Erforschung der Korrelationen zwischen den optischen Eigenschaften und den laserspezifischen Parametern von laseraktiven Festkörpermaterialien

Gunter Bitz

Dissertation

D386

Vom Fachbereich Physik der Universität Kaiserslautern
zur Verleihung des akademischen Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“
genehmigte Dissertation

Betreuer: Prof. Dr. R. Wallenstein
Zweitgutachter: Priv. Doz. Dr. L. Ackermann, TU Berlin

Datum der wissenschaftlichen Aussprache: 27.07.2001

Diese elektronische Veröffentlichung ist gleichzeitig unter ISBN 3-932274-63-6 beim TENEA Verlag für Medien, Berlin erschienen.

Abstract

Investigation of correlations between the optical properties and the laser specific parameters of laser-active solid-state materials

This work describes the investigation of correlations between the optical properties and the laser specific parameters of laser-active solid-state materials. A major requirement was the development of methods of measurement for the optical parameters like absorption of the pump and laser wavelength, fluorescence lifetime, variation of refractive index, birefringence and the laser parameters like threshold and slope efficiency in two dimensions with a spatial resolution between 30 and 100 μm.

Therefore well known methods had to be improved concerning accuracy, spatial resolution and long-term stability, to be usable for measurements with a spatial resolution in two dimensions. The achieved relative accuracy in the measurements of the parameters is in the range of 0.1% to 3%.

A second requirement for the development of the described methods of measurement is automation. A typical measurement of a single parameter of a sample with dimensions of 50x50 mm with 30 μm spatial resolution delivers $2.8 \cdot 10^6$ data points. Therefore an extensive software library was developed for full automation of the measurements and for analysis of the data. The analysis allows any desired conjunction between the measured parameters. A prerequisite for this operation is a calibrated coordinate system valid for all measurements.

With these developed methods of measurement a large number of samples and materials was characterized, to gain an overview of possible crystal defects and their implication on the laser process. Such an extensive characterization of laser active materials with the displayed accuracy has not been published till now.

The precise characterization of the optical and the laser specific parameters in conjunction with the developed software were the requirements for the investigation of correlations between these parameters.

In particular the investigations of „Boule“-slices with large diameters up to 50 mm were found to be very important, since areas of very different crystal quality are present in the same sample. To investigate such large samples the long-term stability of the experimental set-up was essential. From these investigations hints to correlations between the prementioned parameters could be deduced, which were investigated quantitatively afterwards. Therefore a quantitative determination of all parameters was indispensable.

A linear correlation could be proven between the stress induced birefringence losses and the laser parameters threshold and slope. The regression coefficient of the correlation between these parameters for 3100 investigated data points was $r = 0.76$.

In the same way the linear correlation between the absolute value of the refractive index gradient, which is a quantum for the optical homogeneity, and the same laser parameters was shown. The regression coefficient is with $r = 0.65$ a little smaller than in the first case, but the whole boule cross section with 265.000 data points was investigated, allowing smaller numbers for r.

In accordance with theory a dependency of the correlation coefficient from the transmittance of the output coupling mirror was displayed. A correlation between the refractive index and the concentration of the laser active ion was shown qualitatively.

These techniques were used for the characterization of Czochralski-Nd:YAG, which could be grown for the first time with a dopant concentration of 2 at.%. A comparision with the well known 1 at.% Nd:YAG showed no degradation in the crystal quality by doubling the dopant concentration. The results of the optical characterization were confirmed by laser experiments even at high power levels of 12 W output power. The 2 at.% doped Nd:YAG showed a slope efficiency of 56.5% in comparison to 53.8% of a 1 at.% Nd:YAG. In relation to a Nd:YVO_4 crystral 2 at.% Nd:YAG delivered the higher output power, where additionally it has to be considered, that the Nd:YVO_4 crystal was operated at 60% of its fracture limit while the Nd:YAG crystal was operated only at 39%.

In the same way the quality assurance was demonstrated at the example of Nd(0.9%):YAG rods from an industrial production.

A check of the original material was performed, to recognize defects in an early stage of production. In terms of a final inspection the optical properties and the laser parameters of five laser rods were inspected. The results showed the smallest values seen in this work of the absolute value of the refractive index gradient. Furthermore the investigation of the stress induced birefringence demonstrated that stress, induced by the crystals core, will vanish after the rods have been drilled from the material. The excellent optical properties of these crystals could be confirmed with laser experiments. In multi mode operation a slope efficiency of 68% was achieved, which is close to the theoretical limit of 72%.

It is shown with this thesis, that a reliable prediction of the laser properties from optical and spectroscopical parameters is possible. Therefore an important prerequisite for the classification of laser active material by certain quality attributes is given. An introduction of quality specifications with defined test methods for laser active materials is now possible. The implementation of the proposed test methods can be the important breakthrough for the laser industry from piece production to the mass market.

Publikationen

In folgenden Publikationen wurden bereits Teilergebnisse dieser Arbeit aus Prioritätsgründen veröffentlicht:

Wissenschaftliche Zeitschriften

1. G. Bitz, V. Wesemann, J. A. L'huillier, P. v. Löwis of Menar, A. Borsutzky and R. Wallenstein, L. Ackermann, K. Dupré, D. Rytz, S. Vernay; "Characterization and laser performance of a new material: 2at.% Nd:YAG"; Veröffentlichung fertiggestellt.

2. J. A. L'huillier, G. Bitz, V. Wesemann, A. Borsutzky and R. Wallenstein; "A non destructive method for Nd concentration measurements in Nd:YAG with high spacial resolution and high accuracy"; Veröffentlichung fertiggestellt.

3. R. Knappe, G. Bitz, K.-J. Boller, R. Wallenstein; "Compact single-frequency diode-pumped Cr^{3+}:LiSAF lasers"; Opt. Commun. **143** 42-46 (1997).

Konferenzbeiträge (international)

1. V.Wesemann, M.Peltz, T.Bauer, J.L'huillier, G.Bitz, R.Wallenstein und A.Borsutzky, Universität Kaiserslautern, Germany, T. Salva, S. Vernay, D. Rytz FEE GmbH, Germany; "Second harmonic generation in the new nonlinear optical material BiB_3O_6"; Cleo/QUELS (2001).

2. G. Bitz, V. Wesemann, J. A. L'huillier, A. Borsutzky und R. Wallenstein; "Characterization and laser performance of a new material: 2 at.% Neodymium doped YAG"; Cleo-Europe/IQEC (2000) CFH1.

3. V. Wesemann, G. Bitz, J. A. L'huillier, A. Borsutzky und R. Wallenstein; "Spatially two-dimensional resolved characterisation of Nd:YAG boule slices"; Cleo-Europe/IQEC (2000) CFH4.

4. R. Knappe, G. Bitz, K.-J. Boller, R. Wallenstein; "Tunable single-frequency diode-pumped Cr^{3+}:LiSAF microchip lasers"; OSA Technical Digest, Cleo-Europe, paper CFH3 p. 345 (1996).

Konferenzbeiträge (national)

1. M. Peltz, V. Wesemann, T. Bauer, J. L'huillier, G. Bitz, R. Wallenstein und A. Borsutzky, Universität Kaiserslautern, Germany, T. Salva, S. Vernay, D. Rytz FEE GmbH, Germany; „Erzeugung der zweiten Harmonischen im neuen nichtlinearen Kristall Wismutborat (BiB_3O_6)“; Verhandlungen der DPG 2001.

2. J. L'huillier, G. Bitz, V. Wesemann, A. Borsutzky and R. Wallenstein; „Mehrdimensional aufgelöste Fluoreszenzlebensdauermessungen zur Charakterisierung der Dotierungsverteilung in Nd:YAG“; Verhandlungen der DPG (2000) Q35.4.

3. V. Wesemann, G. Bitz, J. L'huillier, A. Borsutzky, R. Wallenstein; „Untersuchung der Korrelation zwischen den Lasereigenschaften und der optischen Qualität von Nd:YAG Kristallen“; Verhandlungen der DPG (1999) Q24.4.

Sonstige Publikationen

1. G. Bitz, V. Wesemann, A. Borsutzky und R. Wallenstein; Abschlußbericht des BMBF Forschungsvorhabens; „Charakterisierung, Qualifizierung und Test von neuen laseraktiven kristallinen Materialien“; Förderkennzeichen 13 N 6728 / 5.

2. J. L'huillier, G. Bitz, V. Wesemann, A. Borsutzky und R. Wallenstein; Abschlußbericht des Forschungs- und Entwicklungsvorhabens der Stiftung Rheinland-Pfalz für Innovation; „Neue Methoden zur Charakterisierung und Qualifizierung von Laserkristallen“; Förderkennzeichen 8312-38 62 61/409.

Inhaltsverzeichnis

Kapitel 1

Einleitung

Die Lasertechnik hat sich zu einem bedeutenden Industriezweig entwickelt. Für die Zukunft besitzen vor allem die optisch angeregten Festkörperlaser ein großes Anwendungspotential. Der Grund dafür ist die Verfügbarkeit von neuen leistungsfähigen Laserkristallen und von leistungsstarken Halbleiterdiodenlasern, die zur effizienten optischen Anregung genutzt werden. Die industrielle Serienfertigung von Lasern erfordert Komponenten mit geprüfter Qualität. Während für Halbleiterlaser aussagekräftige Prüfverfahren eingesetzt werden, gab es für Laserkristalle bisher keine Meßverfahren, die vorab eine hinreichend genaue Beurteilung der Qualität der laseraktiven Kristalleigenschaften zulassen.

Der Qualitätstest eines Laserkristalls erfolgt daher in der Regel erst durch den Einbau in den Festkörperlaser, also in das Zielprodukt. Sind mit dem eingebauten Kristall die geforderten Lasereigenschaften wie z. B. Leistung und Strahlprofil nicht zu erreichen, muß ein anderer Stab eingebaut werden. Diese Vorgehensweise ist kosten- und zeitaufwendig.

Die wissenschaftlichen Schwerpunkte dieser Arbeit beinhalten daher die Erforschung hochpräziser Meßverfahren, mit denen eine Charakterisierung von Laserkristallen bezüglich der optischen Parameter und den laserspezifischen Parametern wie Schwelle und differentieller Wirkungsgrad durchgeführt werden kann.

Aus einer quantitativen Analyse der erzielten experimentellen Ergebnisse werden Korrelationen zwischen den optischen Eigenschaften und den Lasereigenschaften der Materialien erarbeitet.

Die optischen Parameter, die für die Charakterisierung von Lasermaterialien relevant sind und in dieser Arbeit untersucht werden, sind die Homogenität des Brechungsindex, die optische Doppelbrechung, die Konzentration und Homogenität der Dotierung, die spektrale Abhängigkeit der Absorption sowie die Absorptionsverluste im spektralen Bereich der Laserwellenlänge.

Die Methoden der optischen Charakterisierung, wie die Schlierenmethode, die Messung der Absorption und der Fluoreszenzlebensdauer des laseraktiven Ions, das Absorptionskalorimeter und die Methode des Findlay-Clay Plots sind in der Literatur beschrieben:

So wird fast überall, wo laseraktive Materialien hergestellt werden, eine interferometrische Untersuchung zur Überprüfung von Phasenfrontverzerrungen beim Durchgang durch den Kristall angewandt [Ai91, Mal78, Ada61, Schw85].

Als Alternative zur Bestimmung von Inhomogenitäten des Brechungsindex wurde hier die Schlierenmethode [Scha42] weiterentwickelt [Set82, How84, Buc93, How85, Gre95]. Diese Methode besticht durch ihren geringen experimentellen Aufwand und eine höhere Genauigkeit als ein Standard-Interferometer. Eine direkte quantitative Auswertung von Schlierenaufnahmen war bisher nicht publiziert und wird hier vorgenommen.

Die Doppelbrechung wird im Allgemeinen über die Transmission der Probe zwischen gekreuzten Polarisatoren [The79, Bir74, Coc92] gemessen. Diese sogenannte Extinktionsmethode wird von den meisten Kristallherstellern in Polariskopen benutzt, um eine schnelle Überprüfung der mechanischen Spannungen des gezüchteten Kristalls zu erhalten. Allerdings liefert diese Methode nur qualitative Aussagen über das Vorhandensein von Störstellen. Genauere Werte liefert die vollständige quantitative Bestimmung der Jones-Matrix, wie in dieser Arbeit dargestellt.

Die räumliche Verteilung der Dotierung wurde bisher in der Literatur nicht detailliert untersucht, obwohl die Konzentration des laseraktiven Ions ein wichtiger Parameter beim Entwurf von Festkörperlasern ist. Auch die räumliche Verteilung der Dotierung ist eine wichtige Größe in der Beurteilung der Kristallqualität und wirkt sich auf Laserparameter wie den differentiellen Wirkungsgrad und das Strahlprofil aus. In der Publikation von B. Gu [Gu89] werden ausschließlich punktuelle Messungen der Konzentration an zwei bis vier Ortskoordinaten der Probe miteinander verglichen. In der vorliegenden Arbeit werden zwei unterschiedliche Verfahren zur Bestimmung der Dotierungskonzentration untersucht und miteinander verglichen:

Zum einen wird die Konzentration direkt durch Messung des Absorptionskoeffizienten bei einer bestimmten Wellenlänge, für die das Material eine Absorption zeigt, bestimmt.

Zum anderen wird die Methode der Messung der Fluoreszenzlebensdauer eines angeregten Niveaus des Dotierungsions angewandt. Dieses Meßverfahren wurde bereits erfolgreich zur Konzentrationsbestimmung benutzt. Dabei wird der Effekt des „Konzentrationsquenchings“ [For48, Dex53, Pow98] ausgenutzt, der eine Verkürzung der Lebensdauer mit zunehmender Konzentration bewirkt. Die einzelnen Methoden in der Literatur [Sli79, Deb80, For90, Lia74, Dev83, Lup86] unterscheiden sich im Wesentlichen in den verwendeten Pumpquellen und dem Detektorsystem. Lediglich in den Arbeiten von K. K. Deb [Deb80] und M. Fornoni [For90] vorgestellten Messungen wurde die Fluoreszenzlebensdauer an mehreren Punkten im Abstand von ungefähr 1 cm entlang der Zuchtrichtung gemessen. Bei allen anderen Messungen wurde jeweils nur an einzelnen Punkten auf der Kristallfacette gemessen. Im Gegensatz zu den oben aufgeführten Messungen wird in dieser Arbeit erstmalig die Fluoreszenzlebensdauer, ebenso wie die Absorption des laseraktiven Ions, systematisch mit hoher räumlicher Auflösung bestimmt.

Die Beurteilung der laserspezifischen Kristalleigenschaften erfolgt in selbst entwickelten Prüfresonatoren, die auf Standard Laserresonatoren wie dem „V-Resonator“ und dem „fast konzentrischen Resonator“ [Koe88] beruhen. Ein Maß für die Qualität des Kristalls ist die Anregungsleistung zum Erreichen der Schwelle und der erzielte differentielle Wirkungsgrad. Die Verluste werden dann aus dem sogenannten Findlay-Plot bestimmt [Fin66]. Alternativ können die Verluste auch mit einem Absorptionskalorimeter bestimmt werden [Wil98].

All den bisher publizierten optischen Charakterisierungmethoden [Pei88, Wil68, Kue86] ist gemein, daß sie nur zum Teil quantitative Beurteilungen mit geringer Sensitivität zulassen und keinen quantitativen Vergleich einer Kristallprobe in den verschiedenen Meßmethoden beschreiben.

Die entscheidende Verbesserung in der Charakterisierung von laseraktiven Materialien wird durch die in dieser Arbeit realisierten zweidimensionalen Meßverfahren erreicht. Dazu werden die oben beschrieben Meßmethoden hinsichtlich der Genauigkeit, der räumlichen Auflösung und der Langzeitstabilität verbessert, so daß zweidimensional aufgelöste, automatisierte Messungen ermöglicht werden.

Die zweite wichtige Voraussetzung für die Realisierung zweidimensionaler Messungen mit einer räumlichen Auflösung zwischen 30 und 100 μm, bei einer Größe der Proben von bis zu 50 x 50 mm, ist die vollständige Automatisierung der Messung, da niemand in der Lage wäre, die erforderlichen $2,8 \cdot 10^6$ Meßpunkte manuell aufzunehmen. Hierfür wurde eine umfangreiche Softwarebibliothek zur vollständigen Automatisierung der Messungen und zur Auswertung der Daten entwickelt.

Mit den entwickelten Meßverfahren war erstmals eine systematische Untersuchung vieler verschiedener Proben variabler Geometrie mit hoher räumlicher Auflösung möglich.

Die Messungen bilden die Grundlage für eine quantitative Analyse der Korrelationen zwischen den optischen Eigenschaften und den laserspezifischen Eigenschaften der laseraktiven Materialien. Bisher ist in der Literatur kein derartig umfassender Vergleich gezogen worden, da die Genauigkeit der Meßmethoden, die für die Bestimmung der optischen Eigenschaften verwendet wurden, nicht ausreichend war. Insbesondere die Untersuchung der Querschnitte kompletter „Boules[1]“ mit großem Durchmesser von bis zu 50 mm war sehr wichtig, da hier in derselben Probe Bereiche sehr unterschiedlicher Kristallqualität gemeinsam auftreten, die die entscheidenden Hinweise auf die gesuchten Korrelationen lieferten. Zweidimensionale Messungen von Proben dieser Größe waren bisher wegen der hohen Anforderungen an die Meßmethoden nicht möglich.

Zur systematischen Erforschung der Korrelationen wird in dieser Arbeit das Material Nd:YAG gewählt. Die Herstellung dieses Materials hat seit vielen Jahren einen hohen Standard erreicht, so daß eine große Anzahl von Proben in reproduzierbarer Kristallqualität zur Verfügung stand. Darüber hinaus konnten die Charakterisierungsverfahren in enger Koope-

[1] franz.: Kugel. Die ersten synthetischen Kristalle hatten die Form einer unregelmäßigen Kugel. Der Begriff ist bis heute erhalten geblieben, obwohl moderne Kristalle eine zylindrische Form haben (s. Abbildung 2.1).

ration mit den Herstellern angewandt werden, um die Produktion von Nd:YAG Stäben für Festkörperlaser in Form einer Qualitätskontrolle zu überwachen.

Die erarbeiteten Ergebnisse am Beispiel Nd:YAG zeigen erstmalig eine eindeutige Korrelation zwischen den gemessenen optischen und den experimentell bestimmten laserphysikalischen Eigenschaften. Dieses wichtige Ergebnis eröffnet nun die Möglichkeit, allein aus der präzisen Messung der optischen Eigenschaften eine verläßliche Aussage über deren Verwendbarkeit in einem Laser mit spezifizierter Leistung und Strahlqualität zu gewinnen.

Dieses Verfahren wurde in der hier vorliegenden Arbeit in der praktischen Anwendung erprobt und überprüft. Die ersten Nd:YAG Kristalle mit einer Dotierungskonzentration von 2 at.%, die im Jahre 2000 mit der Czochralski-Zuchtmethode hergestellt werden konnten, wurden mit den hier entwickelten Charakterisierungsverfahren untersucht. Die Qualität dieser Kristalle, die vor allem in der Entwicklung von Hochleistungs-Festkörperlasersystemen für neue Impulse sorgen dürften, konnte so direkt auf Grund einer quantitativen Analyse den Daten anderer Materialien gegenübergestellt werden. Insbesondere wurde untersucht, inwiefern sich die höhere Dotierungskonzentration gegenüber der Standard 1 at.% Dotierung von Nd:YAG auf die Kristallqualität auswirkt. Die Ergebnisse der optische Charakterisierung, die dem 2 at.% Material eine sehr gute Qualität bescheinigte, wurden in einem Laserresonator im direkten Vergleich mit anderen Materialien überprüft. Dabei konnten die Resultate der optischen Charakterisierung bestätigt werden.

Eine verläßliche Vorhersage der Lasereigenschaften aus optischen und spektroskopischen Daten ist ein wichtiger Schritt zur Klassifizierung von laseraktiven Materialien nach bestimmten Qualitätsmerkmalen. Diese Klassifizierung wird die Grundlage schaffen von Qualitätsnormen. Da es sich bei den Laserkristallen um eine wichtige Basiskomponente der Lasertechnik handelt, stellt die Einführung von Qualitätsnormen einen großen Fortschritt dar.

Kapitel 2

Zucht laseraktiver Kristalle

2.1 Czochralski Ziehverfahren

Das bei Oxid-Kristallen gebräuchlichste Zuchtverfahren ist das „Czochralski-Verfahren“ [Czo18].

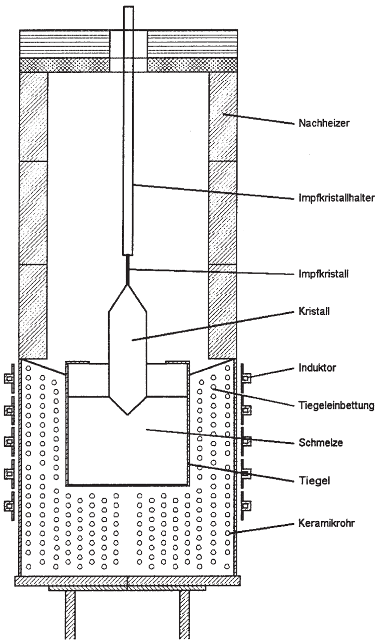

Abbildung 2.1: Links: Aufbau einer typischen Zuchtapparatur für die Czochralski-Methode. Rechts: Mit einer Czochralski-Apparatur hergestellter Nd:YAG Boule. Der Kristall ist direkt unterhalb des Impfkristalls abgetrennt worden (oben im Bild), darauf folgt ein Bereich mit monotoner Zunahme des Durchmessers, danach Wachstum mit konstantem Durchmesser. Der Kristall ist nicht in voller Länge abgebildet. Die untere Hälfte ist bereits abgetrennt. Quelle: L. Ackermann [Ack]

Bei diesem Zuchtverfahren wird ein Keimkristall in eine Schmelze (flüssige Phase) eingetaucht. An diesem setzt dann die Kristallisation ein und er wird langsam aus der flüssigen Phase gezogen (siehe Abbildung 2.1). Dabei wird stets ein Temperaturgradient zwischen Kristall und Schmelze aufrecht erhalten. Der Temperaturgradient und die Ziehgeschwindigkeit v_Z, d.h die Geschwindigkeit mit der der Kristall aus der Schmelze gezogen wird, bestimmen entscheidend das Wachstum. Ein wichtiger Parameter ist die Anpassung der Ziehgeschwindigkeit an die Kristallisationsgeschwindigkeit v_K.

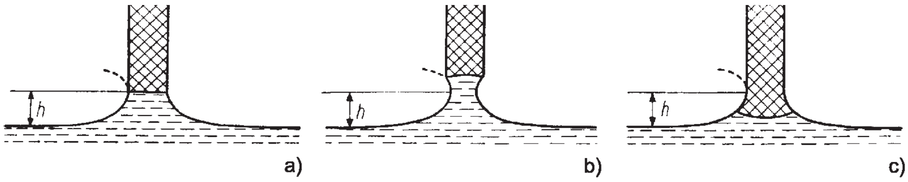

Abbildung 2.2: Kristallwachstum bei verschiedenen Ziehgeschwindigkeiten v_Z und Kristallisationsgeschwindigkeiten v_K : (a) $v_K = v_Z$, (b)$v_K < v_Z$, (c)$v_K > v_Z$. Quelle: K.-Th. Wilke [Wil73]

In Abbildung 2.2 sind die drei möglichen Fälle dargestellt. Das Wachstum verläuft stationär, wenn die Zuchtgeschwindigkeit v_Z gerade gleich der Wachstumsgeschwindigkeit v_K ist (Fall a). Ist $v_Z > v_K$ (Fall b) so wird der Kristall-Durchmesser kleiner, bei $v_Z < v_K$ (Fall c) wird er größer. Eine detaillierte Beschreibung dieser Methode findet sich in der Literatur [Ack, Wil73, Czo18].

2.2 Verteilungsinhomogenitäten

2.2.1 Transportprozesse

Kristallisation aus Lösungen

Bei der Kristallisation spielen Wärmetransport und Massentransport eine entscheidende Rolle. Bei Wachstum aus Lösungen, wie wäßrige Lösungen, Schmelzlösungen, dotierte Schmelzen etc., ist besonders der Massentransport (Diffusion) von Bedeutung. Der Kristall übernimmt die gelöste Phase aus dem Lösungsmittel, das von der wachsenden Kristallfront abgewiesen wird. Dadurch entsteht vor der Wachstumsfront eine Abnahme der Konzentration der gelösten Phase und eine Grenzschicht der Dicke δ, die durch Diffusion überwunden werden muß (Abbildung 2.3). Die Grenzschichtdicke δ wird durch die Konvektionsverhältnisse bestimmt und ist z. B. durch Rühren oder Rotation der Kristalle zu beeinflussen.

Für die Massenstromdichte j (Diffusionstransport) aus der übersättigten Lösung zur

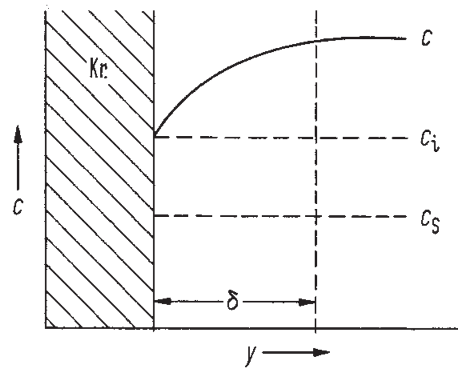

Abbildung 2.3: Konzentrationsverhältnisse vor einer Kristallfläche beim Wachstum aus Lösungen. Quelle: K. Recker [Rec78]

Grenzschicht gilt nach dem 1. Fick-Gesetz:

$$j = \frac{D}{\delta}(c - c_i) \tag{2.1}$$

(mit D = Diffusionskoeffizient für die Diffusion des Gelösten in der gesättigten Lösung, c = Konzentration der übersättigten Lösung, $c_i = c_i(hkl)$ = Konzentration an der Kristallfläche).

Für die Anlagerungsgeschwindigkeit gilt:

$$j = k_g(c_i - c_s) \tag{2.2}$$

(mit c_s = Sättigungskonzentration, $k_g = k_g(hkl)$ = Geschwindigkeitskonstante der Grenzflächenreaktion, abhängig von der kristallographischen Richtung).

Die Grenzflächenreaktion c_i ist schwer zu bestimmen. Sie läßt sich bei Annahme eines stationären Gleichgewichts von Anlagerung und Diffusion aus Gleichung 2.1 und 2.2 eliminieren, so daß für die Wachstumsgeschwindigkeit u folgt (Berthoud-Gleichung):

$$u = jV_M = \frac{c - c_s}{\frac{\delta}{D} + \frac{1}{k_g}} \cdot V_M \tag{2.3}$$

(mit V_M = Molvolumen). Der Nenner kann als Stoffübergangswiderstand aufgefaßt werden, der sich aus dem Diffusionswiderstand δ/D und dem Grenzflächenwiderstand $1/k_d$ zusammensetzt und von Temperatur und Übersättigung abhängt. Typische Wachstumsgeschwindigkeiten bei Lösungszüchtungen liegen in der Größenordnung von einigen $10^{-9}\,\mathrm{ms}^{-1}$.

Kristallisation aus Schmelzen

Bei der Kristallisation ist für die Anlagerungsreaktion die Unterkühlung unmittelbar an der Kristalloberfläche maßgebend, und es wird statt Massentransport der Wärmetransport, d. h.

Ableitung der freiwerdenden Kristallisationswärme, wachstumsbestimmend. Für die lineare Wachstumsgeschwindigkeit u ergibt sich [Wil73]:

$$u = \frac{\lambda_S \left(\frac{dT}{dy}\right)_S - \lambda_L \left(\frac{dT}{dy}\right)_L}{\Delta H \cdot \varrho_s} \tag{2.4}$$

(mit λ_S bzw. λ_L = Wärmeleitfähigkeiten von Kristall bzw. Schmelze, $(dT/dy)_S$ bzw. $(dT/dy)_L$ = Temperaturgradienten in Kristall bzw. Schmelze, y = Koordinate senkrecht zur Wachstumsfront, ΔH = Kristallisationswärme, ϱ_s = Dichte des Kristalles).

Bei Wärmeableitung durch den Kristall ergibt sich hiernach die größte Wachstumsgeschwindigkeit, wenn der Temperaturgradient in der Schmelze klein und der im Kristall groß gehalten werden. Da die Temperaturgradienten aus experimentellen Gründen aber nicht beliebig gewählt werden können, lassen sich größere Wachstumsgeschwindigkeiten nur bei Substanzen mit guter Wärmeleitfähigkeit erzielen. Typische Wachstumsgeschwindigkeiten bei Schmelzzüchtungen liegen in der Größenordnung von einigen $10^{-9}\,\mathrm{ms}^{-1}$.

2.2.2 Verteilungskoeffizient

Bei der Kristallisation einer Substanz in einem Zwei- oder Mehrstoffsystem treten vor der Wachstumsfront ein Konzentrationsgradient und eine Diffusionsschicht der Dicke δ auf, da im Allgemeinen eine der Komponenten abgewiesen wird und der Substanzaustausch mit der übrigen Schmelze oder Lösung nicht unendlich schnell ist. Die Grenzschicht erfaßt die molekularkinetischen Vorgänge an der Phasengrenze und zurück (Transportprozesse). Wird als Beispiel ein Zweistoffsystem mit den beiden Stoffen A als Wirt und B als Gast (d. h. B-Konzentration gering) betrachtet, so wird allgemein bei einem Verteilungskoeffizienten $k_0 < 1$ die Konzentration der Gastphase B vor der Wachstumsfront größer, bei $k_0 > 1$ kleiner als in der übrigen Schmelze. Durch die Wachstumsvorgänge werden die Verteilungsverhältnisse und k_0-Werte (definiert für $u = 0$) verändert. Abbildung 2.4 zeigt als Beispiel die Konzentrationsverhältnisse an der Wachstumsfront für $k_0 < 1$.

Bezüglich der Prozesse an der Phasengrenze läßt sich ein kinetischer Verteilungskoeffizient definieren:

$$k_i = \frac{c_s}{c_i} \quad (\text{mit} \quad u \neq 0, c_i \neq c_L, k_i \neq k_0) \tag{2.5}$$

(mit c_s, c_i, c_L = Konzentration im Kristall, an der Grenzfläche, in der Schmelze).

Der kinetische Verteilungskoeffizient k_i kann nicht direkt gemessen werden und hängt ab von der Überschreitung an der Phasengrenze, der Dicke von δ (die durch Konvektion und Rühren beeinflußt werden kann), der Wachstumsgeschwindigkeit, der Wachstumsrichtung bzw. -fläche (hkl) und anderen Faktoren. Für kleine Wachstumsgeschwindigkeiten gilt oft $k_i = k_0$. Der Koeffizient k_i hat besondere Bedeutung für Kristallisationen aus Lösungen und Gasen, weniger für die aus Schmelzen, bei denen Transportvorgänge stärker zu berücksichtigen sind. Bei fortschreitender Kristallisation verändern sich die Zustandsparameter des

Systems, vor allem die Zusammensetzung. Die Veränderung der Zusammensetzung c_L der Gesamtschmelze berücksichtigt der effektive Verteilungskoeffizient k_e.

$$k_e = \frac{c_s}{c_L} = \frac{k_i c_i}{c_L} \tag{2.6}$$

k_e wird beeinflußt von den Transportvorgängen, die naturgemäß bei den einzelnen Züchtungsmethoden verschieden sind. Die Zusammenhänge zwischen k_e, k_i, u, δ und der Diffusionskonstante D der Gastphase in der flüssigen Phase für Kristallisationen aus Schmelzen sind nach Burton [Bur53] gegeben durch:

$$k_e = \frac{k_i}{k_i + (1 - k_i)e^{-(u\delta/D)(\varrho_S/\varrho_L)}} \tag{2.7}$$

Für k_i wird in Gleichung 2.7 oft k_0, für ϱ_S/ϱ_L meist 1 gesetzt. Die effektiven Verteilungsinhomogenitäten in Kristallen entsprechen also nicht mehr dem thermodynamischen Gleichgewicht und sind von k_i (bzw. k_0), dem Diffusionsverhalten (δ/D) und besonders der Verschiebungsgeschwindigkeit der Phasengrenze $u = u(hkl)$ abhängig. Die Breite δ der Diffusionszone kann bereits durch mäßiges Rühren oder durch Konvektion klein und für alle Flächen ungefähr gleich gemacht werden.

Bei der Einkristallzüchtung stellt sich bei konstanten Wachstumsbedingungen ein konstantes k_e ein, welches für die Nd:YAG Zucht beispielsweise $\approx 0,2$ beträgt. Dieser stationäre Zustand stellt sich bei guter Durchmischung relativ schnell ein, bei schlechter Durchmischung relativ langsam, unter Umständen erst nach einer gewissen Kristallisationsdauer bzw. nach Kristallängen von mehreren Zentimetern. Die Durchmischung durch Konvektion oder Rührung spielt somit im Hinblick auf die Homogenität der Kristalle eine wesentliche Rolle [Car68]. Bei Änderung von u während des Wachstums verändert sich der stationäre Zustand, wobei wiederum Übergangsdistanzen auftreten. Innerhalb dieser Distanzen erfolgt der Übergang in den neuen stationären Zustand nicht monoton, sondern $c_S(y)$ durchläuft für $k_e < 1$ ein Maximum und für $k_e > 1$ ein Minimum (s. auch Abschnitt 2.3.2 „Zonar-Bauten“).

2.2.3 Konstitutionelle Unterkühlung

Dem Konzentrationsverlauf $c(y)$ einer Gastphase vor der Wachstumsfront (s. Abbildung 2.4) entspricht gemäß Phasendiagramm ein Gleichgewichtstemperaturverlauf nach Kurve $T_c(y)$. Im Wachstumsraum (Ofen, Tiegel) liegt aber im Allgemeinen ein Temperaturgradient dT/dy vor, der nicht mit der Kurve $T_c(y)$ übereinstimmt (z. B. G_1 oder G_2). Schneidet der Temperaturgradient (wie z. B. G_2) die Kurve, dann entsteht vor der Wachstumsfront ein Gebiet, das unterkühlt ist; man spricht von konstitutioneller Unterkühlung. Der Kristall versucht, diese Unterkühlung durch einen schnellen Wachstumsvorstoß in die Schmelze auszugleichen. Die ebene Wachstumsfront wird instabil, und es entstehen bestimmte Wachstumsstörungen oder -strukturen mit starken Verteilungsinhomogenitäten, z. B. Zellenbildung mit Gastphasen-Einschlüssen an den Zellgrenzen oder Schichten mit starken Verteilungsinhomogenitäten

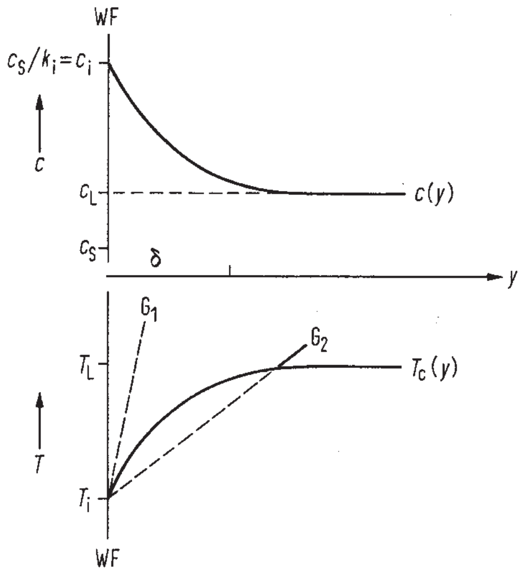

Abbildung 2.4: Konzentrationsverlauf $c(y)$ sowie Temperaturverlauf $T_c(y)$ vor der Wachstumsfront WF mit konstitutioneller Unterkühlung (für $k < 1$). Quelle: K. Recker [Rec78]

(ähnlich Streifenbildungen oder Zonar-Bauten). Art und Form der Wachstumsstrukturen sind von den Wachstumsparametern, vor allem dem Anstieg des Temperaturgradienten vor der Wachstumsfront, abhängig. Konstitutionelle Unterkühlung und damit die oben angeführten Baufehler und Inhomogenitäten treten nicht auf, wenn der Temperaturgradient so steil verläuft, daß er die Kurve $T_c(y)$ nicht schneidet (G_1 in Abbildung 2.4).

In der Praxis ist der Temperaturgradient nicht beliebig wählbar. Außerdem können starke Temperaturgradienten Spannungen im Kristall erzeugen, so daß bei den Züchtungen stets Kompromisse gesucht werden müssen. Diese Tatsache gilt allgemein, da die verschiedenen Faktoren des Wachstums sich vielfach unterschiedlich auswirken, so daß die Zuchtparameter optimal aufeinander abgestimmt werden müssen. Die konstitutionelle Unterkühlung hat praktisch keine Bedeutung bei der Züchtung reiner Substanzen, jedoch bereitet sie große Schwierigkeiten bei der Züchtung von homogenen, dotierten Kristallen und Mischkristallen sowie bei der Züchtung aus Lösungen oder Schmelzlösungen.

2.2.4 Konzentrationsverteilung entlang der Zuchtrichtung

Da für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien $k_0 < 1$ und damit auch $k_e < 1$ ist, bildet sich entlang der Zuchtrichtung ein Konzentrationsgradient aus. Der Verteilungskoeffizient bewirkt, daß während des Wachstumsprozesses im Verhältnis mehr Anteile der Wirtphase als der Gastphase aus der Schmelze entnommen werden. Dies führt zu einer Anreicherung der Gastphase in der Schmelze. Die Stärke und die Form des Gradienten werden durch das Verhältnis von Ausgangsmaterial zu dem aus der Schmelze entnommenen Material bestimmt. Dabei muß berücksichtigt werden, daß diese Anreicherung der Gastphase zunächst in einer kleinen Umgebung der Wachstumsfront geschieht. Erst durch Diffusion oder Konvektion werden die Konzentrationsunterschiede langsam in der flüssigen Phase ausgeglichen. Die Geschwindigkeit, mit der diese Transportprozesse ablaufen, liegt in der Größenordnung der Ziehgeschwindigkeit. Dies erhöht die Konzentration der Gastphase in unmittelbarer Nähe der Wachstumsfront im Vergleich zur restlichen Schmelze.

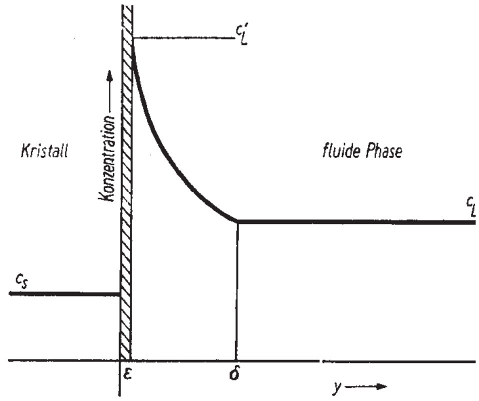

Abbildung 2.5: Konzentrationsverlauf einer gelösten Komponente mit $k_e < 1$ bei der Kristallisation vor einer ebenen Wachstumsfront. Quelle: K.-Th. Wilke [Wil73]

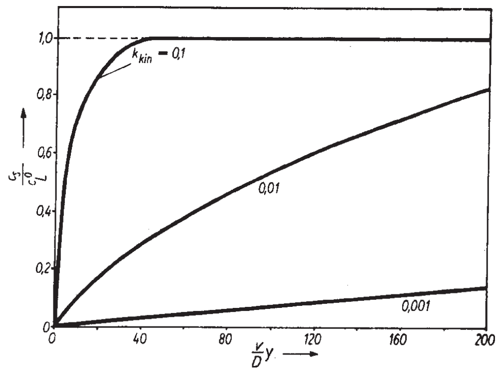

Abbildung 2.6: Anfangsverlauf der relativen Konzentration einer gelösten Komponente in einem Stab nach Kristallisationsbeginn. Dargestellt sind verschiedene kinetische Verteilungskoeffizienten bei fehlender Durchmischung. Quelle: K.-Th. Wilke [Wil73]

Die Verteilung der Gastphase entlang der Zuchtrichtung $C(x)$ im Kristall wird beschrieben durch den Zusammenhang [Wil73, For90]

$$C(x) = C_L(0) \cdot k\,(1-gx)^{k-1} \tag{2.8}$$

Hierbei ist $C_L(0)$ die Anfangskonzentration in der Schmelze, k der Verteilungskoeffizient und g ein Geometriefaktor, der den pro Längeneinheit aus der Schmelze entnommenen Materialanteil angibt.

Um den Kurvenverlauf einfacher diskutieren zu können, wird Gleichung 2.8 in eine Taylorreihe um $x = 0$ entwickelt. Mit der Anfangskonzentration im Kristall $C(0) := C_S(0) = C_L(0) \cdot k$ folgt

$$\begin{aligned} C(x) = C(0) \quad &- \quad C(0)\frac{g(k-1)}{1!}x + C(0)\frac{g^2(k-1)(k-2)}{2!}x^2 \\ &- \quad C(0)\frac{g^3(k-1)(k-2)(k-3)}{3!}x^3 + .. \end{aligned} \tag{2.9}$$

Die so entwickelte Reihe ist ein Polynom, das sich vereinfachen läßt.

Für $g \to 0$ werden alle Terme mit Ausnahme des Ersten gleich Null und die Konzentration der Gastphase bleibt entlang der Zuchtrichtung konstant. Dies beschreibt den Fall, in dem nur sehr wenig Material aus der Schmelze entnommen wird.

Ist die Materialmenge in der Schmelze groß gegenüber der Menge des gezüchteten Kristalls ist der Geometriefaktor g klein. Dann kann der Verlauf durch die ersten beiden Terme beschrieben werden:

$$C(x) = C(0) - C(0)g(k-1)\,x \tag{2.10}$$

In diesem Fall wird der Konzentrationsverlauf durch die Anfangskonzentration $C(0)$ und einen zu x proportionalen Term beschrieben. Für einen Verteilungskoeffizienten $k < 1$ steigt die Dotierungskonzentration im Kristall linear mit der Kristallänge. Ist der Verteilungskoeffizient $k > 1$ sinkt die Dotierungskonzentration im Kristall entsprechend.

Für reale Kristalle muß noch der quadratische Term aus Gleichung 2.9 berücksichtigt werden. Im Wesentlichen beschreibt jedoch bereits Gleichung 2.10 die Änderung der Konzentration der Gastphase im Kristall. Mit den Abkürzungen

$$\alpha = g(k-1) \tag{2.11}$$

$$\beta = \frac{g^2(k-1)(k-2)}{2!} \tag{2.12}$$

folgt aus Gleichung 2.9

$$C(x) = C(0) - C(0)\alpha x + C(0)\beta x^2. \tag{2.13}$$

Hat man aus einem gemessenen Kurvenverlauf die Konstanten α und β bestimmt, kann man die Gleichungen 2.11 und 2.12 zur Bestimmung von g und k verwenden. Löst man die

Gleichungen 2.11 und 2.12 nach g und k auf, folgt

$$k = \frac{\alpha}{C(0)g} + 1 \tag{2.14}$$

$$g = \frac{\alpha}{C(0)} - \frac{2\beta}{\alpha}. \tag{2.15}$$

Der Term $\alpha/C(0)$ gibt direkt die relative Konzentrationsänderung pro Längeneinheit an.

2.3 Morphologische Grundlagen

2.3.1 Wachstumsformen

Beim ungehinderten Wachstum der Kristalle ensteht im Allgemeinen ein Kristallpolyeder [Hon58]. Dieses ist nach Art (Tracht) und Größenverhältnis (Habitus) der auftretenden Flächen bei Gleichgewicht und bei kleinen Kristallen ($\leq 1\,\mu$m) streng definiert. Es gilt die Gibbs-Bedingung:

$$\sum \sigma_i F_i = \text{Minimum} \tag{2.16}$$

(mit σ_i = spezifische freie Oberflächenenergie, F_i = Flächeninhalt der i-ten Fläche).

Nach Gleichung 2.16 ist von allen theoretisch möglichen Kristallformen die Form mit der geringsten freien Oberflächenenergie die Gleichgewichtsform (=Endform). Die Lösung von Gleichung 2.16 führt zum sogenannten Wulff-Satz:

$$\frac{\sigma_1}{h_1} = \frac{\sigma_2}{h_2} = \frac{\sigma_i}{h_i} = \text{konst.} \tag{2.17}$$

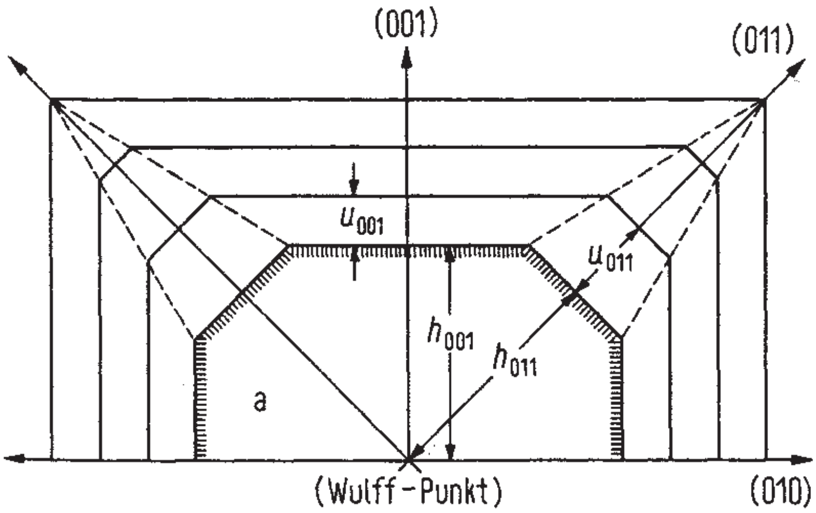

Abbildung 2.7: Tracht-Änderung eines Steinsalz-Kristalles. Quelle: A. Neuhaus [Neu56]

(mit h_i = Zentraldistanz der i-ten Fläche, proportional der linearen Wachstumsgeschwindigkeit, s. auch Abbildung 2.7)

Aus Gleichung 2.16 und 2.17 folgt, daß die linearen Wachstumsgeschwindigkeiten für die einzelnen Flächen proportional zu σ sind, Flächen der gleichen Form gleiche Wachstumsgeschwindigkeiten besitzen und der wachsende Kristall sich durch Flächen kleinster σ-Werte, d. h. kleinster linearer Wachstumsgeschwindigkeit und kleinster Indizes, abzugrenzen strebt. Abbildung 2.7 zeigt als Beispiel die Trachtänderung eines Natriumchlorid-Kristalles mit den Ausgangsflächen $\{100\}$ und $\{110\}$ beim Wachstum aus reiner, schwach übersättigter wäßriger Lösung. Für NaCl ist $u_{110} > u_{100}$. Es verbleibt deshalb schließlich der reine Würfel $\{100\}$ als Endtracht.

Die Beziehungen, die für kleine Kristalle gelten, lassen sich nur mit Vorbehalt auf größere Kristalle übertragen. Die Kristallzüchtung arbeitet nicht im Gleichgewicht. Die Wachstumsformen makroskopischer Kristalle sind deshalb keine Gleichgewichtsformen. Die Wachstumsgeschwindigkeiten der verschiedenen Flächen sind nicht mehr proportional den Oberflächenenergien. Sie können durch Störungen wie z. B. Versetzungen verändert werden.

Bei vielen Verfahren der Kristallzüchtung wird den Einkristallen durch die Verfahrensweise (z. B. Kühlung und Tiegel) eine Form aufgezwungen. Bei Züchtungen aus der Schmelze folgt die Wachstumsfront im Allgemeinen der Fläche der Schmelzisothermen des Temperaturfeldes und ist entsprechend gerundet. Die Kristalle besitzen zylindrische Formen mit gerundeten Enden. Die effektiven Wachstumsgeschwindigkeiten können von den Ziehgeschwindigkeiten abweichen, sind oft nicht monoton und werden von Wachstumsparametern (Konvektion, Temperaturregelung, Hebemechanik etc.) beeinflußt. Innerhalb der gerundeten Formen können auch kleine, ebene Flächen (Facetten) auftreten. Gerundete Form und Facettenbildung führen bei der Züchtung dotierter Kristalle zu unerwünschten Inhomogenitäten in der Verteilung der Gastphase.

2.3.2 Innere Morphologie

Wegen des Zustands- und Wachstumsverhaltens treten bei der Züchtung von Einkristallen, besonders von dotierten Kristallen oder Mischkristallen sowie bei Züchtungen aus Lösungen, stets Gitterbaufehler und Inhomogenitäten auf, die unerwünscht sind und auf ein Minimum reduziert werden müssen. Die Zahl der Gitterfehler (z. B. Versetzungen) läßt sich reduzieren durch Verwendung reinster Ausgangsmaterialien, fehlerarmer, spannungsfreier, orientierter Impfkristalle und Wachstum bestimmter Flächen, durch besondere Techniken und geeignete Wahl der Wachstumsparameter (Wachstumsgeschwindigkeit, ebene Wachstumsfront, Temperaturgradienten, Rühren). Einige Verteilungsinhomogenitäten sollen hier gesondert betrachtet werden.

Zonar-Bauten

Als Zonar-Bauten (Streifenbildung, „striations“, „growth layers“) bezeichnet man Schichten parallel zur Wachstumsfront, die unterschiedliche (diskontinuierliche bis kontinuierliche) Konzentrationen an Gastphase oder Baufehlern aufweisen. Die Dicken der Schichten liegen in der Größenordnung von einigen 10^{-4} bis 10^{-1} cm. Dieser Inhomogenitätstyp ist weit verbreitet und überlagert sich der allgemeinen inhomogenen Verteilung der Gastphase gemäß einem Verteilungskoeffizienten $k \neq 1$. Allgemeine Ursachen sind Schwankungen der Wachstumsgeschwindigkeit, die durch Temperaturfluktuationen, Transportvorgänge oder Variationen des Verteilungskoeffizienten hervorgerufen werden. Die primären Ursachen können je nach Verfahren und Zuchtparametern verschieden sein und auch zusammenwirken. Sie lassen sich im Einzelfall nur sehr schwer bestimmen. Einfluß auf die Streifenbildung haben die Rotation von Kristall und Tiegel, die Konvektion, die Temperaturgradienten im System Schmelze – Kristall, die Symmetrie des Temperaturfeldes, die Krümmung der Wachstumsfront und Wechselwirkungen dieser Parameter. Im Hinblick auf eine Verhinderung der Streifenbildung sind z. B. bei dem Czochralski-Verfahren größte Temperaturkonstanz, Rotation des Kristalles ohne Rotation des Tiegels und ein kleiner Temperaturgradient im Kristall (z. B. durch Anwendung eines Nachheizers) günstig.

Radiale Verteilungsinhomogenitäten

Bei Verteilungsinhomogenitäten in Wachstumsrichtung der Kristalle wegen $k \neq 1$ und gerundeter Wachstumsfront ist die radiale Verteilung in Querschnitt Q senkrecht zur Wachstumsrichtung (s. Abbildung 2.8) ebenfalls inhomogen, da Q aus konzentrischen Bereichen besteht, die von innen nach außen zeitlich nacheinander gewachsen sind und folglich verschiedene Konzentrationen an Gastphase besitzen. Bei $k < 1$ steigt die Konzentration der Gastphase von innen nach außen, bei $k > 1$ von außen nach innen. Die Krümmung der Wachstumsfront kann durch Variationen der Zuchtparameter beeinflußt werden, wie z. B. Abflachung durch Kristallrotation.

Facettenbildung

Liegen innerhalb einer gerundeten Wachstumsfront morphologisch wichtige Flächen (mit niedrigen Indizes), dann kann die Wachstumsgeschwindigkeit dieser Flächen durch selektive Adsorption von Verunreinigungen verlangsamt werden, so daß sich kleine, glatte Flächenelemente (Facetten) entwickeln. Die Größe der Facetten hängt ab von der Krümmung der Schmelzisotherme (s. Abbildung 2.8). Die Facetten wachsen bei etwas tieferen Temperaturen und nach einem anderen Modell als die gerundete Wachstumsfront. Folglich ist für diese Facetten ein anderes k_i wirksam als für die übrige Front, so daß starke Verteilungsinhomogenitäten auftreten. Für $k_e < 1$ ist k_e auf den Facetten größer als auf der gerundeten Wachstumsfront, daher beobachtet man bei Nd:YAG eine größere Nd^{3+} Konzentration auf den Facetten.

Die Facettenbildung kann verhindert werden z. B. durch Benutzung orientierter Impfkristalle und Züchtung nach kristallographisch geeigneten Richtungen, starke Temperaturgradienten oder Abflachung der Schmelzisotherme durch hohe Rotationsgeschwindigkeiten.

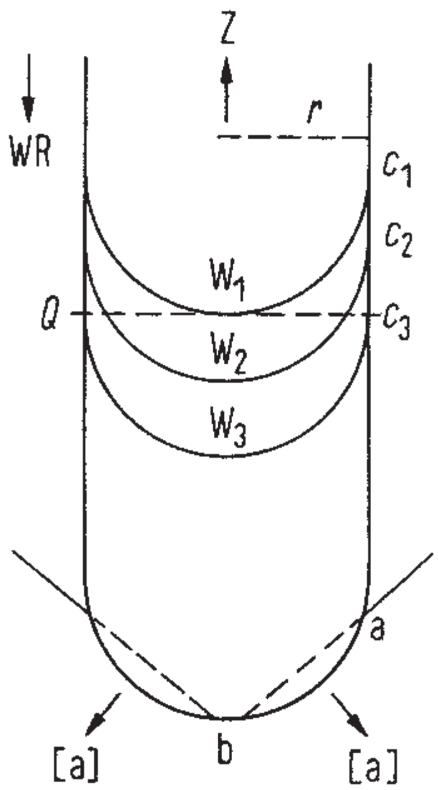

Abbildung 2.8: Inhomogene Verteilung der Gastphase über den Querschnitt Q eines Kristalles und Facettenbildung bei gerundeter Wachstumsfront. WR = Wachstumsrichtung; Z = Kristallachse = Ziehrichtung; W_i = Wachstumsfronten zur Zeit t_i; c_i = Konzentration der Gastphase (bei $k < 1 : c_1 < c_2 < c_3$; bei $k > 1 : c_1 > c_2 > c_3$); a – b = Facette, Kontaktwinkel zwischen Facette und Wachstumsfront; [a] = Richtung, in der Adsorption stattfinden kann. Quelle: K. Recker [Rec78]

Kapitel 3

Festkörperlaser

3.1 Physikalische Eigenschaften von laseraktiven Festkörpermaterialien

Die erste erfolgreiche Demonstration von Lasertätigkeit durch Maiman [Mai60] im Jahre 1960 erfolgte mit einem Cr^{3+} dotierten Saphir Kristall, besser bekannt als Rubin. Anschließend folgte Uran dotiertes Calziumfluorid [Sor60] als laseraktives Material. Das erste nicht kristalline Festkörper-Lasermaterial war Neodym dotiertes Glas [Sni61]. Der erste kontinuierlich emittierende Laser wurde 1961 von Johnson und Nassau [Joh61] mit Neodym dotiertem Kalziumwolframat ($CaWO_4$) vorgestellt. Danach folgte eine stürmische Entwicklung von neuen Wirtsmaterialien, die in Kombination mit einer großen Zahl laseraktiver Ionen aus den Gruppen der seltenen Erden, Aktiniden und den Übergangsmetallen zu einer Vielzahl von möglichen neuen laseraktiven Materialien führten. Viele dieser Materialien wurden mittlerweile auf Grund schwerwiegender Nachteile wieder verworfen und haben heute keine nennenswerte Bedeutung mehr.

Es werden im folgenden die wichtigsten Wirtsmaterialien und laseraktiven Ionen vorgestellt, die in aktuellen Festkörperlasersystemen Verwendung finden.

3.1.1 Gläser

Gläser nehmen eine Sonderstellung in dieser Aufzählung ein, da sie keine wohlgeordnete kristalline Struktur besitzen. Auf Grund der fehlenden Struktur ist in der Regel die Emissionslinienbreite eines laseraktiven Ions in einem Glasmaterial breiter als in einem kristallinen Material. Daher lassen sich Glas-Laser in der Emissionsfrequenz abstimmen oder eignen sich besser zum Erzeugen kurzer Pulse. Dafür muß man eine höhere Laserschwelle in Kauf nehmen.

Ein Nachteil der Glasmaterialien ist die geringere Wärmeleitfähigkeit, was zu erhöhten mechanischen Spannungen und damit zu erhöhter Doppelbrechung und Verschlechterung des Strahlprofils führen kann.

Ein großer Vorteil der Glasmaterialien ist deren leichte, kostengünstige Herstellbarkeit in großen Abmessungen im Gegensatz zur zeitaufwendigen Zucht von kristallinen Materialien. Daher sind dotierte Gläser vorallem in Hochleistungslasern zu finden, wo auf Grund der hohen Leistungen sehr große Laserstäbe benötigt werden, um nicht die maximal mögliche Leistungsdichte zu überschreiten.

Gläser wurden erfolgreich mit Nd^{3+}, Yb^{3+}, Er^{3+}, Tm^{3+} und Ho^{3+} Ionen dotiert.

3.1.2 Oxide

Saphir

Saphir (Al_2O_3) zeichnet sich durch eine große Härte und sehr gute Wärmeleitfähigkeit aus. Der Aluminium-Gitterplatz ist allerdings zu klein, um eine Dotierung mit seltenen Erden aufnehmen zu können, so daß lediglich eine Dotierung mit Übergangsmetallionen in Frage kommt. Neben Rubin (Cr^{3+}) hat vorallem Titan dotiertes Saphir eine weite Verbreitung als abstimmbares Lasermaterial gefunden.

Granate

Die größte Bedeutung als Wirtsmaterial aus der Gruppe der Oxide haben sicherlich die synthetischen Granate YAG ($Y_3Al_5O_{12}$), GGG ($Gd_3Ga_5O_{12}$) und GSGG ($Gd_3Sc_2Al_3O_{12}$) erlangt. Diese Materialien sind chemisch stabil, hart, optisch isotrop und besitzen eine große Wärmeleitfähigkeit, was Laserbetrieb bei hohen Leistungen erlaubt.

Insbesondere Neodym dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat (Nd:YAG) hat die mit Abstand größte Verbreitung aller Festkörperlasermaterialien gefunden, da YAG bis heute das beste kommerziell erhältliche Wirtsmaterial für das Nd-Ion ist. YAG besitzt eine kubische Kristallstruktur. Mit YAG wird die niedrigste Schwelle und der höchste Wirkungsgrad aller Nd dotierten Materialien erreicht. Die Züchtungsverfahren für Nd:YAG sind daher inzwischen sehr weit entwickelt, wodurch das Material in großer Menge und in sehr guter optischer Qualität verfügbar ist.

Außer mit Nd^{3+} wurde YAG auch erfolgreich mit Yb^{3+}, Er^{3+}, Tm^{3+} und Ho^{3+} dotiert.

Wolframate

Der bekannteste Vertreter dieser Gruppe ist Kalziumwolframat ($CaWO_4$), das erste Wirtsmaterial für das Neodym-Ion. Eng verwandt mit Kalziumwolframat sind Natrium-Gadoliniumwolframat ($NaGd(WO_4)_2$) und Natrium-Lanthaniumwolframat ($NaLa(WO_4)_2$).

Nach der Entwicklung von YAG ist das Interesse an den Wolframaten stark zurückgegangen, da sie eine deutlich geringere Wärmeleitung und höhere thermische Ausdehnung aufweisen und eine sehr niedrige Bruchgrenze besitzen. Dadurch sind erzielbaren Ausgangsleistungen deutlich geringer als mit YAG als Wirtsmaterial.

Vanadate

Ein sehr erfolgversprechender Kandidat für diodenlaserangeregte Festkörperlaser ist Neodym dotiertes Yttriumorthovanadat (Nd:YVO_4). Dieses Material ist sehr schwierig herzustellen und fand daher bis in die jüngste Vergangenheit wenig Beachtung. Mit Verbesserung der Zuchtmethoden kann Nd:YVO_4 heute in sehr guter Kristallqualität hergestellt werden. Die Vorteile gegenüber Nd:YAG sind eine deutlich kleinere Absorptionslänge für die Anregungsstrahlung, was vorallem für die Anregung mit Diodenlasern vorteilhaft ist. Auf Grund einer Anregungsquanteneffizienz von nahezu eins und einem gegenüber Nd:YAG 2,7 mal größeren Wirkungsquerschnitt für stimulierte Emission wird mit Nd:YVO_4 der höchste differentielle Wirkungsgrad aller Neodym-Materialien erreicht. Der Nachteil von Nd:YVO_4 ist eine um den Faktor 5 niedrigere Bruchgrenze gegenüber Nd:YAG, was die Skalierbarkeit zu hohen Leistungen einschränkt. Yttriumorthovanadat ist ein optisch uniaxiales Material, daher ist die Laserstrahlung daraus realisierter Laser ohne weitere Maßnahmen linear polarisiert.

Nd:YVO_4 wird im direkten Vergleich mit Nd:YAG verschiedener Dotierungskonzentrationen in Kapitel 7 näher diskutiert.

3.1.3 Fluoride

Im Vergleich zu den Oxiden steht die Zucht von fluoridischen Laserkristallen noch auf einer niedrigeren Entwicklungsstufe. Dies ist zum Teil mit Präparationsproblemen der Ausgangsmaterialien zu begründen, da die Fluorid-Züchtung unabdingbar die Vermeidung jeglicher Sauerstoffverunreinigung in den Ausgangsmaterialien erfordert.

CaF_2, ein relativ früh entwickeltes Fluorid-Material, wurde inzwischen durch andere Materialien abgelöst. Da das Kalzium-Ion zweiwertig ist, bedarf die Dotierung mit dreiwertigen Ionen einer Ladungskompensation, was sich negativ auf die Kristallqualität auswirkt.

Diesen Nachteil weist Yttrium-Lithiumfluorid ($YLiF_4$) nicht auf. Nd^{3+}, Er^{3+} und Ho^{3+} dotiertes YLF besitzt einen großen optischen Transparenzbereich bis 150 nm, was vorteilhaft bei der Anregung mit Blitzlampen ist. Die UV-Strahlung der Lampen wird nicht im Material absorbiert, und es wird so eine Schädigung vermieden.

Aus einer kleineren Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex und der Ausdehnung resultiert eine reduzierte thermische Linsenbildung und eine geringere thermisch induzierte Spannungsdoppelbrechung.

Der Nachteil von Nd:YLF gegenüber Nd:YAG besteht in einer geringeren Härte und geringeren Anregungseffizienz.

Für die Übergangsmetalle Cr^{3+} und Ce^{3+} wurden in jüngster Vergangenheit zwei neue Wirtsmaterialien aus der Gruppe der „Colquiriiten“, $LiSrAlF_6$ (LISAF) [Pay89] und $LiCaAlF_6$ (LICAF) [Pay88], entwickelt. Die Cr^{3+} dotierten Materialien besitzen breite Absorptionsbanden bei 450 und 650 nm und ein breites Emissionsspektrum von 750–1000 nm, wobei die LICAF-Spektren gegenüber LISAF bei etwas kürzeren Wellenlängen liegen. Durch die Lage ihrer Absorptionen eignen sich diese Materialien zur Anregung mit Diodenlasern einer Wellenlänge von 670 nm [Sche91], die mittlerweile auch mit hohen Ausgangsleistungen verfügbar sind. Bei gleichzeitiger Abstimmbarkeit über einen Wellenlängenbereich von 170 nm [Kna97] zwischen 800 nm und 970 nm stellt dies einen Vorteil gegenüber dem Material Titan-Saphir dar, welches bei vergleichbarem Emissionswellenlängenbereich zur Anregung einen Argon-Ionen Laser benötigt. Der große Emissionsbereich dieser Materialien kann zur Erzeugung ultrakurzer Pulse genutzt werden [Dym94, Kop94, Fal95].

3.2 Termschema und Übergänge laseraktiver Ionen

3.2.1 Seltene Erden

Die Elemente der seltenen Erden eignen sich auf Grund ihrer Gemeinsamkeiten im Energieniveau-Aufbau nahezu alle als laseraktives Ion in Festkörpermaterialien. Die Ionen besitzen eine Vielzahl an Übergängen im sichtbaren und infraroten Spektralbereich, die sich für Lasertätigkeit eignen. Eine gemeinsame Eigenschaft der Ionen dieser Gruppe ist, daß die Fluoreszenzlinien in der Regel sehr schmal sind und auch in Anwesenheit eines starken Kristallfeldes nicht wesentlich verbreitert sind.

Dieser Effekt ist durch einen Abschirmeffekt der äußeren Elektronen zu begründen. Die Struktur der äußeren Elektronen aller seltenen Erden entspricht der Struktur des Edelgases Xenon mit einer abgeschlossenen $5s^2$ und $5p^6$ Schale mit zwei zusätzlichen 6s Elektronen, wobei die 6s Elektronen und ggf. ein 5d oder 4f Elektronen bei der Bildung eines zwei bzw. dreiwertigen Ions abgegeben werden. Die äußeren 5s und 5p Elektronen sind optisch inaktiv und schirmen das Kristallfeld gegenüber den weiter innen liegenden 4f Elektronen ab. Da die 4f Schale nur teilweise besetzt ist, können hier Elektronen in unbesetzte Zustände angeregt werden. Die meisten Übergänge liegen dabei im sichtbaren und infraroten Spektralbereich.

Neodym

Die Elektronenkonfiguration der äußeren Elektronen des dreifach positiven Neodym-Ions Nd^{3+} lautet: $4d^{10}\ 4f^3\ 5s^2\ 5p^6$. Die 4d-Schale sowie die 5s- und 5p-Schalen sind vollständig besetzt und daher inaktiv und besitzen einen Gesamtdrehimpuls von Null. Im Grundzustand addieren sich die parallel ausgerichteten Bahndrehimpulse der 4f-Elektronen zum maximal möglichen Wert von $L = 1 + 2 + 3 = 6$, durch den Buchstaben I ausgedrückt. Die ebenfalls parallel ausgerichteten Spins der Elektronen ergeben einen Gesamtdrehimpuls von $S = \frac{3}{2}$. Entsprechend den Gesetzen der Spin-Bahn Koppelung können sich diese Drehimpulse zu 4 möglichen Werten von $\frac{9}{2}$, $\frac{11}{2}$, $\frac{13}{2}$ und $\frac{15}{2}$ addieren. Die diesen Drehimpulswerten entsprechenden Energieniveaus werden mit $^4I_{9/2}$, $^4I_{11/2}$, $^4I_{13/2}$ und $^4I_{15/2}$ bezeichnet.

Das $^4I_{9/2}$ Niveau ist der Grundzustand von Nd^{3+}, die anderen beschreiben die ersten angeregten Niveaus. Das nächste angeregte Niveau nach $^4I_{15/2}$ entsteht aus einem Bahndre-

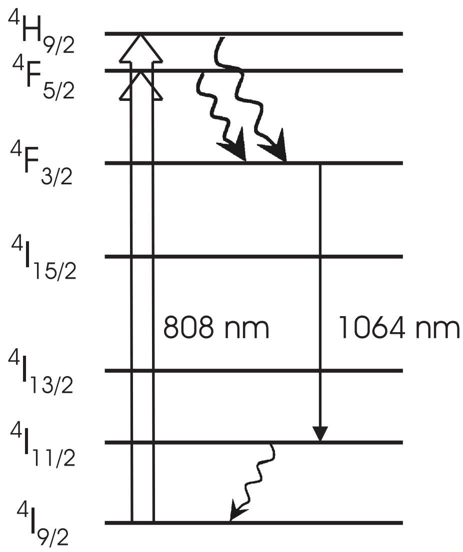

Abbildung 3.1: Für den Laserprozeß relevantes Termschema des Nd^{3+} Ions

himpuls von $L = 3$ der 4f Elektronen, der mit einem Spin von $S = \frac{3}{2}$ zu dem Niveau $^4F_{3/2}$ koppelt.

Die Energieniveaus $^4F_{3/2}$ und $^4I_{11/2}$ bilden das obere und untere Laserniveau. Die Energiedifferenz zwischen diesen Niveaus beträgt $9391\,\mathrm{cm}^{-1}$ was einer Wellenlänge von 1064 nm, der Emissionswellenlänge eines Nd:YAG Lasers, entspricht. Das obere Laserniveau besitzt eine Fluoreszenzeffizienz größer als 99,5% und eine Fluoreszenzlebensdauer von $230\,\mu$s, die allerdings schwach von der Konzentration des Nd-Ions abhängt (s. Abschnitt 4.1.3).

Das untere Laserniveau ist thermisch nicht besetzt und besitzt eine sehr kurze Fluoreszenzlebensdauer im Bereich weniger ns, kann also als praktisch unbesetzt angenommen werden. Die Anregungsstrahlung mit einer Wellenlänge von 808 nm sorgt für eine Anregung aus dem Grundzustand in die angeregten Niveaus $^4F_{5/2}$ und $^4H_{9/2}$, aus denen durch eine schnelle, strahlungslose Relaxation das obere Laserniveau bevölkert wird.

Damit entspricht Nd^{3+} (und auch Nd:YAG) dem klassischen Modell eines 4-Niveau-Lasersystems. Alle hier diskutierten Niveaus ebenso wie die für die Anregung und den Laserprozeß relevanten Übergänge sind in Abbildung 3.1 eingetragen.

3.3 Optische Anregung mit Diodenlasern

Diodenlaser sind im Gegensatz zu Lampen eine optimale optische Anregungsquelle für Festkörperlasermaterialien. Wellenlängen von 630 nm bis zu $30\,\mu$m stehen zur Verfügung. Die am weitesten entwickelten Diodenlaser sind GaAlAs-Diodenlaser, deren Emissionsspektrum durch Veränderung der Aluminiumkonzentration im Bereich zwischen 770–850 nm verschoben

werden kann. Diodenlaser aus diesem Materialsystem liefern derzeit die höchsten Ausgangsleistungen und erlauben insbesondere die Anregung von Nd-dotierten Laserkristallen. Durch den sehr guten Überlapp des Emissionsspektrums von GaAlAs-Diodenlasern mit dem Anregungsspektrum der Nd-Ionen kann die Leistung des Diodenlasers nahezu vollständig für den Laserprozeß genutzt werden. Aufgrund der, im Gegensatz zu Bogen- oder Blitzlampen, vergleichsweise hohen Leistungsdichte von Diodenlasern ist eine longitudinale Anregung des Festkörpermaterials möglich. Dadurch wird der Laserkristall räumlich modenselektiv angeregt, so daß auch ohne resonatorinterne Blende ein Laserbetrieb im transversalen Grundmode zu erzielen ist. Derzeit ist dieses Konzept bis zu Ausgangsleistungen von ca. 20 W anwendbar [Spec]. Höhere Ausgangsleistungen können durch transversale Anregung mit Diodenlaser erreicht werden.
Hervorzuhebende Vorteile von Diodenlasern sind:

- geringes Volumen,
- lange Lebensdauer,
- hoher Wirkungsgrad von typisch ≈30%,
- geringe spektrale Breite und
- hohe Leistungsdichte der Laserstrahlung.

3.3.1 Diodenlaserstrukturen

Den einfachsten Aufbau eines Diodenlasers stellt eine „Homojunction"-Struktur dar, bei der p- und n-Halbleiter aus dem gleichen Material bestehen. Die Schwellenstromdichte ist sehr hoch (50 kA/cm^2). Da keinerlei Eingrenzung der erzeugten optischen Strahlung und keine Ladungsträgerführung vorliegt, ist ein Betrieb bei Raumtemperatur nicht möglich [Hal62].

Eine Verringerung der Schwellenstromdichte wird durch eine Doppel-Hetero-Struktur (DH) erreicht. Dabei wird durch das Schichtsystem aus $Ga_{1-x}Al_xAs$ eine Potentialbarriere aufgebaut, die eine Konzentration der injizierten Ladungsträger auf die Verstärkungszone bewirkt („carrier confinement"). Gleichzeitig erfolgt durch das Schichtsystem eine Führung der erzeugten optischen Strahlung auf Grund des höheren Brechungsindex und damit eine Verminderung der Verluste. Beide Effekte tragen zur Erhöhung der Effizienz des Diodenlasers bei, so daß ein Betrieb bei Raumtemperatur erreicht werden kann [Hay70].

Eine weitere räumliche Einengung der Ladungsträger kann durch eine zusätzliche laterale Strukturierung der aktiven Zone erreicht werden. Es wird dabei zwischen Gewinn-Führung („gain-guided") und Führung durch Variation des Brechungsindex („index-guided") unterschieden. Bei der Gewinn-Führung wird durch laterale Strukturierung von isolierenden Materialien der Injektionsstrom auf Gebiete einer Breite von einigen μm begrenzt. Dadurch entsteht ein Verstärkungsprofil, das eine Führung der optischen Strahlung bewirkt. Bei der

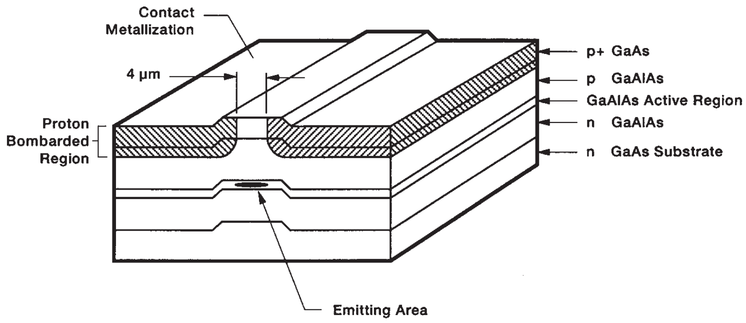

Abbildung 3.2: Prinzipieller Aufbau eines Einstreifen Diodenlasers. Quelle: SDL [SDL94]

Index-Führung ist die aktive Zone lateral zu einem Wellenleiter strukturiert. Hierdurch werden sowohl die Ladungsträger als auch die optische Strahlung geführt.

Eine weitere Reduzierung der Schwellenströme gelang durch die Entwicklung von „Quantum-Well"-Strukturen. Dabei besitzt die aktive Zone Schichtdicken von 5–20 nm, so daß sie in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge ($\lambda = h/p$) der Ladungsträger liegt. Diese Strukturen führen zu einer Diskretisierung der Energiezustände, d. h. zu einer energetischen Konzentration der Ladungsträger und folglich zu einer abermaligen Absenkung der Schwellenströme, die für „Single-Quantum-Well"-Strukturen bei ca. 100 A/cm^2 und für „Multiple-Quantum-Well"-Strukturen bei ca. 300–500 A/cm^2 liegen. Dies bedeutet im Vergleich zu „Homojunction"-Strukturen eine Absenkung der Schwellenstromdichte um den Faktor 1000.

Die geringen Dicken der „Quantum-Well"-Strukturen erfordern für einen guten Überlapp zwischen Ladungsträgern und Lichtwelle eine getrennte Strukturierung ihrer jeweiligen Führung. Dies wird durch „Separate-Confinement-Hetero"-Strukturen (SCH) erreicht. Bei diesen wird, neben einem Mehrschichtsystem zur Eingrenzung der Ladungsträger, ein weiteres Mehrschichtsystem als optischer Wellenleiter ausgebildet.

Für die Verteilung der optischen Leistung auf ein größeres Volumen werden Wellenleiter verwendet, deren Begrenzungen nicht durch einen Stufenindex, sondern durch einen Brechungsindexgradienten gebildet werden. Derartige Strukturen werden als „Graded-Index and separate carrier and optical confinement (GRINSCH)" benannt. Dadurch kann die Belastung der Spiegelfacetten verringert werden. Eine weitergehende Beschreibung der physikalischen Eigenschaften von Halbleiterlasern und deren Strukturen findet sich in der Literatur [Ung92, Ebe92].

Bedingt durch maximale Leistungsdichte auf der Spiegelfacette des Diodenlasers sind der Ausgangsleistung eines einzelnen Emitters nach oben Grenzen gesetzt. Bei einer typischen Emitterbreite von 100–150μm ist eine Ausgangsleistung von 1–2 W möglich. Höhere Ausgangsleistungen werden durch Koppelung mehrerer Emitter zu einem „Array" erreicht bzw. durch Kombinieren von „Arrays" zu Barren. In den Experimenten wird sowohl ein Einzelemitter mit einer Ausgangsleistung von 1,2 W als auch ein Array mit 30 W benutzt.

3.4 Ratengleichungen für kontinuierlich angeregte Laser

Die hier vorgestellte Analyse der Ratengleichungen soll zeigen, welche Größen in die Berechnung der Laserparameter Schwelle und differentieller Wirkungsgrad eingehen. Es wird hier das analytische Modell, das von Kubodera und Otsuka [Kub79] sowie Digonnet und Gaeta [Dig85] entwickelt wurde und z. B. in „Diodengepumpte Festkörperlaser" von P. Peuser und N. P. Schmitt [Peu95] ausführlich beschrieben wird, benutzt. Das Modell gilt in Übereinstimmung mit den im Experiment untersuchten Materialien für ein Vier-Niveausystem mit einem unbesetzten unteren Laserniveau.

Der Zusammenhang zwischen Schwelle und Wirkungsgrad und den resonatorbestimmenden Größen sowie den Materialkonstanten des verstärkenden Mediums läßt sich bereits an Hand des allgemeingültigen Falls zeigen. Da die in den folgenden Abschnitten abgeleiteten Abhängigkeiten nicht von der transversalen Modenstruktur abhängen, erfolgt diese Herleitung der Ratengleichungen für den Grundmode.

Die zeitliche Ableitung der lokalen Populationsinversionsdichte $\Delta N(x,y,z)$ ist gegeben durch:

$$\frac{d\Delta N(x,y,z)}{dt} = r(x,y,z) - \frac{\Delta N(x,y,z)}{\tau} - \frac{c\cdot\sigma}{n_k}\cdot\Delta N(x,y,z)\cdot s_1(x,y,z) = 0 \qquad (3.1)$$

mit	$r(x,y,z)$	lokale Pumprate
	τ	Fluoreszenzlebensdauer des oberen Laserniveaus
	c	Lichtgeschwindigkeit
	σ	stimulierter Emissionswirkungsquerschnitt
	n_k	Brechungsindex des aktiven Mediums
	$s_1(x,y,z)$	lokale Photonendichte im ersten Mode (Grundmode)

Der erste Term der rechten Seite von Gleichung 3.1 beschreibt den Anregungsprozeß, der zweite den spontanen Zerfall, und der dritte steht für die stimulierte Emission.

Die Gesamtzahl der Photonen S_1 im Resonator sowie die totale Anregungsrate R sind:

$$S_1 = \iiint\limits_{Resonator} s_1(x,y,z)\,dV \qquad (3.2)$$

$$R = \iiint\limits_{Resonator} r(x,y,z)\,dV \qquad (3.3)$$

Für die zeitliche Änderung der Photonenzahl gilt:

$$\frac{S_1}{dt} = \frac{c\cdot\sigma}{n_k}\cdot\iiint\limits_{Resonator}\Delta N(x,y,z)\cdot s_1(x,y,z)\,dV - \frac{c\cdot\delta_1}{2L\cdot n_k}\cdot S_1 = 0 \qquad (3.4)$$

δ_1 sind die Verluste des Grundmode für einen Resonatorumlauf, einschließlich der Auskoppelverluste. L ist die Länge des aktiven Mediums. In Gleichung 3.4 beschreibt der erste Term der rechten Seite das Anwachsen der Photonenzahl auf Grund stimulierter Emission und der zweite Term die Verringerung der Photonenzahl durch die Resonatorverluste.

Gleichung 3.1 nach ΔN umgestellt und in Gleichung 3.4 eingesetzt ergibt mit den Normierungen der Photonenzahl (Gleichung 3.6) und der Pumprate (Gleichung 3.7) eine Integralgleichung für die unbekannte Photonendichteverteilung $s_{10}(x,y,z)$:

$$\frac{\delta_1}{2L \cdot \sigma \cdot \tau \cdot R} = \iiint\limits_{Resonator} \frac{s_{10}(x,y,z) \cdot r_0(x,y,z)}{1 + \frac{c \cdot \sigma \cdot \tau}{n_k} \cdot S_1 \cdot s_{10}(x,y,z)}\, dV \tag{3.5}$$

$$s_{10}(x,y,z) = \frac{s_1(x,y,z)}{S_1} \tag{3.6}$$

$$r_0(x,y,z) = \frac{r(x,y,z)}{R} \tag{3.7}$$

Gleichung 3.5 ist in dieser Form anschaulich nicht verständlich. Besser wäre eine Beschreibung der Ausgangsleistung des Lasers in Abhängigkeit von der Eingangsleistung. Da die Anregungsrate R direkt von der Eingangsleistung und die Ausgangsleistung direkt von der Photonenzahl S_1 abhängen, wird Gleichung 3.5 entsprechend umgestellt. Für ein besseres physikalisches Verständnis sind folgende Näherungen vorteilhaft:

Deutlich oberhalb der Schwelle ist die Modenintensität groß gegen die Sättigungsintensität, d. h. es gilt dann

$$\frac{1}{n_k} \cdot S_1 \cdot s_{10}(x,y,z) \gg \frac{1}{c \cdot \sigma \cdot \tau} \quad \text{bzw.} \quad \frac{c \cdot \sigma \cdot \tau}{n_k} \cdot S_1 \cdot s_{10}(x,y,z) \gg 1 \tag{3.8}$$

Für den Fall $S_1 \to 0$ vereinfacht sich die rechte Seite von Gleichung 3.5 zu

$$\iiint\limits_{Modenregion} s_{10}(x,y,z) \cdot r_0(x,y,z)\, dV \tag{3.9}$$

Die rechte Seite der Gleichung 3.5 kann nun mit Gleichungen 3.8 und 3.9 als Summe der Grenzfälle für großes S_1 und $S_1 \to 0$ geschrieben werden. Umgeformt nach der Photonenzahl S_1 erhält man so:

$$S_1 = \frac{2L \cdot R \cdot n_k}{\delta_1 \cdot c} \cdot \iiint\limits_{Modenregion} r_0(x,y,z)\, dV - \frac{\iiint\limits_{Modenregion} \frac{n_k}{c \cdot \sigma \cdot \tau} \cdot r_0(x,y,z)\, dV}{\iiint\limits_{Resonator} s_{10}(x,y,z) \cdot r_0(x,y,z)\, dV} \tag{3.10}$$

Die Ausgangsleistung P_{aus} ist gegeben durch das Produkt aus $h\nu$ und der Zahl je Zeiteinheit emittierten Photonen. Beträgt die Transmission des Auskoppelspiegels T, so erhält man:

$$P_{aus} = h\nu \cdot \frac{T \cdot c}{2n_k \cdot L} \cdot S_1 \tag{3.11}$$

Unter Verwendung des Ausdrucks für die totale Anregungsrate

$$R = \frac{\eta_q \cdot P_a}{h\nu_p} \tag{3.12}$$

(mit η_q = Anregungsquanteneffizienz, $h\nu_p$ = Energie eines Anregungsphotons, P_a = absorbierte Anregungsleistung) erhält man durch Einsetzen von Gleichung 3.10 in Gleichung 3.11:

$$P_{aus} = \frac{T \cdot \eta_q \cdot P_a \cdot h\nu}{\delta_1 \cdot h\nu_p} \cdot \iiint\limits_{Modenregion} r_0(x,y,z)\,dV - \frac{T \cdot h\nu}{2L \cdot \sigma \cdot \tau} \cdot \frac{\iiint\limits_{Modenregion} r_0(x,y,z)\,dV}{\iiint\limits_{Resonator} s_{10}(x,y,z) \cdot r_0(x,y,z)\,dV} \tag{3.13}$$

Dies stellt eine Gerade mit der Variablen P_a dar, wobei die Steigung durch den differentiellen Wirkungsgrad η gegeben ist. Den Quotienten $h\nu/h\nu_p$ bezeichnet man als Stokes-Effizienz η_{st}. Die absorbierte Anregungsleistung an der Schwelle S erhält man, indem $P_{aus} = 0$ gesetzt wird. Man kann damit Gleichung 3.13 umschreiben zu

$$P_{aus} = \eta \cdot (P_a - S), \quad \text{mit} \tag{3.14}$$

$$\eta = \eta_q \cdot \eta_{st} \cdot \frac{T}{\delta_1} \cdot \iiint\limits_{Modenregion} r_0(x,y,z)\,dV \tag{3.15}$$

$$S = \frac{h\nu_p \cdot \delta_1}{2L \cdot \sigma \cdot \eta_q \cdot \tau} \cdot \frac{1}{\iiint\limits_{Resonator} s_{10}(x,y,z) \cdot r_0(x,y,z)\,dV} \tag{3.16}$$

Das Integral in Gleichung 3.15 beschreibt, wie gut die Anregungsstrahlung mit dem Modenvolumen überlappt. Der Anschaulichkeit halber wird das Integral mit dem Symbol η_u, Überlappeffizienz genannt, abgekürzt. Beachtet man noch, daß sich die Gesamtresonatorverluste δ_1 additiv aus den resonatorinternen Verlusten δ und den Verlusten durch Auskoppelung T zusammensetzen, so erhält man einen sehr einfachen und anschaulichen Ausdruck für den differentiellen Wirkungsgrad η.

$$\eta = \eta_q \cdot \eta_{st} \cdot \eta_u \cdot \frac{T}{T+\delta} \tag{3.17}$$

Die Schwelle hängt im Gegensatz zum differentiellen Wirkungsgrad explizit von den für den Laserübergang charakteristischen Parametern, wie von dem Emissionswirkungsquerschnitt σ und der Fluoreszenzlebensdauer τ, ab. Gleichzeitig erkennt man, daß räumlich eng begrenzte Verteilungen der Anregungsrate $r_0(x,y,z)$ und des resonatorinternen Photonenfeldes $s_{10}(x,y,z)$ zu einem großen Wert des Integrals in Gleichung 3.16 und damit zu einem kleinen Wert der absorbierten Anregungsleistung an der Schwelle führen.

Anschaulicher ist auch hier wieder die Einführung des Überlappfaktors η_u. Damit läßt sich das Integral in Gleichung 3.16 als Quotient aus Überlappfaktor η_u und Modenvolumen V im aktiven Medium schreiben. Man erhält so auch für die Schwelle einen besser interpretierbaren Ausdruck.

$$S = \frac{I_s \cdot V \cdot (T+\delta)}{2L \cdot \eta_q \cdot \eta_{st} \cdot \eta_u}, \quad \text{mit} \tag{3.18}$$

$$I_S = \frac{h\nu}{\sigma \cdot \tau} \quad \text{(Sättigungsintensität)}$$

3.4.1 Einfluß von Kristallverlusten auf den Laserprozeß

Die Gleichung 3.18 für die absorbierte Anregungsleistung an der Schwelle enthält eine lineare Abhängigkeit von den gesamten Resonatorverlusten δ_1, die sich wiederum additiv aus den internen Verlusten δ und den Verlusten durch Auskoppelung T zusammensetzen. Da es sich bei den restlichen Termen um Konstanten handelt, gilt also:

$$S \propto (T + \delta) \tag{3.19}$$

Die internen Verluste δ werden bestimmt von Verlusten der Resonatorspiegel mit Ausnahme des Auskoppelspiegels, von Absorptionen im aktiven Medium und von Verlusten an sonstigen innerhalb des Resonators befindlicher Elemente.

Somit erwartet man bei konstantem Auskoppelgrad T eine lineare Abhängigkeit zwischen Schwelle und den Verlusten δ.

Für den differentiellen Wirkungsgrad η ergibt sich in Analogie zu obiger Argumentation aus Gleichung 3.17 die Abhängigkeit:

$$\begin{aligned} \eta &\propto \frac{T}{T+\delta}, \quad \text{bzw.} \\ \frac{1}{\eta} &\propto 1 + \frac{\delta}{T} \end{aligned} \tag{3.20}$$

Also sollte die Größe $1/\eta$ wieder eine lineare Abhängigkeit von den Verlusten δ zeigen.

3.4.2 Einfluß von optischen Homogenitätsänderungen

Optische Homogenitätsänderungen oder genauer gesagt Gradienten des Brechungsindex dr verursachen eine Strahlablenkung der Größe A des Laserstrahls beim Durchgang durch die Probe, wodurch der Resonator etwas dejustiert wird. Dadurch weicht der Strahlverlauf der Lasermode von dem Anregungsstrahl ab, was gleichbedeutend einer Verringerung der Überlappeffizienz η_u ist.

Da hier lediglich eine Proportionalität der Laserparameter zu den Brechungsindexgradienten gezeigt werden soll, werden folgende Vereinfachungen vorgenommen:

1. Der Proportionalitätsfaktor zwischen Ablenkung A und Brechungsindexgradienten dr wird $\equiv 1$ gesetzt (im Gegensatz zur korrekten Auswertung nach Gleichung 4.18).

2. Die Änderung der Überlappeffizienz η_u in Abhängigkeit von der Ablenkung A wird für kleine A vereinfacht zu:
$$\eta_u \propto \frac{1}{A} = \frac{1}{dr} \tag{3.21}$$

In die Formeln für den differentiellen Wirkungsgrad (3.17) und Schwelle (3.18) eingesetzt, ergeben sich folgende Zusammenhänge:

$$\eta \propto \frac{T}{T+\delta}\frac{1}{dr}, \quad \text{bzw.}$$

$$\frac{1}{\eta} \propto \frac{T+\delta}{T}\,dr \tag{3.22}$$

$$S \propto (T+\delta)\,dr \tag{3.23}$$

Bei konstanter Auskoppelung T und konstanten Verlusten δ erwartet man eine lineare Abhängigkeit zwischen den Parametern $1/\eta$ und dr sowie zwischen S und dr.

3.4.3 Einfluß der Auskoppelung

Für eine große Transmission des Auskoppelspiegels T wird die Abhängigkeit der Laserparameter von den resonatorinternen Verlusten δ vernachlässigbar. Es gilt:

$$T+\delta \approx T \quad \text{für} \quad T \gg \delta \tag{3.24}$$

Die Abhängigkeit der Laserparameter η und S von dem Brechungsindexgradienten dr ist für eine hohe Auskoppelung mit der größten Signifikanz nachweisbar, da sich Änderungen von δ praktisch nicht mehr auf die Laserparameter auswirken. Die Laserparameter reagieren fast ausschließlich auf Änderungen von dr ($\propto 1/\eta_u$).

Umgekehrt gilt der Schluß, daß zu einem Nachweis von Schwankungen der resonatorinternen Verluste δ eine möglichst kleine Auskoppeltransmission (ungleich Null) benutzt werden sollte.

Kapitel 4

Meßverfahren

Alle hier dargestellten Meßverfahren mit Ausnahme des Absorptionskalorimeters und des Laserresonators für hohe Ausgangsleistungen wurden mit der Zielsetzung entwickelt, große Proben mit einem Durchmesser von bis zu 50 mm zweidimensional messen zu können. Die großen Proben, die den Querschnitt eines ganzen Boules zeigen, sind im Gegensatz zu den bereits ausgebohrten Stäben sehr hilfreich bei der Untersuchung von Wachstumsstörungen. Die Bestimmung aller Parameter erfolgte mit einer räumlichen Auflösung im Bereich zwischen 30 – 100 μm. Diese hohe Auflösung orientiert sich an dem typischen Taillendurchmesser eines Laserresonators (s. Abschnitt 4.4.1) von 100 μm. Ziel der Untersuchungen war es, Störungen bis zu einem Drittel des Durchmessers des Modenradius detektieren zu können. Daher ist die räumliche Auflösung zur Bestimmung der optischen Parameter ungefähr um den Faktor drei höher als zur Bestimmung der Laserparameter.

Die zweidimensionale Messung erfolgt durch Verschieben der Probe mit Hilfe motorgetriebener Verschiebeeinheiten, die von einer Computersteuerung kontrolliert werden.

4.1 Konzentration des laseraktiven Ions

4.1.1 Absorption

Meßprinzip

Mit diesem Meßverfahren wird die Konzentration und Homogenität der Dotierung der Kristalle mit laseraktiven Ionen indirekt über die Transmission der Probe für zwei Laserquellen bestimmt. Die Zentralwellenlängen der zwei Diodenlaser wurden so gewählt, daß ein Laser innerhalb einer Absorptionsbande des laseraktiven Ions emittiert ($\lambda_1 = \lambda_i$), und die Emission des anderen außerhalb der Kristallabsorption ($\lambda_2 = \lambda_a$) liegt. Damit besteht die Möglichkeit, Transmissionsverluste, die nicht dotierungsbedingt sind (wie Streuzentren, Oberflächendefekte oder Fremdeinschlüsse), zu eliminieren. Auf diese Weise wird ausschließlich dotierungsbedingte Absorption und damit letztendlich die räumliche Verteilung der Konzentration der

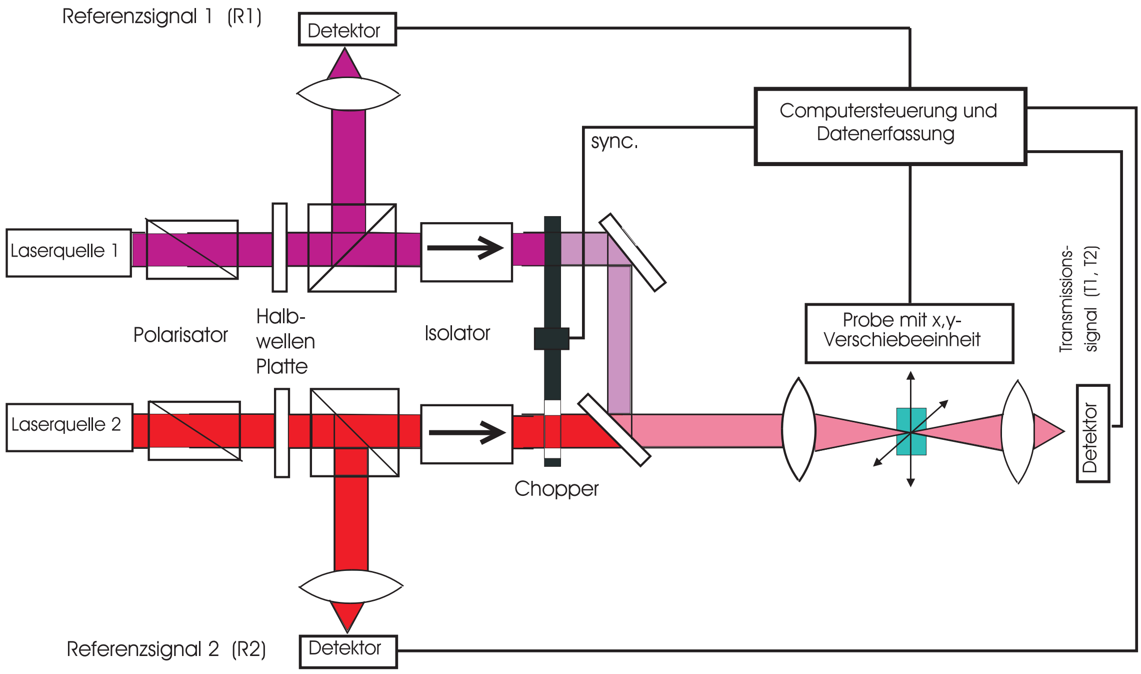

Abbildung 4.1: Aufbau zur Bestimmung der Dotierungsverteilung

laseraktiven Ionen bestimmt.

Abbildung 4.1 zeigt den Aufbau zur Bestimmung der Dotierungsverteilung. Der Kristall wird mit beiden Laserstrahlen durchleuchtet, wobei gewährleistet ist, daß beide Strahlen räumlich exakt übereinanderliegen. Der Durchmesser des Laserstrahls am Ort der Probe wird dabei klein gehalten ($\approx 50\mu$m).

Die Transmissionen werden relativ zu den Referenzintensitäten gemessen. Das Teilungsverhältnis von Referenz- zu Meßarm ist mittels einer Halbwellenplatte und einem Polarisationsstrahlteiler einstellbar, um einen großen Meßbereich für Proben unterschiedlicher Transmission abdecken zu können. Bei Bedarf kann die Intensität im Referenzarm mit einem Neutralfilter abgeschwächt werden. Der Polarisator zwischen Diodenlaser und Halbwellenplatte sorgt für eine definierte Polarisationsrichtung, damit sich das Teilerverhältnis des Strahlteilers nicht durch Polarisationsschwankungen des Diodenlasers während der Messung verändert.

Der Isolator verhindert, daß ein Rückreflex von der Probe den Diodenlaser und den Referenzdetektor erreicht. Da in diesen Aufbau Diodenlaser mit antireflex Beschichtung eingesetzt werden (s. übernächster Abschnitt), könnte ein Rückreflex die spektrale breitbandige Emission der Quelle verändern, was sich negativ auf die Messung auswirken würde.

Die gemessenen Intensitäten der Referenzarme werden mit $R_1 = R_i$ und $R_2 = R_a$ bezeichnet, wobei die Indizes i und a die Zugehörigkeit zu den Strahlquellen der Wellenlängen $\lambda_1 = \lambda_i$ und $\lambda_2 = \lambda_a$ ausdrückt. Ebenso wird das Transmissionssignal des Meßarms mit T_i und T_a bezeichnet, je nachdem welche Strahlung gerade den Detektor trifft.

Die rotierende Lochblende („Chopper“) im Strahlengang sorgt dafür, daß die Strahlung beider Quellen niemals gleichzeitig den Detektor erreicht. Somit kann die Transmission für beide Wellenlängen getrennt bestimmt werden, obwohl dazu nur ein Detektor vorhanden ist.

Die entsprechende Kristallprobe kann, wie bei allen anderen Meßverfahren auch, lateral verfahren werden. Die räumliche Auflösung wird durch den Durchmesser der Lichtstrahlen am Probenort bestimmt. Die Positioniergenauigkeit der Probe relativ zum Strahl ist mit $5\,\mu$m wesentlich besser als die durch den Strahldurchmesser von $50\,\mu$m definierte räumliche Auflösung.

Anforderungen an die Strahlungsquelle

Ein gewöhnlicher, schmalbandig emittierender Einstreifen-Diodenlaser, dessen Emissionswellenlänge sich möglichst genau auf das Absorptionsmaximum (z. B. 808 nm für Nd:YAG) des zu untersuchenden laseraktiven Ions abstimmen läßt, kann als Strahlungsquelle aus folgenden Gründen nicht verwendet werden:

1. Schmalbandige Diodenlaser haben freilaufend eine typische Bandbreite von 100 MHz. Allerdings beobachtet man in der Regel eine Drift der Zentralwellenlänge von über 100 GHz während einer Meßzeit von 10 h. Damit ändert sich der effektive Absorptionswirkungsquerschnitt, was zu einem Fehler in der Bestimmung der Dotierungskonzentration führt.

2. Bei dünnen, planparallelen Proben tritt Vielstrahlinterferenz zwischen den Probenoberflächen auf, die die Messung verfälscht.

Während man dem erstgenannten Problem durch eine aktive Stabilisierung [Litt78] des Diodenlasers oder durch Verwendung eines intrinsisch stabileren Diodenlasern wie z. B. „distributed Bragg (DBR)“ oder „distributed feedback (DFB)“ Lasern [Kog71, Nak73] begegnen könnte, ist der Interferenzeffekt schmalbandiger Quellen nicht zu eliminieren. Die Linienbreite eines DBR oder DFB Lasers beträgt typischerweise wenige MHz [Lau00], was einer Kohärenzlänge im Bereich von 10 – 100 m entspricht.

Zur zweidimensionalen Messung der Dotierungskonzentration sind daher nur spektral breitbandige Quellen geeignet. Für vollständiges Verschwinden des Interferenzmusters muß die Bedingung

$$4L_c < d \tag{4.1}$$

(L_c = Kohärenzlänge; d = Dicke der Probe) erfüllt sein. Aufgrund der geringen Absorption ist es nicht sinnvoll, Proben mit $d < 1$ mm zu untersuchen. Damit muß die spektrale Breite $\Delta\nu$ des Diodenlasers [Sve89] folgende Ungleichung erfüllen.

$$\Delta\nu > \frac{1}{4\pi\tau_c}, \quad \text{mit} \quad \tau_c = \frac{L_c}{c_0} \tag{4.2}$$

$$\Delta\nu > 100 \text{ GHz} \tag{4.3}$$

Bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm entspricht dies einer spektralen Breite von 0,2 nm.

Bei Verwendung einer breitbandigen Quelle wird über die Feinstruktur der laseraktiven Ionen (z. B. des Neodym Ions, $\Delta E < 0,3\,\mathrm{cm}^{-1}$) gemittelt. Je größer die spektrale Breite der Quelle im Verhältnis zur Drift ihrer Zentralwellenlänge ist, desto kleiner ist der Meßfehler, der noch durch diese Drift verursacht wird.

Für ein ausreichendes Signal zu Rausch Verhältnis zur Detektion der Strahlung muß die Ausgangsleistung der Quelle mehr als 0,3 mW betragen.

Um eine räumliche Auflösung von $50\,\mu$m zu erzielen, sollte die Beugungsmaßzahl M^2 kleiner 4 sein. Damit ergibt sich eine zu fordernde räumliche Leistungsdichte von $P_d > 200\,\mathrm{kW/m}^2$.

Da die zweidimensional aufgelösten Messungen für die größten Proben mit einem Durchmesser von 50 mm eine Meßzeit von ca. 12 h erfordern, ist auch Langzeitstabilität der Quelle zu fordern. Zusammenfassend muß die Quelle folgende Bedingungen erfüllen:

1. Spektrale Breite $\Delta\nu > 100$ GHz
2. Ausgangsleistung $P > 0,3\,\mathrm{mW}$
3. $M^2 < 4$ oder räumliche Leistungsdichte $P_d > 200\,\mathrm{kW/m}^2$
4. Langzeitstabilität, geringes Eigenrauschen
5. Zentralwellenlänge liegt innerhalb einer Absorptionsbande des zu untersuchenden Materials

Auswahl der geeigneten Strahlungsquelle

Strahlungsquellen, die alle Bedingungen erfüllen, sind: Superlumineszenzdioden (SLD) oder Emitter von verstärkter Spontanemission (ASE) [Che84] und Diodenlaser mit einer antireflex (AR) Beschichtung der Frontfacette.

Leuchtdioden (LED) oder einfache thermische Strahler wie Glühlampen besitzen dagegen keine ausreichend hohe Leistungsdichte und Bogenlampen sind nicht ausreichend intensitätsstabil.

Stellt man die in Frage kommenden Lichtquellen gegenüber, so stellt man fest, daß SLD folgende prinzipielle Vorteile gegenüber AR beschichteten Diodenlasern aufweisen:

Die SLD ist gekapselt und somit hermetisch gegen Umwelteinflüße abgeschirmt. Ein Resonator im Sinne der Laserphysik ist nicht vorhanden. Stattdessen besitzen SLD oder ASE-Emitter meistens eine unter einem Keilwinkel geschnittene Frontfacette. Daher ist die SLD unempfindlich gegenüber reflektiertem Licht, das auf die Frontfacette gelangt.

Ein AR-Diodenlaser ist eine Einzelanfertigung. Ein Diodenlaser aus der Serienfertigung wird als Einzelstück entspiegelt. Dazu muß das Gehäuse des Diodenlasers geöffnet werden. Der Halbleiter ist somit nicht mehr gegen äußere Einflüsse geschützt. Da die Resonatorgüte

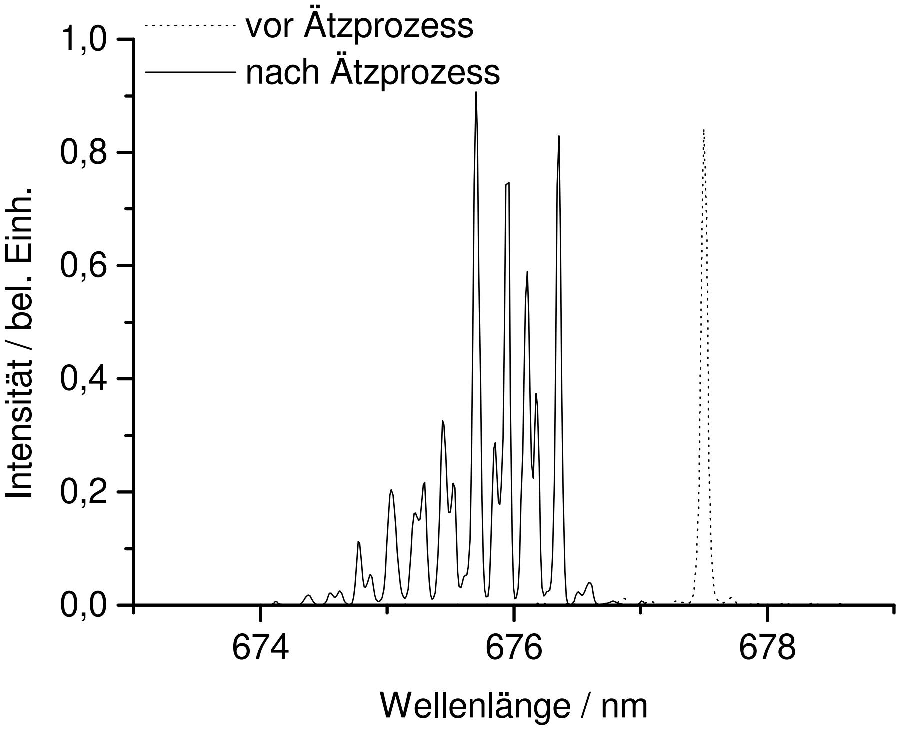

Abbildung 4.2: Emissionsspektrum eines Diodenlasers vor und nach dem Ätzprozess an seiner Frontfacette.

lediglich durch die AR Beschichtung einer Endfläche sehr klein gemacht wurde, kann in Verbindung mit einer beliebigen optischen Komponente im Strahlengang ein neuer Resonator höherer Güte gebildet werden, wenn von betreffender Komponente ein Rückreflex die Frontfacette des Diodenlasers trifft.

Gleichzeitig weist dieses Verfahren einen entscheidenden Vorteil auf, der schließlich zur Auswahl von AR beschichteten Diodenlasern als Lichtquelle geführt hat: Die Entspiegelungstechnik läßt sich prinzipiell für jeden verfügbaren Diodenlaser anwenden. Es bedarf hierfür keiner langen Entwicklungszeit wie z. B. zur Entwicklung einer neuen SLD oder ASE Quelle. So ist auch bis heute für das Absorptionsmaximum des Neodym-Ions um 800 nm keine derartige Quelle verfügbar.

Die oben angegebenen Nachteile der AR beschichteten Diodenlaser lassen sich durch entsprechende technische Maßnahmen wie Spülen mit trockenem Stickstoff und durch die Verwendung optischer Isolatoren (zur Vermeidung von unerwünschten Einkopplungen in den Halbleiterlaser) leicht kompensieren.

Als Alternative zu den relativ teuren und aufwendig herzustellenden AR beschichteten Diodenlasern wurden Diodenlaser mit beschädigter Frontfacette untersucht. Aus Vorexperimenten mit durch COD[1] zerstörten Diodenlasern war bekannt, daß diese ebenfalls ein breitbandiges Emissionsspektrum aufweisen können. Da COD in der Regel zu einem undefiniertem Grad der Schädigung der Facette führt, wurde stattdessen die Schädigung gezielt durch Ätzen des Diodenlasers in konzentrierter Flußsäure herbeigeführt. Als optimale Ätzdauer wurden 200 Sekunden ermittelt. Abbildung 4.2 zeigt das Spektrum des Diodenlasers vor und nach dem Ätzprozess. Man erkennt deutlich eine Verbreiterung (FWHM) um 2 nm sowie eine Änderung der Zentralwellenlänge, was unerheblich ist, da sich Diodenlaser immer durch Änderung der Betriebstemperatur abstimmen lassen.

Allerdings wurde das Halbleitermaterial durch den Ätzvorgang geschädigt, so daß dieser Laser unter dem Einfluß von Luft stark alterte, was seine Lebensdauer auf ca. 170 Betriebsstunden bzw. 2 Monate Lagerdauer begrenzte. Bei kürzeren Ätzdauern lag die Lebensdauer deutlich höher, allerdings zeigt der Diodenlaser nicht die gewünschte spektrale Verbreiterung, wie nach Gleichung 4.3 gefordert.

Da der technische Aufwand, um das schnelle Altern des geätzten Diodenlasers zu verhindern, erheblich größer wäre als für den Betrieb von Diodenlasern mit AR Beschichtung, wurde dieses Verfahren nicht mehr angewandt.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß als sinnvolle Alternative zum AR beschichteten Diodenlaser lediglich SLD bzw. ASE Diodenlaser in Frage kommen. Es wären Fortschritte bei der Entwicklung von SLD bei 800 nm abzuwarten bzw. zu forcieren.

Daher wurde dieses Meßverfahren mit AR beschichteten Diodenlasern mit den Zentralwellenlängen von 630 nm und 799 nm ausgestattet. Die Wellenlängen wurden gewählt, um eine möglichst große Vielfalt von Materialien untersuchen zu können. So ist z. B. für die Nd dotierten Materialien $\lambda_i = 799\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_a = 630\,\mathrm{nm}$, während für Cr^{3+}:LiSAF und Cr^{3+}: LiCAF die Wellenlängen gerade vertauscht werden können ($\lambda_i = 630\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_a = 799\,\mathrm{nm}$). Dies muß lediglich bei der Auswertung berücksichtigt werden. Der Meßvorgang ist bei beiden Materialklassen identisch.

[1] engl.: „Catastrophic optical damage", d. h. Zerstörung der Frontfacette durch zu hohe Leistungsdichten.

Charakterisierung der Strahlquellen

Zum Betrieb der Diodenlaser wurde die Temperaturregelung „Profile TED 200“ sowie die Stromregelung „ILX Lightwave LDX3620“ mit einer Akku-Stromversorgung eingesetzt. Mit dieser Gerätekombination wurde das geringste Rauschen des damit betriebenen Diodenlasers erzielt, was zu kleineren Meßfehlern (s. Abschnitt 4.1.1) führt.

Die Betriebsparameter der eingesetzten Diodenlaser können aus Tabelle 4.1 entnommen werden. Gleichzeitig wurde bei diesen Parametern ein Emissionsspektrum der Diodenlaser aufgenommen, um die spektrale Breite zu überprüfen. Wie man an Abbildung 4.3 und 4.4 erkennen kann, wird die gestellte Forderung nach einer spektralen Breite von mindestens 0,2 nm leicht erfüllt.

Lasertyp	SDL5411-G1	SDL7501-G1
Seriennummer	RJ908	PO165
Zentralwellenlänge / nm	799	630
spektrale Breite (FWHM) / nm	5	5
Gehäuse Temperatur / $^\circ C$	22,5	18
Strom / mA	25	55
Ausgangsleistung / mW	1,5	0,36
Strahlradius $\left(\frac{1}{e^2}\right)$ am Probenort / μm	25	22

Tabelle 4.1: Betriebsparameter der zur Absorptionsmessung eingesetzten Diodenlaser.

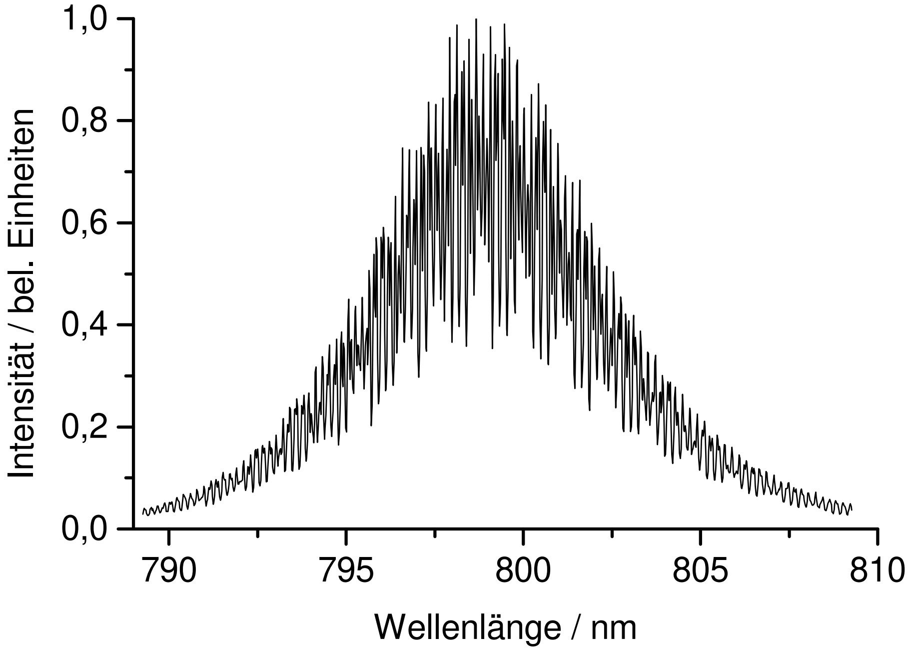

Abbildung 4.3: Emissionsspektrum des antireflex beschichteten Diodenlasers SDL 5411-RJ908 bei einer Temperatur von 22,5° C und einem Strom von 25 mA.

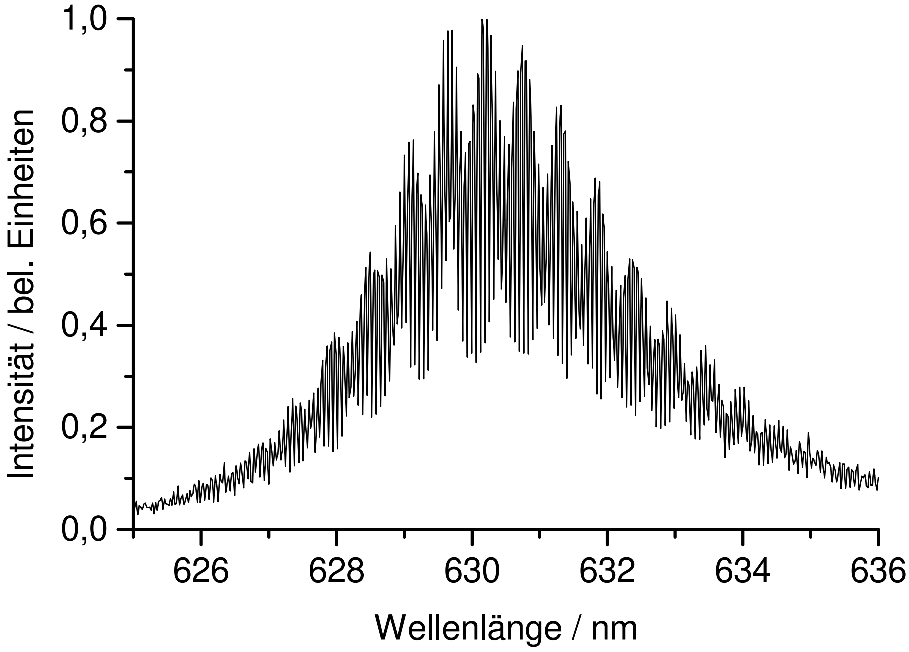

Abbildung 4.4: Emissionsspektrum des antireflex beschichteten Diodenlasers SDL 7501-PO165 bei einer Temperatur von 18,0° C und einem Strom von 55 mA.

Detektionssystem

Zur Detektion der Intensitäten M_i, M_a, R_i und R_a kommen Meßphotodioden (TYP: S2386-8K von Hamamatsu) zum Einsatz, welche sich durch sehr gute Linearität zwischen eingestrahlter Leistung und Photostrom auszeichnen [Hama]. Die Photodioden werden in Gegenspannungsschaltung betrieben (U=6V, R=20kΩ), wobei auf eine Verstärkung verzichtet werden kann, wenn die Ausgangsleistung der Strahlquellen mindestens den geforderten Wert von 0,3 mW erreicht. Als Gegenspannungsquelle werden Batterien eingesetzt, was ebenfalls zur Verringerung des Rauschens beiträgt.

Eine Besonderheit ist bei der Erfassung der Signale M_i und M_a zu erwähnen: Diese Signale werden von der gleichen Photodiode gemessen. Damit die Signale unabhängig von einander detektiert werden können, sorgt der „Chopper" für eine zeitliche Trennung der Signale (vergl. Abbildung 4.1.1). Die Öffnungen des „Choppers" sind so angebracht, daß niemals die Strahlung beider Quellen gleichzeitig den Detektor erreicht. Die zwei Signale werden mit einer Frequenz von 45 Hz umgeschaltet. Daher werden für eine vollständige Messung aller Signale 44 ms benötigt, was auch bei großen Proben hinreichend schnell ist. Diese Methode weist gegenüber der Verwendung eines dichroitischen Strahlteilers die Vorteile auf, daß die Trennung der zwei Strahlen am Detektor 100% beträgt und unabhängig vom Polarisationszustand des Lichtes erfolgt. Eine vom Polarisationszustand unabhängige Detektion der transmittierten Intensität ist zwingend erforderlich, da dieser nach Durchlaufen einer optisch doppelbrechenden Probe nicht mehr determiniert ist.

Zur automatisierten Erfassung der Signale (s. Abschnitt 5.1.2) sind die drei Photodioden an einem A/D-Wandler angeschlossen. Hierbei wird immer das Referenzsignal (R_i bzw. R_a) mit dem korrespondierenden Transmissionssignal (M_i bzw. M_a) exakt gleichzeitig gelesen. Dies ist mittels einer Mehrkanal Haltestufe („Sample and Hold"), die dem eigentlichen A/D-Wandler vor geschaltet ist, realisiert.

Die Erfassung der Meßdaten geschieht mit einem A/D-Wandler mit einem Dynamik Bereich von 1:4096 (12 Bit). Die A/D-Wandlerkanäle wurden einzeln mit einer Referenzspannungsquelle kalibriert, so daß der Meßfehler der Wandlung lediglich durch das Quantisierungsrauschen von $\pm 0,5$ Bit bzw. $\pm 1 : 8192$ gegeben ist.

Konzentrationsbestimmung

Die Transmissionen der Probe für die Wellenlängen λ_i und λ_a (innerhalb und außerhalb der Absorptionsbande s. Abschnitt 4.1.1) werden getrennt als unabhängige Messungen betrachtet, und im folgenden gilt daher $n \in \{i, a\}$.

Aus den Signalen der Meßdiode M_n, der Referenzdiode R_n und mit dem Teiler Verhältnis k_n des Strahlteilers, das vor dem Einbau der Probe bestimmt wird, berechnet sich die Transmission T_n der Probe für Licht der Wellenlänge λ_n zu:

$$T_n = k_n \frac{M_n}{R_n} \tag{4.4}$$

Aus T_i und T_a berechnet sich die dotierungsbedingte Absorption A, korrigiert um Streu- und nicht dotierungsbedingte Absorptionsverluste:

$$A = 1 - \frac{T_i}{T_a} \tag{4.5}$$

Die Berechnung der Absorption A ist korrekt unter der Voraussetzung, daß die Reflektivität der Probenoberflächen für λ_i und λ_a identisch ist. Dies ist für unbeschichtete Proben immer erfüllt, da der Fresnel Reflexionskoeffizient [Kle88] unter senkrechtem Einfall unabhängig von der Wellenlänge ist. Im Falle beschichteter Proben muß mittels einer separaten Messung ein Korrekturfaktor bestimmt werden (s. Abschnitt 4.1.2).

Bestimmt man aus der Absorption A und der Probenlänge L den Absorptionskoeffizienten α nach Gleichung 4.6, so läßt sich daraus die Dotierungskonzentration n_{at} nach Gleichung 4.7 berechnen.

$$\alpha = \frac{-ln(1-A)}{L} \tag{4.6}$$

$$n_{at} = \frac{\alpha}{\sigma} \tag{4.7}$$

Die Konstante σ wird mittels einer Kalibriermessung bestimmt. Es handelt sich um eine Materialkonstante, die von der spektralen Abhängigkeit der Absorption des Materials und dem Emissionsspektrum der hier verwendeten speziellen Strahlungsquelle abhängt. Der Vergleich mit einem spektroskopischen Wirkungsquerschnitt ist nicht sinnvoll, da eine spektral breitbandige Strahlquelle eingesetzt wurde, während Wirkungsquerschnitte für einen bestimmten atomaren Übergang definiert sind.

Für das Material Nd:YAG wurden zur Bestimmung von σ zwei Nd:YAG Proben benutzt, deren Nd-Konzentration n_{at} durch eine chemische Analyse [Hofm] bestimmt wurde (s. Tabelle 4.2).

	AOA09003	AOA09004
n_{at} / 10^{20}cm^{-3}	$1,08 \pm 0,085$	$1,227 \pm 0,085$
c_{at} / at.%	$0,778 \pm 0,06$	$0,884 \pm 0,06$

Tabelle 4.2: Ergebnisse der chemischen Konzentrationsanalyse der Nd:YAG Proben AOA09003 und AOA09004.

Die Umrechnung von atomarer Dichte n_{at} in atomare Konzentration c_{at} erhält man durch eine einfache Massen Betrachtung [Lhu99] mittels Gleichung 4.8 und Tabelle 4.3.

$$c_{at} = n_{at} \frac{m_{wirt}}{n_{wirt} N} \tag{4.8}$$

Trivialname	Nd:YAG	Nd:YVO	Nd:YLF
chem. Summen Formel (undotiert)	$Y_3Al_5O_{12}$	YVO_4	$YLiF_4$
Masse eines Wirtmoleküls m_{wirt} / amu	593,63	203,85	171,85
Dichte Wirtmaterial n_{wirt} / g cm^{-3}	4,56	4,22	3,99
Anzahl Einbauplätze N	3	1	1

Tabelle 4.3: Parameter zum Umrechnen von n_{at} in atomare Konzentrationen für einige Nd dotierte Materialien ($1\,amu = 1,66055 * 10^{-24} g$).

Genauigkeit der Transmissionsbestimmung

Der Fehler des Meßverfahrens setzt sich aus mehreren Einzelkomponenten zusammen:

1. Fehler der A/D-Wandlung
2. Meßfehler der Photodioden
3. Drift der Intensität der Strahlungsquelle
4. Rauschen der Strahlungsquelle
5. Fehler in der Bestimmung des Teilerverhältnisses des Strahlteilers
6. Drift in der Zentralwellenlänge der Strahlquelle

Insbesondere die nichtlinearen Anteile der A/D-Wandlung und der Photodioden führen in Verbindung mit einer Drift und Rauschen der Strahlungsquelle zu einem statistischen Meßfehler, da die Referenzbildung nur lineare Anteile korrigieren kann. Der Fehler in der Bestimmung des Teilerverhältnisses des Strahlteilers verursacht lediglich einen systematischen Anteil.

Die statistischen Fehler lassen sich experimentell mittels einer Messung ohne Probe bestimmen. Dies wurde über eine Dauer von 14 h durchgeführt, was dem Zeitbedarf einer Messung einer großen Probe mit ca. 50 mm Durchmesser entspricht. Die Signale der Photodioden sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Man erkennt, daß die Signale der Wellenlänge von 799 nm über die gesamte Meßdauer annähernd konstant bleiben, während die Signale für die Wellenlänge 630 nm eine Drift zeigen. Die quantitative Auswertung (Tabelle 4.4) zeigt daher auch wesentlich höhere relative Standardabweichungen[2] der 630 nm Signale. Diese Drift wird jedoch weitgehend durch die Referenzbildung ausgeglichen. Dies demonstriert Abbildung 4.6, wo die Signale für 630 nm und 799 nm nach der Referenzbildung aufgetragen sind. Die Schwankungen sind jetzt für beide Wellenlängen wieder ungefähr gleich, obwohl die Signale bei 630 nm vorher eine wesentlich größere Abweichung gezeigt haben. Der Restfehler nach

[2] Standardabweichung bezogen auf den Mittelwert.

der Referenzbildung wird durch Nichtlinearitäten in dem Detektor System verursacht, die sich nicht eliminieren lassen.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.4 dargestellt. Als Meßfehler der Transmissionsmessung liest man die relative Standardabweichung des Quotienten aus Meß- und Referenzkanal ab (Spalte: $T_{i,a}$). Er beträgt ohne Nd:YAG Probe 0,06% für 799 nm und 0,13% für 630 nm. Der Betrag der Meßfehler korreliert mit der Intensitätsdrift der Strahlungsquellen. Daher wurden die Strom- und Temperaturregelungen der Diodenlaser hinsichtlich möglichst kleiner Drift ausgewählt. Man erkennt auch an Hand der Tabellen Werte gut die Wirkung der Referenzbildung: Die Werte der Spalten T_i und T_a sind in der Regel immer kleiner als die Werte der korrespondierenden Signale $M_{i,a}$ und $R_{i,a}$. Eine Ausnahme bilden die Werte R_i und M_i für die Messung mit der Nd:YAG Probe.

Dieses Verhalten ist auf eine Drift der Wellenlänge λ_i zurückzuführen.Wie in Abschnitt 4.1.1 dargelegt, bewirkt sich eine Änderung der Zentralwellenlänge λ_i eine Änderung des Transmissionssignals. Dieses Verhalten ist in Abbildung 4.7 dargestellt, indem das Transmissionssignal für dieselbe Kristallposition einer Nd:YAG Probe über die gleiche Dauer wie zuvor (14 h) aufgezeichnet wird.

Man erkennt eine Drift des Signals für $\lambda_i = 799\,\text{nm}$, während das zweite Signal konstant bleibt. Dies drückt sich auch in einer angestiegenen Maximalabweichung des Transmissionssignals von 0,3% auf 1,0% gegenüber der Leer-Messung aus. Daher werden die Standardabweichung und Maximalabweichung dieser Messung als Fehler für die Absorptionsmessung von Nd:YAG Proben angegeben, wobei die Maximalabweichung nur bei großen Proben mit vergleichbar langer Meßdauer von Bedeutung ist.

Die Wellenlängendrift des Diodenlasers mit der Wellenlänge λ_a hat auf die Bestimmung der Meßfehler keinen Einfluß, da diese Strahlung in Nd:YAG nicht absorbiert wird. Dies wird auch durch das Experiment bestätigt, da die maximale Abweichung für T_a auch im Falle der Messung mit Nd:YAG Probe gleich bleibt.

Der Meßfehler der Transmissionsmessung einer Probe beträgt folglich $0,223\% + 0,086\% = 0,3\%$. Bei einer Meßdauer in der Größenordnung von 10 h ist ebenso der Maximalfehler von $1\% + 0,37\% = 1,4\%$ zu berücksichtigen.

Signal	R_i	M_i	R_a	M_a	T_i	T_a
ohne Probe						
größte relative Abweichung / %	0,396	0,319	6,795	7,233	0,298	0,626
relative Standardabweichung / %	0,065	0,047	1,806	1,916	0,055	0,129
mit Nd:YAG Probe						
größte relative Abweichung / %	0,520	0,791	12,62	12,82	1,004	0,370
relative Standardabweichung / %	0,061	0,189	3,476	3,557	0,223	0,086

Tabelle 4.4: Experimentell bestimmte Genauigkeit der Transmissionsmessung. Bedeutung der Abkürzungen $R_{i,a}$ = Referenzsignal; $M_{i,a}$ = Messignal; $T_{i,a} = M_{i,a}/R_{i,a}$ = Transmissionssignal; T_i ist hier immer bei λ_i=799 nm und T_a bei λ_a=630 nm gemessen. Der Wert der größten relativen Abweichung gilt für eine Dauer von 14 h und berechnet sich aus der Differenz zwischen maximalem und minimalem Meßwert bezogen auf den Mittelwert.

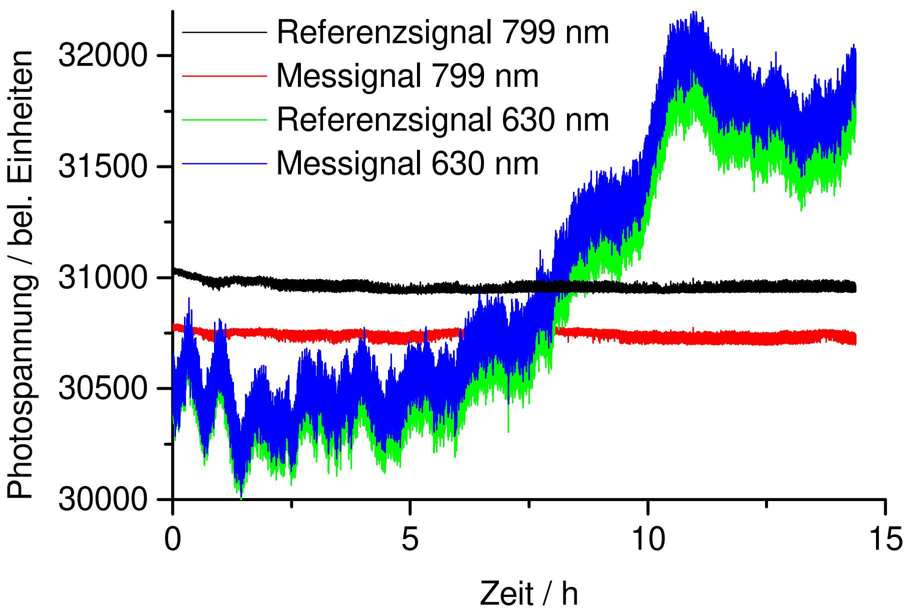

Abbildung 4.5: Signale der Photodioden der Absorptionsmessung ohne Probe (Leer Messung) über einen Zeitraum von 14 h aufgezeichnet.

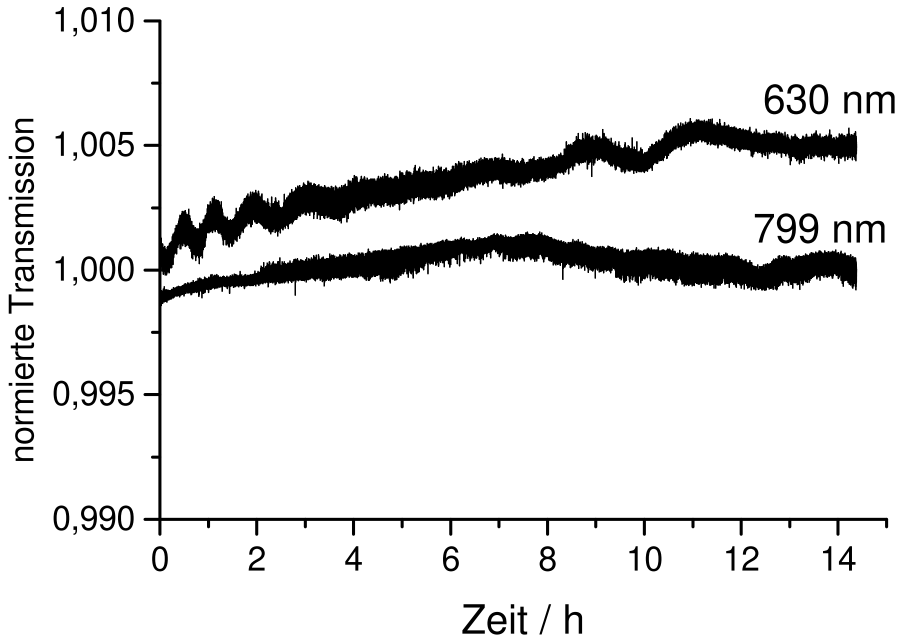

Abbildung 4.6: Transmissionssignal (=Messignal/Referenzsignal) der Absorptionsmessung ohne Probe über einen Zeitraum von 14 h aufgezeichnet.

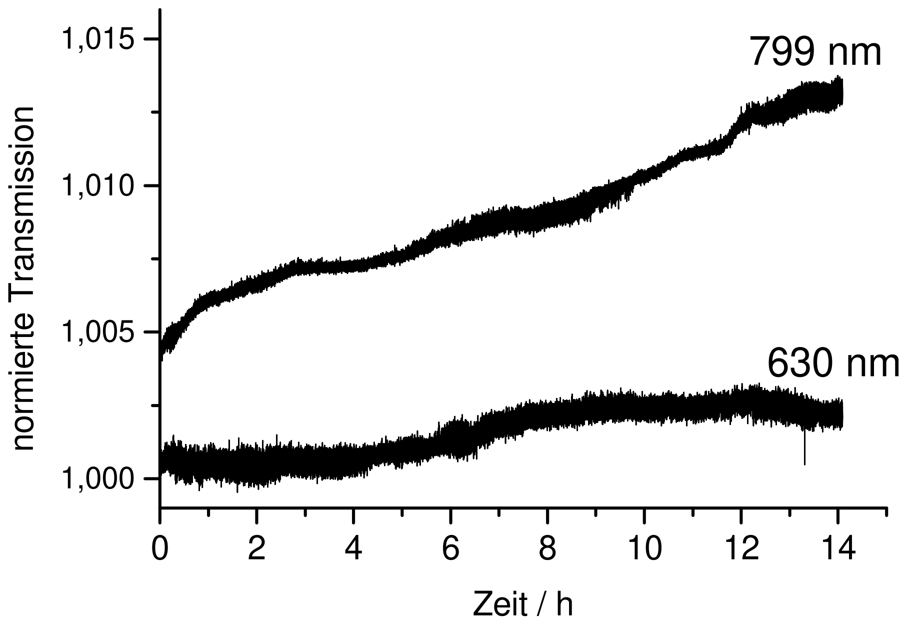

Abbildung 4.7: Transmissionssignal (=Messignal/Referenzsignal) der Absorptionsmessung einer Nd:YAG Probe an der selben Position über einen Zeitraum von 14 h aufgezeichnet.

Genauigkeit der Konzentrationsbestimmung

Ausgehend von einem Fehler $\Delta T/T = 0,3\%$ in der Bestimmung der Transmission der Probe ergeben sich durch Fehlerfortpflanzung folgende Fehler in der Bestimmung des Absorptionskoeffizienten α und in der Konzentration n_{at}. Es ist instruktiver, gleich den relativen Fehler $\Delta n_{at}/n_{at}$ anzugeben.

$$\frac{\Delta n_{at}}{n_{at}} = \frac{\Delta\alpha}{\alpha} + \frac{\Delta\sigma}{\sigma} \quad \text{, mit} \tag{4.9}$$

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = \frac{\Delta T}{T}\left|\frac{1}{\ln(T)}\right| + \frac{\Delta L}{L} \tag{4.10}$$

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{\Delta\alpha}{\alpha} + \frac{\Delta n_{at}}{n_{at}} \tag{4.11}$$

Der Gesamtfehler nach Gleichung 4.9 setzt sich additiv aus einem Fehler in der Messung des Absorptionskoeffizienten (1. Term) und einem Fehler in der Kalibrierung (2. Term) zusammen. Man erhält relative Fehler von 1,26% für den ersten Anteil und 8,6% für den zweiten Term, was einen Gesamtfehler von 9,9% in der absoluten Bestimmung der Konzentration ergibt. Der größte Anteil am Gesamtfehler wird also durch die Kalibrierung verursacht. Dies ist damit zu begründen, daß die chemische Analyse der Kalibrierproben bereits mit einem relativen Fehler von 7,3% behaftet ist.

Relative Konzentrationsbestimmungen sind mit einer Genauigkeit von 1,26% möglich. Die Genauigkeit kann nochmals durch eine bessere Längenbestimmung der Proben gesteigert werden. Bei einer Messung der Probenlänge mit $\Delta L = 0,025\,\text{mm}$ ergibt sich für typische Proben mit $L = 4\,\text{mm}$ bereits ein Fehler von 0,6%. Das ist doppelt so groß wie der Fehler der Transmissionsmessung $\Delta T/T$.

Konzentrationsbestimmung einer Nd:YAG Probe

Als Beispiel ist in Abbildung 4.10 die Absorptionsmessung einer Nd:YAG Probe (Probe AOA13001) dargestellt. Es werden Transmissionsunterschiede von 10^{-3} nachgewiesen.

Vergleicht man die Transmissionsmessungen für die Wellenlängen $\lambda_i = 810\,\text{nm}$ und $\lambda_a = 670\,\text{nm}$ (Abbildungen 4.8 und 4.9), so wird deutlich, daß die im Kristall zu erkennenden Strukturen tatsächlich von einer unterschiedlichen Neodym Verteilung verursacht wird. Der Kern als auch der Bereich der konzentrischen Wachstumsringe sind auch in Abbildung 4.8 zu sehen, in der die Transmission bei λ_i, also innerhalb einer Absorptionsbande von Nd:YAG, gemessen wurde. Dagegen sind sie außerhalb der Absorption durch laseraktive Ionen, d. h. bei der Wellenlänge λ_a (Abbildung 4.9), nicht meßbar.

Mit Hilfe der Kalibrierkonstante σ und der Länge der Probe L können nun die ermittelten Werte für die Absorption (Abbildung 4.10) in die Dotierungskonzentration umgerechnet werden. Das Ergebnis zeigt Abbildung 4.11. Man sieht die gleichen Strukturen wie bereits in Abbildung 4.10,die bei der Konzentrationsberechnung zu Grunde lag. Abbildung 4.11 wurde durch eine einfache Umskalierung nach Gleichungen 4.6 und 4.7 aus Abbildung 4.10 gewonnen.

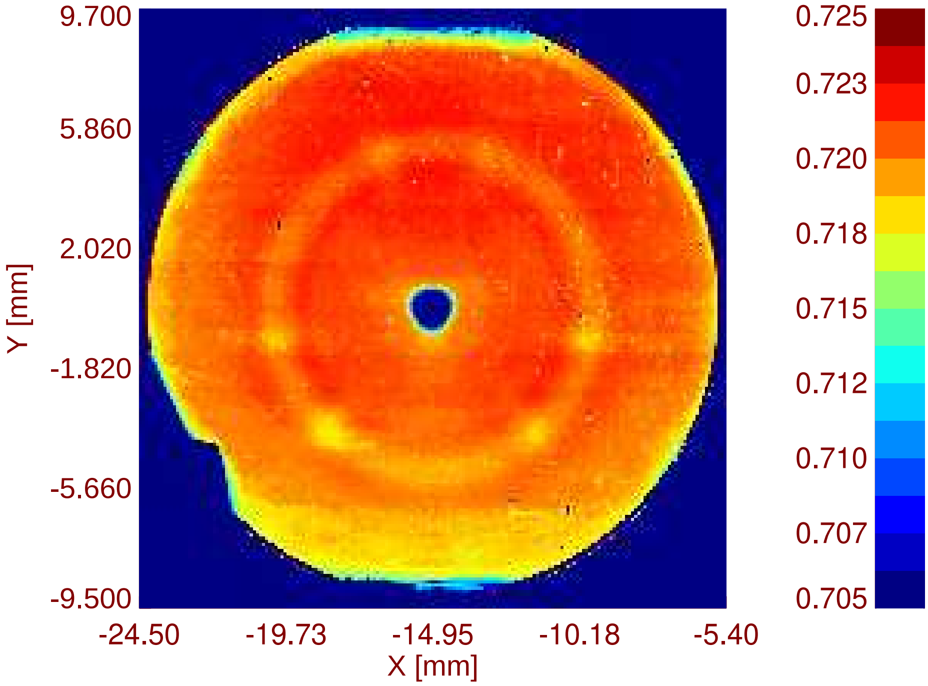

Abbildung 4.8: Verteilung der Transmission von 799 nm Strahlung, gemessen an Probe AOA13001.

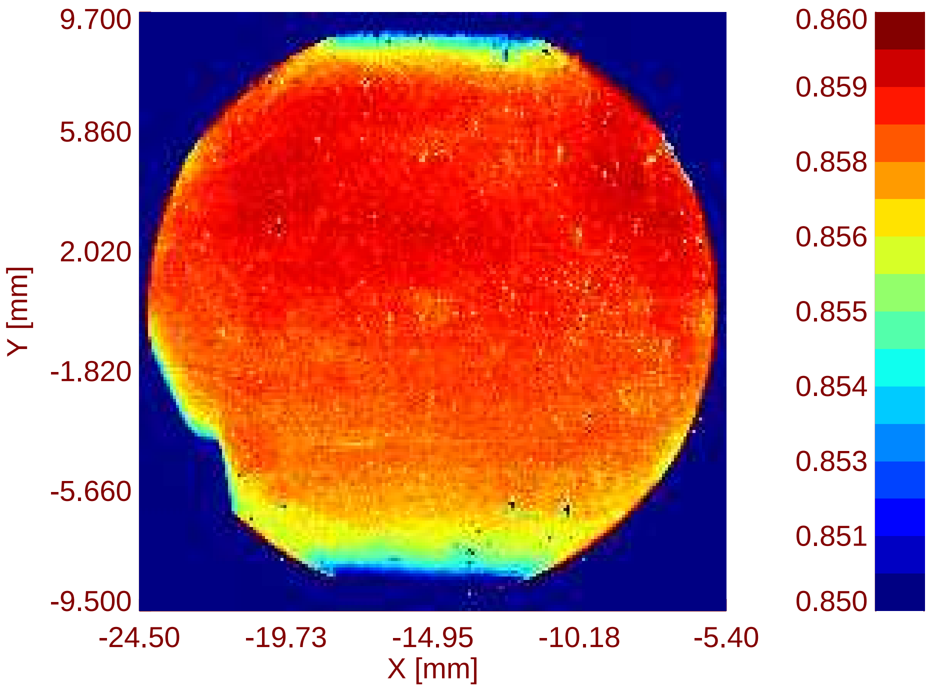

Abbildung 4.9: Verteilung der Transmission von 630 nm Strahlung, gemessen an Probe AOA13001.

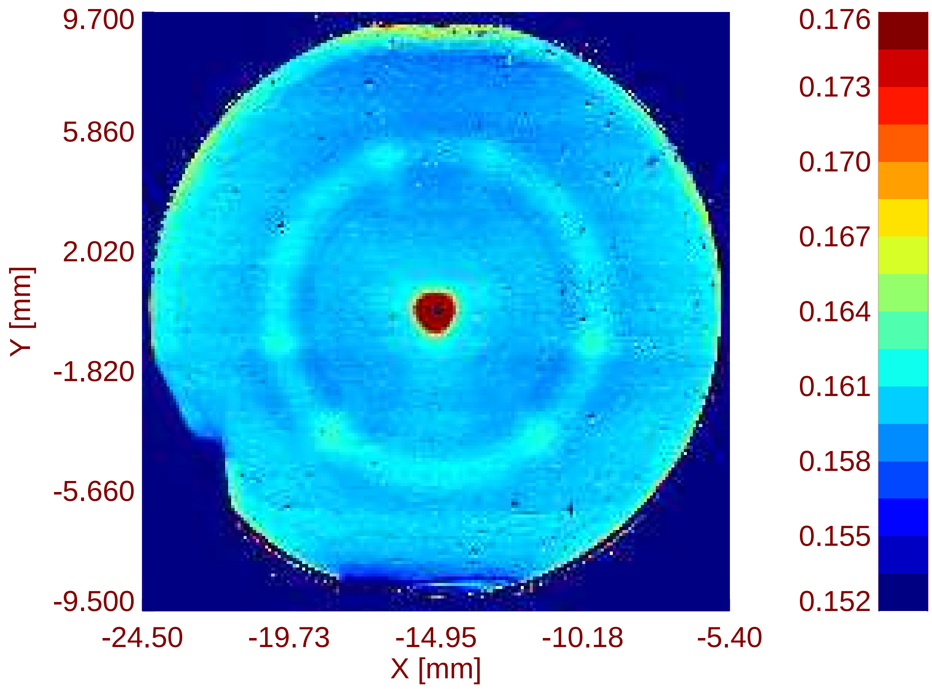

Abbildung 4.10: Verteilung der Absorption von 799 nm Strahlung, gemessen an Probe AOA13001.

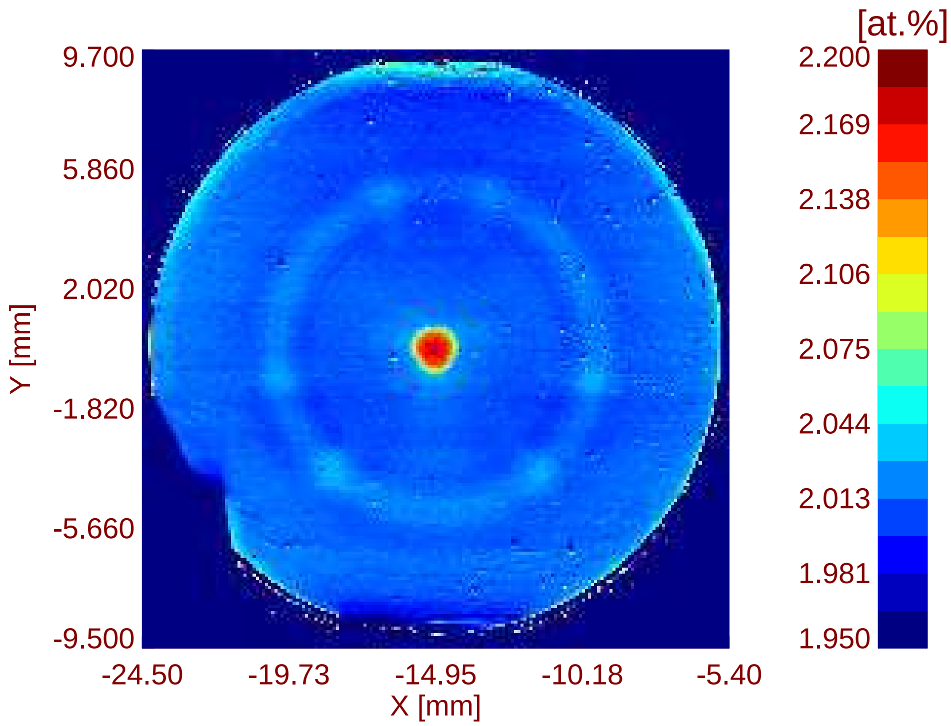

Abbildung 4.11: Verteilung der Neodym Konzentration in Probe AOA13001.

4.1.2 Spektrale Abhängigkeit der Absorption

Die spektrale Abhängigkeit der Absorption wird mit einem Fourier-Transmissionsspektrometer (Bruker FTIR 120) bestimmt. Die maximale Auflösung des Gerätes beträgt $0,14\,\mathrm{GHz}$. Bei der Untersuchung der Proben wird typischerweise eine Auflösung von $30\,\mathrm{GHz}$ ($\equiv 1\,\mathrm{cm}^{-1}$) benutzt.

Die Messung wird zur Untersuchung anisotroper Proben mit linear polarisierter Strahlung durchgeführt, um das Absorptionsspektrum für die Orientierungen der Kristall Achse $\vec{c} \parallel \vec{E}$ und $\vec{c} \perp \vec{E}$ bestimmen zu können. Die Lage der $\vec{c}$-Achse wird vorab durch Orientieren der Probe zwischen gekreuzten Polarisatoren bestimmt. Durch Verwendung spezieller Proben Halter ist gewährleistet, daß die Orientierung der Probe beim Einbau in das Spektrometer erhalten bleibt.

Bei isotropen Proben wie z. B. Nd:YAG wird unpolarisierte Strahlung verwendet. Dadurch steht eine größere Intensität zur Verfügung, was sich insbesondere bei langen Proben günstig auf das Signal zu Rausch Verhältnis auswirkt.

Auswertung der spektralen Abhängigkeit der Absorption zur quantitativen Konzentrationsbestimmung

Die Konzentrationsbestimmung mittels Spektrometer nutzt den Zusammenhang zwischen Absorptionskoeffizienten und atomarer Konzentration wie bereits durch Gleichungen 4.6 und 4.7 beschrieben. Während bei der Konzentrationsbestimmung mit der Absorptionsmethode (Abschnitt 4.1.1) lediglich ein mittlerer Absorptionskoeffizient, der sich aus der Integration über das Emissionsspektrum der Strahlungsquelle ergab, bestimmt wurde, liefert das Spektrometer den Absorptionskoeffizienten $\alpha(\lambda)$ als Funktion der Wellenlänge.

Damit läßt sich die Basislinie der Absorption (d. h. Transmission $\equiv 1$) unabhängig von dem Wert der Oberflächenreflektivität der Kristalle festlegen. Dies war insbesondere nach dem in Abschnitt 4.1.1 beschriebenen Verfahren nicht möglich, wenn die Reflektivität der beschichteten Oberflächen für die benutzten Wellenlängen λ_i und λ_a unterschiedlich war.

Im Falle von Neodym dotiertem Material wie Nd:YAG, Nd:YLF und Nd:YVO_4 legt man die Basislinien zweckmäßigerweise bei $\lambda = 850\,\mathrm{nm}$ fest, d. h. es gilt nach der Normierung: $T(850\,\mathrm{nm}) = 1$. Diese Wellenlänge befindet sich gerade außerhalb der Neodym Absorptionsbande bei $800\,\mathrm{nm}$, die zur Konzentrationsbestimmung herangezogen wird. Im Falle von AR beschichteten Kristallen nutzt man die Tatsache aus, daß sich die Oberflächenreflektivität in dem betrachteten Wellenlängenbereich kaum ändert.

Zur Bestimmung der Kalibrierwerte für das Material Nd:YAG wurden dieselben Proben wie zur Kalibrierung des Absorptionsverfahrens benutzt (Tabelle 4.2).

Die Konzentrationsbestimmung wird an Hand neun ausgewählter Absorptionslinien im Bereich $792 - 822\,\mathrm{nm}$ durchgeführt (Abbildung 4.12). Es wird mehr als eine Wellenlänge betrachtet, um den Meßfehler entsprechend zu reduzieren. Für die ausgewälten Absorpti-

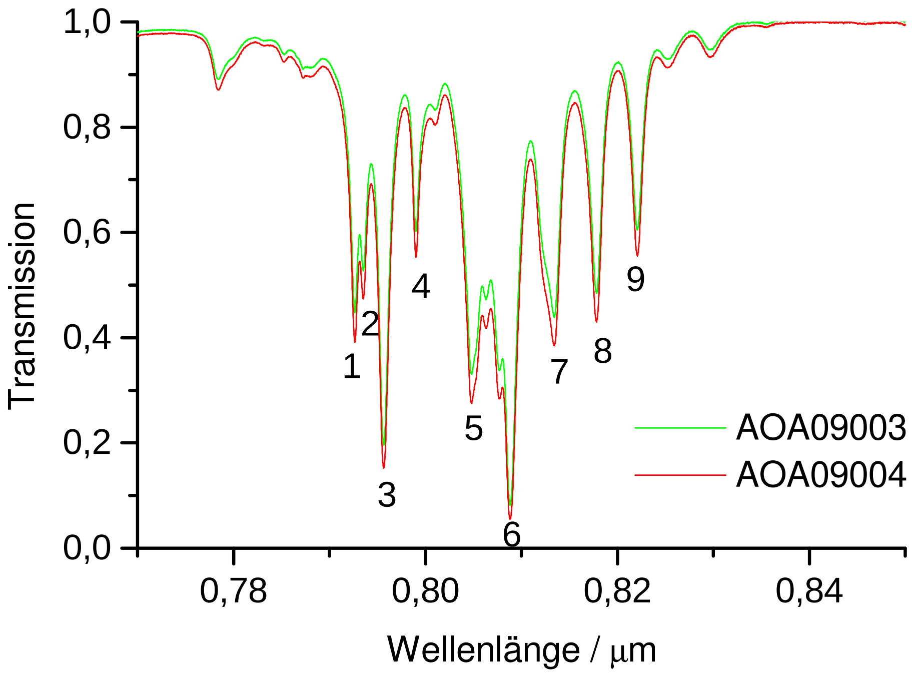

Abbildung 4.12: Spektrale Abhängigkeit der Transmission der Nd:YAG Kalibrierproben AOA09003 und AOA09004. Die Kurve wurde normiert, so daß $T(850\,\mathrm{nm}) = 1$ gilt.

onslinien der Kalibrierproben werden zunächst die Absorptionskoeffizienten $\alpha_{1...9}$ und mit Gleichung 4.7 neun Konstanten $\sigma_{1...9}$ bestimmt. Die Konzentration n_{at} der Kalibrierproben ist aus der chemischen Analyse bereits bekannt.

Es ist zu beachten, daß die hier ermittelten Kalibrierkonstanten $\sigma_{1...9}$ keine Wirkungsquerschnitte im spektroskopischen Sinne darstellen, sondern noch mit der Apparatefunktion des Spektrometers gefaltet sind. Da hier sowohl für den Kalibriervorgang als auch später für den Meßvorgang das selbe Spektrometer mit identischen Einstellungen benutzt wird, kann auf die Entfaltung der Apparatefunktion verzichtet werden, was die Auswertung vereinfacht. Zur Eliminierung von weiteren systematischen Fehlern muß ohnehin die Kalibrierung des Verfahrens sowie Messung einer Probe mit den gleichen Parametern durchgeführt werden.

Die Konzentrationsbestimmung verläuft analog zur Kalibrierung. Für die ausgewählten Absorptionslinien werden zunächst $\alpha_{1...9}$ bestimmt. Mit den zuvor bestimmten Kalibrierwerten $\sigma_{1...9}$ läßt sich dann direkt n_{at} als Mittelwert der 9 Einzelwerte angeben. Die Umrechnung in die atomare Konzentration c_{at} erfolgt nach Gleichung 4.8.

Mit diesem Verfahren läßt sich die absolute Konzentration des laseraktiven Ions auch für bereits beschichtete Proben bestimmen. Damit kann die zweidimensional aufgelöste Konzentrationsbestimmung wie in Abschnitt 4.1.1 beschrieben kalibriert werden. Hierzu wird mittels des Spektrometers die Konzentration an einer genau definierten Probenkoordinate gemessen, was man durch Anbringen einer hinreichend kleinen Blendenöffnung erreichen kann, da das Spektrometer selbst keine zweidimensional aufgelösten Messungen erlaubt. Durch Vergleich mit der an der gleichen Position gemessenen Absorption läßt sich der tatsächliche Absorptionskoeffizient an dieser Stelle ermitteln. Mit diesem zusätzlichen Schritt ist es somit möglich, an beschichteten Proben zweidimensional aufgelöste Konzentrationsbestimmungen vorzunehmen.

4.1.3 Fluoreszenzlebensdauer des oberen Laserniveaus

Meßverfahren

Der wesentliche Meßparameter des hier benutzten Meßverfahrens ist die Fluoreszenzlebensdauer des ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$-Übergangs des Nd-Ions. Dazu wird die zeitliche Entwicklung der Fluoreszenzintensität nach Abschalten der Anregungsquelle mit einer Photodiode erfaßt. An den Intensitätsverlauf wird eine Exponentialfunktion angepaßt und daraus die Fluoreszenzlebensdauer τ bestimmt.

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-\frac{1}{\tau}t} + I_{Offset} \tag{4.12}$$

In Abbildung 4.13 ist eine typische Meßkurve für einen Punkt des Kristalls dargestellt. Aus dem Bereich I dieser Meßkurve kann die Fluoreszenzintensität I_0 und aus Bereich II die Fluoreszenzlebensdauer τ bestimmt werden. Die Bestimmung des Wertes I_{Offset} erfolgt in Bereich III. Hier kann man davon ausgehen, daß die Fluoreszenzintensität vollständig abgeklungen ist.

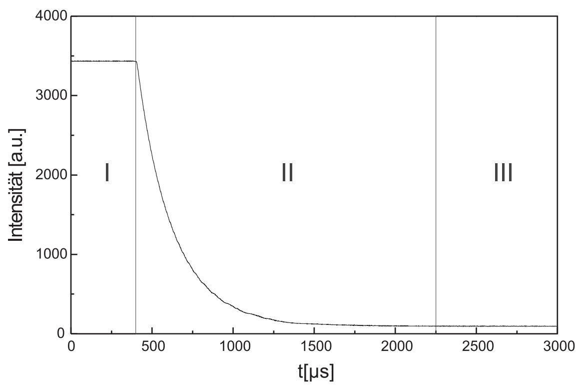

Abbildung 4.13: Gemessene Lebensdauerkurve von Nd:YAG . Eingezeichnet sind drei Bereiche: Bereich I dient der Fluoreszenzintensitätsbestimmung, Bereich II der Fluoreszenzlebensdauerbestimmung, Bereich III der Bestimmung der Nullinie.

Versuchsaufbau

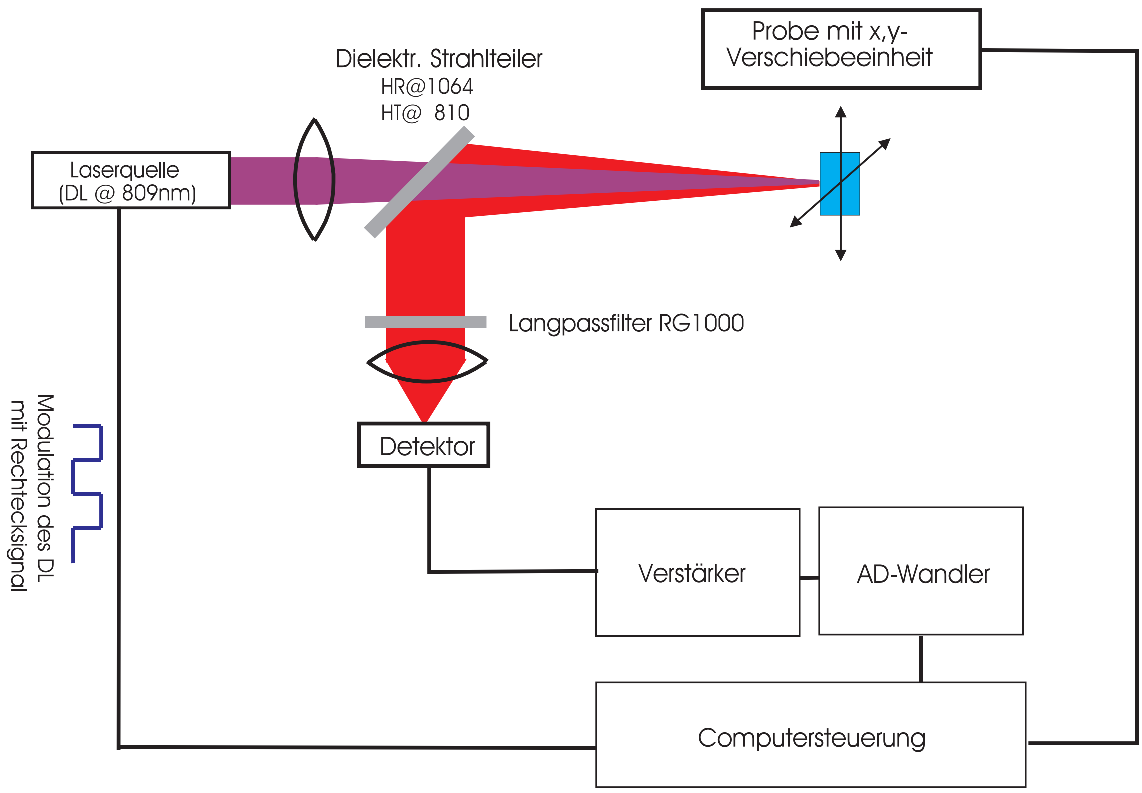

Abbildung 4.14: Meßaufbau zur zweidimensional aufgelösten Bestimmung von Fluoreszenzlebensdauern und Dotierungskonzentrationen.

Abbildung 4.14 zeigt schematisch den Versuchsaufbau zur Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer.

Zur Anregung der laseraktiven Ionen wird ein Diodenlaser verwendet. Der Diodenlaserstrom wird durch ein Computer generiertes Rechtecksignal moduliert. Dabei werden Amplitude und Offset des Rechtecksignals so angepaßt, daß der Diodenlaser im oberen Plateau des Rechtecks eine Leistung von 120 mW und im unteren Plateau keine Laserstrahlung emittiert. Die Modulationsfrequenz wurde so gewählt, daß in der Zeit, in der der Diodenlaser eingeschaltet ist, ein Gleichgewicht zwischen Pump- und Emissonsrate erreicht wird.

Mit fallender Flanke des Rechtecksignals beginnt die Messung des Abklingvorgangs der Fluoreszenzintensität (Bereich II in Abbildung 4.13).

Ein Teil der Fluoreszenzstrahlung wird nach Passieren eines Langpassfilters auf eine Photodiode fokussiert und dort detektiert. Der in der Photodiode erzeugte Photostrom wird in einem Verstärker in eine dem Photostrom proportionale Spannung umgewandelt und verstärkt.

Dieses Signal wird mittels einer A/D-Wandlerkarte digitalisiert. Der Computer bestimmt dann durch einen Kurvenfit die Fluoreszenzlebensdauer.

Der vom Diodenlaser emittierte Laserstrahl wird zunächst kollimiert und dann mit einer Linse auf den zu untersuchenden Kristall fokussiert. Ein Teil der vom Kristall emittierten Fluoreszenzstrahlung wird über einen dielektrischen Strahlteiler auf die Photodiode geleitet. Mit diesem Aufbau können alle Oberflächen eines Kristalls, also auch die Seitenflächen, untersucht werden. Die mögliche räumliche Auflösung ist nur durch die Größe des Fokus begrenzt.

Eine detaillierte Beschreibung des Verfahrens sowie eine Abschätzung des Meßfehlers und störende Einflüsse (z. B. Einfluß von verstärkter Spontanemission in Verbindung mit Oberflächen- und Randeffekten) findet sich in der Diplomarbeit J. L'huillier [Lhu99].

Konzentrationsbestimmung und Genauigkeit

Durch Energieaustausch zwischen benachbarten Ionen, genannt Konzentrationsquenching, ändert sich die Fluoreszenzlebensdauer des laseraktiven Ions. Die meßbare Lebensdauer τ_f nimmt mit steigender Nd-Konzentration C gemäß Gleichung 4.13 ab [Pow98, Lhu99].

$$C = Q\sqrt{\frac{\tau_0}{\tau_f} - 1} \tag{4.13}$$

Hierbei ist τ_0 die sogenannte intrinsische Lebensdauer (für den Fall $C \to 0$) und Q ist der Quenchingparameter.

Bestimmt man in einer Messung die effektive Lebensdauer τ_f und kennt den Quenchingparameter Q sowie die intrinsische Lebensdauer τ_0, läßt sich aus 4.13 die Dotierungskonzentration des gemessenen Materials bestimmen. Die Änderung der Lebensdauer ist für niedrige Konzentrationen klein [Lhu99]. Es ist deshalb notwendig, die Fluoreszenzlebensdauer τ_f sehr genau zu bestimmen, um Aussagen über Dotierungskonzentrationen machen zu können.

Liegen Fluoreszenzlebensdauer Messungen bei verschiedenen bekannten Konzentrationen vor, kann die Funktion 4.13 als Fitfunktion verwenden werden. Aus diesem Fit ergeben sich Q und τ_0 direkt als Fitparameter. Im Allgemeinen liegen jedoch nur Messungen bei einigen wenigen Konzentrationen vor. In diesem Fall ist es günstig, zunächst die intrinsische Lebensdauer τ_0 zu bestimmen. Löst man 4.13 nach τ_0 auf, erhält man

$$\tau_0 = \tau_f \left[\left(\frac{C}{Q} \right)^2 + 1 \right] \tag{4.14}$$

Für $C \to 0$ folgt $\tau_0 = \tau_f$. Ist also $C \ll Q$, so ist die gemessene Lebensdauer τ_f weitgehend unabhängig von der Dotierungskonzentration und gibt direkt die intrinsische Lebensdauer τ_0 an. Aus mindestens einem weiteren Meßpunkt $\tau_f(C)$ kann Q bestimmt werden.

Der Quenchingparameter läßt sich bei bekannter Dotierungskonzentration und intrinsischer Fluoreszenzlebensdauer aus der Messung der Fluoreszenzlebensdauer bestimmen. Aus

Gleichung (4.13) folgt:

$$Q = C \cdot \left(\frac{\tau_0}{\tau_f} - 1\right)^{-\frac{1}{2}} \tag{4.15}$$

Experimentell wurden die Werte für Q und τ_0 durch Messung der Fluoreszenzlebensdauer verschiedener Nd:YAG Proben, deren genaue Nd-Konzentration durch eine chemische Analyse bestimmt worden war, gewonnen [Lhu01].

$$\tau_0 = (256.47 \pm 0.24)\mu s \tag{4.16}$$

$$Q = (4.45 \pm 0.40)10^{20} cm^{-3} \tag{4.17}$$

Damit sind absolute Nd-Konzentrationsbestimmungen mit einer Genauigkeit von 10^{-2} at.% möglich. Die erreichte Genauigkeit ist hierbei lediglich durch die Genauigkeit der chemischen Analyse limitiert. Die relative Bestimmung einer Konzentrationsverteilung ist mit einer Genauigkeit von 10^{-3} at.% möglich.

4.1.4 Vergleich der Verfahren

Da sowohl die Fluoreszenzlebensdauermethode als auch die Absorptionsmethode letztendlich die gleiche Größe – nämlich die Konzentrationsverteilung der Dotierung – messen, ist eine sehr gute Korrelation zwischen den gemessenen Parametern Fluoreszenzlebensdauer und Absorption für Strahlung der Wellenlänge λ_i zu erwarten. Dieser Zusammenhang wird in Abbildung 4.15 dargestellt. Am Beispiel der Probe AOA07002 sind diese zwei Parameter jeweils für identische Probenkoordinaten gegeneinander aufgetragen. Man erkennt sehr deutlich den Zusammenhang zwischen gemessener Absorption und Fluoreszenzlebensdauer. Der Regressionskoeffizient der eingezeichneten Ausgleichsgeraden beträgt $|r| = 0,97$.

Zur Bestimmung der Konzentration liefern beide Verfahren das gleiche Ergebnis. Die Genauigkeit der Fluoreszenzlebensdauermethode ist um einen Faktor 10 höher, wobei beide Verfahren z. Z. noch durch die Genauigkeit der Kalibrierung mittels chemisch analysierter Proben limitiert sind. Die zweitgrößte Fehlerquelle des Absorptionsverfahrens, die Längenbestimmung der Probe, ist bei der Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer nicht vorhanden, da das Verfahren keine Transmission messen muß. Es empfiehlt sich zur absoluten Konzentrationsbestimmung, die Messung der Absorption mit der Fluoreszenzlebensdauermethode zu kalibrieren.

Weitere Unterschiede zwischen den Verfahren liegen in den Anforderungen, die an die Proben gestellt werden. So erfordert die Messung der Absorption immer sehr gut polierte Oberflächen, während die Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer weitgehend unabhängig von der Oberflächenbeschaffenheit ist. In der Diplomarbeit J. L'huillier [Lhu99] wird gezeigt, daß eine korrekte Messung sogar an unpolierten Oberflächen möglich ist. Dies sind geradezu ideale Bedingungen für den Einsatz zur direkten Kontrolle der Dotierung bei der Produktion, da keine Präparation von Proben erfolgen muß.

Nachteile dieser Methode liegen in der leichten Beeinflußbarkeit der Fluoreszenzlebensdauer durch verstärkte Spontanemission, die sich lebensdauerverkürzend auswirkt. Dieser Effekt kann vor allem an den Rändern der Probe oder durch Interferenzeffekte zwischen parallelen Probenoberflächen auftreten. In diesem Fall ist die Messung der Absorption genauer, da durch die kurze Kohärenzlänge der speziellen breitbandigen Laserquellen Interferenz nicht möglich ist.

Bei bestimmten Materialien, wie z. B. Yb:YAG, die kein Konzentrationsquenching zeigen, wird die Messung der Absorption die einzige Möglichkeit zur zerstörungsfreien Konzentrationsbestimmung bleiben.

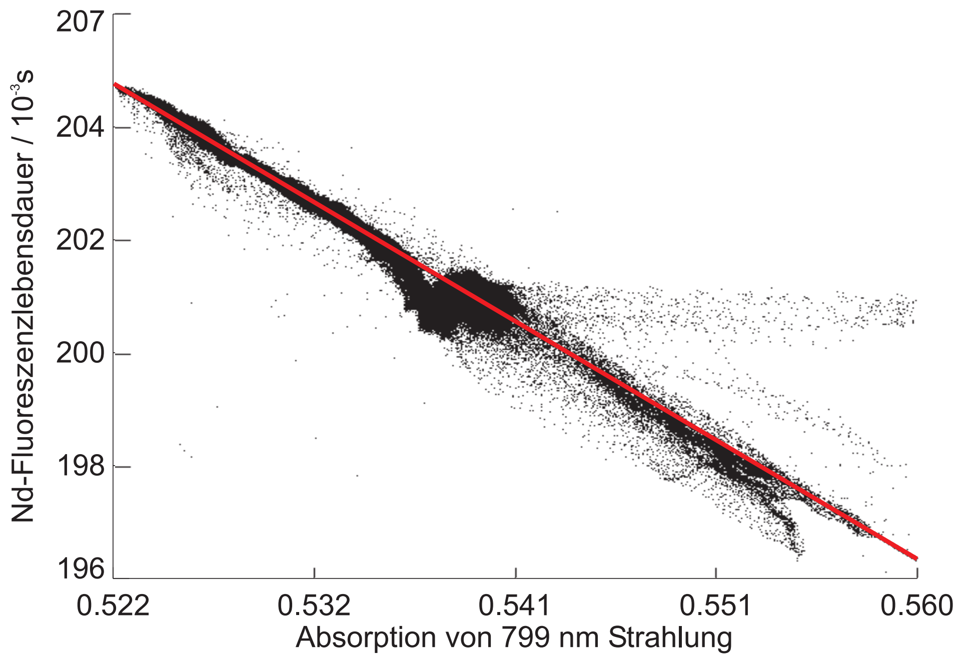

Abbildung 4.15: Abhängigkeit der Fluoreszenzlebensdauer der Nd^{3+} Ionen von der Absorption für Strahlung der Wellenlänge λ_i=799 nm, gemessen an Probe AOA07002.

4.2 Optische Homogenität

Zur Bestimmung der optischen Homogenität wurde das abbildende Toeplersche Schlierenverfahren benutzt. Das Verfahren beruht auf der Tatsache, daß bei der Beleuchtung einer optisch inhomogenen Probe Änderungen des Brechungsindex den Lichtstrahl ablenken. Durch die Messung der Lichtablenkung können die entsprechenden Brechungsindexgradienten mit hoher Empfindlichkeit gemessen werden [Scha42].

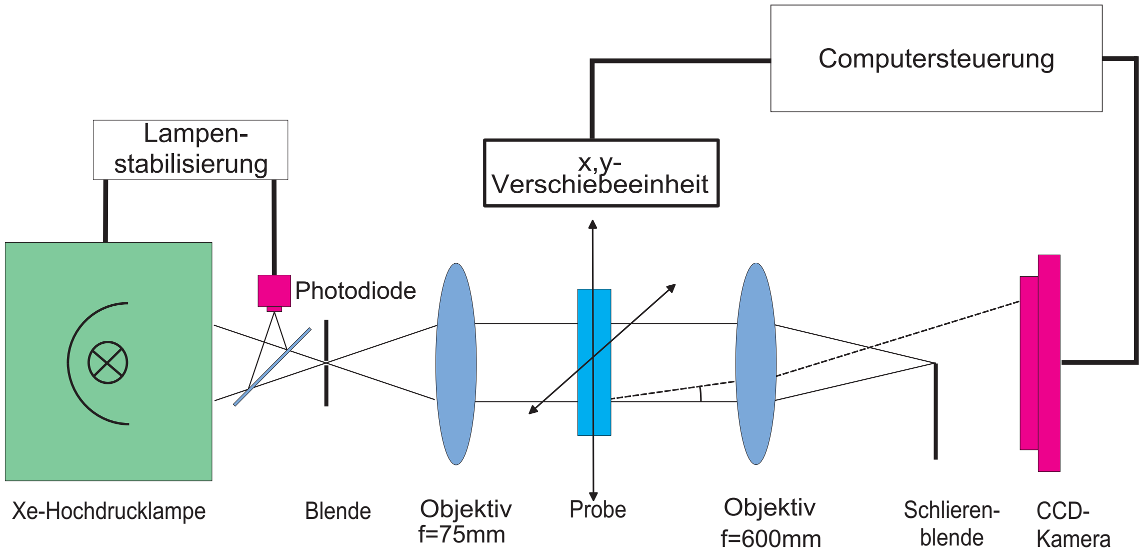

Abbildung 4.16: Schematischer Aufbau der Schlierenmethode.

Das realisierte Meßverfahren ist in Abbildung 4.16 schematisch dargestellt. Er besteht im wesentlichen aus einer intensitätsstabilisierten Xenon-Bogenlampe, zwei Objektiven und einer Schlierenblende sowie einer CCD-Kamera mit hohem Dynamikbereich.

Die Lichtquelle hat eine Leistung von 500 W und eine Ausdehnung von 1 mm^2. Da eine Weißlichtquelle verwendet wird, ist das Verfahren für alle Materialien geeignet, die im sichtbaren Teil des Spektrums eine Transmission größer als 1% aufweisen. Diese Forderung war bei allen untersuchten Materialien leicht zu erfüllen.

Die Brennweite der Objektive beträgt 75 mm und 600 mm bei einem Öffnungsverhältnis von 1:4 bzw. 1:9. Die Detektion hinter der Schlierenblende erfolgt mit einer CCD-Kamera mit einem Dynamikbereich von 15 Bit ($\approx$ 1:32000). Der CCD-Chip hat eine Abmessung von 512 x 512 Pixel, was einer Kantenlänge von 9,73 mm entspricht. Die Abmessungen eines Kamerapixels betragen 19 x 19 μm^2.

Zur Bestimmung der Brechungsindexgradienten innerhalb einer Probe muß zunächst eine Kalibriermessung durchgeführt werden. Dazu wird die Schlierenblende im Lichtquellenbild ohne eingebrachte Kristallprobe bewegt. Man erhält eine gleichmäßige Bildhelligkeit, deren Wert sich proportional zur Verschiebung der Schlierenblende ändert. Nach Einbringen der Kristallprobe verursachen Kristallinhomogenitäten eine Lichtablenkung bzw. eine entsprechende Helligkeitsänderung des zugehörigen Bildpunktes. Wie in der Dissertation V. Wesemann [Wes01] gezeigt wird, ist die Bildhelligkeit H direkt proportional zur Strahlablenkung A am Ort der Schlierenblende. Für kleine Winkel ist die Strahlablenkung wiederum direkt proportional den Brechungsindexgradienten dr in der Probe. So gilt zusammengefaßt folgendes Meßprinzip:

$$H = k_1 A = k_2 dr\,, \tag{4.18}$$

wobei die Konstante k_1 aus der Kalibriermessung bestimmt wird und k_2 aus den Abmessungen des Versuchsaufbaus (wie Brennweite des Objektivs und anderer geometrischer Größen) folgt.

Mit jeder Messung wird jedoch nur die Komponente des Brechungsindexgradienten senkrecht zur Schlierenblende, die in dem Versuchsaufbau eine gerade Kante ist, erfaßt. Zur vollständigen Beschreibung des Gradienten sind also zwei Teilmessungen mit senkrecht zueinander stehenden Schneiden erforderlich. Die Komponenten in x- bzw. y-Richtung werden mit d_x und d_y bezeichnet. Um eine bessere, beurteilungsfähige Darstellung der Größe und der Verteilung des Brechungsindexgradienten zu erhalten, ist es sinnvoll eine Tranformation der kartesischen Koordinaten in Zylinderkoordinaten (dr, ϕ) durchzuführen [Bro89]:

$$dr = \sqrt{d_x^2 + d_y^2} \tag{4.19}$$

$$\phi = \frac{180}{\pi} \arctan\left(\frac{d_y}{d_x}\right) \tag{4.20}$$

Diese Darstellungsform ist direkt für den Vergleich mit den gemessenen Lasereigenschaften des Kristalls geeignet.

Da die Messung einer Probe, deren Oberflächen nicht parallel zueinander sind, sondern einen Keilwinkel ungleich Null bilden, sich lediglich durch einen konstanten Offset dr_c von der hypothetischen Messung derselben Probe mit parallelen Oberflächen unterscheidet, wird die neue Größe dr_{off} der offsetkorrigierte Betrag des Brechungsindexgradienten eingeführt. Man erhält dr_{off} aus dr durch Subtraktion dieses konstanten Anteils dr_c.

$$dr_{off} = dr - dr_c \tag{4.21}$$

Die Abbildungen 4.17 und 4.18 zeigen das Ergebnis der Messung an Probe AOA05001 mit Koordinatentransformation. Die Abbildung 4.17 zeigt den Betrag des Brechungsindexgradienten dr. In der Abbildung 4.18 ist die gemessene Richtungswinkelverteilung ϕ des Brechungsindexgradienten dargestellt. Dabei entspricht $0°$ der positiven x-Achse. Die Winkelskala läuft im Gegenuhrzeigersinn um. Man erkennt in Abbildung 4.18 sofort, daß die Richtung des Brechungsindexgradienten an jedem Punkt der Probe in Richtung Probenmittelpunkt, also auf den Kern zeigt. Man erkennt daran sehr gut die radialsymmetrischen Zuchtbedingungen.

In der Darstellung des Betrages des Brechungsindexgradienten sind neben dem Kernbereich, der leicht auf Grund der sehr großen Brechungsindexgradienten zu erkennen ist, auch sehr gut die konzentrischen Wachstumsringe erkennbar. Der Maximalwert des Betrages des Brechungsindexgradienten beträgt bei dieser Nd:YAG Probe $4 * 10^{-4}\ \mathrm{mm}^{-1}$, was ein für dieses Material typischer Wert ist.

Auf Grund der begrenzten Pixelanzahl der CCD-Kamera und einer gewünschten räumlichen Auflösung von etwa $30\,\mu m$ ist es notwendig, die Messung von Proben mit größerem

Durchmesser in eine Vielzahl von Einzelmessungen zu unterteilen. Hierbei wird die Probe im Strahlengang mit computergesteuerten Schrittmotoren bewegt (s. Abschnitt 5.1.5), während die Computersteuerung die Aufnahme der Bilder mit der CCD-Kamera kontrolliert.

Eine detaillierte Beschreibung dieses Meßverfahrens und eine genauere mathematische Beschreibung der Auswertung findet sich in der Dissertation V. Wesemann [Wes01].

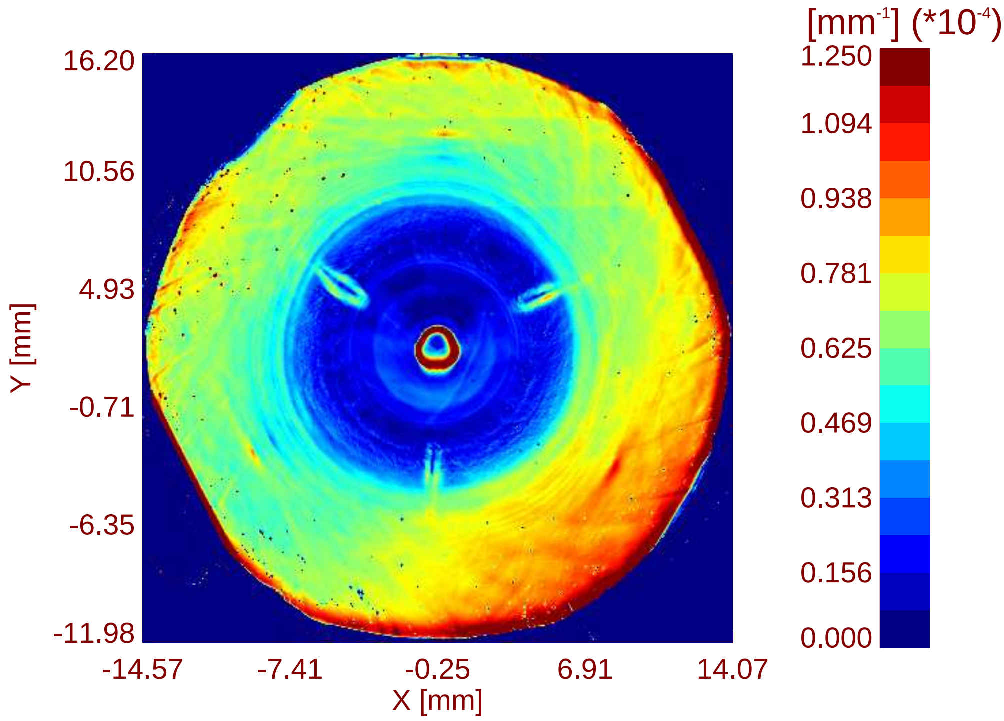

Abbildung 4.17: Betrag der Brechungsindexgradienten dr gemessen an Probe AOA05001.

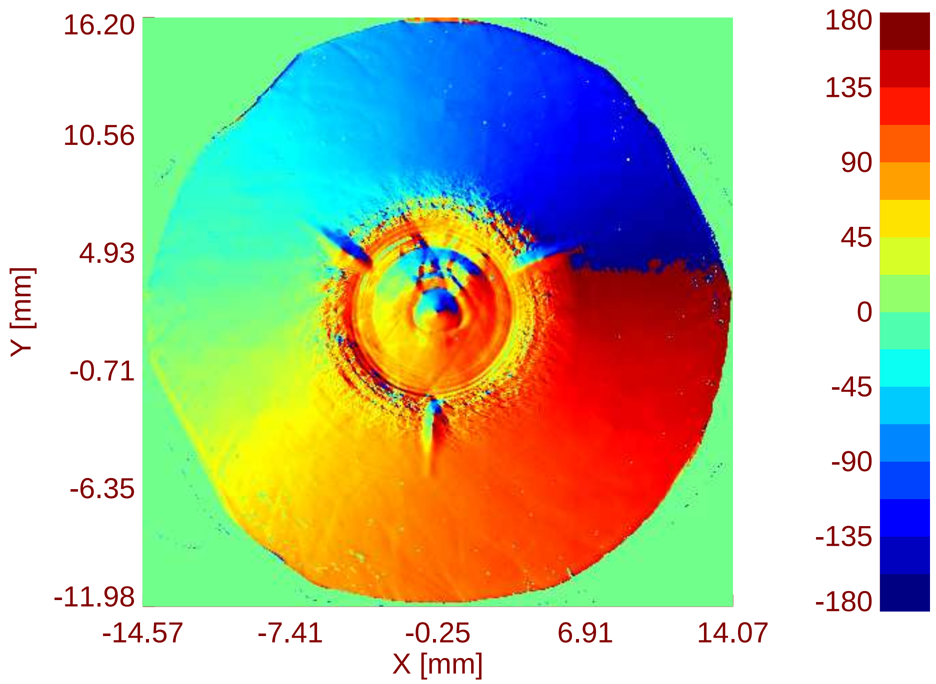

Abbildung 4.18: Richtung des Brechungsindexgradienten ϕ (°) (0° Richtung entspricht der positiven x-Achse), in Probe AOA05001 der Abbildung 4.17

4.3 Spannungsinduzierte Doppelbrechung

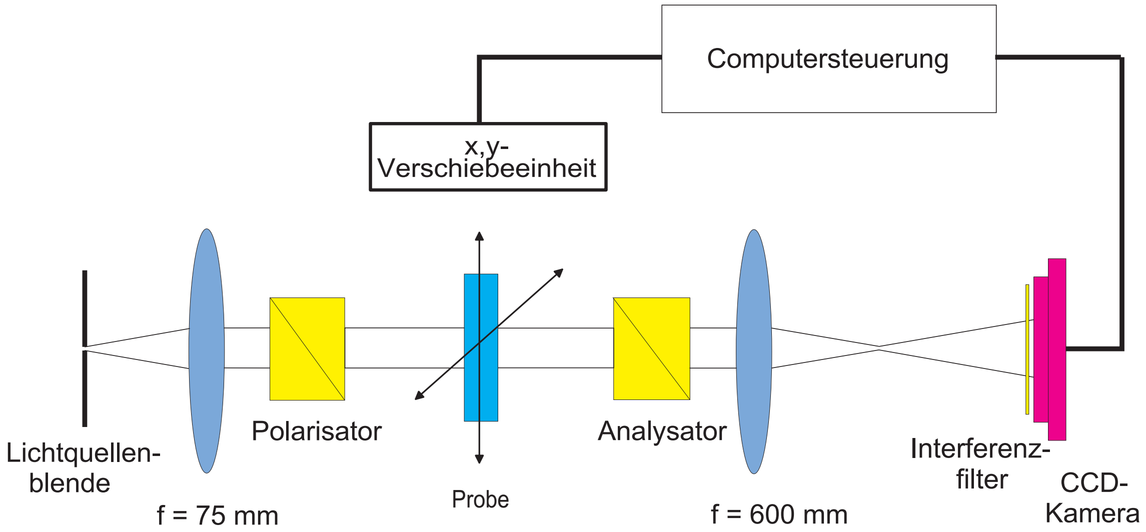

Abbildung 4.19: Schematischer Aufbau zur Bestimmung der Doppelbrechung.

Die Untersuchung der spannungsinduzierten Doppelbrechung erfolgt nach dem Prinzip des planen Polariskops [The79] wie in Abbildung 4.19 schematisch dargestellt.

Dazu erfolgt eine 2-dimensionale Messung der Intensitätsverteilung von monochromatischem Licht nach Durchgang durch die Probe, die sich zwischen gekreuzten Polarisatoren befindet. Dies bezeichnet man als Extinktionsmessung. Die Intensitätsverteilung wird von dem computergesteuerten CCD-Kamerasystem detektiert. Da im Experiment mittels eines Interferenzfilters die Weißlichtquelle schmalbandig gefiltert wird, um die für die Messung geforderte monochromatische Lichtquelle zur Verfügung zu haben, kann durch einen einfachen Austausch des Interferenzfilters das Meßverfahren an den Transparenzbereich des zu untersuchenden Materials angepaßt werden. Somit ist dieses Verfahren prinzipiell für alle Materialien mit einem Transparenzbereich zwischen 400 und 1000 nm geeignet.

Es werden mit dem hier beschriebenen Verfahren alle Elemente der Jones-Matrix bestimmt. Dazu werden Extinktionsmessungen für zwei verschiedene Orientierungen der Probe relativ zu den Polarisatoren (die Winkel zwischen einer Probenachse und einer Polarisatorachse seien α_1 und α_2), sowie für zwei benachbarte Wellenlängen durchgeführt. Bei optisch isotropen Materialien beträgt der Winkel $\Delta\alpha = \alpha_1 - \alpha_2$ immer 45°, da man hierfür die kleinsten Fehler in der Bestimmung der Doppelbrechung erhält.

Zur Messung der Doppelbrechung in anisotropen Materialien muß man das Verfahren geringfügig modifizieren, da die natürliche Doppelbrechung viel größer ist als die durch

Spannungen induzierte. Man würde bei Anwendung der gleichen Meßvorschrift lediglich die natürliche Doppelbrechung messen. Zunächst nutzt man die Tatsache, daß die Phasenverschiebung zwischen ordentlichem und außerordentlichem Strahl gleich Null ist, wenn die Polarisationsrichtung der einfallenden Strahlung parallel oder senkrecht zu einer kristallographischen Hauptachse orientiert ist. Für diese Orientierung zwischen Probe und Polarisatoren kann man die erste Teilmessung ohne Probleme durchführen. Für die notwendige Messung bei der zweiten Orientierung wählt man $\Delta\alpha < 45°$. Dadurch vermeidet man eine Übersteuerung des Detektors durch aus der natürlichen Doppelbrechung folgende hohe Intensitäten. Nachteilig ist, daß dadurch die Fehler in der Bestimmung der gesuchten Parameter ansteigen. Eine detailliertere Diskussion dieser Problematik sowie die praktische Anwendung des modifizierten Verfahrens findet sich in der Dissertation V. Wesemann [Wes01].

Im folgenden soll lediglich auf Messungen isotroper Materialien näher eingegangen werden. Aus den oben beschriebenen Einzelmessungen erhält man die Größen θ und ϕ, wobei θ der Winkel des Systems zweier aufeinander senkrecht stehender Hauptspannungsrichtungen zum System der beiden aufeinander senkrecht stehenden Polarisatorachsen ist. Die Größe θ, die nur Werte zwischen $0°$ und $45°$ annehmen kann, wird im folgenden kurz Hauptachsenwinkel genannt. ϕ ist die Phasenverschiebung, die durch die Differenz der Brechungsindizes entlang der Hauptspannungsrichtungen verursacht wird. Eine mathematische Beschreibung der Ableitung der Größen θ und ϕ findet sich in der Literatur [The79, Wes01].

Eine eindeutige Bestimmung von ϕ ist nur möglich im Bereich zwischen 0 und $(k+1)\pi$, wobei für k folgender Zusammenhang zu den Wellenlängen der bei den Einzelmessungen benutzten Strahlung gilt:

$$k \leq \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{4.22}$$

Bei allen in dieser Arbeit gezeigten Messungen ist $\lambda_1 = 633\,\mathrm{nm}$ und $\lambda_2 = 670\,\mathrm{nm}$, woraus sich $k \leq 17$ ergibt. Dies stellt allerdings keine Einschränkung bei der Messung dar, denn bei allen untersuchten Proben war $k = 0$.

Aus der Phasendifferenz ϕ läßt sich dann die Differenz der Brechungsindizes Δn entlang der Hauptspannungsrichtungen berechnen. Für diese folgt:

$$\Delta n = \lambda_1 \frac{\phi + 2k\pi}{2\pi d}, \tag{4.23}$$

wobei d die Probendicke ist.

Aus dem Hauptachsenwinkel und der Phasenverschiebung läßt sich bei Vernachlässigung der Dispersion der doppelbrechungsinduzierte logarithmische Verlust bei der Laserwellenlänge für einen Laser berechnen, dessen Polarisationsvorzugsrichtung mit einer der Polarisatorachsen übereinstimmt. Der logarithmische doppelbrechungsinduzierte Verlust ergibt sich dabei aus:

$$\gamma(\lambda) = -\ln\left(1 - \left(\frac{1}{2}\left(1 - \cos\left(\frac{\lambda}{\lambda_1}\phi\right)\right)\sin^2(2\theta)\right)\right), \tag{4.24}$$

wobei λ die Emissionswellenlänge des Lasers ist.

Die Abbildungen 4.21 und 4.20 zeigen das Endergebnis des Verfahrens exemplarisch für eine Nd:YAG Boulescheibe. Abbildung 4.21 zeigt eine im Kernbereich des Kristalls rotationssymmetrische Verteilung der Achsen der Hauptspannungsrichtungen, ausgedrückt durch die 90° Symmetrie der Richtung der Hauptspannungsachsen in Bezug auf das kartesische Koordinatensystem. Die zugehörige Differenz der Brechungsindizes ist in Abbildung 4.20 dargestellt. Die dreizählige Symmetrie in dieser Abbildung hat ihren Ursprung in der <111> Zuchtrichtung des Kristalls. Sehr gut erkennt man den konzentrischen Bereich der Wachstumsringe, wo ebenfalls höhere Werte in der Differenz der Brechungsindizes auftreten.

Abbildung 4.22 zeigt die berechneten Verluste für Licht der Wellenlänge 1064 nm, falls zusätzlich zur Probe ein polarisierendes Element in den Laserresonator eingefügt wird. Man erkennt hohe Verluste direkt am Kern und im Bereich der Wachstumsringe. Die 90° Symmetrie ist auf die Symmetrie des angenommenen linear polarisierenden Elements zurückzuführen.

In Kapitel 6.2 erfolgt der Vergleich dieser Daten mit den Laserparametern eines Laserresonators, der dem hier beschriebenen Modell entspricht.

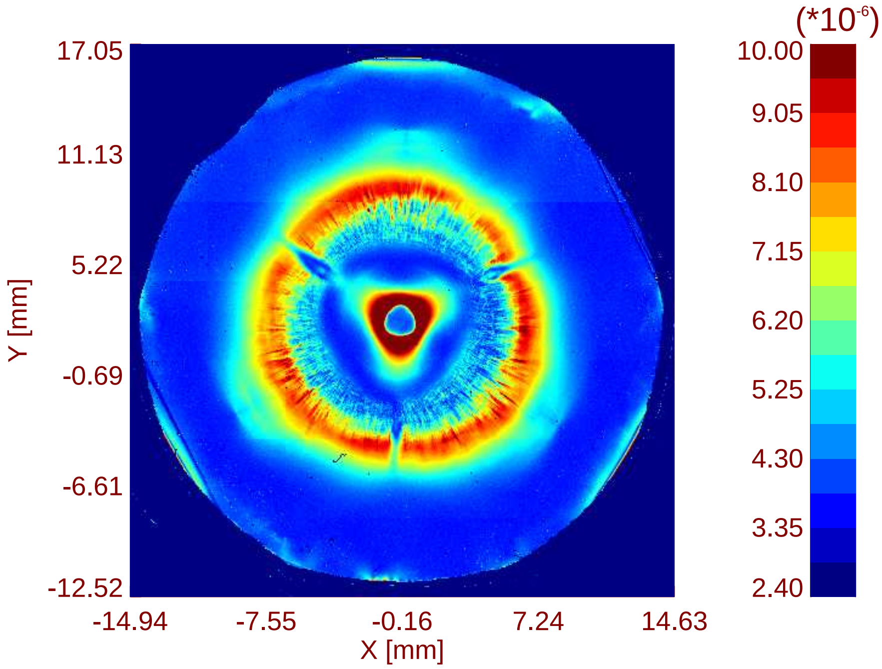

Abbildung 4.20: Differenz der Brechungsindizes Δn der Probe AOA05001

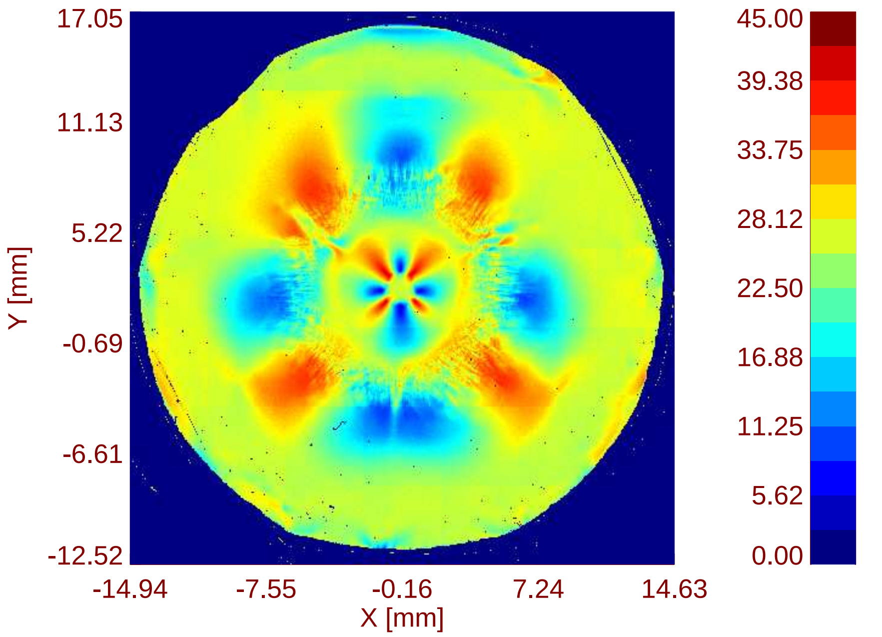

Abbildung 4.21: Winkel der Hauptspannungsrichtungen θ des gleichen Kristalls (°)

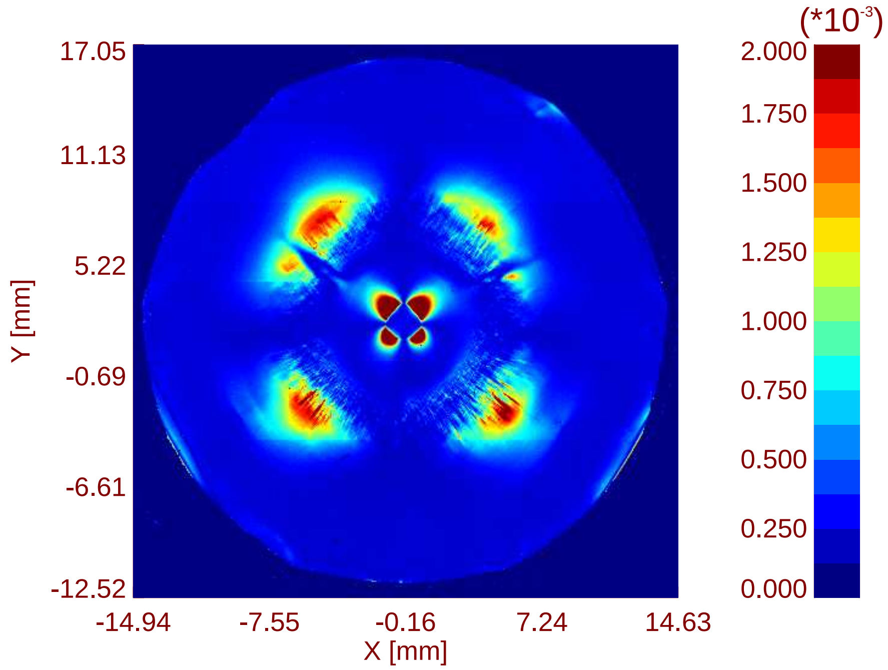

Abbildung 4.22: Optische Doppelbrechung: Berechnete logarithmische Verluste $\gamma(1064)$ bei der Wellenlänge 1064 nm des Nd:YAG Kristalls AOA05001 für einen Resonator, dessen Polarisationsvorzugsrichtung horizontal oder vertikal orientiert ist.

4.4 Laserparameter

4.4.1 Räumlich aufgelöste Bestimmung der Laserparameter

Meßverfahren

Die zu bestimmenden Laserparameter Schwelle (S) und differentieller Wirkungsgrad (η) werden indirekt aus der Messung der durch die Probe absorbierten Anregungsleistung sowie der Ausgangsleistung eines mit der Probe realisierten Lasers bestimmt.

Die Probe wird in einen linearen V-Resonator oder in einen linearen asymmetrischen fast konzentrischen Resonator [Kne91] eingesetzt. Auf die unterschiedlichen Zielsetzungen, die mit diesen zwei Resonatortypen verfolgt werden, wird später eingegangen. Das Meßprinzip ist in beiden Fällen identisch.

Als Anregungslaser wird ein Diodenlaser benutzt. Die Stromstärke I, die durch den Diodenlaser fließt, ist durch eine am Modulationseingang der Stromregelung angelegte Spannung steuerbar. Ein Analogausgang der Computersteuerung ist daher mit diesem Eingang verbunden. Die Ausgangsleistung des Anregungslasers wird von der Computersteuerung in Stufen zwischen zwei fest voreingestellten Grenzen geändert, weshalb zunächst die Abhängigkeit der Ausgangsleistung $P_{out}(I)$ von der Diodenlaserstromstärke I gemessen wird. Der niedrigste Wert der Stromstärke liegt im Bereich der Schwelle des zu untersuchenden Lasers. Der höchste Wert wird in der Regel durch die maximale Ausgangsleistung des Diodenlasers vorgegeben. Bei bestimmten Proben (z. B. einige Wolframate mit kleiner Bruchgrenze) kann es sinnvoll sein, die obere Grenze etwas niedriger festzulegen.

Die Meßgrößen (Anregungsleistung und Laserausgangsleistung) werden mit Photodioden in Gegenspannungsschaltung (U=12 V, R=10 kΩ) erfaßt. Damit liefert diese Schaltung eine der einfallenden Leistung proportionale Spannung, die mittels A/D Wandler mit 12 Bit Auflösung von der Computersteuerung eingelesen wird. Zur Anpassung an den gewünschten Leistungsmeßbereich können Neutralfilter verschiedener optischer Dichte vor den Photodioden plaziert werden.

Die absorbierte Anregungsleistung wird für eine beliebige aber feste Probenkoordinate (x_R, y_R) vor Start der ortsaufgelösten Messung der Laserausgangsleistung bestimmt. Hierzu sind folgende Messungen notwendig:

1. Bestimmung der gesamten Anregungsleistung $P_{foc}(I)$ am Ort der Probe. Die Probe wird hierbei ausgebaut.

2. Messung der von der Probe transmittierten Anregungsleistung einschließlich Fluoreszenzstrahlung $P_{tges}(I)$. Die Probe befindet sich dabei zwischen dem Anregungslaser und dem Detektor.

3. Bestimmung der Fluoreszenzleistung $P_{fl}(I)$, die in Punkt 2 zusammen mit der Anregungsleistung den Detektor erreicht. Hierzu wird ein optisches Kantenfilter (Schott

RG1000/3), das die Anregungsstrahlung absorbiert, zwischen Probe und Detektor plaziert.

Ferner müssen noch der Transmissionkoeffizient einer Probenoberfläche T_{of} für die Anregungsstrahlung und der Transmissionskoeffizient des Kantenfilters für die Fluoreszenzstrahlung T_{kf} bekannt sein. Aus diesen Größen bestimmt sich die absorbierte Anregungsleistung P_{abs} zu:

$$P_{abs}(I) = P_{foc}(I)T_{of} - \frac{P_{tges}(I)}{T_{of}} + \frac{P_{fl}(I)}{T_{of}T_{kf}} \qquad (4.25)$$

Die Probenkoordinate (x_R, y_R), für die die Bestimmung der absorbierten Anregungsleistung durchgeführt wurde, wird zusammen mit den Daten der Messung abgespeichert. Die Koordinaten werden bei der Auswertung benötigt, um eine Korrektur der Messung mit der zweidimensionalen Verteilung der Absorption vornehmen zu können (s. Abschnitt 4.4.1). Daher ist es hier nicht erforderlich, die absorbierte Anregungsleistung ortsaufgelöst über den gesamten Probenquerschnitt zu bestimmen.

Aus $P_{abs}(I)$ und $P_{out}(I)$ erhält man durch eine lineare Regression die gesuchten Parameter differentieller Wirkungsgrad η und Schwellenanregungsleistung S. Für eine detaillierte Beschreibung des Ablaufs der Messung sei auf die Erläuterung der Software in Abschnitt 5.1.4 verwiesen.

Anregungslaser

Zur Anregung von Nd:YAG und Nd:YVO_4 Proben wurde ein Diodenlaser mit Lichtwellenleiteranschluß (Hersteller: Opto Power, Typ OPC-A002-808-FC/150, S/N ED-517) mit einer maximalen Ausgangsleistung von 1,2 W bei einer Wellenlänge von 808 nm verwendet. Der Durchmesser des Lichtleiters beträgt 150 μm. Zur Anregung von Nd:YLF Material steht ein Diodenlaser gleichen Typs (S/N IH-082) mit einer Emissionswellenlänge von 795 nm zur Verfügung. Ein Wechsel zwischen beiden Anregungswellenlängen ist durch die Ausführung der Diodenlaser mit Lichtwellenleiter leicht möglich.

Das Emissionsspektrum des erstgenannten Diodenlasers (ED-517) hat für den maximalen Betriebsstrom von 1,8 A und bei einer Gehäusetemperatur von 20° C den größten spektralen Überlapp mit der Absorption von Nd:YAG bei 808 nm, weshalb dieser Wert als Betriebstemperatur gewählt wurde. Auf eine Anpassung der Temperatur bei Änderung der Diodenlaserstromstärke, um den Absorptionskoeffizienten konstant zu halten, wird bewußt verzichtet. Dies würde für die automatisierte Messung eine ca. 100 mal längere Meßzeit bedeuten, da die Temperaturänderung auf Grund der großen Wärmekapazität des Diodenlasermoduls nur sehr langsam durchgeführt werden kann. Die schnellere Methode ist – wie oben beschrieben – die Messung der tatsächlich absorbierten Anregungsleistung für jeden Wert der Diodenlaserstromstärke.

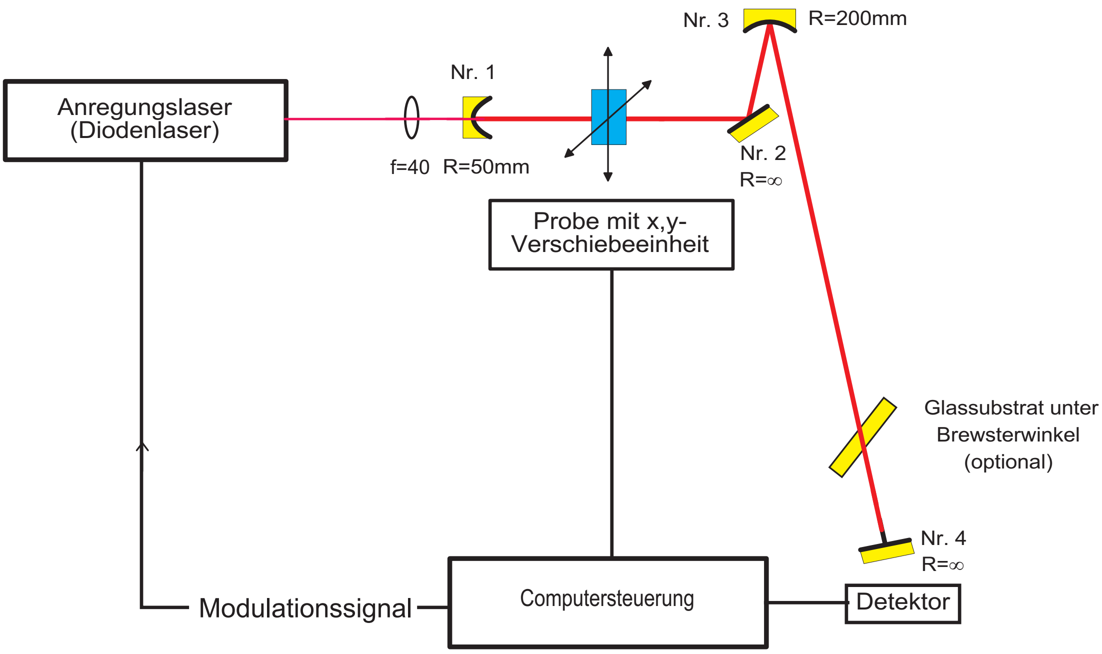

Abbildung 4.23: Schematischer Aufbau des V-Laserresonators

V-Resonator

Die Abbildung 4.23 zeigt schematisch den Aufbau des v-förmigen Stehwellen-Resonators. Er zeichnet sich gegenüber dem fast konzentrischen Resonator (s. Abschnitt 4.4.1) dadurch aus, daß die Lage und der Radius der Strahltaille über einen weiten Bereich einstellbar ist, ohne daß der Resonator am Rande des Gebiets der optischen Stabilität arbeitet. Der Krümmungsradius des Einkoppelspiegels beträgt $R = 50\,\text{mm}$, der des Faltungsspiegels beträgt $R = 200\,\text{mm}$, der Auskoppelspiegel ist plan.

Der Einkoppelspiegel (Nr. 1) besitzt eine hohe Transmission für den Wellenlängenbereich 750 – 960 nm. Im Bereich zwischen 1025 – 1080 nm ist er genau wie die Faltungsspiegel (Nr. 2 und 3) hochreflektierend. Die Transmissionen der Auskoppelspiegel (Nr. 4) betragen für eine Wellenlänge zwischen 1025 und 1080 nm: 0,70%, 1,38%, 2,64%, 5,14% und 10,20%. Durch diese universelle Beschichtung lassen sich so in einem Resonator alle Nd-, Yb- und Er-dotierten Kristalle untersuchen, wenn die passende Anregungsquelle vorhanden ist.

Die Spiegelradien wurden dahingehend ausgewählt, daß sich sowohl eine kleine Strahltaille als auch eine große Gesamtresonatorlänge ergibt, was sich bei einem Zwei-Spiegel-Resonator gegenseitig ausschließt. Durch die große Resonatorlänge wirkt sich eine Änderung des Brechungsindexgradienten stärker auf die Laserparameter aus als bei Verwendung eines kurzen Resonators. Daher wurde dieser Resonator auch verstärkt dazu benutzt, die Auswirkungen solcher Störungen in den Proben auf die Laserparameter zu untersuchen.

Durch die insgesamt vier Resonatorspiegel sind die Verluste entsprechend höher als bei einem Resonator mit zwei Spiegeln, was sich auch darin äußert, daß der mit diesem Resonator bestimmte differentielle Wirkungsgrad immer etwas niedriger ist als mit den anderen Resonatoren. Der Resonator wurde nicht darauf optimiert, mit einem einzelnen Laser-Kristall die maximal mögliche Ausgangsleistung zu erhalten. Das Ziel war es, einen universellen Resonator zur Verfügung zu haben, der es erlaubt, sowohl Kristalle unterschiedlicher Abmessungen als auch unterschiedliche Materialien reproduzierbar zu charakterisieren.

In den kollimierten Arm des Resonators kann optional ein unbeschichtetes Glassubstrat unter Brewsterwinkel eingefügt werden. Dieses erzeugt unterschiedliche Verluste für die Polarisationsrichtungen $\vec{E} \parallel \vec{x}$ und $\vec{E} \parallel \vec{y}$, was zur Folge hat, daß der Laser linear polarisierte Strahlung mit einem Polarisationsgrad von mehr als 100 : 1 emittiert. Gleichzeitig macht sich eine Drehung der Polarisationsrichtung beim Durchgang des Laserstrahls durch die Probe direkt in einer Erhöhung der resonatorinternen Verluste bemerkbar. Auf diese Weise lassen sich die Ergebnisse der Laseruntersuchungen direkt mit den berechneten Verlusten durch Spannungsdoppelbrechung vergleichen.

Fast konzentrischer Resonator

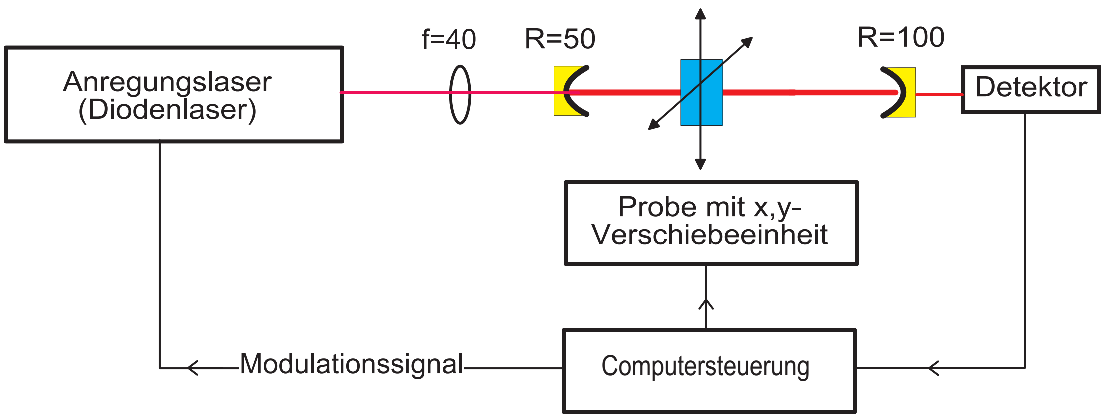

Abbildung 4.24: Schematischer Aufbau des fast konzentrischen Laserresonators

Dieser Resonator wurde mit der Zielsetzung entwickelt, einen höheren differentiellen Wirkungsgrad zu erreichen. Gleichzeitig muß aber noch eine kleine Strahltaille einstellbar sein, um räumlich aufgelöste Messungen zu erlauben. Auf Grund dieser Forderungen kam nur noch ein Resonator mit zwei Spiegeln in Frage, um die Verluste zu minimieren. Abbildung 4.24 zeigt den schematischen Aufbau dieses Resonators. Die Krümmungsradien der Spiegel wurden so klein wie möglich gewählt, um die kleine Taille zu erreichen, ohne den Resonator am Rande seines Stabilitätsbereichs zu betreiben. Damit ergaben sich für den Einkoppelspiegel ein Radius von $R_1 = 50\,\mathrm{mm}$ und für den Auskoppelspiegel ein Radius von $R_2 = 100\,\mathrm{mm}$. Die ungleichen Radien sind eine Folge des ebenfalls unsymmetrisch gefertigten Probenhalters, der jedoch für eine ortsaufgelöste Messung notwendig ist. Wäre $R_2 = R_1 = 50\,\mathrm{mm}$, so liese sich die Probe nicht mehr verschieben, da der Halter bereits mit einem der Resonatorspiegel kollidieren würde. Der Einkoppelspiegel ist transmittierend für die Anregungsstrahlung und hochreflektierend für Strahlung der Wellenlänge 1064 nm. Zur Auskoppelung wurden Spiegel mit einer Transmission von 1,90%, 2,58%, 4,40% und 9,00% für Strahlung der Wellenlänge 1064 nm benutzt.

Die restlichen Komponenten wie Diodenlaser, Detektor, die Computersteuerung und die Verschiebeeinheit für die Probe ist identisch von dem Aufbau des V-Resonators übernommen.

Auf Grund der geringen Verluste der Resonatorkomponenten eignet sich dieser Resonator besser zur Bestimmung der Kristallverluste nach dem Findlay-Clay Verfahren (s. Abschnitt 4.5.2) als der V-Resonator.

Materialien wie z. B. Cr^{3+}:LiSAF, die bei gleicher Anregungsleistungsdichte einen höheren Wert für die Laserschwelle aufweisen, sind ebenso auf den Betrieb in einem Resonator mit kleinen Verlusten angewiesen, da ansonsten die Schwelle erst gar nicht erreicht wird. Für diese Materialien ist der V-Resonator nicht geeignet.

Bestimmung der Laserparameter

Abbildungen 4.25 und 4.26 zeigen die gemessenen Laserparameter Schwelle S und differentieller Wirkungsgrad η am Beispiel von Probe AOA05001 eingebaut im V-Resonator. Bereits im qualitativen Vergleich mit den Messungen der optischen Eigenschaften (z. B. der Homogenität, wie in Abbildung 4.17 gezeigt) erkennt man eine gute Übereinstimmung zwischen den Laserparamtern und den optischen Parametern. Man erkennt sehr gut den Kern in der Mitte der Probe und den Bereich der konzentrischen Wachstumsstörungen, „Wachstumsringe“ genannt.

Eine genauere, quantitative Untersuchung dieser und anderer Korrelationen erfolgt in Kapitel 6.

Wiederholgenauigkeit

Zur Untersuchung der Meßfehler in der Bestimmung der Laserparameter wurde eine Messung der Wiederholgenauigkeit vorgenommen. Dazu wurde die Messung der Laserparameter einer Probe zweimal im Abstand von 24 h hintereinander ausgeführt und die Differenz der Messungen gebildet. Die Differenz bezogen auf den Messwert, relative Abweichung genannt, ist in den Abbildungen 4.27 und 4.28 für die zwei Parameter Schwelle und differentieller Wirkungsgrad dargestellt. Der Mittelwert über alle 93563 relative Abweichungen in den Abbildungen der Fehler beträgt für den Parameter Schwelle 1,49% und für den differentiellen Wirkungsgrad 2,26%. Der maximale Fehler im Falle dieser Probe beträgt für die Schwelle 3,37% und für den differentiellen Wirkungsgrad 4,50%.

Die Fehler werden bei dieser Probe zum Teil durch die Interferenzmuster, die auf eine ungenügende Entspiegelung der Probe für die Anregungsstrahlung zurückzuführen sind, verursacht. Es ist leicht einzusehen, daß schon durch kleine Bewegungen in der Halterung der Probe das Interferenzmuster beim zweiten Durchgang gegenüber der ersten Messung verschoben ist und damit die Abweichungen produziert. Bei Verwendung von gut entspiegelten Proben sollte sich die Wiederholgenauigkeit nochmal erheblich verbessern.

Die scharfen, horizontal verlaufenden Kanten sind auf Modensprünge des Anregungslasers zurückzuführen. Hier wäre lediglich durch Verwendung von stabilisierten Laserquellen eine Verbesserung zu erwarten, was allerdings einen unverhältnismäßig hohen Aufwand bedeuten würde.

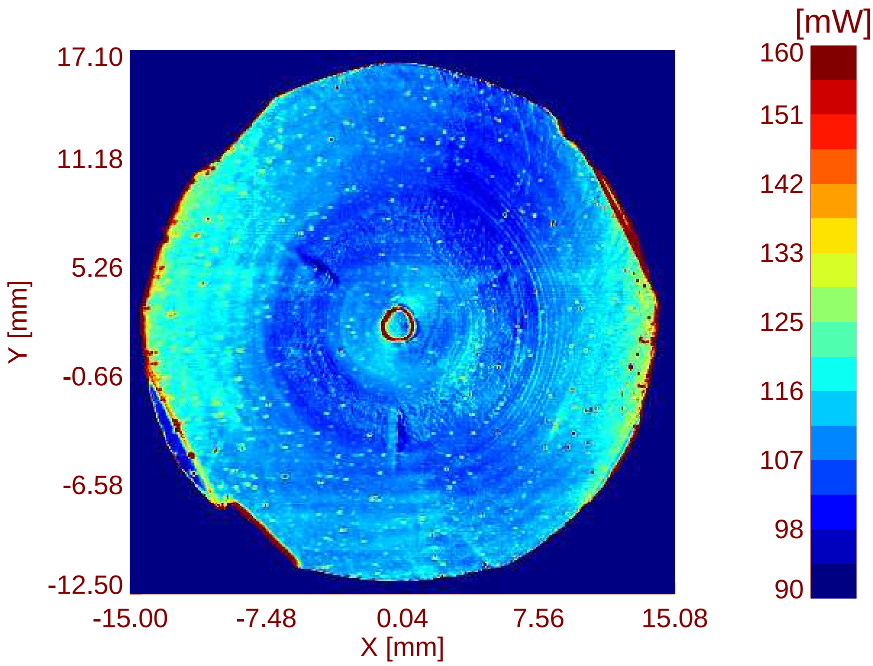

Abbildung 4.25: Schwellenanregungsleistung eines Lasers mit Probe AOA05001 bei einer Auskoppelung von 5%

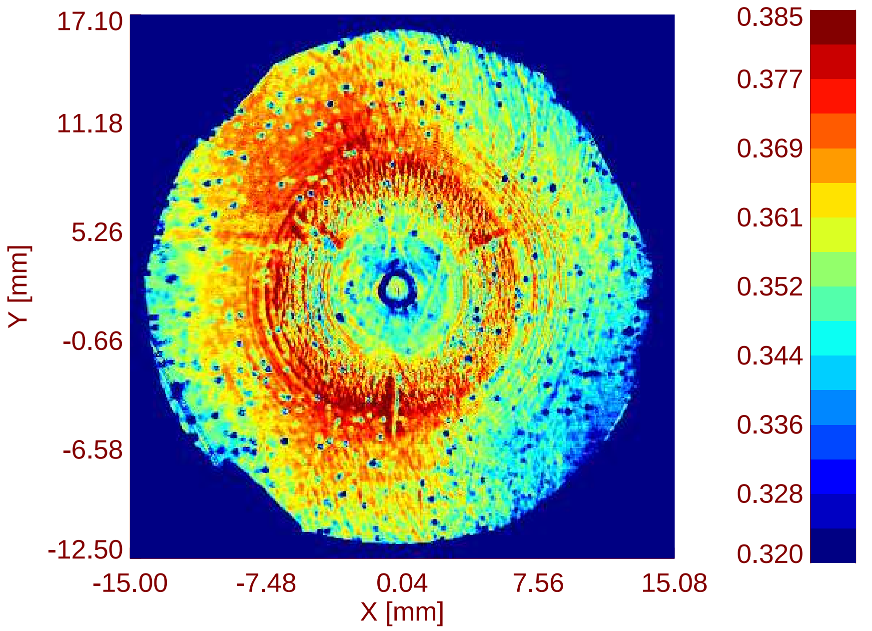

Abbildung 4.26: Differentieller Wirkungsgrad eines Lasers mit Probe AOA05001 bei einer Auskoppelung von 5%

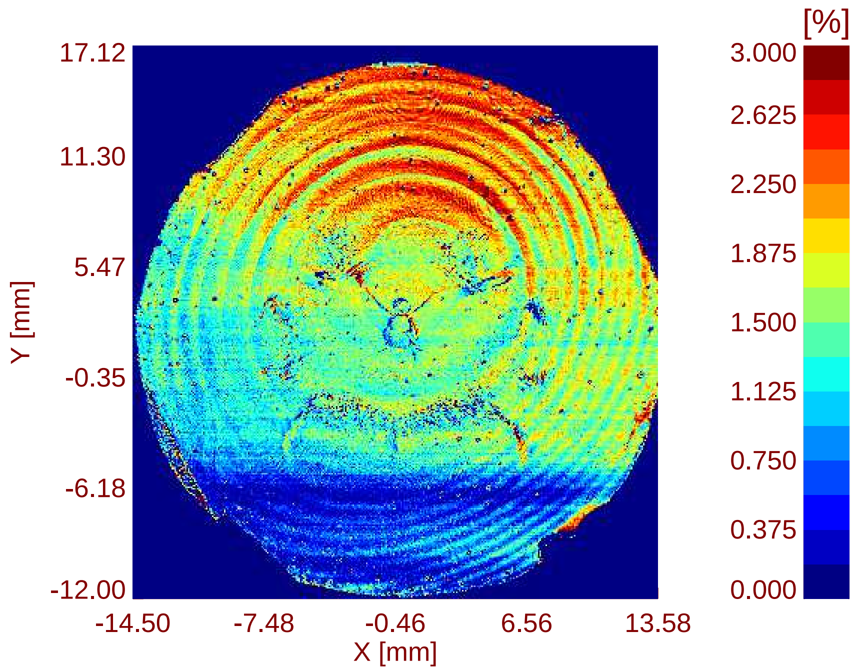

Abbildung 4.27: Wiederholgenauigkeit der Bestimmung der Schwelle eines Lasers mit Probe AOA05001 bei einer Auskoppelung von 2,6%

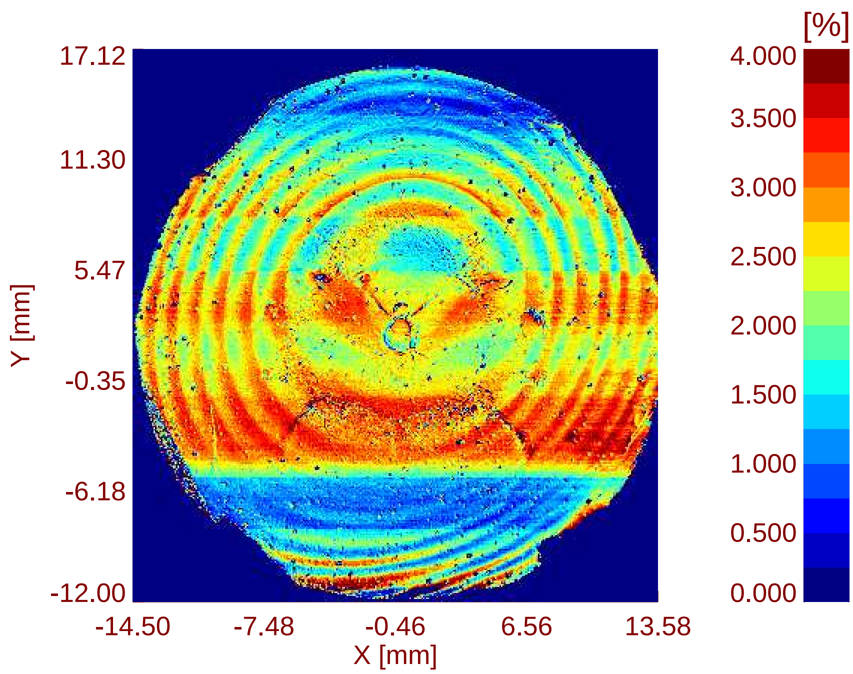

Abbildung 4.28: Wiederholgenauigkeit der Bestimmung des differentiellen Wirkungsgrades eines Lasers mit Probe AOA05001 bei einer Auskoppelung von 2,6%

Korrektur der Laserparameter mit Werten der Absorption

Die Daten für die Laserparameter S und η werden aus der Messung der Laserausgangsleistung für alle Punkte der Probe sowie der absorbierten Anregungsleistung an einem Punkt der Probe berechnet (s. Abschnitt 4.4.1). Da sich die absorbierte Anregungsleistung entsprechend der Verteilung der laseraktiven Ionen, die z. B. mit Hilfe der Absorption $A(x,y)$ (s. Abschnitt 4.1.1) bestimmt wurde, ändert, müssen die Parameter $S(x,y)$ und $\eta(x,y)$ entsprechend der Absorption korrigiert werden.

Diese Korrektur ist eine einfache Transformation, die auf eine Skalierung der absorbierten Anregungsleistung zurückgeht:

$$\eta'(x,y) = \eta(x,y)\frac{A_R}{A(x,y)} \tag{4.26}$$

$$S'(x,y) = S(x,y)\frac{A(x,y)}{A_R}, \quad \text{mit} \tag{4.27}$$

$$A_R = A(x_R, y_R) \tag{4.28}$$

Die Koordinaten (x_R, y_R) bezeichnen die Probenposition, an welcher die absorbierte Anregungsleistung bei der Messung der Laserparameter bestimmt wurde.

Am Beispiel des Kernbereichs einer Nd:YAG Probe kann man die Wirkung dieser Korrektur gut verdeutlichen: Abbildung 4.29 zeigt die noch nicht korrigierte Messung des differentiellen Wirkungsgrades einer Probe. Auf Grund größerer Absorption für die Anregungsstrahlung im Kern (vergl. Abbildung 7.3) wird zunächst der differentielle Wirkungsgrad im Kern zu hoch bestimmt. Nach Korrektur mit den Absorptionsdaten ist dieser scheinbare Widerspruch aufgelöst, wie Abbildung 4.30 zeigt. Der Wirkungsgrad ist jetzt wie erwartet außerhalb des Kerns größer.

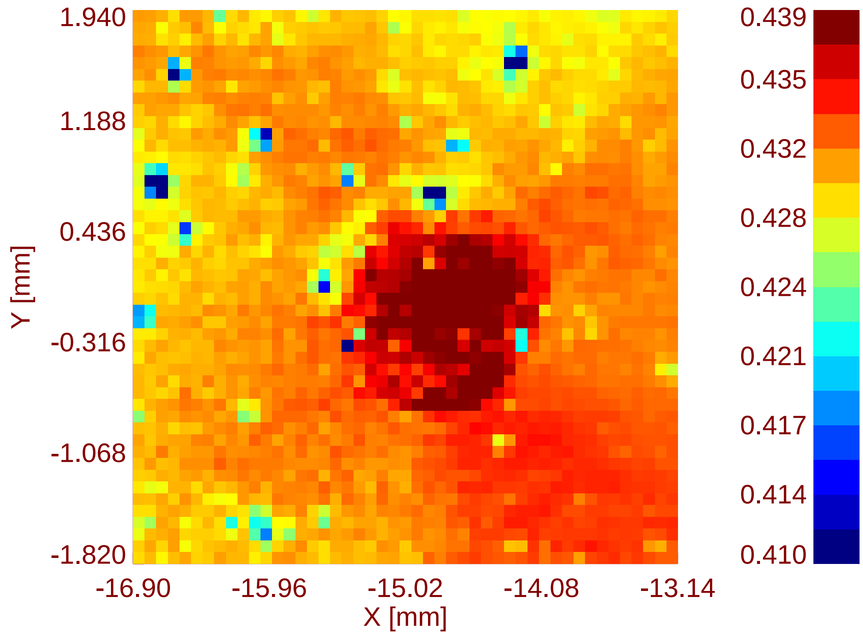

Abbildung 4.29: Differentieller Wirkungsgrad ohne Berücksichtigung der Absorptionsverteilung für die Anregungsstrahlung, gemessen an Probe AOA13001. Im Bildmittelpunkt ist der Kern des Kristalls zu erkennen.

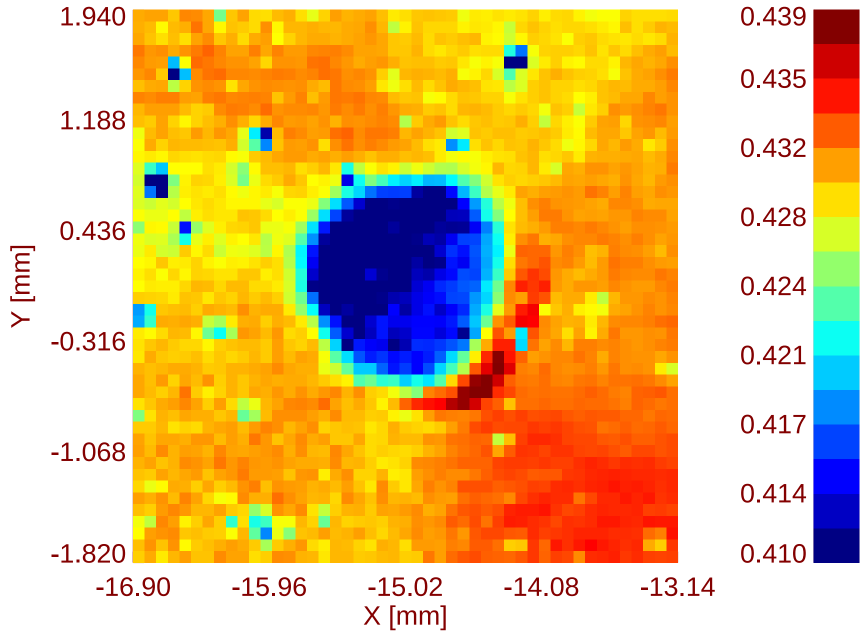

Abbildung 4.30: Differentieller Wirkungsgrad im gleichen Ausschnitt wie in Abbildung 4.29 mit Berücksichtigung der Absorptionsverteilung für die Anregungsstrahlung (Probe AOA13001).

4.4.2 Bestimmung der Laserparameter ohne räumliche Auflösung

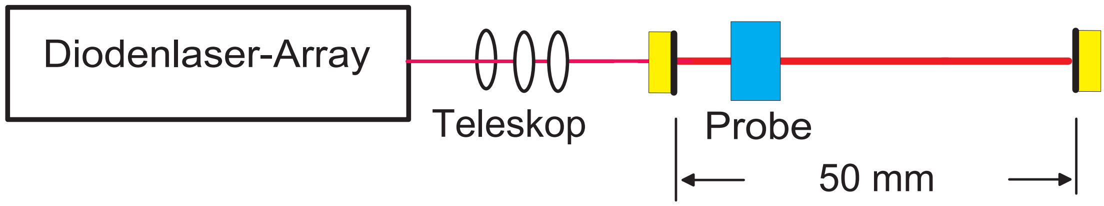

Abbildung 4.31: Schematischer Aufbau des Laserresonators ohne räumliche Auflösung aber hoher Anregungsleistung.

Meßprinzip

Mit diesen Messungen wird eine gänzlich andere Zielsetzung als mit den Resonatoren in Abschnitt 4.4.1 verfolgt. Der hier beschriebene Aufbau ist für kleine Laserstäbe oder Quader, wie sie auch in mit Diodenlasern angeregten Festkörperlasern eingesetzt werden, optimiert. Da der Quotient aus dem maximalen Durchmesser der Proben zu dem Taillenradius dieses Resonators lediglich ungefähr 10 beträgt, wurde auf eine zweidimensional räumlich auflösende Messung verzichtet. Dadurch war es wesentlich einfacher, die Probe aktiv zu kühlen, was eine wesentliche Voraussetzung für den Betrieb bei höheren Anregungsleistungen ist. Dies macht die Skalierbarkeit der Ergebnisse zu höheren Leistungen überprüfbar. Der Aufbau dieses Resonators ist in Abbildung 4.31 dargestellt. Der Anregungslaser ist ein Diodenlaserarray bestehend aus 19 Emittern mit einer maximalen Ausgangsleistung von 30 W. Der Resonator besteht aus zwei Planspiegeln im Abstand von 50 mm. Der Einkoppelspiegel ist transmittierend für die Anregungsstrahlung und hochreflektierend für Strahlung der Wellenlänge 1064 nm. Zur Auskoppelung wurden Spiegel mit einer Transmission von 3,05%, 5,41%, 8,98% und 12,66% für Strahlung der Wellenlänge 1064 nm benutzt.

Durch die thermische Linsenwirkung des longitudinal angeregten Laserkristalls bildet sich für Anregungsleistungen größer 2 W ein stabiler Resonator aus. Auf Grund dieses Resonatordesigns traten im Betrieb hohe transversale Moden auf, was sich in einem entsprechend hohen Wert für den Strahlparameter ($M^2 = 8$) ausdrückt. Dieses Design wurde bewußt gewählt, um die geometrischen Überlappverluste zwischen Anregungs- und Lasermode zu minimieren. Im Idealfall wird die Diodenlaserstrahlung vollständig für den Laserprozess genutzt. Damit sollten Unterschiede in der Ausgangsleistung des Lasers nur von der Kristallqualität und nicht von anderen Parametern, wie z. B. der Länge des Kristalls, abhängen. Mit diesem Resonatordesign wird ein Wert für den differentiellen Wirkungsgrad erreicht, der fast dem theoretischen Maximum entspricht.

4.5 Kristallverluste im Bereich der Emissionswellenlänge

4.5.1 Kalorimetrische Bestimmung der Absorptionsverluste

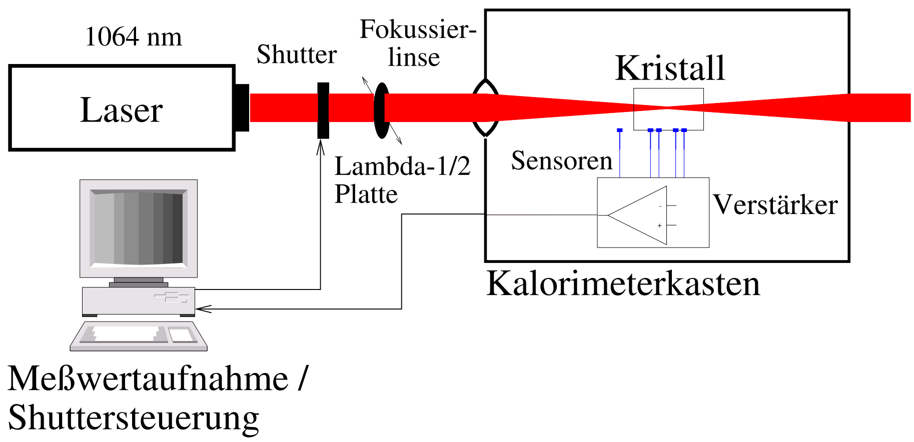

Abbildung 4.32: Schematischer Aufbau des Absorptionskalorimeters.

Zur Bestimmung sehr kleiner Absorptionsverluste im Bereich der Emissionswellenlänge des laseraktiven Materials dient ein Absorptionskalorimeter [Wil98] wie in Abbildung 4.32 schematisch dargestellt. Die Probe wird durch einen Laser mit hoher Ausgangsleistung (typisch 10 W) und der gewünschten Wellenlänge, für die die Absorptionsverluste bestimmt werden sollen, bestrahlt. Durch Absorption der Laserstrahlung erwärmt sich der Kristall, was von der Apparatur gemessen wird. Diese Temperaturänderung ist ein Maß für die im Kristall absorbierte Energie und damit ein direktes Maß für die Verluste, wenn die eingestrahlte Laserleistung bekannt ist. Dabei wird die Bestrahlung der Probe mit Hilfe eines Verschlusses sowie die Meßdatenerfassung der Temperatursensoren vollautomatisch von einem Computer übernommen.

Dieses Verfahren ist wesentlich genauer als der direkte Vergleich von eingestrahlter zu transmittierter Leistung, da der Unterschied zwischen beiden Signalen in der Regel sehr klein ist. Das Verfahren ist unabhängig von der Wellenlänge, für die die Absorption bestimmt wird, da der Detektor lediglich eine Erwärmung der Probe mißt.

Zur Untersuchung von Neodym dotierten Materialien stand ein Nd:YVO_4 Laser mit einer Ausgangsleistung von 10 W bei einer Wellenlänge von 1.06 μm zur Verfügung.

Das Verfahren detektiert ausschließlich strahlungslose Verlustmechanismen. Für alle Materialien mit 4-Niveau-System ist dies auch der einzige Verlustkanal, da hier keine Reabsorption der eingestrahlten Leistung stattfindet und damit keine Anregung von höheren Niveaus als Quelle strahlender Verlustmechanismen möglich ist. Daher darf man annehmen, daß der im

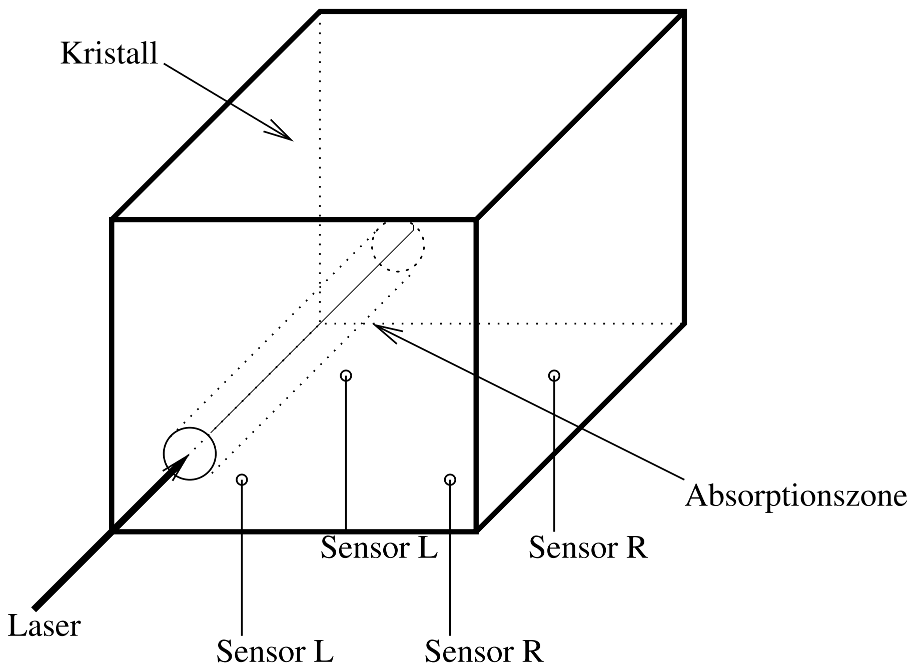

Abbildung 4.33: Darstellung des Laserstrahls, der die Wärmequellen in der Probe erzeugt, sowie Lage der Temperatursensoren.

Kristall absorbierte Anteil der eingestrahlten Laserleistung vollständig in Wärme umgewandelt wird. Allerdings kann das Kalorimeter keine Streuverluste bestimmen, da die gestreute Strahlung keine Erwärmung des Kristalls verursacht.

Die während der Einstrahldauer T_1 des Lasers im Kristall erzeugte Wärmemenge bewirkt in Verbindung mit der Wärmeleitung einen Temperaturanstieg am Kristallrand, der gemessen werden kann. Nach Abschalten des Lasers kühlt sich die Probe durch Strahlungsemission, Wärmeleitung und Konvektion wieder auf Umgebungstemperatur ab. Aus der Zeitkonstante des Abkühlvorganges läßt sich die Summe dieser Verlustfaktoren bestimmen. Zusammen mit der Messung des Aufheizvorgangs wird die im Kristall erzeugte Wärmeleistung Q_1 bestimmt. Als externe Größen gehen die spezifische Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit der Probe sowie die eingestrahlte Leistung P_0 in die Auswertung ein. Auf Grund obiger Annahme, daß die im Kristall absorbierte Leistung P_1 vollständig zur Erwärmung beiträgt ($P_1 = Q_1$), gilt somit mit dem Lambert-Beerschen Gesetz

$$P_1 = P_0 \left(1 - e^{-\alpha L}\right) \tag{4.29}$$

$$\alpha = -\frac{-ln\left(1 - \frac{P_1}{P_0}\right)}{L}, \tag{4.30}$$

wobei L die Kristallänge und α der zu bestimmende Absorptionskoeffizient ist.

Damit die Messung nicht durch die Wärmekapazität des Probenhalters verfälscht wird, wurde eine spezielle Anordnung zur Befestigung der Probe entwickelt. Vier Temperatursensoren angeordnet in einem quadratischen Grundriß mit 2 mm Seitenlänge bilden die einzige Auflagefläche der Probe. Die Anordnung der Temperatursensoren zusammen mit dem Laserstrahl, der die Probe erwärmt, zeigt Abbildung 4.33. Die Temperatursensoren selbst – es handelt sich um Thermoelemente – haben einen Durchmesser von wenigen μm. Daher ist die Wärmekapazität der Kristallauflage vernachlässigbar klein.

Die untere Nachweisgrenze wird im wesentlichen durch die zur Verfügung stehende Laserleistung begrenzt. Bei maximaler Laserleistung von 10 W, liegt der Meßfehler bei 0,002 $\%\,\mathrm{cm}^{-1}$. Die Absorptionsverluste eines Nd:YAG Kristalls in Höhe von $\alpha = 0,05\,\%\,\mathrm{cm}^{-1}$ wurden mit 7.5 W eingestrahlter Leistung bestimmt. Der Kristall erwärmte sich nach 20 minütiger Einstrahlzeit der Laserquelle um 1,6 K.

Eine detaillierte Beschreibung dieses Meßverfahrens findet sich in der Diplomarbeit P. v. Löwis [vLo01].

4.5.2 Verlustbestimmung nach Findlay und Clay im Laserbetrieb

Dieses Verfahren zur Bestimmung von Absorptions- und Streuverlusten im Kristall sowie an den Kristalloberflächen nutzt die lineare Abhängigkeit der Schwellenanregungsleistung vom Logarithmus der Auskoppelung (Findlay-Clay Plot) [Fin66]. Es muß lediglich das in Abschnitt 4.4.1 beschriebene Verfahren zur Bestimmung der Laserparameter für drei bis fünf verschiedene Auskoppelgrade (für Nd:YAG im Bereich zwischen 0,7 % und 10 %) durchgeführt werden. Dabei garantiert das kalibrierte Koordinatensystem, daß die einzelnen Messungen exakt an identischen Probenkoordinaten durchgeführt werden. Dann wird für jeden Punkt der Probe der Parameter Schwelle S über dem Logarithmus der Transmission des Auskoppelspiegels aufgetragen. Der X-Achsenabschnitt Xa, der aus einer linearen Regression ermittelt wird, dient der Bestimmung der logarithmischen Kristallverluste γ_i (Gleichung 4.31). Daraus folgen schließlich die auf die Kristallänge L normierten Verluste V (Gleichung 4.33).

$$\gamma_i = \frac{-Xa - \gamma_1}{2}, \quad \text{mit} \tag{4.31}$$

$$\gamma_1 = -\ln(R_{reso}) \tag{4.32}$$

$$V = \frac{1 - e^{-\gamma_i}}{2L} \tag{4.33}$$

Die Resonatorverluste γ_1 stellen die logarithmischen Verluste des leeren Resonators mit Ausnahme der Auskoppelverluste für einen Umlauf dar, und berechnen sich einfach aus der Gesamtreflektivität R_{reso} aller Komponenten für einen Umlauf.

Diese Berechnung erfolgt automatisiert für alle Punkte der Probe mit Hilfe des entsprechenden Auswertungsmoduls (s. Abschnitt 5.2.2).

Man muß beachten, daß die mit diesem Verfahren bestimmten Werte die Reflexionsverluste an den Oberflächen beinhalten. Daher sind die Proben für die Emissionswellenlänge des Lasers entspiegelt, um die Oberflächenverluste klein gegenüber den Kristallverlusten zu halten.

Bestimmung der Kristallverluste

Dieses Verfahren ist am Beispiel eines Nd:YAG-Boules (Probe:AOA04001, Durchmesser: 25 mm, Länge: 51,5 mm) dargestellt. Die Verluste sind in Abbildung 4.34 dargestellt. Es handelt sich bei diesem Boule um eine sogenannte „flat-interface“ Zucht, bei der die Wachstumsfront nahezu senkrecht zur Zuchtrichtung gehalten wird. Wegen der flachen Wachstumsfront bildet sich kein Kern im Kristall aus (vergl. Abschnitt 2.3.2 „Facettenbildung“). Daher kann die Messung der Verluste keinen Kern und damit keine großen Schwankungen der Verluste zeigen. Die Strukturen, die in Abbildung 4.34 zu erkennen sind, lassen sich durch Messung der Doppelbrechung auf kleine Spannungen im Kristall zurückführen.

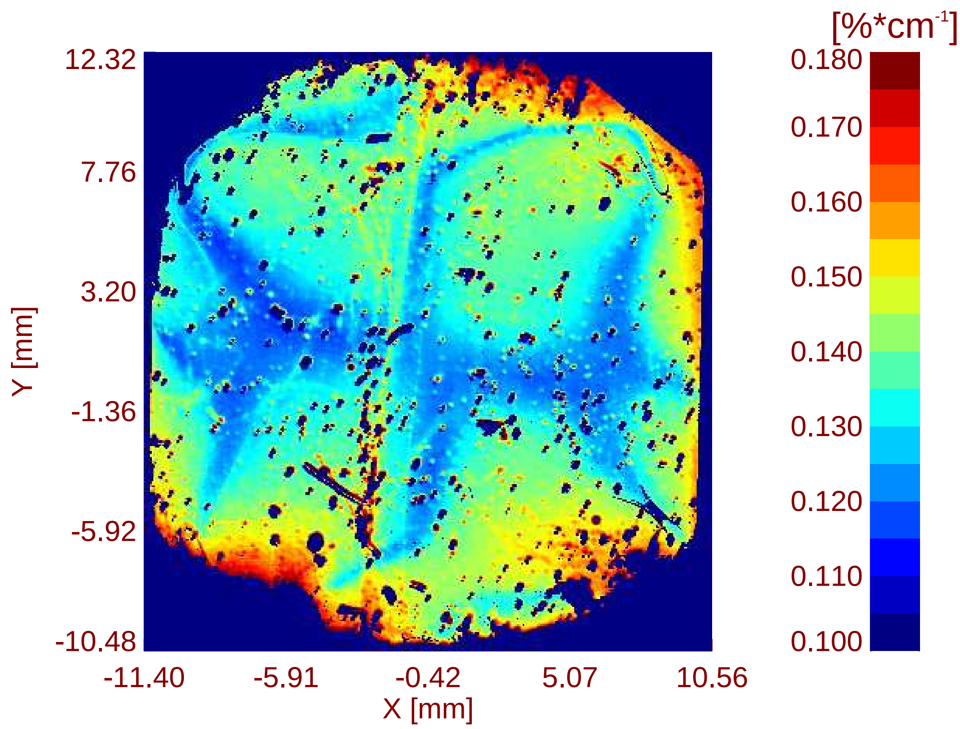

Abbildung 4.34: Findlay-Clay Plot: Verluste für die Laserwellenlänge der Probe AOA04001.

4.5.3 Vergleich der Verfahren

Da das Absorptionskalorimeter lediglich Absorptionsverluste detektiert, arbeitet das Verfahren unabhängig von der Oberflächenbeschichtung. Es kann also auch für unbeschichtete Kristalle oder für Kristalle mit AR Beschichtung, deren Restreflektivität nicht genau bekannt ist, angewandt werden. Dies ist insbesondere von Vorteil, da das Findlay-Clay Verfahren unter diesen Bedingungen nicht anwendbar ist.

Vor allen Dingen liegt die Fehlergrenze des Kalorimeters viel niedriger, was bei der Untersuchung von Kristallen mit sehr kleinen Verlusten wichtig ist. Verluste, die in der gleichen Größenordnung wie die Restreflektivität der Antireflex Beschichtung liegen, sind mit der Findlay-Clay Methode schwer zu bestimmen.

Auf Grund der extrem langen Meßzeit von ca. 40 Minuten pro Meßwert eignet sich das kalorimetrische Meßverfahren nicht für räumlich zweidimensional aufgelöste Messungen.

Außerdem sollte, um die Meßfehler der Temperaturmessung klein zu halten, die Wärmekapazität der Probe nicht zu groß sein. Die Abmessungen sollten so beschaffen sein, daß der Abstand zwischen dem Laserstrahl, der die Lage der Wärmequellen festlegt, und den Temperatursensoren nicht mehr als wenige Millimeter beträgt. Diese Bedingungen erfüllen fertig bearbeitete Stäbe für den Einsatz in diodenlaserangeregten Festkörperlasern mit 3 – 5 mm Durchmesser und 4 – 10 mm Länge. Für solche Proben ist die kalorimetrische Absorptionsmessung das richtige Meßverfahren mit den kleinsten Meßfehlern.

Das Verfahren nach Findlay und Clay ist dagegen die richtige Wahl, um die Verluste von großen Boulescheiben mit großer räumlicher Auflösung zu bestimmen.

Zur Untersuchung von kleinen Proben mit unbekannter Restreflektivität der AR Beschichtung kann man beide Verfahren kombinieren. Man bestimmt mittels Findlay-Clay Plot die Gesamtverluste einschließlich der Oberflächenverluste und vergleicht diesen Wert mit der kalorimetrischen Messung. So lassen sich die Oberflächenverluste von der Messung nach Findlay-Clay subtrahieren. Das Ergebnis ist dann eine ortsaufgelöste Messung, korrigiert um den Wert der Oberflächenverluste.

Daher kann also keinem der zwei Verfahren ein eindeutiger Vorzug zugesprochen werden. Vielmehr ergänzen sich die Verfahren in idealer Weise. Je nach Geometrie und Oberflächenbeschichtung der Probe ist das eine oder andere Verfahren vorzuziehen.

Kapitel 5

Software der Meßverfahren

Wie bereits in Kapitel 4 dargestellt, wurden im Rahmen dieser Arbeit Meßverfahren für Kristallproben mit einem Durchmesser von bis zu 50 mm bei einer räumlichen Auflösung zwischen 30 – 100 μm entwickelt.

Aus diesen Werten ergibt sich eine maximale Anzahl von $2,8 \cdot 10^6$ Meßpunkten je Probe. Dieser Wert ist noch mit der Anzahl der zu bestimmenden Parameter zu multiplizieren, um die Gesamtzahl der Daten je Probe abzuschätzen. Es ist offensichtlich, daß dies nicht mehr manuell bewältigt werden kann. Eine Verringerung der Anzahl der Meßpunkte durch Reduzieren der räumlichen Auflösung bei großen Proben wäre nicht sinnvoll, da hierbei eine kleine lokale Störung nicht mehr detektiert werden kann. Die Entwicklung einer Steuerung zur vollautomatisierten Messung der gewünschten Parameter ist aus diesem zwingenden Grund im Rahmen dieser Arbeit erfolgt. Ebenso war ein Verfahren zur automatisierten Auswertung der Daten notwendig. Ein wichtiger Aspekt bei dieser Entwicklung war eine möglichst fehlerfreie Übertragung aller Meßdaten vom Experiment bis zum letzten Schritt der Auswertung. Die Verfahren wurden so gestaltet, daß alle Randbedingungen der Messung untrennbar mit den Daten verknüpft wurden. So sind Fehler, die aus einer manuellen Eingabe von Daten resultieren könnten, ausgeschlossen.

5.1 Erfassung der Daten

Die Programme zur Steuerung der Meßverfahren sind modular aufgebaut. Dadurch konnten fertiggestellte Module leicht auf andere Meßverfahren übertragen werden. Man unterscheidet zwischen 3 Modulklassen, die schichtweise aufeinander aufbauen.

1. Ein- und Ausgabemodule: Diese Module sind das Bindeglied zwischen der eingesetzten meßtechnischen Ausrüstung (A/D- und D/A-Wandler, Schrittmotorsteuerung, Zeitgeber, CCD-Kamera, Diodenlasersteuerung) und höheren Programmfunktionen. Diese erste Schicht übernimmt vor allem die Aufgabe einer Hardware-Abstraktions-Schicht, stellt also die Funktionen unabhängig von der eingesetzen Meßtechnik bereit. Durch

dieses Konzept kann man z. B. einen A/D-Wandler mit 8 Bit Auflösung gegen einen A/D-Wandler mit 12 Bit Auflösung, der völlig andersartig angesprochen wird, tauschen. Die einzige Programmänderung, die hierfür notwendig ist, ist der Austausch des entsprechenden Moduls.

Die einzelnen Module sind also nicht an ein bestimmtes Experiment gebunden, sondern an die benutzte Technik.

2. Meß- und Kalibriermodule: Diese Module bauen auf den Ein- und Ausgabemodulen auf und beinhalten die Meßvorschrift des jeweils zu messenden Parameters. Daraus ergibt sich, daß jedem Experiment ein bestimmtes Modul zugeordnet ist. Das Meßmodul führt die Messung der Parameter für genau einen Punkt der Probe durch, ohne die Koordinaten dieses Punktes zu kennen, und übergibt das Ergebnis an die darüberliegende Schicht.

   Jedes Meßmodul benötigt in der Regel noch ein Kalibriermodul, das vor Start der Messung aufgerufen wird und alle Aufgaben zur Kalibrierung wenn möglich automatisch oder ansonsten interaktiv mit dem Anwender durchführt. Damit ist sichergestellt, daß sowohl die Messung als auch die Kalibrierung immer nach der gleichen Meßvorschrift durchgeführt wird, was die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse erheblich verbessert.

   Ein spezielles Modul zur Kalibrierung des Koordinatensystems findet in allen Messungen Verwendung. Dies ist notwendig, um die Ergebnisse verschiedener Messungen miteinander in Beziehung setzen zu können. Nur mit einem kalibrierten Koordinatensystem, das für alle Meßparameter gilt, ist die in Abschnitt 6 beschriebene Untersuchung von Korrelationen zwischen verschiedenen Parametern der Proben erst möglich.

3. Hauptprogramm: Dieses Modul ist von kleinen Anpassungen abgesehen für jedes Experiment identisch. Hier ist im wesentlichen die Schnittstelle zum Anwender implementiert (Einstellen des Meßbereichs der x- und y-Probenkoordinate und der Schrittweite zwischen zwei Meßpunkten).

   Vor Start der Messung werden zunächst alle notwendigen Kalibriermodule aufgerufen. Dann werden zwei ineinander liegende Schleifen für die x- und y-Probenkoordinate für den zuvor festgelegten Meßbereich durchlaufen. Die Rasterung der Probe geschieht „zeilenweise“, d. h. es werden zunächst bei konstanter y-Koordinate alle x-Positionen innerhalb des Meßbereichs durchlaufen. Dann wiederholt sich der Vorgang für eine neue y-Koordinate, die gerade um die gewünschte Schrittweite erhöht wurde, bis so der gesamte Meßbereich abgearbeitet wurde. Für jede Probenposition wird das entsprechende Meßmodul aufgerufen. Das Hauptprogramm speichert die von den Kalibrier- und Meßmodulen gelieferten Ergebnisse sowie alle für die Messung relevanten Parameter in einer Ergebnisdatei ab.

Im folgenden wird nun auf die einzelnen Meß- und Kalibriermodule genauer eingegangen, da diese für das Verständnis des Meßablaufs von Bedeutung sind.

5.1.1 Kalibrierung des Koordinatensystems

Dieses Modul ist fester Bestandteil jedes Meßverfahrens und gewährleistet die Konsistenz der Koordinatenangaben der verschiedenen Meßparameter zueinander. Da in den Experimenten Schrittmotoren zur Positionierung der Probe benutzt werden, genügt es, die Schrittweite eines Einzelschritts einmalig zu kalibrieren. Vor jeder Messung muß dann lediglich noch der Nullpunkt des Koordinatensystems festgelegt werden. Hierzu wird an Stelle der Probe eine Lochblende mit $100\,\mu$m Durchmesser in den Probenhalter eingebaut. Die Lochblende muß manuell vorjustiert werden, so daß der Meßstrahl zumindest teilweise die Lochblende trifft. Die transmittierte Intensität wird mittels einer Photodiode detektiert, wobei entweder eine vorhandene Photodiode der Meßapparatur (z. B. beim Aufbau zur Messung der Absorption) genutzt werden kann, oder es wird eine Photodiode an einer definierten Position zum Zwecke dieser Kalibriermessung positioniert. Das Kalibriermodul verschiebt zunächst die Lochblende solange in positiver x-Richtung bis der Rand des Strahles erreicht wird, bis also die transmittierte Intensität unter die Nachweisgrenze fällt. Danach wird das Vorzeichen der Bewegungsrichtung geändert bis auch hier der Rand des Strahles erreicht wird. Bei einem symmetrischen Strahlprofil muß dann das Intensitätsmaximum genau in der Mitte liegen. Diese Position wird nun angesteuert. Der Zentriervorgang wird durch die Computersteuerung in drei Schritten automatisch durchgeführt.

1. Suche das Intensitätsmaximum entlang der x-Koordinate
2. Wiederhole Punkt 1 für die y-Koordinate
3. Wiederhole Punkt 1 für die x-Koordinate

Die Blende befindet sich nun an der Stelle maximaler Intensität des Meßstrahls. Es ist leicht nachvollziehbar, daß dieses Verfahren bei einem rotationssymmetrischen Intensitätsprofil des Meßstrahls immer zum Ziel führt. Unter der Voraussetzung, daß sich das Strahlprofil und die Lochblende von Messung zu Messung nicht ändern, kann der Mittelpunkt des Meßstrahls somit reproduzierbar aufgefunden werden und stellt den Koordinatenursprung der Messung dar.

Nach der so erfolgten Kalibrierung kann nun jede Koordinate der Probe mit einer Wiederholgenauigkeit des Motorensystems von $< 5\,\mu$m im Strahlengang positioniert werden.

5.1.2 Absorption

Die Aufgabe dieses Moduls ist die Erfassung der 4 Signale M_i, M_a, R_i und R_a (Definition s. Abschnitt 4.1.1), die von drei Photodioden erzeugt werden. Die Photodioden sind an einen

A/D-Wandler angeschlossen. Wie bereits in Abschnitt 4.1.1 beschrieben, werden die Signale M_i und M_a mit Hilfe einer rotierenden Lochblende zeitlich getrennt und mit der gleichen Photodiode detektiert. Zur Synchronisation mit der Datenerfassung generiert die Antriebseinheit der Lochblende bei einer definierten Blendenposition einen Synchronisationsimpuls, der mit einem Digitaleingang der Computersteuerung verbunden ist. Da eine PLL-Regelung gewährleistet, daß die Lochblende mit einer konstanten Frequenz rotiert, können relativ zu dem Synchronisationsimpuls die Zeitfenster, in welchen die Detektion von M_i bzw. M_a erfolgen kann, als konstante Größen bestimmt werden. Mit Hilfe dieser Zeitfenster (T_1 und T_2) ordnet die Computersteuerung das Signal der Photodiode den Meßkanälen M_i und M_a eindeutig zu. Der Programmablauf des Moduls ist wie folgt realisiert:

1. Warte auf Synchronisationsimpuls von der Lochblende.
2. Setze Zeitgeber Z auf Null.
3. Warte bis $Z > T_1$.
4. Lese N mal Kanal 1 und 3 des A/D Wandlers ein, bilde den Mittelwert und schreibe den Wert in die Ergebnisvariablen R_i und M_i.
5. Warte bis $Z > T_2$.
6. Lese N mal Kanal 2 und 3 des A/D Wandlers ein, bilde den Mittelwert und schreibe den Wert in die Ergebnisvariablen R_a und M_a.
7. Rückgabe der Ergebnisse R_i, M_i, R_a und M_a an das übergeordnete Modul.

Die Mittelwertbildung über $N = 33$ Werte dient der Erhöhung der Genauigkeit der Messung. Der Wert für N folgt direkt aus der Zeit, für die ein Lochblendenfenster geöffnet bleibt, sowie der Zeitdauer einer einzelnen Messung.

Zur Kalibrierung der Absorption muß das Teilerverhältnis des variablen Strahlteilers bestimmt werden. Das Kalibriermodul fordert hierzu den Anwender auf, die Probe zu entfernen und dies zu bestätigen. Dann wird das oben beschriebene Meßmodul 100 mal aufgerufen und der Mittelwert dieser 100 Einzelmessungen für alle vier Signale abgespeichert. Die Quotienten von M_i und R_i bzw. M_a und R_a gehen in die Auswertung zur Bestimmung der Teilerverhältnisse ein.

Das Zusammenspiel der einzelnen Module und der Meßinstrumente ist in Abbildung 5.1 am Beispiel der Absorptionsmessung erläutert. Die erste Ebene bilden die benötigten Detektoren und die Stellglieder. Dies sind die Photodioden zur Messung aller Signale, die Schrittmotoren zur Bewegung der Probe und der „Chopper“, der ein Signal entsprechend der Position seiner Öffnungen liefert.

In der nächsten Ebene finden sich die Instrumente, an welche die soeben aufgezählten Geräte angeschlossen sind. Zur Ansteuerung jedes Instrumentes gibt es in der unteren Modulebene genau ein korrespondierendes Softwaremodul. In diesem Falle findet man hier das

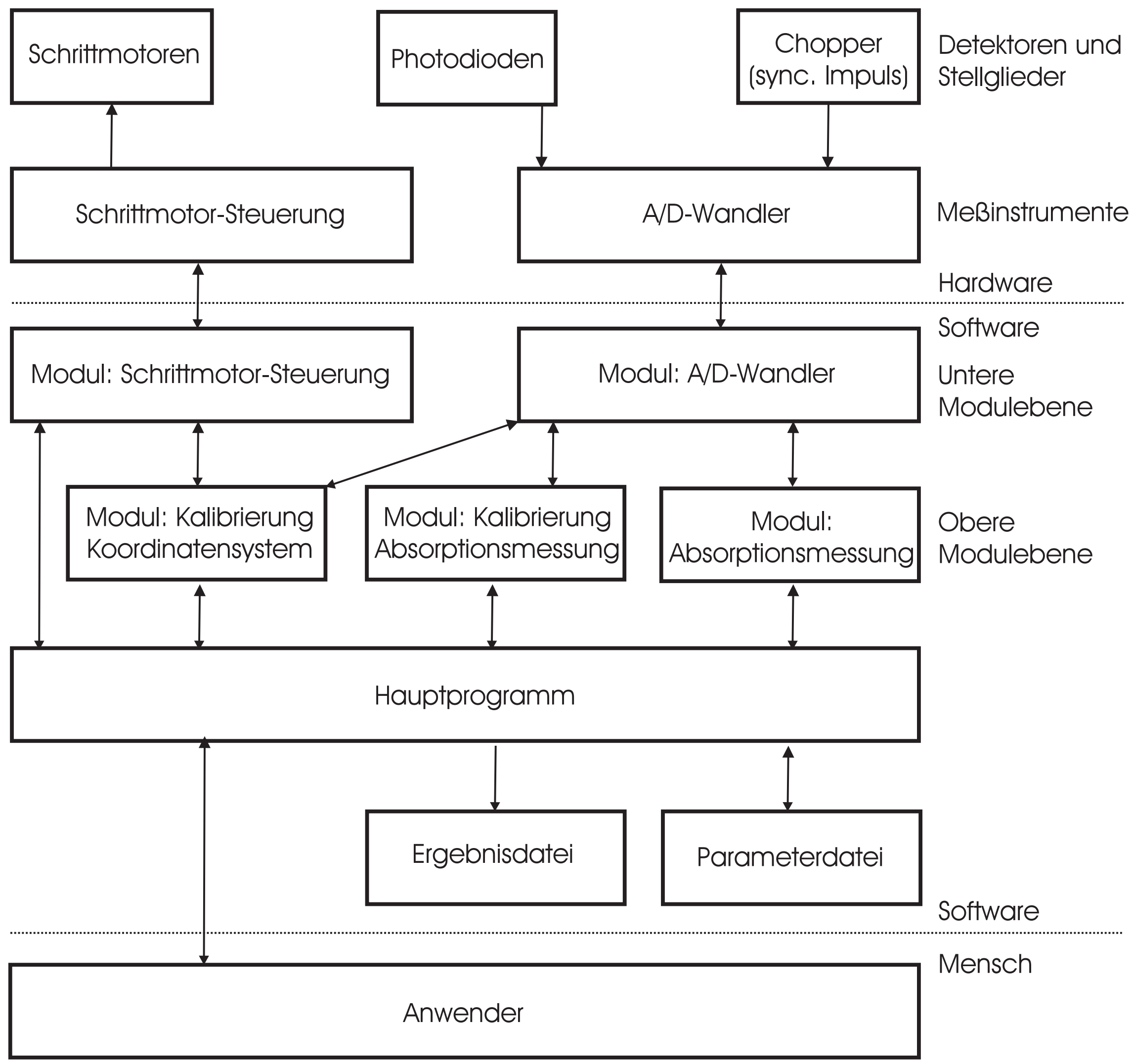

Abbildung 5.1: Darstellung des modularen Aufbaus des Programmes zur Messung der Absorption in Verbindung mit den benötigten Meßinstrumenten. Die Pfeile zeigen die Richtungen des Datenflusses.

Modul zur Schrittmotor-Steuerung und das Modul zur A/D-Wandlung. Muß ein Instrument gegen einen anderen Typ ausgewechselt werden, genügt es, das korrespondierende Modul der unteren Modulebene auszuwechseln.

Auf die Module der unteren Ebene bauen die Module der oberen Modulebene auf. Beispielsweise benötigt das Modul zur Kalibrierung des Koordinatensystems sowohl Zugriff auf die Schrittmotor-Steuerung als auch auf den A/D-Wandler. Die Software zur Kalibrierung des Koordinatensystems bewegt selbstständig die Motoren solange, bis die von einer Lochblende transmittierte Intensität maximal wird.

Das Hauptprogramm koordiniert schließlich den vollständigen Meßablauf und muß daher Zugriff auf alle Module der oberen Modulebene besitzen. Zur Bewegung der Probe von Meßpunkt zu Meßpunkt ist ferner noch der Zugriff auf das Schrittmotormodul der unteren Modulebene notwendig.

Die Schnittstelle zum Anwender erfolgt über das Hauptprogramm. Ferner werden wichtige Größen (z. B. Abmessungen der Probe) in einer Parameterdatei festgehalten. Die Ergebnisse der Messung speichert das Hauptprogramm in der Ergebnisdatei.

5.1.3 Fluoreszenzlebensdauer

Das Meßmodul zur Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer läßt sich in zwei Teile gliedern: Im ersten Schritt erfolgt die Datenerfassung mit einem schnellen A/D Wandler danach die eigentliche Bestimmung der Lebensdauer durch Anfitten einer Exponentialfunktion.

Zunächst wird der vollständige Intensitätsverlauf der Abklingkurve in einem separaten Zwischenspeicher des A/D-Wandlers abgelegt. Dies ist erforderlich, um das Signal mit einer Abtastraten von bis zu 30 MHz digitalisieren zu können. Danach werden die Daten wesentlich langsamer mit einer Rate von 400 kHz in den Hauptspeicher des Computers übertragen. An diese Intensitätsdaten wird eine Exponentialfunktion angefittet, deren Zeitkonstante die zu bestimmende Fluoreszenzlebensdauer darstellt.

Als Fitverfahren wird das Anfitten einer Geraden mittels linearer Regression an den Logarithmus der Meßwerte benutzt. Ebenfalls untersucht wurde das Anfitten einer Exponentialfunktion durch χ^2 Minimierung nach Levenberg und Marquardt [Mar63] [Pre98]. Die Streuung der Fitwerte ist um 30% geringer als beim ersten Verfahren. Es ist zwar das hinsichtlich der Fitgenauigkeit bessere Verfahren, jedoch ist die benötigte Rechenzeit um den Faktor 120 höher. Die Meßzeit würde dadurch stark steigen, d. h. die mögliche räumliche Auflösung würde sinken. Deshalb wird das erste Verfahren benutzt, welches im folgenden kurz erläutert wird. Aus Gleichung 4.12, die den exponentiellen Intensitätsverlauf der Fluoreszenzstrahlung beschreibt, läßt sich nach erfolgter Subtraktion des Offsets die Gleichung

$$ln\left(\frac{I(t)}{I_0}\right) = -\frac{1}{\tau}t \tag{5.1}$$

gewinnen. Hieraus bestimmt man mittels linearer Regression $\frac{1}{\tau}$ und damit τ. Wesentlich hierbei sind eine gute Offsetkorrektur und das reproduzierbare Bestimmen der Anfangs- und Endpunkte zwischen denen gefittet wird. So muß man am Anfang den Bereich, in dem noch Effekte des Diodenlasers, des Verstärkers, Upconversionprozesse und verstärkte Spontanemission (ASE) eine Rolle spielen, unberücksichtigt lassen. Auch am Ende darf man nicht den gesamten Meßbereich für den Fit nutzen, sondern muß Bereiche, in denen das Rauschen in etwa die Größe des Signals erreicht, vernachlässigen.

Die Rückgabewerte des Moduls sind die aus dem Fit bestimmten Größen, wie die Lebensdauer τ und die Anfangsintensität I_0 sowie deren Fehler. Damit ist die Speicherung der zeitlich aufgelösten Meßwerte der Fluoreszenzintensität nicht mehr notwendig.

5.1.4 Laserparameter

Ziel dieses Moduls ist die Bestimmung der Laserparameter Schwelle S und differentieller Wirkungsgrad η durch Messung der absorbierten Anregungsleistung P_{abs} und der Ausgangsleistung des Lasers P_{out}.

Vor Start der Messung legt der Anwender in einer Parameterdatei n Werte, die die Stromstärke I des Anregungslasers annehmen wird, fest. Im folgenden wird daher I mit einem Index $i \in \{1, \ldots, n\}$ versehen. Die Werte $I_1, \ldots, I_n$ sind streng monoton steigend. Üblicherweise wählt man $10 < n < 15$, wobei diese Zahl einen sinnvollen Kompromiß zwischen erreichter Genauigkeit der Parameterbestimmung und benötigter Meßzeit darstellt.

Eine Messung läuft prinzipiell so ab, daß in einer Schleife, wobei die Variable i die Werte von 1 bis n annimmt, die Stromstärke I_i eingestellt wird und daraufhin die gewünschte Meßgröße bestimmt wird. Die Messung der Laserparameter gliedert sich in die Bestimmung der absorbierten Anregungsleistung sowie der Laserausgangsleistung.

Da die absorbierte Anregungsleistung lediglich für einen ausgewählten Punkt der Probe bestimmt wird, wurde diese Aufgabe dem Kalibriermodul zugeordnet. Hier werden die in Abschnitt 4.4.1 beschriebenen Schritte zur Bestimmung der absorbierten Anregungsleistung interaktiv mit dem Anwender durchgeführt. Nach Durchlaufen aller Meßschritte stehen die Werte für die Anregungsleistung ($P_{foc}(I_i)$), die von der Probe transmittierten Anregungsleistung ($P_{tges}(I_i)$) und der Fluoreszenzleistung ($P_{fl}(I_i)$) für alle i zur Verfügung. Nach Gleichung 4.25 erfolgt daraus die Bestimmung der absorbierten Anregungsleistung ($P_{abs}(I_i)$). Diese Werte werden in einem Feld zwischengespeichert, da sie zur Bestimmung der Laserparameter für jeden Punkt der Probe benötigt werden. Zusätzlich werden sie in einer Parameterdatei gesichert und stehen für weitere Messungen derselben Probe (z. B. mit einem anderen Auskoppelspiegel) zur Verfügung.

Die zweite Aufgabe des Kalibriermoduls ist die vollständige Initialisierung der Diodenlasersteuerung mit allen Betriebsparametern, welche einer Parameterdatei entnommen werden. Die erforderlichen Befehle und Parameter werden hierzu an die Computerschnittstelle (GPIB) der Diodenlasersteuerung übermittelt. Da dies vollautomatisch geschieht, ist gewährleistet, daß die Messungen immer mit den gleichen Einstellungen durchgeführt werden. Fehlbedienungen sind dadurch ausgeschlossen.

Zur ortsaufgelösten Bestimmung der Laserparameter wird die Ausgangsleistung $P_{out}(I_i)$ des mit der Probe realisierten Lasers für einen während der Messung konstant bleibenden Auskoppelgrad T gemessen. Hierbei durchläuft I_i denselben Wertebereich wie bei der Bestimmung von $P_{abs}(I_i)$.

Damit läßt sich die Funktion $P_{out}(P_{abs})$ konstruieren, die für die Werte $P_{abs}(I_i)$, $i \in \{1, \ldots, n\}$ definiert ist. Aus dieser diskreten Funktion $P_{out}(P_{abs})$ erhält man die gesuchten Laserparameter η und S als Steigung und x-Achsenabschnitt einer per linearer Regression[Pre98] berechneten Ausgleichsgerade. Aus der Güte der linearen Regression, ausgedrückt durch den Regressionskoeffizienten r, gewinnt man direkt die Fehlergrenzen $\Delta\eta$ und ΔS.

Die Rückgabewerte des Moduls sind somit η, S, $\Delta\eta$, ΔS und r. Damit kann die Speicherung der Einzelwerte $P_{out}(I_i)$ entfallen.

5.1.5 Schlierenmethode und optische Doppelbrechung

Da sich eine Bestimmung der Brechungsindexgradienten oder der optischen Doppelbrechung immer aus mehreren Meßschritten zusammensetzt, kann eine Berechnung und Auswertung erst erfolgen, wenn alle Einzelschritte durchgeführt wurden. Daher hat das Meßmodul hier lediglich die Aufgabe, Daten aufzunehmen und zu speichern.

Im Gegensatz zu den anderen Meßverfahren wird hier zur Detektion eine CCD-Kamera mit 512 x 512 Bildpunkten an Stelle einer Photodiode eingesetzt. Dies entspricht am Ort der Probe einem Ausschnitt von 3,485 mm x 3,485 mm, was durch die Abbildung der Objektebene auf die Bildebene fest vorgegeben ist. Pro Meßschritt wird immer ein Gebiet dieser Größe gemessen und abgespeichert. Hierzu wird die Software der Kamera direkt angesteuert und der Befehl zum Belichten des CCD-Sensors sowie zum Übertragen und Speichern der Daten übermittelt. Daher ist der Wert von 3,485 mm als Schrittweite zwischen zwei Aufnahmen fest vorgegeben. Aus diesen Angaben folgt auch, daß die räumliche Auflösung immer 6,8 μm beträgt, was viel besser als der geforderte Wert von 30 μm ist.

Da es zur weiteren Auswertung wünschenswert wäre, nicht jedes Bild einzeln verarbeiten zu müssen, werden nach Abschluß der Messung die Daten der Einzelbilder in der ursprünglichen Reihenfolge zu einer Datei zusammengefügt, die im Aufbau wieder dem Standard-Datenformat (s. Abschnitt 5.2.1) entspricht. Durch gleichzeitige Reduzierung der räumlichen Auflösung auf einen ausreichenden Wert wird die anfallende Datenmenge erheblich verkleinert. Gleichzeitig wird die Dynamik der Messung erhöht, da durch Mittelwertbildung mehrere benachbarte Meßpunkte zu einem Punkt zusammengefaßt werden.

Da die Software lediglich Daten der CCD-Kamera aufnimmt, kann sie universell sowohl zur Steuerung einer Messung der Brechungsindexgradienten als auch der optischen Doppelbrechung eingesetzt werden.

5.2 Verarbeitung der Daten

5.2.1 Datenformate

Für jede Meßmethode wurde ein spezielles Datenformat entwickelt, das an die Meßdaten angepaßt ist. Das Format der gespeicherten Daten hat folgenden prinzipiellen Aufbau:

Kennung 1
x- und y-Probenkoordinaten des Startpunktes
Anzahl der Meßpunkte in x- und y-Richtung
Abstand zwischen zwei Punkten in x- und y-Richtung
Spezifische Parameter der Messung, z. B. Kalibrierwerte
Kennung 2
Datensatz $D(x, y)$

Ein Datensatz $D(x, y)$ für eine Probenkoordinate besteht in der Regel aus mehreren Werten, die sequentiell in der Reihenfolge $D(x_{min}, y_{min}), \ldots, D(x_{max}, y_{min}), D(x_{min}, y_{min+1}), \ldots, D(x_{max}, y_{max})$ abgelegt sind.

An Hand der Einträge „Kennung 1“ und „Kennung 2“ wird der Inhalt der Datei eindeutig identifiziert, da jedem Meßverfahren ein Satz eigener Kennungen zugeordnet ist. Alle für die Auswertung relevanten Parameter sind zwischen diesen Kennungen gespeichert. Durch eine automatische Überprüfung der Kennungen vor Verwendung der Daten werden Verwechslungen ausgeschlossen, sowie Fehler, die bei manuellem Übertragen von Parametern (z. B. aus schriftlichen Aufzeichnungen) entstehen könnten, ausgeschlossen.

5.2.2 Auswertung und Archivierung

Die von den Meßverfahren vollautomatisch erzeugten Daten werden mit Hilfe spezieller, in der Hochsprache „idl“[Rese] entwickelten, Auswerteprogrammen gelesen. Die Vorteile von „idl“ liegen vor allem in der Fähigkeit der Verarbeitung großer Datenmengen, der graphischen Darstellung sowie der Möglichkeit, komplizierte Auswertungen vollständig mit selbst entwickelten Programmen zu automatisieren. Es wird einmalig aus den physikalischen Zusammenhängen eine Berechnungsvorschrift entwickelt, die dann in „idl“-Anweisungen übersetzt wird. Nach Einlesen der Daten werden die zur Auswertung notwendigen Berechnungen gemäß der Berechnungsvorschrift automatisiert auf alle Datenpunkte angewandt.

Um die Vielzahl der untersuchten Proben und Parameter sinnvoll handhaben zu können, wurde im Rahmen der Auswertung ein Archivierungssystem erstellt. Die Daten eines Meßparameters einer bestimmten Probe werden dabei durch Angabe von Probennummer, Datum der Messung und des gewünschten Parameters automatisch aus dem Archiv aufgerufen und stehen dann zur Auswertung bereit. Nach Abschluß der Auswertung werden die Ergebnisse wieder im Archiv gespeichert. Die jeweils beste Ergebnisdatei eines Parameters kann in einer speziellen Liste vermerkt werden, welche sozusagen eine Liste der gültigen Messungen für jede Probe darstellt. Über einen Eintrag in diese Liste entscheidet derjenige, der die Messung durchgeführt hat. Auf diese Daten greifen dann die Programme zu, die mehrere Parameter miteinander verknüpfen.

Der Vorteil dieser Methode besteht darin, daß man nur noch angeben muß, welcher Parameter für welche Probe aufgerufen werden soll. Für eine weitergehende Auswertung ist es nur noch wichtig, daß ein benötigter Parameter korrekt gemessen wurde, das Datum und die näheren Umstände der Messung sind dagegen bei weiteren Auswertungen unerheblich. Existieren mehrere Messungen des gleichen Parameters, wählt die Software automatisch die als beste Messung markierte aus. Die in Abschnitt 6 vorgestellten Verfahren zur Auswertung machen von dieser Methode regen Gebrauch. Auch die in Abschnitt 4.4.1 beschriebene Korrektur der der Laserparameter Schwelle S und differentieller Wirkungsgrad η mit Daten der Absorptionsverteilung greift auf die im Archiv gespeicherte Daten der Absorptionsmessung zu, um die Korrektur durchführen zu können.

Findlay-Clay Verfahren

Das Findlay-Clay Verfahren ist ein sehr gutes Beispiel für den Zugriff auf die im Archiv gespeicherten Daten. Für eine zu betrachtende Probe muß die Bestimmung der Laserparameter bereits ausgeführt worden sein und die Daten müssen im Archiv gespeichert sein. Zur Berechnung der Verluste werden alle verfügbaren Messungen des Parameters Laserschwelle S bei verschiedenen Werten der Transmission des Auskoppelspiegels T aus dem Archiv geladen.

Die Anzahl der verschiedenen Auskoppeltransmissionen sei l. Es werden im Allgemeinen zwischen drei und fünf verschiedene Auskoppelspiegel benutzt. Zur Unterscheidung der Auskoppeltransmissionen wird der Index $k \in \{1, \ldots, l\}$ eingeführt. Damit werden für jeden Meßpunkt (x, y) der Probe Wertepaare $\{T_k, S_k\}$ gebildet, wobei der Wert von T_k natürlich für alle (x, y) Koordinaten einer Messung konstant ist. Die Datenpaare $\{T_k, S_k\}$ werden gemäß Gleichung 5.2 und 5.3 transformiert.

$$u_k = -\ln(1 - T_k) \tag{5.2}$$

$$v_k = S_k \tag{5.3}$$

Die resultieren Datenpaare (u_k, v_k) zeigen nach Findlay und Clay [Fin66] eine lineare Abhängigkeit, wobei sich aus dem X-Achsenabschnitt Xa die resonatorinternen Verluste bestimmen lassen. Daher wird mittels linearer Regression die Funktion $u = A + Bv$ an die Datenpaare (u_k, v_k) angepaßt. Aus den Fitparametern A und B bestimmt man zunächst den X-Achsenabschnitt Xa.

$$Xa = -\frac{A}{B} \tag{5.4}$$

Unter Berücksichtigung der restlichen Resonatorverluste γ_1 (Gleichung 4.32) bestimmt man daraus die logarithmischen Kristallverluste γ_i (Gleichung 4.31) sowie schließlich mit einer einfachen Transformation (Gleichung 4.33) die auf die Kristallänge L normierten Verluste V.

Kapitel 6

Quantitative Analyse der Korrelation optischer Parameter mit den Laserparametern

6.1 Einfluß der Dotierungskonzentration auf die Laserparameter

Die bekannte Abhängigkeit der Laserparameter Schwellenanregungsleistung S und differentieller Wirkungsgrad η von der Dotierungskonzentration und damit von der Absorption wurde bereits in Abschnitt 4.4.1 diskutiert. Da die Ausgangsleistung eines Lasers zunächst mit steigender Absorption der Anregungsstrahlung zunimmt, erfahren auch die Parameter Schwelle und Wirkungsgrad eine Änderung, die mit der Absorption korreliert. Um diesen Umstand zu berücksichtigen, werden die gemessenen Laserparameter unter Berücksichtigung der tatsächlich absorbierten Anregungsleistung korrigiert.

In allen Untersuchungen dieses Kapitels ist diese konzentrationsbedingte Korrektur der Laserparameter bereits erfolgt. Die Laserparameter wurden gemäß Gleichungen 4.26 und 4.27 transformiert.

Daher ist die Information der Nd-Konzentration bereits in den transformierten Laserparametern enthalten und kann daher nicht mehr mit ihnen korreliert werden.

6.2 Einfluß der spannungsinduzierten Doppelbrechung auf die Laserparameter

Die Änderung des Polarisationszustandes der Laserstrahlung bei Transmission durch ein optisch aktives Material bewirkt alleine noch keine Erhöhung der Verluste für den Laserprozess. Erst in Kombination mit einem polarisierenden Element, das unterschiedliche Verluste für

π und σ polarisierte Strahlung verursacht, wirkt sich die Doppelbrechung des laseraktiven Materials auf die Laserparameter Schwelle und differentieller Wirkungsgrad und damit letztendlich auch auf die Ausgangsleistung aus.

Das polarisierende Element kann beispielsweise ein zusätzliches Element (Polarisator, Glasplatte unter ihrem Brewster Winkel zum Strahl) sein oder es ist ein sekundärer Effekt eines ohnehin im Resonator vorhandenen Elements (z.B. eines Resonatorspiegels). Ebenso kann das verstärkende Medium eine spontane Polarisierung der Laserstrahlung bewirken, falls die Emissions-Wirkungsquerschnitte für π und σ Strahlung unterschiedlich sind. Das Material Nd:YVO_4 zeigt beispielsweise dieses Verhalten.

Die Spannungsdoppelbrechung wäre also lediglich im Falle eines für π und σ Strahlung völlig isotropen Resonatordesigns zu vernachlässigen. Dieser Laser würde folglich auch unpolarisierte Strahlung emittieren, was bei vielen Anwendungen unerwünscht ist.

Vor diesem Hintergrund ist es kein Widerspruch, die durch Spannungsdoppelbrechung induzierten Verluste auch bei einem isotropen Material wie Nd:YAG zu untersuchen. Man benötigt lediglich ein zusätzliches polarisierendes Element innerhalb des Resonators.

Im Experiment erfüllt ein unbeschichtetes Glassubstrat diese Aufgabe, welches unter Brewster-Winkel zur Resonatorachse eingebaut ist. Je nach Lage des Substrates läßt sich so ein Polarisationszustand des Lasers mit $\vec{E} \parallel \vec{x}$ oder $\vec{E} \parallel \vec{y}$ erzwingen. In beiden Fällen ist der Polarisationsgrad der ausgekoppelten Strahlung größer als 1:110. Man kann also im Rahmen der Meßgenauigkeit von einer vollständigen Polarisation des Lasers sprechen.

Ohne das Glassubstrat mißt man einen Polarisationsgrad von 1:3, was bedeutet, daß dieser Resonator nicht völlig polarisationsisotrop ist. Die kleine Asymmetrie wird durch die beiden Faltungsspiegel verursacht, die unterschiedliche Reflexionskoeffizienten für π und σ Strahlung besitzen.

Im Falle des vollständig polarisierten Lasers ist ein direkter Vergleich der Laserparameter mit den Verlusten durch Spannungsdoppelbrechung, deren Berechnung nach Gleichung 4.24 erfolgt, möglich.

Anhand Abbildung 6.1, 6.2 und 6.3 ist dieser Vergleich bereits qualitativ zu sehen. Abbildung 6.1 zeigt die Schwellenanregungsleistung, Abbildung 6.2 den differentiellen Wirkungsgrad und Abbildung 6.3 die an Hand der gemessenen Doppelbrechung berechneten Verluste für den polarisierten Laserbetrieb. Man erkennt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Laserparametern und den doppelbrechungsinduzierten Verlusten. Die Abbildung (6.3) der durch Doppelbrechung induzierten Verluste zeigt zweimal je vier um den Kern symmetrisch angeordnete Bereiche hoher Verluste. In diesen Bereichen sinkt der differentielle Wirkungsgrad (Abbildung 6.2) des Lasers und die Schwelle (Abbildung 6.1) steigt an. Die 90° Symmetrie dieser vier Bereich beruht wieder auf der Symmetrie des linear polarisierenden Elements.

Weiterhin erkennt man das für diesen in <111> Richtung gezogenen Nd:YAG Kristall typische Bild der vom Wachstumskern ausgehenden Spannungen. Direkt an der Mantelfläche des Kerns treten die größten Spannungen und damit auch die größten Verluste auf.

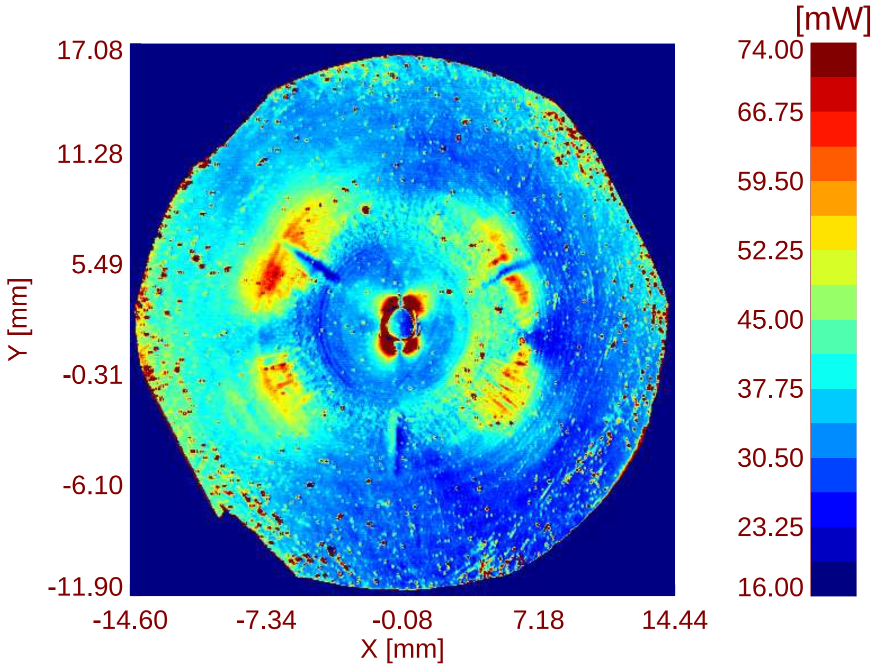

Abbildung 6.1: Schwellenanregungsleistung eines Lasers mit linear polarisierendem Element im Resonator, gemessen an Probe AOA05001.

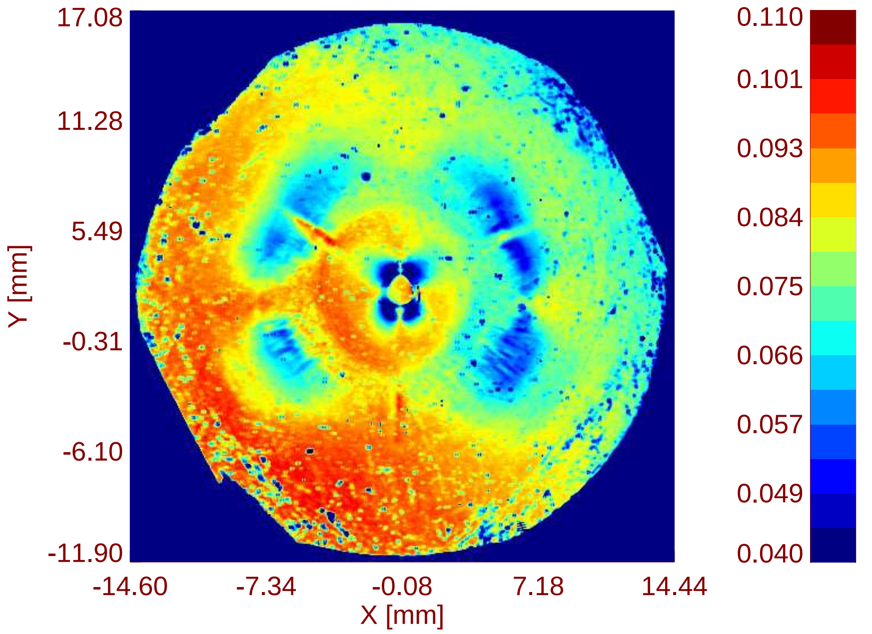

Abbildung 6.2: Differentieller Wirkungsgrad eines Lasers mit linear polarisierendem Element im Resonator, gemessen an Probe AOA05001.

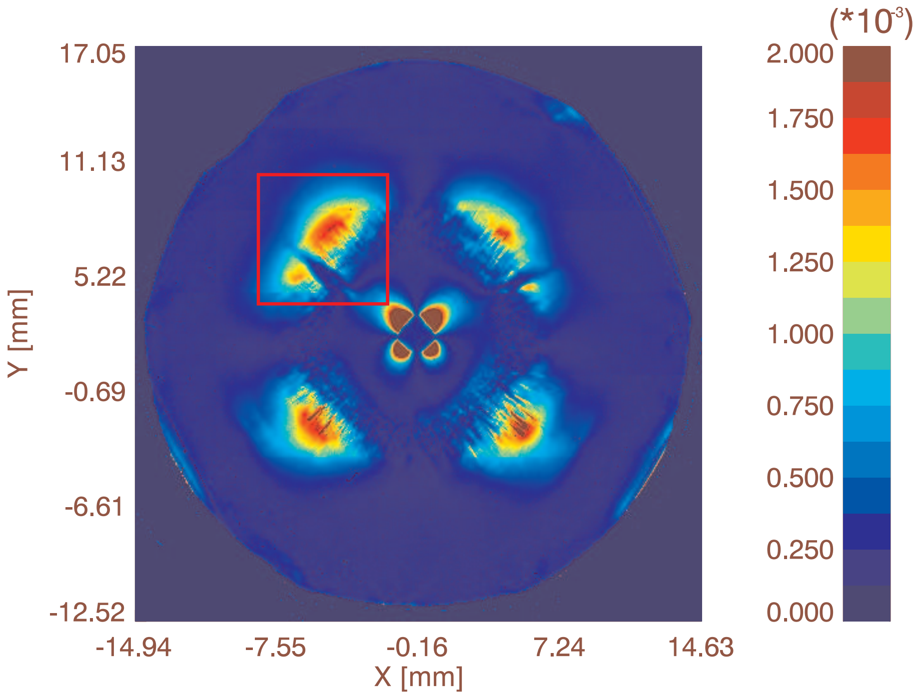

Abbildung 6.3: Spannungsinduzierte Verluste durch Doppelbrechung berechnet für einen Resonator mit einem linear polarisierenden Element für Probe AOA05001. Der Bereich, der in der quantitativen Analyse betrachtet wird, ist rot umrandet.

Probe	AOA05001		AOA06001	
Parameter	$1/\eta$ und δ	S und δ	$1/\eta$ und δ	S und δ
A	11,14869	37,22840	10,27457	86,23502
$B \cdot 10^3$	3,63910	13,66944	6,08912	38,84287
$\Delta A \cdot 10^{-2}$	0,55835	18,84527	0,35815	16,91144
ΔB	6,8248	214,6596	11,2254	476,1881
Regressionskoeffizient r	0,82918	0,60318	0,88863	0,70119
Anzahl Datenpunkte	3527	3527	2685	2685

Tabelle 6.1: Ergebnisse der linearen Regression zwischen den Parametern $1/\eta$ und δ sowie S und δ gemessen an den Proben AOA05001 und AOA06001. Bedeutung der Parameter: A, B und ΔA, ΔB bezeichnen die Fitparameter der linearen Regression $Y = A + B * X$ bzw. deren Fehler.

Im folgenden wird der in Gleichung 3.19 abgeleitete lineare Zusammenhang zwischen der Schwelle und den resonatorinternen Verlusten ebenso wie der in Gleichung 3.20 dargestellte Zusammenhang zwischen $1/\eta$ und den resonatorinternen Verlusten δ untersucht.

Die Verluste δ werden bestimmt von Verlusten der Resonatorspiegel, durch Absorptionen im aktiven Medium und Verluste des polarisierenden Elements. Bei der folgenden quantitativen Analyse kann man davon ausgehen, daß letztere dominieren. Der Term δ kann deshalb gleich den doppelbrechungsinduzierten Verlusten gesetzt werden.

Die Hypothesen (Gleichungen 3.19 und 3.20) werden verifiziert, indem die entsprechenden Größen in einem Diagramm dargestellt werden. Mittels einer linearen Regression wird die Abhängigkeit der Parameter voneinander bestimmt. Dabei gehen die Werte für die Laserparameter S und η entsprechend ihrer Gewichtung, die sich aus den Fehlern ΔS und $\Delta\eta$ (Berechnung in Kapitel 5.1.4) ergibt, in den Fit ein. Die graphische Darstellung kann diese Gewichtung nicht wiedergeben. Die Ausgleichsgerade ist aber in jedem Fall korrekt unter Berücksichtigung der Gewichtung eingezeichnet. Dies ist bei der Interpretation der im folgenden gezeigten Bilder zu beachten.

Eine Maß für die Stärke des Zusammenhangs zwischen den aufgetragenen Parametern ist der Regressionskoeffizient r. $|r|$ nahe eins bedeutet einen sehr engen Zusammenhang, während $|r|$ nahe Null einen sehr schwachen oder keinen Zusammenhang bedeutet [Bro89]. Je höher die Anzahl der Datenpunkte ist, desto weiter darf sich $|r|$ von eins entfernen, um trotzdem einen gleichstarken Zusammenhang auszudrücken.

Um das Ergebnis nicht durch andere Effekte, die in den folgenden Kapiteln noch diskutiert werden, zu verfälschen, erfolgt die Auswertung für einen räumlich eng begrenzten Bereich der Probe. Trotzdem soll aber nach Möglichkeit der gesamte Wertebereich der durch Doppelbrechung induzierten Verluste abgedeckt werden. Bereiche der Probe, die nur sehr kleine Verluste aufweisen, werden nicht untersucht, da hier möglicherweise andere Parameter überwiegen, die das Ergebnis verfälschen würden. Durch die Beschränkung auf einen Ausschnitt der Probe, der in Abbildung 6.3 durch das rote Rechteck markiert ist, können die restlichen den Laserprozess beeinflussenden Parameter als konstant angenommen werden.

Abbildung 6.4 und 6.5 zeigen eine deutliche Abhängigkeit der Parameter S und $1/\eta$ von den Verlusten δ für Probe AOA05001, ebenso Abbildung 6.6 und 6.7 für Probe AOA06001. Die Laserparameter wurden für den kleinstmöglichen Auskoppelgrad von $T = 0,7\,\%$ bestimmt. Wie in Abschnitt 3.4.3 dargestellt, ist der Einfluß der resonatorinternen Verluste im Vergleich mit anderen Störfaktoren bei einer kleinen Auskoppelung am größten. Daher vereinfacht eine kleine Auskoppelung den Nachweis der Korrelation.

Die Ergebnisse der linearen Regression sind in Tabelle 6.1 zusammengefaßt. Die Regressionskoeffizienten r betragen für Probe AOA05001 0,83 bzw. 0,60 und für Probe AOA06001 0,89 und 0,70. Bei einer genügend großen Anzahl von 3500 bzw. 2700 untersuchten Datenpunkte ist damit die postulierte Abhängigkeit der Laserparameter von den durch Spannungsdoppelbrechung induzierten Verlusten bestätigt.

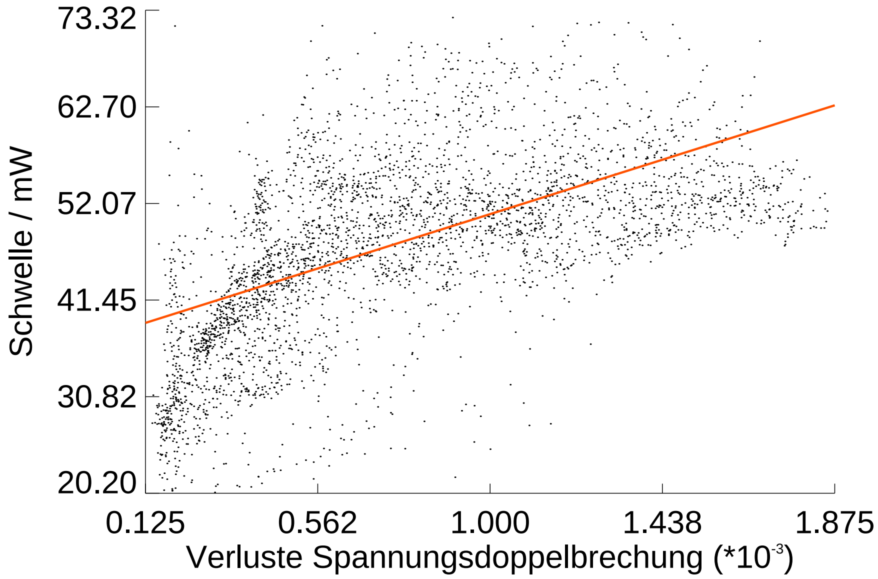

Abbildung 6.4: Korrelation der Parameter Schwelle und spannungsinduzierte Verluste durch Doppelbrechung, gemessen in einem Ausschnitt der Probe AOA05001.

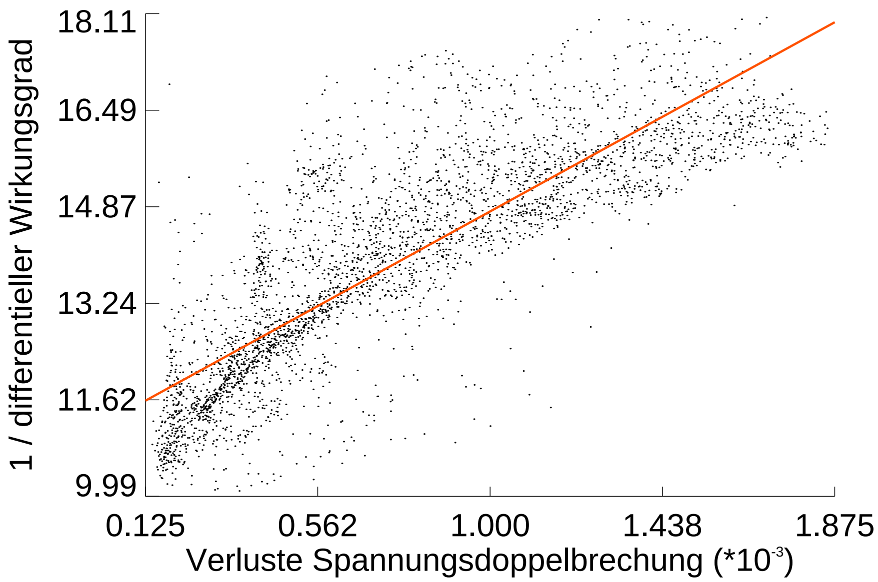

Abbildung 6.5: Korrelation der Parameter differentieller Wirkungsgrad und spannungsinduzierte Verluste durch Doppelbrechung, gemessen in einem Ausschnitt der Probe AOA05001.

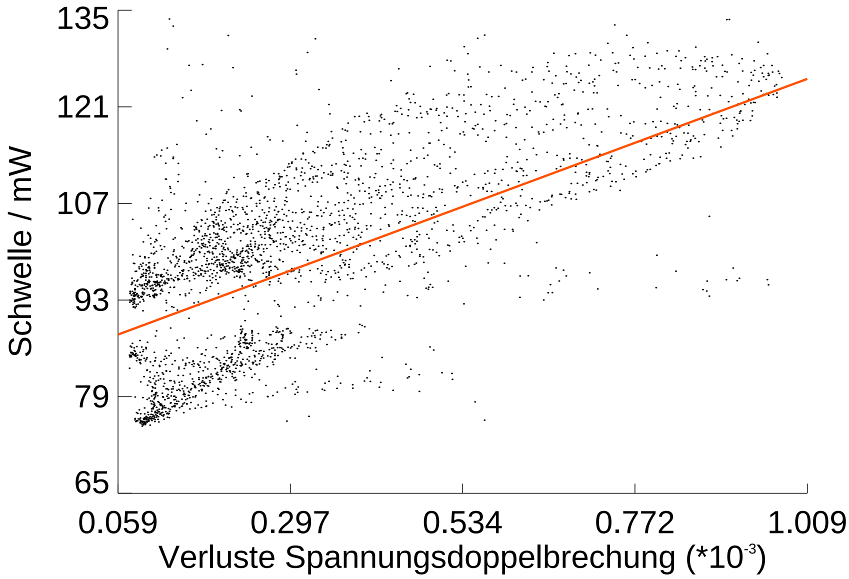

Abbildung 6.6: Korrelation der Parameter Schwelle und spannungsinduzierte Verluste durch Doppelbrechung, gemessen in einem Ausschnitt der Probe AOA06001.

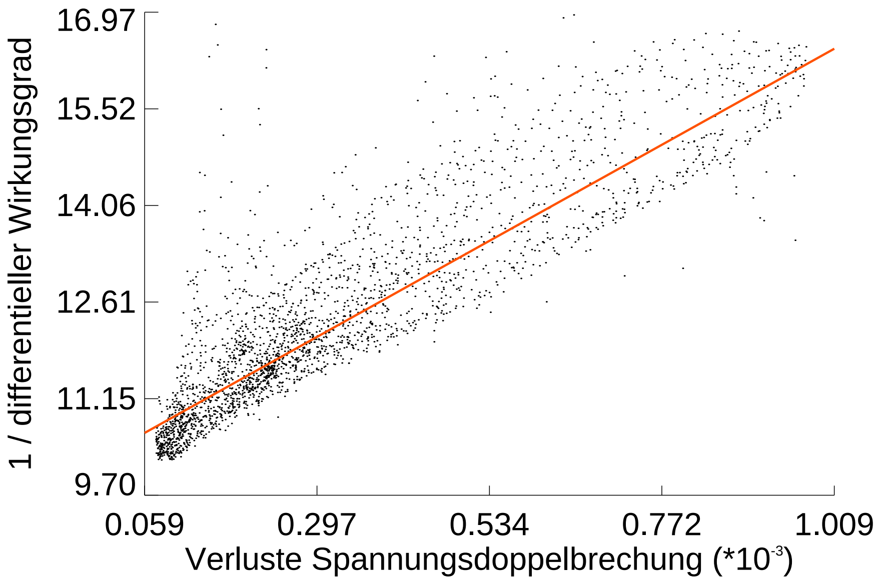

Abbildung 6.7: Korrelation der Parameter differentieller Wirkungsgrad und spannungsinduzierte Verluste durch Doppelbrechung, gemessen in einem Ausschnitt der Probe AOA06001.

6.3 Einfluß von optischen Homogenitätsänderungen auf die Laserparameter

Im folgenden wird der in Gleichung 3.23 abgeleitete lineare Zusammenhang zwischen der Schwelle und dem Betrag des Brechungsindexgradienten dr ebenso wie der in Gleichung 3.22 dargestellte Zusammenhang zwischen $1/\eta$ und dr untersucht.

Wie in Abschnitt 3.4.3 dargestellt, ist der Einfluß des Brechungsindexgradienten im Vergleich mit anderen Störfaktoren bei einer großen Auskoppelung am größten. Daher vereinfacht eine große Auskoppelung den Nachweis der Korrelation.

Vor der Untersuchung der Korrelationen muß der Einfluß des Resonators auf die gemessenen Brechungsindexgradienten betrachtet werden. Prinzipiell kann jede Strahlablenkung im Resonator durch einen Justiervorgang eines Resonatorspiegels ausgeglichen werden kann.

Im Experiment geschieht dies einmalig direkt nach dem Einbau der Probe. Durch das kalibrierte Koordinatensystem läßt sich die Probenposition, für die der Resonator für maximale Ausgangsleistung justiert wurde, sehr genau bestimmen. Diese Position wird im folgenden durch die Koordinaten (x_R, y_R) beschrieben.

Durch die Justierung des Resonators wird die Überlappeffizienz η_u an dieser Position maximal. Dies beschreibt man im Modell damit, daß die effektive Strahlablenkung $\vec{A}'$ für die Koordinaten (x_R, y_R) gleich Null ist. Da die Strahlablenkung $\vec{A}$ identisch dem Brechungsindexgradienten $\vec{dr}$ gesetzt wurde, muß also auch der effektive Brechungsindexgradient $\vec{dr}'$ an dieser Stelle gleich Null sein:

$$\vec{dr}'(x_R, y_R) = 0 \tag{6.1}$$

Aus der Bedingung 6.1 ergibt sich die einfache Berechnungsvorschrift für den effektiven Brechungsindexgradienten eines für die Probenkoordinate (x_R, y_R) optimal justierten Resonators:

$$\vec{dr}'(x, y) = \vec{dr}(x, y) - \vec{dr}(x_R, y_R) \tag{6.2}$$

Der relevante Parameter zur Untersuchung der Korrelation ist der Betrag der vektoriellen Größe $\vec{dr}'$, bezeichnet mit dr'.

In den Abbildungen 6.8, 6.9 und 6.10 sind zunächst die Meßgrößen effektiver Betrag des Brechungsindexgradienten, differentieller Wirkungsgrad und Schwellenanregungsleistung dargestellt. Man erkennt hier bereits qualitativ eine gute Übereinstimmung der Laserparameter mit dem Brechungsindex. Besonders gut ist diese Übereinstimmung an dem Wachstumskern und an den Facetten am oberen und rechten Bildrand zu erkennen, die in allen Abbildungen wiedergegeben werden. Der Kern und die Facetten werden durch einen dünnen Bereich, in dem die höchsten Brechungsindexgradienten auftreten, von dem Rest der Probe abgegrenzt. In dieser dünnen „Haut“ beobachtet man den kleinsten differentiellen Wirkungsgrad und die größte Schwelle.

Die Korrelation zwischen den Parametern wird nach dem im vorherigen Abschnitt 6.2 beschrieben Verfahren durchgeführt. Abbildung 6.11 und 6.12 zeigen die Abhängigkeit zwischen dem effektiven Brechungsindexgradient dr' und den Laserparametern S und $1/\eta$ für Probe AOA007002.

Parameter	$1/\eta$ und dr'	S und dr'
A	3,19521	114,52199
$B \cdot 10^5$	0,03006	1,12538
$\Delta A \cdot 10^{-2}$	0,02077	2,26135
$\Delta B \cdot 10^3$	0,00524	0,55711
Regressionskoeffizient r	0,64128	0,65293
Anzahl Datenpunkte	264765	264765

Tabelle 6.2: Ergebnisse der linearen Regression zwischen den Parametern $1/\eta$ und dr' sowie S und dr' gemessen an der Probe AOA07002. Bedeutung der Parameter: A, B und ΔA, ΔB bezeichnen die Fitparameter der linearen Regression $Y = A + B * X$ bzw. deren Fehler.

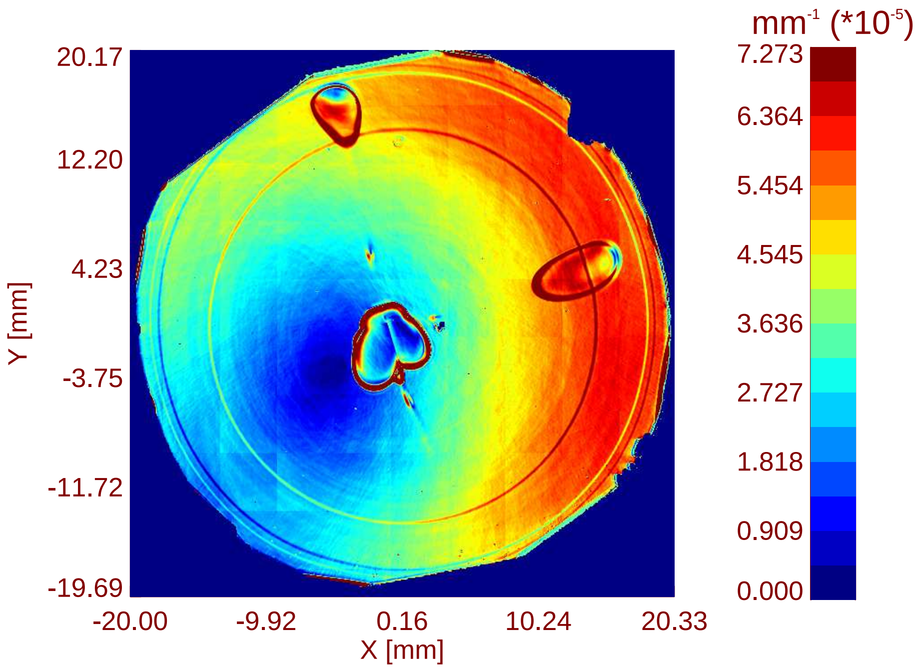

Abbildung 6.8: Betrag des effektiven Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA07002.

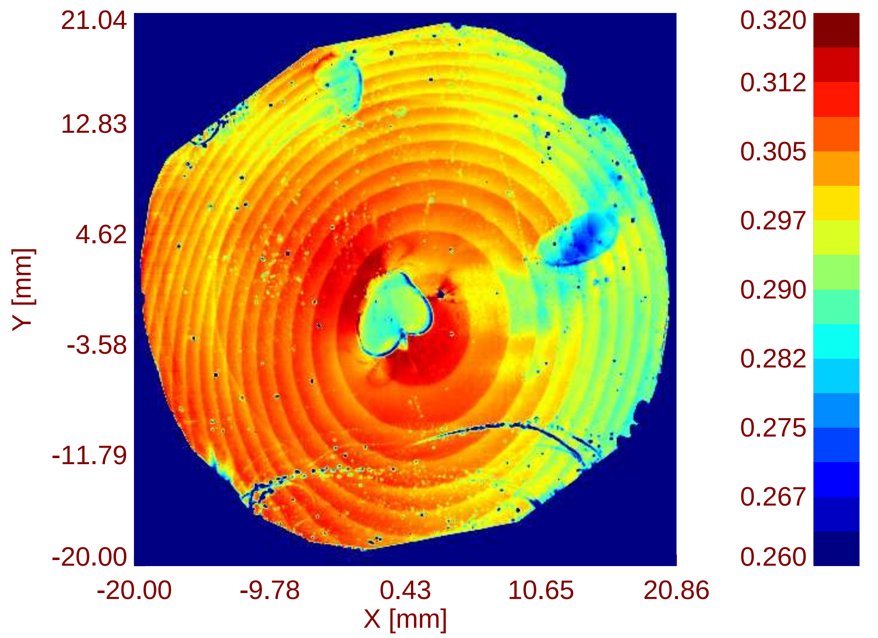

Abbildung 6.9: Differentieller Wirkungsgrad bei einer Auskoppelung von 10%, gemessen an der Probe AOA07002.

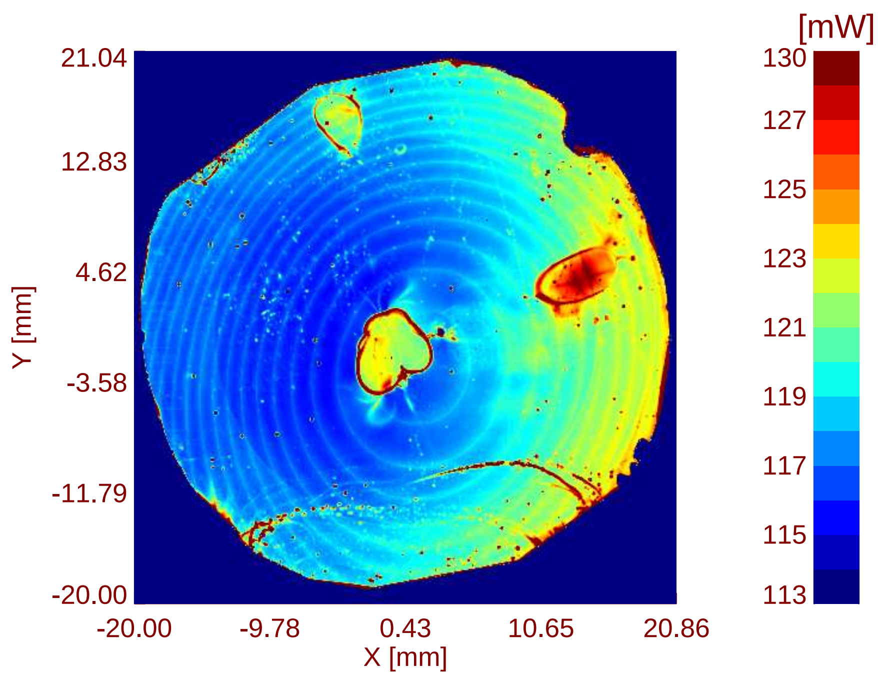

Abbildung 6.10: Schwellenanregungsleistung bei einer Auskoppelung von 10%, gemessen an der Probe AOA07002.

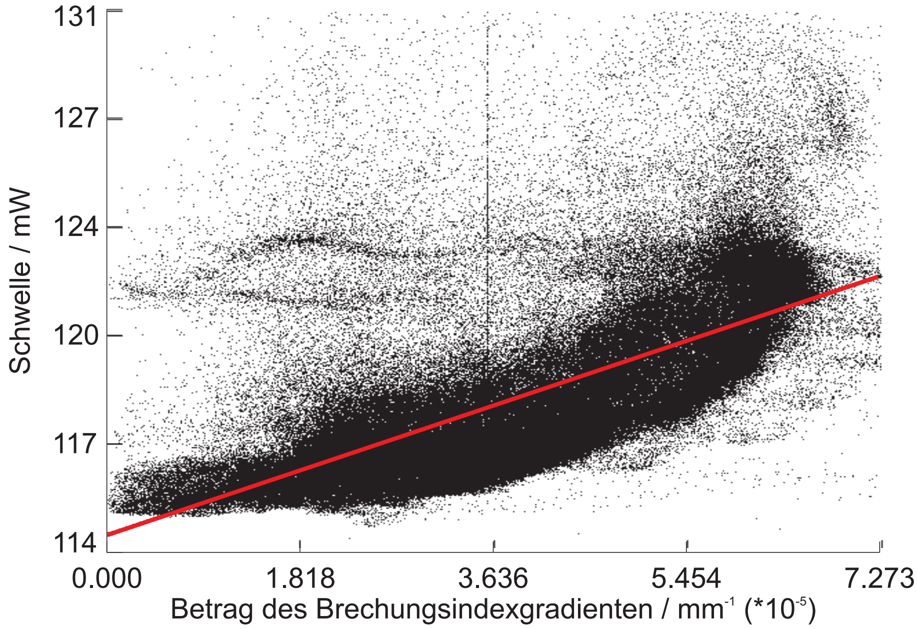

Abbildung 6.11: Korrelation der Parameter Schwelle und Betrag des effektiven Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA07002.

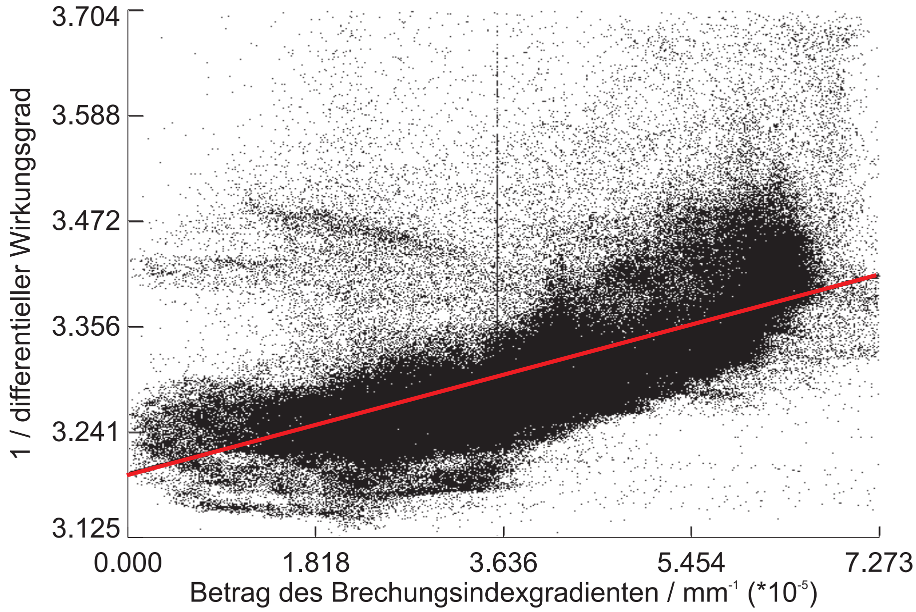

Abbildung 6.12: Korrelation der Parameter 1/differentieller Wirkungsgrad und Betrag des effektiven Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA07002.

Die Ergebnisse der linearen Regression sind in Tabelle 6.2 zusammengefaßt. Die Regressionskoeffizienten betragen 0,64 bzw. 0,65 bei einer untersuchten Anzahl von 265.000 Datenpunkten. Damit ist auch hier die Abhängigkeit der Parameter voneinander bestätigt. Bei dieser großen Datenmenge wäre auch ein Regressionskoeffizient größer 0,2 noch als Bestätigung des vermuteten Zusammenhangs der Parameter anzusehen [Bra75, Kre91].

Diese Ergebnisse zeigen auch, daß die in Gleichung 3.21 gemachte Näherung $\eta_u \propto 1/A$ für die vorliegenden Daten hinreichend genau war. Bedingt durch die Interferenzeffekte der Anregungsstrahlung verursachte starke Streuung der Meßwerte, die in Abbildung 6.9 und 6.10 zu sehen sind, ist mit den vorliegenden Daten keine genauere Auswertung des Zusammenhangs zwischen η_u und A möglich. Terme höherer Ordnung könnten nur mit Messungen von Proben mit einer AR-Beschichtung für sowohl die Anregungs- als auch die Laserstrahlung nachgewiesen werden.

Dies ist jedoch nicht zwingend notwendig, da die hier vorliegenden Messungen bereits den Einfluß der Brechungsindexgradienten auf die Laserparameter hinreichend deutlich zeigen. Der genaue Zusammenhang kann nun auch analytisch abgeleitet werden.

Die Abhängigkeit der Korrelation der Parameter von dem Auskoppelgrad T wird in einer zweiten Meßreihe untersucht (vergl. Abschnitt 3.4.3). Das Verfahren wird für insgesamt vier verschiedene Transmissionen des Auskoppelspiegels wiederholt. Dabei wird analog zur Vorgehensweise beim Erstellen eines Findlay-Clay Plots nichts am Resonator verändert, sondern

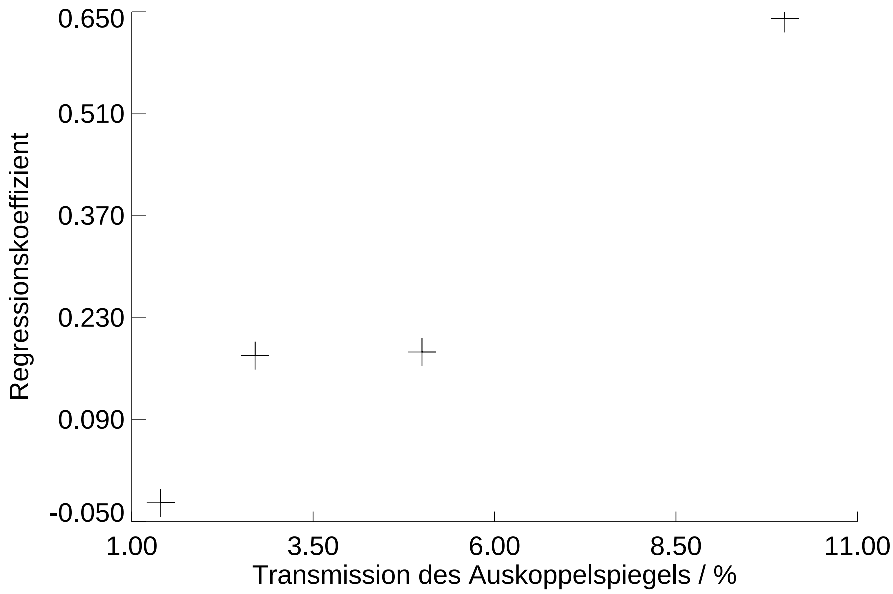

Abbildung 6.13: Abhängigkeit des Regressionskoeffizienten zwischen den Parametern $1/\eta$ und dr' von der Transmission T des Auskoppelspiegels, gemessen an der Probe AOA07002.

lediglich der Auskoppelspiegel gewechselt.

Abbildung 6.13 zeigt die Abhängigkeit des Regressionskoeffizienten r zwischen den Parametern $1/\eta$ und dr' von der Transmission T des Auskoppelspiegels. Man erkennt deutlich, wie in Gleichungen 3.22 und 3.23 beschrieben, eine Verbesserung der Korrelation mit zunehmendem T, da der Einfluß der resonatorinternen Verluste δ mit großem T immer geringer wird.

Abschließend soll noch illustriert werden, wie entscheidend die Berücksichtigung der Resonatorjustierung in die Korrelation eingeht. Hierzu wurde die Korrektur nach Gleichung 6.2 nicht durchgeführt, sondern die Laserparameter dem unkorrigierten Betrag des Brechungsindexgradienten gegenübergestellt. Die Ergebnisse zeigen die Abbildungen 6.14 und 6.15. Wie man sieht, ist keine Korrelation zwischen den Parametern nachweisbar. Der Betrag des Regressionskoeffizienten ist deutlich kleiner als zuvor. Er beträgt lediglich 0,37 bzw. 0,12. Allerdings ist die Steigung der Regressionsgerade in beiden Fällen negativ, daher kann keine positive Korrelation zwischen den Laserparametern und dem unkorrigierten Betrag des Brechungsindexgradienten nachgewiesen werden.

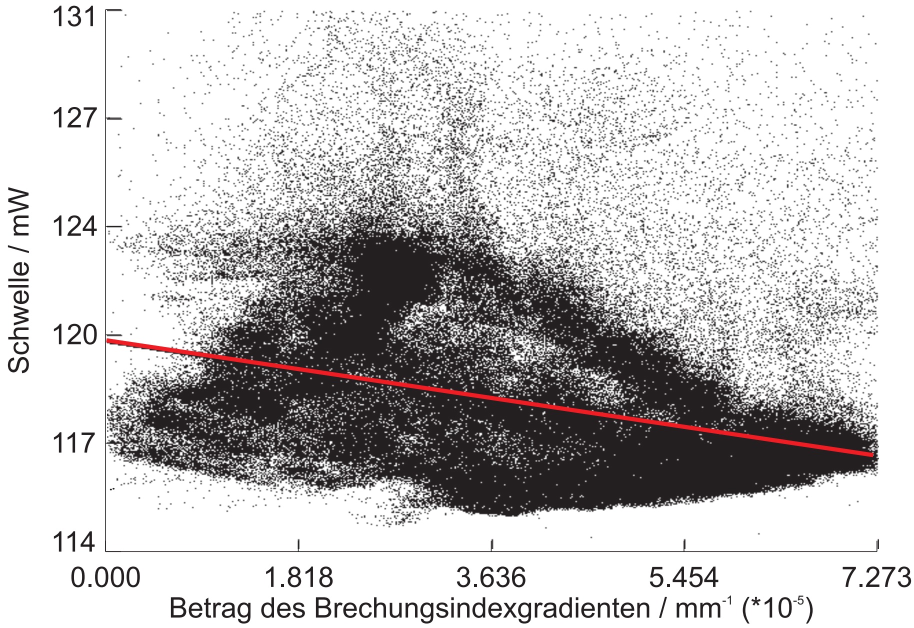

Abbildung 6.14: Korrelation der Parameter Schwelle und Betrag des Brechungsindexgradienten (ohne Berücksichtigung der Resonatorjustierung), gemessen an der Probe AOA07002.

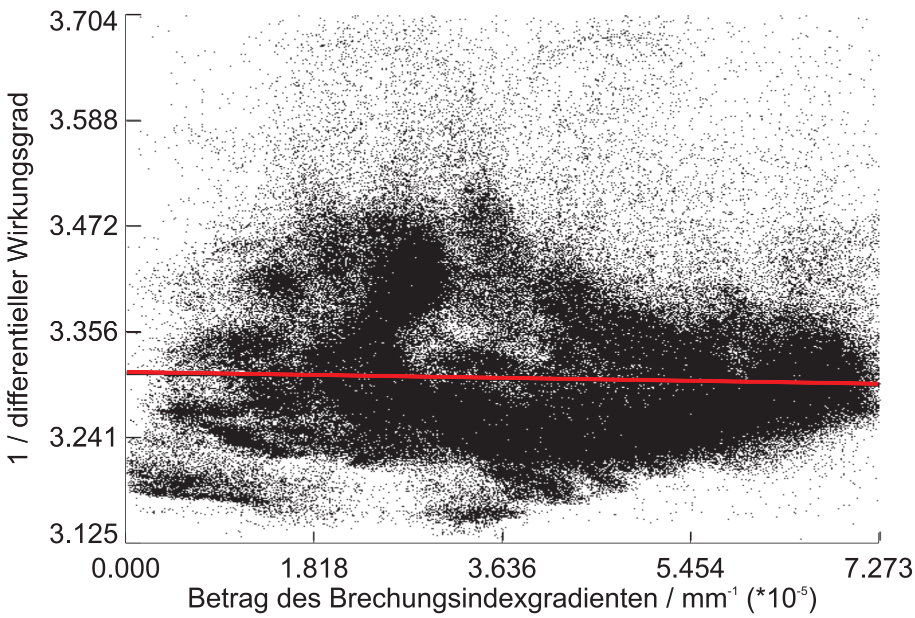

Abbildung 6.15: Korrelation der Parameter 1/differentieller Wirkungsgrad und Betrag des Brechungsindexgradienten (ohne Berücksichtigung der Resonatorjustierung), gemessen an der Probe AOA07002.

6.4 Einfluß der Dotierungskonzentration auf den Brechungsindex

Wie in der Literatur [Dem95, Vas71] näher erläutert, besteht für homogene Materialien eine Proportionalität zwischen der Dotierungskonzentration und dem Brechungsindex. Dieser Zusammenhang kann hier nicht direkt gezeigt werden, da die Schlierenmethode nicht den Brechungsindex sondern dessen Gradienten als Meßparameter liefert. Eine numerische Integration der Meßwerte liefert auf Grund der Randwerte kein verwertbares Ergebnis.

Weiterhin beeinflussen Oberflächeneffekte die Messung der Brechungsindexgradienten. Das Schlierenverfahren unterscheidet prinzipbedingt nicht zwischen einer Strahlablenkung durch Inhomogenitäten oder durch eine gekrümmte Probenoberfläche. Es wird also immer die Summe aus der Homogenitätsänderung und der Oberflächenkrümmung bestimmt. Die Konzentrationsmessung (gewonnen aus der Messung der Fluoreszenzlebensdauer oder aus der Absorptionsmessung) ist dagegen unabhängig von der Oberflächenform. Daher wäre eine Übereinstimmung zwischen diesen Messungen auch nur bei absolut planparallelen Oberflächen zu erwarten, was bei den betrachteten Proben nicht gegeben war, da dies bei großen Proben einen großen Aufwand bei der Politur bedeutet hätte.

Auf Grund dieser Inkompatibilitäten wird der Zusammenhang zwischen der Dotierungskonzentration und dem Brechungsindex hier lediglich mit Abbildungen 6.16 und 6.17 qualitativ gezeigt. Man erkennt in beiden Abbildungen die gleichen Strukturen wieder. An den besonders auffälligen Strukturen kann man auch trotz der oben geschilderten Probleme den Zusammenhang recht gut nachweisen:

In Abbildung 6.17 erkennt man im Wachstumskern die höchste Nd-Konzentration, die sehr scharf vom Rest der Probe abgegrenzt ist. Korrespondierend dazu findet man im Bild 6.16 genau in dieser Grenzschicht zwischen Kern und dem Rest der Probe die höchsten Werte des Brechungsindexgradienten, was auch mathematisch korrekt ist. Der Bereich der größten Gradienten umschließt sozusagen den Kern wie eine dünne „Haut“. Dies gilt natürlich analog für die beiden Facetten im äußeren Bereich der Probe.

Diese qualitative Übereinstimmung zeigt, daß es vielversprechend ist, diesen Zusammenhang näher zu untersuchen. Allerdings sollte man zweckmäßigerweise die Brechungsindexänderungen der Probe direkt über ein interferometrisches Verfahren bestimmen, da hierbei nicht der Umweg über die numerische Integration bemüht werden muß und man auch leichter zwischen Effekten der Probenoberflächen und echten Änderungen des Brechungsindex unterscheiden kann.

Dieser Ansatz wurde allerdings im Rahmen dieser Arbeit nicht verfolgt, da er hinsichtlich der bereits beschriebenen Korrelation mit den Laserparametern (Kapitel 6.1, 6.2 und 6.3) keine neuen Informationen mehr liefert. Trotzdem wäre dieses Verfahren interessant, da man bei erfolgreich gezeigter Korrelation zwischen Konzentration und dem Brechungsindex auf ein Meßverfahren verzichten könnte, ohne Information zu verlieren.

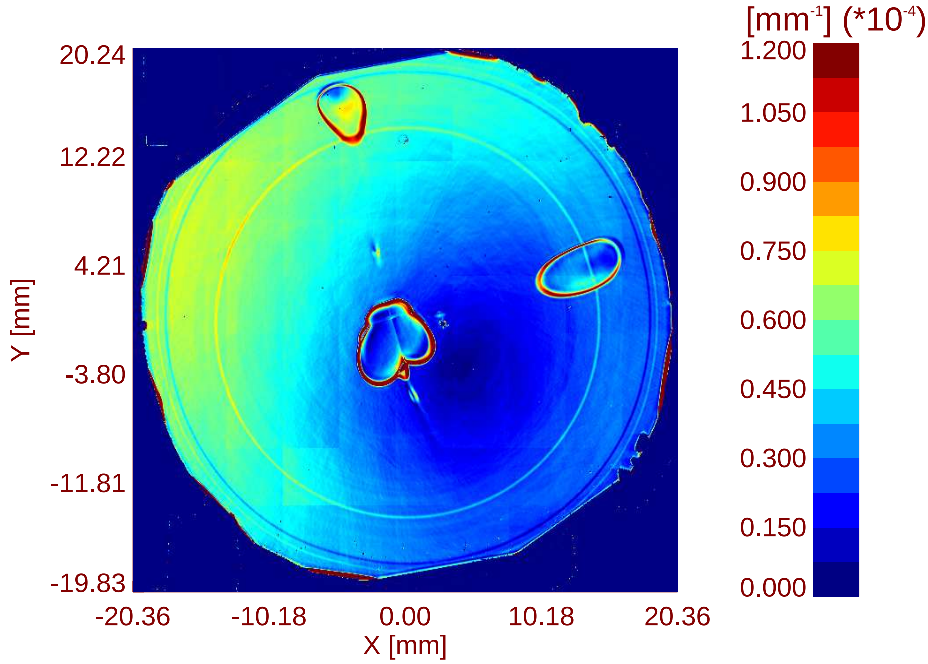

Abbildung 6.16: Betrag des Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA07002.

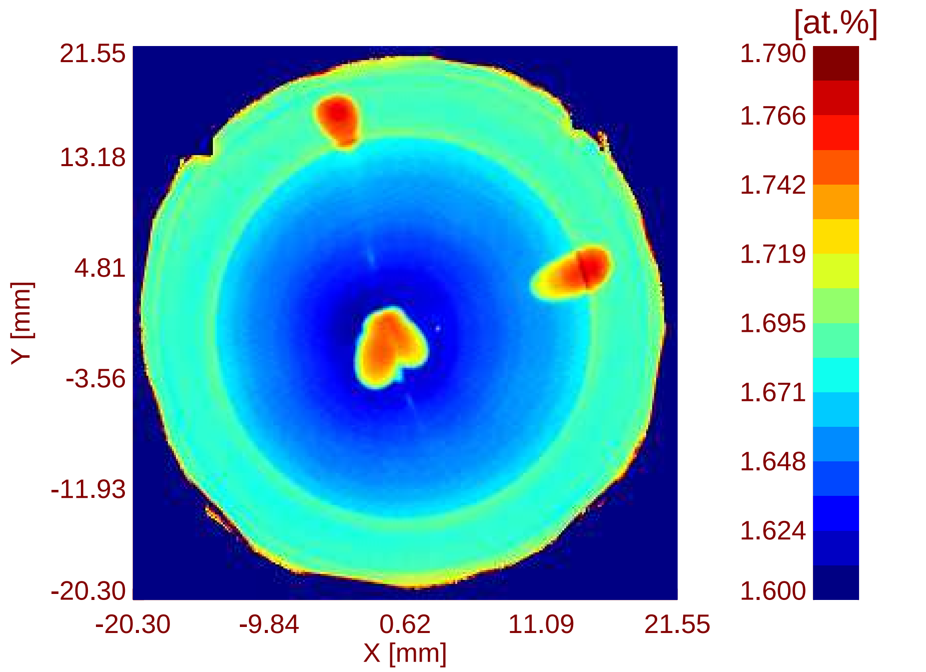

Abbildung 6.17: Konzentration von Nd^{3+}, gemessen an der Probe AOA07002 mit der Methode der Fluoreszenzlebensdauerbestimmung.

Kapitel 7

Qualifizierung von Nd:YAG Proben mit einer Dotierungskonzentration von 2 at.%

Auf dem Gebiet der mit Diodenlasern angeregten Festkörperlaser ist Nd:YAG mit einer Dotierungskonzentration von bis zu 1,3 at.% ein sehr verbreitetes Material, das – wie in Kapitel 8 beschrieben – in sehr guter optischer Qualität hergestellt werden kann.

Insbesondere die endflächenangeregte Resonatorkonfiguration verspricht hohe Effizienzen in Kombination mit einer guten Strahlqualität, vorausgesetzt, daß die Anregungsstrahlung des Diodenlasers mit dem Modenvolumen des Lasers überlagert werden kann. Für einen effizienten Laserbetrieb wird weiterhin ein kleiner Fokusdurchmesser benötigt. Da jedoch Hochleistungsdiodenlaser hohe M^2 Werte aufweisen ($M^2 \approx 100$), folgt daraus eine kurze Rayleighlänge ($z_0 = 1.5\,\mathrm{mm}$ für $\omega_0 = 200\,\mu\mathrm{m}$).

Um Effizienzverluste durch einen kleinen Überlappfaktor zu vermeiden, sollte die Absorptionslänge für die Anregungsstrahlung ungefähr den gleichen Wert haben. Daher ist 1 at.% dotiertes Nd:YAG nicht die beste Wahl als laseraktives Material in einem mit Diodenlasern angeregten Festkörperlaser in endflächenangeregter Konfiguration.

Zunächst wurde versucht, die Nd-Konzentration in Nd:YAG zu erhöhen. Allerdings war es bis zum Jahr 2000 auf Grund der unterschiedlichen Atomradien der Nd- und Y-Ionen schwierig, Nd:YAG mit einer wesentlich größeren Nd-Konzentration als 1,3 at.% herzustellen.

Lediglich die Gruppe von Gavrilovic et al. [Gav94] berichtete 1994 über Nd:YAG mit einer Nd-Konzentration von 4,2 at.%. Allerdings mußte bei der Kristallzucht auf ein Flußmittel zurückgegriffen werden, was zu einer wesentlich geringeren Ausbeute im Vergleich zur Czochralski-Methode führte.

Um die komplizierte Zucht von hochdotiertem Nd:YAG zu umgehen, wurden andere Wirtsmaterialien für das Neodym-Ion entwickelt, die ebenfalls kürzere Absorptionslängen aufweisen. Ein Beispiel dafür ist Nd:YVO_4. Mit diesem Material erreicht man Absorptionslängen von 1,1 mm bei Nd-Konzentrationen von 1 at.%. Damit wurde Nd:YVO_4 ein erfolgreicher Kandidat in kompakten, diodenlaserangeregten Lasersystemen [Bro97, Feu95, Nig99].

Ein schwerwiegender Nachteil von Nd:YVO_4 ist die niedrige Bruchgrenze [Che94] von ca. 50 MPa. Im Vergleich zu Nd:YAG mit einer Bruchgrenze [Bra94] von 220 MPa ist dieser Wert um einen Faktor 4 niedriger. Dies begrenzt die maximale Pump- und Ausgangsleistung im Vergleich zu Nd:YAG.

Das ideale Material für endflächenangeregte Lasersysteme sollte beide Kriterien aufweisen, eine kurze Absorptionslänge und eine hohe Bruchgrenze. Diese Bedingungen erfüllt Nd:YAG mit einer neuen Dotierungskonzentration von 2 at.%. Es wurde im Jahr 2000 erstmals erfolgreich nach der Czochralski-Zuchtmethode am F.E.E. in Idar Oberstein hergestellt. Dieses Material hat eine Absorptionslänge von 1,4 mm für die Anregungsstrahlung, was dem Wert von 1 at.% dotiertem Nd:YVO_4 fast entspricht.

Um das Potential für Hochleistungs-Lasersysteme basierend auf 2 at.% dotiertem Nd:YAG und Diodenlaseranregung zu untersuchen, wurde eine vollständige Charakterisierung dieses Materials mit den in dieser Arbeit entwickelten Meßmethoden durchgeführt. Weiterhin wurden die Ergebnisse der optischen Charakterisierung durch Laserexperimente bei hohen Anregungsleistungen überprüft. Die Qualität des neuen Materials und dessen Eignung in einem endflächenangeregtem Laser wird mit 1 at.% Nd:YAG und 0,7 at.% Nd:YVO_4 Kristallen verglichen.

Insgesamt wurden drei Proben des 2 at.% dotierten Nd:YAG untersucht. Für die optische Charakterisierung und die Laserexperimente bei niedrigen Leistungen wurden zwei Scheiben des gleichen Boules mit einem Durchmesser von 20 mm und einer Dicke von 1 mm verwendet. Eine dritte Probe, deren Abmessungen von 3 x 6 mm^2 besser zur aktiven Kühlung geeignet waren, wurde für das Laserexperiment bei hohen Anregungsleistungen und zur Messung der Verluste bei der Emissionswellenlänge von 1064 nm benutzt. Die Abmessungen dieser Proben und der oben erwähnten Vergleichskristalle aus 1 at.% dotiertem Nd:YAG (XOA03001) und 0,7 at.% dotiertem Nd:YVO_4 (QOB03001) können Tabelle B.1 entnommen werden.

7.1 Optische Homogenität

Die Messungen in Abbildung 7.1 und 7.2 zeigen den offsetkorrigierten Betrag des Brechungsindexgradienten dr_{off} für die Proben AOA13001 und AOA13002. Es handelt sich um die beiden Scheiben aus dem gleichen Boule. Die erste Scheibe (Abbildung 7.1) wurde aus dem Bereich des Bouleanfangs, in der Nähe des Keimlings, herausgeschnitten, die zweite Scheibe stammt vom Boule-Ende. Der Abstand im Boule zwischen beiden Scheiben betrug vor dem Auseinanderschneiden 32 mm. Damit ist überprüfbar, ob sich die Kristallparameter im Verlauf des Wachstumsprozesses verändert haben.

Der Betrag des Brechungsindexgradienten der ersten Probe (Abbildung 7.1) weist eine konzentrische Wachstumsstörung mit einer Amplitude von $2 * 10^{-5}\,mm^{-1}$ im Betrag des Brechungsindexgradienten auf. Diese sogenannten Wachstumsringe treten im Anfangsbereich des Boules verstärkt auf und werden durch Störungen in der Kristallzuchtapparatur verursacht, die in dieser frühen Phase des Kristallwachstums noch nicht abgeklungen sind.

Dies bestätigt die Messung der zweiten Scheibe vom Ende des Boules (Abbildung 7.2), in der keine Wachstumsringe mehr zu erkennen sind.

Trotzdem ist die optische Homogenität bereits am Bouleanfang gut genug, um die Probe in einem Laserresonator zu benutzen. Dies wird im Detail untersucht, indem man den Mittelwert und die Standardabweichung des offsetkorrigierten Betrags des Brechungsindexgradienten in kleinen 2x2 mm^2 großen Gebieten bildet. Damit fällt der Einfluß einer gekrümmten Oberfläche weg, da der Offset für jedes betrachtete Gebiet individuell korrigiert werden kann. Die Werte sind für verschiedene Bereiche beider Proben in Tabelle 7.1 zusammengefaßt.

Man erkennt deutlich, daß die größten Werte erwartungsgemäß in der Kernregion auftreten. Hier ist sowohl der offsetkorrigierte Betrag des Brechungsindexgradienten mit $dr_{of} = 1,4 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{mm}^{-1}$ als auch die relative Standardabweichung mit 113% sehr hoch, was auf starke Änderungen in der Homogenität hinweist. Das zweitschlechteste Gebiet ist der Bereich unterhalb des Kerns dicht gefolgt von dem Bereich der Wachstumsringe. Die kleinsten Standardabweichungen erhält man ebenfalls wie erwartet in einem Gebiet, das keine auffälligen Störungen beinhaltet. Hier beträgt $dr_{of} = 1,6 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{mm}^{-1}$ und die relative Standardabweichung 23%.

Typische Werte für 1 at.% dotiertes Nd:YAG guter Qualität sind $1 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{mm}^{-1}$ im Kern und $5 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{mm}^{-1}$ außerhalb des Kerns. Für die relative Standardabweichung erhält man Werte von ca. 100% im Kern und 30% außerhalb. Diese Werte bestätigen, daß die optische Homogenität von 2 at.% dotiertem Nd:YAG vergleichbar zu der von Standard 1 at.% dotiertem Nd:YAG ist. Lediglich der Betrag des Brechungsindexgradienten dr_{of} unterscheidet sich um einen Faktor zwei bis drei, während die relative Standardabweichung gleich ist.

	x_{min}	y_{min}	$dr_{of} \cdot 10^{-4}$	ϵ_r / %	Anzahl
Probe AOA13001:					
Kernmitte	-16,05	-1,13	1,369	112,7	1361
direkt unterhalb des Kerns	-16,05	-3,89	0,101	39,15	1369
Ringe links Mitte	-20,75	-1,13	0,205	30,71	1369
homogener Bereich	-23,02	-1,13	0,155	23,42	1369
Probe AOA13002:					
Kernmitte	-17,76	-1,28	2,177	69,40	1369
direkt unterhalb des Kerns	-17,76	-4,03	0,286	39,35	1369
Ringe rechts oben	-15,39	+1,31	0,244	30,34	1367
homogener Bereich	-22,57	+2,83	0,412	26,12	1369

Tabelle 7.1: Ergebnisse der Messung der optischen Homogenität der Proben AOA13001 und AOA13002 für verschiedene 2 x 2 mm^2 große Ausschnitte. Bedeutung der Abkürzungen: x_{min}, y_{min} = Koordinaten der linken, unteren Ecke des betrachteten 2x2mm^2 großen Ausschnittes (s. Abbildung 7.1 und 7.2 zur Zuordnung der Koordinaten); dr_{of} = offset-korrigierter Betrag des Brechungsindexgradienten, ϵ_r = relative Standardabweichung von dr_{of}; Anzahl = Anzahl gültiger Meßwerte im betrachteten Ausschnitt.

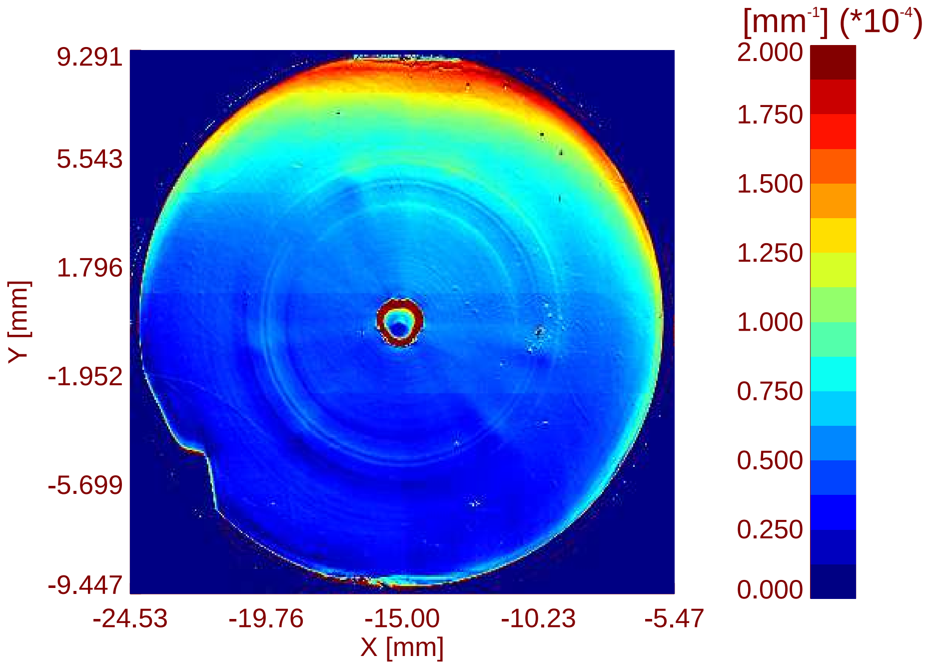

Abbildung 7.1: Offsetkorrigierter Betrag des Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA13001 (aus dem Bouleanfang).

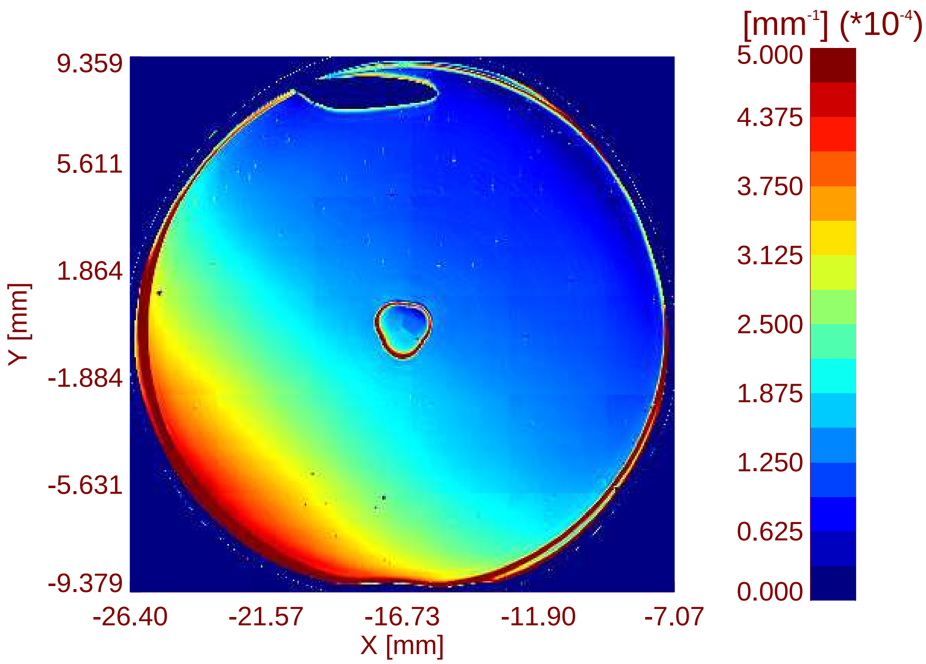

Abbildung 7.2: Offsetkorrigierter Betrag des Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA13002 (vom Bouleende).

7.2 Konzentrationsbestimmung des Nd-Ions

Die Nd-Konzentration und dessen räumliche Verteilung in der Probe wurde durch Messung der Fluoreszenzlebensdauer des oberen Laserniveaus bestimmt. Das Ergebnis der Messung ist in Abbildung 7.3 dargestellt.

Wie bei jedem Nd:YAG Kristall mit durchgebogener Grenzschicht ist in der Mitte der Kern mit deutlich höherer Nd-Konzentration zu sehen. Mit Ausnahme des Kerns sind keine weiteren größeren Konzentrationsschwankungen auszumachen. Man erkennt wieder den Bereich der konzentrischen Wachstumsstörungen, der bereits in der Messung der Brechungsindexgradienten zu sehen war. Dies ist ein weiteres Beispiel für den in Abschnitt 6.4 angedeuteten Zusammenhang zwischen Nd-Konzentration und Brechungsindex.

Läßt man die Kernregion bei der Auswertung unberücksichtigt, so erhält man als Mittelwert der Nd-Konzentration des restlichen Kristalls einen Wert von 2,0 at.% für die Probe vom Bouleanfang und von 2,1 at.% für die Probe vom Bouleende. Dies bedeutet, daß man hinsichtlich der Konzentration sehr homogene Kristalle aus diesem Boule erhalten wird.

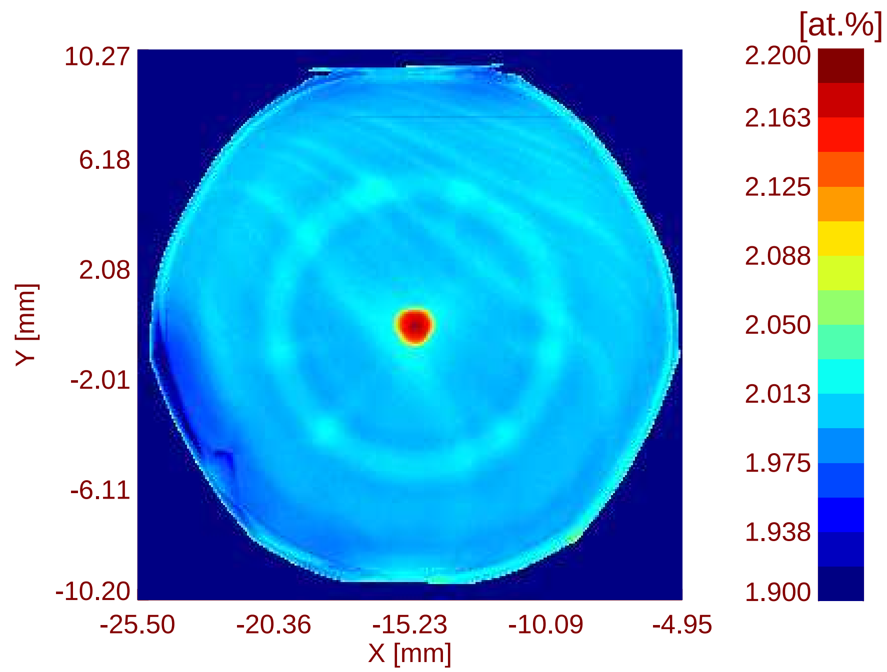

Abbildung 7.3: Nd-Konzentration der Probe AOA13001, bestimmt durch Messung der Fluoreszenzlebensdauer des oberen Laserniveaus.

7.3 Spektrale Abhängigkeit der Absorption

Die Kurvenform der spektralen Abhängigkeit der Absorption sollte keine Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration zeigen. Lediglich die Peakhöhe ändert sich entsprechend der Gleichungen 4.6 und 4.7 mit der Konzentration n_{at}. Auf Grund von Hinweisen eines Kristallherstellers aus China [Cas00], der eine Verbreiterung der Absorption vor allem in dem für die Anregung mit Diodenlasern interessanten Spektralbereich um 808 nm beobachtet hat, wurde dies genauer überprüft.

Dazu wurde das Spektrum einer 1 at.% dotierten Nd:YAG Probe (Nr. AOA09003) zum Vergleich herangezogen. Die Apparateauflösung des Spektrometers betrug bei beiden Messungen eine Wellenzahl. Die gemessenen Spektren wurden zum Vergleich auf gleiche Peakhöhen normiert.

Das Ergebnis ist in Abbildung 7.4 dargestellt: Es konnte keine spektrale Verbreiterung der Absorption in dem untersuchten Spektralbereich festgestellt werden.

Da das Material aus China nicht zu einem Vergleichstest geliefert werden konnte, kann man nur vermuten, daß die dort beobachtete Verbreiterung durch eine erhöhte Verunreinigung gegenüber dem 1 at.% dotierten Material verursacht wird.

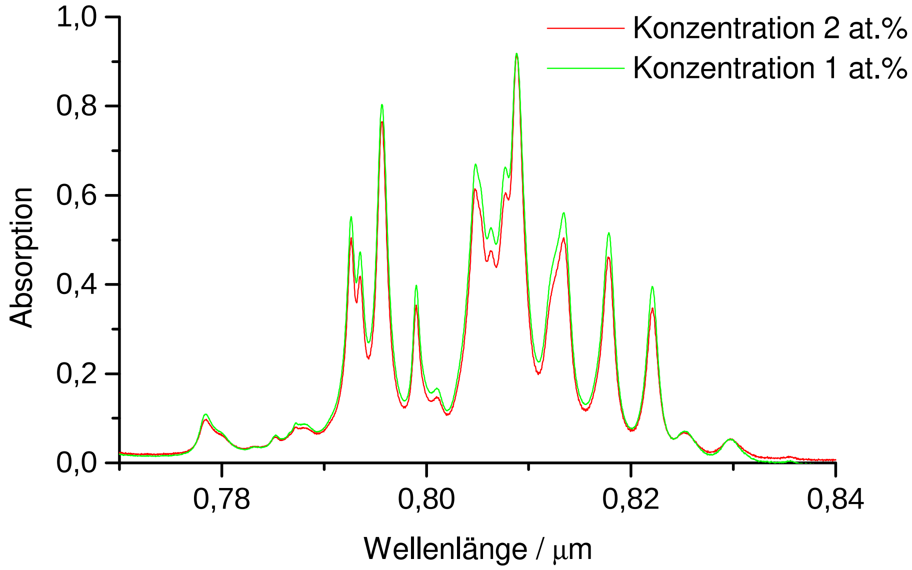

Abbildung 7.4: Spektralen Abhängigkeit der Absorption im Bereich von 770 bis 840 nm von der Probe AOA13001 (Konzentration: 2 at.%) und einer 1 at.% dotierten Nd:YAG Probe (AOA09003) im direkten Vergleich. Die Spektren wurden auf gleiche Peakhöhe normiert.

7.4 Spannungsinduzierte Doppelbrechung

Abbildung 7.6 zeigt die Richtung der Hauptspannungsachsen und Abbildung 7.5 die Differenz der Brechungsindizes für ordentlichen und außerordentlichen Strahl.

Man erkennt in Abbildung 7.6 die 90° Symmetrie der Richtung der Hauptspannungsachsen in Bezug auf das kartesische Koordinatensystem. Dies entspricht einer rotationssymmetrischen Verteilung der Hauptspannungsrichtung. Die dreizählige Symmetrie in der Differenz der Brechungsindizes (Abbildung 7.5) hat ihren Ursprung in der <111> Zuchtrichtung des Kristalls.

Aus einer quantitativen Analyse erhält man $2,2 \cdot 10^{-5}$ als Maximalwert der Differenz der Brechungsindizes in der Kernregion. Außerhalb des Kerns ist die Differenz der Brechungsindizes sogar eine Größenordnung kleiner ($1,4 \cdot 10^{-6}$).

Die Werte, gemessen an einem 1 at.% dotierten Nd:YAG Kristall guter Qualität, liegen im gleichen Bereich: Man findet $2 \cdot 10^{-5}$ in der Kernregion und $5 \cdot 10^{-6}$ außerhalb des Kerns.

Diese Werte bestätigen, daß die spannungsinduzierte Doppelbrechung der 2 at.% dotierten Kristalle vergleichbar mit den Werten der 1 at.% dotierten Kristalle ist. Es soll an dieser Stelle auch schon auf Kapitel 8.3 verwiesen werden, wo gezeigt wird, daß die hohen Werte der Differenz der Brechungsindizes nach dem Ausbohren von Stäben nicht mehr zu beobachten sind. Das bedeutet, daß man bei Proben, die in einem Laser eingesetzt werden, von kleineren Werten als $1,4 \cdot 10^{-6}$ ausgehen kann.

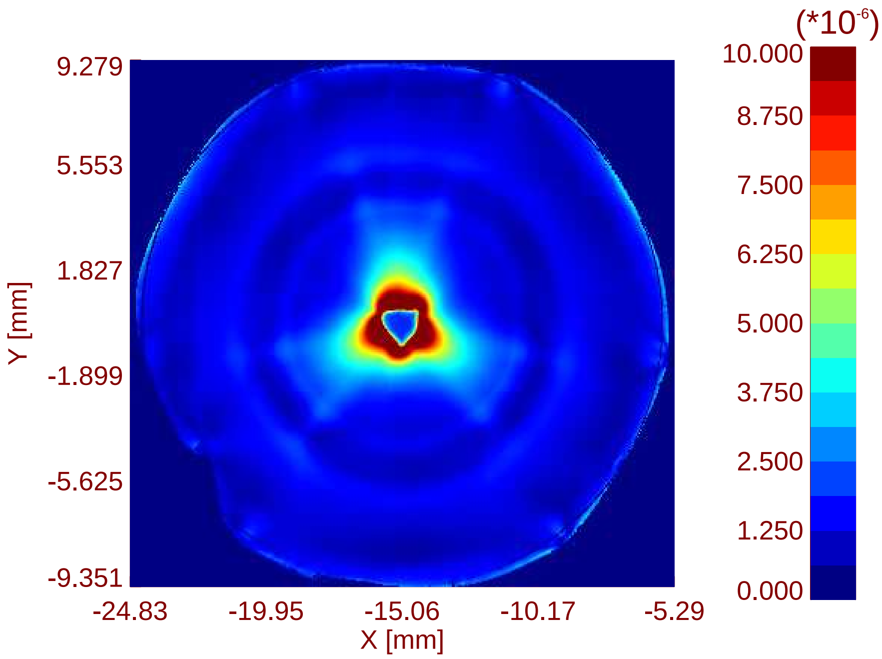

Abbildung 7.5: Differenz der Brechungsindizes, verursacht durch Spannungen ausgehend vom Kern der Probe AOA13001.

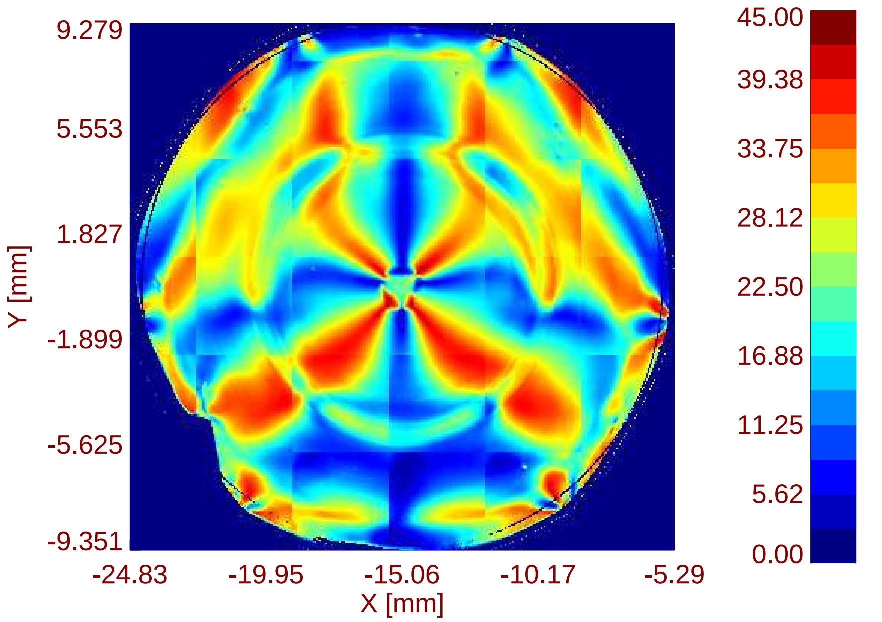

Abbildung 7.6: Richtung der Hauptspannungsachsen (°), verursacht durch Spannungen ausgehend vom Kern der Probe AOA13001.

7.5 Absorptionskoeffizient für die Emissionswellenlänge

Die Messung der Absorptionsverluste bei der Emissionswellenlänge von 1064 nm erfolgte mittels des Absorptionskalorimeters. Daher wurde die Messung mit der Probe AOA13003, die auch für Laserexperimente bei hohen Anregungsleistungen benutzt wurde, durchgeführt. Die Proben AOA13001 und AOA13002 eignen sich auf Grund ihres großen Durchmessers nicht zur Bestimmung der Verluste im Kalorimeter. Da Probe AOA13003 aus dem gleichen Boule stammt wie die anderen Proben, ist davon auszugehen, daß die Verluste für alle Proben identisch sind.

Die Verwendung einer längeren Probe zur Bestimmung der Verluste ist sogar von Vorteil, da hierdurch der relative Fehler kleiner wird.

Der Absorptionskoeffizient α_L bei der Wellenlänge 1064 nm wird damit bestimmt zu $\alpha_L = (0,048 \pm 0,002)\%\ \mathrm{cm}^{-1}$. Dieser Wert liegt etwas über den Verlusten von $(0,02 \pm 0,002)\%\ \mathrm{cm}^{-1}$, die für einen guten 1 at.% dotierten Nd:YAG Kristall gemessen wurden.

Trotzdem sind die Kristallverluste von 2 at.% Nd:YAG immer noch niedrig genug für einen effizienten Laser-Betrieb im Vergleich zu den gesamten Resonatorverlusten im Bereich von 0,1 – 0,2 %.

7.6 Laserparameter

Die Ergebnisse der optischen Charakterisierung haben ergeben, daß die Kristallqualität des 2 at.% dotierten Nd:YAG auf gleichem Niveau wie von 1 at.% dotiertem Material liegt. Nach den Ergebnissen aus Kapitel 6 sollten sich daraus ebenso gute Werte für die Laserparameter ergeben.

Um dies zu bestätigen, wurden zunächst die bekannten räumlich aufgelösten Messungen der Laserparameter für die Proben AOA13001 und AOA13002 durchgeführt. Für die Messungen wurde der fast konzentrische Zweispiegelresonator benutzt, da dieser die kleineren resonatorinternen Verluste besitzt. Die gemessenen Werte für die Schwellenanregungsleistung und den differentiellen Wirkungsgrad bei einer Auskoppelung von 3,2% zeigen Abbildung 7.7 und 7.8. Beide Laserparameter weisen Schwankungen in der Nähe des Kerns und in der Region der Wachstumsstreifen auf. Hier betragen die relativen Änderungen des differentiellen Wirkungsgrades 0,5% und die der Schwelle 1,1%. Bedingt durch die kleine relative Änderung des differentiellen Wirkungsgrades ändert sich die Ausgangsleistung ebenfalls um nur 0,5% in diesen Regionen des Kristalls.

Die Interferenzstreifen, die in Abbildung 7.7 zu sehen sind, werden durch eine Restreflexion der parallelen Probenoberflächen, die nicht für die Anregungswellenlänge von 808 nm entspiegelt wurden, verursacht.

Beide Bilder zeigen nochmals, daß keine unerwarteten Störungen in der räumlichen Verteilung der Laserparameter vorhanden sind. Die maximalen relativen Schwankungen des differentiellen Wirkungsgrads über den ganzen Probenquerschnitt betragen 11% und die der Schwelle 17%. Damit können die Ergebnisse der optischen Charakterisierung quantitativ bestätigt werden. Die Schwankungen der Laserparameter liegen in der gleichen Größenordnung wie die relative Standardabweichung des Brechungsindexgradienten.

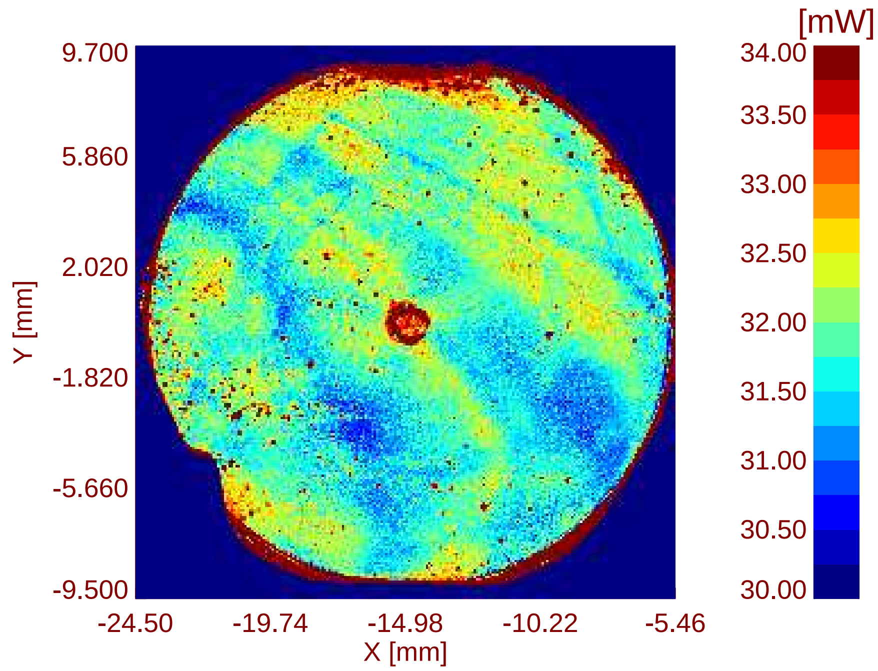

Abbildung 7.7: Schwellenanregungsleistung eines Lasers mit Probe AOA13001 bei einer Auskoppelung von 3,2%.

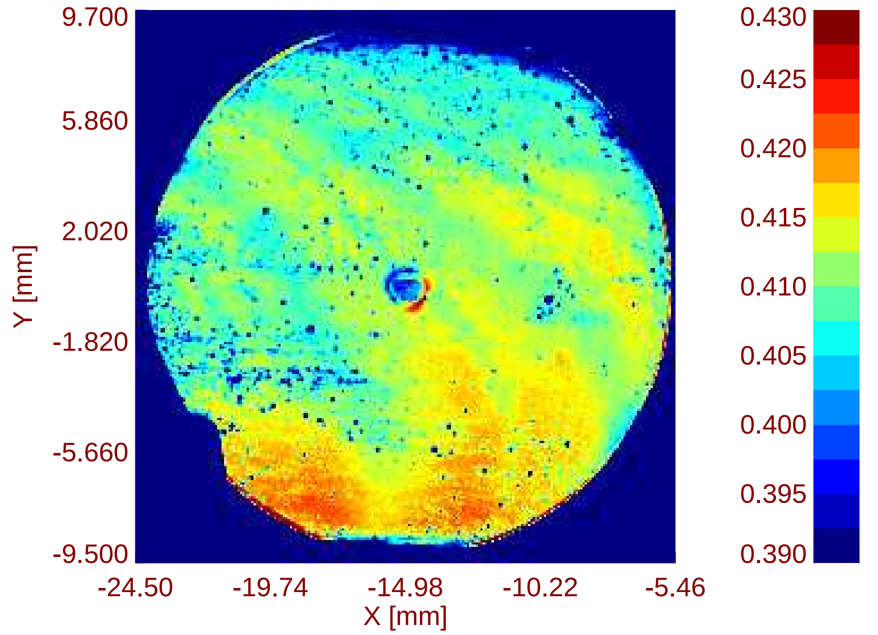

Abbildung 7.8: Differentieller Wirkungsgrad eines Lasers mit Probe AOA13001 bei einer Auskoppelung von 3,2%.

7.7 Vergleich der Lasereigenschaften mit anderen Neodym dotierten Materialien

Die bisher vorgestellten Ergebnisse der Charakterisierung zeigen, daß 2 at.% dotiertes Nd:YAG ein exzellenter Kandidat für einen endflächenangeregten Hochleistungs-Festkörperlaser sein muß. Daher ist es sinnvoll, das Material gerade in einem solchen Laser unter praxisnahen Bedingungen zu untersuchen und mit anderen Materialien zu vergleichen.

Der Versuchsaufbau zu dieser Messung wurde bereits in Kapitel 4.4.2 vorgestellt. Als Vergleichsmaterialien wurden 1 at.% dotiertes Nd:YAG und 0,7 at.% dotiertes Nd:YVO_4 untersucht. Insbesondere Nd:YVO_4 ist als direkter Konkurrent zu dem hochdotierten Nd:YAG zu sehen, da es über eine vergleichbar kurze Absorptionslänge verfügt. Die Messungen an dem 1 at.% dotierten Nd:YAG wurden durchgeführt, um den Einfluß der Dotierungskonzentration auf die Laserparameter von Nd:YAG demonstrieren zu können. Man erwartet in einem diodenlaserangeregten System natürlich einen Vorteil durch die höhere Dotierung, woraus eine kürzere Absorptionslänge folgt.

Abbildung 7.9 zeigt die Laser-Ausgangsleistung für die drei Materialien in Abhängigkeit von der absorbierten Anregungsleistung im Falle optimaler Auskoppelung (s. Tabelle 7.2).

Die Ausgangsleistung steigt bei allen drei Materialien nahezu linear mit der Eingangleistung an. Erwartungsgemäß unterscheidet sich der differentielle Wirkungsgrad des Lasers mit dem 2 at.% dotierten Nd:YAG nicht sehr von dem mit 1 at.% dotierten Nd:YAG . Der Wirkungsgrad ist im Falle des 2 at.% dotierten Kristalles etwas höher.

Obwohl der Laser mit dem Nd:YVO_4 Kristall den höchsten differentiellen Wirkungsgrad von 66,4% aufweist, beträgt die maximale Ausgangsleistung lediglich 12,1 W. Dies ist etwas geringer als die maximale Ausgangsleistung von 12,3 W, die mit dem 2 at.% dotierten Nd:YAG erzielt wird.

Eine numerische Analyse der maximalen Oberflächenspannung bei der maximalen Anregungsleistung zeigt, daß die Spannungen des Nd:YVO_4 Kristalls bereits 60% seiner Bruchgrenze betragen. Da dies lediglich eine numerische Rechnung unter idealen Bedingungen ist, kann ein Bruch in der Praxis auch wesentlich früher erfolgen, wenn z. B. noch zusätzliche Spannungen durch die Halterung des Kristalls verursacht werden. Daher wurde die Anregungsleistung nicht weiter erhöht, um eine Zerstörung des Kristalls zu vermeiden.

Obwohl der Nd:YAG Kristall die höhere Ausgangsleistung lieferte, beträgt hier die maximale Oberflächenspannung nur 30% seiner Bruchgrenze. Dies bedeutet letztendlich, daß 2 at.% dotierte Nd:YAG Kristalle bei höheren Anregungsleistungen als Nd:YVO_4 betrieben werden können und damit auch die höhere Ausgangsleistung liefern werden.

Dies zeigt die Überlegenheit von 2 at.% dotiertem Nd:YAG gegenüber einem entsprechendem Nd:YVO_4 Kristall.

	$Nd:YVO_4$	2 at.% Nd:YAG
Anregungsleistung / W	21,3	25,7
Ausgangsleistung / W	12,1	12,3
differentieller Wirkungsgrad / %	66,4	56,6
Auskoppelung / %	12,7	9,0
max. Oberflächenspannung / MPa	30	86
Bruchgrenze / MPa	50	220
max. Oberflächenspannung in % der Bruchgrenze	60	39

Tabelle 7.2: Vergleich der Laserdaten bei jeweils optimaler Auskoppelung und für diese Bedingungen berechnete maximale Oberflächenspannung.

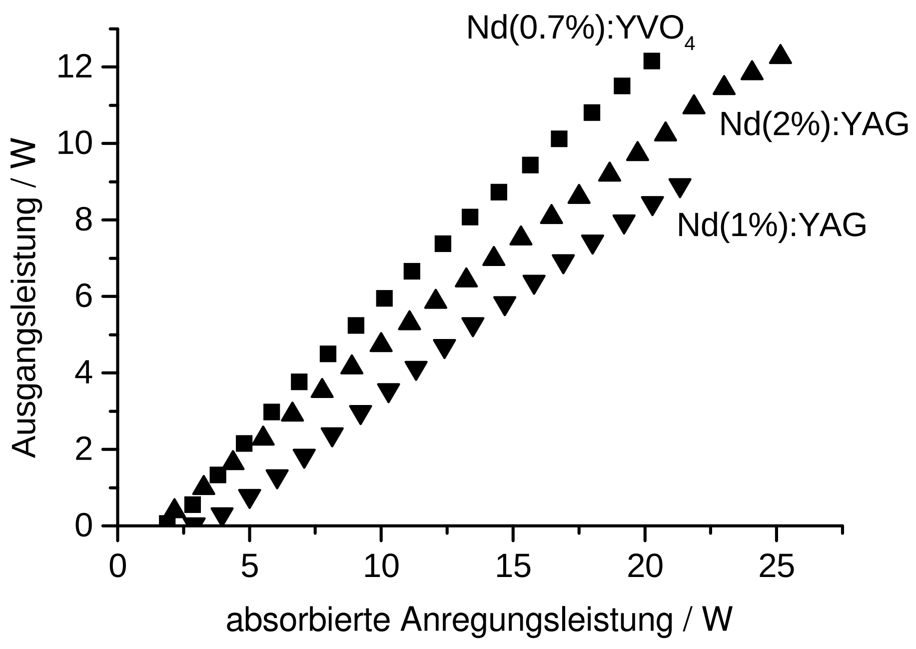

Abbildung 7.9: Ausgangs- zu Eingangsleistungskurven eines Lasers mit den Nd:YAG Proben AOA13003 (2 at.%) und XOA03001 (1 at.%) und der $Nd:YVO_4$ Probe QOB03001 als verstärkendes Medium.

Kapitel 8

Qualitätskontrolle von Nd:YAG Proben aus der Serienfertigung

Ziel dieser Untersuchungen ist die Demonstration des Einsatzes der Charakterisierungsverfahren zur Qualitätskontrolle von Laserkristallen in der Serienfertigung. Hierfür wurde das Material Nd:YAG auf Grund seiner großen Marktbedeutung ausgewählt.

Konkret handelt es sich um zylindrische Laserstäbe (5x8 mm^2) hergestellt aus Nd:YAG Material mit einer Dotierungskonzentration von 0,9 at.%. Stäbe dieser Art wurden in größeren Stückzahlen für den Einsatz in diodenlaserangeregten Festkörperlasern produziert. Die untersuchten Proben stellen eine zufällige Auswahl aus einem der ersten Boules des Produktionsvorgangs dar. Zur Bestätigung der Meßergebnisse der Kristallcharakterisierung wurde ein praxisnahes Laserexperiment bei höheren Anregungs- und Ausgangsleistungen durchgeführt. Die Charakterisierungsverfahren werden hier in zwei unterschiedlich weit fortgeschrittenen Produktionsstadien eingesetzt.

Zunächst wurde ein unbeschichtetes Segment des Boules untersucht, das bereits auf die Länge der zu fertigenden Stäbe zugeschnitten war. Damit lassen sich schon in einem frühen Produktionsstadium Kristallfehler erkennen und der Zuchtprozeß weiterer Boules kann entsprechend korrigiert werden. Je nach Art und Umfang des Fehlers können gegebenenfalls noch für die Produktion von Laserstäben geeignete Bereiche im Boule identifiziert werden. Auf jeden Fall kann die weitere Bearbeitung der ungeeigneten Kristallbereiche entfallen.

Im Anschluß wurden die aus derselben Probe gefertigten und mit einer AR-Beschichtung versehenen Laserstäbe untersucht. Diese Untersuchung entspricht der Endkontrolle einer Produktionsumgebung.

Da die Koordinaten der ausgebohrten Stäbe in dem vorher untersuchten Boulesegment bekannt sind, lassen sich daraus Zusammenhänge zwischen der Kristallqualität und der Position im Boulesegment ableiten. Darüber hinaus gibt es im Falle der spannungsinduzierten Doppelbrechung noch einen bemerkenswerten Unterschied zwischen den Meßwerten der ausgebohrten Kristalle und den Werten im Boulesegment an der gleichen Position (s. Abschnitt

8.3).

8.1 Quantifizierung der Kristallqualität des Ausgangsmaterials

Abbildung 8.1 zeigt die Lage des untersuchten Segmentes im Boule. Zu beachten ist, daß das Segment den Bereich des Wachstumskerns enthält.

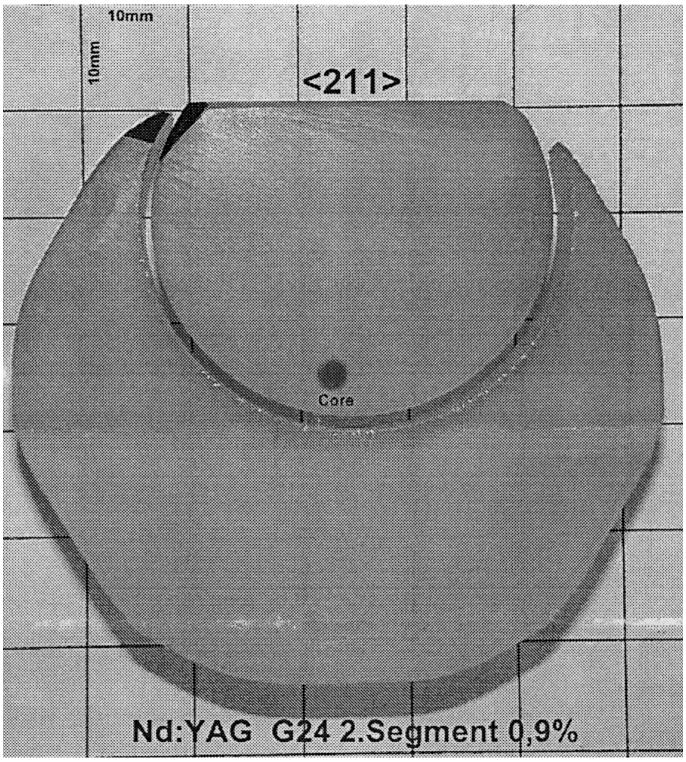

Abbildung 8.1: Fotographie der Boulescheibe, aus der Probe AOA11001 herausgeschnitten wurde, zusammen mit Probe AOA11001 abgebildet [FEE99].

8.1.1 Konzentrationsbestimmung des Nd-Ions

Die vom Hersteller angestrebte Nd-Konzentration in den Laserstäben beträgt 0,9 at.%. Dieser Wert konnte anhand des vorliegenden Boulesegmentes überprüft werden. Die Messung erfolgte mittels Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer und Absorptionsmessung. Da die Verfahren gleichwertig sind, ist hier lediglich das Ergebnis der Absorptionsmessung gezeigt. Zur Kalibrierung wurde die Fluoreszenzlebensdauermessung herangezogen.

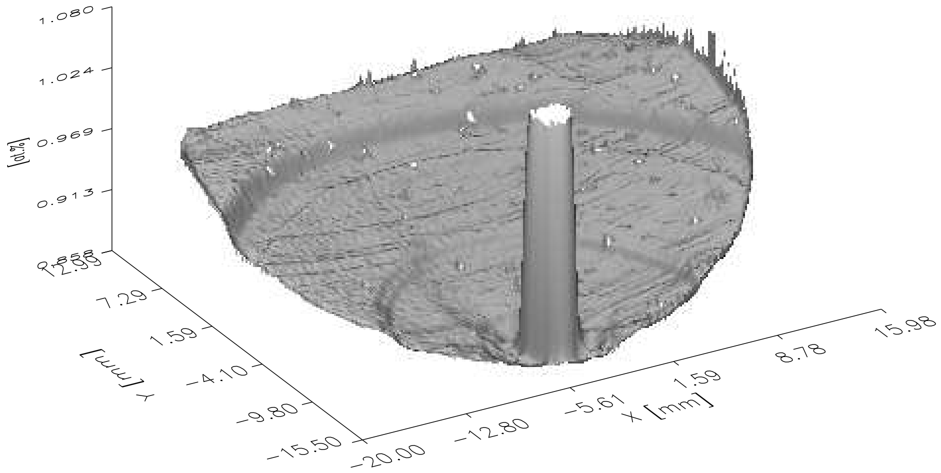

Abbildung 8.2: Nd-Konzentration der Probe AOA11001, bestimmt durch Messung der Absorption von 799 nm Strahlung.

Die Nd-Konzentrationsverteilung ist in Abbildung 8.2 dargestellt. Man erkennt neben dem Kern, dessen Konzentration immer deutlich höher als die des umgebenden Kristalls ist, zwei konzentrische Kreise an denen jeweils in radialer Richtung ein Sprung in der Konzentration auftritt. Es liegt nahe zu vermuten, daß an diesen Gebieten eine kleine Störung (z.B. Temperaturänderung) den Wachstumsprozeß beeinflußt hat. Die stetige Konzentrationszunahme von innen nach außen, die ebenfalls recht gut zu beobachten ist, ist bei Kristallen mit durchgebogener Wachstumsfront immer vorhanden und spiegelt den Verlauf der Wachstumsfront während des Zuchtprozesses wieder.

Eine quantitative Analyse ergibt 0,92 at.% für den Mittelwert der Nd-Konzentration, wenn die hohen Werte im Kern unberücksichtigt bleiben. Damit wurde die gewünschte Konzentration von 0,9 at.% sehr gut erreicht. Die Standardabweichung beträgt $3,0 \cdot 10^{-2}$ at.%. Dies entspricht einer relativen Schwankung der Konzentration von 3,3%. Diese hohe Schwankung wird primär durch den radialen Konzentrationsgradienten verursacht. Die ausgebohrten Stäbe werden auf Grund ihrer sehr viel kleineren Abmessungen deutlich homogener in diesem Parameter sein.

8.1.2 Optische Homogenität

Die Darstellung des Betrags des Brechungsindexgradienten (Abbildung 8.3) läßt keine größeren Störungen erkennen. Die durch den Konzentrationssprung verursachten konzentrischen

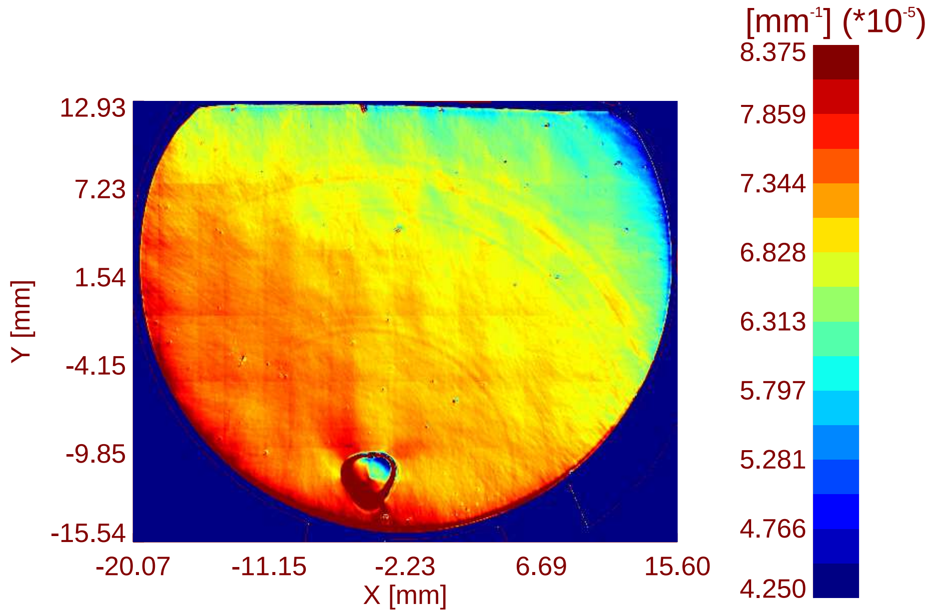

Abbildung 8.3: Betrag des Brechungsindexgradienten, gemessen an der Probe AOA11001.

Kreise sind auch als Homogenitätsstörung zu erkennen. Allerdings ist der Betrag der Störung sehr klein ($< 10^{-5}\,\mathrm{mm}^{-1}$), so daß kein negativer Einfluß auf den Laserbetrieb zu erwarten ist.

Leider sind die Probenoberflächen nicht planparallel sondern keilförmig und gekrümmt, was bewirkt, daß der Betrag des Brechungsindexgradienten einen Offset von $3,5 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{mm}^{-1}$ aufweist und in der Abbildung von rechts oben nach links unten stetig ansteigt.

Nach Subtraktion des Offsets und Ausblenden der hohen Werte im Kern beträgt die Standardabweichung der Brechungsindexgradienten $5,2 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{mm}^{-1}$ und deren Mittelwert $3,5 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{mm}^{-1}$. Dies entspricht einer relativen Änderung von 15%. Hauptsächlich wird dieser Wert durch die gekrümmten Probenoberflächen verursacht. Der Beweis dieser These folgt in Abschnitt 8.2, wo die Meßwerte der einzelnen Stäbe diskutiert werden.

8.2 Quantifizierung der Kristallqualität der Laserstäbe

Nach dem Ausbohren aus Probe AOA11001 wurden die beschichteten Stäbe nochmals der kompletten Untersuchung inklusive einer Messung der Laserparameter unterworfen.

Da die einzelnen Proben in allen untersuchten Parametern sehr homogen sind, kann die Darstellung der zweidimensional aufgelösten Meßwerte entfallen. Es wäre jeweils nur eine einfarbige homogene Fläche zu erkennen, was viel genauer durch Mittelwert und Standardabweichung des jeweiligen Parameters ausgedrückt werden kann. Diese Werte werden durch

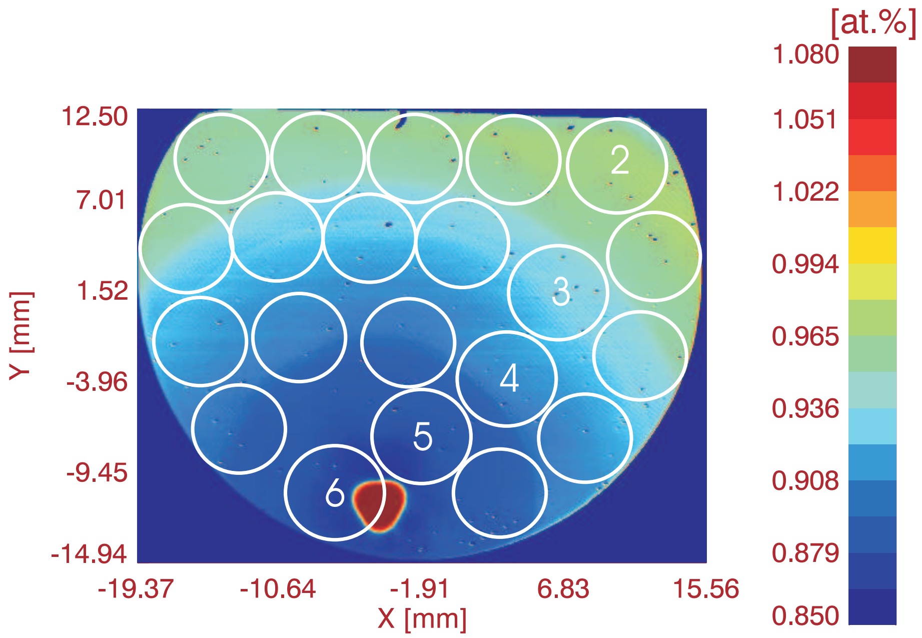

Abbildung 8.4: Position der ausgebohrten Laserstäbe in der Probe AOA11001 zusammen mit der Darstellung der Nd-Konzentration in der selben Probe. Die Zahlen 2 – 6 bezeichnen die Positionen der untersuchten Proben AOA11002 – AOA11006.

Betrachten eines 2 x 2 mm^2 großen Quadrates in der Mitte der Probe gewonnen. Es wird nicht der gesamte Probenquerschnitt ausgewertet, damit Störungen durch den Rand der Probe nicht die Ergebnisse beeinflussen.

Zur Orientierung zeigt Abbildung 8.4 zunächst die Position der einzelnen Stäbe AOA11002 – AOA11006 in der Ausgangsprobe AOA11001. Zur Orientierung ist ein Bild der Konzentrationsmessung der Probe AOA11001 unterlegt. Damit erkennt man auch gut, daß Probe AOA11006 ein Sonderfall darstellt: Diese Probe enthält einen Teil des Wachstumskerns. Auf Grund empirischer Daten fertigen alle Kristallhersteller aus diesem Gebiet keine Laserstäbe. Die Probe AOA11006 wurde aus diesem angeblich ungeeigneten Kerngebiet gefertigt, um die Erfahrungen der Hersteller an Hand von Meßwerten zu überprüfen.

Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 8.1 zusammengefaßt. An Stelle der Standardabweichung wird hier die relative Standardabweichung ϵ_r, also der Quotient aus Standardabweichung und Mittelwert, angegeben. Daraus erkennt man sehr gut die Homogenität der Probe in dem jeweiligen Parameter.

So schwankt z. B. die nach der Fluoreszenzlebensdauermessung bestimmte Verteilung des Nd-Ions um weniger als 1%, was auch durch die alternative Methode der Messung des Absorptionskoeffizienten für 799 nm Strahlung bestätigt wird.

Der offsetkorrigierte Betrag des Brechungsindexgradienten und die Differenz der Brechungsindizes Δn sind in den untersuchten Proben so klein, daß sie nur etwas über der

Auflösungsgrenze der Apparatur liegen. Daher erscheint der Wert für die relative Schwankung mit ca. 30% recht hoch. Tatsächlich wird diese Zahl bereits im Wesentlichen durch das Rauschen der Apparatur verursacht.

Die Werte von $dr_{of} < 5 \cdot 10^{-6}$ und $\Delta n < 7 \cdot 10^{-8}$ weisen auf eine ausgezeichnete Kristallqualität hin. Bei diesen sehr kleinen Absolutwerten ist die Schwankung von 30% ohne Bedeutung. Die Werte für dr_{of} sind etwa eine Größenordnung kleiner als der Mittelwert des ganzen Boulesegments AOA11001. Dies bestätigt, daß die Oberfläche der Probe AOA11001 gekrümmt war. Dadurch entsteht ein über die Probenoberfläche variierender Offset in dr, der nun für jede einzelne Probe getrennt ermittelt und subtrahiert werden kann.

Diese Ergebnisse werden auch durch die Messungen mit dem fast konzentrischen Laserresonator (Abschnitt 4.4.1) bestätigt. Hier liegen die relativen Schwankungen der Parameter Schwelle und differentieller Wirkungsgrad unter 1%. Die Absolutwerte der Proben AOA11001 – AOA11005 unterscheiden sich um weniger als 5%.

Probe AOA11006 aus dem Kerngebiet läßt sich an Hand der hohen Werte von dr_{of} und Δn leicht von den restlichen Kristallen unterscheiden und bestätigt die Erfahrungen, die mit anderen Proben mit einem Wachstumskern (z.B. AOA13001/002 und AOA05001) gemacht wurden.

Zusammenfassend läßt sich als Ergebnis der Charakterisierung der Kristallqualität festhalten, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit keine signifikanten Unterschiede zwischen den Proben AOA11001 – AOA11005 festgestellt werden konnte. Die Kristallqualität ist so hoch, daß bei Messung der Brechungsindexgradienten und der spannungsinduzierten Doppelbrechung die Nachweisgrenze der Verfahren erreicht wurde. Dies wurde durch Messung der Laserparameter quantitativ bestätigt.

		Kristallprobe AOA...				
Methode	Parameter	11002	11003	11004	11005	11006
Fl-Lebensdauer	K / at.%	0,916	0,896	0,872	0,868	1,105
	ϵ_r / %	0,57	0,77	1,10	0,64	1,10
Absorption	α_P	1,069	1,058	1,052	1,046	1,105
für 799 nm	ϵ_r / %	0,07	0,11	0,05	0,08	0,29
Doppelbrechung	Δn / 10^{-7}	0,630	0,448	0,624	0,565	67,08
	ϵ_r / %	29,3	12,45	24,98	24,94	46,13
Schlieren	dr_{of} / 10^{-5}	0,447	0,294	0,367	0,301	5,162
	ϵ_r / %	29,14	32,94	32,74	32,38	91,46
Laser	η / %	47,0	46,8	47,1	46,5	48,2
	ϵ_r / %	0,29	0,64	0,43	0,48	3,02
	S / mW	100,3	102,9	96,34	97,39	101,5
	ϵ_r / %	0,72	0,63	0,495	0,61	2,70
Kalorimeter	α_L / % cm^{-1}	0,0173	0,0214	0,0174	0,0171	0,0228

Tabelle 8.1: Ergebnisse der Messung der optischen und Laser-Parameter der Proben AOA11002 – AOA11006 in einem 2x2 mm^2 großen Ausschnitt. Bedeutung der Abkürzungen: ϵ_r = relative Standardabweichung des jeweiligen Parameters für den Ausschnitt, K = Nd-Konzentration, α_P = Absorptionskoeffizient für Strahlung der Wellenlänge 799 nm, Δn = Differenz der Brechungsindizes zwischen ordentlichem und außerordentlichem Strahl, dr_{of} = offsetkorrigierter Betrag des Brechungsindexgradienten, η = differentieller Wirkungsgrad, S = Schwellenanregungsleistung, α_L = Absorptionskoeffizient für Strahlung der Wellenlänge 1064 nm.

8.3 Spannungsinduzierte Doppelbrechung

Die gemessenen Werte für die Differenz der Brechungsindizes (Abbildung 8.5) und die Richtung der Hauptspannungsachsen (Abbildung 8.6) entsprechen dem bekannten Bild (vergl. auch Abbildung 7.6 und 7.5) eines in <111>-Richtung gezogenen Kristalls.

Man erkennt in Abbildung 8.5 die 90° Symmetrie der Richtung der Hauptspannungsachsen, was einer rotationssymmetrischen Verteilung der Hauptspannungsrichtungen entspricht . Die dreizählige Symmetrie in der Differenz der Brechungsindizes, wie in Abbildung 8.5 zu sehen, geht direkt auf die Symmetrie, die sich aus der <111> Zuchtrichtung des Kristalls ergibt, zurück.

Man beobachtet für die Differenz der Brechungsindizes – wie bei anderen Nd:YAG Kristallen auch – sehr hohe Werte von $2,4 \cdot 10^{-5}$ in der Kernregion, während die Werte außerhalb des Kerns mindestens eine Größenordnung kleiner sind.

Abbildung 8.7 zeigt die Position der Kristalle AOA11002 – AOA11006 vor dem Hintergrund der Messung aus Abbildung 8.5, wo die Differenz der Brechungsindizes Δn dargestellt ist. Man erkennt, daß direkt um den Kern der Probe AOA11001 die höchsten Werte auftreten, die mit wachsendem Abstand vom Kern schnell kleiner werden. Dies belegt auch die Auswertung in Tabelle 8.2, wo jeweils der Mittelwert von Δn eines 2x2 mm^2 großen Ausschnitts genau an den Positionen, wo später die Proben AOA11002 – AOA11006 ausgebohrt werden, dargestellt ist. Diese Werte kann man nun mit den Meßwerten der einzelnen Proben, die bereits in Tabelle 8.1 gezeigt wurden, vergleichen.

Es fällt sofort auf, daß die Meßwerte in den Proben AOA11002 – AOA11005 um bis zu zwei Größenordnungen kleiner sind. Lediglich Probe AOA11006, die einen Teil des Wachstumskerns enthält, weist vor und nach dem Ausbohren einen ungefähr gleich großen Wert auf. Ist also der Kristall von der Störquelle Kern mechanisch getrennt, ist er spannungsfrei.

Man kann aus dieser Messung folgende wichtige Schlußfolgerungen ziehen:

- Der Kristall zeigt für Spannungen, die vom Kern ausgehen, kein Erinnerungsvermögen nach Abkühlen der Schmelze.
- Hinsichtlich des Wertes des Betrags des Brechungsindexgradienten ist die Position des Kristalls im Boule unerheblich, wenn der Kristall den Kern selbst nicht enthält.
- Bei Untersuchung einer Probe, die den Kern noch enthält, kann keine verläßliche Aussage über die zu erwartenden Spannungen im ausgebohrten Kristall gemacht werden.

		Kristallprobe AOA...				
	Parameter	11002	11003	11004	11005	11006
vor Ausbohren	Δn / 10^{-7}	3,206	3,033	4,209	30,00	78,45
	ϵ_r / %	13,75	10,42	7,03	37,75	55,82
nach Ausbohren	Δn / 10^{-7}	0,630	0,448	0,624	0,565	67,08
	ϵ_r / %	29,3	12,45	24,98	24,94	46,13

Tabelle 8.2: Differenz der Brechungsindizes Δn für die Proben AOA11002 – AOA11006 vor und nach dem Ausbohren aus Probe AOA11001.

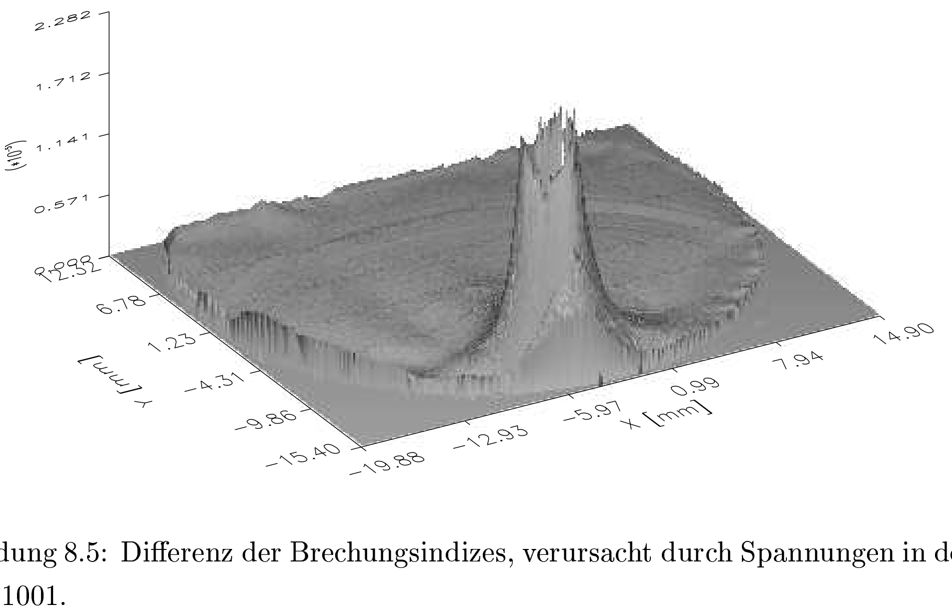

Abbildung 8.5: Differenz der Brechungsindizes, verursacht durch Spannungen in der Probe AOA11001.

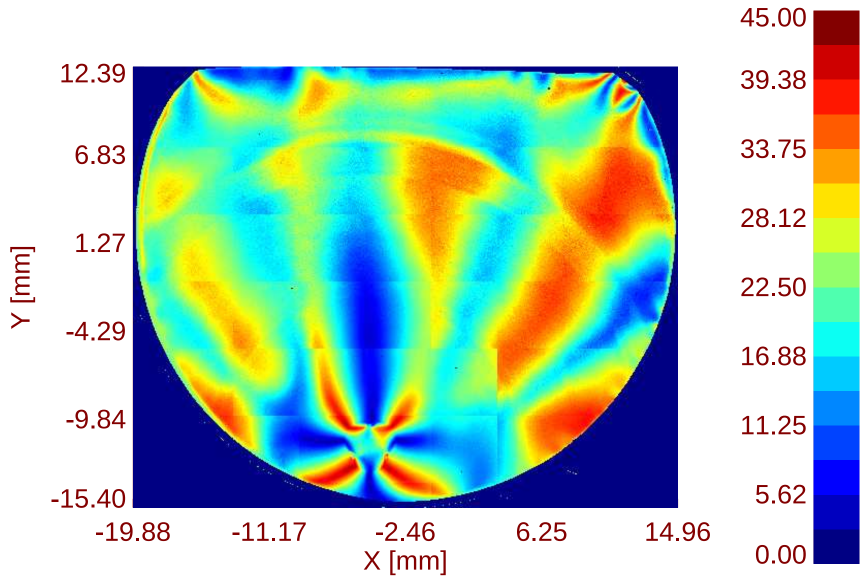

Abbildung 8.6: Richtung der Hauptspannungsachsen (°), verursacht durch Spannungen in der Probe AOA11001.

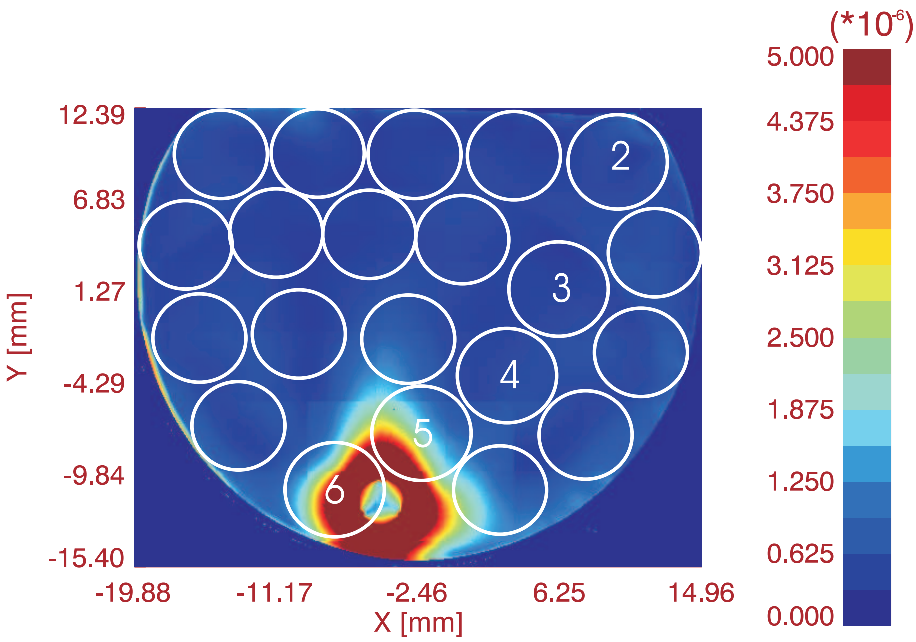

Abbildung 8.7: Position der ausgebohrten Laserstäbe in der Probe AOA11001 zusammen mit der Darstellung der Differenz des Brechungindizes.

8.4 Laserparameter bei hohen Anregungs- und Ausgangsleistungen

Zur Kontrolle der Charakterisierungsergebnisse erfolgt abschließend der Betrieb der Proben AOA11002 – AOA11006 in einem Laserresonator (s. Kapitel 4.4.2) bei hohen Anregungsleistungen. Dabei wird der Kristall bis zu 50% seiner Bruchgrenze belastet, was einen guten Kompromiß zwischen der Forderung nach einem zerstörungsfreien aber gleichzeitig anwendungsnahen Test der Kristallqualität erfüllt.

In einem ersten Schritt wurde die optimale Auskoppelung bei der zur Verfügung stehenden Anregungsleistung von 30 W für alle Proben identisch zu T=6% bestimmt. Alle im folgenden dargestellten Messungen wurden bei dieser Auskoppelung durchgeführt.

Abbildung 8.8 zeigt die Ausgangs- zu Anregungsleistungskurven der Proben. Die 5 Kurven zeigen keine erkennbare Abweichung vom linearen Verlauf und sind in dieser Darstellung fast nicht voneinander zu unterscheiden. Eine genauere Analyse erlaubt der Vergleich der Parameter Schwelle S und differentieller Wirkungsgrad η in Tabelle 8.3. Zur Verdeutlichung sind die Werte der 5 Proben zusätzlich in Abbildungen 8.9 und 8.10 graphisch dargestellt. Man erkennt nun leicht, daß sich die Werte der Laserparameter S und η innerhalb der Fehlergrenzen nicht signifikant unterscheiden.

Entgegen der ersten Erwartung zeigt die Probe AOA11006 aus dem Kerngebiet keinen Unterschied zu den anderen Proben. Man könnte zunächst vermuten, daß diese Probe auf Grund der massiven Doppelbrechung und ihres höheren Betrags des Brechungsindexgradienten ein abweichendes Verhalten im Laserbetrieb zeigen sollte.

Daß dies hier nicht beobachtet wird, ist in dem Aufbau des Resonators begründet. Da es sich um einen hinsichtlich der Polarisation der Laserstrahlung isotropen Resonator und laseraktiven Kristall handelt, hat die Doppelbrechung keine Auswirkungen auf die Laserparameter η und S. Diesen Effekt könnte man erst nach Einfügen eines polarisierenden Elementes nachweisen (vergl. Kapitel 6.2).

Die hohen Brechungsindexgradienten um das Kerngebiet wirken sich auf Grund der fehlenden räumlichen Auflösung des Resonators in Kombination mit einem nicht zu großen Mo-

	Kristallprobe AOA...				
	11002	11003	11004	11005	11006
diff. Wirkungsgrad η / %	64,89	65,41	64,44	65,83	66,12
Schwelle S / W	1,06	1,08	1,09	1,08	1,06

Tabelle 8.3: Differentieller Wirkungsgrad η und Schwellenanregungsleistung S für die Proben AOA11002 – AOA11006 in dem Hochleistungsresonator bei einer Auskoppelung von 6%.

denvolumen nicht negativ aus. Wie Abbildung 8.3 zeigt, treten besonders hohe Gradienten immer in einer dünnen Schicht um den Kern auf. Der Kern selbst hat wieder vergleichsweise niedrige Gradienten. Da das Kerngebiet eine größere Ausdehnung als der Taillendurchmesser des Lasermode besitzt, ist es leicht möglich, die Probe so zu justieren, daß der Lasermode vollständig innerhalb des Kerns verläuft und nicht durch den Bereich hoher Gradienten abgelenkt wird.

Trotzdem sollte dieses Ergebnis nicht als Empfehlung verstanden werden, auch die Mitte des Kerngebiets zur Produktion von Laserstäben zu verwenden, da doch negative Einflüsse auf die Strahlqualität zu erwarten sind. Außerdem sind für viele Anwendungen linear polarisierte Laser erforderlich, was bei einem Kristall aus dem Kerngebiet zu erheblichen Verlusten durch Doppelbrechung führen würde.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß der Laserbetrieb bei hohen Leistungen die Ergebnisse der optischen Charakterisierung bestätigt. Im Rahmen der Meßgenauigkeit sind die Proben AOA11002 – AOA11005 von identisch guter Kristallqualität.

Es wurde im Multimodebetrieb ein differentieller Wirkungsgrad von maximal 68% erreicht, was sehr nahe an der theoretischen Obergrenze von 72% liegt [Fie89].

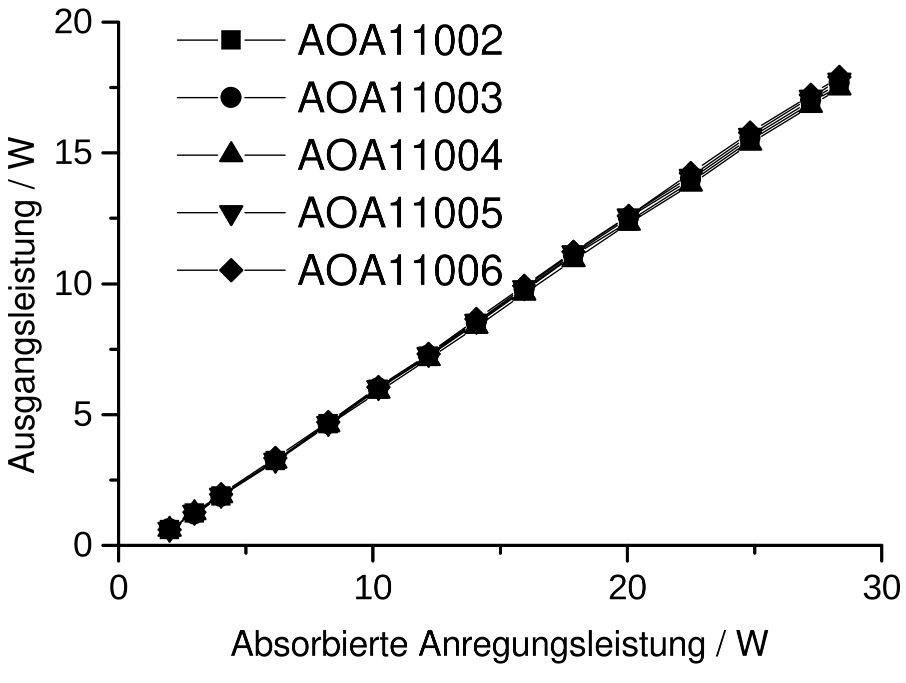

Abbildung 8.8: Ausgangs- zu Anregungsleistung der Proben AOA11002 – AOA11006 in einem Hochleistungsresonator.

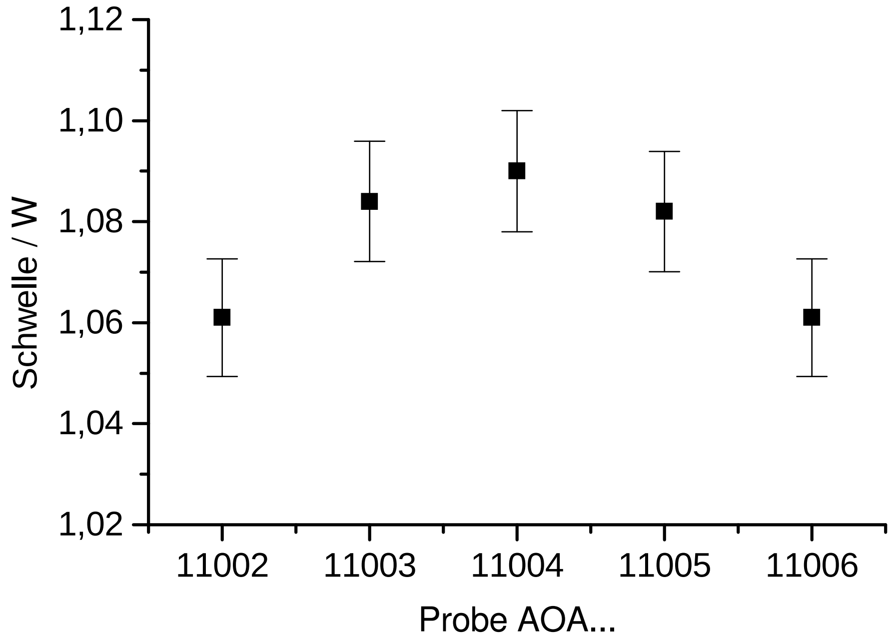

Abbildung 8.9: Vergleich der Schwellenanregungsleistung in einem Hochleistungsresonator mit den Proben AOA11002 – AOA11006 bei einer Auskoppelung von 6%.

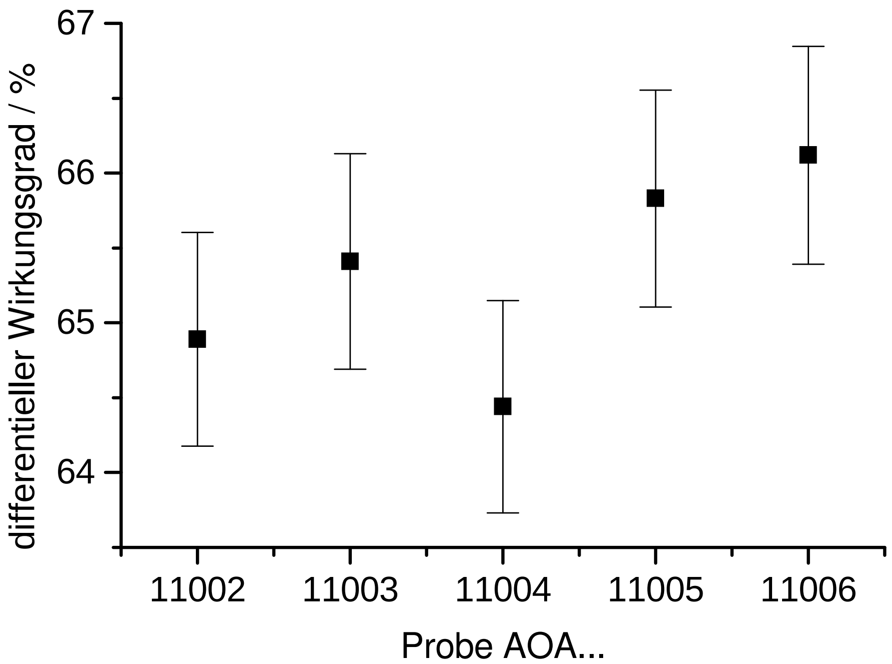

Abbildung 8.10: Vergleich des differentiellen Wirkungsgrades der Proben AOA11002 – AOA11006 im gleichen Resonator wie in Abbildung 8.9 bei einer Auskoppelung von 6%.

8.5 Umsetzung des Verfahrens

Die vorgestellten Meßreihen in diesem Kapitel haben demonstriert, wie eine Qualitätskontrolle bei einem Hersteller von laseraktiven Kristallen ablaufen kann.

Zunächst erfolgt für jeden hergestellten Boule eine Kontrolle der optischen Parameter durch Untersuchung von beispielsweise drei Querschnitten vom Anfang, der Mitte und dem Ende des Boules.

Dieses Vorgehen erlaubt die Identifikation von fehlerhaften Bereichen im Boule und stellt sicher, daß die optischen Parameter des Ausgangsmaterials innerhalb spezifizierter Parameter bleiben.

Die Anzahl der zu messenden Parameter kann für den praktischen Einsatz gegenüber der hier vorgestellten Charakterisierung sinnvoll reduziert werden. Die Messung der Fluoreszenzlebensdauer und der Absorption bei der Anregungswellenlänge sind redundante Größen. Weiterhin wurde in Kapitel 6.4 eine Korrelation zwischen der Dotierungskonzentration und dem Brechungsindex angedeutet, so daß als relevante Parameter die Messung der Doppelbrechung und der Fluoreszenzlebensdauer verbleiben.

Danach erfolgt das Ausbohren der Stäbe in den Bereichen, deren Qualität für ausreichend befunden wurde.

Weitere Tests sind nicht zwingend notwendig. Man wird aber zweckmäßigerweise Stichprobentests an einigen Stäben durchführen, um auch andere Fehlerquellen, die erst nach der Kristallzucht relevant werden, aufdecken zu können. Denkbar sind Fehler in der Beschichtung und Politur oder Beschädigungen beim Ausbohren der Stäbe, was sehr leicht zu mechanischen Spannungen im Kristall führen kann.

Durch Messen der optischen Parameter kann man komplett auf den aufwendigen Test im Laserbetrieb verzichten. Zeigt die Messung der optischen Parameter keine Abweichungen, sind auch im Laserbetrieb keine Leistungseinbrüche zu erwarten.

Dies konnte hier am Beispiel der 5 Proben AOA11002 – AOA11005 gezeigt werden.

Kapitel 9

Zusammenfassung

Ein Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Entwicklung von zweidimensionalen Meßverfahren zur Bestimmung der optischen und laserphysikalischen Eigenschaften von kristallinen Festkörpermaterialien mit einer räumlichen Auflösung zwischen 30 und 100 μm. Dazu wurden bekannte Methoden wie Messung der Absorption, Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer, die Schlierenmethode, das Polariskop und das Absorptionskalorimeter hinsichtlich Genauigkeit und räumlicher Auflösung verbessert, um für die zweidimensionalen Messungen eingesetzt werden zu können.

Bei der Entwicklung der Meßverfahren wurde erkannt, daß allein ein motorisiertes Positioniersystem für die Probe und eine hohe räumliche Auflösung von beispielsweise 30μm nicht genügt, um zweidimensionale Messungen durchführen zu können.

Darüber hinaus müssen die Meßverfahren langzeitstabil sein, einen vollautomatischen Ablauf und eine quantitative Auswertung erlauben. Alle diese Anforderungen konnten im Rahmen dieser Arbeit erfüllt werden. Ein spezielles Problem, das Auftreten von Interferenzeffekten bei planparallelen Probenoberflächen, wurde durch die Verwendung spektral breitbandig emittierender Strahlungsquellen gelöst.

Die erreichten Genauigkeiten und die maximale räumliche Auflösung der einzelnen Meßverfahren sind zur besseren Übersicht in Tabelle 9.1 zusammengefaßt. Wie man sieht, erfüllen alle optische Charakterisierungs-Verfahren die Mindestanforderung von 30–50 μm räumlicher Auflösung, um Störungen in der Größenordnung eines Drittels des Modenradius des Laserresonators erkennen zu können.

Um die großen Datenmengen von maximal $2,8 \cdot 10^6$ Werten je Meßparameter und Probe handhaben zu können, wurde eine umfangreiche Softwarebibliothek zur vollständigen Automatisierung der Messungen und zur Auswertung der Daten entwickelt. Die Auswertungsprogramme erlauben dabei beliebige Verknüpfungen zwischen den gemessenen Parametern. Voraussetzung hierfür war die Einführung eines kalibrierten Koordinatensystems für alle Meßverfahren.

Mit den entwickelten Meßverfahren wurde eine Vielzahl verschiedener Proben und Materialien charakterisiert, um im ersten Schritt einen Überblick über mögliche Kristallfehler und deren Auswirkungen auf den Laserprozeß zu erhalten. Eine derart umfassende Charakterisierung von laseraktiven Materialien mit den dargestellten Genauigkeiten ist bisher noch nicht publiziert worden.

Die präzise Charakterisierung der optischen Parameter und der laserphysikalischen Eigenschaften war in Verbindung mit der selbst entwickelten Software die Voraussetzung zur Untersuchung der Korrelationen zwischen diesen Parametern.

Insbesondere die Untersuchung der Boulequerschnitte mit großem Durchmesser von bis zu 50 mm war sehr wichtig, da hier in derselben Probe Bereiche sehr unterschiedlicher Kristallqualität gemeinsam auftreten. Dies war wiederum nur mit entsprechend langzeitstabilen Meßverfahren möglich, was die hohen Anforderungen an die Meßmethoden begründet. Aus den Untersuchungen der Boulequerschnitte konnten Hinweise auf eine Korrelation zwischen den oben genannten Parametern abgeleitet werden, welche im Anschluß in einer quantitativen Analyse untersucht wurden. Daher war eine quantitative Bestimmung aller Parameter der Proben unabdingbar.

Es konnte, wie theoretisch abgeleitet, ein linearer Zusammenhang zwischen den durch mechanische Spannungen induzierten Verlusten und den Laserparametern differentieller Wirkungsgrad und Schwelle nachgewiesen werden. Der Regressionskoeffizient der Korrelation zwischen diesen Parametern betrug für 3100 untersuchte Meßpunkte im Mittel $r = 0,76$.

Ebenso wurde der lineare Zusammenhang zwischen dem Betrag des Brechungsindexgradienten, der ein Maß für die optische Homogenität darstellt, und den gleichen Laserparametern gezeigt. Der mittlere Regressionskoeffizient ist mit $r = 0,65$ etwas kleiner als im vorigen Fall, allerdings wurde der komplette Boulequerschnitt mit 265.000 Meßpunkten betrachtet, was kleinere Werte für r bei gleichstarker Korrelation erlaubt.

In Einklang mit der Theorie wurde die Abhängigkeit der Korrelation der Parameter von der Transmission des Auskopplungsspiegels gezeigt.

Eine Abhängigkeit des Brechungsindex von der Konzentration der Dotierung wurde qualitativ an einer Nd:YAG Probe gezeigt. Vorbehaltlich einer quantitativen Überprüfung folgt daraus, daß sich bereits die meisten Kristallfehler aus einer Messung der Dotierungskonzentration erkennen lassen. Kann man andere nicht dotierungsbedingte Kristallfehler wie z. B. Versetzungslinien ausschließen, so würde unter dieser Voraussetzung bereits eine Messung der Dotierungskonzentration und der spannungsinduzierten Doppelbrechung für eine vollständige Beurteilung der Kristallqualität genügen.

Zur Bestimmung der Konzentration der Dotierung wurde gezeigt, daß die Messung der Absorption des laseraktiven Ions gleichwertig der Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer eines angeregten Niveaus desselben Ions ist. Dieser Zusammenhang gilt für alle laseraktiven Materialien, deren Dotierungsion ein Konzentrationsquenching zeigt. Zur absoluten Konzentrationsbestimmung ist die Messung der Lebensdauer die genauere Methode.

Die Verfahren wurden erfolgreich zur Charakterisierung von Czochralski-Nd:YAG, das erstmals mit einer Dotierungskonzentration von 2 at.% hergestellt werden konnte, angewandt. Der Vergleich mit dem sehr gut bekannten Nd:YAG mit einer Konzentration von 1 at.% zeigte keine Verschlechterung der Kristallqualität durch die Verdopplung der Dotierungskonzentration. Die Variationen im Betrag des Brechungsindexgradienten sind für beide Konzentrationen gleich groß. Der Betrag des Brechungsindexgradienten liegt mit $1 * 10^{-5}\,\mathrm{mm}^{-1}$ auf sehr niedrigem Niveau und ist nur um den Faktor zwei bis drei größer als bei sehr guten 1 at.% Nd:YAG Kristallen. Das Absorptionsspektrum in dem für die Anregung mit Diodenlasern interessanten Spektralbereich um 808 nm weist keinen Unterschied im Vergleich zu 1 at.% Nd:YAG Material auf. Diese Ergebnisse der optischen Charakterisierung konnten in Laserexperimenten auch bei hohen Ausgangsleistungen von 12 W bestätigt werden. Es wurde für das 2 at.% dotierte Material ein differentieller Wirkungsgrad von 56,6% und für 1 at.% dotiertes mit 53,8% nahezu der gleiche Wert bestimmt. Gegenüber einem Vergleichskristall aus Nd:YVO_4 lieferte der 2 at.% Nd:YAG die höhere Ausgangsleistung, wobei zusätzlich berücksichtigt werden muß, daß der Nd:YVO_4 Kristall bei 60% seiner Bruchgrenze und der 2 at.% Nd:YAG Kristall bei 39% seiner Bruchgrenze betrieben wurde.

Mit der gleichen Systematik wurde die Qualitätskontrolle am Beispiel von Nd(0,9%):YAG Stäben aus der industriellen Fertigung demonstriert. Das Ausgangsmaterial wurde nach dem Zuchtvorgang einer Vorabprüfung unterzogen, um Defekte frühzeitig erkennen zu können. In Form einer Endkontrolle wurden die optischen Eigenschaften von fünf Stäben nach Durchlaufen des letzten Produktionsschrittes untersucht. Die Ergebnisse der Charakterisierung lieferten die kleinsten im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte für den Betrag des Brechungsindexgradienten. Weiterhin demonstrierte die Untersuchung der Doppelbrechung, daß die vom Kern verursachten Spannungen, die sich über den ganzen Kristallboule ausbreiten, in den einzelnen Stäben nicht mehr vorhanden sind. Lediglich der Stab, der den Kernbereich enthält, zeigte die gleichen Werte für die Differenz der Brechungsindizes wie zuvor im Ausgangsmaterial. Durch die hervorragenden Werte der optischen Homogenität und der Doppelbrechung sowie der sehr homogenen Verteilung der Dotierung konnte auf eine ausgezeichnete Kristallqualität geschlossen werden, was sowohl durch die zweidimensional aufgelöste Bestimmung der Laserparameter bei niedrigen Leistungen als auch bei hohen Ausgangsleistungen bestätigt werden konnte. Es wurde im Multimodebetrieb ein differentieller Wirkungsgrad von maximal 68% erreicht, was sehr nahe an der theoretischen Obergrenze von 72% liegt.

Mit der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, daß eine verläßliche Vorhersage der Lasereigenschaften aus optischen und spektroskopischen Daten möglich ist. Damit ist eine wichtige Vorbedingung zur Klassifizierung von laseraktiven Materialien nach bestimmten Qualitätsmerkmalen erfüllt. Eine Einführung von Qualitätsnormen mit definierten Prüfverfahren für laseraktive Materialien ist nun möglich. Die Umsetzung der in dieser Arbeit vorgeschlagenen Verfahren kann für die Laserindustrie der entscheidende Durchbruch von der Einzelfertigung in den Massenmarkt bedeuten.

Verfahren	bestimmter Parameter	RA / μm	ϵ_r / %
Absorption	Transmission	50	0,3
	Konzentration relativ	50	1,3
	Konzentration absolut	50	9,9
Fluoreszenzlebensdauer	Lebensdauer	30	0,08
	Konzentration relativ	30	0,1
	Konzentration absolut	30	1,0
Schlierenmethode	Betrag des Brechungsindexgradienten	27,2	1,1
	Winkel des Brechungsindexgradienten	27,2	1,1
Doppelbrechung	Differenz der Brechungsindizes	27,2	2,3
	Hauptachsenwinkel	27,2	0,8
Laserresonator	differentieller Wirkungsgrad	100	2,3
	Schwellenanregungsleistung	100	1,5

Tabelle 9.1: Spezifikationen der in dieser Arbeit entwickelten Meßverfahren. Erklärung der Abkürzungen: RA = räumliche Auflösung; ϵ_r = relative Genauigkeit.

Anhang A

Definition der Probenbezeichnung

Im Rahmen der automatisierten Archivierung der Daten war es erforderlich, eine einheitliche Bezeichnung der untersuchten Proben zu entwickeln, die gleichzeitig eine eindeutige Identifikation gewährleistet. Dies bedeutet die Identifikation der Kristalle (d. h. Name des Herstellers, Material) und die Identifikation der Lage der Kristallprobe im Boule. In diese selbstentwickelte Kennzeichnung (s. Abbildung A.1) gehen alle wesentlichen Kristalldaten wie z.B. Material, Hersteller, Boulenummer und Probennummer ein.

Die erste Stelle der 8-stelligen Kristallkennung gibt den Kristallhersteller an, die zweite und dritte das Material, die 4 und 5 die Nummer des Boules und die letzten 3 Stellen die Nummer der Probe aus dem Boule.

Kennzeichnung der Kristalle:

Institut laut Verbundpartnerliste

Nummer des Boules

AXB01–001

Nummer der Probe

Materialkennung
X = F für Fluoride , X = O für Oxide,
X = T für ‚Übergangsmetalle' (II-VI Materialien)
X = N für nichtlineare Materialien

Es muß ein Datenblatt vom Kristallhersteller existieren, das die Position der Probe im Boule eindeutig festlegt.

Institute:

A: FEE, Idar-Oberstein, Dr. L. Ackermann
B: HAM, Schwendi-Hörenhausen, Dr. W. Hüben
C: Institut für Kristallzüchtung, Berlin, Dr. P. Reiche
D: Universität Hamburg, Institut für Laser-Physik, Prof. Dr. G. Huber
E: Universität Stuttgart, 2. Physikalisches Institut, Prof. Dr. H. J. Paus
F: Haas Lasertechnik, Schramberg, Dr. Iffländer
G: Universität Bonn, Mineralogisch-Petrologisches Institut, Dr. F. Wallrafen
H: Basel Lasertechnik
Q: ITI
R: VLOC
S: Crystal Associates
T: Casix
U: Castech
V: Cristal Laser
W: Virgo Optics, USA
X: sonstige
Y: Cleveland Crytals, Ohio, USA
Z: Creol, Orlando, USA, Dr. B. Chai

Materialien:

Fluoride

FA: Cr^{3+}:$LiSrAlF_6$
FB: $Cr^{3+:}LiCaAlF_6$
FC: Nd:YLF
FD: Er^{3+}:YLF
FE: Tm^{3+}:YLF
FF: Pr^{3+}:YLF
FG: Yb:Er:YLF

Oxide

OA: Nd:YAG
OB: Nd:YVO_4
OC: Yb:YAG
OD: Nd:Y_2O_3
OE: Nd:LSB
OF: $YAlO_3$
OG: Nd:$YAlO_3$
OH: Yb:Sc_2O_3
OV: Nd:$NaBi(WO_4)_2$
OW: $NaGd(WO_4)_2$
OX: Nd:$NaGd(WO_4)_2$
OY: Nd:$NaY(WO_4)_2$
OZ: Nd:$NaLa(WO_4)_2$

Übergangsmetalle

TA: Cr^{2+}:CdSe

Nichtlineare Materialien

NA: KTP
NB: KTA
NC: RTA
ND: $KNbO_3$

Abbildung A.1: Probenbezeichnung zur Identifikation der untersuchten Kristalle.

Anhang B

Eigenschaften der untersuchten Kristalle

Die folgende Tabelle enthält die Kristallbezeichnung, das Material, den Kristalldurchmesser d und die Kristallänge l. Außerdem sind Informationen über die Oberflächenbeschaffenheit aufgeführt. Sind Angaben über die Dotierungskonzentration verfügbar, sind diese ebenso wie Besonderheiten beim Zuchtverfahren aufgeführt. Wenn nicht anders angegeben, handelt es sich bei den Kristallen um Kristalle mit durchgebogener Grenzschicht.

Kristall	Material	$d[mm]$	$l[mm]$	Oberfläche	Bemerkung
AOA04001	Nd:YAG	26x23.5	51.5	AR1064	„flat-interface“
AOA05001	Nd:YAG	30	2.8	AR1064	
AOA06001	Nd:YAG	25	3.0	AR1064	„flat-interface“
AOA07001	Nd:YAG	40	4.3	AR1064	$C \approx 0.9$ at.%Nd
AOA07002	Nd:YAG	40	4.4	AR1064	$C \approx 1.5$ at.%Nd
AOA09003	Nd:YAG	9.7	3.6	poliert	$C_{chem.} = (0.76 \pm 0.06)$ at.%Nd
AOA09004	Nd:YAG	9.7	3.8	poliert	$C_{chem.} = (0.88 \pm 0.06)$ at.%Nd
AOA11001	Nd:YAG	35x28	8.05	AR1064	
AOA11002	Nd:YAG	5	8.0	AR1064	
AOA11003	Nd:YAG	5	8.0	AR1064	
AOA11004	Nd:YAG	5	8.0	AR1064	
AOA11005	Nd:YAG	5	8.0	AR1064	
AOA11006	Nd:YAG	5	8.0	AR1064	
AOA13001	Nd:YAG	20	1.0	AR1064	
AOA13002	Nd:YAG	20	1.0	AR1064	
AOA13003	Nd:YAG	3	6.0	AR1064	
XOA03001	Nd:YAG	4	8.0	AR1064	$C \approx 1.0$ at.%Nd
QOB03001	Nd:YVO_4	4x4	4.0	AR1064	$C \approx 0.7$ at.%Nd

Tabelle B.1: Eigenschaften und Abmessungen der untersuchten Kristalle.

Literaturverzeichnis

[Ack] L. Ackermann; „Czochralski-Kristallzüchtung von Selten-Erd-Granaten für den Einsatz in der Lasertechnik unter besonderer Berücksichtigung der Züchtung mit horizontaler Wachstumsfront"; Veröffentlichung in Vorbereitung.

[Ada61] I. Adachi, T. Madusa and S. Nishiyama; "A testing of optical materials by the Twyman type interferometer"; Atti Fond. Giorgio Ronchi Contrib. 1st. Nax. Ottica. **16**, 666-674 (1961).

[Ai91] C. Ai and J. C. Wyant; "Measurement of the inhomogeneity of a window"; Opt. Eng. **30(9)**, 1399 (1991).

[Bei94] B. Beier, J.-P. Meyn, R. Knappe, K.-J. Boller, G. Huber, R. Wallenstein; "A 180 mW Nd:$LaSc_3(BO_3)_4$ Single Frequency TEM_{00} Microchip Laser pumped by an Injection-Locked Diode-Laser Array"; Appl. Phys. B **58**, 381-388, (1994).

[Bir74] G. Birnbaum, E. Cory, and K. Gow; "Interferometric Null Method for Measuring Stress-Induced Birefringence"; Appl. Opt. **13(7)**, 1660-1669 (1974).

[Bra94] T.Brand, Dissertation, TU Berlin, Opt. Inst. **D83** (1994).

[Bra75] S. Brandt; „Datenanalyse"; Bibliographisches Institut AG, Zürich (1975).

[Bro89] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew; „Taschenbuch der Mathematik"; Frankfurt/Main 24. Aufl. (1989).

[Bro97] D. C. Brown, R. Nelson, and L. Billings; "Efficient cw end-pumped, end-cooled Nd:YVO_4 diode-pumped laser"; Appl. Opt. **36**(33), 8611-8613, (1997).

[Buc93] D. R. Buchele and D. W. Griffin; "Compact color schlieren optical system"; Appl. Opt. **32**, 4218-4222 (1993).

[Bur53] J. A. Burton, R. C. Prim, W. P. Slichter; J. Chem. Physics **21**, 1987 (1953).

[Car68] J. R. Carruthers, K. Nassau; J. Appl. Phys. **39**, 5205 (1968).

[Cas00] Produkankündigung von 2at.% dotiertem Nd:YAG der Firma Casix, China (2000).

[Che84] J. Chen, W. Sibbett, and J.I. Vukusic; "Tunable Mode-Locked Semiconductor Lasers Incorporating Brewster Angled Diodes"; Opt. Commun. **48** 427-431 (1984).

[Che94] Y.F. Chen; "Influence of thermal fracture on scaling diode end-pumped lasers to high powers"; *Conference on Lasers and Electro-Optics* **paper CTuK28**, 128, (1999).

[Coc92] E. R. Cochran, and C. Ai; "Interferometric stress birefringence measurement"; Appl. Opt. **31(31)**, 6702-6706 (1992).

[Czo18] J. Czochralski; „Ein neues Verfahren zur Messung der Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle";Z. Phys. Chemie, **92**, 219-221 (1918).

[Deb80] K. K. Deb, R. G. Buser and J. Paul; "Decay kinetics of $^4F_{3/2}$ fluorescence of $Nd3+$ in YAG at room temperature"; Appl. Optics. **Vol.20 No.7**, 1203-1206 (1981).

[Dem95] W. Demtröder; „Experimentalphysik 2, Elektrizität und Optik"; Springer-Verlag Berlin Heidelberg (1995).

[Dev83] D. P. Devor and L. G. DeShazer; "Evidence of Nd:YAG Quantum efficiency dependence on nonequivalent crystal field effects"; Opt. Commun. **Vol.46 No.2**, 97-102 (1983).

[Dex53] D. L. Dexter; "A theory'of sensitized luminiescence in solids."; J. Chem. Phys. **21**, 836 (1953).

[Die97] A. Diening, B.-M. Dicks, T. Jensen, F. Heine, E. Heumann, G. Huber; "Diode-pumped cw and quasi-cw lasing in Yb-, Tm-doped fluorides at $1.5\,\mu m$ and $2.3\,\mu m$"; Conference on Lasers and Electro-Optics; **Vol 11**, 1997 OSA Technical Digest Series (Opt. Soc. of America, Washington, DC 1997), pp 75.

[Dub98] M. A. Dubinskii, K. L. Schepler, R. Yu. Abdulsabirov, V. V. Semashko, A. K. Naumov, S. L. Korableva; "New prospective medium for tunable UV lasing with quadrupled Nd-laser pumping"; Conference on Lasers and Electro-Optics; **Vol 6**, 1998 OSA Technical Digest Series (Opt. Soc. of America, Washington, DC 1998), pp183.

[Dym94] M. Dymott, and A. I. Ferguson; "Self-mode-locked diode-pumped Cr:LiSAF laser"; Opt. Lett. **19**, 1988, (1994).

[Ebe92] K. J. Ebeling; „Integrierte Optoelektronik"; Springer, Berlin (1992).

[Erm96] F. S. Ermeneux, C. Goutaudier, R. Moncorge, R. Burlot, M. T. Cohen-Adad; "Growth and optical characterization of Nd:YVO_4 LHPG crystals"; OSA Trends in Optics and Photonics on Advanced Solid State Lasers; S. A. Payne and C. R. Pollock, eds.; Opt. Soc. of America, Washington, DC 1996, **Vol 1**, pp 503.

[Fal95] F. Falcoz, F. Balembois, P. Georges, and A. Brun; "Self-starting self-modelocked femtosecond diode-pumped Cr:LiSAF laser"; Opt. Lett. **20**, 1874 (1995).

[FEE99] „Aufnahme der Probe AOA11001 zusammen mit Boule“; aufgenommen am FEE, Idar-Oberstein (1999).

[Feu95] G. Feugnet, C. Bussac, C. Larat, M. Schwarz, and J. P. Pocholle; “High-efficient TEM_{00} Nd:YVO_4 laser longitudinally pumped by a high-power array”; Opt. Lett. **20**(2), 157-159, (1995).

[Fie89] R. A. Fields, T. S. Rose, M. E. Innocenzi, H. T. Yura, C. L. Fincher; “Diode-laser end pumped neodymium lasers: The road to high powers”; OSA proc. on Tunable Solid State Lasers **5**, 301 (1989).

[Fin66] D. Findlay and R. A. Clay; “The measurement of internal losses in 4-level lasers”; Phys. Letters **20**, 277 (1966).

[For48] Th. Förster; „Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz“; Ann. Physik, **6(2)**:57 (1948).

[For90] M. Fornoni, A. Bulou, J. M. Breteau, J. Y. Gesland, M. Rousseau,; “Neodymium concentration measurements in Nd:YLF rods: a nondestructive method”; Appl. Optics, **29(12)** (1990).

[Gav94] P. Gavrilovic, M.S. O‘Neill, J.H. Zarrabi, S. Singh and J.E. Williams; “High-power, single-frequency, diode-pumped Nd:YAG microcavity lasers at 1.3 μm”; Appl. Phys. Lett. **65**(13), 1620-1622, (1994).

[Gre95] P. S. Greenberg, R. B. Klimek and D. R. Buchele; "Quantitative rainbow schlieren deflectometry"; Appl. Opt. **34(19)**, 3810-3822 (1995).

[Gu89] B. Gu and M. Birnbaum; "Material characteristics of titanium:sapphire"; J. Opt. Soc. Am.$\dot{B}$ **6(12)**, 2338-2341 (1989).

[Hal62] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, and R. O. Carslson; Phys. Rev. Lett. **23**, 366 (1962).

[Hama] Hamamatsu Inc.; Datenblatt der Photodiode 2386-8K.

[Hay70] I. Hayashi, M. B. Panish, P. W. Foy, and S. Sumski; “Junction Lasers wich operate continously at room temperature”; Appl. Phys. Lett. 109 (1970).

[Hir99] Y. Hirano, Y. Koyata, S. Yamamoto, K. Kasahara, and T. Tajime; “208-W TEM_{00} operation of a diode-pumped Nd:YAG rod laser”; Opt. Lett. **24**(10), 679-681, (1999).

[Hofm] W. Hofmeister, Institut für Geowissenschaften, Johannes Gutenberg Universität Mainz.

[Hon58] B. Honigmann; „Gleichgewichts- und Wachstumsformen von Kristallen“; D. Steinkopff Verlag, Darmstadt (1958).

[How84] W. L. Howes; "Rainbow schlieren and its applications"; Appl. Opt. **23**, 2449-2460 (1984).

[How85] W. L. Howes; "Rainbow schlieren vs Mach-Zehnder interferometer: a comparison"; Appl. Opt. **25**, 816-822 (1985).

[Joh61] L. F. Johnson, L. Nassau; Proc. IRE **49**, 1704 (1961).

[Kle88] M .V. Klein, T. E. Furtak; „Optik“; Berlin, Heidelberg, NewYork, London, Paris, Tokyo; Springer Verlag (1988).

[Kna97] R. Knappe, G. Bitz, K.-J. Boller, R. Wallenstein; "Compact single-frequency diode-pumped Cr^{3+}:LiSAF lasers"; Opt. Commun. **143** 42-46 (1997).

[Kne91] F. K. Kneubühl, M. W. Sigrist; „Laser“; 3. Aufl., Stuttgart, Teubner-Verlag (1991).

[Koe88] W. Koechner; "Solid-State Laser Engineering"; Springer Series in Optical Sciences; Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York (1988).

[Kog71] H. Kogelnik, and C. V. Shank; "Stimulated emission in a periodic structure"; Appl. Phys. Lett. **18** 152, (1971).

[Kop94] D. Kopf, K. J. Weingarten, L. R. Brovelli, M. Kamp, and U. Keller; "Diode-pumped 100-fs passively mode-locked Cr:LiSAF laser with an antiresonant Fabry-Perot saturable absorber"; Opt. Lett. **19**, 2143 (1994).

[Kre91] U. Krengel; „Einführung in die Wahrscheinlichkeitstheorie und Statistik“; 3. Aufl.; Vieweg Verlag, Braunschweig (1991).

[Kub79] K. Kubodera, K. Otsuka; "Single-transverse-mode $LiNdP_4O_12$ slab waveguide laser; J. Appl. Phys. **50** (1979) 653.

[Dig85] M.J.F. Digonnet, C.J. Gaeta; "Theoretical analysis of optical fiber laser amplifiers and oscillators"; Appl. Opt. **24** 333 (1985).

[Kue86] A. W. Kueny, J. E. Creamer, D. G. Dawes and M. H. Randles; "Growth and characterization of Nd,Cr:GSGG laser crystals"; SPIE Laser and Nonlinear Optical Materials **681**, 38-44 (1986).

[Lau00] C. Laue; „Untersuchung neuer Resonatorkonzepte zur Frequenzabstimmung von Halbleiterlasern und Frequenzverdopplung von Halbleiterlaserstrahlung in neuartigen optisch nichtlinearen Kristallen“; Dissertation in Physik; Universität Kaiserslautern (2000).

[Lhu99] J. L'huillier; „Mehrdimensional aufgelöste Fluoreszenzlebensdauermessungen zur Charakterisierung der Dotierungsverteilung in Nd-dotierten laseraktiven Materialien“; Diplomarbeit in Physik; Universität Kaiserslautern (1999).

[Lhu01] J. A. L'huillier, G. Bitz, V. Wesemann, A. Borsutzky and R. Wallenstein; “A non destructive method for Nd concentration measurements in Nd:YAG with high spacial resolution and high accuracy”; submitted to Appl. Opt. (2001).

[Lia74] P. F. Liao and H. P. Weber; “Fluoreszence quenching of the $^4F_{3/2}$ state in Nd-doped yttrium aluminium garnet (YAG) by multiphonon relaxation”; J. of Applied Physics **Vol.45 No.7**, 2931-2934 (1974).

[Litt78] M. G. Littmann and H. J. Metcalf; “Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander”; Appl. Opt. **17**, 2224 (1978).

[Lup86] V. Lupei, A. Lupei, S. Georgescu und C. Ionescu; “Energie Transfer between Nd^{3+}-Ions in YAG”; Optics. Communication. **Vol.60 No. 1,2**, 59-63 (1986).

[Mai60] T. H. Maiman; “Stimulated optical radiation in Ruby”; Nature **187**, 493 (1960).

[Mal78] D. Malacara, ed.; ”Optical Shop Testing”; John Wiley and Sons, New York (1978).

[Mar63] D. W. Marquardt; J.Soc. Appl. Math. **Vol.11** 431-443 (1963).

[Nak73] M. Nakamura, A. Yariv, H. W. Yen, S. Somekh, and H. L. Garvin; “Optically pumped GaAs surface laser with corrugation feedback”; Appl. Phys. Lett. **22** 515, (1973).

[Neu56] A. Neuhaus; „Methoden und Ergebnisse der modernen Einkristallzüchtung“; Chem.-Ing.-Techn. **28**, 155 u. 350 (1956).

[Nig99] W. L. Nighan, Jr, N. Hodgson, E. Cheng, D. Dudley; “Quantum-limited 35 W, TEM_{00} Nd:YVO_4 laser”; *Conference on Lasers and Electro-Optics* **paper CMA1**, 1, (1999).

[Pay88] Stephen A. Payne, L. L. Chase, H. W. Newkirk, Larry K. Smith, and William F. Krupke; ”$LiCaAlF_6$:Cr^{3+} : A Promising New Solid-State Laser Material”; IEEE Journal of Q. Electron. **24**, 2243 (1988).

[Pay89] S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, and H. W. Newkirk; ”Laser performance of $LiSrAlF_6$:Cr^{3+}”; J. Appl. Phys. **66**, 1051 (1989).

[Pei88] D. Peizhen, Q. Jingwen, H. Bing, Z. Youngzong and Z. Meizhen; "Perfection and laser performances of Nd:YAG crystals grown by temperature gradient technique (TGT)"; J. of Crystal Growth **92**, 276-286 (1988).

[Peu95] P. Peuser, N.P. Schmitt; „Diodengepumpte Festkörperlaser“ aus "Springer Series in Optical Sciences"; Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York (1995).

[Pow98] R. C. Powell, "Physics of Solid-State Laser Materials", AIP Press, Springer Verlag New York (1998).

[Pre98] W. H. Press, B. P. Flannery, W. T. Vetterling, S. A. Teukolsky; "Numerical Recipes in Pascal - The Art of Scientific Computing"; Cambridge University Press S. 546-598 (1989).

[Rec78] K. Recker; „Einkristallzüchtung“ in „Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie“; 4. Aufl. Bd. 15; Verlag Chemie, Weinheim, New York (1978).

[Rese] Research Systems, Boulder, Colorado (USA); Software „idl“; Deutscher Vertrieb: Fa. Creaso.

[Scha42] H. Schardin; „Die Schlierenverfahren und ihre Anwendungen“; Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften **20** (1942).

[Sche91] Richard Scheps and Josef F. Myers, Harvey B. Serreze and Ari Rosenberg, Robert C. Morris and Marge Long; "Diode-pumped Cr:LiSrAlF laser"; Opt. Lett. **16**, 820, (1991) .

[Schw85] J. Schwider, R. Burow, K.-E. Elssner, R. Spolaczyk and J. Grzanna; "Homogeneity testing by phase sampling interferometry" Appl. Opt. **24(18)**, 3059-3061 (1985).

[SDL94] SDL Inc.; "Laser diode Operator's Manual"; Technical Notes (1994).

[Set82] G. S. Settles; "Color schlieren optics–a review of techniques and applications" in Flow Visualization, W. Merzkirch, ed.; Hemisphere, New York, **2**, 749-759 (1982).

[Sli79] J. G. Sliney Jr., K. M. Leung, M. Brinbaum, A. W. Tucker; "Lifetimes of the ${}^4F_{3/2}$ states in Nd:YVO_4 "; J.Appl. Phys. **50(5)**, 3778-3779 (1979).

[Sni61] E. Snitzer; Phys. Rev. Lett. **7**, 444 (1961).

[Sor60] P. P. Sorokin, M. J. Stevenson; Phys. Rev. Lett. **5**, 557 (1960).

[Spec] Spectra-Physics Inc., "Technical Data Sheet, FCbar OEM cw-Laser"; (1998).

[Sve89] O. Svelto; "Principles of Lasers"; third edition; Translation of: "Principi dei laser"; Plenum Press New York and London (1989).

[The79] P. S. Theocaris and E. E. Gdoutos; "Matrix Theory of Photoelasticity"; Springer-Verlag New-York Berlin Heidelberg (1979).

[Ung92] H.-G. Unger; „Optische Nachrichtentechnik"; Hüthig Buch Verlag, Heidelberg (1992).

[Vas71] L. A. Vasil'ev; "Schlieren Methods"; Israel program for scientific translations; New York; Jerusalem; London (1971).

[vLo01] P. v. Löwis of Menar; „Kalorimetrische Bestimmung des Absorptionsgrades laseraktiver und optisch nichtlinearer Materialien"; Diplomarbeit in Physik, Universität Kaiserslautern (2001).

[Wes01] V. Wesemann; Dissertation in Physik, Universität Kaiserslautern (2001).

[Wil73] K.-Th. Wilke; „Kristallzüchtung"; VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin (1973).

[Wil68] J. B. Willis and M. Dixon; "Assessment and control of imperfections in crystals for laser devices"; J. of Crystal Growth **3,4**, 236-240 (1968).

[Wil98] U. Willamowski, D. Ristau and E. Welsch, "Measuring the absolute absorptance of optical laser components"; Appl. Opt. **37**(36), 8362-8370 (1998).

[Zha97] X. X. Zhang, W.-L. Zhou, P. Hong, D. B. Darby B. H. T. Chai; "Visible laser applications of Nd^{3+}-doped $Sr_5(PO_4)_3F$"; Conference on Lasers and Electro-Optics; **Vol 11**, 1997 OSA Technical Digest Series Opt. Soc. of America, Washington, DC; pp 521 (1997).

[Zho97] W.-L. Zhou, X. X. Zhang, B. H. T. Chai; "Laser Oscillation at 1059 nm of a New Laser Crystal: Nd^{3+} doped $NaY(WO_4)_2$"; OSA Trends in Optics and Photonics on Advanced Solid State Lasers; C. R. Pollock and W. R. Bosenberg, eds.; Opt. Soc. of America, Washington, DC; **Vol 10**, pp 192 (1997).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Die nachfolgende Aufzählung erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit, und namentlich nicht genannte Personen mögen mir dies verzeihen.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. R. Wallenstein für seinen frühzeitigen Einsatz für dieses Projekt, wodurch diese Arbeit erst ermöglicht wurde, und für die ausgezeichnete Betreuung und Unterstützung jeder Art.

Bei Frau Dr. Annette Borsutzky möchte ich mich für die stetige Diskussionsbereitschaft, die vielen Anregungen während der Durchführung dieser Arbeit und nicht zuletzt für die kritische Durchsicht des vorliegenden Textes bedanken.

Herzlichen Dank an die Firma FEE GmbH, Idar Oberstein für die Bereitstellung und Bearbeitung unzähliger Proben, insbesondere an Herrn Dr. L. Ackermann und Herrn Dr. D. Rytz für viele hilfreiche Diskussionen und Unterstützung auf dem Gebiet der Kristallzucht.

Herrn Peter Bohnert, Herrn Peter Frohnhöfer und Herrn Karl Köhl danke ich für die technische Hilfe bei der Planung und Anfertigung der Versuchsaufbauten sowie der Elektronik.

Ganz besonders möchte ich den Mitarbeitern des „LAKRIMAT“-Projektes, Herrn Volker Wesemann, Johannes L'huillier, Lars Frieß und Patric von Löwis of Menar für die schöne Zusammenarbeit im Labor und für den vielfältigen Ideenaustausch danken.

Mein Dank gilt allen Mitgliedern und Ehemaligen der Arbeitsgruppe Wallenstein für jegliche Hilfe und Unterstützung.

Bei Marion Iselborn und Wulf Seiffert möchte ich mich für die Durchsicht des Manuskriptes bedanken.

Sonja George danke ich für ihre Unterstützung beim Abschluß dieser Arbeit und für ihr Verständnis.