachteten Wellenlängen bei Propagation in Phasenanpassungsrichtung $\varrho = 14,8 \text{ mrad} = 0,85^\circ$. Der Walkoff beeinflusst die Effizienz der Frequenzverdopplung. Da Grund- und Oberwelle nicht exakt in die gleiche Richtung propagieren, wird der Überlapp der beiden Strahlen reduziert. Die Optimierung der Effizienz durch fokussierte gaußsche Strahlen, wie sie im nächsten Abschnitt berechnet wird, wird deshalb entscheidend vom Walkoff-Winkel beeinflusst.

Beim im Rahmen dieser Arbeit realisierten Frequenzverdopplungssystem wird der Kristall in einem Resonator platziert, in welchem die Leistung der Grundwelle zur Steigerung der Konversionseffizienz resonant überhöht wird. Maximale Überhöhung wird erreicht, wenn die Verluste im Resonator für die Grundwelle möglichst gering sind. Um Reflexionsverluste an den Kristallendflächen weitestmöglich zu reduzieren, wurden sie im Brewster-Winkel für die Grundwelle geschnitten. Die Oberwelle ist senkrecht zur Grundwelle polarisiert und hat damit nicht die richtige Polarisation um beim Austritt

⁶gemessen für 1064 nm; die schwache Wellenlängenabhängigkeit kann in guter Näherung vernachlässigt werden.

⁷aufgrund der Kristallsymmetrie gilt: $d_{12} = d_{22} = 0$.

⁸Die Richtungen von \mathbf{S} und \mathbf{k} fallen auch in diesem Fall zusammen, falls der Strahl in eine der Hauptachsenrichtungen propagiert.

aus dem Kristall von der Endfläche vollständig transmittiert zu werden. Aus den Fresnel-Gleichungen erhält man, dass 19,6 % der blauen Leistung reflektiert wird.

3.1.3 Boyd-Kleinman Theorie

Die in Gleichung 3.5 berechnete Intensität der Oberwelle wurde unter Annahme ebener Wellen hergeleitet. Die Moden des Titan-Saphir-Lasers und des Verdopplungsresonators werden aber besser durch den Formalismus gaußscher Strahlen beschrieben. Das Ergebnis für ebene Wellen, welches eine quadratische Abhängigkeit von der Intensität der Pumpwelle zeigt, lässt erwarten, dass eine stärkere Fokussierung der Grundwelle die Effizienz verbessert. Ein gaußscher Strahl besitzt aber nur direkt im Fokus ebene Wellenfronten. Außerhalb des Fokus krümmen sich die Wellenfronten. Die Krümmung ist umso stärker, je besser der Strahl fokussiert ist. Durch die verstärkte Krümmung der Wellenfronten wird die Phasenanpassung aber ineffizienter. Die optimale Fokussierung wurde von Boyd und Kleinman (1968) berechnet. Dabei wird über den Beitrag von infinitesimalen Scheiben zur zweiten Harmonischen innerhalb des Kristalls integriert und die gaußsche Feldverteilung berücksichtigt. Vernachlässigt man Absorption für Grund- und Oberwelle sowie die Abschwächung der Pumpwelle durch Konversionsverluste so erhält man für die erzeugte Leistung in der Oberwelle:

$$P_{2\omega} = \frac{16\pi^2}{\varepsilon_0 c n_\omega n_{2\omega} \lambda^3} d_{\text{eff}}^2 L h(\sigma, B, \xi) P_\omega^2 =: \kappa_{\text{NL}} P_\omega^2 \quad (3.10)$$

Die Leistung in der zweiten Harmonischen ist wie im Fall der ebenen Wellen proportional zum Quadrat der Pumpleistung. Der Boyd-Kleinman-Faktor h ist folgendermaßen definiert:

$$h(\sigma, B, \xi) = \frac{1}{4\xi} \int_{-\xi-\xi}^{\xi} \int_{-\xi}^{\xi} \frac{\exp\left(i\sigma(\tau - \tau') - \frac{B^2(\tau - \tau')^2}{\xi}\right)}{(1 + i\tau)(1 - i\tau')} d\tau d\tau' \quad (3.11)$$

Er enthält neben dem Doppelbrechungsparameter⁹ $B = \frac{\varrho\sqrt{Lk_\omega}}{2}$ noch die Parameter ξ und σ . Es beschreibt $\xi = \frac{L}{2z_R}$ die Fokussierung der Grundwelle und σ die Phasenanpassung. Hierbei ist z_R die sog. Rayleigh-Länge. In diesem Abstand vom Fokus sind die Wellenfronten maximal gekrümmt und der Strahl hat einen um den Faktor $\sqrt{2}$ größeren Radius als im Fokus. Die Rayleigh-Länge bestimmt über die Beziehung $w_{\text{Kristall}} = \sqrt{\frac{z_R \lambda}{\pi n_\omega}}$ die Größe des Waists¹⁰ im Kristall.

Bei gegebener Kristalllänge kann durch Optimierung der Parameter ξ und σ die Konversionseffizienz maximiert werden. In der allgemeinen Form des Boyd-Kleinman-Faktors ist auch noch die Fokusposition im Kristall optimierbar. Für den Fall verschwindender Absorption – wovon hier ausgegangen wird – kann aber gezeigt werden, dass die optimale Fokusposition in der Mitte des Kristalls liegt.

Ziel der neu zu entwickelnden Frequenzverdopplungseinheit ist es, einen Resonator zu konstruieren, dessen Grundmode einen Strahlwaist idealer Größe an der gewünschten Position hat (siehe Abschnitt 3.2). Der optimierte Wert für σ liefert ein optimales Δk dessen Wert i. A. ungleich Null ist. Dies hat seine Ursache in der Guoy-Phasenverschiebung,

⁹Von Schmidt (1998) und Werner (2000) wurde in $k_\omega = \frac{2\pi}{\lambda} n_\omega$ der Faktor n_ω vergessen.

¹⁰Als Waist wird der Strahlradius bezeichnet, bis zu dem die Intensität auf den Bruchteil von $1/e^2$ ihres Maximums abgesunken ist.

die ein gaußscher Strahl im Vergleich zu einer ebenen Welle erleidet. Im Photonenbild kann man argumentieren, dass nicht mehr alle Photonen parallel zur Strahlachse laufen. Somit werden Konstellationen wahrscheinlicher, in denen sich Impulscomponenten der erzeugten Photonen gegenseitig aufheben. Somit ergeben sich positive Werte für $\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}$.

Bei nichtkritischer Phasenanpassung ($\varrho = 0$) ergeben sich die optimierten Parameter zu $\xi_{\text{opt}} = 2,84$, $\sigma_{\text{opt}} = 0,57 \Rightarrow h_{\text{opt}} = 1,07$. Die Konversionseffizienz κ_{NL} ist proportional zur Kristalllänge.

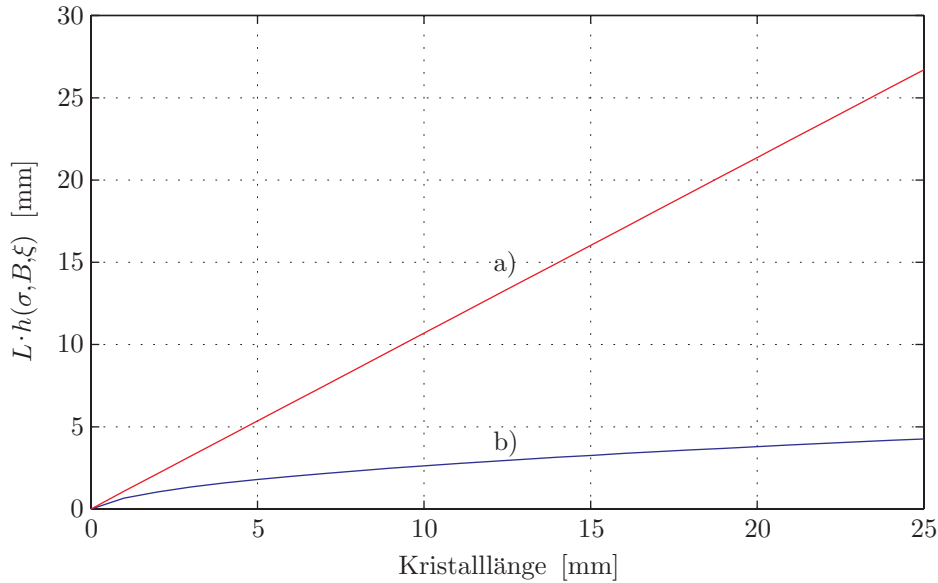


Abbildung 3.3: Von der Kristalllänge abhängiger Anteil der Konversionseffizienz κ_{NL} . a) Verlauf bei nichtkritischer Phasenanpassung: Es gilt $B = 0$ und die Effizienz wächst linear mit der Kristalllänge. Die optimale Fokussierung ist unabhängig von L . b) Bei kritischer Phasenanpassung führt der Walkoff zu verminderter Effizienz. Für jeden Punkt wurde der Faktor $h(\sigma, B, \xi)$ numerisch optimiert, wobei für den Doppelbrechungswinkel der Wert für LBO bei 851,1 nm verwendet wurde.

Im Fall der für LBO notwendigen kritischen Phasenanpassung ist der Walkoff zu berücksichtigen. Dieser vermindert den Überlapp zwischen Pump- und Oberwelle im Kristall. In der Boyd-Kleinman-Theorie ist dieser Effekt berücksichtigt. Die optimierte Fokussierung ist schwächer als im Fall der nichtkritischen Phasenanpassung, da das Optimum aus maximalem Überlapp und möglichst hoher Intensität relevant ist. Über den Doppelbrechungsparameter B des Boyd-Kleinman-Faktors enthält die Konversionseffizienz κ_{NL} eine zusätzliche Abhängigkeit von der Kristalllänge L und ist somit nicht mehr proportional zu L (Abbildung 3.3).

Für die neue Frequenzverdopplungseinheit soll ein 15 mm langer LBO-Kristall verwendet werden. Für einen solchen Kristall ergibt sich ein Doppelbrechungsparameter von $B = 3,12$. Mit diesem Wert kann das Integral aus Gleichung 3.11 numerisch optimiert werden. Es ergibt sich für die optimale Fokussierung $\xi_{\text{opt}} = 1,55$, woraus eine Rayleigh-Länge von $z_{\text{R}} = 4,8$ mm und ein optimaler Strahlradius von $w_{\text{Kristall}} = 28,5 \mu\text{m}$ folgt (Abbildung 3.4).

Bei im Resonator umlaufenden Leistungen von bis zu 210 W entspricht dies einer Spitzenintensität im Fokus von 16 MW/cm^2 . Für die Phasenanpassung ergibt sich $\sigma_{\text{opt}} = 0,75$; die relative Größe von $\frac{\Delta k_{\text{opt}}}{k_{\omega}} = 1,3 \cdot 10^{-5}$ ist minimal und wird vernachlässigt. Die optimale Phasenanpassung erfolgt experimentell. Der optimierte Boyd-Kleinman-Faktor beträgt $h_{\text{opt}} = 0,217$. Damit ergibt sich für den Kristall eine theoretische Konversioneffizienz von $\kappa_{\text{NL}} = 6,99 \cdot 10^{-5} \text{ W}^{-1}$.

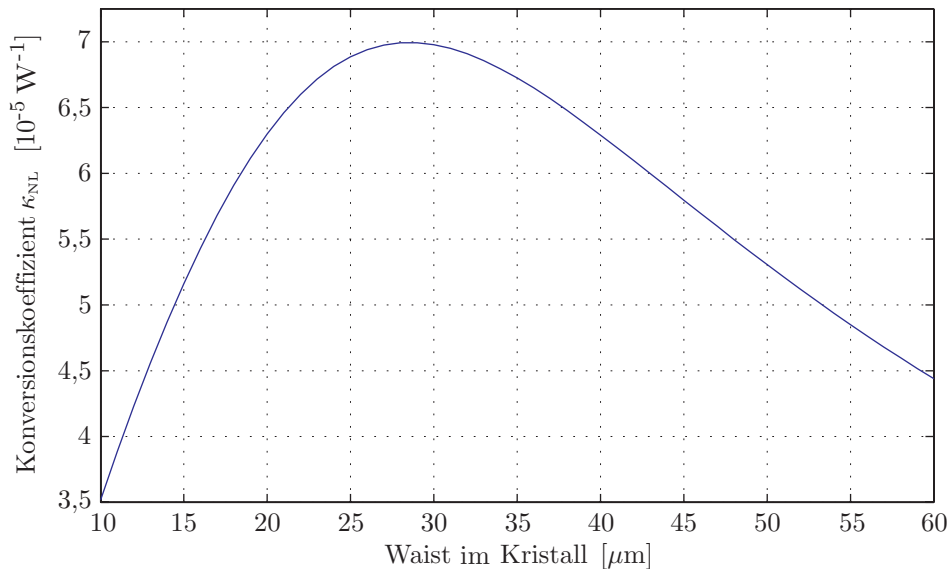


Abbildung 3.4: Abhängigkeit der Konversionseffizienz vom Waist im Kristall für einen 15 mm langen LBO-Kristall berechnet mittels des Boyd-Kleinman-Integrals, wobei $\sigma = \sigma_{\text{opt}}$ festgehalten wurde. Das Maximum der Kurve ist recht breit, somit ist der Strahlwaist im Kristall ein relativ unkritischer Parameter.

3.2 Der externe Resonator

Die quadratische Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Pumpleistung (Gleichung 3.10) legt es nahe, die Konversionseffizienz zu steigern, indem das Pumplicht in einem Resonator resonant überhöht wird (Ashkin *et al.*, 1966). Eine Möglichkeit wäre es, den Kristall direkt im Laserresonator des Titan-Saphir-Lasers zu platzieren. Nachteile wären aber die nicht entkoppelte Justage von Laser und Frequenzverdopplung. Außerdem ist man auf die Form der Resonatormode angewiesen. Die Realisierung der optimalen Fokussierung ist deshalb i. A. nicht möglich. Die Verwendung eines brewster-geschnittenen Kristalls kann zudem durch die zusätzliche astigmatische Verformung der Resonatormode die Stabilität des Laserresonators gefährden (vgl. nächster Abschnitt).

Alle diese Nachteile können durch Verwendung eines externen Resonators zur Überhöhung der Grundwelle umgangen werden. Ziel der Konstruktion des Resonators ist es, die Resonatorgeometrie so zu wählen, dass die Grundmode am Ort des Kristalls einen Fokus optimaler Größe hat. Des Weiteren muss die optische Stabilität des Resonators sichergestellt sein. Die Reflektivitäten der Spiegel sind so zu wählen, dass eine möglichst

starke Überhöhung der Pumpleistung erfolgt. Als experimentell sehr kritischer Parameter erweist sich die Realisierung einer effizienten Einkopplung des Pumplichts in den Resonator.

3.2.1 Stabilität und Astigmatismus

Ein Resonator kann nur dann Licht resonant überhöhen, wenn er so konstruiert ist, dass der Strahl nach einem Umlauf im Resonator wieder in sich selbst übergeht. Zur analytischen Formulierung dieser Stabilitätsbedingung wird der Formalismus der Propagation gaußscher Strahlen mittels ABCD-Matrizen verwendet (Kogelnik, 1965). Hierbei wird der gaußsche Strahl durch den Strahlparameter q beschrieben.¹¹

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{r} - i \frac{\lambda}{\pi n w^2} \quad (3.12)$$

Dadurch ist der Strahl abgesehen von Frequenz, Amplitude und Modenzahl (hier: TEM₀₀) vollständig charakterisiert. Die Wirkung eines optischen Elements, beschrieben durch seine $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$ -Matrix, transformiert den Strahlparameter wie folgt:

$$\frac{1}{\tilde{q}} = \frac{C + D/q}{A + B/q} \quad (3.13)$$

Die Propagation über die Distanz d wird durch die Matrix $\begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ beschrieben, so dass sich für den Strahlparameter ergibt: $\tilde{q} = q + d$. Hohlspiegel werden durch die Matrix $\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f & 1 \end{pmatrix}$ beschrieben. Die Wirkung aller optischen Komponenten des Resonators auf den Strahl bei einem Umlauf lässt sich nun durch Multiplikation der einzelnen Matrizen in der richtigen Reihenfolge bestimmen. Mit der so erhaltenen Matrix kann man die Forderung der Stabilität wie folgt formulieren:

$$\frac{1}{q} = \frac{C + D/q}{A + B/q} \quad (3.14)$$

$$\Rightarrow \frac{1}{q} = \frac{D - A}{2B} \pm i \frac{\sqrt{1 - \frac{1}{4}(D + A)^2}}{B} \quad (3.15)$$

Hierbei wurde die Determinantenbedingung $AD - BC = 1$ für Strahltransfermatrizen verwendet. Bei Vergleich mit Gleichung 3.12 erkennt man, dass die Wurzel reell sein muss, um einen endlichen und reellen Strahlwaist zu erhalten. Damit erhält man die Stabilitätsbedingung:

$$\frac{1}{2} |D + A| \leq 1 \quad (3.16)$$

Durch geeignete Wahl der Abstände und der Brennweiten der optischen Elemente muss diese Bedingung erfüllt werden. Nur dann ist der Resonator stabil und es wird möglich die Lichtleistung im Resonator zu überhöhen.

Der im Brewster-Winkel geschnittene Kristall verursacht aber eine astigmatische Verformung des Pumpstrahls. Dies macht es notwendig, getrennt darauf zu achten, dass die Stabilitätsbedingung sowohl für die Richtung in der Strahlumlaufebene (Tangentialebene) als auch senkrecht dazu (Sagittalebene) erfüllt ist. Ein in z -Richtung propagierender

¹¹Es bezeichnet r den Krümmungsradius der Wellenfronten und w den Strahlradius.

astigmatischer Strahl zeichnet sich dadurch aus, dass sein Fokus in der x -Richtung an einer anderen z -Position liegt als sein Fokus in der y -Richtung.

Trifft ein nicht-astigmatischer Strahl unter einem Winkel auf eine planparallele Platte, so verlässt er diese astigmatisch. Die Ursache kann folgendermaßen erklärt werden: Die Projektion des runden Strahlprofils des einfallenden Strahl auf die Eintrittsfläche ist eine Ellipse. Die Propagation durch den Kristall beginnt deshalb mit verschiedenen

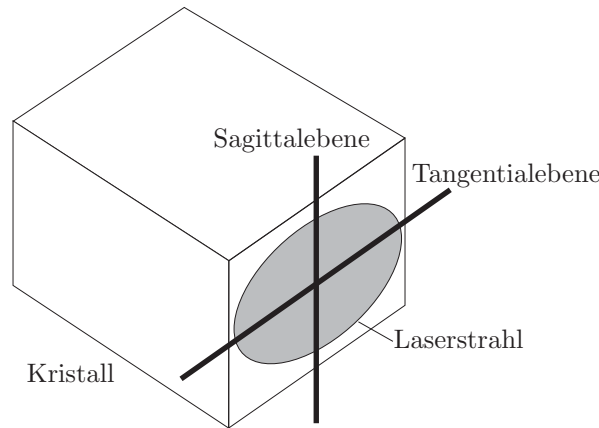


Abbildung 3.5: Fällt ein runder Strahl unter einem Winkel auf eine Fläche, so ist die Projektion des Strahlquerschnitts auf die Kristalloberfläche eine Ellipse.

Strahlradien in x - und y -Richtung. Damit ergeben sich aber über die ganze Kristalllänge verschiedene Propagations- und Fokussierungseigenschaften, die auch nach Verlassen des Kristalls nicht mehr zu einem nicht-astigmatischen Strahl führen. Die folgende genauere Analyse zeigt, dass sich dies durch verschiedene effektive Propagationslängen in sagittaler und tangentialer Richtung beschreiben lässt.

Die Strahltransfermatrizen an der Ein- bzw. Austrittsfläche des Kristalls sind für die Sagittalebene gegeben durch:

$$T_{\text{in},s} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{1}{n} \end{pmatrix} \quad T_{\text{aus},s} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & n \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

Dabei handelt es sich um die gewöhnlichen Strahltransfermatrizen, die den Übergang zwischen Luft und einem Medium mit Brechungsindex n beschreiben. Der Strahlradius bleibt beim Übergang unverändert.

Bezüglich der Tangentialebene ist die Änderung des Strahlradius durch die Projektion auf die Eintrittsfläche zu berücksichtigen. Für einen Strahl, der unmittelbar vor der Kristallfläche den Radius w_L hat, liefert eine einfache geometrische Projektion, dass sein Radius w_K direkt nach Eintritt in den Kristall gegeben ist durch $w_K = w_L \cdot \cos \Psi_K / \cos \Psi_L$. Hierbei ist Ψ_L der Einfallswinkel des Strahls auf den Kristall; Ψ_K ist der entsprechende Winkel im Kristall. Fällt der Strahl im Brewster-Winkel ein, so gilt: $w_K = n \cdot w_L$. Die entsprechende Transformation bzw. Rücktransformation beim Austritt aus dem Kristall erfolgt auf Ebene der Strahltransfermatrizen durch folgende Matrizen:

$$T_{\text{in},t} = \begin{pmatrix} n & 0 \\ 0 & \frac{1}{n^2} \end{pmatrix} \quad T_{\text{aus},t} = \begin{pmatrix} \frac{1}{n} & 0 \\ 0 & n^2 \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Die Propagation eines Strahls durch den Kristall wird deshalb für die beiden Ebenen separat durch folgende Matrizen beschrieben:

$$T_{\text{aus},s} \cdot \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot T_{\text{ein},s} = \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{n} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

$$T_{\text{aus},t} \cdot \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot T_{\text{ein},t} = \begin{pmatrix} 1 & \frac{L}{n^3} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

Es ist folglich möglich, die Strahlpropagation in Sagittal- und Tangentialrichtung durch verschiedene effektive Kristalllängen $L_s = L/n$ und $L_t = L/n^3$ zu beschreiben.

Der durch den Kristall verursachte Astigmatismus muss nun geeignet kompensiert werden, da sonst gegebenenfalls Sagittal- und Tangentialrichtung nicht beide stabil sind (vgl. Abbildung 3.7). Die Kompensation geschieht durch weitere astigmatische Elemente im Resonator. Als solche bieten sich gekrümmte Spiegel an, auf die der Strahl unter einem Winkel ϑ trifft. Typischerweise wird ein solcher Resonator in der Bow-Tie-Konfiguration mit zwei gekrümmten und zwei planaren Spiegeln aufgebaut.

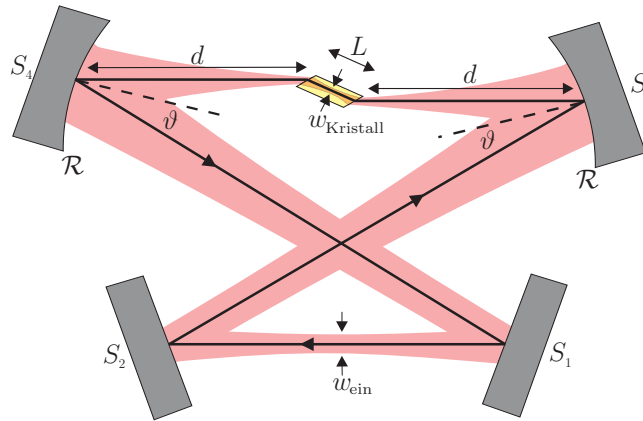


Abbildung 3.6: Resonator in der Bow-Tie-Konfiguration bestehend aus den beiden planaren Spiegeln S_1 und S_2 , sowie den gekrümmten Spiegeln S_3 und S_4 . Der Strahl trifft unter dem Winkel ϑ auf die gekrümmten Spiegel.

Die Brennweite der gekrümmten Spiegel in der Sagittal- und Tangentialebene ist gegeben durch (Jenkins und White, 1957, S. 95):

$$f_s = \frac{f}{\cos \vartheta} \quad \text{und} \quad f_t = f \cos \vartheta \quad (3.21)$$

Hierbei hängt die Brennweite über $f = \mathcal{R}/2$ mit dem Krümmungsradius \mathcal{R} zusammen.

Um die Eigenschaften eines Bow-Tie-Resonators zu untersuchen, wurden die ABCD-Matrizen ausgehend von der Kristallmitte für einen Umlauf miteinander multipliziert und die Stabilität bzw. die Größe des Kristallwaists in Abhängigkeit von den Systemparametern untersucht. Der kritische Parameter für die Stabilität ist der Abstand d der gekrümmten Spiegel vom Kristall. In Abbildung 3.7 sind sog. Stabilitätsdiagramme dargestellt. Hierzu wird die Größe des Kristallwaists in Abhängigkeit vom Abstand d

berechnet. Für Werte von d im Bereich einiger Millimeter ist der Resonator stabil und es ergeben sich reelle Werte für den Kristallwaist; diese sind im Stabilitätsdiagramm gezeichnet. Ziel ist es, den Resonator am Maximum der Stabilitätskurve zu betreiben, da hier Längenänderungen den kleinsten Einfluss auf die Größe des Kristallwaists haben. Die weiteren Resonatorparameter sind so zu wählen, dass die Größe des Kristallwaists am Maximum dem gewünschten nach Boyd-Kleinman optimierten Wert entspricht. Des Weiteren ist jedoch zu beachten, dass aufgrund des Astigmatismus der Strahl in der Tangentialebene i. A. für andere Abstände d stabil ist, als für die Sagittalebene. Durch die Wahl des richtigen Winkels ϑ gelingt es, dass die Stabilitätsbereiche überlappen (Abbildung 3.7). Die Ermittlung des Astigmatismuskompensationswinkels erfolgt mit dem verallgemeinerten klassischen Verfahren von Kogelnik *et al.* (1972). Bei symmetrischem Aufbau ergibt sich die Bedingung, dass die Differenz der effektiven Kristalllängen für Sagittal- und Tangentialrichtung gerade so groß ist wie die doppelte Differenz der Brennweiten der gekrümmten Spiegel:

$$2 \left(\frac{f}{\cos \vartheta} - f \cos \vartheta \right) = \frac{L}{n} - \frac{L}{n^3} \quad (3.22)$$

Bei Verwendung gekrümmter Spiegel mit $\mathcal{R} = 50$ mm und einer Kristalllänge von 15 mm ergibt sich mit $n = n_{z,\omega} = 1,6098$ ein Kompensationswinkel von $\vartheta = 19,2^\circ$.

Gleichzeitig ist zu beachten, dass die stabile Resonatormode im Kristall einen Fokus der gewünschten Größe hat. Die Variation der Parameter zeigt, dass sich Kristallwaists im gewünschten Bereich durch Spiegel mit einem Krümmungsradius von $\mathcal{R} = 50$ mm erzielen lassen. Die Feinabstimmung erfolgt durch Variation der Propagationsstrecke l_{Rest} vom gekrümmten Spiegel S_4 über S_1 und S_2 zum zweiten gekrümmten Spiegel S_3 .

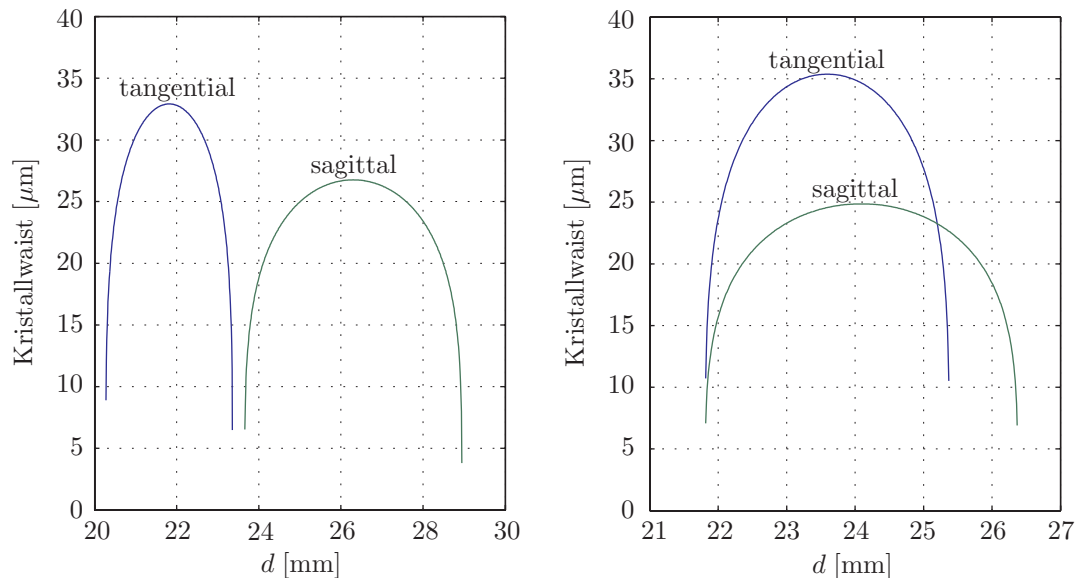


Abbildung 3.7: Stabilitätsdiagramme: Wird der Winkel ϑ falsch gewählt (links; $\vartheta = 28^\circ$), so sind Sagittal- und Tangentialebene nicht gleichzeitig stabil. Wird der Astigmatismus aber geeignet kompensiert (rechts; $\vartheta = 19,2^\circ$) so überlappen die Stabilitätsbereiche.

Mit dem gewählten Konzept des symmetrischen Bow-Tie-Resonators mit sphärischen gekrümmten Spiegeln bleibt die Resonatormode stets elliptisch. Die im rechten Teil von Abbildung 3.7 gezeigte Situation scheint optimal. Wählt man einen Abstand von 24 mm zwischen Kristall und gekrümmtem Spiegel, so befindet man sich im flach verlaufenden Teil der Stabilitätskurven und der Resonator ist somit am wenigsten sensitiv auf Änderungen der Abstände. Die gezeigte Situation ergibt sich für $l_{\text{Rest}} = 360$ mm. Die Waistgröße in Sagittalrichtung ist $25 \mu\text{m}$, in Tangentialrichtung beträgt sie $35 \mu\text{m}$. Der Vergleich mit Abbildung 3.4 zeigt, dass diese Abweichungen vom als optimal berechneten sphärischen Waist von $28,5 \mu\text{m}$ die erreichbare Konversionseffizienz nur unwesentlich verschlechtern.

Nachdem die Konstruktion des neuen Resonators bereits abgeschlossen war, wurde ein Fehler im Konstruktionsprogramm entdeckt. Die zuvor dargelegten Ergebnisse wurden mit dem korrigierten Programm ermittelt. Das resultierende Stabilitätsdiagramm des tatsächlich konstruierten Resonators ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Die gewählten Parameter waren: $\mathcal{R} = 50$ mm; $\vartheta = 20,8^\circ$, Abstand zwischen Kristall und gekrümmten Spiegeln: 23,8 mm; $l_{\text{Rest}} = 260$ mm. Die Größe des Waists in sagittaler Richtung beträgt $28,5 \mu\text{m}$, während sie in tangentialer Richtung $42,3 \mu\text{m}$ beträgt. Aufgrund der schwachen Abhängigkeit der Konversionseffizienz vom Kristallwaist (Abbildung 3.4) beeinflusst dies die erreichbaren Leistungen in der Oberwelle nur gering.

Die Größe des zweiten Waists w_{ein} der Resonatormode kann ebenfalls mittels ABCD-Matrizen ermittelt werden. Im realisierten Aufbau ist er $181 \times 221 \mu\text{m}$ groß. Um den Pumpstrahl effizient in den Resonator einzukoppeln ist es wichtig, ihn in seiner Form an dieser Stelle möglichst gut an die Resonatormode anzupassen (vgl. Abschnitt 3.3).

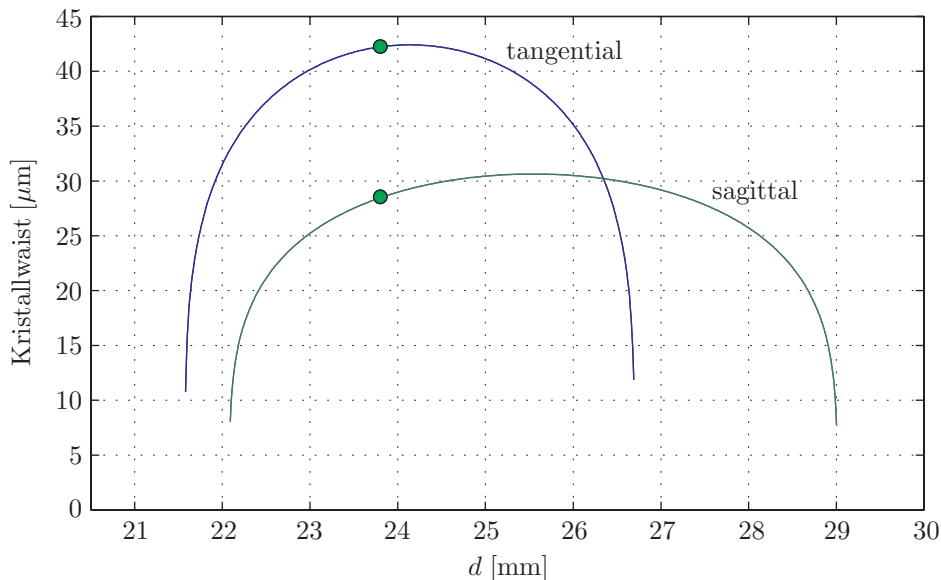


Abbildung 3.8: Stabilitätsdiagramm des realisierten Resonators. Gewählt wurde ein Abstand von $d = 23,8$ mm; die Markierungen stellen gewissermaßen den Arbeitspunkt des Resonators dar. Aufgrund eines Konstruktionsfehlers weicht der Kristallwaist in der Tangentialebene deutlich vom optimalen Wert von $28,5 \mu\text{m}$ ab.

3.2.2 Resonatortheorie

Im Folgenden wird eine knappe Resonatortheorie skizziert. Die Überhöhung der Lichtleistung im Resonator wird abhängig von den Verlusten berechnet. Das im Resonator

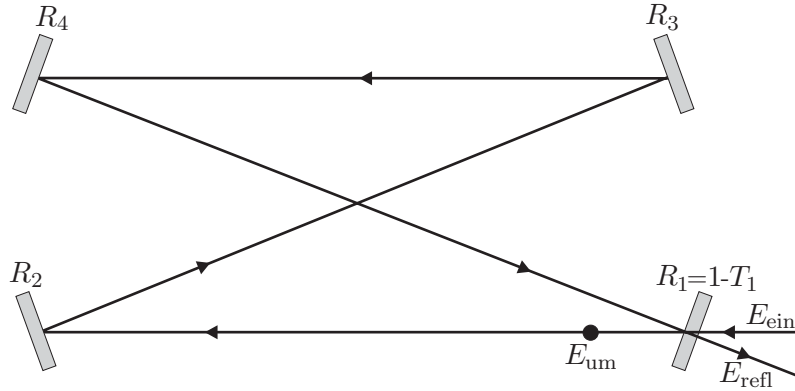


Abbildung 3.9: Skizze zur Bezeichnung des eingekoppelten, reflektierten und umlaufenden Feldes.

zirkulierende Feld E_{um} kann durch einen selbstkonsistenten Ansatz berechnet werden. Danach setzt sich das Feld aus zwei Anteilen zusammen (Abbildung 3.9):

$$E_{\text{um}} = \sqrt{T_1} E_{\text{ein}} + \tilde{\beta}_{\text{um}}(\omega) E_{\text{um}} \quad (3.23)$$

Der erste Term beschreibt das durch den Spiegel R_1 von außen eingekoppelte Feld. Es wird wegen der begrenzten Transmission des Einkopplers um den Faktor $\sqrt{T_1}$ abgeschwächt. Zu diesem Anteil addiert sich der Anteil des Feldes der einmal im Resonator umgelaufen ist. Verluste und Phasenverschiebungen bei diesem Umlauf werden durch $\tilde{\beta}_{\text{um}}(\omega)$ beschrieben.

$$\tilde{\beta}_{\text{um}}(\omega) = \sqrt{R_1 R_{234} \alpha} e^{i\omega l/c} =: \beta_{\text{um}} e^{i\omega l/c} \quad (3.24)$$

Hierbei ist R_1 die Reflektivität des Einkopplers und $R_{234} = R_2 R_3 R_4$ das Produkt der Reflektivitäten der restlichen Spiegel. Der Koeffizient α enthält die restlichen Verluste im Resonator wie (lineare) Absorption, durch die Frequenzverdopplung konvertierte Leistung und Restreflexionen an den Brewsterflächen. Der Faktor $e^{i\omega l/c}$ beschreibt die Phasenänderung bei einem Umlauf im Resonator der optischen Länge l .

Aus Gleichung 3.23 kann man das umlaufende Feld berechnen:

$$E_{\text{um}} = \frac{\sqrt{T_1}}{1 - \tilde{\beta}_{\text{um}}(\omega)} E_{\text{ein}} \quad (3.25)$$

Mit $P_{\text{um}}/P_{\text{ein}} = |E_{\text{um}}/E_{\text{ein}}|^2$ erhält man ein Maß für die Überhöhung im Resonator.

$$\frac{P_{\text{um}}}{P_{\text{ein}}} = \frac{T_1}{(1 - \beta_{\text{um}})^2 + 4\beta_{\text{um}} \sin^2\left(\frac{\omega l}{2c}\right)} \quad (3.26)$$

3.2 Der externe Resonator

Dieses sog. Modenspektrum des Resonators ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Die Überhöhung wird maximal, wenn die Bedingung

$$\omega_q = q \cdot \frac{2\pi c}{l} \quad (3.27)$$

erfüllt ist. Die Resonatorlänge ist in diesem Fall ein ganzzahliges Vielfaches q der Wellenlänge. Der Resonator ist resonant.

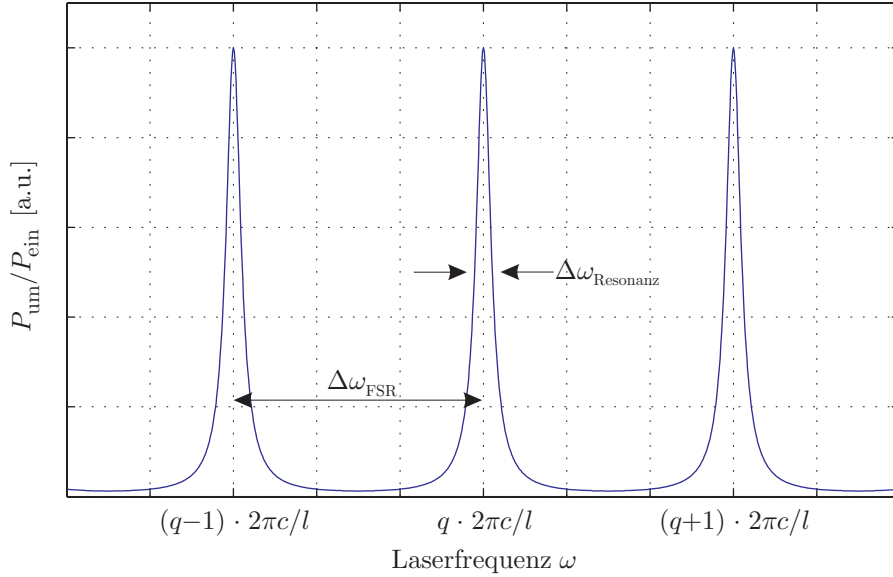


Abbildung 3.10: Modenspektrum des Resonators.

Die Überhöhung beträgt bei Resonanz:

$$\left. \frac{P_{\text{um}}}{P_{\text{ein}}} \right|_{\omega=\omega_q} = \frac{T_1}{(1 - \sqrt{R_1 R_{234} \alpha})^2} \quad (3.28)$$

Der Frequenzabstand zweier Resonanzen wird als Free Spectral Range (=freier Spektralbereich) bezeichnet:

$$\Delta\omega_{\text{FSR}} = \omega_{q+1} - \omega_q = \frac{2\pi c}{l} \quad \text{bzw.} \quad \Delta\nu_{\text{FSR}} = \frac{c}{l} \quad (3.29)$$

Die Resonanzen haben aufgrund der Verluste im Resonator und der damit verbundenen endlichen Lebensdauer der Photonen eine endliche Breite $\Delta\omega_{\text{Resonanz}}$.

Das Verhältnis des Abstands der Resonanzen zu ihrer Breite wird als Finesse \mathcal{F} bezeichnet. Mittels Gleichung 3.26 kann \mathcal{F} durch die Verluste β_{um} ausgedrückt werden:

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta\omega_{\text{FSR}}}{\Delta\omega_{\text{Resonanz}}} = \frac{\pi\sqrt{\beta_{\text{um}}}}{1 - \beta_{\text{um}}} \quad (3.30)$$

Dies stellt ein Maß für die Verluste im Resonator dar, je kleiner sie sind ($\beta_{\text{um}} \rightarrow 1$), desto größer ist die Finesse.

Frequenzverdopplungsresonator

Im Fall eines Frequenzverdopplungsresonators sind im Verlustkoeffizienten α auch die Verluste durch die Frequenzkonversion zu berücksichtigen. Trifft die Leistung P_{um} auf den Kristall, so wird beim Durchgang der Anteil $\kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}^2$ konvertiert. Die Leistung in der Grundmode beträgt nach einem Durchgang durch den Kristall somit $P_{\text{um}} - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}^2$. Die Transmission des Kristalls ist folglich für kleine Konversionseffizienzen $1 - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}$. Unter Einführung des Koeffizienten $\tilde{\alpha}$, der sonstige Verluste beschreibt, kann man schreiben:

$$\alpha = \tilde{\alpha}(1 - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}) \quad (3.31)$$

Eingesetzt in Gleichung 3.28 folgt:

$$\left. \frac{P_{\text{um}}}{P_{\text{ein}}} \right|_{\omega=\omega_q} = \frac{T_1}{\left(1 - \sqrt{R_1 R_{234}} \tilde{\alpha} (1 - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}})\right)^2} \quad (3.32)$$

Die umlaufende Leistung erhält man durch Auflösen nach P_{um} . Auf die Angabe der analytischen Lösung wird wegen ihrer Überlänge hier verzichtet. Abbildung 3.11 zeigt den Verlauf.

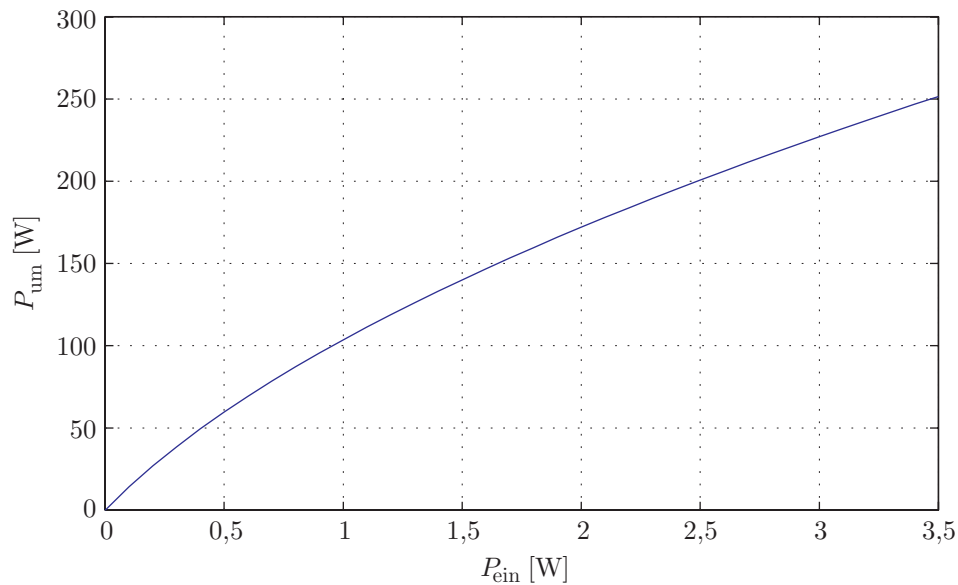


Abbildung 3.11: Umlaufende Leistung im Resonator in Abhängigkeit von der eingekoppelten Leistung. Für die Verluste wurden die Werte des experimentell realisierten Resonators eingesetzt (vgl. Abschnitt 3.5.2). Die Reflektivität R_1 des Einkoppelspiegels wurde gemäß dem folgenden Kapitel für jeden Punkt optimiert.

3.2.3 Einkopplung

Impedanzanpassung

Ziel ist es, eine möglichst große umlaufende Leistung im Resonator zu erreichen. Hierzu scheint es sinnvoll, die Reflektivität R_1 möglichst groß zu wählen, um die Verluste

klein zu halten. Andererseits muss das Licht durch den Spiegel mit R_1 in den Resonator eingekoppelt werden, was durch eine große Reflektivität erschwert wird. Ziel der Impedanzanpassung ist es, das Optimum zu finden. Es ist dann erreicht, wenn vom einzukoppelnden Strahl nichts am Einkoppler reflektiert wird.

Das am Einkoppler reflektierte Feld besteht wiederum aus zwei Teilen: Dem direkt am Einkoppler reflektierten Anteil und dem durch den Einkoppler transmittierten Anteil des im Resonator umlaufenden Feldes.¹²

$$E_{\text{refl}} = \sqrt{R_1} E_{\text{ein}} + \sqrt{T_1} \frac{\tilde{\beta}_{\text{um}}(\omega)}{\sqrt{R_1}} E_{\text{um}} \quad (3.33)$$

Setzt man E_{um} aus Gleichung 3.25 ein, so erhält man auf Resonanz:

$$\left. \frac{E_{\text{refl}}}{E_{\text{ein}}} \right|_{\omega=\omega_q} = \frac{R_1 - \beta_{\text{um}}}{\sqrt{R_1}(1 - \beta_{\text{um}})} \quad (3.34)$$

Betrachtet man den Zähler, so wird deutlich, dass nichts am Einkoppler reflektiert wird, wenn gilt:

$$R_1 = R_{234} \cdot \alpha = R_{234} \cdot \tilde{\alpha}(1 - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}) \quad (3.35)$$

Für dieses R_1 wird die gesamte Leistung in den Resonator eingekoppelt. Destruktive Interferenz zwischen den beiden Termen in Gleichung 3.33 ermöglicht es, dass das Licht vollständig durch den u. U. hochreflektierenden Einkoppler transmittiert wird. Die Transmission des Einkopplers ist im impedanzangepassten Fall gerade so groß wie die restlichen Verluste im Resonator. Mit P_{um} aus Gleichung 3.28 ergibt sich:

$$R_1 = R_{234} \tilde{\alpha} \left(1 - \kappa_{\text{NL}} \frac{T_1}{(1 - \sqrt{R_1 R_{234} \alpha})^2} P_{\text{ein}} \right) \quad (3.36)$$

Wird $R_{234} \alpha$ unter der Wurzel gemäß Gleichung 3.35 durch R_1 ersetzt, so erhält man:

$$R_1 = \frac{1}{2} \left(1 + R_{234} \tilde{\alpha} - \sqrt{1 - 2R_{234} \tilde{\alpha} + R_{234}^2 \tilde{\alpha}^2 + 4R_{234} \tilde{\alpha} \kappa_{\text{NL}} P_{\text{ein}}} \right) \quad (3.37)$$

Der optimale Einkoppler ist somit aufgrund der Frequenzkonversion abhängig von der einzukoppelnden Leistung.

Modenanpassung

Zur effektiven Einkopplung in den Resonator ist neben der Impedanzanpassung noch ein weiteres Ziel zu erreichen. Der einzukoppelnde Strahl muss möglichst perfekt mit der Resonatormode überlappen. Gemäß der Konstruktion in Abschnitt 3.2.1 liegt zwischen den beiden planaren Spiegeln ein zweiter Fokus ω_{ein} der Resonatormode. Es gilt nun den einzukoppelnden Strahl durch ein Linsensystem so zu formen, dass er idealerweise am gleichen Ort einen Fokus gleicher Größe hat. Fehlende Modenanpassung macht sich dahingehend als Verlustfaktor bemerkbar, als dass die Anteile der einzukoppelnden Mode, die nicht mit der Resonatormode überlappen, stets vollständig am Einkoppler reflektiert werden. Die eingekoppelte Leistung P_{ein} ist deshalb in allen Formeln mit einem Modenanpassungsfaktor zu multiplizieren.

¹² β_{um} ist durch $\sqrt{R_1}$ zu teilen, da eine Reflexion am Einkoppler entfällt.

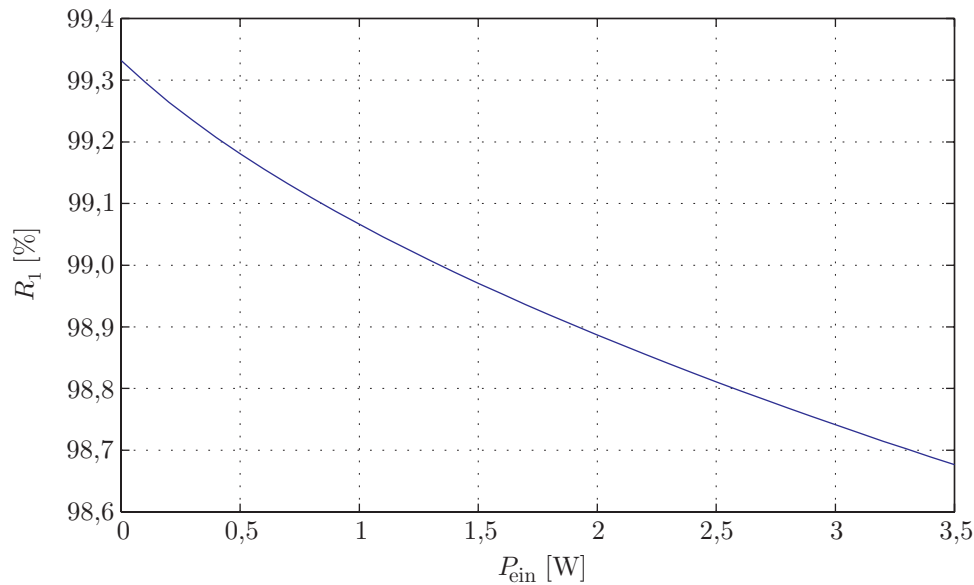


Abbildung 3.12: Impedanzangepasste Reflektivität R_1 des Einkopplers in Abhängigkeit der einzukoppelnden Leistung. Für die Verluste wurden erneut jene Werte des neu aufgebauten Resonators verwendet (Abschnitt 3.5.2).

3.3 Experimenteller Aufbau

Mit den zuvor dargelegten theoretischen Modellen wurde ein Resonator für einen 15 mm langen brewster-geschnittenen LBO-Kristall entworfen. Mit den Berechnungen aus Abschnitt 3.2.1 liegen die Spiegelpositionen relativ zur Kristallposition fest. Die Positionen der Spiegel sollten möglichst gut fixiert werden können. Um erhöhte mechanische Stabilität zu gewährleisten, wurde ein monolithisches Resonatorgehäuse konstruiert an dem die Spiegelhalter befestigt wurden. Das Resonatorgehäuse mit einer Wanddicke von 2 cm wurde aus einer Aluminiumscheibe (26 cm Durchmesser; 10,8 cm Dicke) mittels einer CNC-Maschine herausgefräst. Die Strahlebene verläuft 4,8 cm unterhalb der Oberkante. Um die Strahlhöhe im Resonator auf die im restlichen Experiment verwendete Höhe von 10 cm zu bringen wurde ebenfalls aus Aluminium ein 4 cm dicker Sockel gefertigt auf dem der Resonator fest verschraubt wird. Alle Bauteile aus Aluminium wurden anschließend rot eloxiert um die Oberflächen zu schützen. In der Resonatorwand befinden sich für jeden Spiegelhalter drei Löcher für Mikrometerschrauben¹³ mit einer Gangweite von 100 Umdrehungen pro Zoll, über die die Spiegel justiert werden können. Bei den Spiegelhaltern handelt es sich um Eigenkonstruktionen aus Aluminium, die über zwei Federn am Resonatorgehäuse gehalten werden. Die Justageschrauben liegen nicht direkt auf dem Aluminium der Spiegelhalter auf, sondern es wurden kleine Stahlscheiben in die Spiegelhalter eingelassen auf denen die Schrauben aufliegen, um die Stabilität zu verbessern. Jeder Spiegelhalter hat ein 0,5 Zoll Loch mit einer Fixierschraube. Der Einkoppler und die gekrümmten Spiegel sind 0,5 Zoll groß und werden in den Spiegelhaltern mit Madenschrauben befestigt. Der zweite planare Spiegel ist, um die Resonatorlänge elek-

¹³Fa. New Focus

tronisch regeln zu können, auf einen piezoelektrischen Translator¹⁴ (PZT) aufgeklebt. Der Piezospiegel ist um den PZT mit wenig Gewicht zu belasten nur 0,25 Zoll groß. Der PZT mit aufgeklebtem Spiegel wurde in eine speziell angepasste Hülse geklebt. Diese hat einen Außendurchmesser von 0,5 Zoll und kann somit in einem zu den anderen Spiegelhaltern baugleichen befestigt werden.

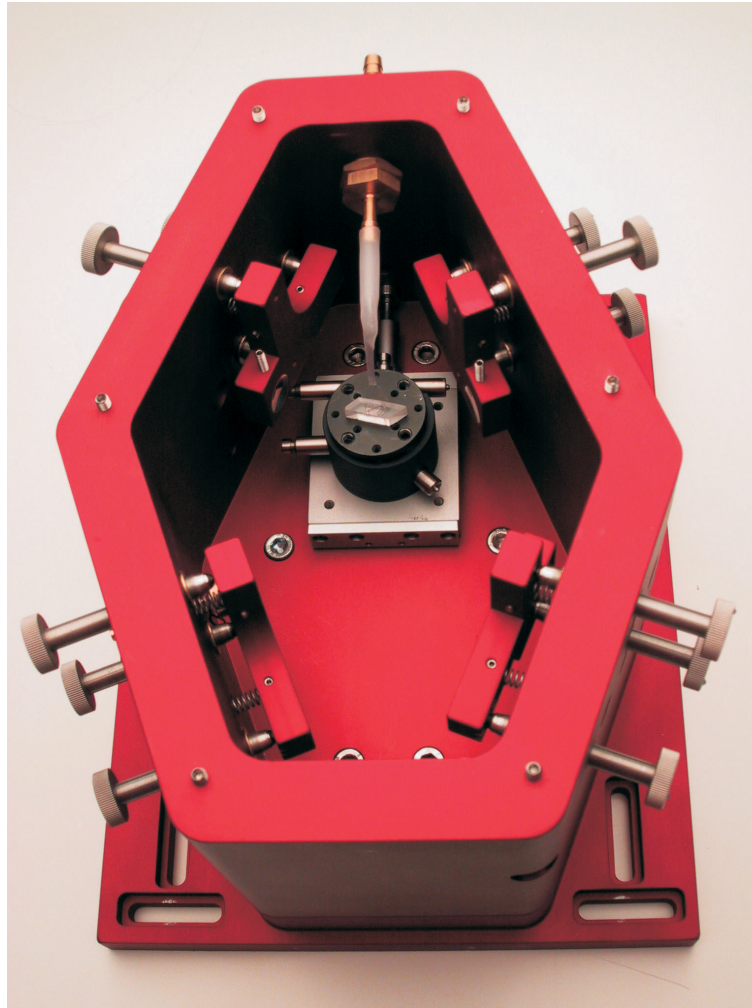


Abbildung 3.13: Photo des neu konstruierten Frequenzverdopplungsresonators.

Der $3 \times 3 \times 15$ mm große Kristall¹⁵ wird von einem Kristallhalter gehalten, der wiederum auf einem Stelltisch montiert ist, der gedreht und verkippt werden kann. Zwischen Kristallhalter und Tisch wurde ein Peltierelement installiert um die Kristalltemperatur verändern zu können. Es konnte jedoch bei Temperaturen im Bereich von $30\text{--}50^\circ\text{C}$ kein Einfluss der Kristalltemperatur auf die Ausgangsleistung festgestellt werden. Es war auch nicht notwendig den Kristall auf diese Weise vor Feuchtigkeit zu schützen. Deshalb wird der Kristall derzeit im täglichen Betrieb nicht geheizt. Perspektiven der

¹⁴PI Physik Instrumente, Modell P802.00; $6\ \mu\text{m}$ Hub für Spannungen von $0\text{--}100\ \text{V}$.

¹⁵Fa. Linos

Frequenzverdopplung mit LBO bei deutlich höheren Temperaturen werden im Ausblick dieses Kapitels kurz skizziert.

Der Stelltisch ist wiederum auf einem Verschiebetisch montiert, der es ermöglicht, den Kristall senkrecht zum Strahl zu verschieben. Sollte die Oberfläche des Kristalls durch die hohen umlaufenden Leistungen beschädigt werden, könnte der Kristall so weit verschoben werden, dass der Pumpstrahl wieder auf eine intakte Oberfläche trifft. In der nun mehrmonatigen Betriebszeit des Resonator war es allerdings noch nie notwendig, den Kristall zu verschieben. Der Verschiebetisch ist fest mit dem Resonatorboden verschraubt. Alle Justageschrauben des Tischaufbaus sind über entsprechend platzierte Löcher im Resonatorgehäuse zugänglich. In früheren Arbeiten mit LBO wurden Leistungsabfälle in der zweiten Harmonischen nach ca. 100 Betriebsstunden beobachtet (Werner, 2000). Das Problem konnte damals gelöst werden, indem im Resonator eine Sauerstoffatmosphäre erzeugt wurde. Es wird vermutet, dass bei den hohen Leistungen im Resonator lokal Sauerstoff aus dem Kristall herausdiffundiert und dadurch die optischen Eigenschaften derart verändert werden, dass die Ausgangsleistung einbricht. Die Sauerstoffatmosphäre soll dieser Diffusion entgegenwirken. Aus diesem Grund wurde auch am neuen Resonator die Möglichkeit geschaffen eine Sauerstoffzuleitung anzuschließen. Der Sauerstoff wird mittels einer Düse direkt auf den Kristall geleitet. Im täglichen Betrieb wird der Kristall stets unter einer Sauerstoffatmosphäre gehalten. Abfälle in der Konversionseffizienz wurden mit dem neuen System nie beobachtet. Auf eine systematische Untersuchung des Effekts wurde verzichtet, da nicht bekannt ist, inwieweit sich die LBO-Kristalle nach einem Leistungsabfall wieder regenerieren können.

Das senkrecht zur Grundwelle polarisierte blaue Licht wird an der Kristallendfläche zu 19,6 % reflektiert. Um diesen Strahl ebenfalls experimentell nutzen zu können wurden die Kristallseitenflächen ebenfalls poliert, so dass der Strahl aus dem Kristall austreten kann. Dieser Seitenstrahl propagiert nun nicht mehr in einer der Hauptebenen des biaxialen Kristalls sondern unter den Winkeln $\Theta = 26,3^\circ$ und $\phi = 26,9^\circ$. Beim Auftreffen auf die Seitenfläche des Kristalls wird der Strahl durch Doppelbrechung in einen linear-polarisierten intensiven Strahl und einen zirkular-polarisierten schwächeren Strahl aufgespalten. Durch ein entsprechend positioniertes Loch in der Wand des Resonators können diese beiden Strahlen austreten und in zukünftigen Experimenten z. B. für die Spektroskopie verwendet werden.

Der blaue Hauptstrahl ist aufgrund des Walkoffs im Kristall stark elliptisch. Bei einer Kristalllänge von 15 mm führt der Walkoff-Winkel von 14,8 mrad zu einem effektiven Strahlwaist von $225 \mu\text{m}$. In der Richtung senkrecht dazu wird der Strahlradius durch die Fokussierung des Pumplichts bestimmt und beträgt $28,5 \mu\text{m}$. Deshalb verlässt der Hauptstrahl den Kristall mit einem elliptischen Strahlprofil. Durch zwei Zylinderlinsen außerhalb des Resonators wird versucht den Hauptstrahl wieder so rund wie möglich zu formen.

Der Resonator ist nach oben mit einem Plexiglasdeckel abgeschlossen. So wird die Sauerstoffatmosphäre möglichst gut gehalten. Außerdem werden Luftströmungen minimiert und die optischen Elemente vor Staub geschützt.

Um möglichst gute Modenanpassung zu erreichen, ist es notwendig den einzukoppelnden Strahl so zu formen und zu dirigieren, dass er möglichst perfekt mit der Resonatormode überlappt. Um die Richtung des Pumpstrahls möglichst genau dirigieren zu können, wurden die letzten beiden externen Spiegel über die das infrarote Licht in den

Resonator eingekoppelt wird möglichst nahe an den Resonator platziert.

Zur optimalen Einkopplung muss das Strahlprofil möglichst gut an die Form der Resonatormode angepasst sein. Der Einkoppelwaist des Resonators ist gemäß Abschnitt 3.2.1 in sagittaler Richtung $221 \mu\text{m}$ und in tangentialer Richtung $181 \mu\text{m}$ groß. Auf eine elliptische Formung des einzukoppelnden Strahls wurde verzichtet. Stattdessen wurde versucht, einen runden Strahl mit einem Fokusradius von $201 \mu\text{m}$ zu erzeugen. Dies limitiert den maximal erreichbaren Überlapp im Fokus auf 93 %. Zur Erzeugung der gewünschten Fokusgröße wurde der Strahl des Titan-Saphir-Lasers mittels mehrerer Linsen entsprechend geformt. Die Strahlpropagation wurde mittels ABCD-Matrizen für gaußsche Strahlen modelliert. Zuerst wurde der leicht divergente Strahl des Titan-Saphir-Lasers mit einer 20 cm Linse fokussiert und anschließend Position und Größe des Waists zu $102 \mu\text{m}$ ermittelt. Die Messung der Strahlradien erfolgt dabei, indem eine Rasierklinge schrittweise mittels einer Mikrometerschraube durch den Laserstrahl hindurch geschoben wurde. Die die Rasierklinge noch passierende Leistung wurde mit einem Leistungsmessgerät aufgezeichnet. Vom Ort des Fokus sollte in einer Entfernung von 79 cm der Ort des Einkoppelwaists sein. Durch zwei weitere Linsen gelingt es dort einen Fokus der gewünschten Größe zu erhalten. Unter Vorgabe der Brennweiten der beiden zu verwendenden Linsen (30 cm und 40 cm), kann numerisch die Position der beiden Linsen ermittelt werden, um die gewünschte Fokusgröße am gewünschten Ort zu erhalten. So musste die 30 cm Linse 24,6 cm nach dem ersten Fokus platziert werden; die 40 cm Linse folgte weiter 5,9 cm dahinter.

Zu beachten ist dabei stets, dass eine Grundjustage des Titan-Saphir-Lasers auch dessen Modenprofil verändern kann und somit die Einkoppeloptik gegebenenfalls angepasst werden muss.

3.4 Hänsch-Couillaud Stabilisierung

Die Konstanz der Ausgangsleistung des Resonators kann nur dann gewährleistet werden, wenn die Resonatorlänge aktiv stabilisiert wird. Ein Spiegel ist auf einem PZT montiert, der es ermöglicht die Resonatorlänge elektronisch zu regeln, um die Resonanzbedingung (Gleichung 3.27) zu erfüllen. Um das Regelsignal zu erhalten gibt es verschiedene Möglichkeiten: Bisher wurde das Pound-Drever-Hall Verfahren (Drever *et al.*, 1983) verwendet. Der neue Resonator erlaubte es, die Stabilisierung auf das Verfahren von Hänsch und Couillaud (1980) umzustellen, das ohne aufwändige Elektronik und Modulationstechniken auskommt. Der brewster-geschnittene Kristall stellt das für das Hänsch-Couillaud-Verfahren benötigte polarisierende Element dar. Die Transmissionsachse des polarisierenden Elements bildet dabei einen Winkel Θ mit der Polarisationsachse des einfallenden, linear polarisierten Laserlichts (Abbildung 3.14). Das E -Feld des eingestrahlt Lichts kann nun zerlegt werden in Anteile parallel und senkrecht zur Transmissionsachse des Polarisators:

$$E_{\parallel}^{(i)} = E^{(i)} \cos \Theta \quad \text{und} \quad E_{\perp}^{(i)} = E^{(i)} \sin \Theta \quad (3.38)$$

Die parallele Komponente wird im Resonator deutlich stärker überhöht, da sie wesentlich niedrigere Verluste erfährt. Die senkrechte Komponente wird fast vollständig am Einkoppler reflektiert und dient als Referenzphase. Für das reflektierte Feld erhält man

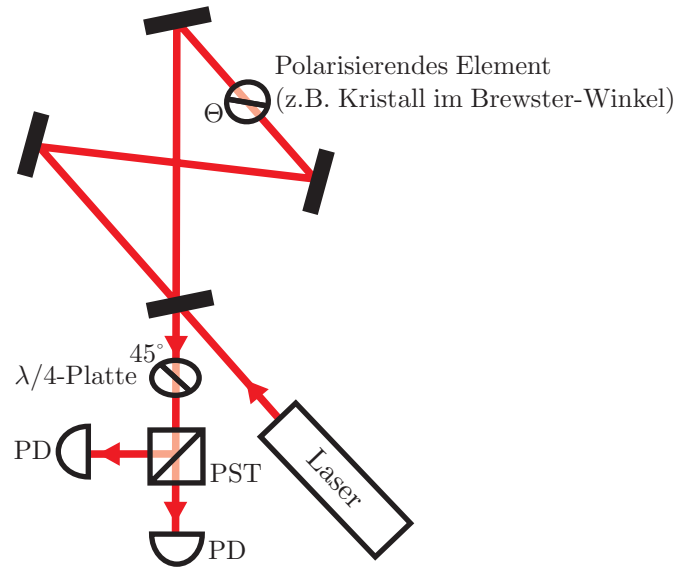


Abbildung 3.14: Schematischer Aufbau des Hänsch-Couillaud-Schemas. Die Transmissionsachse des polarisierenden Elements bildet den Winkel Θ mit der Richtung des linear-polarisiert einfallenden Lichts.

in erster Näherung:

$$E_{\perp}^{(r)} = E_{\perp}^{(i)} \sqrt{R_1} \quad (3.39)$$

Für die parallele Komponente ergibt sich (Gleichung 3.33):

$$E_{\parallel}^{(r)} = E_{\parallel}^{(i)} \frac{R_1 - \beta_{\text{um}} e^{i\delta}}{\sqrt{R_1} (1 - \beta_{\text{um}} e^{i\delta})} \quad (3.40)$$

Auf Resonanz erfährt der Anteil der parallelen Komponente, die aus dem Resonator kommt keine Phasenverschiebung ($\delta = 2\pi m$) relativ zum Anteil der direkt reflektiert wird. Somit ist E_{\parallel} reell und das reflektierte Licht also linear polarisiert. Die Polarisationsrichtung hat sich allerdings leicht gedreht, da $E_{\parallel}^{(r)} < E_{\parallel}^{(i)}$. Außerhalb der Resonanz erfährt das Licht aus dem Resonator eine Phasenverschiebung relativ zum direkt reflektierten Anteil, und das überlagerte Licht ist elliptisch polarisiert. Die Händigkeit der elliptischen Polarisation hängt vom Vorzeichen der Abweichung von der Resonanz ab und eignet sich somit zur Generierung eines Regelsignals. Die Händigkeit wird wie folgt detektiert: Das elliptisch polarisierte Licht wird mit einem Polarisationsanalysator, bestehend aus einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte, einem polarisierenden Strahlteiler (PBS) und zwei Photodioden detektiert. Die schnelle Achse der Verzögerungsplatte ist um 45° gegen die Achse des senkrechten Ausgangs des Polarisationsstrahlteilers gedreht, so dass linear polarisiertes Licht zu gleichen Teilen in die zwei Kanäle des Strahlteilers aufgeteilt wird.

Elliptisch polarisiertes Licht kann in zwei entgegengesetzt zirkular-polarisierte Komponenten mit unterschiedlichen Amplituden zerlegt werden. Das $\lambda/4$ -Plättchen erzeugt aus jeder der zirkularen Komponenten senkrecht zueinander linear polarisierte Wellen, welche am polarisierenden Strahlteiler getrennt werden, um so ihre Intensitäten separat mit Photodioden detektieren zu können (Abbildung 3.14). Ist der Resonator resonant

zum Laserlicht, so verschwindet das Differenzsignal der Photodioden. Bei Verstimmung der Frequenzen entsteht ein von Null abweichendes Differenzsignal. Zur analytischen Berechnung des Fehlersignals wird angenommen, dass die schnelle Achse des $\lambda/4$ -Plättchens parallel zur Polarisationsachse des polarisierenden Elements im Resonator ist. Das Polarisationsignal auf den Photodioden kann mit Jones-Matrizen, die die Ausbreitung von polarisiertem Licht beschreiben, bestimmt werden. Für die elektrischen Feldamplituden gilt dann:

$$\mathbf{E}_{a,b} = \underbrace{\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \pm 1 \\ \pm 1 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Strahlteiler}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{pmatrix}}_{\lambda/4\text{-Platte}} \cdot \begin{pmatrix} E_{\parallel}^{(r)} \\ E_{\perp}^{(r)} \end{pmatrix} \quad (3.41)$$

Für die Intensität auf den Photodioden folgt:

$$I_{a,b} = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 |\mathbf{E}_{a,b}|^2 = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 \left| \frac{1}{\sqrt{2}} \left(E_{\perp}^{(r)} \pm i E_{\parallel}^{(r)} \right) \right|^2 \quad (3.42)$$

Ist $I^{(i)} = \frac{1}{2} c \varepsilon_0 (E^{(i)})^2$ die Intensität des einfallenden Lichts, so erhält man das Differenzsignal:

$$\Delta I = I_a - I_b = 2I^{(i)} \cos \Theta \sin \Theta \frac{(1 - R_1) \beta_{\text{um}} \sin \delta}{(1 - \beta_{\text{um}})^2 + 4\beta_{\text{um}} \sin^2 \delta} \quad (3.43)$$

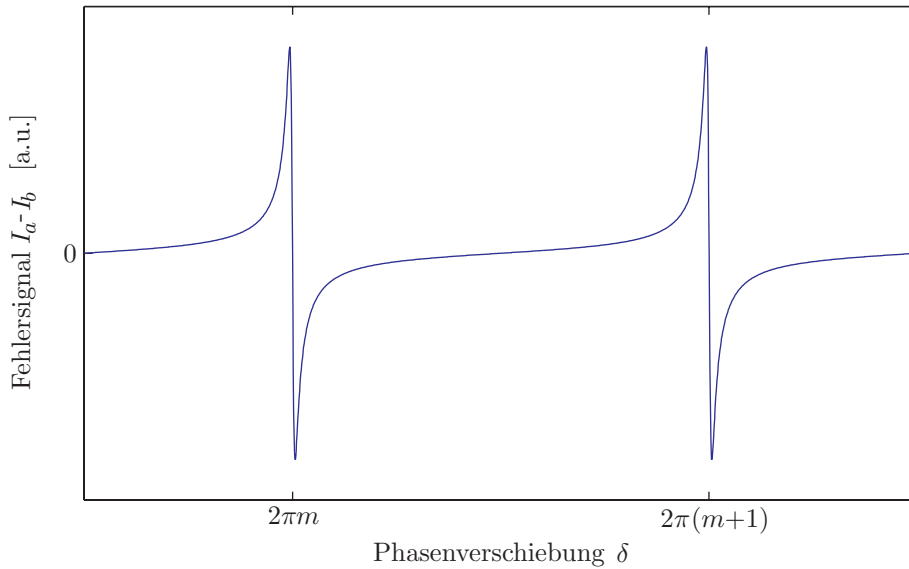


Abbildung 3.15: Analytisches Fehlersignal des Hänsch-Couillaud-Schemas.

Experimentell wird das Signal der beiden Photodioden elektronisch subtrahiert. Das so erzeugte Fehlersignal wird über einen PI-Regler auf den PZT gegeben. Somit wird die Resonatorlänge aktiv auf die Resonanz stabilisiert. Im tatsächlich realisierten Aufbau wurde zusätzlich eine $\lambda/2$ -Platte vor der $\lambda/4$ -Platte eingesetzt. Dadurch kann die Polarisation so gedreht werden, dass die zuvor berechnete Situation eintritt. Vor allem

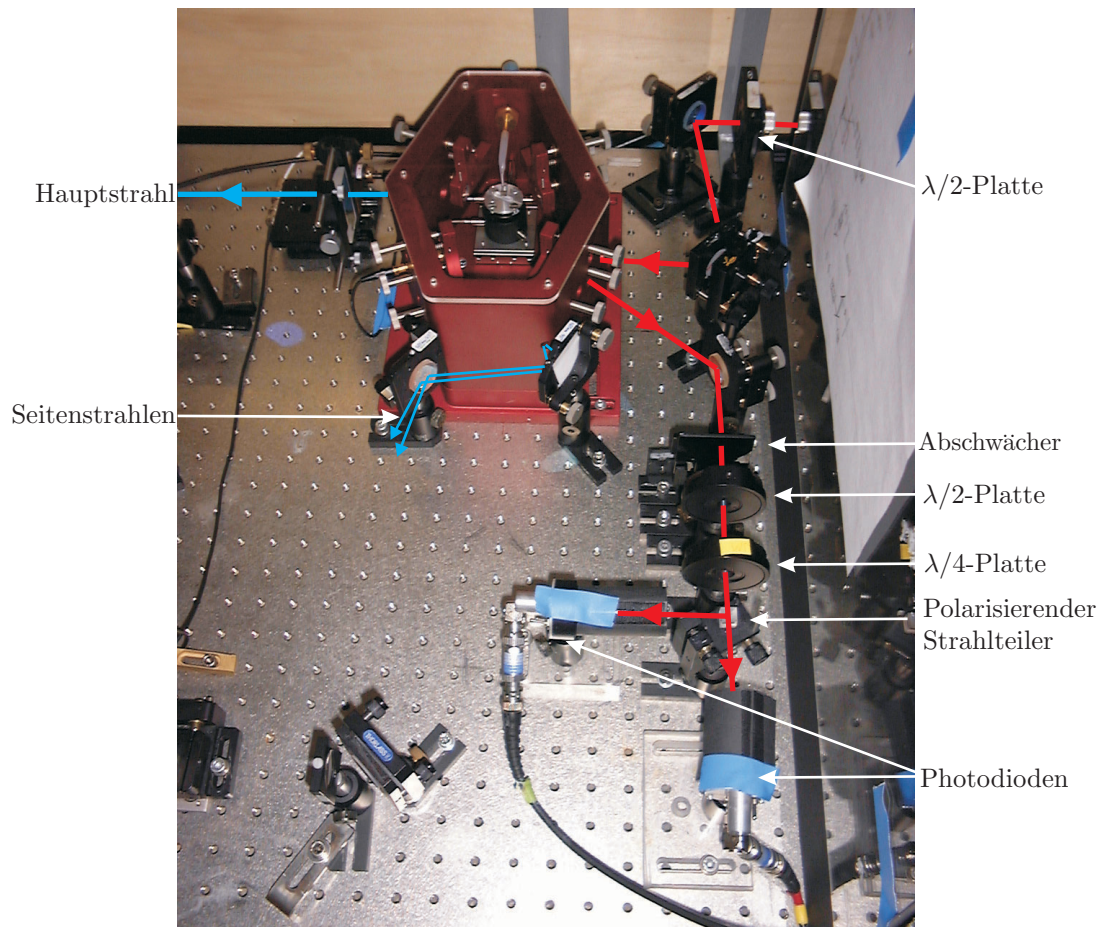


Abbildung 3.16: Photo des Frequenzverdopplungssystems. Rechts unten befindet sich der Aufbau der Hänsch-Couillaud Stabilisierung.

wird in den Fällen von linear polarisiertem Rückreflex (genau auf Resonanz oder weit davon entfernt) die Intensität gleichmäßig auf beide Photodioden aufgeteilt.

Beim Aufbau des Systems traten anfangs starke Instabilitäten in der blauen Ausgangsleistung auf. Intensitätseinbrüche um bis zu 40 % mit einer Frequenz von 2 kHz wurden beobachtet. Als Grund konnte der Spannungsverstärker identifiziert werden, der die im Bereich von 0–10 V liegende Ausgangsspannung des PI-Reglers um den Faktor zehn verstärken sollte. Der vom PZT-Hersteller empfohlene Verstärker¹⁶ konnte den Anforderungen nicht gerecht werden, da er hohe Frequenzen über 1 kHz nicht mehr entsprechend verstärken konnte. Ein selbstgebaute Verstärker konnte das Problem lösen. Mit dem letztendlich realisierten Aufbau können jetzt Ausgangsleistungen mit Schwankungen von weniger als 10 % über mehrere Stunden stabil bereitgestellt werden.

¹⁶PI Physik Instrumente, Modell E610.00.

3.5 Experimentelle Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Ergebnisse vorgestellt und mit der Theorie verglichen. Die Charakterisierung des Kristalls erfolgt durch Messung des Konversionskoeffizienten κ_{NL} im Einfachdurchgang des Pumplichts durch den Kristall. Die Impedanzanpassung wurde gemessen indem typische Resonatorparameter für drei verschiedene Einkoppelspiegel bestimmt wurden. Aus diesen Messungen kann auch die Modenanpassung sowie die Finesse des Resonators bestimmt werden.

3.5.1 Konversionseffizienz im Einfachdurchgang

Zur Charakterisierung des Kristalls wird die theoretisch berechnete Konversionseffizienz mit dem experimentellen Wert verglichen. Zur experimentellen Ermittlung der Effizienz wurde der Einkoppelspiegel des Resonators entfernt, so dass das Pumplicht den Kristall nur im Einfachdurchgang durchläuft. Dabei bleiben Größe und Ort des Strahlwaists im Resonator fast unverändert. Aufgrund der geringen Konversion wird das Pumplicht beim Durchgang durch den Kristall kaum abgeschwächt. Ein Großteil wird am hochreflektierenden Auskoppler reflektiert, so dass es ausreicht, den transmittierten Anteil mit einem geeichten Kurzpassfilter¹⁷ vor dem Leistungsmessgerät für das blaue Licht auszufiltern. Messungen bei 3,2 W Pumpleistung ergaben 234 μW blaues Licht im Hauptstrahl. Korrigiert um die Verluste am Auskoppler (1,5 %) und die Fresnelverluste an der Kristallendfläche (19,6 %) ergibt sich, dass 295 μW blaues Licht im Kristall erzeugt wurde. Daraus folgt ein Konversionskoeffizient von $\kappa_{\text{NL}} = 2,9 \cdot 10^{-5} \text{ W}^{-1}$. Dies sind nur 41 % des in Abschnitt 3.1.3 berechneten Theoriewerts von $\kappa_{\text{NL}} = 6,99 \cdot 10^{-5} \text{ W}^{-1}$.

Mögliche Ursache für die Abweichung ist, dass der Pumpstrahl im Kristall nicht den optimalen Fokus von 28,5 μm erzeugt (Modenanpassung, vgl. nächster Abschnitt). Da die Effizienz aber nur schwach vom Kristallwaist abhängt (Abbildung 3.4), könnte es sich auch um einen nicht perfekten Kristall handeln. Fehlstellen, die die Konversionseigenschaften negativ beeinflussen, können durch die Herstellung in der Hochtemperatur-Schmelze durchaus entstehen.

3.5.2 Charakterisierung des Frequenzverdopplungsresonators

Zur theoretischen Vorhersage der Resonatoreigenschaften mittels des in Abschnitt 3.2.2 entwickelten Modells müssen alle Verlustparameter genau bekannt sein. Die ermittelten Theoriewerte hängen sehr sensitiv von den Verlustparametern ab; sie sollten deshalb möglichst genau bekannt sein. Die zu berücksichtigenden Parameter sind im Einzelnen:¹⁸

- Einkoppler:¹⁹ drei verschiedene zur Auswahl mit $R_1 = 98,2\%$, $98,7\%$, $99,2\%$
- restliche Spiegel: $R_2 = R_3 = R_4 = 99,95\% @ 851,1 \text{ nm}$, $T_4 = 98,5\% @ 425,6 \text{ nm}$
- Konversionsverluste: $\kappa_{\text{NL}} = 2,9 \cdot 10^{-5} \text{ W}^{-1}$ (Messung)

¹⁷Fa. L.O.T.-Oriol; Transmission 92 % @ 425,6 nm.

¹⁸Im Koeffizienten $\tilde{\alpha}$ der sonstige Verluste beschreibt, sind speziell die Verluste an den Brewsterflächen zu berücksichtigen. Folglich gilt: $\tilde{\alpha} = T_{\text{Brewster}}^2$.

¹⁹Fa. Laser Optik; alle angegebenen Reflektivitäten wurden vom Hersteller gemessen.

Kapitel 3 Frequenzverdopplung mit Lithiumtriborat

- Absorption im Kristall:²⁰ $\alpha = 8 \cdot 10^{-4} \text{cm}^{-1}$ (Fit)
- Transmission der Kristallendflächen: $T_{\text{Brewster}} = 99,8\%$ (Messung)
- Modenanpassung: 86 % (Fit)

Die Verluste für einen Umlauf im Resonator für die Grundwelle sind gegeben durch:

$$\begin{aligned} R_1 \cdot R_{234} \cdot T_{\text{Brewster}}^2 \cdot e^{-\alpha L} \cdot (1 - \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}) &= R_1 \cdot 0,9985 \cdot 0,9960 \cdot 0,9988 \cdot 0,9939 \\ &= R_1 \cdot 0,987 \end{aligned} \quad (3.44)$$

Hierbei wurde für die umlaufende Leistung P_{um} der Maximalwert von 210 W verwendet.

Ausgangsleistung

Die im Resonator umlaufende Leistung in Abhängigkeit von den Verlusten und der eingekoppelten Leistung ergibt sich aus Gleichung 3.32. Für die Ausgangsleistung im Hauptstrahl der zweiten Harmonischen folgt unter Berücksichtigung von Fresnelverlusten an der Kristallendfläche und Verlusten am Auskoppelspiegel:

$$P_{\text{aus}} = (1 - 0,196) \cdot 0,985 \cdot \kappa_{\text{NL}} P_{\text{um}}^2 \quad (3.45)$$

Da die umlaufende Leistung nicht-linear von der eingekoppelten Leistung abhängt (Abbildung 3.11), ist keine exakt quadratische Abhängigkeit der Ausgangsleistung im Hauptstrahl von der Pumpleistung zu erwarten. Abbildung 3.17 zeigt den Vergleich der experimentellen Ergebnissen mit der Theorie für die drei verschiedenen Einkoppelspiegel. Die maximal erreichten Ausgangsleistungen unterscheiden sich, da die Impedanzanpassungsbedingung verschieden gut erfüllt ist. Abhängig von der Reflektivität des Einkoppelspiegels wird die Pumpwelle unterschiedlich gut in den Resonator eingekoppelt, wodurch sich folglich auch die Ausgangsleistungen in der Oberwelle unterscheiden. Die maximale Ausgangsleistung von 1,015 W wurde mit dem Einkoppelspiegel mit $R_1 = 98,7\%$ erreicht. Dies entspricht einer umlaufenden Leistung im Resonator von 210 W. Die Abbildung 3.18 zeigt die theoretisch zu erwartende Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Reflektivität des Einkoppelspiegels. Die optimale Reflektivität des Einkopplers (Gleichung 3.37) beträgt 98,72%. Die damit theoretisch erreichbare Leistung beträgt 1,037 W. Mit dem vorhandenen Einkoppelspiegel mit der Reflektivität von 98,7% ist somit die Impedanzanpassung für 3,2 W Pumpleistung ideal realisiert.

Einkoppeleffizienz

Aufgrund nicht perfekter Moden- und Impedanzanpassung gelingt es experimentell nicht, das Pumplicht vollständig in den Resonator einzukoppeln und resonant zu überhöhen. Dabei ist die Modenanpassung die Hauptverlustursache. Nur der Teil des Pumplichts der mit der Resonatormode überlappt wird resonant überhöht; der Rest wird am Einkoppler

²⁰Die Absorption ist zu gering um sie mit unseren Mitteln zu messen. Bekannt sind nur die Werte für 1064 nm ($\alpha = 3,5 \cdot 10^{-4} \text{cm}^{-1}$) und der Bereich 351–364 nm ($\alpha = 3,1 \cdot 10^{-3} \text{cm}^{-1}$) (Velsko *et al.*, 1991). Da LBO im gesamten Bereich dazwischen transparent ist, kann in guter Näherung linear interpoliert werden. Dies liefert $\alpha = 1,2 \cdot 10^{-3} \text{cm}^{-1}$. Da dies aber nur eine grobe Abschätzung sein kann und die Absorption der am schlechtesten bekannte Parameter ist, wurde er als zusätzlicher Fitparameter verwendet. Die beste Übereinstimmung mit den Theoriekurven ergibt sich für $\alpha = 8 \cdot 10^{-4} \text{cm}^{-1}$.

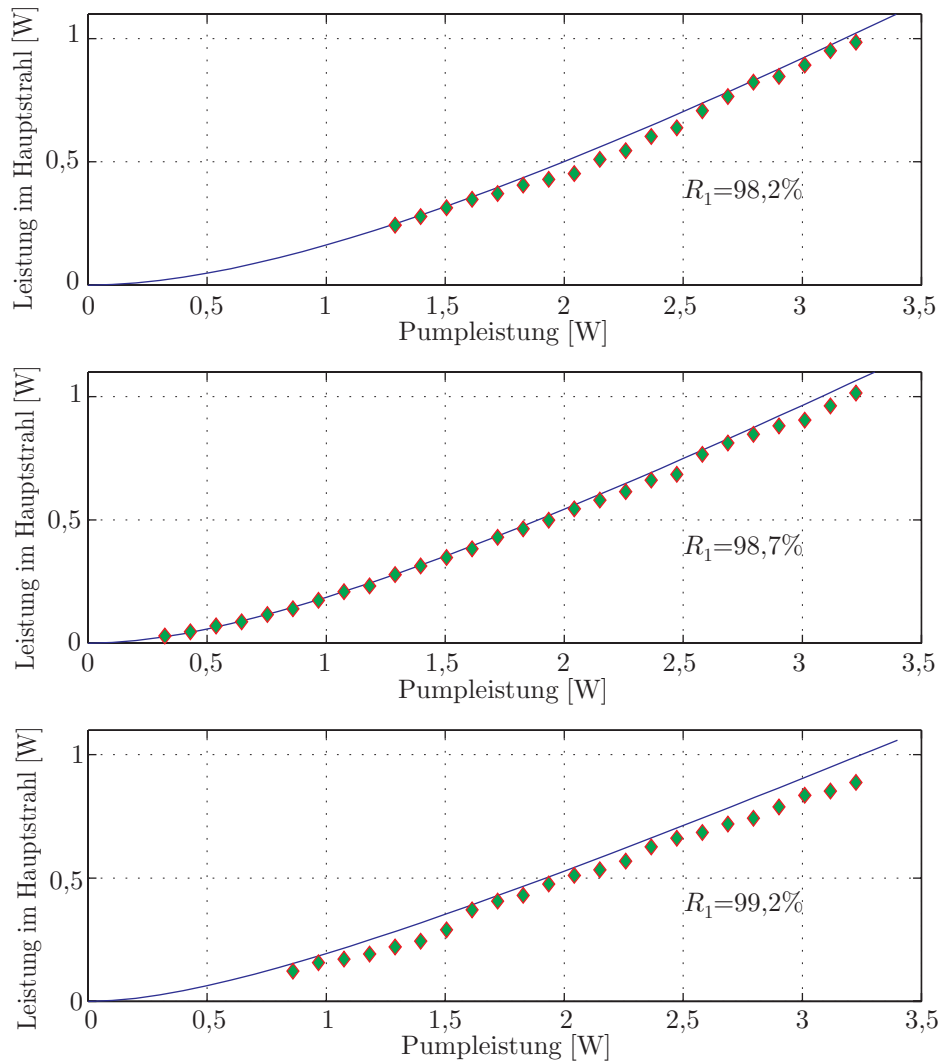


Abbildung 3.17: Ausgangsleistungen im Hauptstrahl für verschiedene Einkoppelspiegel. Die markierten experimentellen Werte liegen aufgrund der nie perfekten Resonatorjustage alle knapp unter den Theoriekurven.

reflektiert. Für die Auswertung muss deshalb in allen Formeln die eingekoppelte Leistung mit einem Korrekturfaktor für die Modenanpassung versehen werden.

Zur experimentellen Ermittlung der Einkoppeleffizienz wurde die Länge des Resonator mit dem PZT variiert und dabei die Leistung im Rückreflex vom Einkoppelspiegel mit einer Photodiode aufgenommen. Ist der Resonator nicht resonant, so wird das Pumplicht praktisch vollständig am Einkoppelspiegel reflektiert. Auf Resonanz wird ein Großteil des Lichts in den Resonator eingekoppelt. Am Einkoppler wird nur noch ein Teil reflektiert, der sich aus mangelnder Impedanz- und Modenanpassung zusammensetzt. Aus dem Verhältnis der reflektierten Intensitäten ergibt sich die Einkoppeleffizienz. In Abbildung 3.19 werden die experimentellen Daten mit den Theoriekurven verglichen.

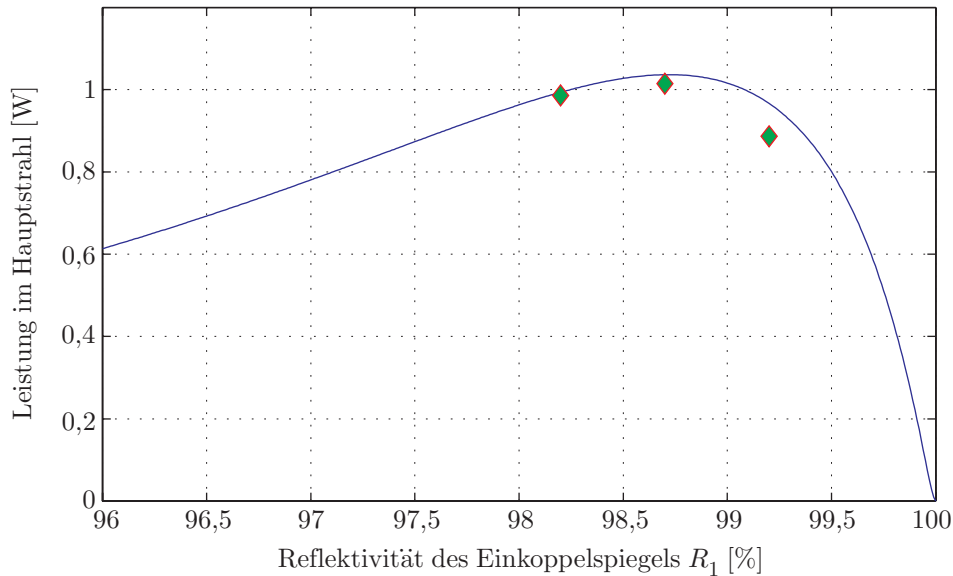


Abbildung 3.18: Ausgangsleistung bei 3,2 W Pumpleistung in Abhängigkeit des Einkoppelspiegels. Markiert sind die Messwerte für die drei verschiedenen Einkoppelspiegel.

Theoretisch ergibt sich die Einkoppeleffizienz aus Gleichung 3.34, wobei für Vergleiche mit den experimentellen Werten die Pumpleistung noch um die Modenanpassung korrigiert werden muss. Aufgrund der Frequenzkonversion sind die Resonatorverluste leistungsabhängig. Deshalb ist auch die Impedanzanpassung abhängig von der einzukoppelnden Leistung. Für einen bestimmten Einkoppelspiegel sind die Resonatorverluste deshalb nur für eine spezielle Pumpleistung gerade so groß wie die Transmission des Einkoppelspiegels (perfekte Impedanzanpassung). Aus diesem Grund besitzt die Einkoppeleffizienz in Abhängigkeit der Pumpleistung ein Maximum. Je größer die Transmission des Einkoppelspiegels, desto höher ist die Pumpleistung bei der die optimale Impedanzanpassung realisiert ist, da die Konversionsverluste entsprechend größer sein müssen, um die Gesamtverluste des Resonator auf den Wert des Transmissionskoeffizienten des Einkoppelspiegels zu bringen.

Selbst bei perfekter Impedanzanpassung gelingt es aber nicht, das Licht vollständig in den Resonator einzukoppeln. Der in diesem Fall reflektierte Anteil wird allein durch mangelnde Modenanpassung verursacht.

In Abbildung 3.19 kommen die Theoriekurven näherungsweise auf den experimentellen Kurven zu liegen, wenn man einen Modenüberlapp von 86 % annimmt. Dieser so bestimmte Wert beeinflusst auch alle anderen Theoriekurven dieses Kapitels, da die Pumpleistung in allen Formeln mit diesem Modenanpassungsfaktor zu multiplizieren ist. Das Anwachsen der Einkoppeleffizienz mit steigender Pumpleistung beim Einkoppler mit der Reflektivität von 98,2 % deutet auf eine zu geringe Reflektivität hin. Optimale Impedanzanpassung ist mit diesem Spiegel erst für deutlich höhere Leistungen erreicht. Ebenso zeigt sich im Abfall der Einkoppeleffizienz des Einkoppelspiegels mit $R = 99,2$ %, dass seine Reflektivität für Pumpleistung im Bereich von 3 W zu hoch ist. Beim Einkoppler mit $R_1 = 98,7$ % ist die Einkoppeleffizienz für Pumpleistungen von 2–3 W fast

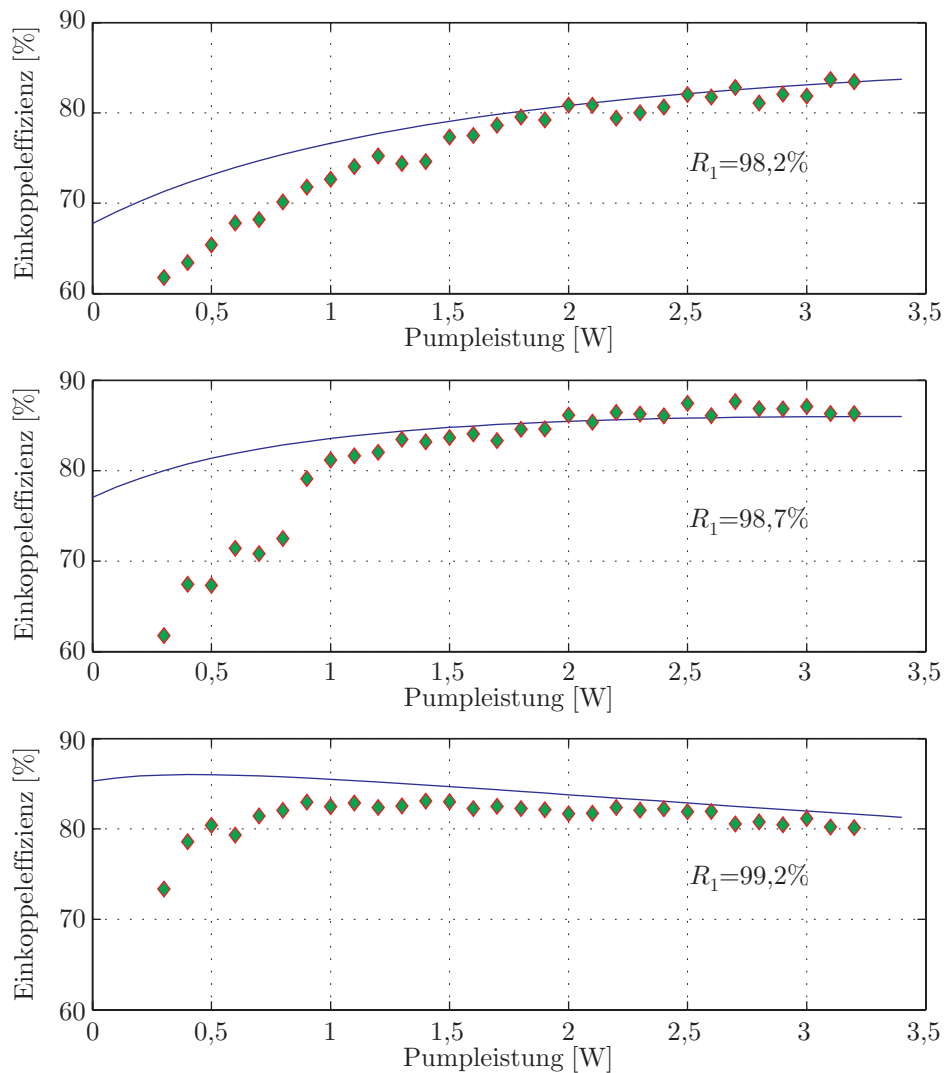


Abbildung 3.19: Einkoppeleffizienz für verschiedene Einkoppelspiegel in Abhängigkeit von der Pumpleistung.

konstant. Offensichtlich befindet man sich auf dem relativ breiten Maximum optimaler Impedanzanpassung.

Die Theoriekurven geben den Verlauf der Einkoppeleffizienzen für hohe Pumpleistungen gut wieder. Auffällig ist jedoch, dass für niedrigere Pumpleistungen die Einkoppeleffizienzen für alle drei Einkoppelspiegel deutlich von den Theoriewerten abweichen. Der Grund hierfür ist wahrscheinlich, dass bei geringen Pumpleistungen die Resonatorverluste so gering sind, dass die Linienbreite des Resonators unter jener des Titan-Saphir-Lasers von 1-2 MHz liegt. Deshalb treten zusätzliche Verluste bei der Einkopplung auf. Dieser Effekt ist in der hier verwendeten Theorie, die von monochromatischem Licht ausgeht, nicht berücksichtigt.

Konversionseffizienz

Die maximale Ausgangleistung im Hauptstrahl betrug 1,015 W bei 3,2 W Pumpleistung. Korrigiert man wiederum die blaue Leistung um Auskoppel- und Fresnelverluste, so wurden maximal 1,282 W blaues Licht im Kristall erzeugt. Wird ebenfalls die Pumpleistung aufgrund der schlechten Modenanpassung um den Faktor 0,86 nach unten korrigiert, so erhält man eine maximale Konversionseffizienz von 47 %.

Finesse

Aus dem Modenspektrum des Resonators kann aus dem Verhältnis von Linienbreite zu Linienabstand die Finesse des Resonators bestimmt werden. In Abbildung 3.20 werden die experimentell bestimmten Werte mit der Theorie (Gleichung 3.30) verglichen.

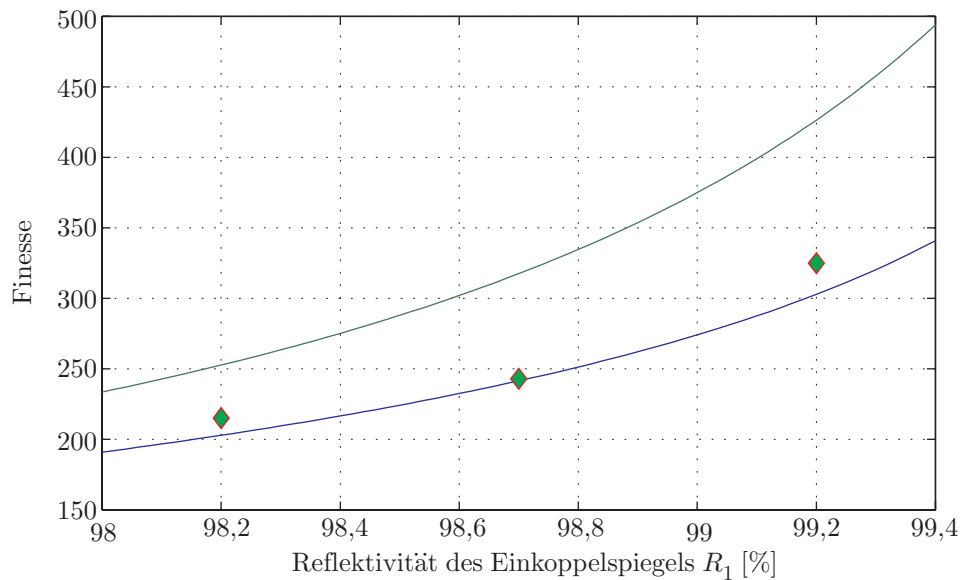


Abbildung 3.20: Finesse in Abhängigkeit der Reflektivität des Einkoppelspiegels. Die obere Kurve stellt die theoretisch zu erwartende Finesse ohne Frequenzkonversionsverluste dar.

Der Modenabstand des Resonators ergibt sich zu²¹ $\Delta\nu_{\text{FSR}} = c/l = 904$ MHz. Mit den bei 3,2 W Pumpleistung gemessenen Werten für die Finesse von 215, 243 und 325 ergeben sich mittels Gleichung 3.30 Linienbreiten von 4,2 MHz, 3,7 MHz und 2,8 MHz. Diese liegen alle über der Linienbreite des Titan-Saphir-Lasers. Bei hohen Pumpleistungen sind folglich die Resonaturverluste hinreichend groß, so dass die Breite der Resonatorresonanz groß genug ist, um das ganze Frequenzspektrum des Titan-Saphir-Lasers einkoppeln zu können.

²¹Die optische Weglänge eines Umlaufs im Resonator beträgt: $l = l_{\text{Rest}} + 2d + n_{\omega} \cdot L = 331,8$ mm.

3.6 Ausblick

Das aufgebaute System entspricht voll und ganz den gestellten Erwartungen. Verbesserungen der Effizienz sind selbstverständlich weiterhin möglich. Die Leistung des aufgebauten Resonators kann noch gesteigert werden, indem die Modenanpassung bei der Einkopplung weiter verbessert wird. Die Verwendung eines besseren Kristalls, dessen Konversionseffizienz dem Theoriewert näher kommt, lässt ebenfalls leichte Effizienzsteigerungen erwarten. Längere Kristalle ermöglichen ebenfalls höhere Ausgangsleistungen. Für deutlich längere Kristalle muss allerdings ein neuer Resonator konstruiert werden.

Eine weitere Möglichkeit der Optimierung ist, die Kristalle deutlich aufzuheizen. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes würde dies einen kleineren Phasenanpassungswinkel ϕ ermöglichen. Neben einem größeren effektiven nichtlinearen Koeffizienten $d_{\text{eff}} = d_{32} \cos \phi$, wäre auch der Walkoff-Winkel ϱ geringer. Der Boyd-Kleinman-Faktor erlaubt dann stärkere Fokussierungen und somit größere Effizienzen. Ob sich sogar der Fall der nichtkritischen Phasenanpassung $\phi = 0^\circ$ für die Wellenlänge von 851,1 nm realisieren lässt, ist unklar. Die dazu notwendige Kristalltemperatur dürfte bei über 400 °C liegen.²²

Aus Abbildung 3.3 ergibt sich, dass sich durch die stärkere Fokussierung für einen 15 mm langen Kristall ein Faktor fünf gewinnen lässt. Da sich außerdem d_{eff} um den Faktor 1,1 vergrößert, ergäbe sich ein um den Faktor 6,25 größerer Konversionkoeffizient. Unter Annahme eines um diesen Faktor größeren experimentellen Werts ergibt sich bei sonst gleichen Verlustparametern, optimaler Impedanzanpassung und 3,2 W Pumpleistung eine mögliche Ausgangsleistung von 1,63 W. Wie ebenfalls aus Abbildung 3.3 folgt, kann durch längere Kristalle bei nichtkritischer Phasenanpassung die Effizienz deutlicher gesteigert werden, als im Fall der kritischen Phasenanpassung. Auf jeden Fall werden aber anders geschnittene Kristalle benötigt, da sich abhängig vom Winkel ϕ auch die Orientierung der Brewsterflächen relativ zu den Kristallachsen ändert.

Sollte es nicht realisierbar sein, den Fall der nichtkritischen Phasenanpassung zu erreichen, so besteht die Möglichkeit die Nachteile der kritischen Phasenanpassung zu minimieren. Von Librecht *et al.* (1975) wurde die Konversionseffizienz für einen elliptischen Fokus im Kristall berechnet. Es ergibt sich eine Erhöhung der Konversionseffizienz für einen Strahl, der in der Richtung ohne Walkoff stärker fokussiert ist als in der Walkoff-Richtung. Das Problem in der Umsetzung besteht darin, eine entsprechende Resonatormode zu konstruieren. Die natürliche Elliptizität der Resonatormode der hier vorgestellten symmetrischen Bow-Tie-Konfiguration mit brewster-geschnittenem Kristall eignet sich jedenfalls nicht für die Umsetzung mit LBO. Der Walkoff findet in der Richtung senkrecht zur Strahlebene statt. In dieser Richtung hat die Resonatormode aber unglücklicherweise den kleineren Fokus.

Alle zuvor vorgestellten Optimierungsmöglichkeiten lassen aber nur vergleichsweise geringe Leistungssteigerungen erwarten. Ein großer Schritt nach vorne könnte selbstverständlich die Entwicklung neuer nichtlinearer Materialien ermöglichen. Wünschenswerte Eigenschaften sind: großer nichtlinearer Koeffizient, Möglichkeit zur nichtkritischen Phasenanpassung oder kritische Phasenanpassung mit möglichst kleinem Walkoff-Winkel sowie eine möglichst geringe Absorption der Grundwelle.

²²Bei Raumtemperatur ist nichtkritische Phasenanpassung für eine Wellenlänge von 1,2 μm möglich. Die kürzeste Wellenlänge bei der bisher nichtkritische Phasenanpassung mit LBO realisiert wurde beträgt 1,025 μm . Die Phasenanpassungstemperatur beträgt in diesem Fall 190 °C (Ukachi *et al.*, 1990).

4 Theorie der Lichtmasken

Es wird eine der Situation in der Lichtmaske angemessene Theorie der Atom-Licht-Wechselwirkung dargestellt. Das Modell wird am Beispiel eines Zwei-Niveau-Atoms entwickelt und anschließend auf ein Atom mit magnetischer Unterstruktur verallgemeinert. Im dargestellten semiklassischen Modell bewegt sich das Atom auf klassischen Bahnen in einem durch die Atom-Licht-Wechselwirkung hervorgerufenen Potenzial. Die spontane Emission beeinflusst die Bewegung in Form von diskreten Zufallsereignissen durch Übergänge in Zustände mit anderem Potenzial. Die relevanten Übergangsraten werden hergeleitet.

Die quantenmechanische Beschreibung eines Zwei-Niveau-Atoms in einem kohärenten, monochromatischen Lichtfeld erfolgt im Rahmen des Jaynes-Cummings-Modells durch einen dreiteiligen Hamiltonoperator (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1985):

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{Atom}} + \hat{H}_{\text{Licht}} + \hat{H}_{\text{ww}} \quad (4.1)$$

Hierbei ist \hat{H}_{Atom} der Hamilton-Operator des Atoms bestehend aus dem Anteil der kinetischen Energie mit dem Impulsoperator $\hat{\mathbf{p}}$ und der Atommasse m sowie dem Anteil der inneren Energie, wobei ω_0 die Übergangsfrequenz zwischen Grundzustand $|g\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ ist.

$$\hat{H}_{\text{Atom}} = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + \frac{\hbar\omega_0}{2} (|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) \quad (4.2)$$

Der zweite Teil \hat{H}_{Licht} beschreibt ein quantisiertes Lichtfeld bestehend aus nur einer Mode l der Frequenz ω_l . Die Operatoren \hat{a}_l^\dagger und \hat{a}_l erzeugen bzw. vernichten ein Photon in dieser Mode.

$$\hat{H}_{\text{Licht}} = \hbar\omega_l \hat{a}_l^\dagger \hat{a}_l \quad (4.3)$$

Die spontane Emission ist in einer solchen Beschreibung nicht erfasst. Sie ergibt sich erst bei voller Quantisierung des Lichtfelds durch die Wechselwirkung des Atoms mit dem kontinuierlichen Modenspektrum des Vakuums.

Der dritte Term \hat{H}_{ww} beschreibt die Wechselwirkung zwischen Atom und Lichtfeld. Die geschieht i. A. in der Dipol-Näherung. Höhere Multipolordnungen (Quadrupol, Oktupol, ...) werden hierbei vernachlässigt. Es ist $\hat{\mathbf{d}}$ der Dipoloperator des Atoms und $\hat{\mathbf{E}}_l(\mathbf{r}, t)$ der Operator der Mode l des elektrischen Feldes.

$$\hat{H}_{\text{ww}} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}_l(\mathbf{r}, t) \quad (4.4)$$

Um das Zwei-Niveau-Modell auf reale Atome anwenden zu können, muss die Lichtfrequenz wesentlich näher bei ω_0 liegen als bei jeder anderen Übergangsfrequenz des Atoms.

Es existieren verschiedene Möglichkeiten, die Bewegung eines Atoms im Lichtfeld auf Basis dieses Modells numerisch zu berechnen (Master-Gleichungen, Wellenpaketsimulationen). Das Verhalten der Atome in den Lichtmasken der Atomlithographie kann aber angemessen in einer semiklassischen Theorie beschrieben werden. Dabei wird die Schwerpunktsbewegung des Atoms als klassische Größe behandelt (Abschnitt 4.3.1). Da die Rückwirkung des Atoms auf das Lichtfeld nicht interessiert und nichtklassische Zustände des Lichtfelds nicht relevant sind, kann dieses ebenfalls als klassische Größe behandelt werden. Das Atom bewegt sich auf einer klassischen Trajektorie $\mathbf{r}(t)$ durch ein durch die Atom-Licht-Wechselwirkung erzeugtes Potenzial. Dieses Potenzial wird im Folgenden auf der Basis des sog. dressed state Modells hergeleitet. Ebenso werden die Wahrscheinlichkeiten für Übergänge aufgrund spontaner Emission berechnet. Das auf diese Weise entwickelte Modell kann direkt in eine numerische Simulation umgesetzt werden (Kapitel 5). Die spontane Emission wird in der Simulation über einen Monte-Carlo-Ansatz berücksichtigt und beeinflusst in Form von diskreten Zufallsereignissen die durch Lösung der Newtonschen Bewegungsgleichung gewonnen Trajektorien der Atome.

4.1 Dressed States

Für die folgenden Betrachtungen wird von klassischen Punktteilchen ausgegangen. Deshalb braucht der Anteil der kinetischen Energie $\hat{\mathbf{p}}^2/2m$ im quantenmechanischen Teil der Rechnung nicht weiter berücksichtigt zu werden. Da zudem die Energie des klassischen Lichtfelds $\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \cos(\omega_i t)$ ebenfalls nicht weiter berücksichtigt werden muss, genügt es mit einem reduzierten Hamilton-Operator weiterzurechnen.¹

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{Atom}} + \hat{H}_{\text{ww}} = \frac{\hbar\omega_0}{2} (|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) \cos(\omega_i t) \quad (4.5)$$

Die Wechselwirkungsenergie wird zwischen Atom und Lichtfeld durch die Rabi-Frequenz $\omega_R(\mathbf{r})$ charakterisiert. Sie ist definiert durch

$$\omega_R(\mathbf{r}) = -\frac{\langle e | \hat{\mathbf{d}} | g \rangle \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})}{\hbar} \quad (4.6)$$

und hängt von der Intensität des Lichtfelds $I(\mathbf{r})$ wie folgt ab:

$$\omega_R(\mathbf{r}) = \Gamma \sqrt{\frac{I(\mathbf{r})}{2I_s}} \quad (4.7)$$

Hierbei ist Γ die natürliche Linienbreite des Übergangs und $I_s = \frac{\hbar\Gamma\omega_0^3}{12\pi c^2}$ die zugehörige Sättigungsintensität.

¹Die hier nur knapp dargestellte Theorie folgt im Wesentlichen den ausführlicheren Argumentationen von Brezger (1999).

Im Wechselwirkungsbild hat der Hamiltonoperator nach der Drehwellennäherung² in der $(|g\rangle, |e\rangle)$ -Basis die Form

$$\hat{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\omega_R(\mathbf{r}) \\ -\omega_R(\mathbf{r}) & -\Delta \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

wobei die Verstimmung $\Delta = \omega_i - \omega_0$ zwischen Laserfrequenz und atomarer Übergangsfrequenz eingeführt wurde. Aufgrund der Wechselwirkung mit dem Lichtfeld treten Außerdiagonalelemente auf. Die Eigenzustände des Systems sind deshalb nicht mehr jene des ungestörten Atoms. Die neuen Eigenzustände des Atoms im Lichtfeld und die zugehörigen Eigenenergien erhält man durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators in Gleichung 4.8 mittels der unitären Transformation:

$$\hat{H}' = \mathbb{U}^\dagger \hat{H} \mathbb{U} \quad \text{mit} \quad \mathbb{U}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} \cos \theta(\mathbf{r}) & -\sin \theta(\mathbf{r}) \\ \sin \theta(\mathbf{r}) & \cos \theta(\mathbf{r}) \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

Der sog. Stückelbergwinkel $\theta(\mathbf{r})$, der diese Drehmatrix beschreibt ergibt sich zu:

$$\theta(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \arctan \left(-\frac{\omega_R(\mathbf{r})}{\Delta} \right) \quad (4.10)$$

Für die Eigenenergien E_1, E_2 des Atoms im Lichtfeld erhält man:

$$E_1 = \frac{\hbar}{2} \operatorname{sgn}(\Delta) \sqrt{\Delta^2 + \omega_R(\mathbf{r})^2} \quad (4.11)$$

$$E_2 = -\frac{\hbar}{2} \operatorname{sgn}(\Delta) \sqrt{\Delta^2 + \omega_R(\mathbf{r})^2} \quad (4.12)$$

Die neuen Eigenzustände des Atoms $|1; \mathbf{r}\rangle$ und $|2; \mathbf{r}\rangle$ werden als „dressed states“ bezeichnet, während die Eigenzustände des ungestörten Atoms in diesem Zusammenhang als „bare states“ bezeichnet werden. Oft wird dabei die effektive Rabifrequenz $\Omega(\mathbf{r}) = \sqrt{\Delta^2 + \omega_R(\mathbf{r})^2}$ eingeführt. Die dressed states sind jeweils eine Superposition der Zustände des ungestörten Zwei-Niveau-Atoms:

$$|1; \mathbf{r}\rangle = \cos \theta(\mathbf{r}) |g\rangle - \sin \theta(\mathbf{r}) |e\rangle \quad (4.13)$$

$$|2; \mathbf{r}\rangle = \sin \theta(\mathbf{r}) |g\rangle + \cos \theta(\mathbf{r}) |e\rangle \quad (4.14)$$

In einem ortsabhängigen Lichtfeld hängt die Energie der dressed states über die Rabifrequenz von der lokalen Intensität ab. Die Verschiebung der Eigenenergien wird oft auch als AC-Stark-Verschiebung bezeichnet.

Bewegt sich ein Atom langsam durch ein inhomogenes Lichtfeld, so verbleibt das Atom in seinem Energieeigenzustand.³ Die räumliche Variation der Eigenenergien $E_k(\mathbf{r})$ führt zur sog. Dipolkraft auf ein Atom im Zustand k :

$$\mathbf{F}_k(\mathbf{r}) = -\nabla E_k(\mathbf{r}) \quad (4.15)$$

²Nach Transformation in ein rotierendes Bezugssystem werden auftretende Terme mit $e^{\pm 2i\omega_i t}$ vernachlässigt (engl.: rotating wave approximation).

³Diese adiabatische Näherung wird in Abschnitt 4.3.2 diskutiert.

Mit der hervorgerufenen Kraftwirkung kann nun durch Integration der Newtonschen Bewegungsgleichungen die Trajektorie des Atoms im Lichtfeld ermittelt werden.

Zuvor wurden im Rahmen des semiklassischen Modells nur die Energieeigenzustände des Atoms betrachtet. Für das Gesamtsystem bestehend aus Atom und Lichtfeld ergibt sich, wenn die Energiequantisierung des Lichtfelds wieder berücksichtigt wird, folgendes Bild (Abbildung 4.1). Das System wird beschrieben durch Zustände $|k, n\rangle$, wobei k für den Zustand des Atoms steht und n die Anzahl der Photonen in der betrachteten Mode des Lichtfelds angibt. Es bilden sich im Abstand der Energie $\hbar\omega_l$ eines Photons Manigfaltigkeiten \mathcal{E}_n bestehend aus jeweils zwei energetisch nahe beieinander liegenden Zuständen aus.

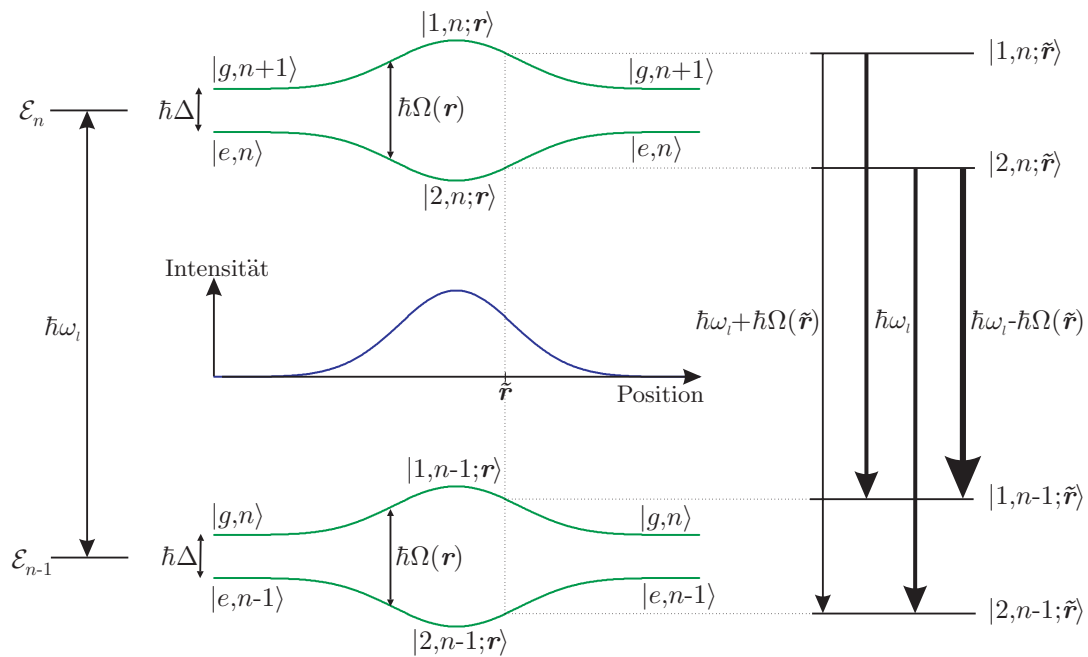


Abbildung 4.1: Abhängigkeit der Energien der Eigenzustände eines Zwei-Niveau-Atoms in einem blau-verstimmten quantisierten Lichtfeld mit gaußischem Profil. Auf der rechten Seite sind mögliche Übergänge zwischen den dressed states durch spontane Emission eingezeichnet. Die Dicke der Pfeile deutet die Größe der Übergangswahrscheinlichkeit an.

Ist das Atom außerhalb des Lichtfelds, so besteht jede Manigfaltigkeit aus den bare states (z. B. $|e, n\rangle$ und $|g, n+1\rangle$). Bei resonantem Lichtfeld $\omega_l = \omega_0$, sind diese beiden Zustände entartet, da die Gesamtenergie von Atom und Lichtfeld betrachtet wird. Bei blauer Verstimmung des Lichtfelds $\omega_l > \omega_0$ (Abbildung 4.1) liegt der Zustand $|g, n+1\rangle$ energetisch um $\hbar\Delta$ höher als der Zustand $|e, n\rangle$, da die im angeregten Atom „gespeicherte“ Energie geringer ist als jene des zusätzlichen Photons im Lichtfeld. Tritt das Atom in das Lichtfeld ein, so entwickeln sich die bare states in die dressed states $|1, n; \mathbf{r}\rangle$ und $|2, n; \mathbf{r}\rangle$. Der Energieabstand innerhalb einer Manigfaltigkeit ist gegeben durch die effektive Rabi-Frequenz $\Omega(\mathbf{r})$.

Spontane Emission

Die spontane Emission ist im bisher dargestellten Modell nicht erfasst. Die für die Lithographie relevanten Folgen der spontanen Emission wie Wechsel des dressed state und der Photonenrückstoß können aber konsistent in das semiklassische Modell integriert werden. Aufgrund der spontanen Emission haben die dressed states im Allgemeinen eine endliche und unterschiedliche Lebensdauer. Die relevanten Übergangsraten werden in diesem Abschnitt berechnet, indem die bekannten Raten zwischen den bare states in die Basis der dressed states transformiert werden. Der Rückstoß, den ein Atom bei einer spontanen Emission erleidet, ist konsistent bei der Integration der Newtonschen Bewegungsgleichung zu berücksichtigen.

Spontane Emissionsprozesse zwischen den Zuständen i und j sind nur für nichtverschwindende Dipolmatrixelemente $\langle i | \hat{\mathbf{d}} | j \rangle$ erlaubt, da es sich bei der spontanen Emission (in dieser Näherung) ebenfalls um eine Dipolwechselwirkung handelt, bei der das Atom lediglich anstelle des Lichtfelds mit dem Kontinuum der quantisierten Vakuummoden wechselwirkt. Selbstverständlich muss auch hierbei die Energieerhaltung erfüllt sein. Die Übergangsrates $\Gamma_{i \leftarrow j}^{(0)}$ vom Zustand j in den Zustand i ist nach Fermis Goldener-Regel proportional zum Betragsquadrat des Matrixelements:

$$\Gamma_{i \leftarrow j}^{(0)} \propto |\langle i | \hat{\mathbf{d}} | j \rangle|^2 \quad (4.16)$$

Die Übergangsraten zwischen den dressed states ergeben sich mit der unitären Transformation⁴ $\mathbb{U}(\mathbf{r})$ zu

$$\Gamma_{i \leftarrow j}(\mathbf{r}) = |\mathbb{U}^\dagger(\mathbf{r})|^2 \Gamma_{i \leftarrow j}^{(0)} |\mathbb{U}(\mathbf{r})|^2 \quad (4.17)$$

Im Fall des ungestörten Zwei-Niveau-Atoms kann lediglich der angeregte Zustand mit der Rate Γ in den stabilen Grundzustand zerfallen. Die Übergangsraten zwischen den bare states sind deshalb:

$$\Gamma_{i \leftarrow j}^{(0)} = \Gamma \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.18)$$

Für die dressed states erhält man durch die Transformation 4.17:

$$\Gamma_{i \leftarrow j}(\mathbf{r}) = \Gamma \begin{pmatrix} \cos^2\theta(\mathbf{r}) \sin^2\theta(\mathbf{r}) & \cos^4\theta(\mathbf{r}) \\ \sin^4\theta(\mathbf{r}) & \cos^2\theta(\mathbf{r}) \sin^2\theta(\mathbf{r}) \end{pmatrix} \quad (4.19)$$

Zwischen den dressed states sind nun verschiedene Übergänge möglich. Sowohl Übergänge mit und ohne Wechsel des Typs des dressed states können auftreten (Abbildung 4.1). Jeder dressed state ist eine Superposition aus angeregtem Zustand und Grundzustand des freien Atoms (Gleichung 4.13 und 4.14). Der Zerfall eines dressed state wird möglich durch den Anteil des angeregten Zustands. Der Anteil des Grundzustands macht den dressed state zum möglichen Endzustand eines Übergangs. Der Zustand, der den größeren Überlapp mit dem Grundzustand hat, wird als langlebig bezeichnet; den anderen mit dem größeren Überlapp mit dem angeregten Zustand bezeichnet man als kurzlebig. Im Fluoreszenzspektrum treten aus diesem Grund drei unterschiedlich starke Linien, das sog. Mollow-Triplett auf (Mollow, 1969). In Abbildung 4.2 sind die Übergangsraten in Abhängigkeit vom Parameter ω_R/Δ des Lichtfelds dargestellt.

⁴Das Betragsquadrat ist hierbei elementweise zu bilden; vgl. Brezger (1999).

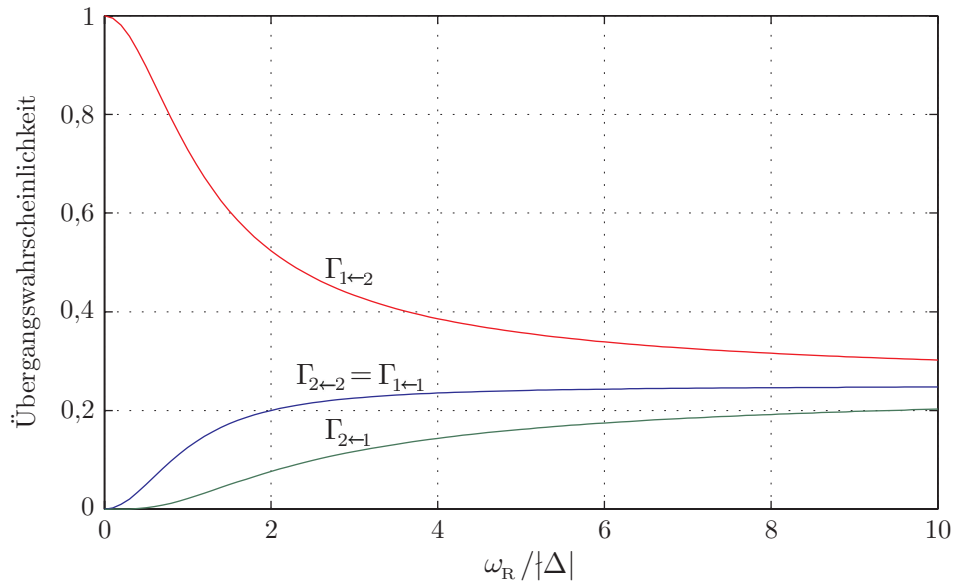


Abbildung 4.2: Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den dressed states in Abhängigkeit vom Verhältnis zwischen Rabi-Frequenz ω_R und Verstimmung Δ .

4.2 Magnetische Unterstruktur

Während in vielen Fällen in der Physik das Modell des Zwei-Niveaus-Atoms die physikalische Situation angemessen beschreibt, so muss für den im Experiment verwendeten Übergang ${}^7S_3 \rightarrow {}^7P_4$ die Theorie auf ein Atom mit magnetischer Unterstruktur erweitert werden. Das Vorgehen zur Bestimmung der dressed states erfolgt analog zum Zwei-Niveau-Atom. Die spontane Emission wird zunächst nicht erfasst und erst abschließend berücksichtigt.

Der Zustand eines Atoms mit der Gesamtdrehimpulsquantenzahl J gliedert sich in $(2J+1)$ Zeeman-Unterniveaus, die bei Abwesenheit eines Magnetfelds energetisch entartet sind. Wird ein atomarer Übergang $J_g \rightarrow J_e$ betrachtet, so wird der interne Zustand des Atoms durch folgenden Hamilton Operator beschrieben.

$$\hat{H}_{\text{Atom}} = \frac{\hbar\omega_0}{2} \left(\sum_{m_e=-J_e}^{J_e} |m_e\rangle\langle m_e| - \sum_{m_g=-J_g}^{J_g} |m_g\rangle\langle m_g| \right) \quad (4.20)$$

Die Wechselwirkung zwischen Atom und Lichtfeld ist im Fall des Atoms mit magnetischer Unterstruktur abhängig von der Polarisation des Lichtfelds. Aufgrund der Auswahlregel $m_g + m_{\text{Photon}} = m_e$ koppeln nur die in Abbildung 4.3 gezeigten Übergänge an das Lichtfeld.

Die Kopplungsstärke ist durch die Clebsch-Gordon-Koeffizienten gegeben. Das analoge Vorgehen wie beim Zwei-Niveau-Atom liefert die neuen Eigenzustände und Eigenenergien des Atoms im Lichtfeld. Der allgemeine Fall des Atoms in Lichtfeldern beliebiger Polarisation wurde von Brezger (1999) ausführlich behandelt. Dort ist auch ein externes

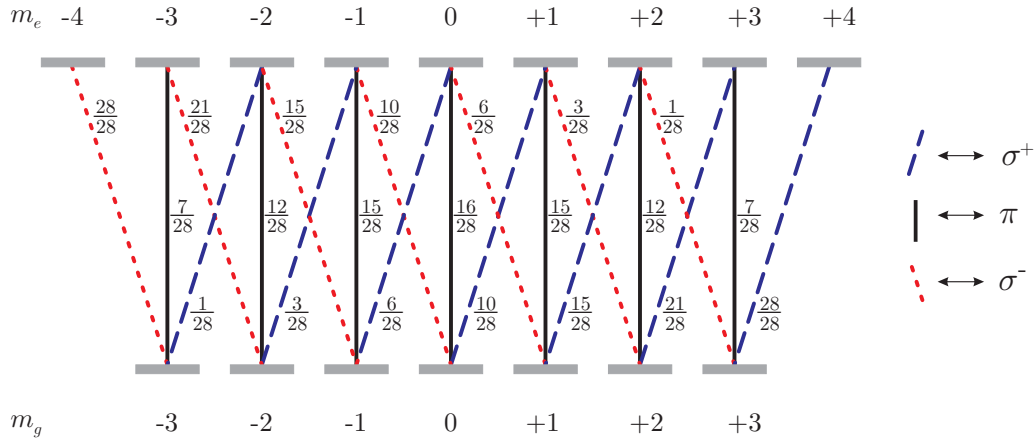


Abbildung 4.3: Zeeman-Unterniveaus für einen $J_g = 3 \rightarrow J_e = 4$ -Übergang. An den Übergängen sind die Quadrate der Clebsch-Gordan-Koeffizienten angegeben, die Stärke der Kopplung an ein entsprechend polarisiertes Lichtfeld beschreiben.

Magnetfeld berücksichtigt, dass in dieser Arbeit stets unberücksichtigt bleibt.⁵ Ist das Lichtfeld nicht rein π - oder σ -polarisiert, so koppeln jeweils mehrere Niveaus aneinander. In Lichtfeldern mit ortsabhängiger Polarisation (Polarisationsgradientenfelder) variieren die Kopplungsstärken mit der sich ändernden Polarisation. Die räumliche Struktur der Potentiale, die sich auf diese Weise erzeugen lassen, können sehr komplex sein, so können u. A. Potenzialminima mit geringeren Abständen als $\lambda/2$ realisiert werden. Dies verwendeten Gupta *et al.* (1996) zur Erzeugung von Linienstrukturen im Abstand von $\lambda/8$ und Brezger *et al.* (1999) für zweidimensionalen Strukturen.

Für ein Lichtfeld reiner π -, oder σ -Polarisation entkoppelt das System in Zwei-Niveau-Systeme und einzelne nichtkoppelnde Niveaus. Für die Energieniveaus eines Paares, das wiederum aus einem kurz- und einem langlebigen dressed state Zustand besteht, ergibt sich abhängig vom Clebsch-Gordon-Koeffizienten $\mathbb{G}(m_g, m_e)$ über den die Zustände koppeln:

$$E_1 = \frac{\hbar}{2} \operatorname{sgn}(\Delta) \sqrt{\Delta^2 + [\omega_R(\mathbf{r}) \mathbb{G}(m_g, m_e)]^2} \quad (4.21)$$

$$E_2 = -\frac{\hbar}{2} \operatorname{sgn}(\Delta) \sqrt{\Delta^2 + [\omega_R(\mathbf{r}) \mathbb{G}(m_g, m_e)]^2} \quad (4.22)$$

Übergänge mit großem Clebsch-Gordon-Koeffizienten koppeln stärker an das Lichtfeld. Die jeweiligen Zustände erfahren deshalb eine stärkere Energieverschiebung als jene eines schwächeren Übergangs. Der Verlauf der Energieniveaus bzw. Dipolpotentiale in einer stehenden Lichtwelle ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Die in weitverstimmt Lichtmasken fast ausschließlich besetzten langlebigen Zustände erfahren bei roter Verstimmung $\Delta < 0$ Kräfte in Richtung der Intensitätsmaxima. Bei blauer Verstimmung ist diese Kraftwirkung in Richtung der Intensitätsminima gerichtet.

Die Potenzialkurven für π -Polarisation sind teilweise zweifach entartet, da Clebsch-Gordon-Koeffizienten doppelt auftreten. Da sich zudem die Koeffizienten für π -Polarisation

⁵Das Erdmagnetfeld wird vernachlässigt.

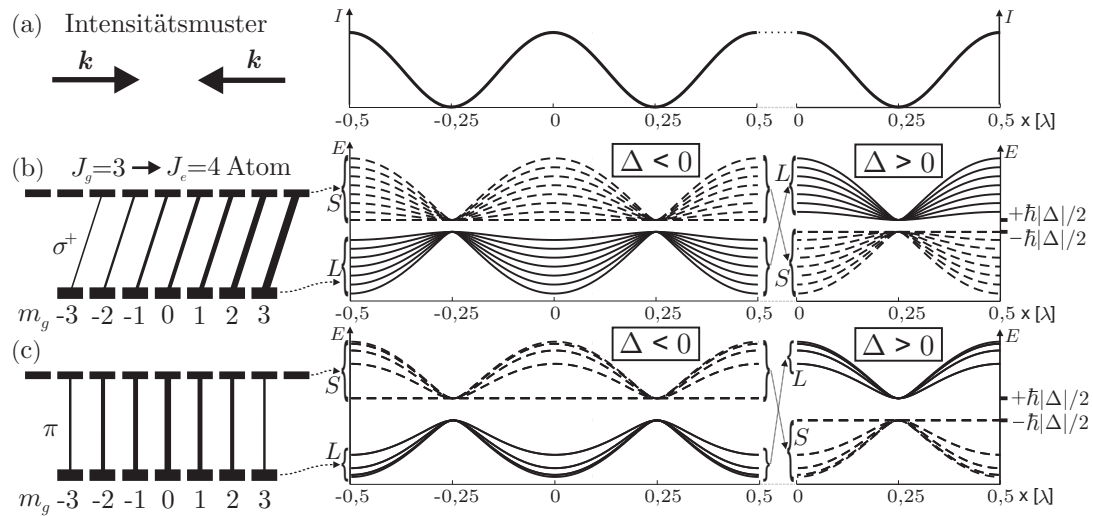


Abbildung 4.4: Verlauf der Intensität (a) und der Dipolpotenziale für einen $J_g = 3 \rightarrow J_e = 4$ Übergang in zirkular (b) und linear (c) polarisierten stehenden Wellen. Es bezeichnen L und S die lang- bzw. kurzlebigen Zustände, die bei verändertem Vorzeichen der Verstimmung Δ das Vorzeichen ändern.

sation weniger voneinander unterscheiden als für σ -Polarisation, sind die Unterschiede zwischen den Potenzialkurven für π -polarisiertes Licht weniger stark ausgeprägt. Beim Fokussierungsprozess in der Atomlithographie macht sich dies in unterschiedlichen Fokussierungseigenschaften der magnetischen Unterzustände bemerkbar (Clebsch-Gordon-Abberation). In Kapitel 6 werden daher ausschließlich π -polarisierte Lichtfelder betrachtet, für die dieser Einfluss geringer ist.

Zudem treten jeweils Zustände auf, die nicht mit dem Licht wechselwirken. Für π -polarisiertes Licht sind dies die Zustände mit $m_e = \pm 4$, bei σ^+ -Polarisation die Zustände $m_e = -4, -3$. Diese Zustände stimmen auch im Lichtfeld mit den bare states überein und ihre Energie bleibt unbeeinflusst vom Lichtfeld.

Spontante Emission

Analog zum Zwei-Niveau-Atom können die Übergangswahrscheinlichkeiten für spontane Emission ermittelt werden. Ohne externes Lichtfeld sind die Unterzustände des Grundzustands stabil und die des angeregten Zustand können mit einer einheitliche Rate Γ zerfallen. Die möglichen Endzustände sind durch die Auswahlregeln limitiert. Die Verzweungsverhältnisse für die erlaubten Zerfällen sind nach dem Wigner-Eckart-Theorem (Sakurai, 1985, S. 239) durch die Quadrate der Clebsch-Gordon-Koeffizienten bestimmt.

sisch beschrieben werden.⁶ Für die atomlithographische Situation sind diese Bedingungen speziell für die transversale Bewegung erfüllt.

4.3.2 Adiabatische Näherung

Die Tatsache, dass das Atom während seiner Bewegung im Lichtfeld in seinem Zustand verbleibt und somit die ortsabhängigen Eigenenergien als Potentiale wirken, ist nur im Rahmen der adiabatischen Näherung gültig. Hierfür wird davon ausgegangen, dass die interne atomare Dynamik wesentlich schneller ist als die durch die Bewegung verursachte Änderung der Eigenzustände. Bei schneller Bewegung des Atoms können bewegungsinduzierte Übergänge in andere Niveaus auftreten. Sind mehrere Zeeman-Unterniveaus an das Lichtfeld gekoppelt, wie es z. B. in Polarisationsgradienten-Lichtfeldern der Fall ist, so können solche nichtadiabatischen Übergänge im Besonderen zwischen den langlebigen Zuständen auftreten und können die Bewegung eines Atoms im Lichtfeld auf diese Weise beeinflussen (Brezger, 1999). Für diese Arbeit sind ausschließlich π -polarisierte Lichtfelder relevant. Die magnetische Unterstruktur zerfällt somit in effektive Zwei-Niveau-Systeme. Nichtadiabatische Übergänge können höchstens zwischen lang- und kurzlebigen Zustand eines solchen Zwei-Niveau-Systems auftreten. Wegen der großen Energieabstände $\hbar\omega_{ij}$ sind die Wahrscheinlichkeiten sehr gering und können vernachlässigt werden (Drodofsky, 1997, S. 72).

⁶Da natürlich stets die Heisenbergsche Unschärferelation $m\Delta v\Delta x \gtrsim \hbar$ erfüllt sein muss, können die Bedingungen 4.24 und 4.25 nur dann gleichzeitig erfüllt sein, wenn gilt: $\hbar^2 k^2 / 2m \ll \hbar\Gamma$. Dies ist für optische Dipolübergänge aber i. A. erfüllt.

5 Numerische Simulation

Die im vorigen Kapitel entwickelte Theorie lässt sich direkt in eine numerische Simulation umsetzen. In diesem Kapitel wird die Implementierung einer solchen Simulation beschrieben. Mit dem entworfenen Programm lassen sich verschiedene Situationen der eindimensionale Bewegung von Atomen in einer stehenden Lichtwelle simulieren.

Im vorangegangenen Kapitel wurde eine semiklassische Theorie der Bewegung eines Atoms im Lichtfeld entwickelt. Das Atom bewegt sich auf klassischen Bahnen im konservativen Dipolpotenzial. Spontane Emissionprozesse beeinflussen die Trajektorien, dass das Atom hierbei seinen Zustand wechselt und den Photonenrückstoß erleidet.

Um neue Konzepte der Atomlithographie theoretisch beschreiben zu können, wurde das Modell in eine Simulation umgesetzt. Hierzu wird die Newtonsche Bewegungsgleichung numerisch integriert und die spontane Emission über eine Monte-Carlo-Ansatz berücksichtigt.

Bei der Umsetzung des theoretischen Modells in ein Simulationsprogramm konnte teilweise auf Erfahrungen in unserer Gruppe zurückgegriffen werden. Es wurden in den letzten Jahren umfangreiche Simulationen zu zweidimensionalen Polarisationsgradienten-Lichtmasken durchgeführt (Brezger, 1999). Die zweidimensionale Situation machten die Simulation sehr aufwändig. Die Handhabung der großen Datenmengen und der hohe Rechenaufwand ließen sich durch ein dreiteiliges sehr komplexes Programmpaket geschrieben in den Programmiersprachen C++ und MATLAB handhaben. Die Handhabung des Paketes ist sehr komplex und vor allem aufgrund der Verarbeitung und Verwaltung der großen Datenmengen sehr unübersichtlich.

Für die in dieser Arbeit relevante eindimensionale Situation rein linear polarisierter Lichtfelder wurde deshalb eine neues Simulationsprogramm mit der Programmiersprache MATLAB¹ erstellt, dass der Situation speziell gerecht wird und deutlich einfacher zu handhaben ist. Die Grundstruktur des Programms basiert aber auf den früher gewonnenen Erkenntnissen.

5.1 Modell des Atomstrahls

Zur realitätsnahen Simulation muss der experimentell verwendete Atomstrahl möglichst genau modelliert werden. Die Charakteristik des Atomstrahls bestimmt die Startwerte der dynamischen Variablen jedes Chromatoms, dessen Trajektorie in einer stehenden Lichtwelle simuliert werden soll. Da stets nur endlich viele Trajektorien simuliert werden können, ist darauf zu achten, bei der Verteilung der Startwerte der dynamischen

¹Fa. The MathWorks Inc.; Verwendete Version 6.1

Variablen Diskretisierungsfehler möglichst zu minimieren.

Die Situation ist räumlich periodisch mit der halben Lichtwellenlänge. Deshalb wird in der Simulation stets in transversaler Richtung nur ein Abschnitt dieser Größe betrachtet. Verlässt ein Atom diesen Abschnitt, so wird seine Position um $\lambda/2$ entsprechend verschoben, bis es wieder im betrachteten Bereich ist. Der Chromstrahl ist homogen, deshalb wird der Anfangswert der transversalen Ortsvariable zufällig aus dem betrachteten $\lambda/2$ -Abschnitt gewählt.

Die Geschwindigkeiten der Atome hängt stark von der Art der Präparation des Atomstrahls ab. Speziell für die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung ist die bisherige experimentelle Situation und die zukünftige zu unterscheiden. Beim bisher verwendeten Atomstrahl wurde die longitudinale Geschwindigkeit nach Verlassen des Ofens nicht manipuliert. Die Geschwindigkeitsverteilung kann in guter Näherung als effusiv beschrieben werden kann (Stuhler, 1996). Für die Verteilung der longitudinalen Geschwindigkeiten ergibt sich somit folgende Wahrscheinlichkeitsverteilung:

$$p(v_z)dv_z \propto v_z^3 \exp\left(-\frac{mv_z^2}{2k_B T_{\text{Ofen}}}\right) dv_z \quad (5.1)$$

Bei einer Ofentemperatur von 1700°C beträgt die wahrscheinlichste Geschwindigkeit $v_{\text{prob}} = \sqrt{\frac{3k_B T_{\text{Ofen}}}{m}} = 973 \text{ m/s}$.

Die neuen atomlithographischen Techniken sind auf längere Wechselwirkungszeiten der Atomen mit dem Lichtfeld angewiesen. Deshalb wird für die zukünftigen Experimente der Atomstrahl durch einen Zeeman-Slower abgebremst und anschliessend zur Flusserhöhung mit einer zweidimensionalen magnetooptischen Falle komprimiert. Die in die Lichtmaske eintretenden Atome werden deutlich geringere longitudinale Geschwindigkeiten haben. Es wird damit gerechnet, dass sich Geschwindigkeiten von $v_{\text{Zeeman}} = 40 \text{ m/s}$ erreichen lassen. Die Breite der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung ist in diesem Fall durch eine Gauß-Verteilung gegeben mit typischerweise $\sigma_z = 5 \text{ m/s}$.

$$p(v_z)dv_z \propto \exp\left(-\frac{(v_z - v_{\text{Zeeman}})^2}{2\sigma_z^2}\right) dv_z \quad (5.2)$$

Die transversalen Geschwindigkeiten sind stets gauß-verteilt:

$$p(v_t)dv_t \propto \exp\left(-\frac{v_t^2}{2\sigma_t^2}\right) dv_t \quad (5.3)$$

Die Breite der Verteilung ist natürlich von der Art der Strahlpräparation abhängig. Sie kann aber stets durch obige Verteilung beschrieben werde.

Die longitudinale und transversale Geschwindigkeit wird jedem Atom unabhängig zugeteilt. Um die jeweiligen Verteilungen möglichst stetig anzunähern, wurden für eine Verteilung 500 Repräsentanten bestimmt. Die ausgewählten Werte liegen umso dichter, je wahrscheinlicher Geschwindigkeiten in diesem Bereich sind. Dem Atom wurde zufällig einer der Repräsentanten als Startwert zugeteilt. Um Diskretisierungsfehler zu unterbinden, wurde dem Zufallswert eine ebenfalls zufällige Verrückung bis zum nächsten Repräsentanten hinzu addiert (Brezger, 1999).

Als Startwert des internen Zustands des Atoms wird zufällig einer der langlebigen Zustände zugeteilt. Zwar ist am Ende der transversalen Laserkühlung mit einer ungleichen Besetzung der magnetischen Unterzustände zu rechnen, diese hat sich jedoch nach

der Flugdauer von ca. 1 ms bis zur Lichtmaske durch den Einfluss von Streumagnetfeldern aufgelöst (Brezger, 1999).

5.2 Integration der Bewegungsgleichungen

Liegen die Startwerte fest, so werden die Trajektorien der Atome durch das Lichtfeld durch Integration der Newtonschen Bewegungsgleichung $m\ddot{\mathbf{r}} = \mathbf{F}(\mathbf{r})$ ermittelt. Prinzipiell sind die Bewegungsgleichungen für die longitudinale und transversale Bewegung gekoppelt. Im hier behandelten Fall kann die Bewegungsgleichung aber in paraxialer Näherung betrachtet werden. Hierbei wird die longitudinale Geschwindigkeit als konstant angenommen. Dies ist gerechtfertigt, da die Potenzialhöhen zwar im Bereich der transversalen kinetischen Energie liegen; die kinetische Energie in longitudinaler Richtung ist jedoch viel größer. Deshalb ist auch die durch die Lichtmaske bewirkte longitudinale Impulsänderung verschwindend gering im Vergleich zum longitudinalen Impuls.

$$v_{\text{long}}(t) = v_{\text{long}}(t=0) = \text{const} \quad (5.4)$$

$$m\dot{v}_{\text{trans}}(t) = -\nabla_{\text{trans}}V(\mathbf{r}(t)) \quad (5.5)$$

Zur numerischen Behandlung des Problems wird der Raum in Propagationsrichtung diskretisiert. Hierbei ist auf eine hinreichend kleine Schrittweite zu achten. Zum einen wird hierdurch der numerische Fehler reduziert, andererseits ist darauf zu achten, dass innerhalb der typischen Zeitskala zwischen zwei spontanen Emissionsprozessen eine Mindestanzahl an Zwischenschritten erfolgt.

Zur Lösung der Bewegungsgleichung stehen prinzipiell mehrere Standardalgorithmen zur Verfügung. Ausgeschlossen werden müssen lediglich sog. Mehrschrittalgorithmen, die die Lösung der Gleichung für den nächsten Gitterpunkt aus der bereits ermittelten Lösung auf mehreren Gitterpunkten berechnen. Da im vorliegenden Fall aber spontane Emissionen an den Gitterpunkten stattfinden können, darf der verwendete Algorithmus nur auf eine Umgebung innerhalb eines Gitterpunktabstands vom aktuellen Gitterpunkt aus zugreifen. Deshalb wurde ein modifiziertes Halbschrittverfahren gewählt. Dieses Verfahren „schaut“ nur um einen halben Gitterpunktabstand vorraus. Der Algorithmus lautet

$$\mathbf{r}_{n+1/2} := \mathbf{r}_n + \frac{1}{2} \mathbf{v}_n \Delta t \quad (5.6)$$

$$\mathbf{a}_{n+1/2} := \mathbf{a}(\mathbf{r}_{n+1/2}) \quad (5.7)$$

$$\mathbf{r}_{n+1} := \mathbf{r}_n + \left(\mathbf{v}_n + \frac{1}{2} \mathbf{a}_{n+1/2} \Delta t \right) \Delta t \quad (5.8)$$

$$\mathbf{v}_{n+1} := \mathbf{v}_n + \mathbf{a}_{n+1/2} \Delta t \quad (5.9)$$

wobei sich der Zeitschritt

$$\Delta t = \frac{\Delta z}{v_{\text{long}}} \quad (5.10)$$

aus dem Gitterpunktabstand Δz und der jeweiligen Longitudinalgeschwindigkeit ergibt. Die Beschleunigung \mathbf{a} wird aus dem Dipolpotenzial des jeweiligen Zustands berechnet.

5.3 Entwicklung des internen Zustands - spontane Emission

Nach dem Integrationsschritt der Bewegungsgleichung wird an jedem Punkt des Gitters die Entwicklung des internen Zustands des Atoms berücksichtigt. Ändert sich der interne Zustand des Atoms durch spontane Emission, so wird der Endzustand ermittelt und der Rückstosskick berücksichtigt. Die Übergangswahrscheinlichkeiten $p_{i \leftarrow j} = \Gamma_{i \leftarrow j}(\mathbf{r}) \Delta t$ ergeben sich aus Abschnitt 4.2 und werden über eine Monte-Carlo-Methode in die Simulation eingebaut. Zuerst wird die Zerfallswahrscheinlichkeit eines sich im Zustand j am Ort \mathbf{r}_n befindlichen Atoms ermittelt, indem die Wahrscheinlichkeiten über die möglichen Endzustände aufsummiert werden.

$$p_j = \sum_i p_{ij} = \sum_i \Gamma_{i \leftarrow j}(\mathbf{r}_n) \Delta t \quad (5.11)$$

Die Entscheidung ob am Ort \mathbf{r}_n eine spontane Emission stattfindet, erfolgt durch Vergleich mit einer Zufallszahl² $\tilde{p} \in [0, 1[$. Findet eine spontane Emission statt ($p_j > \tilde{p}$), so wird aus der Zufallszahl \tilde{p} durch Vergleich mit den Einzelübergangswahrscheinlichkeiten p_{ij} der Endzustand der spontanen Emission ermittelt.

Das spontan emittierte Photon hat den Impuls $\hbar k$, deshalb erfährt das Atom einen entsprechenden Rückstoß. Die Geschwindigkeit ändert sich um $v_{\text{rec}} = \frac{\hbar k}{m} = 1,80 \frac{\text{cm}}{\text{s}}$. Die Raumwinkelverteilung des emittierten Photons ist isotrop. Die Komponente in transversaler Richtung wird durch zwei unabhängige Zufallszahlen ($\vartheta, \varphi \in [0, 2\pi[$) ermittelt. Sie führt zu einer Geschwindigkeitsänderung von:

$$\Delta v_{\text{trans}} = v_{\text{rec}} \sin \varphi \sin \vartheta \quad (5.12)$$

Der Anteil des Rückstoßes in longitudinaler Richtung wird im Rahmen der paraxialen Näherung konsequent vernachlässigt.

Für die durchgeführten Simulationen zeigte sich, dass bei typischen experimentellen Parametern, die spontane Emission die Trajektorien hauptsächlich dadurch beeinflusst, dass das Atom dabei seinen Zustand wechseln kann. Wechselt beispielsweise ein Atom von einem langlebigen in einen kurzlebigen Zustand, so wird es bei blau-verstimmter Lichtwellen nicht mehr ins Lichtfeldminimum sondern in das Maximum gezogen. Findet der Übergang zwischen zwei langlebigen Niveaus statt, so kann sich aufgrund der unterschiedlichen Clebsch-Gordon-Koeffizienten die Tiefe des Potentials unterscheiden. Ein Einfluss des Photonenrückstoß fällt bei den vergleichsweise immer noch großen Transversalgeschwindigkeiten nicht ins Gewicht.

5.4 Simulation

Die Newtonsche Bewegungsgleichung wird für gegebene Parameter des Atomstrahls und der Lichtmaske für typischerweise 20000 Atome integriert. Als Ergebnis einer Simulation wird die Ortverteilung der Atome beim Durchflug durch das Potenzial ausgegeben. Aus dieser lassen sich die Linienbreiten sowie das Verhältnis von Strukturhöhe zu Untergrund ermitteln.

²daher die Bezeichnung Monte-Carlo-Ansatz.

6 Ergebnisse der Simulation

Das entwickelte Simulationsprogramm wird zur Untersuchung aktueller Fragen der bisherigen experimentellen Situation herangezogen. Im zweiten Teil wird damit die neue Methode der dissipativen Lichtmasken diskutiert. Untersucht werden jeweils die erreichbaren Strukturbreiten und erstmals auch systematisch die Höhe des Untergrunds.

Das bisher in der Atomlithographie angewandte Konzept der geometrischen Fokussierung wurde experimentell und theoretisch ausführlich untersucht (Anderson *et al.*, 1999). Die Parameter der Lichtmaske waren so gewählt, dass die Atome nach einem Viertel einer Oszillationsperiode im Dipolpotenzial auf ein im Zentrum der Lichtmaske positioniertes Substrat treffen. Die typische Wechselwirkungszeit der Atome mit der Lichtmaske beträgt hierbei ca. 100 ns.

Hauptnachteile waren stets die Abhängigkeit der Strukturbreiten von der Präparation des Chromstrahls sowie der signifikante Chromuntergrund, der für die technologische Anwendung hinderlich ist. Es gibt zwei vielversprechende Ansätze, diesen Untergrund zu reduzieren. Dies ist zum einen die Methode des adiabatischen Fokussierens und zum anderen die Verwendung dissipativer Lichtmasken. Beide Methoden basieren auf Wechselwirkungszeiten der Atome mit der Lichtmaske im Bereich von über $10 \mu\text{s}$. Beim adiabatischen Fokussieren werden wie bisher weit-verstimmte Lichtmasken verwendet. Während der deutlich längeren Wechselwirkungszeit oszillieren die Atome um das Minimum des konservativen Dipolpotenzials. Durch Erhöhung der Intensität entlang der Wechselwirkungsstrecke kann die sich ausbildende Atomverteilung im Potenzialminimum komprimiert werden. Die Methode verspricht theoretisch schmalere Strukturen und einen reduzierten Untergrund ist aber nach wie vor stark von der Präparation des Atomstrahls abhängig (Khaykovich und Davidson, 2000).

Die zweite Methode ist jene der dissipativen Lichtmasken. Während der ebenfalls deutlich längeren Wechselwirkungszeit wird durch spontane Emission in vergleichsweise nah-resonanten blau-verstimmten Lichtmasken Energie dissipiert und somit die Lokalisierung der Atome im Potenzialminimum verbessert.

Beide Methoden werden sich mit dem neuen Aufbau mit einem Strahl langsamer Chromatome realisieren lassen. In dieser Arbeit wird speziell die zweite Methode der dissipativen Lichtmasken untersucht, da diese die interessante Eigenschaft verspricht, weitgehend unabhängig von der Divergenz des Atomstrahls zu sein. Um die neuen Methoden mit der bisherigen Methode des geometrischen Fokussierens vergleichen zu können, wird derzeit daran gearbeitet, die bisherige Methode genau zu charakterisieren. Deshalb werden im ersten Teil dieses Kapitels einige aktuelle Fragestellungen der bisherigen Methode theoretisch untersucht, bevor im zweiten Teil erste Simulationen zu dissipativen Lichtmasken präsentiert werden.

Grenzen der Simulation

Im ganzen Kapitel wird stets nur die Lokalisierung der Atome in der stehenden Lichtwelle untersucht. Sollen diese Verteilungen tatsächlich auf einem Substrat deponiert werden, sind in Bezug auf die erreichbaren Strukturbreiten und Höhen des Untergrunds zwei Tatsachen zu berücksichtigen. Einerseits wird das Substrat stets in der Lichtmaske positioniert. Die Intensitätsverteilung der Lichtmaske wird hierdurch nicht einfach abgeschnitten, sondern vielmehr entsteht durch Beugung am Substrat eine wenige $10\ \mu\text{m}$ lange „Dunkelzone“ direkt oberhalb der Substratoberfläche (Anderson *et al.*, 1999). In diesem Bereich verschwindet der transversale Einschluss der Atome durch das Dipolpotential, wodurch sich die Verteilung bis zur Substratoberfläche verbreitert. Dieser Effekt wird in zukünftigen Simulationen, wenn die absoluten Werte von Strukturbreiten und Untergrund mit der Theorie verglichen werden, zu berücksichtigen sein. Hierzu muss die Wellengleichung mit den entsprechenden Randbedingungen gelöst werden, um so die Intensitätsverteilung in der Nähe der Substratoberfläche zu erhalten.

Des Weiteren werden Prozesse beim Aufwachsen der Strukturen nicht erfasst. Frühere systematische experimentelle Untersuchungen (Anderson *et al.*, 1999) legen die Vermutung nahe, dass die Chromatome nach dem Auftreffen auf die Oberfläche noch eine gewisse Mobilität besitzen. Theoretische Modelle des Aufwachsprozesses setzen jedoch reine Strukturen voraus, wie sie erst zukünftig im UHV realisierbar sind.

6.1 Geometrische Fokussierung

Die Situation, dass die Atome die Substratoberfläche nach einem Viertel der Oszillationsperiode erreichen, wird im Allgemeinen als geometrische Fokussierung bezeichnet. Der typischerweise $100\ \mu\text{m}$ große Waist des gaußschen Laserstrahls der die stehenden Lichtwellen formt, entspricht somit in etwa der Brennweite einer dicken Linse für Atome. Für thermische Chromatome beträgt die Wechselwirkungszeit somit ca. 100 ns. Für realistische Parameter ergeben sich die in Abbildung 6.1 dargestellten Trajektorien der Atome wodurch sich eine Verteilung der Atome in der stehenden Welle ergibt, wie sie in Abbildung 6.2 dargestellt ist.

Die einzelnen Einflüsse auf die Strukturgröße wie sphärische Aberration (nicht parabolformiges Potenzial), chromatische Aberration (longitudinale Geschwindigkeitsverteilung der Atome), Clebsch-Gordon-Aberration¹ (unterschiedliche Kopplung der magnetischen Unterzustände an das Lichtfeld), diffuse Aberration (Einflüsse der spontanen Emission) sowie der Kollimation des Atomstrahls wurden z. B. von Drodofsky (1997) diskutiert. Der Einfluss rein quantenmechanischer Effekte wie Beugung der Materiewellen oder Nicht-Adiabatizität, die in klassischen Simulationen (McClelland, 1995; Anderson *et al.*, 1999) nicht erfasst sind, wurden von Lee (2000) untersucht. Er führte Wellenpaketsimulationen durch und fand, dass durch Beugung die Strukturbreiten für die geometrische Fokussierung im Bereich von 10 nm limitiert ist. Für realistische experimentelle Situationen wird dies jedoch nicht erreicht.

Experimentell werden zur geometrischen Fokussierung weitverstimmte Lichtmasken verwendet, um die spontane Emission zu unterdrücken. Im vorhandenen Aufbau kann

¹diese ist für π -polarisierte Lichtfelder geringer (vgl. Abschnitt 4.2), deshalb werden alle Simulationen für derart polarisierte Lichtmasken durchgeführt.

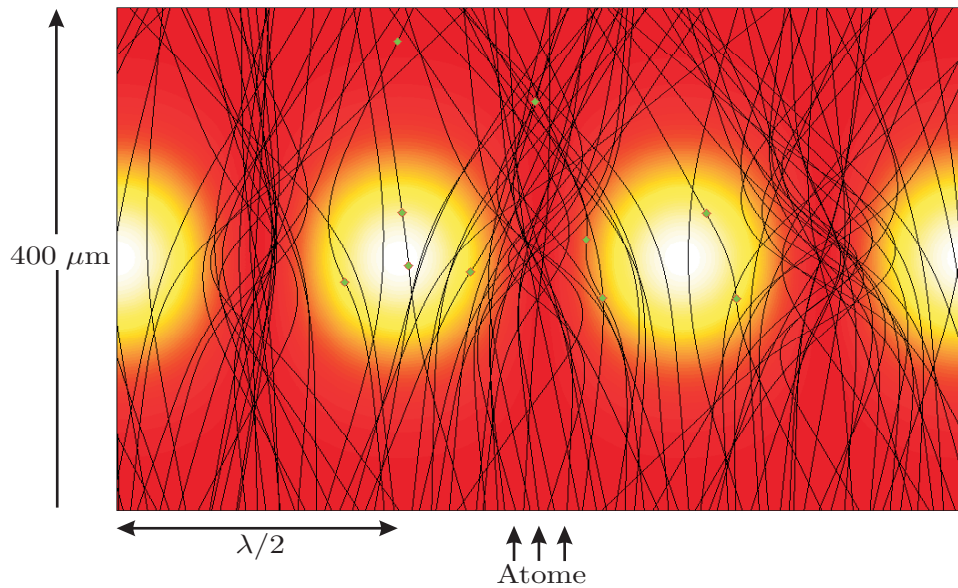


Abbildung 6.1: Trajektorien bei geometrischer Fokussierung in einer blau-verstimmten stehenden Lichtwelle mit einer Leistung von 11 mW. Die Intensitätsverteilung ist durch die Farbe des Hintergrunds angedeutet. Das Substrat wird im Zentrum der stehenden Lichtwelle positioniert. Für den realistischen Atomstrahl (effusiv, $\sigma_t=0,27 \text{ m/s}$) gelingt es nicht, dass alle Atome dort einen scharfen Fokus erzeugen. Speziell die Divergenz des Atomstrahls limitiert die Strukturbreite. Die Markierungen stehen für spontane Emissionen mit Wechsel des dressed state. Spontane Emission in einen kurzlebigen Zustand ist in Regionen hoher Intensität wahrscheinlicher.

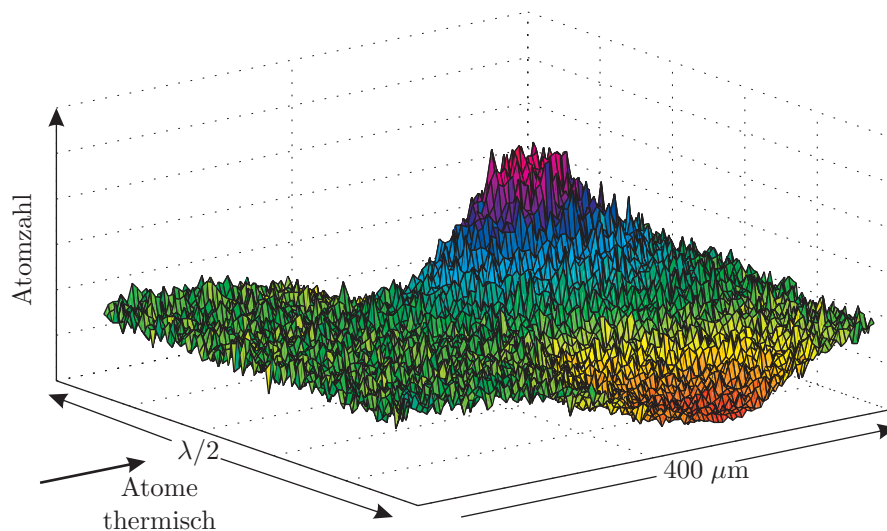


Abbildung 6.2: Ortsverteilung beim geometrischen Fokussieren wie sie sich für die in Abbildung 6.1 gezeigte Situation ergibt. In der Mitte des dargestellten $\lambda/2$ -Abschnitts liegt ein Knoten der stehenden Welle.

mittels der akusto-optischen Modulatoren eine Verstimmung von $\pm 40 \Gamma$ realisiert werden. Alle Simulationen in diesem Teilabschnitt wurden für eine Blau-Verstimmung von $\Delta = 40 \Gamma$ durchgeführt.

Ein möglichst scharfer Fokus kann durch eine möglichst kurze Brennweite der atomoptischen Linse erreicht werden. Der Brennweite entspricht beim geometrischen Fokussieren der Waist der stehenden Lichtwelle. Die vorhandene Depositionsplatte realisiert mit einem Waist von $100 \mu\text{m}$ einen Kompromiss aus guter Justierbarkeit der stehenden Lichtwelle sowie möglichst kurzer Brennweite.

In naher Zukunft soll die Methode des geometrischen Fokussierens noch einmal systematisch darauf untersucht werden, wie kritisch sie für den Anwender ist. Im Folgenden werden hierfür verschiedene Parameter variiert, wobei stets $\Delta = +40 \Gamma$ und ein Strahlwaist von $100 \mu\text{m}$, sowie die Parameter des effusiven Chromstrahls angenommen werden. Angegeben wird stets die mit den Parametern erreichte Ortsverteilung im Zentrum der stehenden Welle. Zur Simulation wurde der volle Algorithmus für Chromatome mit magnetischer Unterstruktur und spontaner Emission verwendet.

Leistung

Ein wichtiger Parameter ist die Leistung in der Lichtmaske. Sie bestimmt bei gegebener Verstimmung die Tiefe des Potenzials und somit ganz wesentlich die Charakteristik der Fokussierung. Die Abbildung 6.3 zeigt die Abhängigkeit der Strukturweiten und des Untergrunds von der Ein-Strahl-Laserleistung in der Lichtmaske. Die Werte für den Untergrund wurden als Quotient aus Höhe der Chromschicht am Rand des $\lambda/2$ -Bereichs und der Höhe um die die Struktur im Zentrum über den Untergrund hinausragt berechnet.²

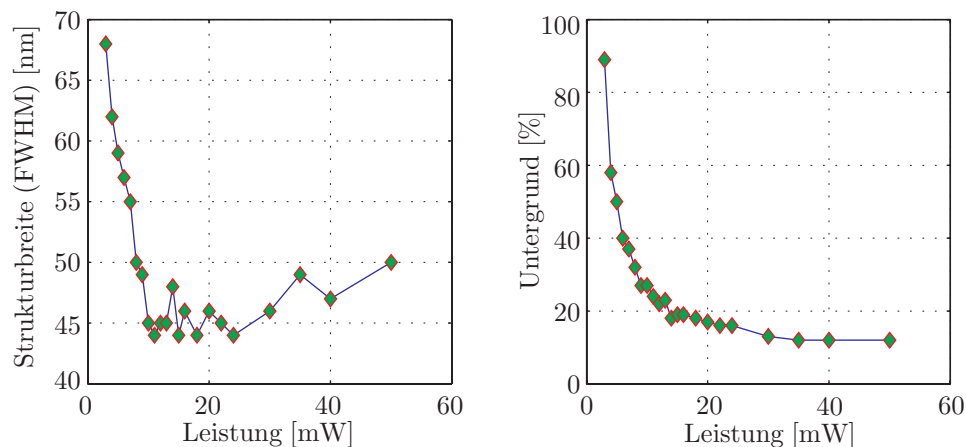


Abbildung 6.3: Leistungsabhängigkeit von Strukturweite und Untergrund für einen thermischen Atomstrahl mit einer transversalen Geschwindigkeitsverteilung der Breite $\sigma_t=0,27 \text{ m/s}$.

Die eingesetzte Breite der transversalen Geschwindigkeitsverteilung von $\sigma_t=0,27 \text{ m/s}$ entspricht einer Divergenz von $0,27 \text{ mrad}$ (halber Winkel). Dies ist ein typischer Wert, der mit der transversalen Laserkühlung erreicht werden kann. Die minimal erreichbare

²Alle Parameter wurden aus einem Gauß-Fit an das Simulationsergebnis ermittelt.

Strukturbreite beträgt 44 nm und wird für eine Leistung von 11 mW erreicht. Für kleinere Leistungen steigt die Strukturbreite schnell an, da der Fokus hinter dem Zentrum der stehenden Lichtwelle liegt. Es entstehen nur sehr breite Strukturen mit einem großen Untergrund. Das langsame Anwachsen der Strukturbreiten für größere Leistungen wurde ausführlich von Schmidt (1998) diskutiert. Ein Zusammenspiel von Clebsch-Gordan-Aberration, longitudinaler Geschwindigkeitsverteilung und nicht-parabelförmigem Potenzial lässt die Strukturen in diesem Fall der Überfokussierung, bei der die Atome im Potenzialminimum oszillieren, nur wenig breiter werden. Lediglich der Untergrund fällt für höhere Lichtleistungen noch etwas ab. Dies kann dadurch erklärt werden, dass bei hohen Leistungen auch die schnellen Atome zu oszillieren beginnen. Bei geringen Leistungen werden sie noch nicht von der Fokussierungswirkung erfasst und formen den Untergrund.

Kollimation und Verkippung

Analog zur Lichtoptik lässt sich auch ein Atomstrahl besser fokussieren, wenn er gut kollimiert ist. Experimentell wird die Kollimation durch transversale Laserkühlung erreicht.

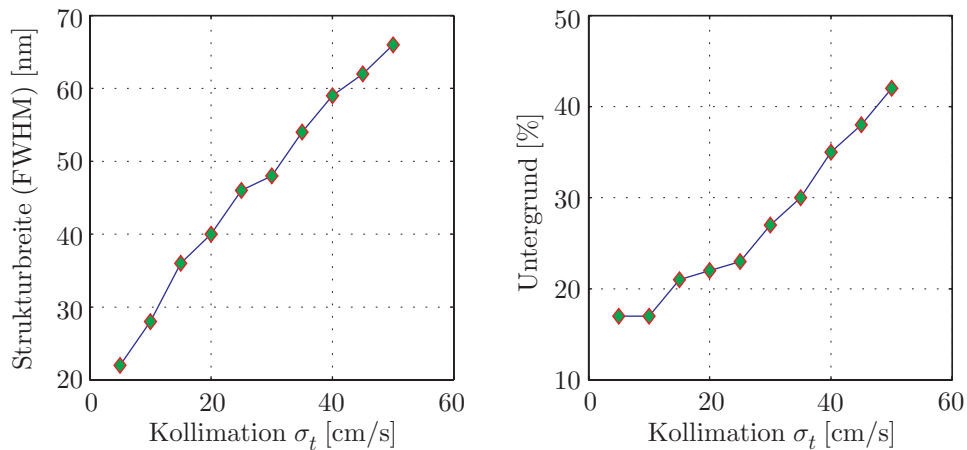


Abbildung 6.4: Abhängigkeit der Strukturparameter von der Kollimation des Atomstrahls für eine Ein-Strahl-Lichtleistung von 11 mW. Die Kollimation ist in Form der Breite σ_t der gaußschen Geschwindigkeitsverteilung angegeben.

Erwartungsgemäß ist die Atomstrahlkollimation der entscheidend Faktor, um extrem schmale Strukturen zu erzeugen. Quantitativ lassen sich die Strukturbreiten gut durch die Abbildung eines klassischen Objekts in der klassischen Optik beschreiben (Drodofsky, 1997). Eine Kollimation von $0,2 \text{ m/s}$ entspricht einem vollen Divergenzwinkel von $\theta = 0,4 \text{ mrad}$. Für die Abbildung mit einer Linse mit einer Brennweite von $f = 100 \mu\text{m}$ erhält man eine Strukturbreite Δx von

$$\Delta x \approx f \cdot \theta = 40 \text{ nm} \quad (6.1)$$

Dies stimmt sehr gut mit den Simulationsergebnissen überein. Der Untergrund steigt analog mit den Strukturbreiten für schlechtere Atomstrahlkollimation an.

Die bisher schmalsten Chrom-Strukturen wurden von Anderson *et al.* (1999) mit einer Breite von 28 nm realisiert. Die Divergenz des verwendeten Atomstrahls wurde durch eindimensionale transversale Laserkühlung auf 0,16 mrad (FWHM) reduziert. Dies entspricht einer Breite der Geschwindigkeitsverteilung von $\sigma_t = 7 \text{ cm/s}$. Dies stimmt recht gut mit der hier durchgeführten Simulation überein. Die zweidimensionale Laserkühlung in unserem Aufbau erreicht solch geringe Divergenzen nicht, so dass sich die Strukturbreiten nicht auf Werte unter 40 nm reduzieren lassen.

Die zuvor gezeigten Simulationsergebnisse gingen davon aus, dass die Atomstrahlachse senkrecht zur Lichtmaske verläuft. Dies ist experimentell nie perfekt realisierbar. In der Simulation kann eine solche Verkipfung dadurch implementiert werden, dass allen Atomen ein konstanter Wert zu ihrer Transversalgeschwindigkeit hinzu addiert wird.

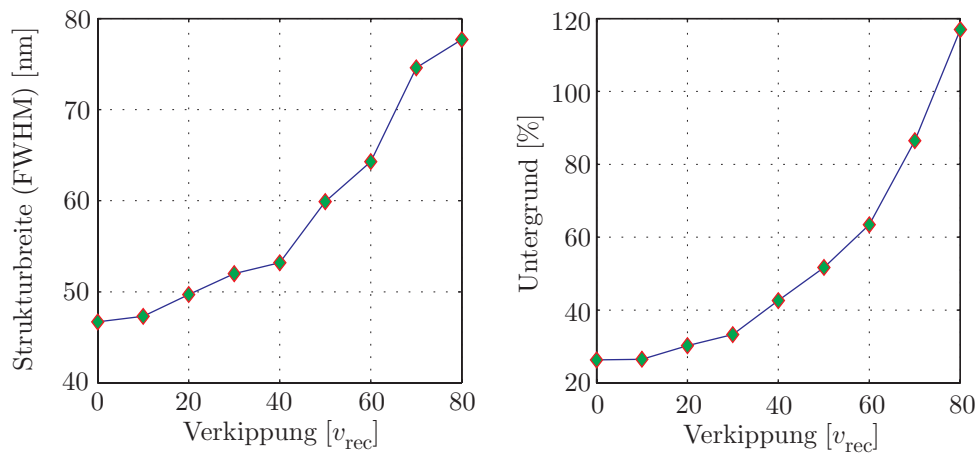


Abbildung 6.5: Abhängigkeit der Strukturparameter von der Verkipfung zwischen Chromstrahl und stehender Lichtwelle bei einem Ein-Strahl-Laserleistung von 11 mW. Die Kollimation des Atomstrahls beträgt $\sigma_t = 0,27 \text{ m/s} = 15 v_{\text{rec}}$. Bei einer Verkipfung oberhalb des doppelten dieses Wertes nehmen Strukturbreite und Untergrund drastisch zu. Eine Verkipfung um v_{rec} entspricht hierbei einem Winkel von 0,018 mrad.

Es ist stets eine Verbreiterung der Strukturen zu erkennen, die besonders deutlich zunimmt, wenn der Atomstrahl um mehr als das Doppelte seiner eigenen Divergenz verkippt ist. Beim Vergleich der experimentell erzeugten Strukturen sollte dies als möglicher Verbreiterungsmechanismus stets beachtet werden.³

Eine systematische experimentelle Untersuchung der zuvor simulierten Parameter war im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich. Wiederholte Defekte des Argon-Ionen-Lasers verhinderten die Untersuchung der verschiedenen Einflüsse. Abbildung 6.6 zeigt die schmalste in dieser Arbeit erzeugte Linienstruktur.

³Von Anderson *et al.* (1999) wurden experimentelle Strukturbreiten oberhalb jener ihrer Simulationsergebnisse stets durch Aufwuchsprozesse erklärt.

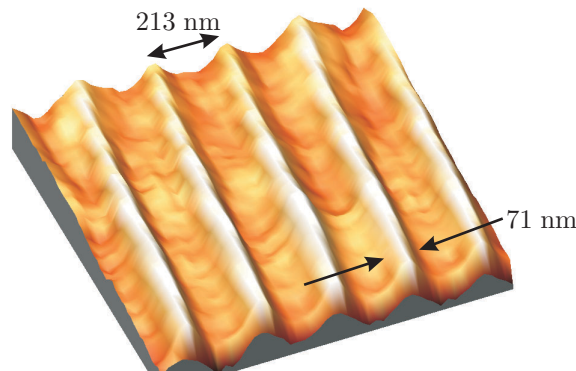


Abbildung 6.6: AFM-Aufnahme der schmalsten im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Linienstruktur. Die Breite der Linien beträgt 71 nm. Ihr Abstand von 213 nm ist durch die Hälfte der Wellenlänge gegeben. Die Leistung in der um 200 MHz rot-verstimmten Lichtmaske betrug 15 mW.

6.2 Dissipative Lichtmasken

In den bisherigen Experimenten zur Atomlithographie wurden spontane Emissionsprozesse der Atome beim Durchflug durch die Lichtmaske stets bestmöglichst unterdrückt. Ein Atom, das durch eine spontane Emission von einem langlebigen in einen kurzlebigen dressed state übergeht, wird nicht mehr zum gleichen Ort hin fokussiert, da das Potentialminimum des kurzlebigen dressed state um $\lambda/4$ gegenüber jenem des langlebigen verschoben ist. Experimentell wird die Unterdrückung der spontanen Emission durch Lichtmasken realisiert, deren Frequenz typischerweise 40 Linienbreiten gegenüber der atomaren Resonanz verstimmt ist. Es bleibt jedoch ein kleiner Resteffekt, der i. A. als sog. diffuse Aberration bezeichnet wird und die Linien um wenige Nanometer verbreitert. In Abbildung 6.1 sind Wechsel durch dressed states durch Markierungen an den Trajektorien verdeutlicht. Das Verhalten der Atome in der stehenden Lichtwelle lässt sich theoretisch gut beschreiben, indem die spontane Emission vernachlässigt wird und für die Atome als klassische Teilchen im konservativen Dipolpotenzial die Bewegungsgleichung integriert wird. Anhand dieser Ergebnisse können die Parameter optimiert werden, um möglichst schmale Strukturen zu erhalten (McClelland, 1995; Anderson *et al.*, 1999).

Für längere Wechselwirkungszeiten als für die geometrische Fokussierung verwendet, oszillieren die Atome um das Minimum des Dipolpotenzials. Im konservativen Potenzial bleibt die Oszillationsamplitude konstant und Linienbreite und Untergrund ändern sich nicht signifikant. Aus Abbildung 6.3 wird dies schon deutlich, da für Leistungen oberhalb 11 mW die Strukturbreiten kaum zunehmen.

Im Folgenden wird untersucht inwieweit auf längeren Zeitskalen durch spontane Emission im Mittel Energie dissipiert werden kann und somit die Lokalisierung im Potentialminimum verbessert und der Untergrund reduziert werden kann. Ausgangspunkt der Betrachtungen ist ein von Dalibard und Cohen-Tannoudji (1985) erstmals beschriebener Kühlmechanismus in einer blau-verstimmten stehenden Lichtwelle hoher Intensität.

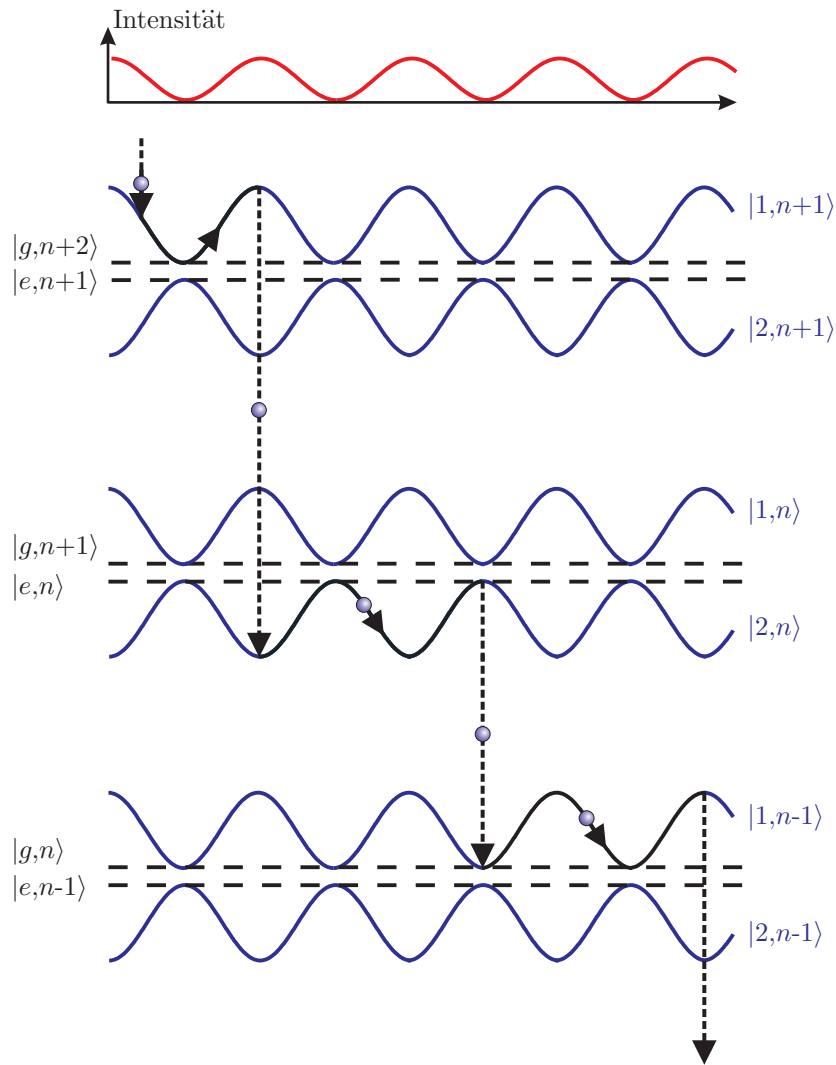


Abbildung 6.7: Kühlmechanismus in einer blau-verstimmten stehenden Lichtwelle hoher Intensität. Dargestellt ist die „Trajektorie“ eines sich entlang der stehenden Welle bewegenden Atoms. Aufgrund der räumlichen Variation der Übergangswahrscheinlichkeiten findet spontane Emission für ein Atom im dressed state des Typs 1 (2) bevorzugt in den Bäuchen (Knoten) der stehenden Lichtwelle statt. Im Mittel läuft das Atom zwischen zwei spontanen Emissionen häufiger einen Potenzialberg hinauf als hinab, wodurch es im Mittel abgebremst wird.

Prinzip

Die Eigenzustände (dressed states) eines Zwei-Niveaus-Atoms in einer blau-verstimmten stehenden Lichtwelle sind in Abbildung 6.7 dargestellt. In den Knoten der stehenden Welle fallen die dressed states $|1, n\rangle$ und $|2, n\rangle$ mit den Eigenzuständen des ungestörten Atoms $|g, n+1\rangle$ und $|e, n\rangle$ zusammen. Außerhalb der Knoten sind die dressed states Linearkombinationen von $|g, n+1\rangle$ und $|e, n\rangle$ und ihre Eigenenergien verschieben sich im Vergleich zu den ungestörten Zuständen. Die Energieverschiebung sowie die Beimischung des jeweils anderen Zustands wird maximal in den Bäuchen der stehenden Welle.

Der betrachtete Kühleffekt ergibt sich aufgrund der Intensitätsabhängigkeit der spontanen Emission: Ein Atom im Zustand $|1, n\rangle$ oder $|2, n\rangle$ kann spontan zerfallen, da jeder der Zustände eine Beimischung des angeregten Zustand $|e, n\rangle$ hat. Endzustand des Übergangs kann sowohl der Zustand $|1, n-1\rangle$ als auch $|2, n-1\rangle$ sein, da beide Zustände eine Beimischung des Grundzustands $|g, n\rangle$ haben. Grundlage des Kühleffekts in einer stehenden blau-verstimmten Lichtwelle hoher Intensität ist, dass die Übergangswahrscheinlichkeiten von der Intensität und somit für ein sich bewegendes Atom vom gegenwärtigen Ort abhängen: Für ein Atom im Zustand $|1, n\rangle$ verschwindet an einem Knoten der stehenden Welle die Wahrscheinlichkeit für einen spontanen Emissionsvorgang, da $|1, n\rangle = |g, n+1\rangle$ gilt. In einem Bauch der stehenden Welle ist die Wahrscheinlichkeit für spontane Emission am wahrscheinlichsten, da hier die Beimischung von $|e, n\rangle$ an $|1, n\rangle$ am größten ist. Im Gegensatz hierzu ist für ein Atom im Zustand $|2, n\rangle$ die Zerfallswahrscheinlichkeit in den Knoten der stehenden Welle am größten, da hier $|2, n\rangle$ mit dem angeregten Zustand $|e, n\rangle$ übereinstimmt. Verfolgt man nun die Trajektorie eines Atoms in der stehenden Lichtwelle, so ergibt sich folgendes Bild (Abbildung 6.7): Beginnend im Zustand $|1, n+1\rangle$ im Knoten der stehenden Welle läuft das Atom den Potenzialberg (Bauch) hinauf. Dort ist ein Übergang durch spontane Emission am wahrscheinlichsten. Das Atom kann in den Zustand $|1, n\rangle$ zerfallen, wodurch sich die Situation für das Atom nicht ändert⁴. Das Atom kann aber auch in den Zustand $|2, n\rangle$ zerfallen und befindet sich dann wieder in einem Potenzialtal. Es muss nun erneut einen Potenzialberg hinauflaufen. Dort angekommen ist der Zustand $|2, n\rangle$ wieder besonders instabil.

Offensichtlich ist, dass bei diesen an den Sisyphus-Mythos⁵ erinnernden Vorgängen die Geschwindigkeit des Atoms abnimmt. Beim Hinauflaufen auf den Potenzialberg wird kinetische Energie des Atoms in potenzielle Energie umgewandelt. Am Potenzialberg wird diese Energie in Form eines spontan emittierten Photons aus dem System „Atom + stehende Welle“ dissipiert. Offensichtlich ist, dass die Wirkung des Kühleffekts von der Geschwindigkeit des Atoms abhängt. Die Kraft ist augenscheinlich am größten, wenn das Atom zwischen zwei spontanen Emissionen gerade eine Wellenlänge weit propagiert ist. Dies ist der Fall, wenn die Dopplerverschiebung kv in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite Γ des Übergangs ist. Für größere Geschwindigkeiten kann die Kraftwirkung über eine Wellenlänge gemittelt werden. Es ergibt sich eine typische zur Geschwindigkeit proportionale Reibungskraft (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1985).

Dieser Mechanismus wurde von Aspect *et al.* (1986) zur Kollimation eines Cäsium-Atomstrahls verwendet. Eine senkrecht zum Atomstrahl ausgerichtete stehende Wellen ($\Delta = +6\Gamma$, $I/I_s = 5000$) mit gaußförmigem Profil dämpft beim Durchflug der Atome ihre Transversalgeschwindigkeiten. In einer Wechselwirkungszeit von $15\ \mu\text{s}$ wurde die Divergenz des Atomstrahls auf diese Art von $8\ \text{mrad}$ auf $1,6\ \text{mrad}$ reduziert. Außerdem wurde gezeigt, dass sich für rote Verstimmung die Verhältnisse gerade umkehren und der Effekt zum Heizmechanismus wird.⁶ Das Atom läuft bei roter Verstimmung verursacht durch den anderen Verlauf der dressed states und der Übergangswahrscheinlichkeiten

⁴Der vom spontan emittierten Photon übertragene Rückstoß verursacht keinen signifikanten Effekt.

⁵historische Anmerkung: Bei diesem Effekt handelt es sich um den ersten sisyphus-artigen Kühlmechanismus (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1985). Das Polarisationsgradientenkühlen für Atome mit magnetischer Unterstruktur entstand erst später (Dalibard und Cohen-Tannoudji, 1989).

⁶Die hier betrachteten Effekte sind deutlich vom Doppler-Kühlen in rot-verstimmten Lichtfeldern **geringer** Intensität ($I \lesssim I_s$) zu unterscheiden (Aspect *et al.*, 1986).

häufiger einen Potenzialberg hinunter als hinauf. Die resultierende Verschlechterung der Kollimation des Atomstrahls wurde ebenfalls beobachtet. Die Ergebnisse stimmten gut mit dem von den Autoren entwickelten theoretischen Modell überein. Mit diesem Modell ermittelten sie ebenfalls, dass für Wechselwirkungszeiten im Bereich von $100 \mu\text{s}$ theoretisch eine Lokalisierung der Atome auf einer Skala von $\lambda/40$ zu erwarten ist.

In dem oben skizzierten Bild wird allerdings auch deutlich, dass der Mechanismus für langsame Atome, die den Potenzialberg nicht ganz erklimmen können, deutlich an Wirkung verliert. Die Wahrscheinlichkeit für spontane Emission aus dem Zustand $|1, n+1\rangle$ bleibt geringer, da auch die Beimischung des angeregten Zustands vermindert bleibt. Tritt dennoch eine spontane Emission auf, so ist der mögliche Energieverlust zudem geringer, da das Atom nicht im Potenzialtal landet. Untersuchungen, inwieweit sich dieser Mechanismus zur Lokalisierung von Chromatomen eignet sind Gegenstand der folgenden Diskussion.

Im entwickelten Simulationsalgorithmus werden spontane Emissionsereignisse und die damit verbundenen Wechsel des dressed state korrekt beschrieben, somit wird auch der beschriebene Kühleffekt auf natürliche Weise erfasst. In den Simulationen dieses Kapitels wird untersucht, inwieweit sich die Methode zur Lokalisierung von Chromatomen und somit auch für die Lithographie anwenden lässt. Die erreichbare Lokalisierung und die Zeitskala auf der dies geschieht, wird in Abhängigkeit der Parameter der Lichtmaske (Leistung und Verstimmung) untersucht.

Die folgenden Simulationen wurden alle im Zwei-Niveau-Modell durchgeführt. Zum einen sollen zuerst die Grenzen der Methode ermittelt werden, außerdem lässt sich experimentell ein solches Zwei-Niveau-System durchaus realisieren (optisches Pumpen, vgl. z. B. Aspect *et al.* (1986)). Andererseits wird auch für diese ersten Untersuchungen erheblich an Rechenzeit gespart. Des Weiteren wird in allen Simulationen mit einem Potenzial gerechnet, dass keine Abhängigkeit in Richtung der Flugbahn der Chromatome hat. Zukünftige Simulationen werden die optimale Parameter für eine gaußsche Lichtmaske sowie einem Atom mit magnetischer Unterstruktur ermitteln.

Um die Methode zu charakterisieren wurde zuerst das Verhalten eines Atomstrahls mit perfekter Kollimation und einheitlicher longitudinaler Geschwindigkeit in einer blau-verstimmten stehenden Lichtwelle untersucht. Abbildung 6.8 zeigt die sich ergebende Atomverteilung entlang einer Strecke von 1 mm. Bei einer Longitudinalgeschwindigkeit der Atome von 40 m/s , wie sie zukünftig vom Zeeman-Slower erzeugt wird entspricht dies einer Wechselwirkungszeit von $25 \mu\text{s}$.

Die Orte der Atome zu Beginn der Wechselwirkungszone wurden gleichmäßig auf den $\lambda/2$ -Abschnitt verteilt und somit ein homogener Atomstrahl modelliert. Zu erkennen ist die erste kollektive Oszillation der Atome, die aufgrund des idealisierten Atomstrahls extrem schmal ausfällt. Weitere Oszillationen der gesamten Verteilung sind nur noch schwach zu erkennen, da die spontane Emission die Trajektorie jedes Atoms individuell beeinflusst. Im Mittel wird Energie durch spontane Emission dissipiert und es bildet sich eine Verteilung der Atome aus, die im Potenzialminimum in der Mitte des $\lambda/2$ -Abschnitts konzentriert ist. Schon nach $0,5 \text{ mm}$ bzw. $12,5 \mu\text{s}$ hat sich eine starke Lokalisierung ausgebildet, die sich bis zum Ende der 1 mm langen Wechselwirkungsstrecke nur mehr unwesentlich ändert.

In Abbildung 6.9 ist die Trajektorie eines Atoms in der blau-verstimmten Lichtmaske dargestellt. Das Atom bleibt nicht in einem bestimmten Potenzialtal gefangen. Stets sind

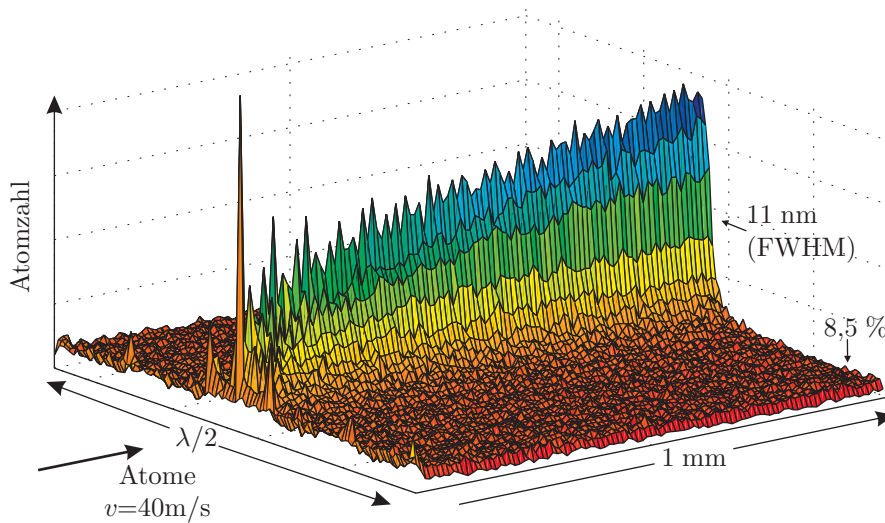


Abbildung 6.8: Ein perfekt kollimierter Atomstrahl tritt in eine dissipative Lichtmaske ($\Delta = 6\Gamma, I/I_s = 3000$) ein. Nach einer Wechselwirkungszeit von $25 \mu\text{s}$ bildet sich im Potenzialminimum im Zentrum des $\lambda/2$ -Abschnitts eine nur 11 nm breite Atomverteilung aus. Auch der Untergrund ist mit 8,5% vergleichsweise gering.

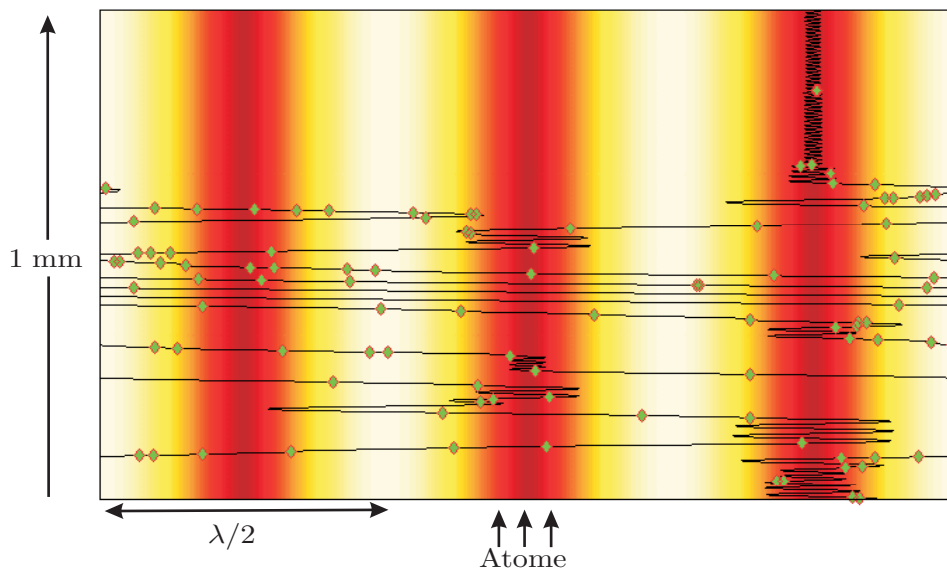


Abbildung 6.9: Trajektorie eines Atoms durch eine dissipative Lichtmaske. Die Markierungen symbolisieren spontane Emissionen mit Wechsel des dressed state. Zur Darstellung wurden periodische Randbedingungen verwendet: verlässt das Atom den betrachteten Bereich, so wird der Ort des Atoms um ein Vielfaches der halben Wellenlänge verschoben und es erscheint wieder von der anderen Seite.

auch spontane Emissionsprozesse in den anderen dressed state möglich. Das Atom befindet sich nach einem solchen Wechsel auf einem Potenzialberg und wird beschleunigt. Die Energie wird aber wieder durch den zuvor beschriebene Mechanismus dissipiert und das Atom in einem anderen Potenzialminimum lokalisiert. Im Mittel über viele Atome ergibt sich die in Abbildung 6.8 dargestellte Ortsverteilung.

Eine Simulation mit sonst gleichen Parametern aber roter Verstimmung von $\Delta = -6\Gamma$ zeigt das erwartete Ergebnis: Die erste kollektive Oszillation der Atome findet noch statt, dann setzt der Heizmechanismus durch spontane Emission ein und verhindert eine Lokalisierung der Atome, so dass ab ca. $10\mu\text{s}$ eine homogene Ortverteilung vorliegt.

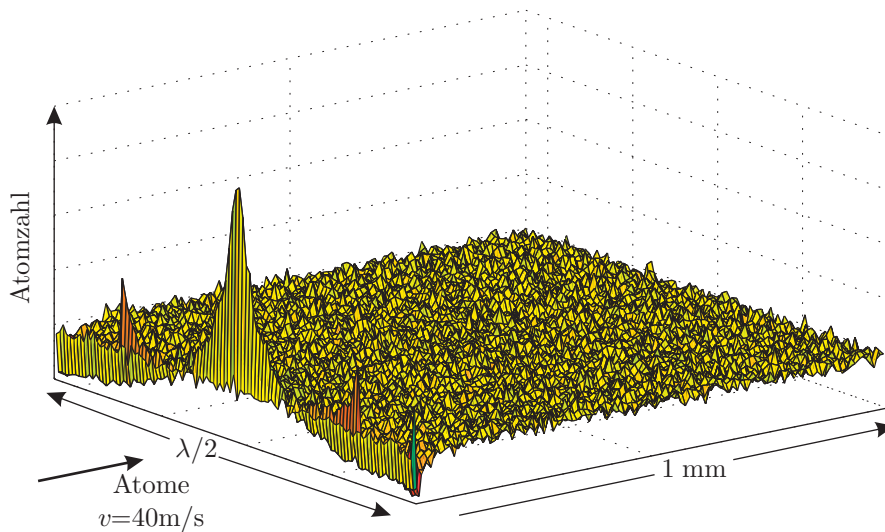


Abbildung 6.10: Simulationsergebnis für die gleichen Parameter wie in Abbildung 6.8. Lediglich das Vorzeichen der Verstimmung wurde geändert. Der auftretende Heizmechanismus verhindert die Lokalisierung der Atome.

Es zeigt sich bereits, dass die Methode mit Strukturbreiten im 10 nm-Bereich für die Lithographie interessant ist. Um beispielsweise mit obiger Lichtmaske 1 mm lange Chromlinien zu erzeugen, wäre eine Lichtmaske mit einer Querschnittsfläche von 1 mm^2 und eine Sättigung von $I/I_s = 3000$ in der stehenden Welle notwendig. Für Chrom mit einer Sättigungsintensität von $I_s = 8,5\text{ mW/cm}^2$ ist eine Ein-Strahl-Laserleistung von 63 mW notwendig. Es wird damit gerechnet, dass im zukünftigen experimentellen Aufbau bis zu 400 mW Leistung zur Erzeugung der Lichtmaske zur Verfügung stehen. Die hier simulierten Parameter sollten sich folglich problemlos realisieren lassen und es besteht noch Spielraum zur Variation der Parameter.

Um möglichen Endverteilungen zu ermitteln wurde in Abbildung 6.11 die Intensität variiert und die Verstimmung konstant bei einem Wert von $\Delta = 6\Gamma$ gehalten.

Die Analyse der Endverteilungen zeigt, dass oberhalb von $I/I_s = 4000$ die mittlere Energie der Atome nach der Wechselwirkungszeit von $25\mu\text{s}$ nicht mehr von der Intensität abhängt. Mit der Intensität nimmt aber die Tiefe des Potenzials zu, so dass die entsprechenden Atomverteilungen stärker lokalisiert sind. Entsprechend nimmt auch der Untergrund ab, da bei hoher Intensität insgesamt mehr spontane Emissionsprozesse stattfinden und so jedes Atom öfter die Möglichkeit hat, im Potenzialminimum locali-

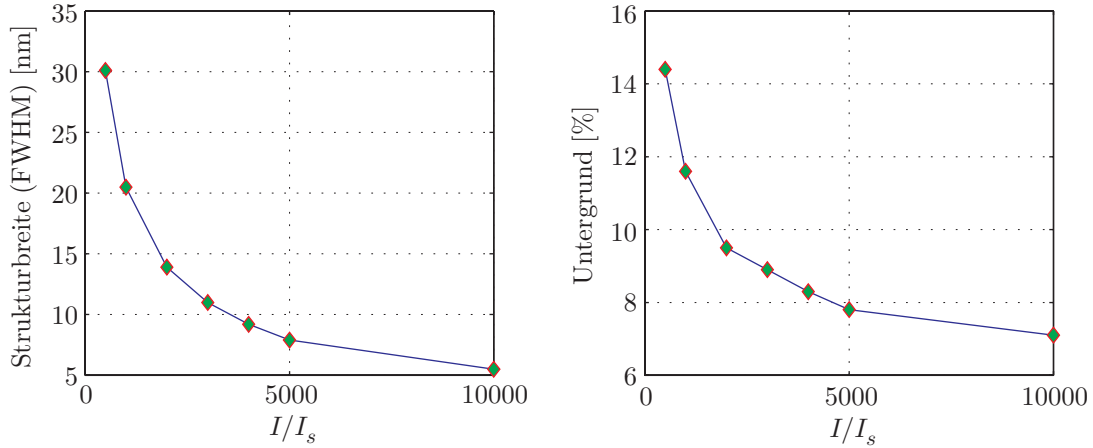


Abbildung 6.11: Strukturparameter nach einer Wechselwirkungsstrecke von 1 mm für verschiedene Intensitäten, bei festgehaltener Verstimmung von $\Delta = 6\Gamma$.

siert zu werden. Befindet sich das Atom in der Nähe des Potenzialminimums, so tritt in diesem Bereich geringer Intensität spontane Emission vergleichsweise selten auf und das Atom bleibt mit hoher Wahrscheinlichkeit lokalisiert.

Die scheinbar erreichbaren Strukturbreiten unterhalb 10 nm sind allerdings mit Vorsicht zu betrachten. In diesem Bereich verliert das semiklassische Modell seine Gültigkeit. Quantenmechanische Beugungseffekte verhindern in der Realität eine derartige Lokalisierung in der stehenden Welle.

Zur Prüfung der Anwendbarkeit der Methode im Experiment muss ein realer Atomstrahl modelliert werden. Abbildung 6.12 zeigt die sich einstellende Ortsverteilung für experimentell realisierbare Parameter.

Die erste kollektive Oszillation ist nicht mehr zu erkennen und schnell bildet sich wieder eine gut lokalisierte Ortsverteilung aus. Die nach dieser Wechselwirkungsstrecke erreichten Werte von einer Strukturbreite von 16 nm und einem Untergrund von 12 % liegen nur unwesentlich über jenen eines idealisierten Atomstrahls, der in die identische Lichtmaske eintritt (Strukturbreite 14 nm und 10 % Untergrund).

Es zeigt sich, dass die Methode unkritisch auf die Parameter des Atomstrahl reagiert. Die transversalen Geschwindigkeitskomponenten werden durch den Kühlmechanismus schnell gedämpft und es stellt sich bald eine Verteilung ein, die für noch längere Wechselwirkungszeiten unabhängig von den Anfangsbedingungen sein sollte. Auch die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung kann vernachlässigt werden. Die Anzahl der Oszillation ist zwar verschieden, insgesamt werden aber alle Atome lokalisiert.

Hierin zeigen sich zusammenfassend die Vorteile der neuen Methode. Es lassen sich theoretisch Strukturbreiten im Bereich von 10 nm bei einem Untergrund von weniger als 10 % erzielen. Einzig wichtig ist, eine hinreichend lange Wechselwirkungszeit des Atomstrahls mit der Lichtmaske zu realisieren. Ein großer Vorteil der Methode ist ihre Unabhängigkeit von den Geschwindigkeitsverteilungen im Atomstrahl. Mit der bisherigen Methode des geometrischen Fokussierens lassen sich solche Strukturbreiten und Untergrundwerte selbst bei bestmöglicher Kollimation des Atomstrahls mit dem vor-

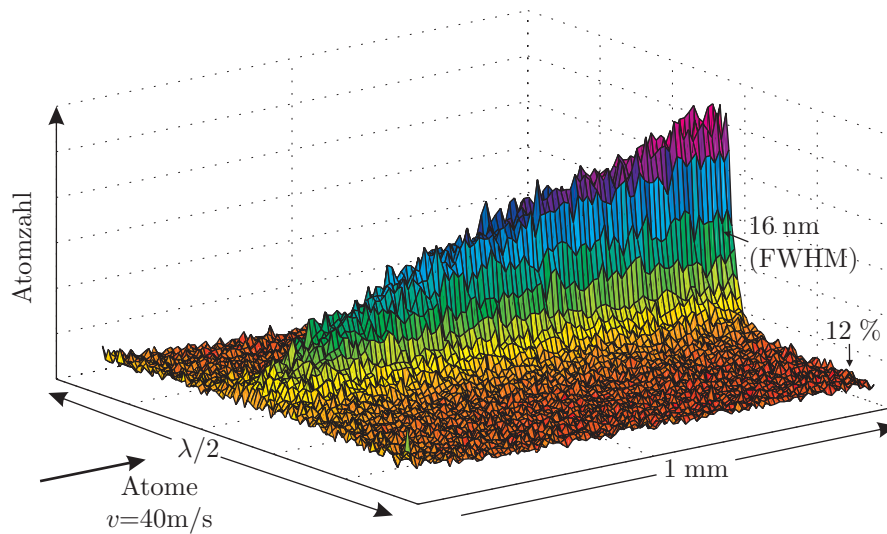


Abbildung 6.12: Ortsverteilung der Atome in einer dissipativen Lichtmaske ($\Delta = 6\Gamma$, $I/I_s = 2000$) für einen realen Atomstrahl mit einer Divergenz von $\sigma_t = 0,8 \text{ m/s}$ und einer Verteilung der longitudinalen Geschwindigkeiten mit einer Breite von 5 m/s .

handenen Aufbau nicht realisieren. Ein weiterer Vorteil ist, dass die Atomverteilung ihre Breite nicht mehr ändert. Dies ist zum einen anwenderfreundlich und erleichtert zum anderen Vergleiche mit der Theorie, da beim geometrischen Fokussieren die tatsächliche Position des Substrats in der stehenden Lichtwelle nur ungenau justierbar ist.

Demnächst sollen weitere systematische Untersuchungen mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programm durchgeführt werden. Die Lichtmaskenparameter werden dahingehend variiert, dass die Potenzialhöhe konstant gehalten wird, und die sich einstellende Verteilung für verschiedene Verstimmungen und Wechselwirkungszeiten untersucht wird. Zur Übertragung der Resultate auf das Experiment wird schließlich auch eine gaußsche Feldverteilung in der Lichtmaske berücksichtigt werden und das volle Simulationsprogramm für Atome mit magnetischer Unterstruktur zum Einsatz kommen.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Diese Arbeit fasst meinen Beitrag am Projekt Atomlithographie des letzten Jahres zusammen. Das Experiment befindet sich derzeit in einer Übergangsphase zu neuen atomlithographischen Experimenten. Die neue Methode der dissipativen Lichtmasken wurde in dieser Arbeit theoretisch untersucht und auf ihre Anwendbarkeit zur Atomlithographie überprüft. Es zeigt sich, dass durch spontane Emission während des Durchgangs der Atome durch die Lichtmaske im Mittel Energie dissipiert werden kann und somit die Lokalisierung der Atome in der stehenden Welle verbessert werden kann. Des Weiteren werden alle Atome von dieser Wirkung erfasst, so dass sich auch der stets störende Chromuntergrund reduzieren lassen sollte. Es zeigt sich auch, dass die Methode unabhängig von der Geschwindigkeitsverteilung des Atomstrahls ist und sich experimentell anwenderfreundlich gestalten sollte, da die genaue Position des Substrats unkritisch ist.

Zur Realisierung der neuen Methode werden deutlich längere Wechselwirkungszeiten der Atome mit der Lichtmaske als bisher benötigt. Dies kann durch Verwendung langsamer Atome und ausgedehnter Lichtmasken erreicht werden. Zur Erzeugung dieser Lichtmasken und zur Präparation des langsamen Atomstrahls wird deutlich mehr Lichtleistung bei der Wellenlänge des Chromübergangs bei 425,6 nm benötigt. Hierzu wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues Frequenzverdopplungssystem basierend auf eine 15 mm langen Lithiumtriborat-Kristall konzipiert und aufgebaut. Mit diesem System kann nun erstmal weltweit eine Leistung von 1 W bei 425,6 nm stabil bereitgestellt werden kann. Die Charakteristik des Frequenzverdopplungsresonators kann sehr gut durch ein theoretisches Modell beschrieben werden.

Experimentell soll in naher Zukunft die bisherige Methode systematisch untersucht werden. Aufgrund regelmäßiger Defekte des Argon-Ionen-Lasers und der Chrom-Zelle gelang dies im Rahmen dieser Arbeit noch nicht. Speziell die Abhängigkeit von Laserleistung, Atomstrahlkollimation und Verkipfung von Substrat sollen untersucht und mit theoretischen Untersuchungen, die in dieser Arbeit durchgeführt wurden verglichen werden. Anschließend wird die Apparatur umgebaut, um mittels eines Zeeman-Slowers und einer zweidimensionalen magneto-optischen Falle einen Strahl von langsamen Chromatomen zu erzeugen. Hiermit wird die neue Methode der dissipativen Lichtmasken realisiert werden.

Da die neue Depositionskammer als UHV-Kammer ausgelegt werden soll, wird es erstmals auch möglich, reine Chromstrukturen ohne Verunreinigungen durch das Hintergrundgas zu erzeugen. Hiermit kann auch der Aufwuchsprozess charakterisiert und mit theoretische Modellen verglichen werden.

Fernziel ist es, erstmals langreichweitig-periodische Nanostrukturen mit magnetischen Eigenschaften herzustellen. Dies wird im Rahmen des SFB513 in einer Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Schatz geschehen. Auf eine von Prof. Schatz hergestellte

Kapitel 7 Zusammenfassung und Ausblick

kristalline Platin-Schicht sollen hierzu in unserer Anlage Linien- und Punktstrukturen aus reinem Chrom aufgedampft werden. Durch anschließendes Aufheizen der Probe in der Apparatur von Prof. Schatz entsteht die ferrimagnetische Phase des Materialsystems CrPt_3 (Maret *et al.*, 2000). Die mit der Methode der dissipativen Lichtmasken in einer Dimension erzielten Erkenntnisse können hierbei direkt auf zweidimensionale Strukturierungsmethoden ausgedehnt werden.

A Anhang

Eigenschaften von Chrom

Masse von ^{52}Cr : $m = 8,684 \cdot 10^{-26}$ kg

Sublimationspunkt: $T_s = 1875^\circ \text{C}$

Chrom zeichnet sich für die Lithographie durch folgende chemische Eigenschaften aus:

- sehr gute Haftung an Oberflächen
- geringe Oberflächenmobilität
- hohe Korrosionsbeständigkeit an Luft

| Element | Massenzahl [au] | Häufigkeit [%] | Kernspin |
|---------|-----------------|----------------|----------|
| Chrom | 50 | 4,35 | 0^+ |
| | 52 | 83,79 | 0^+ |
| | 53 | 9,5 | $3/2^+$ |
| | 54 | 2,36 | 0^+ |

Tabelle A.1: Natürliche Isotopenverteilung von Chrom.

| | | |
|-------------------------|---|--|
| Vakuumentwellenlänge | $\lambda = \frac{2\pi}{k}$ | $= 425,554 \text{ nm}$ |
| Natürliche Breite | $\Gamma = \frac{1}{\tau}$ | $= 31,5 \cdot 10^6 \frac{1}{\text{s}}$ |
| | | $= 2\pi \cdot 5,02 \text{ MHz}$ |
| Sättigungsintensität | $I_s = \frac{\hbar\Gamma\omega_0^3}{12\pi c^2}$ | $= 8,52 \frac{\text{mW}}{\text{cm}^2}$ |
| Dopplertemperatur | $T_{\text{Doppler}} = \frac{\hbar\Gamma}{2k_B}$ | $= 124 \mu\text{K}$ |
| Rückstoßtemperatur | $T_{\text{rec}} = \frac{1}{k_B} \frac{(\hbar k)^2}{2m}$ | $= 1,02 \mu\text{K}$ |
| Rückstoßgeschwindigkeit | $v_{\text{rec}} = \frac{\hbar k}{m}$ | $= 1,80 \frac{\text{cm}}{\text{s}}$ |

Tabelle A.2: Daten zur Atom-Licht-Wechselwirkung von Chrom auf dem Übergang $^7S_3 \rightarrow ^7P_4$. Ein Ausschnitt aus dem Termschema ist in Abbildung 2.2 dargestellt.

Kapitel A Anhang

Literaturverzeichnis

- C. S. Adams, M. Sigel und J. Mlynek, “Atom Optics”, Phys. Rep. **240**, 143 (1994).
- W. R. Anderson, C. C. Bradley, J. J. McClelland und R. J. Celotta, “Minimizing feature width in atom optically fabricated chromium nanostructures”, Phys. Rev. A **59**, 2476 (1999).
- A. Ashkin, G. D. Boyd und J. M. Dziedzic, “Resonant Optical Second Harmonic Generation and Mixing”, IEEE J. of Quant. Electron. **2**, 109 (1966).
- A. Aspect, J. Dalibard, A. Heidmann, C. Salomon und C. Cohen-Tannoudji, “Cooling Atoms with Stimulated Emission”, Phys. Rev. Lett. **57**, 1688 (1986).
- R. E. Behringer, V. Natarajan und G. Timp, “Optimal profile for a Gaussian standing-wave atom-optical lens”, Opt. Lett. **22**, 114 (1997).
- K. K. Berggren, A. Bard, J. L. Wilbur, J. D. Gillaspay, A. G. Helg, J. J. McClelland, S. L. Rolston, W. D. Phillips, M. Prentiss und G. M. Whitesides, “Microlithography by using neutral metastable atoms and self-assembled monolayers”, Science **269**, 1255 (1995).
- K. Berg-Sørensen, “Two-dimensional Sisyphus cooling in a three-beam laser configuration”, Phys. Rev. A **49**, R4297 (1994).
- J. E. Bjorkholm, R. R. Freeman, A. Ashkin, und D. B. Pearson, “Observation of Focusing of Neutral Atoms by the Dipole Forces of Resonance-radiation Pressure”, Phys. Rev. Lett. **41**, 1361 (1978).
- B. Brezger, Th. Schulze, U. Drodofsky, J. Stuhler, S. Nowak, T. Pfau und J. Mlynek, “Nanolithography with neutral chromium and helium atoms”, J. Vac. Sci. Technol. B **15**, 2905 (1997).
- B. Brezger, Th. Schulze, P. O. Schmidt, R. Mertens, T. Pfau und J. Mlynek, “Polarization gradient light masks in atom lithography”, Europhys. Lett. **46**, 148 (1999).
- B. Brezger, “Neue Lichtmasken in der Atomlithographie”, Dissertation, Universität Konstanz (1999).
- A. N. Boto, P. Kok, D. S. Abrams, S. L. Braunstein, C. P. Williams und J. P. Dowling, “Quantum Interferometric Optical Lithography: Exploiting Entanglement to Beat the Diffraction Limit”, Phys. Rev. Lett. **85**, 2733 (2000). Kommentar hierzu: G. S. Agrawal, R. W. Boyd, E. M. Nagasako und S. J. Bentley, Phys. Rev. Lett. **86**, 1389 (2001).

Literaturverzeichnis

- G. D. Boyd, A. Ashkin, J. M. Dziedzic und D. A. Kleinman, "Second-Harmonic Generation of Light with Double Refraction", *Phys. Rev.* **137**, A1305 (1965).
- G. D. Boyd und D. A. Kleinman, "Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams", *J. Appl. Phys.* **39**, 3597 (1968).
- A. Camposo, A. Piombini, F. Cervelli, F. Tantussi, F. Fuso und E. Arimondo, "A cold cesium atomic beam produced out of a pyramidal funnel", *Opt. Comm.* (im Druck).
- C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li und S. Lin, "New nonlinear-optical crystal: LiB_3O_5 ", *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 616 (1989).
- J. Dalibard und C. Cohen-Tannoudji, "Dressed-atom approach to atomic motion in laser light: the dipole force revisited", *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1707 (1985).
- 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 (1989).
- M. D'Angelo, M. V. Chekhova und Y. Shih, "Two-Photon Diffraction and Quantum Lithography", *Phys. Rev. Lett.* **87**, 013602 (2001).
- W. Demtröder, "Laserspektroskopie", Springer-Verlag (1993).
- V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan und D. N. Nikogosyan, "Handbook of Nonlinear Optical Crystals", Springer-Verlag, 3. Auflage (1999).
- R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley und H. Ward, "Laser Phase and Frequency Stabilization Using an Optical Resonator", *Appl. Phys. B* **31**, 97 (1983).
- M. Drewsen, U. Drodofsky, C. Weber, C. Maus, G. Schreiber und J. Mlynek, "Sisyphus polarisation gradient laser cooling of Cr-atoms on the $4s^7S_3 \rightarrow 4p^7P_{2,3,4}$ transition", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, L843 (1996).
- U. Drodofsky, J. Stuhler, B. Brezger, Th. Schulze, M. Drewsen, T. Pfau und J. Mlynek, "Nanometerscale Lithography with Chromium Atoms using Light Forces", *Microelectron. Eng.* **35**, 285 (1997a).
- U. Drodofsky, J. Stuhler, Th. Schulze, M. Drewsen, B. Brezger, T. Pfau und J. Mlynek, "Hexagonal nanostructures generated by light masks for neutral atoms", *Appl. Phys. B* **65**, 755 (1997b).
- U. Drodofsky, "Atomlithographie mit Lichtkräften", Dissertation, Universität Konstanz (1997).
- A. Einstein, "Zur Quantentheorie der Strahlung", *Phys. Z.* **18**, 121 (1917).
- P. Engels, S. Salewski, H. Levsen, K. Sengstock und W. Ertmer, "Atom lithography with a cold, metastable neon beam", *Appl. Phys. B* **69**, 407 (1999).
- P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters und G. Weinreich, "Generation of optical harmonics", *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).

- R. Frisch, "Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrückstoßes", *Z. Phys.* **86**, 42 (1933).
- R. Gupta, J. J. McClelland, Z. J. Jabour und R. J. Celotta, "Nanofabrication of a two-dimensional array using laser-focused atomic-deposition", *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1378 (1995).
- R. Gupta, J. J. McClelland, P. Marte und R. J. Celotta, "Raman-Induced Avoided Crossings in Adiabatic Optical Potentials: Observation of $\lambda/8$ Spatial Frequency in the Distribution of Atoms", *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4689 (1996).
- D. C. Hanna, "Astigmatic Gaussian Beams Produced by Axially Asymmetric Laser Cavities", *IEEE J. of Quant. Electron.* **5**, 483 (1969).
- T. W. Hänsch und B. Couillaud, "Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity", *Opt. Comm.* **35**, 441 (1980).
- F. A. Jenkins und H. E. White, "Fundamentals of Optics", MacGraw Hill, New York, (1957).
- K. Kato, "Tunable UV Generation to $0.2325 \mu\text{m}$ in LiB_3O_5 ", *IEEE J. of Quant. Electron.* **26**, 1173 (1990).
- L. Khaykovich und N. Davidson, "Adiabatic focusing of cold atoms in a blue-detuned laser standing wave", *Appl. Phys. B* **70**, 683 (2000).
- H. Kogelnik, "Imaging of Optical Modes – Resonators with Internal Lenses", *The Bell Sys. Tech. J.* **3**, 455 (1965).
- H. W. Kogelnik, E. P. Ippen, A. Dienes und C. V. Shank, "Astigmatically Compensated Cavities for CW Dye Lasers", *IEEE J. of Quant. Electron.* **8**, 373 (1972).
- M. Kreis, F. Lison, D. Haubrich, D. Meschede, S. Nowak, T. Pfau und J. Mlynek, "Pattern generation with cesium atomic beams at nanometer scales", *Appl. Phys. B* **63**, 649 (1996).
- C. J. Lee, "Quantum-mechanical analysis of atom lithography", *Phys. Rev. A* **61**, 63604 (2000).
- V. S. Letokhov, "Narrowing of Doppler Width in a Standing Light Wave", *JETP Lett.* **7**, 272 (1968),
- F. M. Librecht und J. A. Simons, "Second-Harmonic Generation in Birefringent Crystals by a Gaussian Beam with an Elliptical Cross Section", *IEEE J. of Quant. Electr.* **11**, 850 (1975).
- S. Lin, Z. Sun, B. Wu und C. Chen, "The nonlinear optical characteristics of a LiB_3O_5 crystal", *J. Appl. Phys.* **67**, 634 (1990).
- 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* **65**, 419 (1997).

Literaturverzeichnis

- F. Lison, P. Schuh, D. Haubrich und D. Meschede, "High-brilliance Zeeman-slowed cesium atomic beam", *Phys. Rev. A*, **61** 013405 (1999).
- H. Mabuchi, E. S. Polzik und H. J. Kimble, "Blue-light-induced infrared absorption in KNbO_3 ", *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2023 (1994).
- M. Maret, M. Albrecht, J. Köhler, R. Poinso, C. Ulhaq-Bouillet, J. M. Tonnerre, J. F. Berar und E. Bucher, "Magnetic anisotropy and chemical long-range order in epitaxial ferrimagnetic CrPt_3 films", *J. Magn. Magn. Mater.* **218** 151 (2000).
- C. Maus, "Frequenzverdopplung eines Titan-Saphir-Lasers für die Spektroskopie an Chromatomen", Diplomarbeit, Universität Konstanz (1994).
- J. J. McClelland, R. E. Scholten, E. C. Palm und R. J. Celotta, "Laser-Focused Atomic Deposition", *Science* **262**, 877 (1993).
- J. J. McClelland, "Atom-optical properties of a standing-wave light field", *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 1761 (1995).
- J. J. McClelland, R. Gupta, R. J. Celotta und G. A. Porkolab, "Nanostructure fabrication by reactive-ion etching of laser-focused chromium on silicon", *Appl. Phys. B* **66** 95 (1997).
- R. W. McGowan, D. M. Giltner und S. A. Lee, "Light force cooling, focusing, and nanometer-scale deposition of aluminum atoms", *Opt. Lett.* **20**, 2535 (1995).
- R. Mertens, "Physikalische Grenzen der Atomlithographie mit Chrom", Diplomarbeit, Universität Konstanz (1999).
- B. R. Mollow, "Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems", *Phys. Rev.* **188**, 1969 (1969).
- T. Müther, "Strukturierte Dotierung mittels Atomlithographie", Diplomarbeit, Universität Konstanz (2000).
- M. Mützel, D. Haubrich und D. Meschede, "Nanoscale focusing of atoms with a pulsed standing wave", *Appl. Phys. B* **70**, 689 (2000).
- S. Nowak, T. Pfau und J. Mlynek, "Nanolithography with metastable helium", *Appl. Phys. B*, **63**, 203 (1996).
- S. J. H. Petra, L. Feenstra, W. Vassen und W. Hogervorst, "Nano-lithography with metastable helium atoms", *Proc. IQEC* (2000).
- W. D. Phillips und H. Metcalf, "Laser Deceleration of an Atomic Beam", *Phys. Rev. Lett.* **48**, 596 (1982).
- S. J. Rehse, W. M. Fairbank Jr., S. A. Lee, "Measurement of the hyperfine structure of the $4d^2D_{3/2,5/2}$ levels and isotope shifts of the $4p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^2D_{3/2}$ and $4p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^2D_{5/2}$ transitions in gallium 69 and 71", *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 855 (2001).
- E. Riis, D. S. Weiss, K. A. Moler und S. Chu, "Atom Funnel for the Production of a Slow, High-Density Atomic Beam", *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1658 (1990).

- D. A. Roberts, "Simplified Characterization of Uniaxial and Biaxial Nonlinear Optical Crystals: A Plea for Standardization of Nomenclature and Conventions", *IEEE J. of Quant. Electr.* **28**, 2057 (1992).
- J. J. Sakurai, "Modern Quantum Mechanics", Addison-Wesley, 1. Auflage (1985).
- B. Saleh und M. C. Teich, "Fundamentals of Photonics", John Wiley & Sons (1991).
- C. Salomon, J. Dalibard, A. Aspect, H. Metcalf und C. Cohen-Tannoudji, "Channeling atoms in a laser standing wave", *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1659 (1987).
- P. O. Schmidt, "Lichtmasken in der Atomlithographie", Diplomarbeit, Universität Konstanz (1998).
- Th. Schulze, B. Brezger, P. O. Schmidt, R. Mertens, A. S. Bell, T. Pfau und J. Mlynek, "Sub-100 nm Structures by Neutral Atom Lithography", *Microelectron. Eng.* **46**, 105 (1999).
- Th. Schulze, B. Brezger, R. Mertens, M. Pivk, T. Pfau und J. Mlynek, "Writing a superlattice with light forces", *Appl. Phys. B* **70**, 671 (2000).
- Th. Schulze, "Nanostrukturierung mit Lichtkräften", Dissertation, Universität Konstanz (2000).
- Th. Schulze, T. Müther, D. Jürgens, B. Brezger, M. K. Oberthaler, T. Pfau und J. Mlynek, "Structured doping with light forces", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1781 (2001).
- T. Sleator, T. Pfau, V. I. Balykin und J. Mlynek, "Imaging and Focusing of an Atomic Beam with a Large Period Standing Wave", *Appl. Phys. B* **54**, 375 (1992).
- J. Stuhler, "Atomlithographie mit Chrom", Diplomarbeit, Universität Konstanz (1996).
- J. Stuhler, "Kontinuierliches Laden einer Magnetfalle mit lasergekühlten Chromatomen", Dissertation, Universität Konstanz (2001).
- H. B. Sun, H. Inouye, Y. Inouye, K. Okamoto und S. Kawata, "Laser-Diode-Tuned Sequential Laser Atom Cooling and Trapping for Nanostructures", *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, L711 (2001).
- 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 (1992).
- T. Ukachi, R. J. Lane, W. R. Bosenberg und C. L. Tang, "Measurement of noncritically phase-matched second-harmonic generation in a LiB_3O_5 crystal", *Appl. Phys. Lett.* **57**, 980 (1990).
- S. P. Velsko, M. Webb, L. Davis und C. Huang, "Phased-Matched Harmonic Generation in Lithium Triborate (LBO)", *IEEE J. of Quant. Electr.* **27**, 2182 (1991).
- C. Weber, "Lichtdruck-Lithographie mit Atomen", Diplomarbeit, Universität Konstanz (1995).

Literaturverzeichnis

J. Werner, “Kontinuierliches Laden einer Magnetfalle mit lasergekühlten Chromatomen”, Diplomarbeit, Universität Konstanz (2000).

C. Wieman und T. W. Hänsch, “Doppler-Free Polarization Spectroscopy”, Phys. Rev. Lett. **36**, 1170 (1976).

Danksagung

An dieser Stelle darf ich mich bei allen bedanken die mich während des Studiums und der Diplomarbeit unterstützt haben.

Zuerst geht ein riesiges Dankeschön an meine Eltern, die mich stets in jeder Hinsicht bedingungslos unterstützt haben.

Hier in Konstanz gilt mein Dank

- Herrn Prof. J. Mlynek für die Möglichkeit an einem seiner Experimente mitarbeiten zu dürfen. Er hat in Konstanz hervorragende Bedingungen geschaffen, wovon nun unsere Nachwuchsgruppe profitieren darf.
- Markus Oberthaler, der mich in seine Nachwuchsgruppe aufnahm und mir in vielen wertvollen und spannenden Diskussionen die Welt der Atomoptik näher brachte.
- Dirk Jürgens, meinem Doktoranden, für die Kollegialität und großartige Unterstützung im Labor.
- den anderen Gruppenmitgliedern Bernd, Tom, Karen, Jo und Michael für die gute Stimmung und den Zusammenhalt in unserer Gruppe.
- den anderen (Stuttgarter) Chromis Jürgen, Piet, Sven und Jörg für die Unterstützung in der Anfangsphase.
- Stefan Hahn für seine Beratung und Unterstützung in feinmechanischen Angelegenheiten und sein Organisationstalent.
- Stefan Eggert für seine immer prompte und hochqualifizierte Unterstützung im Kampf gegen widerspenstige elektronische Bauteile.
- Herrn Prof. Leiderer für die Benutzung des AFM und speziell Heiko Elsinger für die Einweisung in dessen Geheimnisse.
- Den Servicemitarbeitern der Firma Coherent, die wir regelmäßig als unsere Gäste begrüßen durften.
- den Werkstätten der Universität für die fachmännisch ausgeführten Arbeiten. Mein besonderer Dank gilt Herrn Jauch für die hochpräzise Fertigung des Resonatorgehäuses.
- allen Korrekturlesern dieser Arbeit.
- meinen Freunden hier in Konstanz für die schöne Zeit während des Studiums.