

**Ytterbium-dotierte Borate und Vanadate  
mit großer Verstärkungsbandbreite  
als aktive Materialien im Scheibenlaser**

**Dissertation**

zur Erlangung des Doktorgrades  
des Department Physik  
der Universität Hamburg

vorgelegt von

**Christian Kränkel**

aus Hamburg-Wilhelmsburg

Hamburg  
2008

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. G. Huber Prof. Dr. U. Keller
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. G. Huber Priv. Doz. Dr. V. M. Baev
Datum der Disputation:	27.08.2008
Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Dr. K. Petermann
Dekan der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften:	Prof. Dr. A. Frühwald

# Inhalt

C. Kränkel: *Ytterbium-dotierte Borate und Vanadate mit großer Verstärkungsbandbreite als aktive Materialien im Scheibenlaser*

Gegenstand dieser Arbeit ist die Untersuchung der breitbandig emittierenden Ytterbium-dotierten Borate  $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  (LSB) und  $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  (YCOB) sowie der Vanadate  $\text{YVO}_4$  (YVO) und  $\text{LuVO}_4$  (LuVO) in Hinblick auf ihren Einsatz als aktives Material im Scheibenlaser.

In den spektroskopischen Untersuchungen wurden die Lebensdauern des angeregten Zustandes von  $\text{Yb}^{3+}$  in diesen Wirtsgittern mittels der Pinhole-Methode bestimmt. Für Yb:LuVO wurde im Rahmen dieser Arbeit anhand der Analyse der bei tiefen Temperaturen aufgenommenen Absorptions- und Fluoreszenzspektren erstmals die Lage der Stark-Niveaus bestimmt. Aufgrund der hierbei gewonnenen Erkenntnisse erfolgte eine Neuinterpretation der Tieftemperatur-Spektren von Yb:YVO. Mit den ebenfalls ermittelten Absorptionswirkungsquerschnitten wurden sowohl für die Vanadate als auch für die untersuchten Borate über die Reziprozitäts-Relation die Emissionswirkungsquerschnitte bestimmt. Die Resultate stehen in guter Übereinstimmung mit den durch Einsetzen der experimentell bestimmten Lebensdauern in die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung ermittelten Werten.

Im Laufe dieser Arbeit konnte mit allen untersuchten Materialien erstmals Lasertätigkeit im Scheibenlaseraufbau realisiert werden. Dabei wurden die bisher in der Literatur verzeichneten Ausgangsleistungen durch die Anwendung dieses Laserkonzeptes teilweise um ein Vielfaches übertroffen. Die höchsten Ausgangsleistungen wurden mit 25 at.% Yb:LSB in a-cut Orientierung erzielt. Unter einer Pumpleistung von 95 W konnten 40 W Ausgangsleistung realisiert werden. Der maximale mit diesem Material erzielte differentielle Wirkungsgrad betrug 55%. Mit 15 at.% Yb:YCOB in X-cut Orientierung wurden bis zu 26 W Ausgangsleistung unter 45 W Pumpleistung, resultierend in einem sehr hohen optisch-optischen Wirkungsgrad von 58%, erzielt. Der differentielle Wirkungsgrad betrug hier 67%. Die mit den Vanadaten erzielten Laserresultate blieben hinter diesen Werten zurück. Dies ist auf eine unzureichende Kristallqualität und sehr hohe Schwellpumpleistungen für den Laserbetrieb, die in der geringen Stark-Aufspaltung dieser Materialien begründet liegen, zurückzuführen. Mit 1,6 at.% Yb:YVO wurden 10 W Ausgangsleistung bei 43% differentiellem Wirkungsgrad erzielt, mit 1,5 at.% Yb:LuVO lagen die maximale Ausgangsleistung bei 13,1 W und der differentielle Wirkungsgrad bei 51%. In beiden Fällen betrug die eingestrahlte Pumpleistung etwa 40 W.

Weiterhin wurden Experimente zur spektralen Durchstimmbarkeit dieser Materialien im Scheibenlaseraufbau durchgeführt. Die besten Ergebnisse wurden dabei mit Yb:LSB-Kristallen erzielt. Bei einer Pumpwellenlänge von 973 nm konnte die Laserwellenlänge in einem spektralen Bereich von 117 nm zwischen 988 nm und 1105 nm kontinuierlich durchgestimmt werden. Über einen Wellenlängenbereich von nahezu 70 nm lag die Ausgangsleistung dabei über 10 W bei einer Pumpleistung von 50 W. Auch mit Yb:YCOB konnte über 90 nm kontinuierliche Durchstimmbarkeit bei hohen Ausgangsleistungen erzielt werden, während die mit den Vanadaten erzielten Resultate hinter den anhand der spektroskopischen Untersuchungen erwarteten Werten zurückblieben. Die Nutzbarkeit der großen Verstärkungsbandbreite von Yb:LSB zur Erzeugung kurzer Pulse wurde in Kooperation mit dem Max-Born-Institut in Berlin in ersten Experimenten zum Modenkoppeln dieses Materials nachgewiesen. Die minimal erzielten Pulsdauern von 58 fs gehören zu den kürzesten jemals mit  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien realisierten.

# Abstract

C. Kränkel: *Ytterbium-doped Borates and Vanadates with large gain bandwidths as active media in the thin-disk laser*

The subject of this thesis is the examination of the broad-band emitting Ytterbium-doped Borates  $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  (LSB) and  $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  (YCOB) as well as the Vanadates  $\text{YVO}_4$  (YVO) and  $\text{LuVO}_4$  (LuVO) with regard to their suitability as gain-materials in the thin-disk laser setup.

In this work extensive spectroscopic investigations have been carried out, including the determination of the excited state lifetimes of  $\text{Yb}^{3+}$  in these hosts applying the pinhole-method. The Stark energy levels of the  $\text{Yb}^{3+}$ -ion in Yb:LuVO have been identified for the first time by the analysis of low-temperature absorption and fluorescence spectra. Based on these results the low-temperature spectra of Yb:YVO were reinterpreted. The emission cross sections for all investigated materials were obtained from the knowledge about the Stark splitting of the energy levels and the measured absorption-spectra by implementing the reciprocity-relation. These results are in good agreement with the emission cross sections calculated from the Füchtbauer-Ladenburg-equation using the experimentally determined lifetimes and fluorescence spectra.

For the first time laser operation was realized in the thin-disk laser setup with all examined materials. In these experiments power-scaling was demonstrated for the investigated materials, significantly exceeding previous results in the literature for the maximum laser output powers. The highest output power was obtained with 25 at.% Yb:LSB in **a**-cut orientation: With 95 W of launched pump power, 40 W of laser output power could be realized and slope efficiencies of up to 55% were obtained. Using 15 at.% Yb:YCOB in **X**-cut orientation, 26 W of output power for 40 W of incident pump power were generated, resulting in a high optical-to-optical efficiency of 58%, while the slope efficiency reached 67%. The results for the  $\text{Yb}^{3+}$ -doped Vanadates fell short of these values owing to insufficient crystal quality and compared to the Borates much higher lasing thresholds in this setup. Those high lasing-thresholds can be explained by the low Stark splitting of the  $\text{Yb}^{3+}$ -manifolds in these hosts. In the case of 1.6 at.% Yb:YVO, 10 W of output power with a slope efficiency of 43% was obtained. An output power of 13.1 W with a slope efficiency of 51% was reached with 1.5 at.% Yb:LuVO. In both cases the launched pump power was about 40 W.

Furthermore, spectral tuning experiments were performed in the thin-disk laser setup. The best results were obtained with Yb:LSB, which demonstrated an extremely broad continuous tuning range of 117 nm bandwidth in the spectral range from 988 nm to 1,105 nm at a pumping wavelength of 973 nm. With 50 W of incident pump power the output power exceeded 10 W covering a wavelength range of almost 70 nm. A tuning range of more than 90 nm at high output powers was achieved with Yb:YCOB, whereas the tunability of the  $\text{Yb}^{3+}$ -doped Vanadates fell short of the values estimated from the spectroscopic properties.

In cooperation with the Max-Born-Institut in Berlin, the broad amplification bandwidth of Yb:LSB was exploited in first modelocking-experiments. The obtained pulse lengths of 58 fs are among the shortest that have ever been realized with  $\text{Yb}^{3+}$ -doped materials.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>VIII</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>IX</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation . . . . .	1
1.2 Gliederung der Arbeit . . . . .	5
<b>2 Grundlagen</b>	<b>7</b>
2.1 Energiezustände von Lanthanid-Ionen . . . . .	7
2.1.1 Das freie Lanthanid-Ion . . . . .	7
2.1.2 Kristallfeldaufspaltung . . . . .	9
2.2 Wechselwirkung von Strahlung mit Materie . . . . .	10
2.2.1 Intraionische Prozesse . . . . .	10
2.2.2 Interionische Prozesse . . . . .	15
2.2.3 Weitere strahlende Prozesse . . . . .	17
2.2.4 Das trivalente Ytterbium in der Spektroskopie . . . . .	18
2.3 Grundlagen der Laserphysik . . . . .	19
2.3.1 Quasi-Drei-Niveau-Laser . . . . .	20
2.3.2 Vier-Niveau-Laser . . . . .	21
2.3.3 Drei-Niveau-Laser . . . . .	21
2.3.4 Ratengleichungen im Dauerstrichbetrieb . . . . .	21
2.3.5 Spektral durchstimmbarer Laserbetrieb . . . . .	22
2.3.6 Das trivalente Ytterbium als Laser-Ion . . . . .	23
<b>3 Das Scheibenlaserkonzept</b>	<b>25</b>
3.1 Der Scheibenlaser . . . . .	25
3.2 Analytisches Modell des Scheibenlasers . . . . .	28
3.2.1 Das “nulldimensionale” Modell . . . . .	29
3.3 Anforderungen an das aktive Material im Scheibenlaser . . . . .	31
3.3.1 Das Wirtsmaterial . . . . .	31
3.3.2 Das Dotierion . . . . .	32
3.3.3 Spezielle Anwendungen . . . . .	33
3.4 Bisher im Scheibenlaser verwendete kristalline aktive Materialien . . . . .	34
<b>4 Die verwendeten Wirtsmaterialien</b>	<b>37</b>
4.1 Kristallographische Eigenschaften der verwendeten Wirtsmaterialien . . . . .	37
4.1.1 Borate . . . . .	37

4.1.2	Vanadate . . . . .	42
4.2	Messung der Wärmeleitfähigkeit . . . . .	45
4.3	Bisher mit den untersuchten Materialien erzielte Laserresultate . . . . .	50
4.3.1	Borate . . . . .	50
4.3.2	Vanadate . . . . .	51
<b>5</b>	<b>Spektroskopische Untersuchungen</b>	<b>53</b>
5.1	Die untersuchten Proben . . . . .	53
5.1.1	Yb:LSB . . . . .	53
5.1.2	Yb:YCOB . . . . .	54
5.1.3	Yb:YVO . . . . .	55
5.1.4	Yb:LuVO . . . . .	56
5.2	Vorstellung der Mess- und Auswertungsverfahren . . . . .	56
5.2.1	Raumtemperatur-Spektroskopie . . . . .	57
5.2.2	Verstärkungswirkungsquerschnitte . . . . .	60
5.2.3	Fluoreszenzdynamik . . . . .	61
5.2.4	Tiefemperaturspektroskopie . . . . .	65
5.3	Auswertung und Messergebnisse . . . . .	66
5.3.1	Fluoreszenzdynamik . . . . .	67
5.3.2	Absorptionswirkungsquerschnitte . . . . .	77
5.3.3	Tiefemperaturspektroskopie . . . . .	82
5.3.4	Emissionswirkungsquerschnitte . . . . .	91
5.3.5	Verstärkungswirkungsquerschnitte . . . . .	94
5.3.6	Fehlerbetrachtung . . . . .	99
5.4	Schlussfolgerungen aus den spektroskopischen und kristallographischen Eigenschaften . . . . .	100
<b>6</b>	<b>Laserexperimente</b>	<b>103</b>
6.1	Die Pumpquellen . . . . .	103
6.1.1	Die JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode . . . . .	103
6.1.2	Die JOLD-140-CAXF-6A-Laserdiode . . . . .	104
6.2	Präparation der Laserkristalle . . . . .	104
6.2.1	Herstellung . . . . .	104
6.2.2	Scheibendicke . . . . .	104
6.2.3	Politur . . . . .	106
6.2.4	Beschichtung . . . . .	107
6.2.5	Kontaktierung . . . . .	110
6.3	Leistungskalierung im Scheibenlaseraufbau . . . . .	112
6.3.1	Yb:LSB . . . . .	112
6.3.2	Yb:YCOB . . . . .	117
6.3.3	Yb:YVO und Yb:LuVO . . . . .	120
6.4	Abschätzung der resonatorinternen Verluste . . . . .	124
6.5	Spektrale Durchstimbarkeit im Scheibenlaseraufbau . . . . .	126
6.6	Modengekoppelte Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator . . . . .	131
6.7	Fazit der Laserexperimente . . . . .	133

<b>7</b>	<b>Resümee</b>	<b>135</b>
7.1	Zusammenfassung . . . . .	135
7.2	Ausblick . . . . .	138
<b>A</b>	<b>Herstellung von Kristallen mittels der Czochralski-Methode</b>	<b>139</b>
<b>B</b>	<b>Fluoreszenzlebensdauern weiterer untersuchter Kristalle</b>	<b>141</b>
<b>C</b>	<b>Wirkungsquerschnittsspektren von Yb:YAG</b>	<b>145</b>
<b>D</b>	<b>Auflistung der in dieser Arbeit charakterisierten Scheibenlaserkristalle und ihrer Leistungsparameter</b>	<b>147</b>
<b>E</b>	<b>Quellen für die in Tab. 4.3 genannten Daten</b>	<b>151</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>152</b>
	<b>Veröffentlichungen</b>	<b>167</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>175</b>



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Verschiedene Laserkonzepte für hohe Ausgangsleistungen. . . . .	2
2.1	Möglichkeiten der intraionischen Wechselwirkung von Strahlung mit Materie. .	10
2.2	Energiemigration und Migration zu einer Störstelle. . . . .	16
2.3	Kreuzrelaxation und Aufwärtskonversion. . . . .	17
2.4	Schematische Darstellung eines longitudinal gepumpten Resonators. . . . .	19
2.5	Vier-Niveau-Laser-, Drei-Niveau-Laser- & Quasi-Drei-Niveau-Laser-Schemata.	20
3.1	Schematische Darstellung des Scheibenlaseraufbaus. . . . .	25
3.2	Ansicht der Scheibenlaser-Pumpoptik entlang der Resonatorachse. . . . .	26
3.3	Absorption in Abhängigkeit der Scheibendicke im Scheibenlaser. . . . .	27
3.4	Räumliche Verteilung des Pumplichtes im Scheibenlaserkristall. . . . .	28
4.1	Einheitszelle von LSB. . . . .	38
4.2	Koordination der Kationenplätze im LSB-Gitter. . . . .	39
4.3	Einheitszelle von YCOB. . . . .	41
4.4	Orientierung der optischen zur kristallographischen Indikatrix in YCOB. . . . .	42
4.5	Einheitszelle von YVO und LuVO. . . . .	43
4.6	Dotierungsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Yb:YVO und Yb:LSB. . .	47
5.1	Ablaufschema zur Spektroskopie. . . . .	57
5.2	Messaufbau der Pinhole-Methode zur Fluoreszenzlebensdauer-Messung. . . . .	62
5.3	Vergrößerte Darstellung des relevanten Volumens bei der Pinhole-Methode. . .	63
5.4	Messaufbau für die Tieftemperaturspektroskopie. . . . .	66
5.5	Fluoreszenz-Abklingkurven verschieden Yb <sup>3+</sup> -dotierter Yb:LSB-Kristalle. . .	68
5.6	Fluoreszenzlebensdauern von 3 at.% Yb:LSB. . . . .	69
5.7	Fluoreszenzlebensdauern von 10 at.% Yb:LSB. . . . .	70
5.8	Dotierungsabhängigkeit der Fluoreszenzlebensdauern in Yb:LSB. . . . .	71
5.9	Fluoreszenzlebensdauer von 15 at.% Yb:YCOB. . . . .	72
5.10	Fluoreszenz-Abklingkurven verschieden Yb <sup>3+</sup> -dotierter YVO-Kristalle. . . . .	73
5.11	Dotierungsabhängigkeit der Fluoreszenzlebensdauer in Yb:YVO und Yb:LuVO.	74
5.12	Fluoreszenz-Abklingkurven verschieden Yb <sup>3+</sup> -dotierter LuVO-Kristalle. . . . .	76
5.13	Fluoreszenzlebensdauern von Yb:LuVO. . . . .	76
5.14	Absorptionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien. . . . .	80
5.15	Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien. . . . .	81
5.16	Tieftemperaturspektren von Yb:LSB. . . . .	84
5.17	Tieftemperaturspektren von Yb:YCOB. . . . .	85
5.18	Tieftemperaturspektren von Yb:YVO und Yb:LuVO. . . . .	86

5.19	Barycenter-Auftragung der Stark-Aufspaltung von $\text{Yb}^{3+}$ in einigen Wirtsgittern.	90
5.20	Vergleich errechneter und gemessener Fluoreszenzspektren von Yb:LSB. . . . .	92
5.21	Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:LSB. . . . .	94
5.22	Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:YCOB. . . . .	95
5.23	Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:LuVO und Yb:YVO. . . . .	96
6.1	Emissionsspektrum der verwendeten 50 W-Pumpdiode. . . . .	105
6.2	Ausbleichen der untersuchten Materialien im Scheibenlaser. . . . .	106
6.3	Absorption der untersuchten Materialien im Scheibenlaser. . . . .	107
6.4	Schichtenfolge von HR- und AR-Beschichtung der Scheibenlaserkristalle. . . . .	108
6.5	Reflexion von HR- und AR-Beschichtung der Scheibenlaserkristalle. . . . .	109
6.6	Wärmesenken in verschiedenen Bearbeitungszuständen. . . . .	110
6.7	Leistungskurven für Yb:LSB-Kristalle im Scheibenlaser und typisches Laserspektrum. . . . .	113
6.8	Abhängigkeit des Wirkungsgrades vom Auskoppelgrad für Yb:LSB. . . . .	115
6.9	Leistungskurven für verschiedene Yb:LSB-Kristalle mit der 140 W-Pumpdiode und Laserspektrum. . . . .	116
6.10	Beschädigter Yb:LSB-Scheibenlaserkristall. . . . .	116
6.11	Differentieller Wirkungsgrad in Abhängigkeit der Dicke für Yb:LSB. . . . .	117
6.12	Leistungskurven für Yb:YCOB im Scheibenlaser. . . . .	118
6.13	Wirkungsgrad von Yb:YCOB in Abhängigkeit von Auskoppelgrad und Dicke. . . . .	119
6.14	Mikroskopaufnahmen verschiedener Yb:YVO-Kristalle. . . . .	120
6.15	Leistungskurven für Yb:YVO und Yb:LuVO im Scheibenlaser. . . . .	121
6.16	Laserwellenlängen in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad in Yb:YVO und Bistabilität von Yb:LuVO an der Schwelle. . . . .	122
6.17	Verlustbestimmung nach Findlay-Clay für Yb:LSB und Vergleich mit den anhand der Effizienz bei $T = 0,4\%$ abgeschätzten Verlusten. . . . .	125
6.18	Aufbau zum Durchstimmen im Scheibenlaser. . . . .	127
6.19	Spektrale Durchstimbarkeit von Yb:LSB im Scheibenlaser. . . . .	128
6.20	Verhalten der Laser-Polarisation beim Durchstimmen von Yb:LSB. . . . .	129
6.21	Spektrale Durchstimbarkeit von Yb:YCOB im Scheibenlaser. . . . .	130
6.22	Spektrale Durchstimbarkeit von Yb:YVO und Yb:LuVO im Scheibenlaser. . . . .	131
6.23	Resonator und Autokorrelationskurve beim Modenkoppeln von Yb:LSB. . . . .	132
6.24	Pumpwellenlängenabhängigkeit der Laserleistung der untersuchten Materialien. . . . .	133
A.1	Czochralski-Züchtungsaufbau. . . . .	139
C.1	Absorptions-, Emissions- und Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:YAG. . . . .	145

# Tabellenverzeichnis

1.1	Wichtige Yb <sup>3+</sup> -dotierte Materialien zur Erzeugung kurzer Pulse. . . . .	4
4.1	Literaturdaten der thermischen Eigenschaften von Nd:YVO . . . . .	45
4.2	Temperaturleitfähigkeiten der untersuchten Proben. . . . .	46
4.3	Kristallographische Daten der Wirtsmaterialien. . . . .	49
5.1	Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit zur Verfügung stehenden Kristalle. . .	54
5.2	Lebensdauern von verschieden Yb <sup>3+</sup> -dotiertem Yb:YVO. . . . .	75
5.3	Parameter der für die Absorptionsmessungen verwendeten Kristallproben. . . .	77
5.4	Spektroskopische Daten der untersuchten Yb <sup>3+</sup> -dotierten Kristalle. . . . .	98
6.1	Brechzahlen von Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> und SiO <sub>2</sub> , der untersuchten Wirtsmaterialien und YAG. .	108
B.1	Lebensdauern weiterer Yb <sup>3+</sup> -dotierter Borate. . . . .	141
B.2	Lebensdauern verschiedener Yb <sup>3+</sup> -dotierter Wolframate. . . . .	142
B.3	Lebensdauern weiterer Yb <sup>3+</sup> -dotierter Kristalle. . . . .	142
B.4	Lebensdauern Tm <sup>3+</sup> -dotierter Wolframate und LuVO. . . . .	143
D.1	Inventarliste der Yb:YVO-Scheibenlaserkristalle. . . . .	147
D.2	Inventarliste der Yb:LuVO-Scheibenlaserkristalle. . . . .	147
D.3	Inventarliste der Yb:LSB-Scheibenlaserkristalle. . . . .	148
D.4	Inventarliste der Yb:YCOB-Scheibenlaserkristalle. . . . .	149
E.1	Quellen für die kristallographischen Daten der Wirtsmaterialien. . . . .	151



# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation

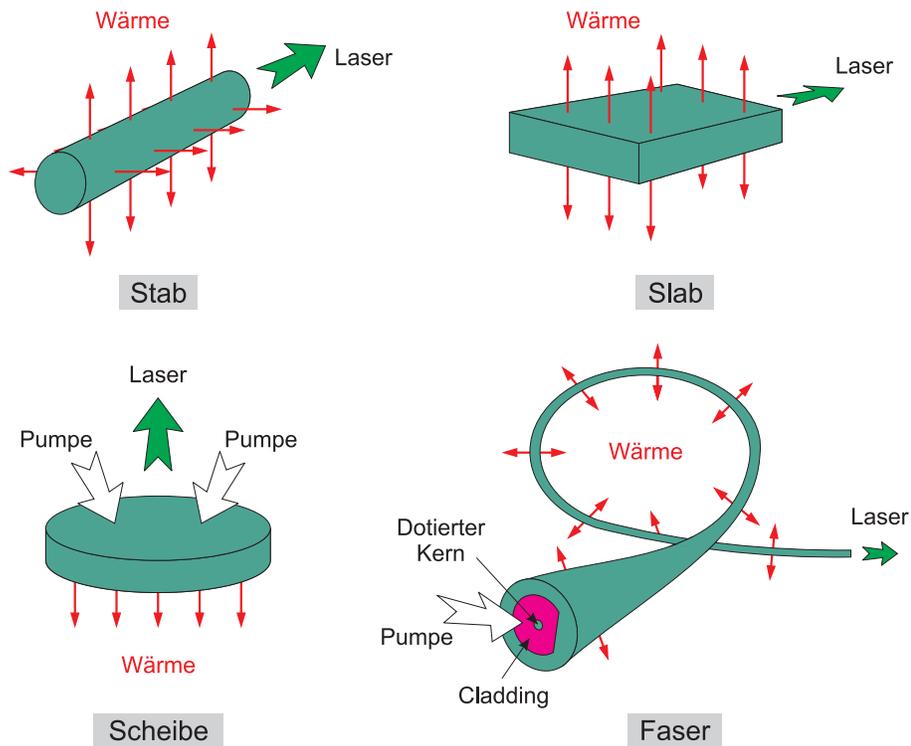
Laser mit hohen Ausgangsleistungen finden insbesondere in der Materialbearbeitung, wo sie beispielsweise zum Schweißen, Schneiden, Bohren oder zur Oberflächenstrukturierung eingesetzt werden können, Anwendung. Aber auch in vielen anderen Bereichen besteht Nachfrage nach Hochleistungslasern: In der Grundlagenforschung ermöglichen sie den Zugang zu Energiedichten, die auf andere Weise kaum erreicht werden können und gelten als mögliche Energiequellen zum Auslösen einer Kernfusion. In der Dentalmedizin werden gepulste Laser mit hohen Pulsenergien unter anderem zum Abtrag von kariöser Zahnschicht verwendet. Gerade in der Materialbearbeitung wurden dabei bis vor einigen Jahren hauptsächlich CO<sub>2</sub>-Laser eingesetzt. Diese haben jedoch den großen Nachteil, dass es für die emittierte Wellenlänge von etwa 10 µm keine ausreichend dämpfungsarmen Materialien gibt. Aus diesem Grund kann die Strahlung nicht in Fasern geführt werden und muss über aufwändige Spiegelanordnungen zum Werkstück geführt werden.

Vor diesem Hintergrund wurden in der Vergangenheit verschiedene Konzepte entwickelt, um die Ausgangsleistung von Festkörperlaser mit Emissionswellenlängen im nahen Infrarotbereich zu skalieren. Der Bedarf an geeigneten Pumpquellen wurde für viele Anwendungen durch die in den letzten 15 Jahren rapide Weiterentwicklung von Hochleistungslaserdioden gedeckt. Diese sind jedoch aufgrund ihrer begrenzten Strahlqualität selbst ungeeignet für die meisten der obengenannten Anwendungen. Eine weitere große Herausforderung bei der Entwicklung von Hochleistungslasern besteht im effizienten Abtransport der prinzipiell unvermeidbaren Verlustwärme. Eine unzureichende Wärmeabfuhr führt zur Erwärmung des aktiven Mediums und über die Ausbildung einer thermischen Linse im Lasermedium oder spannungsinduzierte Doppelbrechung in vielen Fällen zu einer dramatischen Verschlechterung von Effizienz und Strahlqualität. Im Extremfall kann es durch starke Verspannungen oder das Erreichen des Schmelzpunktes zu einer Zerstörung des Lasermediums kommen.

Um die Wärmeabfuhr zu optimieren, liegt es nahe, das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen zu vergrößern. Einige der zu diesem Zwecke entwickelten Konzepte zur Leistungsskalierung von Festkörperlaser bei effizienter Wärmeabfuhr sind in Abb. 1.1 dargestellt. Dabei stellt keines der im Folgenden kurz vorgestellten Konzepte ein universell einsetzbares System dar, welches für jede Art von Anwendung die optimalen Eigenschaften aufweist.

Mit einer stabförmigen Geometrie des Lasermediums (Abb. 1.1 oben links) ist es möglich, mehrere Kilowatt an Ausgangsleistung zu generieren [Bru05]. Allerdings ist die Strahlqualität begrenzt, da durch Wärmeabfuhr über die Mantelfläche des Stabes stets ein Wärmegradient in radialer Richtung entsteht, der die Ausbildung einer thermischen Linse begünstigt.

Eine plattenförmige Geometrie (engl. “*slab*”) des aktiven Mediums (Abb. 1.1 oben rechts) ermöglicht eine sehr effiziente Wärmeabfuhr über die Seitenflächen. Auch das optische Pumpen kann über diese Seitenflächen erfolgen, was besonders für blitzlampengepumpte Systeme einen



**Abbildung 1.1:** Schematische Darstellung verschiedener Laserkonzepte für hohe Ausgangsleistungen mit unterschiedlichen Geometrien des aktiven Mediums zur Verbesserung der Wärmeabfuhr aus dem aktiven Medium.

großen Vorteil darstellt. Um thermische Effekte im aktiven Medium zu unterdrücken, muss dessen Länge in dieser Dimension jedoch so gering wie möglich gehalten werden, wodurch die Absorptionseffizienz beschränkt ist. Pumpen von der Stirnseite führt hingegen aufgrund der inhomogenen Verteilung der Pumpleistung zu einem Gradienten der Temperatur entlang der Längsachse. Dennoch sind mit diesem Konzept bei relativ guten Strahlqualitäten Ausgangsleistungen von 5 kW und mehr realisierbar [Las05]; theoretische Modellierungen gehen sogar von mehr als 100 kW aus [Rut00].

Ein sehr effizientes und für kommerzielle Anwendungen bereits weitverbreitetes Verfahren zur Erzeugung von sehr hohen Ausgangsleistungen bei guten Strahlqualitäten ist die Verwendung von seltenerd-dotierten optischen Fasern. In diesen erfolgt die Kühlung über die gesamte Mantelfläche. Um die Anforderungen an die Strahlqualität der verwendeten Pumpquellen zu verringern, wird dabei häufig nicht direkt in das eigentliche optisch aktive Medium von teils nur einigen Mikrometern Durchmesser eingekoppelt, sondern wie in Abb. 1.1 unten rechts angedeutet in ein das aktive Medium umgebendes Mantelvolumen (engl. “cladding”). Dennoch sind die Anforderungen an die Pumpquellen für Faserlaser in der Regel vergleichsweise hoch. Systeme, die auf diese Weise maximale Ausgangsleistungen von mehreren 10 kW und 2 kW bei beugungsbegrenzter Strahlqualität erzeugen, sind heutzutage jedoch bereits kommerziell erhältlich [IPG08]. Nachteile von Faserlasern ergeben sich aus der großen Länge des aktiven Mediums, durch welche bei sehr hohen Intensitäten – wie sie unter anderem im gepulsten Betrieb auftreten – nichtlineare Effekte einen größeren Einfluss haben als in den wesentlich kürzeren Volumenkristallen. Auch für polarisierte Laseremission bei hohen Ausgangsleistungen sind Faserlaser nur bedingt geeignet, da der Polarisationszustand des emittierten Lichtes häufig sehr

empfindlich auf Temperaturänderungen und Verbiegung der Faser reagiert.

Ein weiteres, verglichen mit den bisher vorgestellten Geometrien relativ junges Konzept stellt der 1994 von A. Giesen und seinen Mitarbeitern am Stuttgarter Institut für Strahlwerkzeuge entwickelte Scheibenlaseraufbau [Gie94] (Abb.1.1 unten links) dar. In diesem Aufbau wird eine dünne Scheibe als aktives Medium verwendet, deren Rückseite hochgradig verspiegelt für Pump- und Laserwellenlänge ist. Die Wärmeabfuhr erfolgt über diese verspiegelte Rückseite, so dass ein nahezu ausschließlich eindimensionaler Wärmegradient entlang der Laserachse vorliegt und die Strahlqualität wesentlich geringer als bei anderen Laserkonzepten durch die Ausbildung einer thermischen Linse oder Depolarisationsverluste beeinflusst wird. So können mit dieser Anordnung auf einfache Weise Ausgangsleistungen von mehreren hundert Watt bei beugungsbegrenzter Strahlqualität realisiert werden. Durch die Vergrößerung des Pumpstrahldurchmessers und der Lasermode auf dem Kristall lässt sich die Ausgangsleistung skalieren. Bisher wurden unter Verwendung einer Scheibe in diesem Aufbau 5,3 kW Ausgangsleistung erzielt. Durch Einsatz mehrerer im Resonator nacheinander durchlaufener Scheiben konnte die Ausgangsleistung sogar auf nahezu 10 kW gesteigert werden, wobei davon auszugehen ist, dass auch diese Werte in Zukunft noch übertroffen werden können [Gie07a]. Die Effizienz dieses Systems ist dabei verglichen mit anderen Laserkonzepten relativ hoch, da durch mehrfaches Hindurchführen der Pumpstrahlung durch das aktive Medium trotz dessen geringer Länge ein sehr großer Anteil der Pumpleistung absorbiert wird.

Der bei Weitem größte Teil der Untersuchungen an diesem Laseraufbau wurde bisher mit  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (kurz Yb:YAG) als aktivem Material betrieben. Dabei ist dreiwertiges Ytterbium aufgrund des einfachen Energieniveauschemas und des niedrigen Quantendefektes ein laseraktives Ion, das prinzipiell sehr gut für effiziente Lasersysteme bei hohen Leistungen einsetzbar ist. Auch YAG ist als Wirtsmaterial für Hochleistungsanwendungen aufgrund seiner vorteilhaften thermomechanischen Eigenschaften gut geeignet. Mit dieser Kombination wurden bisher Effizienzen von bis zu 65% in Bezug auf die eingestrahlte Leistung realisiert. Während die Eigenschaften von Yb:YAG in Bezug auf die reine Skalierung der Ausgangsleistung bei hohen Effizienzen also offensichtlich ausgezeichnet sind, weist dieses Material aufgrund seiner vergleichsweise geringen Verstärkungsbandbreite Schwächen in einigen anderen Anwendungsbereichen auf.

Eine große Verstärkungsbandbreite ist beispielsweise unabdingbar für breitbandig spektral durchstimmbaren Laserbetrieb. Durchstimmbare Laser finden unter anderem in der hochauflösenden Spektroskopie und Nachrichtenübertragung ihre Anwendungen. Im frequenzverdoppelten Betrieb eröffnet sich gerade unter Verwendung von trivalentem Ytterbium als Laserion der unter anderem für Displayanwendungen interessante Bereich um 500 nm bis 550 nm im grünen sichtbaren Spektralbereich. Bei hohen Ausgangsleistungen und guter Strahlqualität ist selbst die vierte Harmonische der Grundwelle mit vernünftiger Effizienz erzeugbar [Süd08]. Auch hier eröffnet die spektrale Durchstimbarkeit den Zugang zu ausgewählten Wellenlängen wie beispielsweise der zur Laserkühlung von Antiwasserstoff benötigten Quecksilber-Anregungslinie bei 253,7 nm [Sch07].

Eine besondere Bedeutung hat eine große Verstärkungsbandbreite für die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse im Subpicosekundenbereich. Die minimal realisierbare Pulslänge ist über die Unschärferelation durch die Bandbreite der Verstärkung limitiert. Typische Anwendungen für kurze Laserpulse mit hohen Pulsenergien sind in der Mikromaterialbearbeitung zu finden, wo beispielsweise beim Bohren aufgrund der hohen Pulsleistungen das abgetragene Material nicht

wie im Dauerstrichbetrieb aufschmilzt, sondern instantan verdampft und abgetragen wird, wodurch ein präziseres Arbeiten ermöglicht wird. Und auch in der bereits erwähnten Zahnmedizin wird durch die Verwendung sehr kurzer Laserpulse ein Aufheizen der Zahnschmelze verhindert. In der Spektroskopie werden Laser mit kurzen Pulsdauern zur Untersuchung von Prozessen, welche auf sehr kurzen Zeitskalen stattfinden, eingesetzt.

Das Scheibenlaserkonzept hat sich in den letzten Jahren auch als exzellent geeignet zur Skalierung der Ausgangsleistung im mittels eines sättigbaren Halbleiterspiegels modengekoppelten gepulsten Betrieb erwiesen (engl. *SESAM-modelocking* von *semiconductor saturable absorber mirror* [Kel03]). Mittlere Leistungen von 80 W [Bru04] und Pulsenergien von über 20  $\mu$ J [Neu09] konnten bisher erreicht werden. Aufgrund der geringen Verstärkungsbandbreite sind jedoch die kürzesten bisher mit Yb:YAG im Scheibenlaser realisierten Pulsdauern von 705 fs mit anderen Materialien wie Yb:KYW (240 fs [Bru02]) bereits deutlich unterboten worden.

Aber auch viele weitere Yb<sup>3+</sup>-dotierte Wirtsmaterialien erlauben im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator die Erzeugung wesentlich kürzerer Pulse, als dies mit Yb:YAG der Fall ist. Eine Auflistung einiger dieser Materialien findet sich in Tab. 1.1.

Eine große Verstärkungsbandbreite ist jedoch in vielen Fällen auf eine inhomogene Verbreiterung der spektroskopischen Banden zurückzuführen. Diese beruht auf einer zunehmenden Unordnung des Wirtsgitters, welche sich in vielen Fällen negativ auf die thermomechanischen Eigenschaften dieser Materialien auswirkt. Daher weisen die wenigsten dieser Materialien kristallographische Eigenschaften auf, die sie auf den ersten Blick für die Erzeugung sehr hoher Ausgangsleistungen geeignet erscheinen lassen. Ziel dieser Arbeit ist daher die Untersuchung von Materialien, die trotz einer großen Verstärkungsbandbreite für die Skalierung der Ausgangsleistung im Scheibenlaser geeignet erscheinen und damit für die Erzeugung von möglicherweise noch kürzeren Pulsen als mit Yb:KYW bei hohen mittleren Leistungen in Frage

Lasermaterial	Strukturformel	Bandbreite (nm)	Minimale Pulsdauer (fs)	Methode	Quelle
Yb:YAG*	Yb:Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>	6,3	340	SESAM	[Kel96]
Yb:YCOB	Yb:Ca <sub>4</sub> YO(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	~50	210	SBR	[Val00]
Yb:KGW	Yb:KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	~25	100	SESAM	[Pau04]
Yb:GdCOB	Yb:GdCa <sub>4</sub> O(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	44	90	SESAM	[Dru00b]
Yb:NGW	Yb:NaGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	51	75	SESAM	[Riv05]
Yb:KYW	Yb:KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	~25	71	Kerr	[Liu01]
Yb:BOYS	Yb:Sr <sub>3</sub> Y(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	60	69	SESAM	[Dru02a]
Yb:LuO	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	~30	65	Kerr	[Tok08]
Yb:YVO	Yb:YVO <sub>4</sub>	21	61	Kerr	[Lag05]
Yb:LuVO	Yb:LuVO <sub>4</sub>	22	58	SESAM	[Riv06]
Yb:Phosphatglas		70	58	SESAM	[Hön99b]
Yb:NYW	Yb:NaY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	47	53	SESAM	[Riv07a]
Yb:CALGO	Yb:CaGdAlO <sub>4</sub>	~70	47	SESAM	[Zao06]

**Tabelle 1.1:** Auflistung einiger Yb<sup>3+</sup>-dotierter Materialien mit denen bereits kürzere Pulse als mit Yb:YAG demonstriert wurden. Die unter 'Methode' aufgeführten abkürzenden Schreibweisen bedeuten: SESAM = Sättigbarer Halbleiterspiegel [Kel96], SBR = Sättigbarer ionenimplantierter Bragg-Reflektor [Dru02b], Kerr = Kerr-Linsen-Effekt [Bra92].

\* Abseits der zentralen Wellenlänge wurden auch mit Yb:YAG bereits Pulse von 100 fs Dauer erzielt [Uem08].

kommen.

Von den in Tab. 1.1 aufgeführten Materialien wurde daher neben den Seltenerd-Vanadaten Yb:YVO und Yb:LuVO, deren Eignung für den Hochleistungsbetrieb schon bei Dotierung mit  $\text{Nd}^{3+}$  bewiesen wurde (vgl. z. B. [McD07]) das Borat Yb:YCOB, welches undotiert als Verdopplerkristall für hochenergetische Pulse im Mercury-Projekt des Lawrence Livermore National Laboratory eingesetzt wird [Fei06] und anhand der spektroskopischen Daten prinzipiell ebenso kurze Pulse wie das eng verwandte Yb:GdCOB ermöglichen sollte, ausgewählt. Neben den genannten Materialien wurde ein weiteres Borat, Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>, welches am Institut für Laser-Physik im Rahmen der Diplomarbeit von J. Johannsen [Joh04] bereits durch seine ungewöhnlich breiten Emissionsbanden auffiel und auch bei hohen Pumpleistungen im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator noch keine thermische Degradation aufwies, ausgewählt. Bei all diesen Materialien handelt es sich im Gegensatz zu Yb:YAG um nicht-kubische Systeme.

## 1.2 Gliederung der Arbeit

In der vorliegenden Arbeit werden die Yb<sup>3+</sup>-dotierten Lasermaterialien Lanthan-Scandium-Borat (LSB), Yttrium-Calcium-Oxyborat (YCOB) sowie Yttrium- und Lutetium-Vanadat (YVO bzw. LuVO) auf ihre Eignung als aktive Materialien für den breitbandig spektral durchstimmbaren Betrieb bei hohen Ausgangsleistungen im Scheibenlaser untersucht. Mit dem sehr vielversprechenden Material Yb:LSB wurden weiterhin in Zusammenarbeit mit dem Max-Born-Institut in Berlin Experimente zur Erzeugung kurzer Pulse im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator durchgeführt.

Nachdem im Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen für das Verständnis der spektroskopischen Eigenschaften und den Laserbetrieb seltenerd-dotierter Festkörper vorgestellt werden, folgt im Kapitel 3 die Vorstellung des in dieser Arbeit verwendeten Scheibenlaserkonzeptes und eines theoretischen Modells zur Beschreibung dieses Lasersystems samt einer Zusammenfassung der bisher mit unterschiedlichen aktiven Medien in diesem Aufbau erzielten Laserresultate. Mit dem Kapitel 4 schließt sich eine ausführliche Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Wirtsgitter und ihrer kristallographischen Eigenschaften sowie eine Zusammenfassung der mit diesen Materialien bereits im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator erzielten Laserresultate an. Im Kapitel 5 wird zunächst ein Überblick über die verwendeten spektroskopischen Methoden und Messapparaturen gegeben, bevor die Ergebnisse der spektroskopischen Untersuchungen präsentiert und mit denen von Yb:YAG verglichen werden. Mit dem sechsten Kapitel erfolgt eine ausführliche Beschreibung der für die Präparation von Scheibenlaserkristallen notwendigen Arbeitsschritte, bevor schließlich die Ergebnisse der Experimente zur Leistungsskalierung und spektralen Durchstimmbarkeit der untersuchten Materialien im Scheibenlaser präsentiert werden. Weiterhin werden in diesem Kapitel die Ergebnisse der ersten Experimente zum Modenkoppeln von Yb:LSB im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator vorgestellt. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick auf weitere mögliche Experimente.



## 2 Grundlagen

Für das Verständnis der in Kapitel 5 dargestellten Resultate der spektroskopischen Untersuchungen an  $\text{Yb}^{3+}$  ist die Kenntnis der energetischen Verhältnisse im  $\text{Yb}^{3+}$  unerlässlich. Ebenso setzt das Verständnis der in Kapitel 6 präsentierten Ergebnisse der Laserexperimente die Kenntnis der grundlegenden Wechselwirkungen von Strahlung und Materie im Festkörper voraus. In diesem Kapitel wird zunächst ein kurzer Überblick zu diesen Themen gegeben, bevor jeweils im Anschluss daran die Konsequenzen für das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion im Festkörper erläutert werden. Für ausführlichere Abhandlungen sei auf Lehrbücher wie [Hen89, Lue99] bzw. [Sve93] verwiesen.

### 2.1 Energiezustände von Lanthanid-Ionen

Zur chemischen Gruppe der Seltenen Erden oder Lanthanide<sup>1</sup> zählen die Elemente mit den Ordnungszahlen 57 (Lanthan) bis 71 (Lutetium). Wie auch die Actinide mit den Ordnungszahlen 90 (Thorium) bis 103 (Lawrencium) gehören die Lanthanoide zu den inneren Übergangselementen: Bis zum Element 57 (Lanthan) werden die mit steigender Kernladung der Elemente hinzukommenden Elektronen nur in die jeweils oberste oder die darunterliegende Hauptschale eingebaut. Beginnend mit dem Element 58 (Cer) wird erstmals ein Orbital einer zwei Schalen unter der äußersten Hauptschale liegenden Schale besetzt, indem das bisher leere  $4f$ -Orbital mit steigender Ordnungszahl sukzessive besetzt wird. Da das  $4f$ -Orbital tief im Inneren der Atome liegt und von den  $5s$ - und  $5p$ -Orbitalen abgeschirmt ist, ist die Abweichung der energetischen Verhältnisse nach Einbau im Festkörper von denen eines freien Ions gering. Der Einfluss des Wirtsgitters muss also in erster Näherung nur als kleine Störung berücksichtigt werden, daher wird hier zunächst das freie Lanthanid-Ion betrachtet.

#### 2.1.1 Das freie Lanthanid-Ion

Der Hamiltonoperator für ein  $N$ -Elektronensystem unter Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung sowie der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den einzelnen Elektronen lautet

$$\mathcal{H} = \sum_i^N \left( -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_{r_i} - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} + \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i \right) + \sum_{i>j} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \quad (2.1)$$

mit dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum  $\hbar$ , der Elektronenmasse  $m_e$ , der Elektronenladung  $e$  und der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$  als Konstanten sowie der Kernladungszahl  $Z$ . Als Variablen erscheinen in dieser Gleichung der Abstand  $r_i$  zum Kern und  $r_{ij}$  als abkürzende Schreibweise für den Abstand  $|\vec{r}_i - \vec{r}_j|$  zweier Elektronen zueinander. Außerdem stehen  $\vec{s}_i$

<sup>1</sup>In der internationalen Nomenklatur wird dieser Begriff zunehmend von der Bezeichnung Lanthanoide (griech. *-oides* "ähnlich") verdrängt, wobei dieser im strengen Wortsinne das Element Lanthan nicht beinhaltet.

und  $\vec{l}_i$  in Glg. 2.1 für die Spins bzw. Bahndrehimpulse der einzelnen Elektronen  $i$ . Die Lösung dieser Gleichung liefert die energetischen Zustände des freien Ions. Der Hamiltonoperator  $\mathcal{H}$  setzt sich in dieser Gleichung aus vier Termen zusammen, durch welche von links nach rechts die kinetische Energie, die Energie der Elektronen im Zentralfeld des Kerns, die Spin-Bahn-Wechselwirkung und die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander beschrieben wird. Die abkürzende Schreibweise  $\xi(r_i)$  für die Spin-Bahn-Wechselwirkung hat in dieser Gleichung die im Rahmen der Dirac-Theorie herleitbare Bedeutung

$$\xi(r_i) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze^2}{2m_e^2 c^2 r_i^3} \quad (2.2)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Der letzte Term in Glg. 2.1 verhindert eine Separation in Einteilchen-Differentialgleichungen, somit ist eine analytische Lösung nicht möglich. Die Zentralfeldnäherung schafft nun Abhilfe, indem sie Kernpotential und Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu einem effektiven Potential zusammenfasst. Das von jedem einzelnen Elektron gesehene Potential wird darin beschrieben als das von den anderen Elektronen abgeschirmte näherungsweise kugelsymmetrische Coulomb-Feld  $V'_i(r_1)$  des Kerns. Damit vereinfacht sich Glg. 2.1 zu dem separablen Ausdruck

$$\mathcal{H}_0 = \sum_i \left( -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_{r_i} + V'_i(r_i) + \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i \right). \quad (2.3)$$

Eine weitere Vereinfachung ergibt sich durch die Vernachlässigung des relativ kleinen Beitrags für die Spin-Bahnwechselwirkung, wonach sich der Hamiltonoperator schreiben lässt als

$$\mathcal{H}_0 = \sum_i \left( -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_{r_i} + V'(r_i) \right). \quad (2.4)$$

Die auf herkömmlichem Wege umständliche Berechnung des Zentralfeld-Potentials  $V'_i(r_1)$  wird vereinfacht durch die Anwendung des iterativen Hartree-Fock-Ansatzes. In diesem wird ausgehend von einem angenommenen kugelsymmetrischen Potential die Wellenfunktion eines einzelnen Elektrons bestimmt. Mit dem resultierenden neuen Gesamtpotential wird dieses Vorgehen auch für alle anderen Elektronen so lange wiederholt, bis die Wellenfunktionen sich nicht weiter ändern. Die Mehrelektronen-Wellenfunktion kann dann als Produktansatz

$$\Psi_0 = \prod_i^N |n_i l_i m_l m_s\rangle \quad (2.5)$$

aus den erhaltenen Ein-Elektronen-Wellenfunktionen  $|n_i l_i m_l m_s\rangle$  dargestellt werden, deren Energieeigenwerte lediglich von der Hauptquantenzahl  $n_i$  und dem Bahndrehimpuls  $l_i$  abhängen, während bezüglich der magnetischen Quantenzahl  $m_l$  und der Spinquantenzahl  $m_s$  Entartung vorliegt. Durch die Verwendung einer Slater-Determinante anstelle des einfachen Produktansatzes wird außerdem dem Pauli-Prinzip Rechnung getragen. Für eine detailliertere Betrachtung sei z. B. auf [Tin64] verwiesen.

Die zunächst vernachlässigten Terme für die Coulomb-Abstoßung zwischen den einzelnen Elektronen sowie die Spin-Bahn-Wechselwirkung können aufgrund ihres geringen Beitrages nun gemäß der Störungstheorie als additive Störterme behandelt werden. Der Gesamt-Hamiltonoperator  $\mathcal{H}_{\text{FI}}$  für ein freies Ion ergibt sich somit zu:

$$\mathcal{H}_{\text{FI}} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}' + \mathcal{H}_{\text{SB}} \quad (2.6)$$

mit dem Elektron-Elektron-Störoperator

$$\mathcal{H}' = \sum_{i>j} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \right) \quad (2.7)$$

und dem Spin-Bahn-Störoperator

$$\mathcal{H}_{\text{SB}} = \sum_i \xi(r_i) (\vec{s}_i \cdot \vec{l}_i), \quad (2.8)$$

worin jeweils nur über die nicht auf geschlossenen Schalen liegenden Elektronen summiert werden muss.

Die Störterme werden in absteigender Reihenfolge ihrer Stärke behandelt. Eine dominierende interelektronische Wechselwirkung bei schwacher Spin-Bahn-Kopplung führt dazu, dass die Bahndrehimpulse  $\vec{l}_i$  vektoriell zu einem Gesamt-Bahndrehimpuls  $\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i$  koppeln und die Spins  $\vec{s}_i$  zu einem Gesamtspin  $\vec{S} = \sum_i \vec{s}_i$ . Schließlich koppelt  $\vec{L}$  mit  $\vec{S}$  zum Gesamt-Drehimpuls  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ . Diese Art der Kopplung beschreibt die Elektronenzustände in leichten Atomen und wird *LS-* oder *Russel-Saunders-Kopplung* genannt.

Dominiert hingegen in Glg. 2.6 die Spin-Bahn-Kopplung gegenüber der Coulomb-Abstoßung der Elektronen, so kommt es zunächst zu einer Kopplung der Spin- und Bahndrehimpulse jedes einzelnen Elektrons zu  $\vec{j} = \vec{l}_i + \vec{s}_i$  und der Gesamtdrehimpuls des Atoms ergibt sich zu  $\vec{J} = \sum_i \vec{j}_i$ . Diese als *j-j-Kopplung* bezeichnete Situation trifft jedoch selbst auf schwere Atome wie Blei kaum in reiner Form zu.

Im Falle der Lanthanide, die eine mittlere Position im Periodensystem einnehmen, haben beide Störterme einen vergleichbaren Einfluss. Hier spricht man von einer intermediären Kopplung. Die Eigenzustände sind hier Linearkombinationen mehrerer *LS-Zustände* mit gleicher Quantenzahl  $\vec{J}$ . Obwohl in dieser Art der Kopplung nur noch die Quantenzahl  $\vec{J}$ , nicht aber  $\vec{S}$  und  $\vec{L}$  Erhaltungsgrößen sind, eignet sich die für die *LS-Kopplung* vorgesehene Nomenklatur  $^{2S+1}L_J$ . Die energetische Anordnung der Zustände folgt den Hund'schen Regeln:

1. Der Zustand mit dem höchsten Gesamtspin  $\vec{S}$  ist maximal gebunden.
2. Bei gleichem  $\vec{S}$  ist der Zustand mit dem höchsten Bahndrehimpuls  $\vec{L}$  maximal gebunden.
3. Ist eine Unterschale höchstens zur Hälfte gefüllt, dann ist der Zustand mit minimaler Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $\vec{J}$  am stärksten gebunden. Bei mehr als halbvollen Unterschalen ist es umgekehrt.

## 2.1.2 Kristallfeldaufspaltung

Unter Einfluss eines Kristallfeldes muss der Hamiltonoperator in Glg. 2.6 noch um einen weiteren Störterm  $\mathcal{H}_{\text{LF}}$  mit

$$\mathcal{H}_{\text{LF}} = \sum_i \sum_l \mathcal{H}_{\text{LF}}(\vec{r}_i, \vec{R}_l) \quad (2.9)$$

für das Ligandenfeld erweitert werden. Die Summation erfolgt hier über die Elektronen  $i$  und die Anzahl der Nachbarionen  $l$  mit der mittleren Ortskoordinate  $\vec{R}_l$ . Für Lanthanide sind die Störungen dabei aufgrund der starken Abschirmung der *4f*-Elektronen gemäß  $\mathcal{H}' > \mathcal{H}_{\text{SB}} > \mathcal{H}_{\text{LF}}$

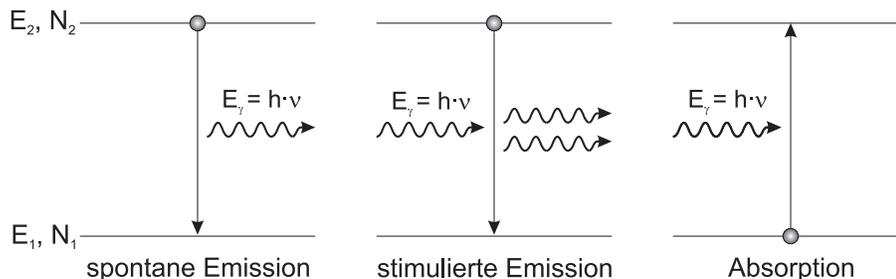


Abbildung 2.1: Möglichkeiten der intraionischen Wechselwirkung von Strahlung mit Materie.

abgestuft. Im Falle von  $\text{Cl}^-$  oder  $\text{Br}^-$ -Liganden ist  $\mathcal{H}_{\text{LF}}$  in der Regel sehr schwach, für  $\text{O}^{2-}$  und  $\text{F}^-$ -Liganden führt das Ligandenfeld jedoch zu einer Aufhebung der Entartung der  $^{2S+1}L_J$ -Multipletts bezüglich  $J$  um einige  $100 \text{ cm}^{-1}$ , der so genannten Stark-Aufspaltung. Damit liegt der Einfluss des Kristallfeldes in seiner Wirkung um etwa eine Größenordnung unter dem Einfluss von  $\mathcal{H}'$  und  $\mathcal{H}_{\text{SB}}$ . Die aus der  $LS$ -Kopplung übernommene Notation erlaubt die Zuordnung der zusätzlich auftretenden Niveaus zu den Zuständen des freien Ions, da jedes Multiplett  $(2J+1)$ -fach entartet ist. Ionen mit einer ungeraden Anzahl an Elektronen behalten jedoch gemäß dem Kramers-Theorem eine zweifache Entartung, somit ist in diesen Fällen nur eine Aufspaltung in  $(2J+1)/2$  Stark-Niveaus pro Multiplett zu erwarten. Weiterhin sorgt das Kristallfeld für eine Mischung der elektronischen  $4f$ -Zustände mit anderen Zuständen. Die Konsequenzen hieraus werden in Abschnitt 2.2.1 beschrieben.

## 2.2 Wechselwirkung von Strahlung mit Materie

Bei der Wechselwirkung von Strahlung mit Materie werden intraionische und interionische Prozesse unterschieden. Während intraionische Prozesse innerhalb eines Ions stattfinden, sind an intraionischen Prozessen zwei oder mehrere Ionen beteiligt.

### 2.2.1 Intraionische Prozesse

Durch Energieeintrag in den Festkörper ist es möglich, Ionen in angeregte Zustände zu versetzen. Man spricht hier von Absorption. Bei einem resonanten Energieeintrag, wie er beispielsweise durch die Einstrahlung von monochromatischem Licht gegeben ist, ist es möglich viele Ionen in denselben angeregten Zustand zu versetzen. Die Anregungsenergie kann in Form von spontaner und stimulierter Emission wieder freigesetzt werden. Die zugrundeliegenden Prinzipien dieser Mechanismen der Wechselwirkung von Strahlung mit Materie wurden bereits 1916 von A. Einstein erkannt [Ein16] und werden im Folgenden erläutert.

#### Spontane Emission

Im ungestörten System ist die Änderung der Besetzungsdichte  $N_2$  des angeregten Zustandes mit der Energie  $E_2$  unter Emission eines Photons der Frequenz  $\nu$  gemäß  $\Delta E = h\nu$  gegeben durch

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_{\text{sp}} = -AN_2. \quad (2.10)$$

Darin stellt der Einsteinkoeffizient  $A$  gemäß  $A = \frac{1}{\tau_{sp}}$  das Inverse der spontanen Lebensdauer  $\tau_{sp}$  des angeregten Zustandes dar.<sup>2</sup> Dieser Prozess ist in Abb. 2.1 links dargestellt.

### Stimulierte Emission und Absorption

Durch ein eingestrahktes Photon der Energie  $h\nu$  kann der Übergang eines angeregten Ions vom Zustand der Energie  $E_2$  in den Zustand der Energie  $E_1$  stimuliert werden (vgl. Abb. 2.1 mitte). Das stimulierte emittierte Photon ist in Ausbreitungsrichtung, Frequenz, Phase und Polarisation identisch zum erzeugenden Photon.

Die Rate dieser stimulierten Emission ist über die stimulierte Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{21} = \sigma_{21}F$  auch vom Photonenfluss  $F$  und damit von der Intensität der einfallenden Welle abhängig. Sie ergibt sich zu:

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_{st} = -W_{21}N_2 = -\sigma_{21}FN_2 \quad (2.11)$$

mit dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{21}$ . Umgekehrt wird bei der Absorption ein Elektron in einem niedrigen energetischen Zustand zum Übergang in einen angeregten Zustand stimuliert (vgl. Abb. 2.1 rechts). Analog zur stimulierten Emission gilt:

$$\left(\frac{dN_1}{dt}\right)_{abs} = -W_{12}N_1 = -\sigma_{12}FN_1. \quad (2.12)$$

Für zwei Niveaus gleicher Entartung gilt nun nach Einstein:

$$\sigma_{12} = \sigma_{21} = \sigma_{atomar}. \quad (2.13)$$

### Lichtverstärkung im Festkörper

Die erläuterten Wechselwirkungsprozesse können prinzipiell zur Verstärkung eines Lichtfeldes genutzt werden. Die Änderung des Photonenflusses in einem aktiven Medium der Länge  $z$  ergibt sich unter Berücksichtigung von Absorption und stimulierter Emission zu

$$dF = (\sigma_{21}FN_2) - (\sigma_{12}FN_1) = \sigma_{atomar}F(N_2 - N_1)dz = W(N_2 - N_1)dz. \quad (2.14)$$

Es ist erkennbar, dass  $dF/dz$  nur für den Fall der Besetzungsinversion  $N_2 > N_1$  positiv ist. Für ein Zwei-Niveau-System ist diese Bedingung nicht erfüllbar, da sich wegen Glg. 2.13 bei  $N_2 = N_1$  stimulierte Emission und Absorption kompensieren. Für Drei- und Vier-Niveau-Systeme ist Inversion hingegen erzielbar.

### Einstein-Koeffizienten

Mit den bisher getätigten Überlegungen lässt sich ein Zusammenhang zwischen der stimulierten Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{ij}$  und der spontanen Übergangsrate  $A$  herstellen. Über die Gleichgewichts-Ratengleichung

$$AN_2 + W_{21}N_2 = W_{12}N_1 \quad (2.15)$$

<sup>2</sup>Zur Lösung der durch Glg. 2.10 dargestellten Differentialgleichung siehe Glg. 5.9 in Abschnitt 5.2.3.

folgt mit  $W = B \cdot \rho_{\nu_0}$

$$\rho_{\nu_0} \cdot (B_{12}N_1 - B_{21}N_2) = A_{21}N_2. \quad (2.16)$$

Mit dem Einsteinkoeffizienten  $B$  für stimulierte Emission und Absorption sowie der spektralen Energiedichte  $\rho_{\nu_0}$  des schwarzen Strahlers bei der Resonanzfrequenz  $\nu_0 = (E_2 - E_1)/h$ . Mit einer der Boltzmann-Verteilung

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left(-\frac{E_2 - E_1}{kT}\right) \quad (2.17)$$

mit der Temperatur  $T$  folgenden Niveau-Besetzung für nichtentartete Niveaus ergibt sich:

$$\rho_{\nu_0} = \frac{A_{21}}{B_{12} \cdot \exp(h\nu_0/kT) - B_{21}}. \quad (2.18)$$

Durch Gleichsetzen mit dem Planckschen Strahlungsgesetz

$$\rho(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{\exp(h\nu/kT) - 1} \quad (2.19)$$

erhält man für den Zusammenhang zwischen den Einsteinkoeffizienten:

$$\frac{A}{B} = \frac{8\pi h\nu_0^3 n^3}{c_0^3} \quad (2.20)$$

und

$$B = B_{21} = B_{12}. \quad (2.21)$$

Die stimulierte Übergangswahrscheinlichkeit  $W = W_{21} = W_{12}$  ergibt sich aus einer semiklassischen Näherung, in der das Atom quantenmechanisch über die Schrödingergleichung behandelt wird, während die elektromagnetische Strahlung klassisch mit den Maxwellgleichungen beschrieben wird. Für einfallende elektromagnetische Strahlung der Form  $\vec{E} = \vec{E}_0 \sin(\omega t)$  mit der Amplitude  $E_0$ , einer Frequenz  $\omega$  nahe der Resonanzfrequenz  $\omega_0 = 2\pi\Delta E/h$  sowie einer Wellenlänge, die sehr viel größer als der Atomradius ist, ergibt sich mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie die Übergangswahrscheinlichkeit zu

$$W_{21} = \frac{\pi^2}{3h^2} |\vec{\mu}|^2 E_0^2 \delta(\nu - \nu_0) \quad (2.22)$$

mit dem Matrixelement  $\vec{\mu} = \vec{\mu}_{21} = \vec{\mu}_{12}$  des elektrischen Dipolmomentoperators zwischen den beiden Zuständen  $\Psi_1$  und  $\Psi_2$

$$\vec{\mu} = e \int \Psi_1^* \vec{r} \Psi_2 dV. \quad (2.23)$$

## Linienverbreiterung

Die  $\delta$ -Funktion in Glg. 2.22 gibt dabei nicht die reale Linienform eines Übergangs wieder. Die wichtigsten Mechanismen der Linienverbreiterung in Festkörpern sind die homogene phononische Verbreiterung durch die thermische Bewegung der Atome, durch welche das Licht je nach Bewegungsrichtung eine Rot- oder Blauverschiebung erfährt, sowie die inhomogene

Linienverbreiterung durch lokale Abweichungen der Gittersymmetrie, wie sie im Falle ungeordneter Gitter sehr ausgeprägt vorliegt. Während die Linienform einer homogen verbreiterten Linie durch eine Lorentz-Funktion beschrieben wird, genügt die Linienform einer inhomogen verbreiterten Linie der Beschreibung durch eine Gauß-Funktion. Diesen Verbreiterungen wird durch die Substitution der  $\delta$ -Funktion in Glg. 2.22 durch eine normierte Linienform  $g_t(\nu - \nu_0)$  mit  $\int g_t(\nu - \nu_0) = 1$  Rechnung getragen. Mit der mittleren Energiedichte  $\rho$  der elektromagnetischen Strahlung nach

$$\rho = \frac{1}{2} n^2 \epsilon_0 E_0^2 \quad (2.24)$$

mit dem Brechungsindex  $n$  ergibt sich aus Glg. 2.22

$$W = \frac{2\pi^2}{3n^2 \epsilon_0 h^2} |\mu|^2 \rho g_t(\nu - \nu_0). \quad (2.25)$$

Daraus ergeben sich folgende Zusammenhänge für die Einstein-Koeffizienten:

$$B = \frac{2\pi^2 |\mu|^2}{3n^2 \epsilon_0 h^2} \quad (2.26)$$

und mit Glg. 2.20:

$$A = \frac{16\pi^3 \nu_0^3 n |\mu|^2}{3h\epsilon_0 c^3}. \quad (2.27)$$

### Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge

Aus Glg. 2.22 und Glg. 2.27 ist ersichtlich, dass die Übergangsraten für stimulierte und spontane Emission jeweils proportional zu  $|\mu|^2$  sind und damit den gleichen Auswahlregeln gehorchen. Aus Glg. 2.23 ist direkt abzulesen, dass das Matricelement des elektrischen Dipoloperators beispielsweise für Zustände gleicher Parität verschwindet. Solche Übergänge werden als verbotene Übergänge bezeichnet. Elektrisch-dipol verbotene Übergänge können in zweiter Ordnung magnetisch-dipol erlaubt sein, jedoch haben magnetische Dipolübergänge um mehrere Größenordnungen kleinere Übergangswahrscheinlichkeiten. Die Übergangsregeln für elektrische Dipol-Übergänge können wie folgt zusammengefasst werden [Hen89]:

$$\Delta l = \pm 1, \quad \Delta S = 0, \quad |\Delta L| \leq 2l, \quad |\Delta J| \leq 2l.$$

Bei den  $4f-4f$ -Übergängen in Lanthaniden auf Gitterplätzen mit Inversionssymmetrie handelt es sich hiernach um paritätsverbotene Übergänge mit  $\Delta l = 0$ . Durch azentrische Störungen wie äußere Felder und Störungen in der lokalen Kristallsymmetrie werden den beteiligten Zuständen jedoch Zustände anderer Parität zugemischt, wodurch diese Übergänge schwach erlaubt werden. Dennoch sind in der Regel die Übergangsraten für Lanthanid-Ionen auf nicht-zentrosymmetrischen Plätzen deutlich größer als für solche auf zentrosymmetrischen Plätzen. Mit der Judd-Ofelt-Theorie [Jud62, Ofel62] steht für viele Lanthanid-Ionen ein wichtiges Hilfsmittel zur Verfügung, um die Stärke der Beimischung anderer Zustände zu den  $4f$ -Zuständen zu berechnen und daraus auf die Übergangsraten zu schließen. Im Falle von  $\text{Yb}^{3+}$  ist dieses Vorgehen nicht erfolgversprechend, da die geringe Anzahl der beteiligten Niveaus eine genaue Bestimmung der notwendigen Parameter verhindert [Mix99].

### Ausbleichen der Absorption

Die Absorptionseffizienz eines Systems nimmt mit zunehmender Intensität des einfallenden Lichtes ab. Dieser Prozess wird als "Ausbleichen" bezeichnet, denn er führt im Extremfalle zur Transparenz eines aktiven Mediums für das einfallende Licht: Je größer der Anteil der sich im angeregten Zustand befindlichen Ionen ist, desto geringer ist die Besetzungsdichte des absorbierenden Zustandes und damit auch die Wahrscheinlichkeit für ein eintreffendes Photon absorbiert zu werden. Außerdem wird durch mit steigender Anzahl der im angeregten Zustand befindlichen Ionen die Wahrscheinlichkeit für stimulierte Emission gesteigert.

Zur Bestimmung des Grades des Ausbleichens definiert man für homogene Linien häufig die Sättigungsintensität  $I_S$  als diejenige Pumpintensität, bei der die Absorption auf die Hälfte abgesunken ist.  $I_S$  ergibt sich durch Aufstellen der stationären Ratengleichung für ein Zwei-Niveau-System zu:

$$I_S = \frac{h\nu}{2\sigma\tau}. \quad (2.28)$$

Im Falle hoher Wirkungsquerschnitte  $\sigma$  für die eingestrahlte Frequenz  $\nu$  sowie langer Fluoreszenzlebensdauern  $\tau$  befindet sich stets ein großer Anteil der Ionen im angeregten Zustand, somit neigen aktive Materialien mit diesen Eigenschaften zu verstärktem Ausbleichen. Die um das Ausbleichen korrigierte Absorption ergibt sich gemäß

$$\alpha(\nu) = \sigma(\nu)(N_1 - N_2) = \frac{\sigma(\nu)N_{dot}}{1 + \frac{I}{I_S}}. \quad (2.29)$$

### Effektive Wirkungsquerschnitte

Bei den bisher definierten atomaren Wirkungsquerschnitten handelt es sich streng genommen um Übergänge zwischen zwei diskreten Niveaus. Aufgrund des vergleichsweise geringen Einflusses des Kristallfeldes, der eine Aufspaltung der  $J$ -Entartung der Multipletts um nur einige  $100 \text{ cm}^{-1}$  bewirkt, sind die Stark-Niveaus der an Absorptions- und Emissionsvorgängen beteiligten Multipletts jedoch üblicherweise nicht als diskrete Niveaus zu betrachten, denn diese Aufspaltung liegt in der typischen Größenordnung der Phononenenergien in oxidischen Festkörpern. Somit kommt es in vielen Fällen zu einer starken thermischen Kopplung, in welcher sich das thermische Gleichgewicht auf einer Pikosekunden-Zeitskala einstellt. Der thermische Besetzungsausgleich zwischen einer  $g_{m,j}$ -fach entarteten Anzahl von  $j$  Stark-Niveaus  $E_{m,j}$  im Multiplett  $m$  erfolgt also wesentlich schneller als der Zerfall der angeregten Zustände. Die Besetzung  $f_{m,i}$  eines einzelnen Niveaus  $i$  folgt dabei der Boltzmann-Verteilung

$$f_{m,i} = \frac{g_{m,i} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,i}}{k_B T}\right)}{\sum_j g_{m,j} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,j}}{k_B T}\right)} = \frac{1}{Z_m} g_{m,i} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,i}}{k_B T}\right) \quad (2.30)$$

mit der Zustandssumme  $Z_m$  des Multipletts  $m$

$$Z_m = \sum_j g_{m,j} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,j}}{k_B T}\right). \quad (2.31)$$

Für die Betrachtung eines realen Systems ist es von Vorteil, effektive Wirkungsquerschnitte einzuführen, welche dieser Tatsache Rechnung tragen. Die effektiven Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte zwischen einem oberen Multiplett  $o$  und einem unteren Multiplett  $u$  ergeben sich aus den atomaren Wirkungsquerschnitten in Glg. 2.13 mit den Glgn. 2.30 und 2.31 gemäß:

$$\sigma_{abs} = f_u \cdot \sigma_{atomar} \quad \text{und} \quad \sigma_{em} = f_o \cdot \sigma_{atomar}. \quad (2.32)$$

Im Gegensatz zu den atomaren Wirkungsquerschnitten handelt es sich bei den effektiven Wirkungsquerschnitten um direkt messbare Größen, die durch die Messung von Absorptions- und Emissionsspektren ermittelt werden können.

### Nichtstrahlende Zerfälle

Neben den genannten Wechselwirkungsprozessen kann die Energie auch nichtstrahlend in Form von Gitterschwingungen als Wärme an das Wirtsgitter abgegeben werden. Die Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{ns}$  für einen nichtstrahlenden Prozess  $n$ -ter Ordnung in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  lautet [Moo70]

$$W_{ns}(T) = W_0 \cdot e^{-\alpha \Delta E} \left( 1 - e^{-\frac{h\nu_{eff}}{kT}} \right)^{-n}. \quad (2.33)$$

$W_0$  ist darin ein vom Wirtsgitter abhängiger empirischer Parameter und  $\alpha$  steht für die Kopplung der elektronischen Übergänge an die Phononen im Wirtsgitter, welche im Falle von  $4f$ -Elektronen als gering angesehen werden darf.  $\Delta E$  stellt die Energiedifferenz zwischen den beteiligten Zuständen dar und  $h\nu_{eff}$  ist die effektive Phononenenergie des Wirtsgitters. Die Anzahl der an einem Übergang beteiligten Phononen ist gegeben durch  $p = \frac{\Delta E}{h\nu_{eff}}$ . Besonders im Falle energetisch nahe beieinander liegender Niveaus stellt dieser Prozess einen nicht zu vernachlässigenden Zerfallskanal dar und wirkt sich daher gemäß

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{sp}} + \frac{1}{\tau_{ns}} \quad (2.34)$$

verkürzend auf die Fluoreszenzlebensdauer aus.

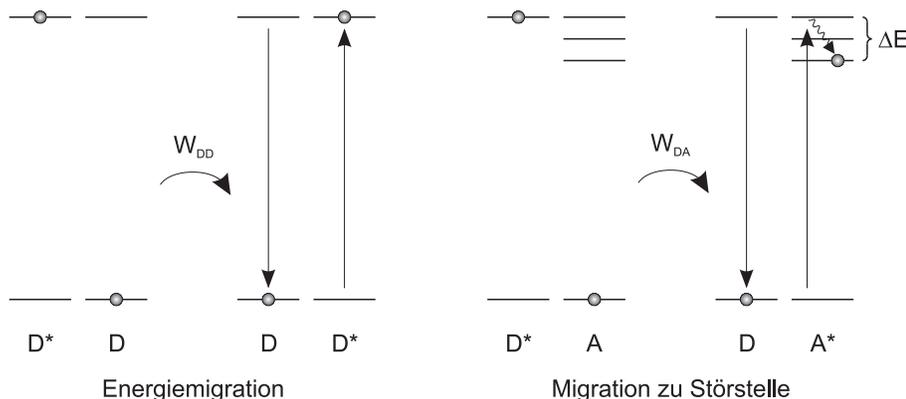
## 2.2.2 Interionische Prozesse

### Resonanter interionischer Energietransfer

Beim resonanten interionischen Energietransfer handelt es sich allgemein um den nichtstrahlenden Transfer von Anregungsenergie aus einem angeregten Donatorion  $D^*$  auf ein Akzeptorion  $A$  (vgl. Abb. 2.2 rechts). Dabei kann Energie teilweise oder komplett nichtstrahlend verloren gehen, insbesondere wenn der Transferprozess zwischen zwei Ionen unterschiedlicher Art stattfindet:



Wie schon im Falle des phononischen nichtstrahlenden Zerfalls in Glg. 2.34 muss auch der nichtstrahlende Anteil  $W_{DA}$  dieses Prozesses zur Übergangswahrscheinlichkeit addiert werden



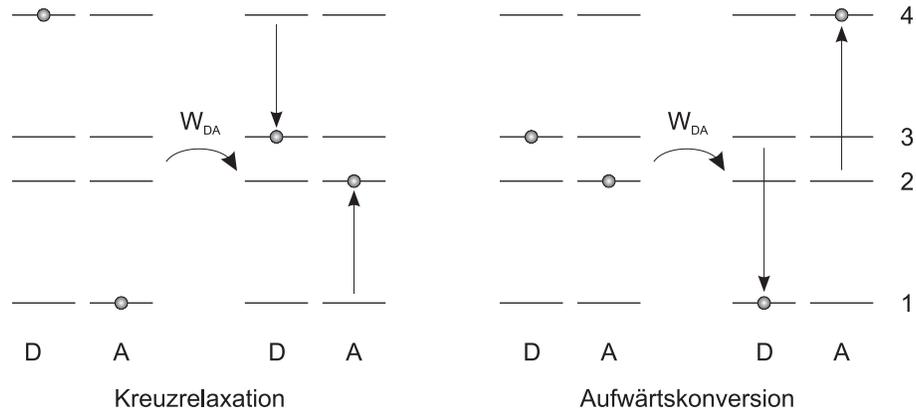
**Abbildung 2.2:** Links: Energiemigration von einem angeregten Donatorion  $D^*$  auf ein weiteres Ion  $D$  derselben Art im Grundzustand. Rechts: Energiemigration von einem angeregten Donator  $D^*$  zu einer als Akzeptor  $A$  funktionsierenden Störstelle im Kristall, an der ein Teil der Anregungsenergie ( $\Delta E$ ) nichtstrahlend verloren geht.

und führt so zu einer Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer. Der resonante interionische Energietransfer lässt sich nach einem Modell von Förster [För48] beschreiben durch

$$W_{DA} = \frac{3}{64\pi^3} \frac{1}{R^6} \frac{1}{\tau_{sp}^D} \int_0^\infty \left( \frac{c_0}{n(\lambda)\nu} \right)^4 g_D(\nu) \sigma_A(\nu) d\nu. \quad (2.36)$$

Neben der auffälligen und starken Abhängigkeit von der inversen sechsten Potenz des Abstandes  $R$  zwischen zwei Ionen hängt die Wechselwirkung damit auch stark vom spektralen Überlapp zwischen der Donatoremission und der Absorption des Akzeptors ab.  $g_D(\nu)$  ist darin ein Ausdruck für die Linienform der Donatoremission und  $\sigma_A(\nu)$  der Absorptionswirkungsquerschnitt des Akzeptors. Die  $R^{-6}$ -Abhängigkeit folgt hierbei aus der elektrischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung, welche den stärksten Anteil an der gesamten Transferwahrscheinlichkeit stellt. Für höhere Dotierungskonzentrationen müssen zusätzlich Multipol-Terme höherer Ordnung berücksichtigt werden.

Den einfachsten Fall des resonanten interionischen Energietransfers stellt die in Abb. 2.2 links dargestellte Energiemigration zwischen gleichartigen Ionen dar. In diesem Fall ist der Energieverlust  $\Delta E$  gleich Null, es handelt sich also zunächst nicht um einen Verlustprozess. Wird aber, wie in Abb. 2.2 rechts dargestellt, die Energie an eine Störstelle im Kristall – bei der es sich sowohl um eine breitbandig absorbierende Fehlstelle, als auch um eine Verunreinigung handeln kann – transferiert, so kann es an dieser zu einem nichtstrahlenden Verlust von Anregungsenergie kommen. Teilweise wird dieser Prozess jedoch auch gezielt zur effizienten Anregung schlecht absorbierender Ionen  $A$  durch den Energietransfer von gut absorbierenden Atomen  $D$  genutzt. Spezialfälle des resonanten interionischen Energietransfers stellen die in Abb. 2.3 dargestellten Prozesse der Kreuzrelaxation (links) und der Aufwärtskonversion (rechts) dar. Bei der Kreuzrelaxation wird ein Teil der Anregungsenergie eines Donatorions übertragen auf ein Akzeptorion. Die Folge ist, dass sich beide Ionen nach diesem Prozess in Zuständen mittlerer Energie befinden, aus welchen sie nichtstrahlend zerfallen oder beim strahlenden Zerfall Photonen unerwünschter Energie freisetzen können. Somit muss auch dieser Prozess üblicherweise als Verlustprozess angesehen werden. Die Voraussetzung für das Auftreten von Kreuzrelaxation ist das Vorhandensein zweier Niveau-Paare mit ähnlichen energetischen



**Abbildung 2.3:** Links: Beispiel einer Kreuzrelaxation zwischen zwei Ionen. Rechts: Beispiel eines Aufwärtskonversions-Prozesses zwischen zwei Ionen.

Differenzen in den beteiligten Ionen. Prinzipiell kann diese Voraussetzung auch bei Ionen unterschiedlicher Art gegeben sein. Derartige Niveau-Paare werden auch für den umgekehrten Prozess der Aufwärtskonversion benötigt. Hierbei ist der energetische Zustand des Akzeptors nach dem Prozess höher als derjenige des Donators in der Ausgangskonfiguration. Denkbar wäre in Abb. 2.3 also auch die Anregung des in der Ausgangskonfiguration in Zustand 3 befindlichen Ions in Zustand 4 und der Zerfall des anderen beteiligten Ions aus Zustand 2 in Zustand 1. Auch die unerwünschte Aufwärtskonversion stellt einen Verlustprozess dar. Es ist durch diesen Prozess jedoch auch möglich, eine effiziente Besetzung von Niveaus zu erzielen, die ansonsten wegen nicht zur Verfügung stehender Anregungsquellen nicht erreichbar wären.

### 2.2.3 Weitere strahlende Prozesse

#### Reabsorption

Als Reabsorption bezeichnet man die erneute Absorption von bereits einmal emittierter Strahlung innerhalb des angeregten Kristalles. Im Gegensatz zu interionischen Prozessen ändert sich der Zustand der beteiligten Ionen nicht gleichzeitig, daher lässt sich die Reabsorption auch als eine Folge von zwei intraionischen Prozessen verstehen. Sie steht dem Prinzip der Lichtverstärkung im Festkörper aus Abschnitt 2.2 zunächst nicht entgegen da bei diesem Prozess keine Energie verloren geht. Bei der Bestimmung spektroskopischer Kenngrößen wie Lebensdauer und Emissionswirkungsquerschnitten bereitet sie jedoch Schwierigkeiten, da sie erstens zu einer Verlängerung der Aufenthaltsdauer im Kristall führt und zweitens zu einer Verfälschung der spektralen Form der Fluoreszenzspektren. Details hierzu finden sich in den jeweiligen Kapiteln dieser Arbeit.

#### Absorption aus angeregten Zuständen

Ein ähnlicher Effekt wie bei der Aufwärtskonversion kann auch durch den strahlenden, intraionischen Prozess der Absorption aus angeregten Zuständen (Abk. "ESA" von engl. *excited state absorption*) verursacht werden. Nachdem ein einzelnes Ion durch die Aufnahme eines Photons in einen angeregten Zustand versetzt wurde, besteht die Möglichkeit, dass dieses Ion durch die

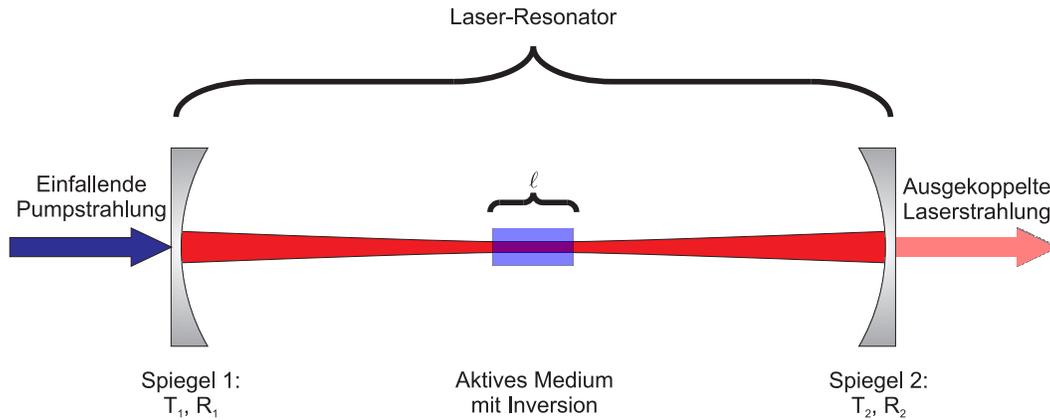
Aufnahme eines weiteren Photons in einen noch höheren angeregten Zustand versetzt wird. Voraussetzung hierfür ist die Existenz eines energetisch passend gelegenen Zwischenniveaus. Dieser Prozess stellt in der Regel einen unerwünschten Verlustprozess dar.

### 2.2.4 Das trivalente Ytterbium in der Spektroskopie

Aus den bisher genannten Eigenschaften eines Lanthanid-Ions im Festkörper lassen sich für Ytterbium mit der Ordnungszahl 70 und der Elektronenkonfiguration  $[\text{Xe}]4f^{14}6s^2$  bereits einige Konsequenzen ableiten. Wie die meisten Lanthanide tritt es in Verbindungen vornehmlich in der Oxidationszahl III auf, kann aber auch die Oxidationszahl II annehmen. Im trivalenten Zustand  $\text{Yb}^{3+}$  lautet die Elektronenkonfiguration  $[\text{Xe}]4f^{13}$ . Da die für die optischen Übergänge verantwortliche  $4f$ -Schale bis auf ein Elektron voll besetzt – also nur mit einem Loch gefüllt – ist, besteht das Energieniveauschema von  $\text{Yb}^{3+}$  nur aus zwei relevanten Stark-Multipletts. Nach der Nomenklatur  $^{2S+1}L_J$  ergibt sich unter Anwendung der Hundschen Regeln, dass der Grundzustand vom  $^2F_{7/2}$ -Multiplett gebildet wird. Als weiteres Niveau ergibt sich lediglich das  $^2F_{5/2}$ -Multiplett, welches energetisch etwa  $10\,000\text{ cm}^{-1}$  über dem Grundzustand liegt. Weitere  $4f$ -Zustände sind nicht vorhanden, das nächsthöhere  $5d$ -Multiplett liegt ca.  $100\,000\text{ cm}^{-1}$  über dem Grundzustand. Aufgrund der ungeraden Elektronenzahl ist der Grundzustand nach dem Kramers-Theorem in vier und das obere  $^2F_{5/2}$ -Multiplett in drei Stark-Unterniveaus aufgespalten. Diese sind in den in dieser Arbeit ausschließlich untersuchten oxidischen Wirtsgittern um einige  $100\text{ cm}^{-1}$  bis über  $1000\text{ cm}^{-1}$  voneinander getrennt [Hau01].

Eine Besonderheit von  $\text{Yb}^{3+}$  verglichen mit vielen anderen Lanthanid-Ionen ist eine relativ starke Kopplung an das Gitter. Verursacht wird diese durch den mit steigender Kernladung innerhalb der Lanthanidenreihe sinkenden Abstand der  $5s$  und  $5p$ -Orbitale vom Kern: Die Kernladung wird durch das relativ große  $4f$ -Orbital weniger abgeschirmt, als durch  $s$ ,  $p$  oder  $d$ -Orbitale. Obwohl hierdurch die Größe des Atoms – und damit der Überlapp seiner Orbitale mit den Liganden des Wirtskristalles – sinkt, bewirkt dieser als Lanthaniden-Kontraktion bekannte Effekt für  $\text{Yb}^{3+}$  insgesamt eine Zunahme der Elektron-Phonon-Kopplung. Dies liegt daran, dass die äußeren Orbitale zwar näher an den Kern rücken, aber damit ihrerseits die  $4f$ -Orbitale schlechter vom Ligandenfeld abschirmen. Somit ist die Kopplung des Gitters an  $4f$ - $4f$ -Übergänge für  $\text{Yb}^{3+}$  als schwerstes Ion der Lanthanidenreihe besonders groß. In den Absorptions- und Emissionsspektren äußert sich dies durch eine starke phononische Verbreiterung der Linien. In der Spektroskopie bereitet diese große Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Lage der einzelnen Stark-Niveaus innerhalb der Multipletts, da diese Kopplung selbst bei tiefen Temperaturen nicht völlig aufgehoben ist.

Da der Übergang zwischen den thermisch am höchsten besetzten Grundzuständen der beiden Multipletts – die so genannte Nullphononenlinie – sowohl in Absorption wie auch in Emission häufig die höchsten Wirkungsquerschnitte aufweist, ist für  $\text{Yb}^{3+}$  ein großer Überlapp von Absorptions- und Emissionsspektren typisch. Bei der Spektroskopie sind mithin ausgeprägte Reabsorptionseffekte zu berücksichtigen. Aufgrund des einfachen Energieniveauschemas von  $\text{Yb}^{3+}$  sind jedoch selbst bei verglichen mit anderen Seltenerdionen hohen Dotierungskonzentrationen Verluste von Anregungsenergie durch die beschriebenen Prozesse der Kreuzrelaxation, Aufwärtskonversion oder der Absorption aus angeregten Zuständen nicht zu erwarten. Jedoch sinkt mit zunehmender Dotierungskonzentration der mittlere Abstand zwischen den Dotierionen im Festkörper. Damit steigt die Wahrscheinlichkeit für Energiemigration – und folglich den



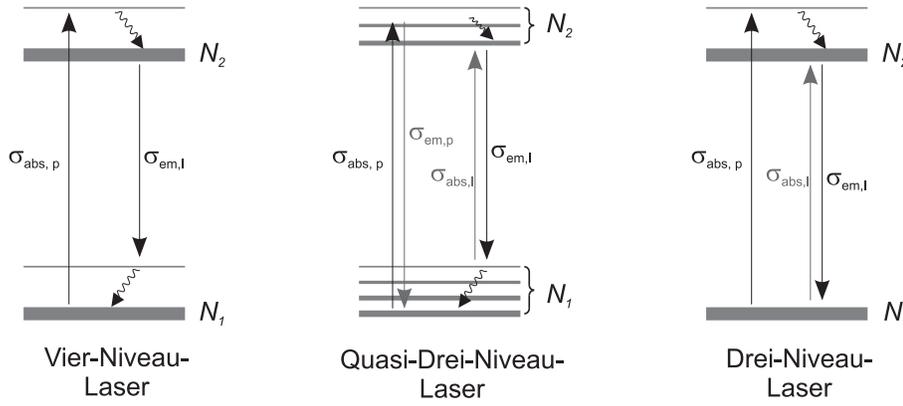
**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung eines einfachen longitudinal gepumpten Laserresonators.

Transfer zu eventuell vorhandenen Verunreinigungen – stark an. Aufgrund des relativ großen energetischen Abstandes der beiden Multipletts verglichen mit den typischen Phononenenergie von Oxiden im Bereich um  $1000\text{ cm}^{-1}$  und darunter müssten nichtstrahlende phononische Zerfälle von sehr hoher Ordnung sein und finden daher nur mit äußerst geringer Wahrscheinlichkeit statt. Obwohl das  $\text{Yb}^{3+}$ -Energieniveauschema nur die genannten zwei Stark-Multipletts aufweist, ist in vielen Fällen die Lichtverstärkung im  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Festkörper möglich. Weitere Erläuterungen hierzu folgen im nächsten Abschnitt dieses Kapitels.

## 2.3 Grundlagen der Laserphysik

Die bereits erwähnte Möglichkeit der Lichtverstärkung im invertierbaren Festkörper kann dazu verwendet werden, einen Laser (Initialwort aus dem engl. *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, also etwa “Lichtverstärkung durch stimulierte Emission von Strahlung”) zu realisieren. Indem die vom gepumpten aktiven Medium emittierte Fluoreszenz mittels eines Resonators mehrfach durch das aktive Medium geführt wird, ist es möglich, innerhalb des Resonators eine kontinuierliche Verstärkung von Fluoreszenz einer bestimmten Wellenlänge zu erzielen. Ein Teil dieses verstärkten Lichtfeldes wird durch einen für diese Wellenlänge teildurchlässigen Spiegel als Laser-Strahlung aus dem Resonator ausgekoppelt. Es ist intuitiv nachvollziehbar, dass die Verstärkung pro Resonatorumlauf – und damit auch die Inversion im aktiven Medium – umso größer sein muss, je größer diese Auskoppelverluste gewählt werden. Ein einfaches Beispiel eines longitudinal gepumpten Laserresonators ist in Abb. 2.4 dargestellt.

Die Herleitung eines einfachen analytischen Modells zur Beschreibung der Vorgänge im Laserbetrieb erfolgt durch die Betrachtung des zeitlichen Verlaufes der Besetzung der beteiligten Energieniveaus mittels Ratengleichungen. Anhand der Anzahl der beteiligten Energieniveaus unterscheidet man dabei verschiedene Arten von laseraktiven Medien. Für ein aus nur zwei Niveaus bestehendes System ist Inversion – und damit Laserbetrieb – nicht erzielbar, für Vier- und Drei-Niveau-Systeme hingegen sehr wohl. Beide Arten lassen sich beschreiben als Spezialfall des so genannten “Quasi-Drei-Niveau-Systems”. Daher erfolgt hier zunächst die Beschreibung dieses Systems und im Anschluss eine kurze Betrachtung der beiden erstgenannten Systeme.



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung der Übergänge zwischen den Energieniveaus eines Vier-Niveau-Lasers (links) und eines Drei-Niveau-Lasers (rechts) im Vergleich mit dem allgemeinen Fall eines Quasi-Drei-Niveau-Lasers (mitte). Die Breite des jeweiligen Niveaus repräsentiert die relative Besetzungsdichte  $N$ .  $\sigma_{abs,p}$ : effektiver Absorptionswirkungsquerschnitt für die Pumpwellenlänge;  $\sigma_{abs,l}$ : effektiver Absorptionswirkungsquerschnitt für die Laserwellenlänge;  $\sigma_{em,p}$ : effektiver Emissionswirkungsquerschnitt für die Pumpwellenlänge  $\sigma_{em,l}$ : effektiver Emissionswirkungsquerschnitt für die Laserwellenlänge.

### 2.3.1 Quasi-Drei-Niveau-Laser

Im Falle des Quasi-Drei-Niveau-Lasers befinden sich alle am Laser-Prozess beteiligten Niveaus innerhalb von nur zwei Stark-Multipletts. Die beiden oberen sowie die beiden unteren Niveaus der insgesamt vier am Laserprozess beteiligten Niveaus befinden sich jeweils im selben Stark-Multiplett. Die Besetzungsdichten  $N_1$  und  $N_2$  der beiden Multipletts sind folglich über die Dotierionendichte  $N_{dot}$  gemäß

$$N_1 + N_2 = N_{dot} \quad (2.37)$$

miteinander verknüpft. Es genügt also, die Ratengleichung nur für eines der beiden Multipletts aufzustellen. Da Übergänge zwischen den beiden Niveaus stets sowohl in Absorption, als auch in Emission stattfinden können, muss diesem Effekt bei der Aufstellung dieser Ratengleichung Rechnung getragen werden. Für die Absorptionsrate  $W_p$  des Pumplichtes pro Volumeneinheit gilt folglich unter Berücksichtigung der stimulierten Reemission aus dem oberen Multiplett

$$W_p = (\sigma_{abs,p}N_1 - \sigma_{em,p}N_2) \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} \quad (2.38)$$

mit den effektiven Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitten  $\sigma_{abs,p}$  und  $\sigma_{em,p}$  bei der Pumpwellenlänge aus Glg. 2.32 sowie der effektiven Pumpleistungsdichte  $E_{p,eff}$  und der Energie der Pumpphotonen  $h\nu_p$ . Analog gilt für die Emissionsrate der Laserphotonen aus dem oberen Multiplett  $W_l$  unter Berücksichtigung der Reabsorption

$$W_l = (\sigma_{em,l}N_2 - \sigma_{abs,l}N_1) \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l}, \quad (2.39)$$

worin der Index  $l$  die auch in Glg. 2.38 auftauchenden Größen bei der Laserwellenlänge bezeichnet und  $E_{r,eff}$  die effektive resonatorinterne Leistungsdichte.

Schließlich ist für das Aufstellen der Ratengleichungen auch der spontane Zerfall aus dem oberen Multiplett zu berücksichtigen, dessen Rate mit der gegebenenfalls durch nichtstrahlende

Zerfälle beeinträchtigten Fluoreszenzlebensdauer  $\tau$  aus Glg. 2.34 mit

$$W_f = \frac{N_2}{\tau} \quad (2.40)$$

beschrieben werden kann. Insgesamt ergibt sich also als Ratengleichung für das obere Multipllett

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} = & \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} \left( (N_{dot} - N_2)\sigma_{abs,p} - N_2\sigma_{em,p} \right) - \frac{N_2}{\tau} \\ & - \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} \left( N_2\sigma_{em,l} - (N_{dot} - N_2)\sigma_{abs,l} \right). \end{aligned} \quad (2.41)$$

Die beschriebenen Prozesse sind in Abb. 2.5 (mitte) in das Energieniveauschema eines Quasi-Drei-Niveau-Systems eingezeichnet.

### 2.3.2 Vier-Niveau-Laser

Im Gegensatz zum Quasi-Drei-Niveau-System sind in einem Vier-Niveau-Laser-System die beteiligten Energieniveaus thermisch völlig entkoppelt. Verglichen mit der Lebensdauer des oberen Laserniveaus erfolgt die nichtstrahlende Relaxation aus dem oberen Pumpniveau dennoch schnell. Auch die Relaxation aus dem unteren Laserniveau in den Grundzustand erfolgt schnell. Somit ist auch in diesem Fall eine signifikante Besetzungsdichte nur in zwei Niveaus gegeben. Bezeichnet man deren Besetzungsdichten mit  $N_1$  und  $N_2$ , so gilt auch für dieses System Glg. 2.41. Der wichtigste Unterschied im Vergleich zum Quasi-Drei-Niveau-System ist jedoch das völlige Verschwinden des Absorptionskoeffizienten für die Laserwellenlänge, durch welches das Erreichen von Inversion wesentlich vereinfacht wird. Weiterhin existiert keine Emission für die Pumpwellenlänge, so dass in Glg. 2.41  $\sigma_{em,p}$  und  $\sigma_{abs,l}$  gleich Null gesetzt werden können. Pump- und Laserübergang in einem Vier-Niveau-Laser-System sind in Abb. 2.5 links dargestellt.

### 2.3.3 Drei-Niveau-Laser

In einem reinen Drei-Niveau-Laser-System sind am Laserprozess drei energetisch klar voneinander getrennte Niveaus beteiligt. Der Grundzustand ist identisch mit dem unteren Laserniveau und wie im Vier-Niveau-System erfolgt die Relaxation aus dem oberen Pumpniveau in das obere Laserniveau schnell. Da der Laserübergang zwischen zwei nichtentarteten Niveaus stattfindet, gilt folglich Glg. 2.41 mit  $\sigma_{abs,l} = \sigma_{em,l}$  und  $\sigma_{em,p} = 0$ . Eine schematische Darstellung dieses Systems findet sich im rechten Teil von Abb. 2.5.

### 2.3.4 Ratengleichungen im Dauerstrichbetrieb

Anhand der bisher getätigten Überlegungen bietet es sich an, in jedem Falle das Modell des Quasi-Drei-Niveau-Systems anzuwenden. Zur Beschreibung der Vorgänge im stationären Laserbetrieb genügt dazu die Lösung der durch Glg. 2.41 gegebenen Differentialgleichung. Im Dauerstrichbetrieb ist die Inversion konstant, d. h.  $\frac{dN_2}{dt} = 0$ , damit ergibt sich aus Glg. 2.41

durch Umstellen nach  $N_2$ :

$$N_2 = \frac{\frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} \sigma_{abs,p} + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} \sigma_{abs,l}}{\frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} (\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}) + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} (\sigma_{abs,l} + \sigma_{em,l}) + \frac{1}{\tau}} N_{dot} \quad (2.42)$$

mit den unbekanntenen Größen  $E_{r,eff}$  und  $N_2$ .

Die Schwellbedingung besagt nun, dass die exponentiell mit der Länge  $\ell$  des aktiven Mediums und der Anzahl  $M_r$  der Kristalldurchgänge pro Resonatorumlauf skalierende Verstärkung des Lichtfeldes pro Resonatorumlauf die Auskoppelverluste  $T_{i,l}$  für die Laserwellenlänge an den  $N$  Resonatorspiegeln und die resonatorinternen Umlaufverluste  $L_{int,l}$  kompensieren muss:

$$\left( \prod_{i=1}^N (1 - T_{i,l}) \right) \cdot (1 - L_{int,l}) \cdot e^{(N_2 \sigma_{em,l} - (N_{dot} - N_2) \sigma_{abs,l}) M_r \ell} = 1 \quad (2.43)$$

oder logarithmiert und umgestellt

$$\left( \sum_{i=1}^N -\ln(1 - T_{i,l}) \right) - \ln(1 - L_{int,l}) = (N_2 (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot} \sigma_{abs,l}) M_r \ell. \quad (2.44)$$

Damit steht eine weitere Gleichung mit der Größe  $N_2$  zur Verfügung, so dass sich durch Kombination mit Glg. 2.42 die effektive resonatorinterne Leistungsdichte  $E_{r,eff}$  berechnen lässt. Dieser Ansatz vernachlässigt jedoch die in realen Systemen häufig vorliegende ortsabhängige Verteilung der Pumpleistung im Kristall und führt daher in vielen Fällen nicht zu befriedigenden Ergebnissen. Bei Berücksichtigung der Ortsabhängigkeit lässt sich andererseits die für beliebige Pump- und Lasermoden resultierende Gleichung nicht in jedem Falle analytisch geschlossen lösen.

### 2.3.5 Spektral durchstimmbarer Laserbetrieb

Laserionen mit breiten Emissionsbanden erlauben in vielen Fällen den Laserbetrieb auf mehreren Emissionswellenlängen. Daraus ergibt sich durch den Einsatz wellenlängenselektiver Elemente die Möglichkeit, einen gezielten Einfluss auf die Emissionswellenlänge eines Laser zu nehmen. Neben offensichtlichen Lösungen wie den Einsatz von Resonatorspiegeln mit geringster Transmission für die gewünschte Wellenlänge oder das Einbringen von Verlusten in den Resonator für unerwünschte Wellenlängen durch den Einsatz von Filtern gibt es dabei auch Möglichkeiten, die ein kontinuierliches Abstimmen der Laserwellenlänge ermöglichen. Detailliertere Erläuterungen finden sich z. B. in [Eic06].

#### **Etalon**

Die einfachste dieser Möglichkeiten ist das Einbringen eines planparallelen Glasplättchens – eines so genannten Etalons – in den Resonator. Für Wellenlängen  $\lambda$ , welche die Resonanzbedingung

$$nd_{eff} = m\lambda \quad (2.45)$$

mit der Brechzahl  $n$ , der vom Einfallswinkel  $\theta$  abhängigen effektiven Dicke  $d_{eff} = d/\cos(\theta)$  und der beliebigen ganzen Zahl  $m$  erfüllen, ergibt sich ein Transmissionsmaximum, während

andere Spektralbereiche hohe Verluste erfahren. Durch Verkippen des Glasplättchens kann die effektive Dicke – und damit die transmittierte Wellenlänge – variiert werden. Da der als freier Spektralbereich bezeichnete Frequenzabstand  $\delta\nu$  der Transmissionsmaxima mit zunehmender Dicke des Etalons gemäß

$$\delta\nu = \frac{c}{2nd_{eff}} \quad (2.46)$$

sinkt, lassen sich bei einer typischen Brechzahl von Glas von 1,5 und handhabbaren Dicken von einigen 10  $\mu\text{m}$  auf diese Weise höchstens  $5 \times 10^{12}$  Hz (entspricht im Wellenlängenbereich von 1  $\mu\text{m}$  höchstens 20 nm) Durchstimmbereich realisieren.

### Doppelbrechende Filter

Zum Erschließen sehr breiter Durchstimmbereiche werden häufig doppelbrechende Kristalle (z. B. Quarz) unter dem Brewster-Winkel in den Resonator eingebracht und als wellenlängen-selektive Elemente verwendet. In diesen spaltet eine linear polarisierte Lichtwelle in einen ordentlichen und einen außerordentlichen Strahl auf, die senkrecht zueinander polarisiert sind. Aufgrund der unterschiedlichen Brechzahlen  $n_o$  und  $n_e$  in diesen beiden Orientierungen haben die beiden Teilwellen nach dem Durchlaufen des Kristalles unterschiedliche Phasen und setzen sich somit zu einem elliptisch polarisierten Strahl zusammen. Da der doppelbrechende Kristall unter dem Brewster-Winkel im Resonator steht, erfahren die nicht senkrecht zum Brewster-Winkel polarisierten Anteile in diesem Falle Reflexionsverluste. Nur wenn die Phasendifferenz der Teilstrahlen einem ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge  $\lambda$  entspricht, ist das Licht nach dem Durchlauf des Kristalles wieder linear und senkrecht zum Brewster-Winkel polarisiert und erfährt keine Verluste. Die Resonanzbedingung lautet folglich:

$$\Delta nd_{eff} = m\lambda \quad (2.47)$$

mit  $\Delta n = n_o - n_e$ . Durch Verdrehen des doppelbrechenden Kristalles verändert sich die von den beiden Teilstrahlen durchlaufene effektive Dicke, so dass die transmittierte Wellenlänge variiert wird. Der freie Spektralbereich eines doppelbrechenden Filters ergibt sich ähnlich wie beim Etalon zu:

$$\delta\nu = \frac{c}{\Delta nd_{eff}}. \quad (2.48)$$

Schon mit einer bequem handhabbaren Dicke von 1 mm lassen sich – eine entsprechende Verstärkungsbandbreite vorausgesetzt – auf diese Weise beinahe  $30 \times 10^{12}$  Hz (entspricht im Wellenlängenbereich von 1  $\mu\text{m}$  mehr als 100 nm) Durchstimmbereich realisieren.

### 2.3.6 Das trivalente Ytterbium als Laser-Ion

In trivalentem Ytterbium sind optische Übergänge nur zwischen den zwei Multipletts  $^2F_{5/2}$  und  $^2F_{7/2}$  möglich. Damit ist  $\text{Yb}^{3+}$  ein typisches Quasi-Drei-Niveau-Laserion. Durch das sehr einfache Energieniveauschema gibt es außer den Übergängen zwischen den zwei Stark-Multipletts auch bei relativ hohen Dotierungskonzentrationen keine weiteren Verlustkanäle für die Pump- oder Laserstrahlung. Dennoch kommt es in vielen Wirtsmaterialien bei hohen  $\text{Yb}^{3+}$ -Konzentrationen zu einer Beeinträchtigung der Lasereffizienz. Die Gründe sind bisher nicht restlos geklärt und Gegenstand der aktuellen Forschung am Institut für Laser-Physik im Rahmen der

Promotion von S. T. Fredrich-Thornton. Die empirische Grenze der  $\text{Yb}^{3+}$ -Dichte von etwa  $2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  [Lar05] liegt dennoch etwa eine Größenordnung über der üblichen Dotierionendichte im Falle des typischen Vier-Niveau-Laser-Ions  $\text{Nd}^{3+}$ , welches aufgrund der Vielzahl von Multipletts bei hohen Dotierungskonzentrationen verstärkt zu interionischen Prozessen neigt.

Aufgrund der meist hohen Absorption im Bereich der Nullphononenlinie im Wellenlängenbereich um 970 nm bis 985 nm und der Aufspaltung des unteren Laserniveaus um nur einige  $100 \text{ cm}^{-1}$  bis knapp über  $1000 \text{ cm}^{-1}$  beträgt der als Quantendefekt bezeichnete energetische Unterschied zwischen Pump- und Laserwellenlänge üblicherweise weniger als 10%. Dies ermöglicht prinzipiell höchst effizienten Laserbetrieb mit differentiellen Wirkungsgraden bis zu 90%, während für das bisher gängigste Lasersystem  $\text{Nd}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Nd}:\text{YAG}$ ) der maximal erzielbare Wirkungsgrad bereits durch den vergleichsweise hohen Quantendefekt auf höchstens 76% beschränkt ist.  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Lasersysteme bieten somit zwar einerseits die Voraussetzung für höchsteffizienten Laserbetrieb, andererseits führt die geringe energetische Differenz zwischen dem Laserzielniveau und dem Grundzustand zu einer nicht unbeträchtlichen thermischen Besetzung des Laserzielniveaus. Diese sorgt dafür, dass die Laserschwelle im Vergleich zu Vier-Niveau-Laser-Systemen erhöht ist, da zunächst ein Teil der Pumpleistung dazu benötigt wird, das Lasermaterial transparent für die Laserwellenlänge zu machen. Um die Schwelle dennoch niedrig zu halten, betragen die Auskoppelverluste üblicherweise nur einige Prozent, während in Vier-Niveau-Lasern in vielen Fällen einige 10% Auskopplung für optimalen Laserbetrieb sorgen. Damit sind  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Systeme vergleichsweise empfindlich für sonstige Resonatorverluste.

Der mit dem niedrigen Quantendefekt verbundene geringe Wärmeeintrag in den Kristall in Verbindung mit den hohen Effizienzen führte in den letzten Jahren zu einer weiten Verbreitung  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter Systeme für Hochleistungsanwendungen.

Aufgrund der bereits erwähnten starken Verbreiterung der Linien weist  $\text{Yb}^{3+}$  in vielen Wirtsmaterialien eine sehr effiziente Absorption der typischerweise einige Nanometer breiten Emission von Laserdioden auf und ist damit besonders für den diodengepumpten Laserbetrieb geeignet. Die breiten Verstärkungsspektren von  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien ermöglichen in vielen Fällen kontinuierlich durchstimmbaren Laserbetrieb über einen Wellenlängenbereich von einigen 10 nm bis über 100 nm im spektralen Bereich zwischen etwa  $1 \mu\text{m}$  und  $1,1 \mu\text{m}$ . Für die Erzeugung kurzer Pulse erweist sich die große Verstärkungsbandbreite in vielen Fällen ebenfalls als sehr vorteilhaft.

# 3 Das Scheibenlaserkonzept

In diesem Kapitel wird zunächst das im Jahre 1994 von A. Giesen und seinen Mitarbeitern am Stuttgarter Institut für Strahlwerkzeuge [Gie94] eingeführte Scheibenlaserkonzept vorgestellt. Auf Basis der im Kapitel 2 hergeleiteten theoretischen Grundlagen für den Laserbetrieb wird im Anschluss daran ein analytisches Modell zur Beschreibung des Scheibenlasers präsentiert. Es schließt sich eine kurze Betrachtung über vorteilhafte Eigenschaften für den Einsatz eines aktiven Materials im Scheibenlaser an. Abschließend findet sich eine Überblick über den Status Quo der bis zum Beginn dieser Arbeit realisierten Scheibenlasersysteme im Dauerstrich- und modengekoppelten Betrieb mit ihren jeweiligen maximalen Leistungsparametern.

## 3.1 Der Scheibenlaser

Der Begriff “Scheibenlaser” geht auf die Geometrie des in diesem Laseraufbau (vgl. Abb. 3.1) verwendeten laseraktiven Mediums zurück: Es handelt sich um eine dünne Scheibe von einigen Millimetern Durchmesser und einigen 100  $\mu\text{m}$  Dicke mit einer häufig runden Querschnittsfläche. Diese Scheibe ist auf der Rückseite mit einem dielektrischen Schichtsystem versehen, das sowohl für die Pumpwellenlänge, als auch für den Bereich möglicher Laserwellenlängen hochreflektierend ist. Um dieses Schichtsystem bei der späteren Montage auf der Wärmesenke vor

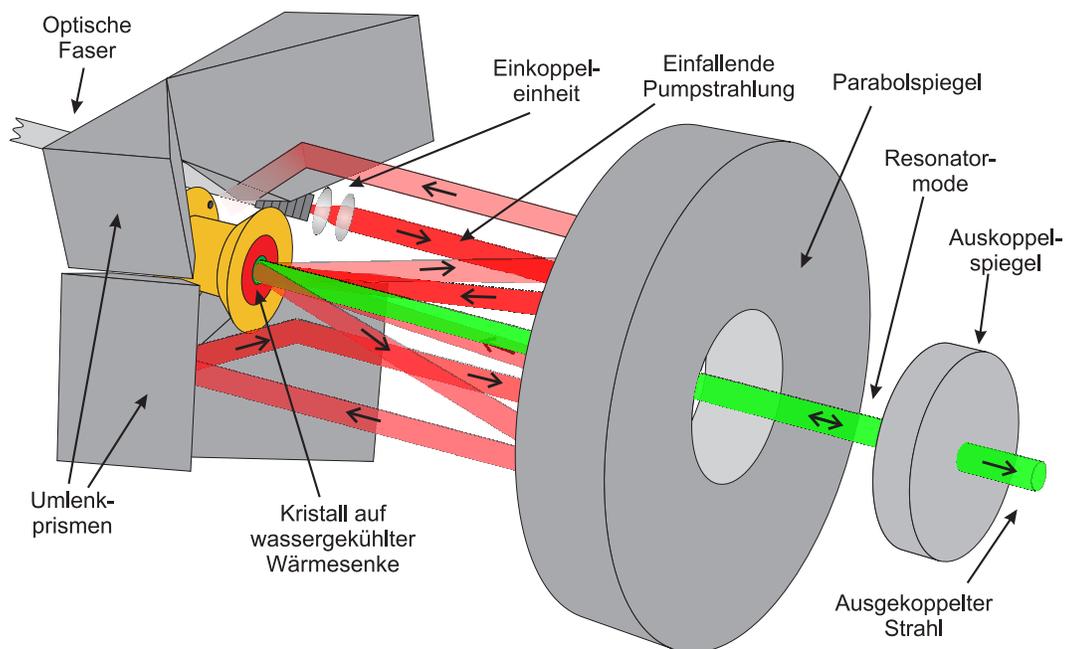
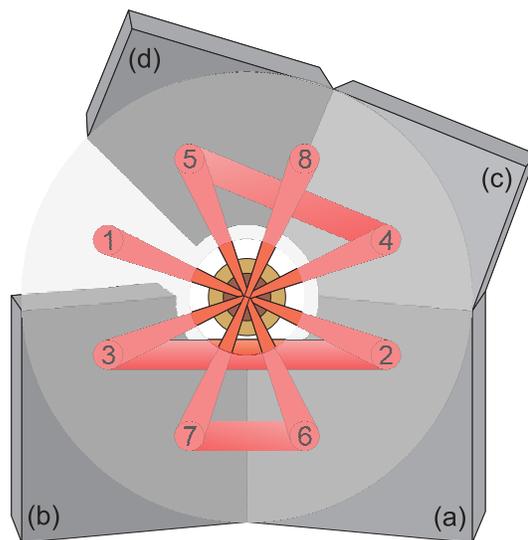


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des verwendeten Scheibenlaseraufbaus.



**Abbildung 3.2:** Schematische Ansicht der Pumpoptik eines Scheibenlasermoduls mit 16 Pumpstrahlungsdurchgängen. Die Blickrichtung verläuft entlang der Resonatorachse und durch den transparent dargestellten Parabolspiegel. Eine nähere Beschreibung findet sich im Text.

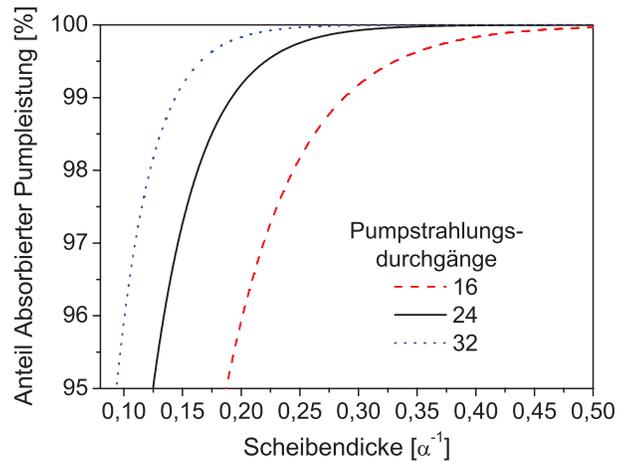
Beschädigungen zu schützen und den Wärmekontakt zu verbessern, befindet sich darauf eine dünne Kupferschicht. Auf der Vorderseite ist die Scheibe für den selben Wellenlängenbereich unter den entsprechenden Einfallswinkeln hochgradig entspiegelt.

Die Scheibe wird mit der hochreflektierenden Rückseite auf eine Wärmesenke gelötet, welche im Scheibenlasermodul durch einen auf die Rückseite auftreffenden Wasserstrahl gekühlt wird. Das Löten erlaubt eine sehr feste, deformierungsfreie Kontaktierung der Scheibe.

Das Kontaktieren der Stirnfläche des Laserkristalles auf eine Wärmesenke ist die Grundlage für eine der herausragenden Eigenschaften des Scheibenlasers: Die hervorragende Strahlqualität auch bei hohen Ausgangsleistungen. In der Scheibe entsteht auch bei hohen Leistungen nur ein nahezu eindimensionaler Temperaturgradient entlang der Resonatorachse, während der Temperaturgradient in radialer Richtung innerhalb des zentralen homogen gepumpten Bereiches der Scheibe annähernd Null ist. Hierdurch werden die Ausbildung einer thermischen Linse und damit Phasenstörungen transversal zur Strahlrichtung um mehr als eine Größenordnung im Vergleich zu Volumenlaserkristall-Systemen minimiert und auch bei hohen Leistungen wird eine ausgezeichnete Strahlqualität beibehalten.

Zudem ist der Wärmeabtransport aus der Scheibe wegen des optimalen Verhältnisses von Oberfläche zu Volumen sehr effizient, was den Betrieb bei sehr hohen Volumenleistungsdichten von bis zu  $1 \text{ MW/cm}^3$  absorbierter Leistung erlaubt [Gie07a].

Während der eigentliche Laserresonator im einfachsten Falle von der hochreflektierenden Rückseite des Kristalles und einem Auskoppelspiegel gebildet werden kann, ist die Pumpenanordnung aufwändiger: Das von einer Laserdiode emittierte Pumplicht wird kollimiert, über den in Abb. 3.2 transparent dargestellten Parabolspiegel an Position 1 unter einem von senkrechten Einfall abweichenden Winkel auf den Kristall fokussiert und von der verspiegelten Rückseite des Kristalles reflektiert. Da aufgrund der geringen Dicke des Kristalles bei diesem Zweifach-Durchlauf nur ein geringer Teil des Pumplichtes absorbiert wird, trifft der transmittierte Anteil des Pumplichtes an Position 2 erneut auf den Parabolspiegel, von wo aus er als kollimierter

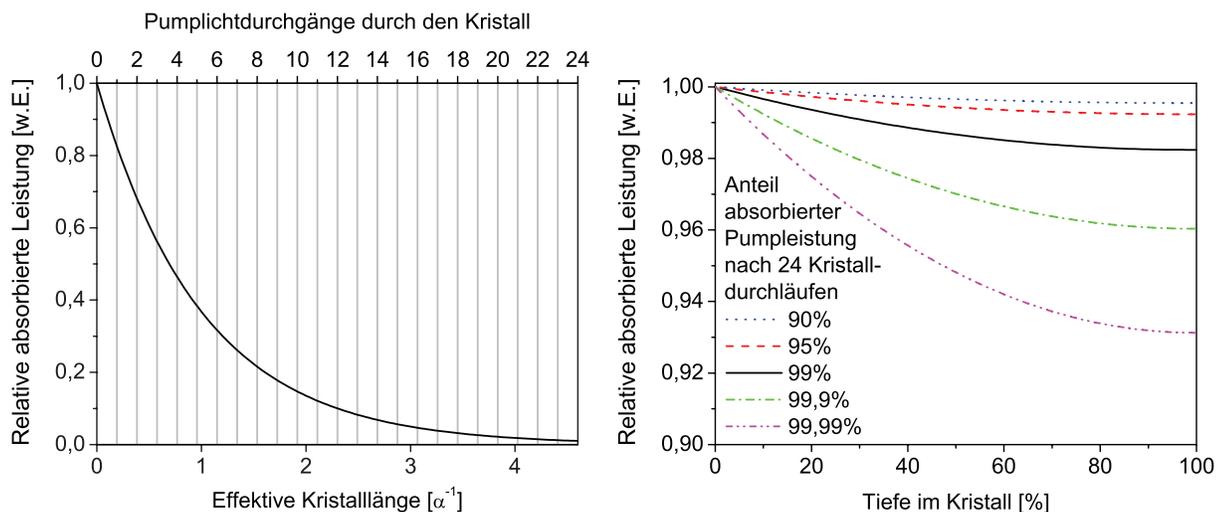


**Abbildung 3.3:** Darstellung der Absorption in Abhängigkeit von der Dicke des aktiven Materials in Einheiten der Absorptionslänge  $\alpha^{-1}$  für verschiedene Anzahlen von Pumpstrahlungsdurchgängen durch die Scheibe.

Strahl das in Abb. 3.2 mit (a) markierte Umlenkprisma trifft. Von diesem wird der Strahl auf das Umlenkprisma (b) reflektiert und über Position 3 des Parabolspiegels erneut auf den Kristall geführt. Dies kann wiederholt werden, bis alle verfügbaren Positionen auf dem Parabolspiegel benutzt wurden. Die Anzahl der verfügbaren Positionen auf dem Parabolspiegel wird dabei durch den Strahldurchmesser des Pumplichtes auf dem Parabolspiegel bestimmt, welchem durch die Strahlqualität der Pumpquelle eine untere Grenze gesetzt ist. Um ein optimales Ausrichten der Scheibe zur Pumpoptik zu ermöglichen, wird die Wärmesenke mit dem Scheibenlaserkristall auf einem Goniometerkopf befestigt. Nach der Hälfte der Kristalldurchläufe wird das restliche Pumplicht an der Dachkante eines Prismenpaares reflektiert (in Abb. 3.2 hinter Pos. 8) und über den gleichen Weg zurück in die Faser geführt. Hierdurch wird die Anzahl der Pumplichtdurchgänge durch den Kristall noch einmal verdoppelt, so dass je nach Pumpmodultyp bis zu 32 Durchläufe des Pumplichtes durch den Kristall realisiert werden können. Dies führt zu einer sehr effizienten Absorption auch für dünne Scheiben, welche für einen optimalen Wärmeabtransport und damit für eine sehr gute Strahlqualität von Vorteil sind. Die tatsächlich notwendige Dicke der Scheibe hängt von dem gewählten laseraktiven Material, der Dotierungskonzentration und der Anzahl der Pumplichtdurchläufe durch den Kristall ab. Um Schäden am Faserende durch Rückkopplung des nicht absorbierten Pumplichtes zu vermeiden, sollten mindestens 90% der Pumpleistung absorbiert werden; für optimale Effizienz sind Absorptionsraten über 98% wünschenswert. Wie in Abb. 3.3 dargestellt, beträgt je nach Anzahl der Pumpstrahlungsdurchgänge die notwendige Dicke der Scheibe nur ca. 10% bis 30% einer Absorptionslänge<sup>1</sup>(vgl. Glg. 5.1).

Durch den mehrfachen Durchlauf des Pumplichtes durch den Kristall wird nicht nur die Absorption verbessert, sondern auch die effektive Pumpleistungsdichte im Kristall erhöht. Daher ist das Scheibenlaser-Design sehr geeignet um die aufgrund der Reabsorption für die Laserwellenlänge benötigten höheren Schwellinversionen von Quasi-Drei-Niveau-Lasersystemen wie  $\text{Yb}^{3+}$  zu erreichen. Gleichzeitig wird durch die effektive Wärmeabfuhr die thermische Besetzung des Laserzielniveaus und damit die Laserschwelle niedrig gehalten (vgl. Kapitel 2).

<sup>1</sup>Hierbei bleibt zunächst der Effekt des Ausbleichens des unteren Laserniveaus vernachlässigt (vgl. Abschnitt 2.2.1).



**Abbildung 3.4:** Links: Darstellung des normierten Verlaufes der Absorption für ein aktives Medium mit 99% Gesamtabsorption in Abhängigkeit von der Anzahl der durchlaufenen Absorptionslängen  $\alpha^{-1}$  (unten) und der Anzahl der Kristalldurchläufe (oben). Rechts: Aufsummierte Verteilung der Absorption innerhalb des aktiven Mediums nach 24 Kristalldurchläufen für verschiedene Gesamtabsorptionen zwischen 90% und 99,99%.

Vorteilhaft ist der mehrfache Pumplichtdurchlauf auch insofern, dass er zu einer Verbesserung der Homogenität des Pumpflecks führt und damit die Anforderungen an die Strahlqualität der Pumpquelle verringert.

Die Skalierung der Ausgangsleistung erfolgt über eine Vergrößerung des Pumpfleckdurchmessers auf der Scheibe unter Beibehaltung der Pumpleistungsdichte. Auf diese Weise konnten im Dauerstrichbetrieb schon Ausgangsleistungen von über 5,3 kW mit einer Scheibe und nahezu 10 kW unter Verwendung mehrerer gekoppelter Scheiben erzielt werden, wobei der Pumpfleckdurchmesser einen Zentimeter und mehr betragen kann [Gie07a].

## 3.2 Analytisches Modell des Scheibenlasers

In Abb. 3.4 ist auf der linken Seite der Verlauf der Absorption für ein aktives Medium mit 99% Gesamtabsorption über die Kristalllänge nach dem Lambert-Beer-Gesetz (vgl. Glg. 5.1) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass es bei einer durch einen Einfachdurchgang erzielten derart effektiven Absorption innerhalb des Kristalles zu einer starken Inhomogenität der Verteilung der Pumpleistung kommt. Diese kann in Lasern mit Stab-Geometrie des aktiven Mediums durch das in Abb. 3.4 nicht berücksichtigte Ausbleichen des Grundzustandes vor allem in den einer größeren Intensität des Pumplichtes ausgesetzten vorderen Bereichen des Pumpkanals höchstens teilweise kompensiert werden. In der Scheibenlaser-Geometrie sorgt die Tatsache, dass eine derart effektive Absorption durch den mehrfachen Durchlauf der Pumpleistung durch den Kristall in verschiedenen Richtungen erzielt wird, hingegen für eine sehr starke Homogenisierung der Verteilung der Pumpleistung im Kristall. Damit kann für realistische Gesamtabsorptionsraten von 95%-99% in guter Näherung von einer sehr homogenen Verteilung der absorbierten Pumpleistung im gepumpten Volumen ausgegangen werden, wie der in Abb. 3.4 rechts dargestellten Verteilung der Absorption nach Aufsummierung über 24 Kristalldurchläufe zu entnehmen ist. Höhere Absorptionsraten sind einerseits aufgrund des durch Glg. 2.29 beschriebenen Effektes

des Ausbleichens der Absorption für vertretbare Scheibendicken kaum zu erzielen, andererseits sind sie kaum wünschenswert, da beispielsweise für eine Verbesserung der Absorption von 99% auf 99,99% eine Verdopplung der Kristalllänge erforderlich ist. Auch in radialer Richtung kommt es aufgrund der Überlagerung der Pumplichtdurchläufe in guter Näherung zu einer homogenen Verteilung der Pumpleistung. Durch kohärente Überlagerung der hin- und rücklaufenden Strahlungsfelder kann es zur Ausbildung eines Stehwellenfeldes der Laserstrahlung kommen. Dieses kann durch lokale Sättigungseffekte zu einer starken Ortsabhängigkeit der extrahierten Leistung führen (*“spatial hole burning”*). Damit wäre die Annahme homogener Feldverteilung nicht mehr gerechtfertigt. Dieser Effekt kann jedoch für einen einfachen Resonator wie in Abb. 3.1 vernachlässigt werden, denn ein solcher erlaubt die stabile Propagation mehrerer Lasermoden. Damit werden eventuell entstehende Bereiche nicht extrahierter Leistung sofort von konkurrierenden Moden abgerufen.

### 3.2.1 Das “nulldimensionale” Modell

Auf der Annahme eines homogenen Zustandes aller laserrelevanten Größen innerhalb des aktiven Mediums basiert das einfachste Modell des Scheibenlasers, das so genannte “nulldimensionale” Modell, das von A. Voß [Voß02] entwickelt und von K. Contag [Con02] verfeinert wurde. Mithilfe dieses Modells ist es auch möglich, Aussagen über die Auswirkungen von thermischen Effekten auf den Laserbetrieb zu treffen. Die entsprechenden Gleichungen werden an dieser Stelle jedoch nicht vorgestellt, hierfür sei auf die genannten Arbeiten verwiesen.

Aufgrund der geringen Dicke des aktiven Mediums und der daraus resultierenden relativ geringen Verstärkung pro Durchgang kann für die Berechnung der effektiven resonatorinternen Leistungsdichte  $E_{r,eff}$ , die aus der Überlagerung mehrerer Strahlungsfelder resultiert, die Verstärkung vernachlässigt werden. Damit ist diese einfach das Produkt aus der einfachen resonatorinternen Leistungsdichte  $E_r$  und der Anzahl der Kristalldurchgänge pro Resonatorumlauf  $M_r$  (in dieser Arbeit i.d.R. zwei):

$$E_{r,eff} \approx M_r E_r. \quad (3.1)$$

Die angesprochene geringe Verstärkung limitiert außerdem den Anteil der für die Laserstrahlung extrahierbaren Leistung, aufgrund der geringen Kristalllänge kann zudem von geringen Umlaufverlusten ausgegangen werden. Somit lässt sich die Schwellbedingung aus Glg. 2.44 vereinfachen zu:

$$T_{ges,l} + L_{int,l} = (N_2(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot}\sigma_{abs,l})M_r\ell. \quad (3.2)$$

Darin steht  $T_{ges,l}$  für die Summe der Auskoppelverluste, die in der Regel mit den Auskoppelverlusten  $T_{2,l}$  an einem Auskoppelspiegel gleichgesetzt werden kann. Unter der Annahme einer homogenen Verteilung der Pumpleistung lässt sich die effektive Pumpleistungsdichte  $E_{p,eff}$  sehr einfach angeben als das Produkt aus einfallender Pumpleistungsdichte  $E_p$  und der Absorptionseffizienz  $\eta_{abs}$ , welches sich über die Kristalllänge  $\ell$  in Einheiten der Absorptionslänge  $\alpha^{-1}$  homogen im Kristall verteilt:

$$E_{p,eff} = E_p \frac{\eta_{abs}}{\alpha\ell}. \quad (3.3)$$

Für den Abfall der Intensität nach Durchlauf eines Kristalles der Länge  $\ell$  gilt bei Berücksichtigung der mit steigender Besetzung von  $N_2$  zunehmenden Reemission und der durch das Ent-

völkern von  $N_1$  abnehmenden Absorption:

$$I(\ell) = I_0 \cdot e^{-(\sigma_{abs,p}(N_{dot}-N_2)-\sigma_{em,p}N_2)\ell}. \quad (3.4)$$

Umgestellt ergibt sich daraus

$$I(\ell) = I_0 \cdot e^{-\sigma_{abs,p}N_{dot}\ell \left(1 - \frac{\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}}{\sigma_{abs,p}} \frac{N_2}{N_{dot}}\right)}. \quad (3.5)$$

Der Vergleich mit dem Lambert-Beer-Gesetz (Glg. 5.1) zeigt, dass der effektive Absorptionswirkungsquerschnitt mit einem Ausbleich-Faktor

$$f_B = 1 - \frac{\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}}{\sigma_{abs,p}} \frac{N_2}{N_{dot}} \quad (3.6)$$

sinkt. Für den Grenzwert des vollständigen Ausbleichens des gepumpten Niveaus nimmt  $f_B$  den Wert Null an. Hieraus ergibt sich der Grenzwert für die mögliche Inversion  $\beta = N_2/N_{dot}$  zu

$$\beta_{max} = \frac{\sigma_{abs,p}}{\sigma_{em,p} + \sigma_{abs,p}}. \quad (3.7)$$

Die Effizienz der Absorption im Scheibenlaser lässt sich mit Glg. 3.6 errechnen gemäß

$$\eta_{abs} = 1 - \exp(-M_p \alpha \ell) = 1 - \exp(-M_p \sigma_{abs,p} f_B N_{dot} \ell), \quad (3.8)$$

worin  $M_p$  für die Anzahl der Pumpstrahlungsdurchgänge durch den Kristall steht. Mit diesen Annahmen lässt sich die durch Glg. 2.41 formulierte Ratengleichung vereinfachen zu

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{E_p}{h\nu_p} \frac{\eta_{abs}}{\ell} - \frac{N_2}{\tau} - M_r \frac{E_r}{h\nu_l} (N_2(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot} \sigma_{abs,l}). \quad (3.9)$$

Aus der vereinfachten Schwellbedingung 3.2 lässt sich die für den kontinuierlichen Laserbetrieb notwendige Besetzung des oberen Laserniveaus  $N_{2,s}$  einfach ermitteln:

$$N_{2,s} = N_{dot} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} + \frac{L_{int,l} + T_{ges,l}}{M_r \ell (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})}. \quad (3.10)$$

Aus Glg. 3.9 erhält man ebenfalls einen Ausdruck für die Besetzungsdichte des angeregten Niveaus, die im Dauerstrichbetrieb gegenüber der Besetzung an der Schwelle unverändert bleibt:

$$N_2 = \frac{\frac{E_p}{h\nu_p} \frac{\eta_{abs}}{\ell} + M_r \frac{E_r}{h\nu_l} \sigma_{abs,l} N_{dot}}{M_r \frac{E_r}{h\nu_l} (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) + \frac{1}{\tau}}. \quad (3.11)$$

Die Kombination von Glg. 3.10 und 3.11 liefert nun einen Ausdruck für die resonatorinterne Leistungsdichte in Abhängigkeit von der Pumpleistungsdichte:

$$E_r = \frac{\eta_{St} \eta_{abs} (E_p - E_{p,s})}{L_{int,l} + T_{ges,l}}, \quad (3.12)$$

worin  $\eta_{St} = v_l/v_p$  den durch die Energiedifferenz von Pump- und Laserphoton gegebenen Stokes-Wirkungsgrad bezeichnet.  $E_{p,s}$  steht in dieser Gleichung für die Pumpleistungsdichte an der Laserschwelle, welche sich aus Glg. 3.9 mit der an der Schwelle gültigen Annahme  $E_r = 0$  zu

$$E_{p,s} = \frac{h\nu_p}{\tau\eta_{abs}} \ell N_{2,s} \quad (3.13)$$

ergibt. Bei bekannter gepumpter Querschnittsfläche  $A_p$  folgt daraus mit Glg. 3.10 unter Berücksichtigung des Auskoppelgrades die Schwellpumpleistung  $P_s$  zu

$$P_s = A_p \cdot E_{p,s} = \frac{A_p h\nu_p}{\tau\eta_{abs}} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{abs,l} + \sigma_{em,l}} N_{dot} \ell + \frac{A_p h\nu_p}{\tau\eta_{abs}} \frac{L_{int,l} + T_{ges,l}}{M_r(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})}. \quad (3.14)$$

In dieser Gleichung zeigt sich der maßgeblichste Unterschied zwischen Vier-Niveau-Lasern und Drei- und Quasi-Drei-Niveau-Lasern: Während für ein Vier-Niveau-Laser-System der erste Term aufgrund der fehlenden Reabsorption an der Laserwellenlänge verschwindet und damit die Schwelle bei entsprechend geringen Resonatorverlusten sehr niedrig sein kann, stellt dieser Term für Systeme mit Reabsorption einen verlustunabhängigen Beitrag dar, der für eine erhöhte Schwellpumpleistung sorgt.

Aus Glg. 3.12 folgt nun für die Ausgangsleistung  $P_l$  des Lasers der Ausdruck

$$P_l = \frac{T_{ges,l}}{L_{int,l} + T_{ges,l}} \eta_{St} \eta_{abs} (P_p - P_s) \quad (3.15)$$

und damit für den optisch-optischen Wirkungsgrad durch Quotientenbildung von Glg. 3.15 mit der eingestrahlenen Leistung  $P_p$ :

$$\eta_{opt} = \frac{T_{ges,l}}{L_{int,l} + T_{ges,l}} \eta_{St} \eta_{abs} \left(1 - \frac{P_s}{P_p}\right). \quad (3.16)$$

## 3.3 Anforderungen an das aktive Material im Scheibenlaser

Die Vorteile des Scheibenlaserkonzeptes gegenüber anderen Laserdesigns zeigen sich insbesondere bei Hochleistungsanwendungen. Hierbei werden besondere Anforderungen an das Lasermaterial gestellt. Aus der Geometrie des Scheibenlaseraufbaus und den zur Präparation eines Scheibenlaserkristalles (vgl. Abschnitt 6.2) notwendigen Arbeitsschritten ergeben sich viele weitere der in diesem Abschnitt genannten wünschenswerten Eigenschaften eines aktiven Materials im Scheibenlaser. Äußere Umstände wie zur Verfügung stehende Pumpquellen oder spezielle Anwendungsgebiete erfordern ebenfalls besondere Eigenschaften des Lasermaterials. Diese Eigenschaften lassen sich in der Hauptsache einteilen in jene, die dem Wirtsgitter zueigen sind und solche, die durch den Einbau des Dotierions in dieses Gitter hervorgerufen werden.

### 3.3.1 Das Wirtsmaterial

Um die Dicke des aktiven Materials so gering wie möglich zu halten und damit die thermischen Verhältnisse im Kristall optimal kontrollieren zu können, muss das Wirtsmaterial ermöglichen,

das jeweilige Dotierion in einer hohen Konzentration einzubauen. Dabei ist es meist von Vorteil, wenn das im Wirtsmaterial ersetzte Ion in seinem Radius möglichst wenig vom Dotierion abweicht. Zur Unterdrückung interionischer Prozesse bei hohen Dotierkonzentrationen sind große Platzabstände im Wirtsmaterial nützlich. Damit durch dennoch auftretende Energiemigration Anregungsenergie nicht an Verunreinigungen im Kristallgitter verloren geht, ist eine hohe Reinheit der Wirtsmaterialien unabdingbar.

Die Präparation der für Höchstleistungsanwendungen nötigen Scheiben mit Durchmessern in der Größenordnung von Zentimetern setzt die Herstellbarkeit von optisch hochwertigen Kristallen dieser Dimensionierung voraus. Wünschenswert wäre es, wenn dies vermittels des bei kommerziellen Kristallherstellern weit verbreiteten Czochralski-Verfahrens (vgl. Anhang A) möglich wäre. Eine Weiterverarbeitung von Scheiben mit einem derartigen Durchmesser erfordert eine gewisse mechanische Stabilität des Scheibenmaterials. Eine stark ausgeprägte Spaltbarkeit würde sich hier wie auch bei der Politur negativ auswirken.

Die beim Beschichtungsvorgang auftretenden Temperaturen von ca. 250°C stellen keine große Herausforderung für ein potentielles Scheibenlasermaterial dar. Allerdings ist der Kristall in der vom Beschichter verwendeten Anordnung UV-Strahlung ausgesetzt und sollte daher keine Tendenz zur Bildung von Kristallfehlstellen wie beispielsweise Farbzentren unter UV-Strahlung aufweisen.

Weiterhin sollte das Wirtsmaterial auch alle weiteren für Höchstleistungslasermaterialien notwendigen Eigenschaften aufweisen, das heißt die Zerstörschwelle sollte hoch genug sein um den Pumplleistungen standzuhalten und die Wärmeleitfähigkeit muss ausreichen, um einen effizienten Abtransport der durch Quantendefekt und nichtstrahlenden Zerfall der angeregten Zustände produzierten Wärme zu gewährleisten. Trotz eines effizienten Wärmeabtransports kommt es unvermeidlich zur Ausbildung eines Temperaturgradienten zwischen der direkt gekühlten Rückseite des Kristalles und der Kristallvorderseite und somit insgesamt zu einer Erwärmung des aktiven Mediums. Durch die relativ feste Fixierung der Scheibe auf der Wärmesenke führt die hieraus resultierende thermische Ausdehnung des Kristalles zu Verspannungen, die umso stärker sind, je weiter sie von der Ausdehnung der Wärmesenke abweichen. Diese Verspannungen führen zunächst zu einer Verringerung der Strahlqualität, können aber – vor allem in Verbindung mit einer ausgeprägten Spaltbarkeit – auch zur Zerstörung des Kristalles führen. Daher sollten die thermischen Ausdehnungskoeffizienten gering sein, was gleichzeitig die Ausbildung einer thermischen Linse reduziert.

Speziell bei nicht-kubischen Wirtsgittern besteht die Möglichkeit, dass die Ausdehnungskoeffizienten in den die Scheibenebene aufspannenden kristallographischen Richtungen differieren. Diese Anisotropie ist von Nachteil, da metallische Wärmesenken hierauf nicht angepasst werden können. Auch eine zu starke Anisotropie in der Änderung der Brechzahl mit der Temperatur ist unerwünscht, da die hieraus entstehende Anisotropie der thermischen Linse nur schwer zu kompensieren ist.

#### 3.3.2 Das Dotierion

Da der effektive Absorptionskoeffizient eines Kristalles ein Produkt aus der Dotierungskonzentration und dem Wirkungsquerschnitt ist (vgl. Glg. 5.1), tragen hohe Absorptionswirkungsquerschnitte im selben Maße wie die Dotierbarkeit des Wirtsmaterials zu einer geringeren notwendigen Dicke des aktiven Materials bei und sind daher wünschenswert. Aus Abb. 3.3 lässt sich

grob abschätzen, dass für eine ausreichende Absorption die Absorptionslänge  $1/\alpha(\lambda)$  nicht über  $\sim 2,5$  mm liegen sollte um die sinnvolle Scheibendicke von einigen 100  $\mu\text{m}$  nicht überschreiten zu müssen. Daraus ergibt sich ein Absorptionskoeffizient  $\alpha(\lambda)$ , der über  $\sim 4\text{ cm}^{-1}$  liegen muss.

Um dem Emissionsprofil heutzutage erhältlicher Laserdioden zu entsprechen, ist es darüber hinaus vorteilhaft, wenn die Breite der zum Pumpen genutzten Absorptionsbande 3 nm übersteigt. Hierbei ist allerdings anzumerken, dass seit einigen Jahren mit Volumen-Bragg-Gitter-stabilisierten Laserdioden verstärkt auch Pumpquellen mit Emissionsbreiten unter 1 nm zur Verfügung stehen [New08]. Die Emission des Lasers hingegen sollte für Anwendungen im Dauerstrichbetrieb möglichst schmalbandig sein um ein unerwünschtes Ausweichen der Laserwellenlänge zu vermeiden.

Die erwünschten hohen Dotierungskonzentrationen bei gleichzeitig hoher Inversion im Scheibenlaserbetrieb vergrößern die Wahrscheinlichkeit für interionische Prozesse wie Kreuzrelaxation oder Aufwärtskonversion. Auch die Wahrscheinlichkeit für Absorption aus angeregten Zuständen steigt mit zunehmender Anregungsdichte. Das ideale Dotierion für den Scheibenlaser sollte daher ein Energieniveauschema aufweisen, das parasitäre Prozesse dieser Art nicht gestattet.

Aufgrund seines einfachen Energieniveauschemas (vgl. Kap. 2) erfüllt  $\text{Yb}^{3+}$  in vielen Wirtsmaterialien die bisher genannten Anforderungen. Ein geringer Quantendefekt durch den Betrieb als Quasi-Drei-Niveau-Laser ermöglicht zudem prinzipiell hocheffiziente Lasersysteme und vermindert den Wärmeeintrag in den Kristall. Die dennoch auftretende Erwärmung auf  $100^\circ\text{C}$  und mehr [Lar08] auf der Oberfläche des Kristalles sorgt im Falle von  $\text{Yb}^{3+}$  als Dotierion für eine verstärkte thermische Besetzung der oberen Stark-Niveaus im unteren  $^2\text{F}_{5/2}$ -Stark-Multiplett und erhöht damit die zum Erreichen der Inversion nötige Pumpleistung. Um die Schwelle dennoch gering zu halten, ist daher eine hohe Stark-Aufspaltung dieses Multipletts vorteilhaft.

### 3.3.3 Spezielle Anwendungen

Wird der Scheibenlaser nicht im Dauerstrichbetrieb bei fester Wellenlänge betrieben, ergeben sich weitere, von dem bisher Aufgezählten teilweise abweichende Anforderungen an das aktive Material im Scheibenlaser. So ist beispielsweise für eine effiziente Verdopplung der Grundwellenlänge eine stark polarisierte Emission entlang einer definierten Orientierung von Vorteil. Dies lässt sich durch polarisationsselektierende Elemente erreichen, die dem Resonator jedoch zusätzliche Verluste zufügen, oder auch durch den Einsatz nicht-kubischer Wirtsmaterialien mit einer Anisotropie der Emissionsspektren in den verschiedenen Polarisationen.

Eine für den effizienten gütegeschalteten Betrieb unerlässliche Eigenschaft ist eine lange Lebensdauer des oberen Laserniveaus, denn die im aktiven Medium speicherbare und damit für die zu generierenden Pulse zur Verfügung stehende Energie steigt linear mit der Lebensdauer [Deg89].

Für den stabilen modengekoppelten Betrieb mittels eines sättigbaren Halbleiterspiegels hingegen ist eine lange Fluoreszenzlebensdauer eher nachteilig. Negativ wirkt sich auch ein geringer Verstärkungswirkungsquerschnitt aus, denn beides erhöht die zur Sättigung der Verstärkung im Lasermedium nötige Pulsenergie. Dies hat eine exponentielle Verstärkung von Pulsen mit leicht nach oben abweichender Energie zur Folge. Der Grund hierfür ist, dass diese im sättigbaren Absorber durch dessen stärkere Sättigung geringere Absorptionsverluste erfahren,

während sie im aktiven Medium unterhalb der Sättigungsintensität weiterhin nahezu gleich verstärkt werden. Je höher die Sättigungsintensität des Mediums nun ist, desto stärker werden die Schwankungen in der Pulsenergie und können sich zu Instabilitäten in Form von unerwünscht einsetzenden gütegeschalteten Pulsen manifestieren [Hön99a].

Über die Fourier-Transformation bilden zeitliche Breite  $\Delta t$  und spektrale Breite  $\Delta \nu$  ein konjugiertes Variablenpaar. Anschaulich zeigt sich die Konsequenz in der Energie-Zeit-Unschärfe

$$\Delta E \Delta t \geq h \quad (3.17)$$

mit dem Planckschen Wirkungsquantum  $h$ , die sich mit der Energie  $E = h\nu$  als

$$\Delta \nu \Delta t \geq 1 \quad (3.18)$$

darstellen lässt. Im modengekoppelten Betrieb ist die erreichbare Pulslänge also invers proportional zur spektralen Breite der Pulse. Um die Voraussetzungen für die Erzeugung sehr kurzer Pulse zu bieten, muss ein aktives Material somit entsprechend breite Emissionsspektren aufweisen.

## 3.4 Bisher im Scheibenlaser verwendete kristalline aktive Materialien

Die bisher unabhängig von dieser Arbeit in der Literatur zu findenden mit dem Scheibenlaser und kristallinen, seltenerd-dotierten Festkörpermaterialien erzielten Ergebnisse beschränken sich zum großen Teil auf die Verwendung von Yb:Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (Yb:YAG) als aktives Material. In den meisten anderen Fällen werden entweder YAG als Wirtsmaterial oder Yb<sup>3+</sup> als aktives Ion verwendet. Die einzige in der Literatur zu findende Ausnahme bildet die Kombination von Nd<sup>3+</sup> mit Vanadaten.

Eine Besonderheit von Yb:YAG unter den Ytterbium-dotierten optisch aktiven Materialien ist die Tatsache, dass sich bei etwa 940 nm eine sehr breite Absorptionsbande findet, deren Wirkungsquerschnitte mit denen der recht schmalen Nullphononenlinie vergleichbar sind. Diese Bande ist sehr gut geeignet für das Pumpen mit Laserdioden, deren Emissionsspektrum üblicherweise einige Nanometer Breite aufweist. Die kürzere Pumpwellenlänge bringt jedoch den Nachteil eines geringfügig erhöhten Quantendefektes im Vergleich zum Pumpen der Nullphononenlinie mit sich.

Unter Verwendung von Yb:YAG wurde das Potential des Scheibenlaserdesigns bereits sehr eindrucksvoll dokumentiert. 5,3 kW bei einem differentiellen Wirkungsgrad von etwa 70% und einer optisch-optischen Effizienz  $\eta_{opt}$  von 65% konnten im Dauerstrichbetrieb mit einer Scheibe erzielt werden. In einer Anordnung mit vier separat gepumpten und jeweils als Faltspiegel verwendeten Scheiben konnte die Ausgangsleistung sogar bis auf über 9,5 kW bei kaum geringerer Effizienz gesteigert werden [Gie07a]. Die erzielbaren Pulslängen im modengekoppelten Betrieb sind begrenzt durch die relativ geringe Bandbreite der Verstärkung, die sich auch im schmalen spektralen Durchstimmbereich von nur etwa 25 nm [Gie07b] äußert. Die kürzesten bisher mit Yb:YAG im Scheibenlaser realisierten Pulsdauern sind daher mit 705 fs vergleichsweise lang, dies allerdings bei einer mittleren Ausgangsleistung von 80 W und einer Repetitionsrate von 57 MHz [Bru04]. Eine Verlängerung des Resonators senkte die Repetitionsrate auf

4 MHz, was bei einer geringen Verlängerung der Pulsdauer zu Pulsenergien von 11  $\mu\text{J}$  führte und einer Pulsspitzenleistung von 12 MW entspricht [Mar08]. Die höchsten bisher im Scheibenlaser erzielten Pulsenergien betragen 25  $\mu\text{J}$  bei einer Pulslänge von knapp unter 1 ps [Neu09].

Ein weiteres für den Betrieb im Scheibenlaser intensiv getestetes Material ist Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (Yb:KYW), dessen relativ breite Nullphononenlinie um 981 nm sehr gut für das Diodenpumpen geeignet ist. Mit Yb:KYW wurden die bisher kürzesten Pulse im Scheibenlaser erzielt: Bei einer mittleren Ausgangsleistung von 22 W betrug die Pulsdauer hier 240 fs [Bru02]. Die hierfür nötige Verstärkungsbandbreite spiegelt sich auch in einem breiten Durchstimmbereich von 64 nm wieder [Hil06]. Die höchsten in der Literatur zu findenden Ausgangsleistungen mit diesem Material betragen 73 W bei einem optisch-optischen Wirkungsgrad von 60% [Lar01]. In der Literatur sind keine Hinweise auf Experimente zur weiteren Skalierung der Ausgangsleistung zu finden, jedoch kann davon ausgegangen werden, dass das Skalierungspotential wegen der relativ großen Anisotropie der Ausdehnungskoeffizienten von KYW sowie der Tendenz zur Spaltbarkeit begrenzt ist [Kil08]. Gleiches gilt für die mit etwas geringerer Effizienz ebenfalls schon im Scheibenlaser als aktives Material verwendeten weiteren Wolframate Yb:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (Yb:KGW) [Lar01] und Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (Yb:NGW) [Pet08b]. Ein weiterer Nachteil dieser Gruppe von Laserkristallen ist, dass die meisten von ihnen nur unter Zumischung eines Flussmittels in der Schmelze zu züchten sind, was die erzielbare Wachstumsgeschwindigkeit erheblich herabsetzt und die Reinheit der verfügbaren Kristalle in vielen Fällen begrenzt.

Auch die Gruppe der derzeit von R. Peters ebenfalls im Institut für Laser-Physik im Rahmen einer Doktorarbeit untersuchten Yb<sup>3+</sup>-dotierten Sesquioxide bietet mit Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> offensichtlich Wirtsmaterialien mit der Eignung für effizienten Laserbetrieb im Scheibenlaseraufbau. Während mit Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> unter Pumpen bei 941 nm eine Ausgangsleistung von 18,3 W bei 61% differentiellem Wirkungsgrad und einem  $\eta_{opt}$  von 49,9% erzielt werden konnte [Lar01], belegen die jüngsten Ergebnisse von R. Peters mit Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> als aktivem Material mit 32,6 W Ausgangsleistung bei 80% differentiellem Wirkungsgrad und einer optisch-optischen Effizienz von 72% das herausragende Potential dieser Materialklasse [Pet07a]. Nachteilig für die Erzeugung ultrakurzer Pulse im modengekoppelten Betrieb erweist sich die durch die große Stark-Aufspaltung dieses Materials [Mix99] verursachte Aufspaltung des Emissionsspektrums in zwei voneinander getrennte Banden mit limitierter Breite. Dennoch wurden mit diesem Material bereits Pulslängen von 370 fs bei einer mittleren Ausgangsleistung von 20,5 W im Scheibenlaser erzielt [Mar07].

Auch mit einigen anderen aktiven Ionen konnte Laserbetrieb im Scheibenlaser realisiert werden. Dazu zählen Tm<sup>3+</sup> [Die98a, Ber99] und Ho<sup>3+</sup> [Sch06] in YAG, wobei in beiden Fällen die Ausgangsleistungen unter 10 W blieben, sowie verschiedene Übergänge von Nd<sup>3+</sup> in YAG [Gie99], YVO<sub>4</sub> [Pav08] und GdVO<sub>4</sub> [Lün07], deren Ausgangsleistung 50 W bisher nicht überschritt.



# 4 Die verwendeten Wirtsmaterialien

Dieses Kapitel liefert zunächst einen Überblick über die kristallographischen Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Wirtsmaterialien. Viele für den Betrieb als Hochleistungs-Lasermaterial wichtige Parameter werden in Tabelle 4.3 aufgelistet. Daran schließt sich ein kurzer Überblick über die mit den verwendeten Wirtsmaterialien bisher veröffentlichten Laserergebnisse. Eine Wertung der Eignung der untersuchten Materialien für den Betrieb im Scheibenlaser erfolgt im Anschluss an das Kapitel 5, denn auch die in diesem Kapitel noch nicht beschriebenen spektroskopischen Eigenschaften der Wirtsmaterialien sind gemäß Abschnitt 3.3 von großer Wichtigkeit für eine solche Einschätzung.

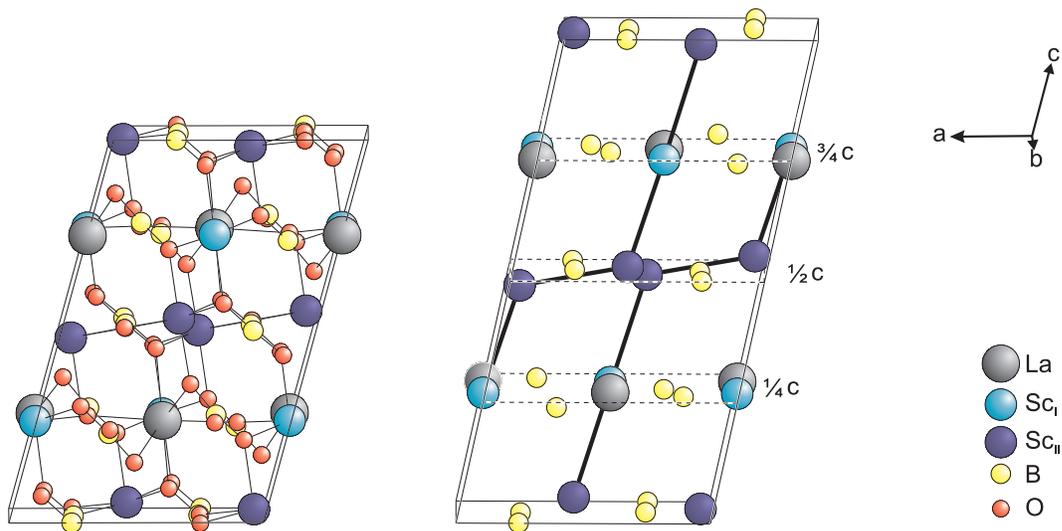
## 4.1 Kristallographische Eigenschaften der verwendeten Wirtsmaterialien

Die Wahl eines geeigneten Wirtsmaterials hat starke Auswirkungen auf die spektroskopischen Eigenschaften des Laserions. Zusätzlich sind neben den Eigenschaften des Wirtsmaterials auf atomarer Ebene wie Gittersymmetrie, Ionenabstand und den sich daraus ergebenden Auswirkungen des Kristallfeldes auf das Laserion auch die mechanischen Eigenschaften wie Härte, Wärmeleitfähigkeit oder eine eventuelle Spaltbarkeit für die Eignung als Laserkristall von großer Bedeutung. Die untersuchten Materialien lassen sich in zwei Klassen von Kristallen einteilen. Zunächst erfolgt eine Vorstellung der Borate, daran schließt sich eine Beschreibung der untersuchten Vanadat-Kristalle an.

### 4.1.1 Borate

In den letzten Jahren wurden Borate als Laserkristalle eingehend untersucht. Sie weisen in der Regel gute mechanische Eigenschaften auf und sind chemisch stabil. Die für Borate charakteristisch hohen Phononenenergien im Bereich von  $1000\text{ cm}^{-1}$  bis  $1500\text{ cm}^{-1}$  können zwar bei  $\text{Nd}^{3+}$ -Dotierung zu einer Verringerung der Quanteneffizienz infolge des vermehrten Auftretens von nichtstrahlenden Zerfällen über die zahlreichen Zwischenniveaus im Neodym-Energieniveauschema führen. Im Falle des aus nur zwei Stark-Niveaus mit einem typischen Abstand von  $10\,000\text{ cm}^{-1}$  bestehenden Energieniveauschemas von  $\text{Yb}^{3+}$  ist die Wahrscheinlichkeit für Multiphononenzerfälle gemäß Glg. 2.36 jedoch gering, die Quanteneffizienz mithin nicht einträchtigt.

Da viele Borate eine azentrische Kristallstruktur besitzen, eignen sie sich zur Anwendung als effiziente Frequenzverdoppler-Kristalle; hier sind insbesondere BBO ( $\text{BaB}_2\text{O}_4$ ) und BiBO ( $\text{BiB}_3\text{O}_6$ ) zu nennen. Letztgenannte lassen sich jedoch wie auch viele andere Mitglieder der Borat-Familie nicht mit der Czochralski-Methode (vgl. Anhang A) herstellen. Zu den wenigen mit dieser Methode herstellbaren Boraten gehören die Familie der Calcium-Oxyborate



**Abbildung 4.1:** Links: Visualisierung der Einheitszelle von LSB, rechts: Darstellung unter Nichtberücksichtigung der Sauerstoff-Atome und Streckung der  $c$ -Achse. Die gestrichelten Hilfslinien unterteilen die  $c$ -Achse in Viertel. Die am nächsten beieinander liegenden  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze sind durch durchgezogene schwarze Linien miteinander verbunden.

$\text{Ca}_4\text{REO}(\text{BO}_3)_3$ , worin RE für ein Selten-Erd-Ion steht, sowie  $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_3$  aus der Familie der Lanthanid-Borate. Letztgenanntes sowie  $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  wurden in dieser Arbeit auf ihre Eignung als Scheibenlaserkristalle untersucht.

### Lanthan-Scandium-Borat $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$

$\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  (LSB) ist ein in der Natur nicht vorkommender Kristall mit monokliner, zentrosymmetrischer Huntit-Struktur der Raumgruppe  $C2/c$ . Die Einheitszelle besteht aus vier Formeleinheiten mit insgesamt 80 Atomen. Eine Visualisierung der Einheitszelle sowie eine vereinfachte Darstellung sind in Abb. 4.1 zu sehen.

Wie im rechten Teil der Abb. 4.1, in dem der Übersichtlichkeit halber die  $\text{O}^{2-}$ -Ionen weggelassen wurden, gut zu erkennen ist, bauen sich die Kationen  $\text{La}^{3+}$  und  $\text{Sc}^{3+}$  in Ebenen, die jeweils durch etwa ein Viertel der Höhe der Einheitszelle, also rund  $3 \text{ \AA}$  voneinander getrennt sind, ein. Dabei treten die  $\text{La}^{3+}$ -Plätze nur versetzt in jeder zweiten Ebene auf, so dass sich zwischen diesen Plätzen ein relativ großer minimaler Ionenabstand von etwa  $6,08 \text{ \AA}$  [Dur01] einstellt. In Abb. 4.2 ist links die sechsfache Sauerstoff-Koordination dieses Platzes dargestellt, die in ihrer Symmetrie einem gestörten Prisma gleicht.

Das  $\text{Sc}^{3+}$  wird im Gitter hingegen in zwei leicht unterschiedlichen Symmetrien eingebaut, welche beide in einer gestörten Oktaeder-Symmetrie sechsfach koordiniert sind (vgl. Abb. 4.2 mitte und rechts).  $\text{Sc}_I^{3+}$ -Plätze liegen dabei in denselben Ebenen wie die  $\text{La}^{3+}$ -Plätze, was entlang der  $\mathbf{a}$ - und  $\mathbf{b}$ -Achse zu einer Folge von hintereinander liegenden  $\text{La}^{3+}$  und  $\text{Sc}_I^{3+}$ -Plätzen führt, wobei in  $\mathbf{a}$ -Richtung ein leichter Versatz gegeben ist. Die im Gitter doppelt so häufig auftretenden  $\text{Sc}_{II}^{3+}$ -Plätze liegen dagegen in eigenen um ca. ein Viertel der Höhe der Einheitszelle versetzten Ebenen des Kristallgitters vor und sind daher mit  $3,34 \text{ \AA}$  nur etwa halb soweit voneinander entfernt wie die  $\text{La}^{3+}$ -Plätze. Aufgrund der geringen Entfernung der Ebenen mit  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen innerhalb des Gitters sind die minimalen Abstände zwischen zwei  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen

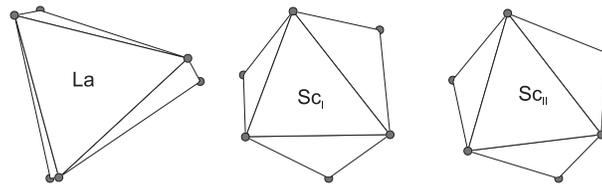
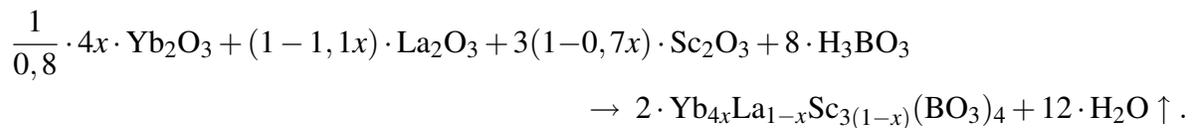


Abbildung 4.2: Visualisierung der Koordination der Kationenplätze im LSB-Gitter.

unterschiedlicher Symmetrie mit  $3,31 \text{ \AA}$  sogar noch etwas geringer.

Nach der Czochralski-Methode wurden LSB-Kristalle im Jahre 1991 erstmals von Kutovoi et al. hergestellt [Kut91]. Meyn [Mey94] gelang es, Kristalle von mehreren Zentimetern Länge bei einem Durchmesser von bis zu 2 cm mit dieser Methode herzustellen. Bei ersten im Rahmen jener Arbeit durchgeführten Züchtungsversuchen von Yb:LSB wurde davon ausgegangen, dass sich das  $\text{Yb}^{3+}$  genau wie das  $\text{Nd}^{3+}$  nur auf den  $\text{La}^{3+}$ -Platz im Wirtsgitter einbaut, daher blieben diese Versuche zunächst ohne Erfolg. Ein genauerer Blick auf die Größe der Kationenplätze im LSB zeigt, dass in der vorliegenden sechsfachen Koordination zwar das  $\text{Nd}^{3+}$  mit einem Ionenradius von  $0,98 \text{ \AA}$  gut auf den  $\text{La}^{3+}$ -Gitterplatz mit  $1,05 \text{ \AA}$  passt, während die  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze mit  $0,75 \text{ \AA}$  zu klein sind. Im Gegensatz dazu liegt  $\text{Yb}^{3+}$  jedoch mit einem Ionenradius von  $0,87 \text{ \AA}$  genau in der Mitte der Ionenradien der beiden zur Verfügung stehenden Gitterplätze [Pet05]. Weitere Züchtungsexperimente von Kutovoi und eine detaillierte spektroskopische Untersuchung [Joh04] bestätigten, dass das  $\text{Yb}^{3+}$  sich tatsächlich auf beide Gitterplätze einbaut. Der Einbaukoeffizient für den  $\text{La}^{3+}$ -Platz ergibt sich dabei aus Mikrosondenuntersuchungen [Hei] zu etwa 1,1, während er für den dreimal so häufig im Gitter auftauchenden  $\text{Sc}^{3+}$ -Platz etwa 0,7 beträgt, was insgesamt zu einem Einbaukoeffizienten von etwa 0,8 führt. Die bei der Berechnung der Einwaage für eine Dotierungskonzentration von  $4x \text{ at.}\%^1$  zu berücksichtigende Gesamtreaktion lautet folglich:



Aufgrund der leicht unterschiedlichen Platzsymmetrien der beiden  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze gibt es somit für das  $\text{Yb}^{3+}$  insgesamt drei spektroskopisch unterscheidbare Plätze im LSB-Wirtsgitter. Dies führt insgesamt zu einer deutlichen Verbreiterung der Absorptions- und Emissionsspektren, die das Material für die Erzeugung ultrakurzer Pulse wie auch für durchstimmbare Laser sehr geeignet erscheinen lässt. Im Vergleich zu Materialien mit ungeordneten Gittern mit ebenfalls sehr breiten Emissionsspektren wie z. B.  $\text{Yb}:\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  [Pet08b] oder Gläsern zeichnet sich LSB durch eine mit der geordneten Gitterstruktur verbundene verbesserte Phononenpropagation und die daraus resultierende höhere Wärmeleitfähigkeit von  $2,8 \text{ W/m}\cdot\text{K}$  aus. Dennoch liegt die Wärmeleitfähigkeit noch deutlich unter der von z. B. YAG (vgl. Tab. 4.3). Es weist eine von Meyn als "schwach bis deutlich" bezeichnete Spaltbarkeit auf, die jedoch nicht mit den

<sup>1</sup>Die hier und in der Literatur zu findenden Angaben zur Dotierungskonzentration beziehen sich analog zur Dotierung mit  $\text{Nd}^{3+}$  ausschließlich auf die Anzahl der  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen in Relation zur Anzahl der  $\text{La}^{3+}$ -Gitterplätze. Die sich aus dieser Konvention ergebenden Zahlenwerte für die Dotierungskonzentration sind damit viermal höher, als der tatsächlich ersetzte Prozentsatz aller  $\text{La}^{3+}$  und  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze. Daher rührt auch der Faktor 4 in der eingewogenen Dotierungskonzentration.

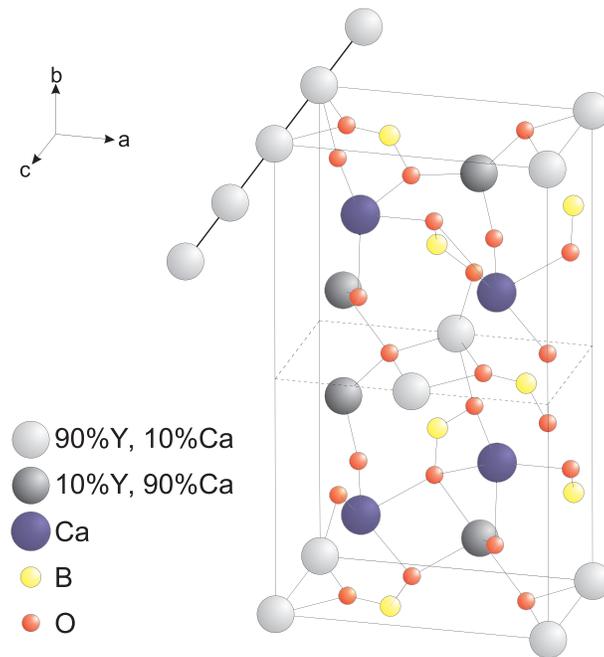
dielektrischen Hauptachsen zusammenfällt und daher keine Einschränkung bei der Präparation von Laserkristallen darstellt. LSB ist zudem relativ hart und chemisch stabil; der Transparenzbereich erstreckt sich von 220 nm bis 1900 nm [Mey94].

Da die relativ nahe beieinander liegenden  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze in Ketten in  $[10\bar{2}]$ -Richtung hintereinander platziert durch den Kristall verlaufen, es also nur zwei nächste Nachbarplätze gibt, ist der mittlere Ionenabstand  $R$ , der in die Migrationswahrscheinlichkeit mit  $R^{-6}$  eingeht, mit  $3,8 \text{ \AA}$  deutlich größer als der minimale Abstand von  $3,3 \text{ \AA}$  zwischen den  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen. Teile dieser Ketten sind im rechten Teil der Abb. 4.1 als dickere schwarze Linien eingezeichnet.

Durch die relativ große Differenz der Ionenradien von  $\text{Sc}^{3+}$  bzw.  $\text{La}^{3+}$  und  $\text{Yb}^{3+}$  wird das Kristallgitter jedoch beim Einbau von  $\text{Yb}^{3+}$  verzerrt. Dies führt dazu, dass Volumenkristalle nur mit einer maximalen Dotierungskonzentration von 25 at.% hergestellt werden können. Die Kationendichte entspricht in diesem Falle etwa einem 10 at.%-dotierten Yb:YAG-Kristall. 30 at.%-dotierte mit der Czochralski-Methode hergestellte Yb:LSB-Kristalle wiesen viele Sprünge auf und waren für Laserexperimente daher nicht geeignet. Für Dotierungskonzentrationen über 30 at.% ändert sich die Struktur analog zum Falle hoher  $\text{Nd}^{3+}$ -Dotierungen über 50 at.% zur trigonalen, azentrischen Raumgruppe R32, was anhand der Tatsache des Auftretens von Frequenzverdopplung bei Einstrahlung von Laserlicht belegt wurde [Dur01]. Optische und spektroskopische Eigenschaften von verschiedenen Dotierionen in LSB lassen jedoch auch schon für die bei niedrigeren Dotierungskonzentrationen vorliegende monoklinen Raumgruppe C2/c eine sehr nahe Verwandtschaft zur tetragonalen Symmetrie erkennen (vgl. [Mey94, Die98b, Joh04]). Die beiden größeren der drei Brechzahlen in LSB sind nahezu identisch und können daher durch ein  $n_o$  ersetzt werden. Die optische Hauptachse  $\mathbf{Y}$  entspricht dann der  $\mathbf{b}$ -Achse in der monoklinen Struktur, und für die  $\mathbf{Z}$ -Achse mit  $n_e$  wird eine dreizählige Symmetrieachse angenommen, die der nahe verwandten tatsächlich trigonalen Struktur der  $\mathbf{c}$ -Achse entspräche [Dur01]. Daher wird LSB auch häufig als "quasi-trigonal" bezeichnet und spektroskopisch als uniaxial betrachtet.

#### Calcium-Yttrium-Oxyborat $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$

Calcium-Seltenerd-Oxyborate  $\text{Ca}_4\text{REO}(\text{BO}_3)_3$  (RECOB) mit  $\text{RE} = \text{La, Nd, Sm, Er}$  und insbesondere  $\text{Gd}$  und  $\text{Y}$  stellen eine relativ neue Klasse von Laser-Materialien dar und kommen wie LSB in der Natur nicht vor. Sie wurden erst 1991 erstmals von Norrestam und Nygren synthetisiert [Nor92], gehören der azentrischen monoklinen Raumgruppe  $Cm$  an und sind damit biaxial. Die Einheitszelle besteht aus zwei Formeleinheiten. Das einzige Symmetrieelement in der Einheitszelle ist eine in Abb. 4.3 gestrichelt eingezeichnete Spiegelebene senkrecht zur  $\mathbf{b}$ -Achse. Die  $\text{Y}^{3+}$ -Ionen bauen sich bevorzugt auf die beiden halb in der Einheitszelle liegenden Kationenplätze in dieser Spiegelebene sowie die zu jeweils einem Achtel in der Einheitszelle liegenden Eckplätze ein. Der minimale Abstand der  $\text{Y}^{3+}$ -Ionen ist somit identisch mit der Länge der kürzesten Achse  $\mathbf{c}$  ( $3,524 \text{ \AA}$ ). Damit verlaufen also auch in YCOB die  $\text{Y}^{3+}$ -Plätze direkt hintereinander in Ketten in  $\mathbf{c}$ -Richtung durch den Kristall. Diese Ketten sind etwa doppelt so weit voneinander entfernt wie die Gitterplätze innerhalb der einzelnen Kette. Daher beträgt der mittlere Ionenabstand zwischen den Ketten wesentlich größere  $6,1 \text{ \AA}$ . Leicht abweichend von dieser Betrachtung weist YCOB jedoch einen geringen Grad von Unordnung auf; somit besteht auch die Möglichkeit, dass sich  $\text{Y}^{3+}$ -Ionen – unter Ladungskompensation – auf einige der eigentlich zweiwertigen  $\text{Ca}^{2+}$ -Plätze einbauen. Anhand von Tieftemperatur-Absorptionsspektren



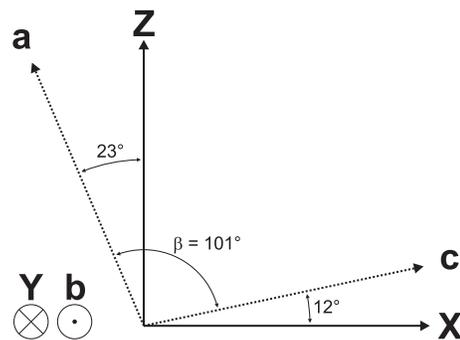
**Abbildung 4.3:** Aufbau der Einheitszelle von YCOB. Aufgrund der nur leicht ungeordneten Struktur wurden die bevorzugt von  $Y^{3+}$  besetzten Gitterplätze farblich von den bevorzugt von  $Ca^{2+}$  besetzten Gitterplätzen unterschieden. In der oberen linken Ecke der Einheitszelle wurde beispielhaft der Verlauf der  $Yb^{3+}$ -Ketten durch das Gitter visualisiert. Die gestrichelten Linien markieren die Lage der Spiegelebene in der Einheitszelle.

konnte der Anteil von dreiwertigen Ionen auf ursprünglich zweiwertigen Plätzen auf etwa 10% abgeschätzt werden [Lup02]. Die bevorzugt von  $Y^{3+}$  besetzten Plätze sind daher in Abb. 4.3 hell dargestellt und die bevorzugt von  $Ca^{2+}$  besetzten Plätze dunkel. Der  $Y^{3+}$ -Platz weist eine  $C_s$ -Symmetrie auf, die sowohl als sechsfach, als auch unter Berücksichtigung zweier weiter entfernter  $O^{2-}$ -Ionen als achtfach koordiniert angesehen werden kann [Nor92]. Das  $Ca^{2+}$  liegt in zwei verschiedenen Symmetrien vor, die beide sechsfach koordiniert sind. Der minimale Abstand zwischen zwei  $Y^{3+}$ -Plätzen beträgt genau wie der minimale  $Y^{3+}$ - $Ca^{3+}$  bzw.  $Ca^{3+}$ - $Ca^{3+}$ -Abstand  $3,53 \text{ \AA}$ . Die leicht ungeordnete Kristallstruktur führt dazu, dass die Wärmeleitfähigkeit von etwa  $2 \text{ W/m}\cdot\text{K}$  für YCOB unter den in dieser Arbeit untersuchten Materialien die geringste ist. Aufgrund der erstaunlich niedrigen thermooptischen Koeffizienten (vgl. Tab. 4.3), die einer sehr sorgfältig eigens zu diesem Thema publizierten Veröffentlichung [Seg07] entnommen sind, sollte eine schlechtere Wärmeabfuhr allerdings nur in geringem Maße zu einer Verschlechterung der Strahlqualität im Scheibenlaser beitragen.

Da die kristallographischen Achsen (**a**, **b**, **c**) von YCOB nicht orthogonal zueinander sind und nicht mit den Achsen (**X**, **Y**, **Z**) der optischen Indikatrix zusammenfallen, ist die Orientierung dieser Kristalle nicht trivial. Nach zunächst einander widersprechenden Veröffentlichungen einigte man sich auf eine Darstellung gemäß Abb. 4.4. Hierbei zeigt die **b**-Achse in die entgegengesetzte Richtung der **Y**-Achse der optischen Indikatrix, während zwischen **a**- und **Z**-Achse ein Winkel von  $23^\circ$  und zwischen **c**- und **X**-Achse ein Winkel von  $12^\circ$  steht [Ye99].

Obwohl die Zusammensetzung der meisten Calcium-Seltenerd-Oxyborate nur geringfügig von einer kongruenten Zusammensetzung gemäß





**Abbildung 4.4:** Orientierung der optischen Indikatrix mit den Achsen (X,Y,Z) relativ zur kristallographischen Indikatrix mit den Achsen (a, b, c) von YCOB.

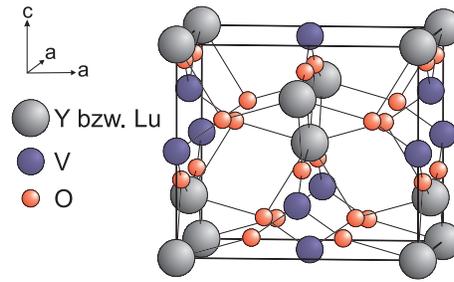
worin RE für ein Seltenerdion steht, abweicht und viele von ihnen damit nach der Czochralski-Methode herstellbar sind, wurde erst 1996 mit GdCOB das erste Mitglied dieser Familie nach diesem Verfahren gezüchtet [Aka96]. Kurz darauf wurde auch YCOB auf diese Weise hergestellt [Iwa97]. Schnell gelang es YCOB-Kristalle von bis zu 75 mm Durchmesser und 200 mm Länge herzustellen [Ye99]. Aufgrund der azentrischen Kristallstruktur wurden beide Materialien in der Folge schnell als effiziente Materialien zur Frequenzkonversion erkannt [Iwa97].

Wie man aufgrund des bereits erwähnten möglichen Einbaus von  $Y^{3+}$ -Ionen auf  $Ca^{2+}$ -Plätze vermuten könnte, weicht die Zusammensetzung von YCOB tatsächlich geringfügig von der oben angegebenen kongruenten Zusammensetzung ab. Für die Herstellung mittels der Czochralski-Methode bedeutet dies, dass nur ein bestimmter Anteil der Schmelze zu einem Kristall wachsen kann und die verbleibende Restschmelze stark von der Stöchiometrie abweicht. Die Abweichung von der kongruenten Zusammensetzung steigt jedoch im YCOB mit zunehmender Dotierkonzentration. Ye und Chang [Ye99] erklären dies damit, dass der sechsfach koordinierte  $Y^{3+}$ -Platz nur eine sehr geringe Größentoleranz aufweist. Kleinere Ionen wie  $Yb^{3+}$  und  $Lu^{3+}$  oder auch größere wie  $Gd^{3+}$  und  $Nd^{3+}$  führen zu einer Störung des Gitters und machen dieses damit instabiler. Dies spiegelt sich auch in der Tatsache wieder, dass YCOB unter den Mitgliedern der RECOB-Familie mit  $1510^{\circ}C$  den höchsten Schmelzpunkt aufweist. Die Dotierbarkeit von YCOB mit  $Yb^{3+}$  ist daher auf 50 at.% beschränkt. Die sich ergebende maximale  $Yb^{3+}$ -Ionendichte von  $2,25 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  entspräche in YAG einer Dotierung von 16 at.%. Dabei ist zu berücksichtigen, dass auch das  $Yb^{3+}$ -Ion mit einem Anteil von etwa 10% auch auf den zweiwertigen Ca-Platz eingebaut wird, was wie im Falle von LSB zu einer Verbreiterung der Spektren führt.

Der Transparenzbereich von undotiertem YCOB erstreckt sich von ca. 230 nm [Iwa97] bis 2500 nm [Seg07]. Viele weitere wichtige Daten sind in Tab. 4.3 zusammengeführt worden.

### 4.1.2 Vanadate

Zu den wenigen vanadiumhaltigen Oxidkristallen, mit denen bisher Lasertätigkeit demonstriert werden konnte, gehören neben den Seltenerd-Orthovanadaten der Form  $REVO_4$  mit  $RE = Y^{3+}$ ,  $Gd^{3+}$ ,  $Er^{3+}$  und  $Lu^{3+}$  nur die drei Erdalkali-Orthovanadate der Form  $EA_3(VO_4)_3$  mit  $EA = Ca^{2+}$ ,  $Sr^{2+}$  und  $Ba^{2+}$  [Kam90]. Die Mitglieder der erstgenannten Gruppe weisen mit dem Vorhandensein eines dreiwertigen Kationenplatzes sowie einer durchweg hohen mechanischen und



**Abbildung 4.5:** Visualisierung der Struktur von REVO ( $RE = Y, Lu$ ). Das Verhältnis der Gitterkonstanten der ansonsten isostrukturellen Materialien YVO und LuVO unterscheidet sich nur um etwa 0,5%. Aus diesem Grund ist die Darstellung für beide Wirtsgitter in guter Näherung maßstabsgetreu.

chemischen Stabilität, die sich auch in den hohen Schmelzpunkten von jeweils über  $1650^{\circ}\text{C}$  widerspiegelt, Voraussetzungen auf, die die Untersuchung auf ihre Eignung als Wirtsmaterial für Seltenerdionen rechtfertigten. Hinzu kommt, dass diese Materialien aufgrund ihrer kongruenten Zusammensetzung prinzipiell nach der Czochralski-Methode herstellbar und bis auf  $\text{ErVO}_4$  optisch praktisch inaktiv sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurden daher  $\text{YVO}_4$  und  $\text{LuVO}_4$  eingehend untersucht. Diese Materialien ähneln sich in ihren kristallographischen Eigenschaften trotz des großen Unterschiedes im Atomgewicht des Kationenplatzes sehr und werden daher im Folgenden gemeinsam behandelt.

### Yttrium- und Lutetium-Orthovanadat $\text{YVO}_4$ und $\text{LuVO}_4$

$\text{YVO}_4$  (YVO) und das isostrukturelle  $\text{LuVO}_4$  (LuVO) sind natürlich vorkommende Seltenerd-Orthovanadate, die unter der mineralogischen Bezeichnung Wakefieldit geführt werden. Beide Kristallgitter gehören der tetragonal raumzentrierten Zirkonstruktur  $I4_1/amd$  an. Die Einheitszelle besteht aus vier Formeleinheiten und ist in Abb. 4.5 dargestellt [Yod50].

In diesen – verglichen mit den vorher beschriebenen Materialien – kristallographisch relativ einfachen Kristallgittern steht dem  $\text{Yb}^{3+}$  als Dotierion nur der  $\text{RE}^{3+}$ -Platz zur Verfügung; der zweite Kationenplatz des  $\text{V}^{5+}$  ist weder in Bezug auf die Ladung noch in Bezug auf den mit  $0,36 \text{ \AA}$  [Kam90] etwa dreimal kleineren Ionenradius zum Einbau von  $\text{Yb}^{3+}$  geeignet. Die minimalen Kationenabstände betragen im Falle von  $\text{YVO}_4$   $3,88 \text{ \AA}$  und im Falle von  $\text{LuVO}_4$   $3,83 \text{ \AA}$ . Für den mittleren Abstand ergeben sich Werte von  $4,29 \text{ \AA}$  bzw.  $4,24 \text{ \AA}$ . Die  $\text{RE}^{3+}$ -Plätze sind jeweils achtfach koordiniert und befinden sich im Zentrum zweier entlang der c-Achse gestauchter und um  $90^{\circ}$  zueinander verdrehter  $\text{O}^{2-}$ -Tetraeder, die von jeweils vier ihn umgebenden  $\text{O}^{2-}$ -Ionen aufgespannt werden und insgesamt eine nur wenig verzerrte stumpfe Disphenoid-Form der Symmetrie  $D_{2d}$  bilden [Yan76].  $\text{YbVO}_4$  weist dieselbe Raumgruppe mit Gitterkonstanten, die zwischen denen von  $\text{YVO}_4$  und  $\text{LuVO}_4$  liegen, auf. Daher ist davon auszugehen, dass beliebige Dotierungskonzentrationen von  $\text{Yb}^{3+}$  in beide Wirtsmaterialien eingebaut werden können.

Trotz dieser einfachen Struktur gibt es viele Hinweise darauf, dass für Dotierionen in realen Vanadat-Kristallen mehrere Plätze mit unterschiedlichen Kristallfeldern zur Verfügung stehen. Für  $\text{Nd}^{3+}$  und  $\text{Yb}^{3+}$  konnten drei unterschiedliche Plätze nachgewiesen werden [Erm99, Gui05], was einerseits zu inhomogen verbreiterten Spektren führt (vgl. Kapitel 5) und andererseits die Bestimmung der Lage der Stark-Niveaus soweit erschwert, dass der Literatur bislang keine Daten für  $\text{Yb}:\text{LuVO}$  zu entnehmen sind. Begründen lässt sich das Auftreten mehrerer

spektroskopisch unterscheidbarer Gitterplätze zum einen mit der sehr flexiblen Ladungszahl des Vanadium-Ions, zum anderen mit dem sehr niedrigen Schmelzpunkt des für die Einwaage gemäß



verwendeten  $\text{V}_2\text{O}_5$ , liegt dieser doch mit nur  $670^\circ\text{C}$  um mehr als  $1000^\circ\text{C}$  unter dem der Seltenerd-Vanadate [d'A98].

Aufgrund der vielen möglichen Wertigkeiten des Vanadiums, das neben den stöchiometrischen Valenzen 2, 3, 4 und 5 auch in Verbindungen der Art  $\text{V}_n\text{O}_{2n-1}$  (Magnéli-Phasen) und  $\text{V}_n\text{O}_{2n+1}$  (Wadsley-Phasen) auftreten kann [And70], verdampfen Vanadium-Oxide unterhalb des Verdampfungspunktes nicht kongruent, sondern es kommt zu einem Abdampfen von Sauerstoff und der Bildung niedrigerwertiger Vanadium-Oxide. Das entstehende Sauerstoff-Defizit führt nun im  $\text{REVO}_4$  nicht nur zu der auch von anderen Kristallen bekannten vermehrten Entstehung von Farbzentren. Auch die Bildung von stabilen sauerstoffärmeren Suboxiden wie  $\text{YVO}_3$  ist belegt<sup>2</sup> [Erd93]. Das Vorhandensein dieser Suboxide führt zu einer lokalen Änderung des Kristallfeldes und damit zum Auftreten von spektroskopischen Eigenschaften, die auf das Vorhandensein mehrerer Plätze schließen lassen (vgl. Abschnitt 5.3.3).

Aus den genannten Gründen ist die Züchtung von Seltenerd-Vanadaten mit großen Schwierigkeiten verbunden. Hinzu kommt, dass die Transmission der Vanadate für die Wärmestrahlung bei hohen Temperaturen offensichtlich stark abnimmt, so dass die Wärme durch den Kristall nur über die Wärmeleitung abgeführt werden kann. Damit wird der Wärmeabtransport von der Wachstumsfront mit steigender Kristalllänge zunehmend behindert, was die Länge der herstellbaren Kristalle begrenzt [Pol03]. Nachdem bereits im Jahre 1965 die ersten Züchtungsversuche mit der Czochralski-Methode an  $\text{YVO}_4$  Kristalle von 2 cm Länge und ca. 5 mm Durchmesser lieferten [Rub66], dauerte es bis 1987 bis die ersten Kristalle mit für kommerzielle Anwendungen nutzbaren Dimensionen hergestellt werden konnten [Zdo87]. Größere  $\text{LuVO}_4$ -Kristalle wurden nach der Czochralski-Methode 1996 erstmals von Terada et al. hergestellt [Ter96]. Heutzutage können von beiden Materialien mit der Czochralski-Methode Einkristalle von fast 10 cm Länge und einem Querschnitt von wenigen Zentimetern hergestellt werden [Krä04]. Obwohl gerade  $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$  sich heutzutage als effizientes Lasermaterial für viele Anwendungen durchgesetzt hat, sind bis heute die auf dem Markt erhältlichen Vanadate nicht frei von Farb- und Streuzentren, was von nach wie vor nicht überwundenen Schwierigkeiten bei der Herstellung zeugt.

Prinzipiell ist zu erwarten, dass  $\text{LuVO}_4$  aufgrund der besseren Übereinstimmung des Ionenradius von  $\text{Lu}^{3+}$  das besser geeignete Material für die Dotierung mit  $\text{Yb}^{3+}$  ist, da die Störung des Kristallgitters durch das Dotierion sehr gering ist. Darüber hinaus ist zu erwarten, dass die Wärmeleitfähigkeit mit der Dotierung in geringerem Maße absinkt als im Falle von  $\text{YVO}_4$ , da auch die Atommassen sehr nahe beieinander liegen. Dies kann beispielsweise im Falle der  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Sesquioxide beobachtet werden [Gri04]. Die in der Literatur zu findenden Daten für die Wärmeleitfähigkeit der Vanadate unterliegen jedoch großen Schwankungen (vgl. Tab. 4.3) und erlauben daher keine zuverlässige Aussage. Eine mögliche Erklärung für diese Schwankungen ist die aufgrund der schwierigen Herstellung der Materialien sehr unterschiedliche Qualität der in den einzelnen Veröffentlichungen untersuchten Kristalle. Nähere Erläuterungen hierzu finden sich im Abschnitt 4.2.

<sup>2</sup>Für eine ausführlichere Darlegung der Entstehungsprozesse dieser Suboxide sei auf [Krä04] verwiesen.

Aufgrund der großen Anisotropie der Brechzahlen und des großen Transparenzbereiches von ca. 350 nm bis 5000 nm [Cas08] sind beide Materialien auch für die Herstellung von Polarisatoren sehr interessant, obwohl von LuVO<sub>4</sub> bisher keine ausführlichen Daten zur Dispersion der Brechzahl vorliegen. Die Daten für YVO<sub>4</sub> sowie weitere wichtige Parameter finden sich in Tab. 4.3.

## 4.2 Messung der Wärmeleitfähigkeit

In der Literatur finden sich vor allem für die Vanadate stark voneinander abweichende Werte für die Wärmeleitfähigkeit (vgl. Tab. 4.1). Da diese Eigenschaft prinzipiell von großer Bedeutung für die Eignung eines Materials für Hochleistungsanwendungen ist, wurden für die Vanadate und auch für alle weiteren im Laserbetrieb getesteten Materialien eigene Messungen zur Ermittlung dieser Materialkonstante durchgeführt.

Die Wärmeleitung  $\lambda$  errechnet sich gemäß

$$\lambda = \alpha \cdot \rho \cdot C_p \quad (4.1)$$

als Produkt aus der Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$ , der Dichte  $\rho$  sowie der spezifischen Wärmekapazität  $C_p$  eines Materials [Vog97]. Während sich die Dichte eines kristallinen Festkörpers über die Gitterkonstanten und die Anzahl und Art der Atome in der Einheitszelle leicht errechnen lässt und in der Regel mit ausreichender Genauigkeit mit experimentell bestimmten Daten übereinstimmt, sind die spezifische Wärmekapazität und die Temperaturleitfähigkeit einer direkten Messung nicht ohne weiteres zugänglich.

Bei den untersuchten Kristallen handelt es sich um Isolatoren. Im Gegensatz zu Metallen, in denen die Wärmeleitung auch über Leitungselektronen im Festkörper propagieren kann, findet der Wärmetransport in Isolatoren ausschließlich über phononische Wechselwirkungen statt. Es ist leicht nachvollziehbar, dass das Einbringen von Dotierionen als Störstellen im Kristallgitter einen negativen Einfluss auf die Propagation der Phononen haben wird. Schon allein aus diesem Grund bedürfen die in Tab. 4.1 dargestellten Daten der Überprüfung, legen sie doch eher einen Anstieg der Wärmeleitfähigkeit mit der Temperatur nahe. Aus dieser Tabelle und für höhere Dotierungskonzentrationen durch den Vergleich mit YAG [Qiu02] ist ersichtlich, dass der Einfluss der Dotierung auf die Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$  deutlich größer ist, als der Einfluss

Nd <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Dichte $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	Wärmekapazität $C_p$ (J/g·K)	Temperaturleitfähigkeit $\alpha$ (10 <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> /s)		Wärmeleitfähigkeit $\lambda$ (W/m·K)		Quelle
			a	c	a	c	
0,0	4,23	0,50	3,37	4,43	7,2	9,4	[Qin03]
0,0	4,22		4,92	4,92	8,9	12,1	[Sat06]
0,5	4,14	0,56	3,77	5,19	7,9	11,0	[Fre04]
1,0	4,22	0,43	4,70	6,24	8,5	11,3	[Sat06]
2,0	4,25	0,51		keine Angaben			[Zha99b]

**Tabelle 4.1:** Verschiedene Literaturdaten für die thermischen Eigenschaften von Nd:YVO. Für die undotierte YVO-Probe in [Sat06] wird die Wärmekapazität nicht angegeben, da in der zitierten Arbeit an dieser Stelle der Wert für die 1 at.% dotierte Probe verwendet wurde.

Yb <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Wirtsmaterial	Orientierung	Mittlere Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Mittlere Temperaturleitfähigkeit $\alpha$ ( $10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ )
1,0	YVO	<b>a</b> -cut	$645 \pm 5$	$3,30 \pm 0,21$
1,6	YVO	<b>a</b> -cut	$278 \pm 3$	$2,60 \pm 0,12$
2,0	YVO	<b>a</b> -cut	$247 \pm 1$	$2,49 \pm 0,10$
5,0	YVO	<b>a</b> -cut	$167 \pm 9$	$2,71 \pm 0,57$
1,0	LuVO	<b>a</b> -cut	$203 \pm 4$	$2,35 \pm 0,06$
1,5	LuVO	<b>a</b> -cut	$232 \pm 4$	$2,35 \pm 0,04$
100,0	YbVO	<b>a</b> -cut	$262 \pm 4$	$1,83 \pm 0,12$
3,0	LSB	<b>a</b> -cut	$311 \pm 2$	$1,24 \pm 0,02$
10,0	LSB	<b>a</b> -cut	$382 \pm 1$	$1,37 \pm 0,02$
15,0	LSB	<b>a</b> -cut	$308 \pm 7$	$1,30 \pm 0,01$
25,0	LSB	<b>a</b> -cut	$104 \pm 3$	$1,19 \pm 0,15$
30,0	LSB	<b>a</b> -cut	$390 \pm 1$	$0,91 \pm 0,01$
15,0	YCOB	<b>Z</b> -cut	$196 \pm 4$	$0,82 \pm 0,03$
15,0	YCOB	<b>X</b> -cut	$506 \pm 5$	$0,95 \pm 0,03$

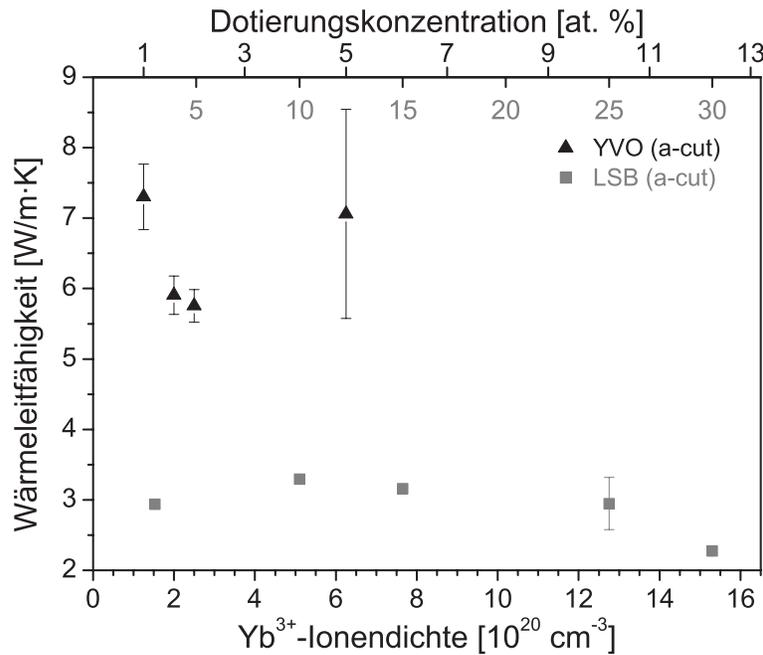
**Tabelle 4.2:** Temperaturleitfähigkeiten der untersuchten Proben.

auf die Wärmekapazität  $C_p$ . Dieser Ansatz wurde auch in [Sat06] verfolgt. Mit dieser Annahme eines konstanten  $C_p$  lässt sich bei bekanntem Verlauf der Dichte mit der Dotierungskonzentration allein aus der Messung der Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$  unterschiedlich dotierter Proben eine Tendenz des Verlaufes der Wärmeleitfähigkeit bei Raumtemperatur mit der Dotierungskonzentration ableiten.

Zu diesem Zwecke wurden Messungen mit einem Gerät zur Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit durchgeführt. In dem Messinstrument Mobile 1 der Firma ai-Phase wird die zu vermessende Probe zwischen zwei Kontakten gelagert. Während von einem Kontakt aus Wärmewellen durch den Kristall propagieren, wird am anderen Kontakt der zeitliche Verlauf der Phase der ankommenden Wärmewellen detektiert. Wird diese Messung für verschiedene Frequenzen der Wärmewellen durchgeführt, erlaubt ein Vergleich mit gespeicherten Referenzdaten für ein Material bekannter Temperaturleitfähigkeit bei bekannter Dicke einen Rückschluss auf die Temperaturleitfähigkeit des untersuchten Materials. Details zu dieser Messmethode finden sich in [Mor98].

Die vom Gerät ermittelten Dicken standen dabei durchweg in vernünftiger Übereinstimmung mit den selbst bestimmten Dicken der Proben. Insgesamt konnte bei den Messungen beobachtet werden, dass für Proben einer Dicke von mehr als  $500 \mu\text{m}$  unrealistische und tendenziell zu hohe Werte ermittelt wurden, weshalb in den meisten Fällen Wiederholungsmessungen mit dünneren Proben durchgeführt wurden. Die aus jeweils mindestens drei Wiederholungsmessungen pro Probe ermittelten Daten für unterschiedliche Kristalle sind in Tab. 4.2 aufgelistet. Die Orientierung entspricht dabei derjenigen, mit welcher optimale Lasertätigkeit in den Experimenten erwartet wurde. Für YCOB wurde zusätzlich auch die Temperaturleitfähigkeit parallel zur **Z**-Achse vermessen.

Von YVO und LSB standen dabei Kristalle verschiedener Dotierungen zur Verfügung, die eine Abschätzung des Verlaufes der Temperaturleitfähigkeit mit der Dotierungskonzentration



**Abbildung 4.6:** Verlauf der Wärmeleitfähigkeit mit der  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionenkonzentration bzw. Dotierungskonzentration in YVO und LSB. Die Skalen an der oberen Abszisse geben die Dotierungskonzentration in at.% für YVO (schwarz) und LSB (grau) wieder.

ermöglichen. Im Falle des 1 at.% dotierten Yb:YVO wurde die einzige zur Verfügung stehende Probe bei späteren Lebensdauermessungen so beschädigt, dass keine Wiederholungsmessung mit einer Probe geeigneter Dicke erfolgen konnte.

Um den Verlauf der Wärmeleitfähigkeit für YVO und LSB mit der Dotierungskonzentration nun abschätzen zu können, wurde im Falle von YVO davon ausgegangen, dass die Dichte zwischen dem undotierten Kristall (vgl. Tab. 4.3) und dem 100 at.%-dotierten Material  $\text{YbVO}_4$ , dessen Dichte  $6,19 \text{ g/cm}^3$  beträgt [Fue72], eine lineare Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration aufweist. Im Falle von LSB ist eine 100 at.%ige Dotierung nicht erreichbar. In der Literatur sind keinerlei Daten für die Dichte oder die Gitterkonstanten von dotiertem LSB zu finden. Daher wird davon ausgegangen, dass die Änderung der Dichte durch Gitteraufweitung zu vernachlässigen ist gegenüber der Änderung der Dichte durch den Einbau des vor allem im Vergleich zum in 75% der Fälle ersetzten  $\text{Sc}^{3+}$ -Ions wesentlich schwereren  $\text{Yb}^{3+}$ -Ions. Für die im Rahmen dieser Arbeit nicht ermittelte spezifische Wärmekapazität  $C_p$  wurde jeweils der in Tab. 4.3 angegebene Wert herangezogen, der im Falle von YVO den Mittelwert der in Tab. 4.1 aufgelisteten Werte darstellt. Der resultierende Verlauf der Wärmeleitfähigkeit für YVO und LSB mit zunehmender Dotierungskonzentration ist in Abb. 4.6 dargestellt. In den Fehlerbalken wurden lediglich die in Tab. 4.2 angegebenen Standardabweichungen in der weiteren Rechnung berücksichtigt. Im Falle von LSB sind die Standardabweichungen teilweise zu klein, um in Abb. 4.6 dargestellt werden zu können. Der große Fehler für die am höchsten dotierte Yb:YVO-Probe beruht wahrscheinlich auf einer für die relativ hohe Wärmeleitfähigkeit von YVO zu geringe Dicke der untersuchten Probe und wurde nicht nur durch eine einzelne stark abweichende Einzelmessung verursacht.

Auch in dieser Abbildung ist wie in Tab. 4.1 für die Temperaturleitfähigkeit keine klare

Tendenz für den Verlauf der Wärmeleitfähigkeit von YVO zu erkennen. Bei der Bewertung dieser Ergebnisse ist allerdings zu beachten, dass die untersuchten Proben zwar alle mittels der Czochralski-Methode hergestellt wurden, jedoch von unterschiedlichen Herstellern (vgl. Abschnitt 5.1), und damit auch unabhängig von der Dotierungskonzentration Unterschiede in der Qualität bestehen können, die sich auf die Wärmeleitfähigkeit auswirken. Es bleibt also festzuhalten, dass die Wärmeleitfähigkeit von Vanadaten offensichtlich eine Größe ist, die neben der Dotierungskonzentration außerordentlich stark von der Qualität des jeweiligen Kristalles abhängt. Die Messungen lieferten bei Annahme vergleichbarer Wärmekapazitäten von YVO und LuVO weiterhin keinen Hinweis auf eine bessere Wärmeleitfähigkeit von LuVO im Vergleich zu YVO.

Für LSB zeigt Abb. 4.6 wie erwartet ein deutliches Absinken der Wärmeleitfähigkeit mit der Dotierungskonzentration um etwa 25%. Ein stärkerer Abfall der Wärmeleitfähigkeit ist kaum zu erwarten gewesen, denn bei der maximalen Dotierungskonzentration von 30 at.% in LSB sind lediglich 7,5% der Kationenplätze durch das Dotierion besetzt, da die Dotierungsangabe wie bereits erwähnt, stets auf den  $\text{La}^{3+}$ -Platz bezogen ist.

Wirtsgitter	LaSc <sub>3</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	Ca <sub>4</sub> YO(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	YVO <sub>4</sub>	LuVO <sub>4</sub>	Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>
Akronym	LSB	YCOB	YVO	LuVO	YAG
Gittersymmetrie	monoklin	monoklin	tetragonal	tetragonal	kubisch
Raumgruppe	C2/c	Cm	I <sub>4</sub> /amd	I <sub>4</sub> /amd	Ia3d
Gitterkonstanten (Å)	a = 7,727 b = 9,840 c = 12,046	a = 8,062 b = 15,996 c = 3,524	a = 7,122 c = 6,291	a = 7,025 c = 6,235	12,000
Winkel β (°)	105,42	101,16	90	90	90
Kationenplätze (10 <sup>20</sup> cm <sup>-3</sup> ) bei 1 at.%	0,45 (La <sup>3+</sup> -Platz)	0,45 (Y <sup>3+</sup> -Platz)	1,26 (Y <sup>3+</sup> -Platz)	1,31 (Lu <sup>3+</sup> -Platz)	1,38 (Y <sup>3+</sup> -Platz)
Yb <sup>3+</sup> -Dotierbarkeit (at.%)	30	50	100	100	100
Koordinationszahl Yb <sup>3+</sup>	6	6 bzw. 8	8	8	8
Ionenradius Yb <sup>3+</sup> (Å)	0,87	0,87 bzw. 0,98	0,98	0,98	0,98
Kationenradius (Å)	1,05 (La <sup>3+</sup> ) 0,75 (Sc <sup>3+</sup> )	1,02 (Y <sup>3+</sup> )	1,02 (Y <sup>3+</sup> )	0,97 (Lu <sup>3+</sup> )	1,02 (Y <sup>3+</sup> )
Platzsymmetrie	D <sub>3</sub> (La <sup>3+</sup> ) C <sub>2</sub> (Sc <sup>3+</sup> )	C <sub>s</sub>	D <sub>2d</sub>	D <sub>2d</sub>	D <sub>2</sub>
Mohs-Härte	6	6-6,5	~5	6	8,5
Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	3,80	3,25	4,23	6,26	4,56
Herstellungsverfahren	Czochralski	Czochralski	Czochralski	Czochralski	Czochralski
Schmelzpunkt (°C)	1600	1510	1810	1800	1940
Brechzahlen bei 1 μm	n <sub>X</sub> = 1,828 n <sub>Y</sub> = 1,827 n <sub>Z</sub> = 1,749	n <sub>X</sub> = 1,672 n <sub>Y</sub> = 1,703 n <sub>Z</sub> = 1,715	n <sub>o</sub> = 1,960 n <sub>e</sub> = 2,169	n <sub>o</sub> = 1,974 n <sub>e</sub> = 2,196	1,816
Spezifische Wärme (J/g·K)	0,62	0,73	~0,50	0,34-0,46	0,57-0,59
Temperaturleitfähigkeit (10 <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> /s)	1,2	0,82 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ ) 0,95 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$ )	~3,3 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) ~4,4 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	2,4-2,8 (3,2) ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) 2,7-3,4 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	3,7-4,3
Wärmeleitfähigkeit (W/m·K)	2,8	1,9 (∅) 2,0 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ )	~7,0 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) ~9,5 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	5,1-8,1 (8,2) ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) 5,8-9,9 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	10,1-11,4
Thermooptischer Koeffizient dn/dT (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	4,4	0,62 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ ) 0,80 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$ ) 0,17 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ )	8,5 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) 3,9 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	k.D.v.	9,9
Längenausdehnungskoeffizient dL/dT (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	12,3	12,6 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ ) 4,1 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$ ) 7,5 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ )	2,2 - 4,4 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) 8,4-11,4 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	1,7 - 6,3 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{a}$ ) 9,1-13,3 ( $\vec{E} \parallel \mathbf{c}$ )	7,8

**Tabelle 4.3:** Kristallographische Daten der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Wirtsmaterialien und YAG. Alle Daten wurden soweit zugänglich für undotierte Kristalle bei Raumtemperatur und 1 μm Wellenlänge angegeben. Mit "k.D.v." sind Eigenschaften bezeichnet, für die keine Daten vorliegen; Daten in Klammern bezeichnen im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Werte, die nicht in der Spanne der Literaturwerte enthalten sind. Die für die Zusammenstellung dieser Tabelle verwendete Literatur findet sich in Anhang E in Tab. E.1.

## 4.3 Bisher mit den untersuchten Materialien erzielte Laserresultate

In allen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien konnte bereits Lasertätigkeit mit unterschiedlichen Dotierionen realisiert werden. Insbesondere über die bei Dotierung mit  $\text{Yb}^{3+}$  erzielten Ergebnisse wird im Folgenden eine Zusammenfassung geliefert.

### 4.3.1 Borate

#### LSB

Im Rahmen seiner Dissertation führte J. P. Meyn umfangreiche Arbeiten zur Eignung von  $\text{Nd}^{3+}$ :LSB als aktives Material für miniaturisierte Festkörperlaser durch [Mey94]. Für diese Zwecke ist besonders der große Abstand der vom  $\text{Nd}^{3+}$  besetzten  $\text{La}^{3+}$ -Gitterplätze voneinander von Vorteil, denn dieser sorgt dafür, dass auch bei hohen Dotierungskonzentrationen nur eine geringe Wechselwirkung zwischen den Dotierionen stattfindet. Neben  $\text{Nd}^{3+}$  konnte bereits mit  $\text{Pr}^{3+}$ -Dotierung [Heu99] sowie  $\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$ -Kodotierung [Die98b] erfolgreich Lasertätigkeit realisiert werden. Mit  $\text{Cr}^{3+}$ -Dotierung wurde durchstimmbarer Betrieb um 934 nm mit geringer Effizienz demonstriert [Har94].

2004 wurde erstmals Lasertätigkeit von  $\text{Yb}$ :LSB demonstriert [Rom05]. Unter  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ -Pumpen konnte bisher eine maximale Ausgangsleistung von etwa 495 mW bei einem maximalen differentiellen Wirkungsgrad von 64% erzielt werden. Bei einer niedrigen Schwelle von nur 41 mW ergab sich hieraus ein optisch-optischer Wirkungsgrad von 60% bezogen auf die absorbierte Leistung. In ersten Durchstimmexperimenten konnte Lasertätigkeit im Wellenlängenbereich von 1010 nm bis 1090 nm bei Ausgangsleistungen im Bereich einiger Milliwatt realisiert werden [Joh04].

Trotz der vielversprechenden Lasereigenschaften und des weiten Durchstimmbereiches, der das Material als geeignet für die Erzeugung kurzer Pulse erscheinen lässt, wurden bisher außerhalb dieser Arbeit keine Experimente zur Erzeugung kurzer Pulse mit  $\text{Yb}^{3+}$  in diesem Wirtsmaterial durchgeführt.

#### YCOB

Schon kurz nach seiner ersten Herstellung wurden 1998 mit YCOB als Wirtsmaterial für  $\text{Nd}^{3+}$  und  $\text{Yb}^{3+}$  umfangreiche spektroskopische Untersuchungen durchgeführt und Lasertätigkeit demonstriert [Cha98, Ham98]. Seitdem kamen keine weiteren aktiven Ionen hinzu. Während in den ersten Experimenten nur ein differentieller Wirkungsgrad von 36% bei einer Ausgangsleistung von 300 mW unter  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ -Pumpen erzielt werden konnte, wurden kurz danach Ergebnisse veröffentlicht, bei denen unter Diodenpumpen eine Ausgangsleistung von 450 mW bei einem hohen differentiellen Wirkungsgrad von 73% erreicht werden konnte [Zha99b]. Trotz dieser vielversprechenden Ergebnisse veröffentlichten Liu et al. erst vor kurzem eine nennenswerte Steigerung der Ausgangsleistung auf 7,3 W bei differentiellen Wirkungsgraden um 80% [Liu07b].

Die aufgrund der leicht ungeordneten Symmetrie des Kristalles erwartete inhomogene Verbreiterung der Spektren schlägt sich in einem breiten spektralen Durchstimmbereich nieder:

Bei Ausgangsleistungen im Bereich von 100 mW wurde bisher ein Durchstimmbereich von 79 nm von 1018 nm bis 1087 nm demonstriert [Sha99]. Mit GdCOB, das eine sehr ähnliche Durchstimmcharakteristik aufweist, konnte unter Verwendung hochreflektierender Spiegel der Durchstimmbereich bereits auf bis zu 1115 nm in den langwelligen Bereich erweitert werden, allerdings bei Ausgangsleistungen im Milliwatt-Bereich [Aug99].

Mit letztgenanntem Material wurden bereits Pulse von 90 fs Länge unter Verwendung eines sättigbaren Halbleiterspiegels (SESAM) erzeugt. Die Ausgangsleistung betrug in diesem Falle etwa 40 mW [Dru00b]. Auch mit  $\text{Yb}^{3+}$ :YCOB wurden bereits mittels Modenkopplung kurze Pulse generiert. Begründet mit der Erwartung einer hohen Schwelle für stabilen modengekoppelten Betrieb, verursacht durch die vergleichsweise niedrigen Wirkungsquerschnitte und eine lange Fluoreszenzlebensdauer (vgl. Abschnitt 3.3.3) wurde in diesen Experimenten jedoch kein SESAM verwendet, da dessen Zerstörung befürchtet wurde. Stattdessen wurde ein spezieller sättigbarer Bragg-Reflektor mit einer deutlich längeren Erholungszeit verwendet. Es ist daher davon auszugehen, dass die erzielten Ergebnisse von 210 fs Pulslänge bei 16 mW [Val00] Ausgangsleistung nicht das volle Potential dieses Materials darstellen.

Auch als Kristall zur effizienten Verdopplung von infraroter Strahlung findet YCOB heutzutage weite Anwendung. Im Mercury-Projekt des Lawrence Livermore National Laboratory beispielsweise gelang es bereits, Pulse von 22,7 J Energie bei einer Wiederholungsrate von 10 Hz, entsprechend einer mittleren Leistung von 227 W mit einer Effizienz von 50% auf 527 nm zu konvertieren [Fei06]. Diese Eigenschaft von YCOB sollte sich aufgrund der fehlenden Phasenanpassung und der kurzen Länge der aktiven Medien nicht negativ auf den Betrieb im Scheibenlaser auswirken, demonstriert aber die hohe Belastbarkeit dieses Materials.

## 4.3.2 Vanadate

### YVO<sub>4</sub>

Die ersten Laserexperimente mit einem Seltenerd-Vanadat wurden 1966 von O'Connor mit  $\text{Nd}^{3+}$ :YVO<sub>4</sub> durchgeführt [O'C66]. Schon damals wurde man auf die außergewöhnlich hohen Wirkungsquerschnitte in diesem Material aufmerksam. Seither wurde Lasertätigkeit mit  $\text{Eu}^{3+}$ -,  $\text{Er}^{3+}$ -,  $\text{Ho}^{3+}$ - und  $\text{Tm}^{3+}$ -Dotierung in diesem Material demonstriert [O'C67, DeS74, Wun77]. Wegen der sehr guten thermomechanischen Eigenschaften und der im Vergleich zu Nd:YAG größeren spektralen Breite der Pumpbande um 808 nm, die ein effizientes Pumpen mit Laserdioden ermöglicht, entwickelte sich Nd:YVO<sub>4</sub> in den letzten Jahren zu einem der Standardmaterialien. Durch seine tetragonale Kristallstruktur ist die emittierte Laserstrahlung linear polarisiert und damit für Frequenzverdopplung sehr gut geeignet; daher findet Nd:YVO<sub>4</sub> auch in diesem Bereich weite Verbreitung.

Die erste Herstellung und spektroskopische Charakterisierung von  $\text{Yb}^{3+}$ -dotiertem YVO<sub>4</sub> fand erst 1999 statt [Zha99b]. Aufgrund der relativ geringen Stark-Aufspaltung des unteren  $^2\text{F}_{7/2}$ -Multipletts und des großen spektralen Überlapps zwischen Absorption und Reabsorption wurde  $\text{Yb}$ :YVO<sub>4</sub> in diesen ersten Untersuchungen für nicht geeignet für den Laserbetrieb gehalten. Im Rahmen der Diplomarbeit des Autors [Krä04] und zeitgleich von Kisel et al. [Kis04] wurde erstmals Lasertätigkeit mit diesem Material demonstriert. Während in erstgenannter Arbeit unter  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ -Pumpen ein differentieller Wirkungsgrad von 46% bei einer maximalen Ausgangsleistung von 433 mW, entsprechend einem optisch-optischen Wirkungsgrad

von 40% erzielt werden konnten, erreichten Kisel et al. unter Diodenpumpen einen differentiellen Wirkungsgrad von 49%, allerdings aufgrund einer hohen Schwelle mit einem geringeren optisch-optischen Wirkungsgrad von nur 24%. In einer nachfolgenden Veröffentlichung wurde von Kisel et al. gütegeschalteter Betrieb mit einer Pulsdauer von 17 ns und 18,7  $\mu$ J Pulsenergie realisiert. In diesem Zusammenhang konnten auch mit 59% differentiellem Wirkungsgrad und 0,98 W Ausgangsleistung die bisher besten Leistungsparameter im Dauerstrichbetrieb erzielt werden [Kis05b]. Experimente zur spektralen Durchstimbarkeit ermöglichten bisher Laserbetrieb zwischen 1015 nm und 1075 nm [Lag05].

Im modengekoppelten Betrieb konnten unter Verwendung eines SESAMs bisher Pulse von 120 fs Dauer bei einer mittleren Ausgangsleistung von 300 mW erzielt werden [Kis05a]. Modenkoppeln unter Ausnutzung des Kerr-Linsen-Effektes lieferte mit 61 fs eine Pulsdauer, die zu den kürzesten jemals mit einem  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Kristall erzielten gehört. Die in diesen Experimenten erzielte mittlere Leistung betrug etwa 50 mW [Lag05].

### LuVO<sub>4</sub>

Obwohl erst 1996 die ersten nutzbaren LuVO<sub>4</sub>-Kristalle hergestellt wurden [Ter96], hat sich auch LuVO<sub>4</sub> schon als effizientes Laserwirtsmaterial etabliert. Nach den ersten Laserexperimenten mit  $\text{Nd}^{3+}$ -Dotierung [Mau02] im Jahre 2002 wurde intensive Forschung besonders im gütegeschalteten Betrieb dieses Materials betrieben [Liu04, Liu07a]. Auch mit  $\text{Tm}^{3+}$ -Dotierung konnte bereits Laserbetrieb gezeigt werden [Mat06]. Mit  $\text{Yb}^{3+}$ -Dotierung wurde erstmals 2004 Lasertätigkeit realisiert. Unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Pumpen konnte eine Ausgangsleistung von 360 mW bei einer Pumpleistung von ca. 1,5 W erzielt werden. Aufgrund einer vergleichsweise hohen Schwelle von 750 mW betrug der differentielle Wirkungsgrad dennoch 47% [Liu05]. In derselben Veröffentlichung wird auch über laserdiodengepumpte Betrieb mit etwa 21% differentiellem Wirkungsgrad bei einer maximalen Ausgangsleistung von 0,98 W und 7 W Pumpleistung berichtet. Eben diesen Autoren gelang es in der Zwischenzeit, die maximale Ausgangsleistung auf 8,3 W bei einem hohen differentiellen Wirkungsgrad von 80% in Bezug auf die absorbierte Leistung zu skalieren. Der optisch-optische Wirkungsgrad betrug in diesem Falle 50% [Liu06b]. Obwohl die Laserwellenlänge in diesen Experimenten von 1020 nm bis ca. 1035 nm variierte, wurde über spektral durchstimmbaren Laserbetrieb auch mit Yb:LuVO<sub>4</sub> bisher nicht berichtet.

Am selben Institut in Berlin gelang auch das Modenkoppeln eines Yb:LuVO<sub>4</sub>-Lasers: Unter Verwendung eines SESAM konnten Pulse von 58 fs Länge mit einer mittleren Ausgangsleistung von 85 mW erzielt werden [Riv06]. Auch diese Pulse gehören zu den kürzesten bisher mit einem mit  $\text{Yb}^{3+}$  aktivierten kristallinen Festkörper erzielten Pulsen.

# 5 Spektroskopische Untersuchungen

Die Ermittlung der spektroskopischen Eigenschaften eines Kristalles ist unerlässlich zur Beurteilung der Eignung als aktives Lasermaterial und zum Verständnis der jeweiligen Lasereigenschaften. Gerade für  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Kristalle ergeben sich jedoch aufgrund des hohen Grades von Reabsorption Schwierigkeiten insbesondere bei der exakten Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer und der Emissionswirkungsquerschnitte. Hinzu kommt, dass keines der untersuchten Kristallgitter eine kubische Struktur aufweist, was zu der zusätzlichen Herausforderung der Bestimmung polarisationsabhängiger Wirkungsquerschnitte führt. Für einige der untersuchten Materialien sind daher in der Vergangenheit relativ deutlich voneinander abweichende spektroskopische Eigenschaften veröffentlicht worden. In diesem Kapitel wird diesen Schwierigkeiten durch besondere Sorgfalt bei der Aufnahme und Auswertung der Messdaten Rechnung getragen. Zunächst erfolgt eine kurze Vorstellung für diese Zwecke zur Verfügung stehenden Kristalle, an die sich eine Vorstellung der verwendeten Messapparaturen sowie der Mess- und Auswertungsverfahren anschließt. Im dritten Teil des Kapitels folgt die Darstellung und Diskussion der gewonnenen spektroskopischen Daten. Das Kapitel schließt mit einer tabellarischen Zusammenfassung dieser Eigenschaften und einer kurzen Beurteilung der Eignung der untersuchten Materialien auf ihren Einsatz als aktives Material im Scheibenlaser.

## 5.1 Die untersuchten Proben

Für die spektroskopischen Untersuchungen wurden diverse Kristalle unterschiedlicher Herkunft und Herstellungsart verwendet. Tab. 5.1 ist ein Überblick über die Herkunft und Herstellungsarten der untersuchten Kristalle zu entnehmen, einige weitere Informationen finden sich in den folgenden Abschnitten.

### 5.1.1 Yb:LSB

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten LSB-Kristalle wurden durchweg von der Firma Science and Technology Center FIRN in Krasnodar in Russland von S. A. Kutovoi nach der Czochralski-Methode (vgl. Anhang A) hergestellt. Die zur Verfügung stehenden nominellen Dotierungskonzentrationen waren 0,5 at.%, 3 at.%, 10 at.%, 15 at.%, 25 at.% und 30 at.%. Eine Neuauswertung der von J. Johannsen im Rahmen seiner Diplomarbeit [Joh04] in Auftrag gegebenen Mikrosondenanalysen [Hei] ergab für die nominell 25 at.% dotierte Probe eine Zusammensetzung von  $\text{Yb}_{0,18}\text{La}_{0,85}\text{Sc}_{2,62}(\text{B}_{1,09}\text{O}_3)_4$ . Die anscheinende Unterrepräsentanz der Kationen in dieser Formel hat ihren Ursprung in der Art der Bestimmung der Anzahl der  $\text{B}^{3+}$ -Ionen: Diese ist der direkten Messung aufgrund des geringen Molekulargewichts nicht zugänglich und kann nur indirekt als Differenz der messbaren Ionen zur rechnerischen Gesamtzahl der Ionen bestimmt werden. Ein der Realität eher entsprechendes Ergebnis ergibt sich somit, wenn die

Yb <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Wirts- material	Hersteller	Züchtungs- methode
0,5...30	LSB	FIRN, Krasnodar, Russland	Czochralski
15	YCOB	ENSCP, Paris, Frankreich	Czochralski
0,2	YVO	unbekannt	Flux
1,0	YVO	ICM, Jinan, China	Czochralski
1,6	YVO	IKZ, Berlin	Czochralski
2,0	YVO	Solix, Minsk, Weißrussland	Czochralski
3,1	YVO	ILP, Hamburg	HEM
5,0	YVO	FEE, Idar-Oberstein	Czochralski
1,0; 1,5	LuVO	ICM, Jinan, China	Czochralski

**Tabelle 5.1:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit zur Verfügung stehenden Kristalle mit Yb<sup>3+</sup>-Dotierung, Hersteller und Züchtungsmethode.

Summe der messbaren Ionen Yb<sup>3+</sup>, La<sup>3+</sup> und Sc<sup>3+</sup> auf den der Stöchiometrie entsprechenden Wert von vier normiert wird und von einem ebenfalls stöchiometrischen B<sup>3+</sup>-Gehalt ausgegangen wird: Yb<sub>0,20</sub>La<sub>0,93</sub>Sc<sub>2,86</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>. Die nominal mit 25 at.% Yb<sup>3+</sup> dotierte Probe weist also tatsächlich eine Dotierungskonzentration von nur 20 at.% bezogen auf die Anzahl der La<sup>3+</sup>-Plätze im Gitter auf<sup>1</sup>. Auch für den nominell 15 at.%-dotierten Kristall ergab sich mit einer tatsächlichen Dotierung von 11,1 at.% [Ber] ein von eins abweichender Einbaukoeffizient. Damit müssen die Einbaukoeffizienten gegenüber [Joh04] auf etwa 0,75 bis 0,8 korrigiert werden, was sich auch auf die in Abschnitt 5.3.2 behandelten Wirkungsquerschnitte auswirkt. Etwa zwei Drittel der Yb<sup>3+</sup>-Ionen werden auf einen Sc<sup>3+</sup>-Platz eingebaut und ein Drittel auf einen La<sup>3+</sup>-Platz. Da im Gitter jedoch dreimal so viele Sc<sup>3+</sup>- wie La<sup>3+</sup>-Plätze zur Verfügung stehen, betragen die Einbaukoeffizienten für die beiden Plätze etwa 0,7 (Sc<sup>3+</sup>) und 1,1 (La<sup>3+</sup>).

Die Lieferung der Yb:LSB-Kristalle erfolgte zumeist in Form von Boules von etwa 2 cm Länge und etwa 1 cm Durchmesser, die in c-Richtung, also entlang der optischen Hauptachse der pseudo-triklinen Struktur gewachsen waren. Die nahe Verwandtschaft zur triklinen Struktur spiegelte sich häufig in einer dreizähligen Rotationssymmetrie der Boules um diese Hauptachse wieder. Im Zentrum wiesen die Kristalle entlang der Züchtungsachse Einschlüsse und Schlieren auf, was die nutzbare Apertur auf den halben Kristalldurchmesser begrenzte. Die Kristalle waren ansonsten klar, frei von Verfärbungen und von guter optischer Qualität. Lediglich die beiden am höchsten dotierten Proben von nominell 25 at.% und 30 at.% Dotierung zeigten Sprünge. Der 30 at.%-dotierte Kristall war aufgrund dessen nicht für Laserexperimente geeignet, während der 25 at.%-dotierte Kristall genügend große Bereiche zur Präparation von Laserkristallen aufwies.

## 5.1.2 Yb:YCOB

Für die spektroskopischen Untersuchungen und die Laserexperimente standen zwei bereits für frühere Laserexperimente quaderförmig präparierte 15 at.% Yb:YCOB-Kristalle der Dimensionen 7,2 × 6,8 × 8,7 mm<sup>3</sup> und 4,0 × 7,0 × 5,0 mm<sup>3</sup> (**X** × **Y** × **Z**) aus dem Bestand des

<sup>1</sup>Da sich nur rund ein Drittel der Yb<sup>3+</sup>-Ionen auf La<sup>3+</sup>-Plätzen einbauen, berechnet sich diese Prozentangabe nicht wie zunächst vermutet werden könnte gemäß  $N_{Yb}/(N_{Yb} + N_{La})$ , sondern gemäß  $N_{Yb}/(1/3 \cdot N_{Yb} + N_{La})$ .

ILP zur Verfügung, die im Rahmen der Untersuchungen in kleinere Proben zerteilt wurden. Sie entstammen einem Boule, der in Frankreich an der Ecole Nationale supérieure de Chimie de Paris (ENSCP) im Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée von P. Loiseau aus der Gruppe von G. Aka mittels der Czochralski-Methode hergestellt wurde. Die Kristalle waren klar und frei von Verfärbungen, Schlieren, Sprüngen und sonstigen optischen Beeinträchtigungen. Eine Mikrosondenanalyse [Ber] ergab eine chemische Zusammensetzung von  $\text{Yb}_{0,144}\text{Ca}_{3,95}\text{Y}_{0,813}\text{O}(\text{B}_{1,02}\text{O}_3)_3$ . Mit einer Korrektur des Bor-Anteils analog zum Vorgehen bei LSB ergibt sich eine Zusammensetzung gemäß  $\text{Yb}_{0,146}\text{Ca}_{4,03}\text{Y}_{0,828}\text{O}(\text{BO}_3)_3$ . Die sich aus dieser Interpretation ergebende Anzahl von vollen vier  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen pro Formeleinheit steht dabei nicht im Widerspruch zum von Lupei et al. [Lup02] beobachteten Einbau von  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf  $\text{Ca}^{2+}$ -Gitterplätzen, denn die der Erklärung von Lupei et al. zugrunde liegende Annahme des leicht ungeordneten Gitters bedeutet lediglich, dass – auch im undotierten YCOB-Kristall –  $\text{Y}^{3+}$  unter Ladungskompensation auf einen  $\text{Ca}^{2+}$  eingebaut werden kann und umgekehrt, was grundsätzlich nicht zu einer Änderung der Stöchiometrie führen muss. Unabhängig von der Skalierung beträgt die resultierende Dotierungskonzentration bezogen auf die Anzahl der  $\text{Y}^{3+}$ -Plätze im Wirtsgitter 15,0 at.% und steht in Übereinstimmung mit der vom Züchter angegebenen Dotierungskonzentration.

### 5.1.3 Yb:YVO

Die spektroskopischen Untersuchungen an Yb:YVO wurden an Kristallen aus unterschiedlichsten Quellen vorgenommen.

Die geringste Dotierung hatten dabei Proben unbekannter Herkunft aus dem Bestand des ILP, die aufgrund ihrer geringen Größe von nur einigen Kubikmillimetern und ihrer unregelmäßigen Formen mit großer Wahrscheinlichkeit mit der Flux-Methode in einem Flussmittel gezüchtet wurden und eine nominale Dotierungskonzentration von 0,2 at.% aufwiesen. Diese Kristallite weisen eine deutliche gelbliche Verfärbung auf und konnten aufgrund ihrer Dimensionierung lediglich für die Vermessung der Lebensdauer verwendet werden. Eine Überprüfung der angegebenen Dotierungskonzentration fand nicht statt.

Weiterhin stand eine 1,0 at.%  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte YVO-Probe zur Verfügung, die vom Max-Born-Institut (MBI) in Berlin beim Institute of Crystal Materials (ICM) der Shandong University in Jinan, China bei der Gruppe von Prof. H. Zhang erworben und dem ILP zur weiteren Nutzung überlassen wurde. Dieser Kristall wurde mittels der Czochralski-Methode hergestellt und wies ebenfalls eine deutliche Gelbfärbung infolge von Farbzentrenbildung während der Herstellung auf. Anhand vergleichender Absorptionsspektroskopie konnte die angegebene Dotierungskonzentration im Rahmen der Messgenauigkeit bestätigt werden.

Ein YVO-Boule mit einer Dotierungskonzentration von 1,6 at.% [Hei] wurde vom Institut für Kristallzüchtung (IKZ) zur Verfügung gestellt. Dieser ebenfalls mittels der Czochralski-Methode hergestellte Kristall zeigte Streuung und eine leichte Braunfärbung aufgrund von Farbzentren. Eine nähere Beschreibung dieses Boules findet sich in [Krä04]. Unter dem Mikroskop konnten zudem schwarze Einschlüsse erkannt werden, die auf die Bildung von  $\text{YVO}_3$  zurückgeführt werden.

Eine 2,0 at.% dotierte Yb:YVO-Probe [Hei] wurde vom International Laser Center in Minsk, Weißrussland zur Verfügung gestellt. Diese war aus einem von der ebenfalls in Minsk ansässigen Firma Solix mittels des Czochralski-Verfahrens hergestellten Kristall präpariert worden.

Mit Kristallen aus dieser Züchtungsreihe wurden die in [Kis04] demonstrierten guten Laserresultate erzielt, obwohl diese Kristalle eine deutliche Gelbverfärbung aufweisen.

Mit der Heat-Exchanger Methode (vgl. z. B. [Pet08a]) gelang es, monokristalline, unverfärbte Yb:YVO-Kristalle einer mittels Mikrosondenanalyse [Hei] festgestellten Dotierungskonzentration von 3,1 at.% herzustellen, die für Lebensdauermessungen und Laserexperimente verwendet wurden. Die Kristalle wiesen keinerlei Verfärbung auf, jedoch eine große Anzahl mit bloßem Auge erkennbarer schwarzer Einschlüsse. Zudem waren die kristallinen Bereiche von Sprüngen durchzogen, was die Größe der herstellbaren spektroskopischen Proben limitierte.

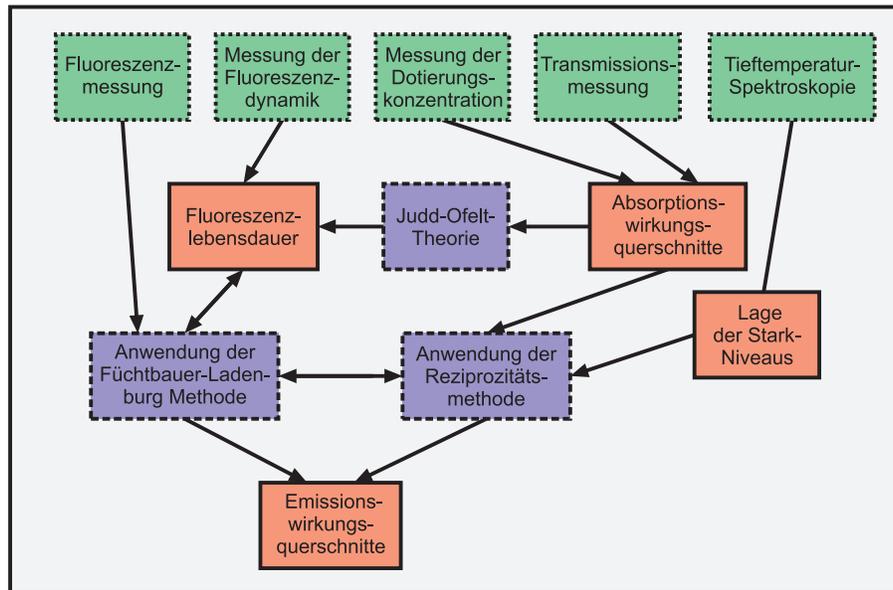
Die höchste Dotierungskonzentration wiesen Proben eines 5 at.% Yb<sup>3+</sup>-dotierten YVO<sub>4</sub>-Kristalles auf, die vom Forschungsinstitut für mineralische und metallische Werkstoffe –Edelsteine/Edelmetalle– GmbH (FEE) in Idar-Oberstein mittels der Czochralski-Methode hergestellt wurden. Auffällig war daran die unterschiedliche Färbung der beiden aus unterschiedlichen Bereichen des Boules gewonnenen Proben: Während eine Probe klar und ohne Verfärbung war, wies die andere Probe eine deutliche bräunliche Verfärbung auf. Bei diesen Proben wurde die Dotierungskonzentration ebenfalls durch vergleichende Absorptionsmessungen verifiziert.

### 5.1.4 Yb:LuVO

Die in dieser Arbeit verwendeten Yb:LuVO-Kristalle erreichten das ILP ebenfalls über das MBI in Berlin aus dem ICM in China und wurden dort mit der Czochralski-Methode hergestellt. Es handelte sich dabei um zwei einzelne Proben einer Yb<sup>3+</sup>-Dotierung von 1,5 at.% [Ber] und 1 at.%. Für die Präparation der Scheibenlaserkristalle stand außerdem ein entlang der **a**-Achse verlaufender Stab von ca. 20 mm Länge und 6 mm Durchmesser und ebenfalls 1,5 at.% Yb<sup>3+</sup>-Dotierung zur Verfügung. Alle Kristalle wiesen eine deutliche Gelbfärbung auf. Im Falle des Stabes ließ sich ein Gradient der Verfärbung entlang der Längsachse erkennen. Ein Vergleich der Eigenschaften eines aus dem verfärbtesten Teil gewonnenen Scheibenlaserkristalles mit denen eines aus dem klarsten Teil gewonnenen konnte jedoch aufgrund einer nicht ausreichenden Beschriftung vor der Beschichtung nicht durchgeführt werden, da die Transmissionseigenschaften der Beschichtung im sichtbaren Spektralbereich eine nachträgliche Zuordnung nicht zuließen.

## 5.2 Vorstellung der Mess- und Auswertungsverfahren

Die präzise Bestimmung der spektroskopischen Parameter eines Laserkristalles ist ein komplexes Unterfangen. Einige Eigenschaften sind der direkten Messung zugänglich, für die Ermittlung anderer ist die Bestimmung mehrerer Messgrößen vonnöten und einige lassen sich kaum über eine direkte Messung quantitativ erfassen. Die Ermittlung der absoluten Wirkungsquerschnitte der Emission ist ein Beispiel für den letztgenannten Fall. Hier erfolgt die quantitative Auswertung unter Zuhilfenahme der Kenntnis der Zusammenhänge zu anderen spektroskopischen Parametern. Im Falle der Emissionswirkungsquerschnitte gibt es mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung [Hub75, Mou86] und der Reziprozitäts-Relation [McC64] sogar zwei häufig verwendete Zusammenhänge zu unterschiedlichen messbaren Größen. Die auf diese Weise zu gewinnenden und teils von einander abweichenden Werte müssen sorgfältig miteinander verglichen werden, um so die jeweiligen Schwächen der einzelnen Verfahren zu eliminieren.



**Abbildung 5.1:** Ablaufschema der Arbeitsschritte zur Ermittlung der spektroskopischen Eigenschaften der untersuchten Kristalle. In den gepunkteten Umrandungen finden sich Messungen, die gestrichelten Umrandungen markieren besondere Methoden der Auswertung, welche verschiedene spektroskopische Größen miteinander verknüpfen und mit durchgezogenen Umrandungen sind spektroskopische Resultate markiert.

Nur auf diese Weise ist es möglich, zuverlässige spektroskopische Daten zu erhalten, die eine präzise Voraussage der zu erwartenden Lasereigenschaften der untersuchten Kristalle gestatten. Ein Ablaufschema der unternommenen Arbeitsschritte zur Ermittlung der spektroskopischen Eigenschaften der untersuchten Kristalle ist in Abb. 5.1 dargestellt.

### 5.2.1 Raumtemperatur-Spektroskopie

#### Transmissionsmessungen bei Raumtemperatur und Bestimmung der Absorptionswirkungsquerschnitte

Die in dieser Arbeit durchgeführten Absorptionsmessungen aus dem  ${}^2F_{7/2}$ -Multipllett ins  ${}^2F_{5/2}$ -Multipllett von  $\text{Yb}^{3+}$  bei Raumtemperatur wurden in einem Cary 5000 UV-VIS NIR Zweistrahl-Spektrophotometer durchgeführt. Da keines der untersuchten Wirtsgitter kubisch ist, wurden zur Aufnahme polarisationsabhängiger Spektren zusätzlich Polarisatoren sowohl im Proben-, als auch im Referenzstrahl positioniert. Um die Intensitätsabschwächung durch Absorption trennen zu können von derjenigen hervorgerufen durch Fresnel-Reflexion, müssen die aus der Messung der Lichtintensität vor und hinter dem Kristall ermittelten Transmissionspektren in den Bereichen ohne Absorption durch  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf 100% Transmission normiert werden. Die Dispersion der Brechzahl und der damit verbundene und vor allem im Falle der Vanadate aufgrund der hohen Brechzahl nicht zu vernachlässigende Anstieg der Fresnel-Reflexion zu kürzeren Wellenlängen wurden dabei berücksichtigt. Aus den Transmissionspektren wurde der von der Wellenlänge  $\lambda$  und der Polarisation  $\xi$  abhängige Absorptionskoeffizient  $\alpha^{(\xi)}(\lambda)$  nach dem Lambert-Beerschen-Gesetz

$$I^{(\xi)}(\lambda) = I_0^{(\xi)}(\lambda) \cdot e^{-\alpha^{(\xi)}(\lambda) \cdot l} \quad (5.1)$$

bestimmt, worin  $I_0^{(\xi)}(\lambda)$  für die einfallende und  $I^{(\xi)}(\lambda)$  für die transmittierte Intensität stehen, sowie  $\ell$  für die Länge des vermessenen Kristalles. Der effektive Absorptionswirkungsquerschnitt berechnet sich aus dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha^{(\xi)}(\lambda)$  bei Kenntnis der Ionendichte  $N$  zu

$$\sigma_{abs}^{(\xi)}(\lambda) = \frac{\alpha^{(\xi)}(\lambda)}{N}. \quad (5.2)$$

### Fluoreszenzmessungen bei Raumtemperatur und Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte

Unter der Voraussetzung der Gleichheit der atomaren Wirkungsquerschnitte folgt aus Glg. 2.32 mit den Glgn. 2.30 und 2.31 direkt der als Reziprozitäts-Relation [McC64] bekannte Zusammenhang

$$\sigma_{em}^{(\xi)}(\lambda) = \sigma_{abs}^{(\xi)}(\lambda) \cdot \frac{Z_l}{Z_u} \cdot \exp\left(\frac{E_{ZL} - \frac{hc}{\lambda}}{k \cdot T}\right). \quad (5.3)$$

Dieser ermöglicht es, über die Kenntnis der Absorptionswirkungsquerschnitte  $\sigma_{abs}^{(\xi)}(\lambda)$  in Form und Verhältnis zueinander korrekte Fluoreszenzspektren für die unterschiedlichen Polarisationen  $\xi$  ( $\pi$  und  $\sigma$  für uniaxiale bzw.  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ ,  $\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$  und  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$  für biaxiale Materialien) zu ermitteln. Darin steht  $E_{ZL}$  für die Energie des Nullphononenlinien-Übergangs ( $ZL$  für engl. *zero line*) und  $T$  für die Temperatur. Außerdem erscheinen die Konstanten  $h$  für das Plancksche Wirkungsquantum,  $c$  für die Lichtgeschwindigkeit und  $k$  für die Boltzmann-Konstante. Zur Bestimmung quantitativ korrekter Emissionswirkungsquerschnitte  $\sigma_{em}^{(\xi)}(\lambda)$  wird jedoch das Verhältnis  $Z_l/Z_u$  der Summen der Boltzmann-Besetzungen des oberen ( $Z_u$  für engl. *upper*) und unteren ( $Z_l$  für engl. *lower*) Multipletts benötigt. Dieses Verhältnis hängt nach Glg. 2.31 neben der Temperatur vor allem vom energetischen Abstand der Stark-Niveaus vom Grundzustand des zugehörigen Multipletts ab.

Die Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte nach Glg. 5.3 hat vor allem zwei Nachteile: In allen untersuchten Wirtsmaterialien bereitet erstens die Bestimmung des Wertes für den Quotienten  $Z_l/Z_u$  große Schwierigkeiten. In den Spektren der Vanadate zeigen sich auch bei tiefen Temperaturen weitaus mehr Linien, als aufgrund der Anzahl der Stark-Niveaus in den beteiligten Multipletts erwartet würden, so dass eine zuverlässige Identifikation der elektronischen Übergänge nicht ohne weiteres möglich ist. Im Falle der Borate erlauben die Tieftemperaturspektren zwar eine – besonders im Falle des geordneten Gitters von Yb:LSB – relativ präzise Bestimmung der Lage der Stark-Niveaus, das Vorhandensein mehrerer Plätze erfordert jedoch prinzipiell die Berechnung, Gewichtung und anschließende Überlagerung der Wirkungsquerschnitte der einzelnen Plätze. Die hierfür notwendigen Absorptionswirkungsquerschnitte der einzelnen Plätze sind bei Raumtemperatur aufgrund der phononischen und – besonders im Falle von Yb:YCOB – inhomogenen Verbreiterung der Absorptionsspektren und ihrer daraus folgenden Überlagerung nicht der Messung zugänglich. Die Bildung eines Mittelwertes über die Zustandssummen der einzelnen Plätze gewichtet nach der Verteilung der Dotierionen auf diese Plätze ermöglicht jedoch eine Abschätzung des absoluten Wertes für die Wirkungsquerschnitte mit der Reziprozitäts-Relation. Diese erscheint besonders in den Fällen zuverlässig, in denen der Quotient  $Z_l/Z_u$  sich für die einzelnen Plätze nur wenig unterscheidet und in denen die Nullphononenlinien energetisch nahe beieinander liegen.

Der zweite Nachteil der Anwendung der Reziprozitäts-Relation zur Ermittlung der Emissionswirkungsquerschnitte liegt in der Tatsache begründet, dass die Absorptionswirkungsquerschnitte im langwelligeren Spektralbereich sehr niedrig sind und damit in der Größenordnung der Messgenauigkeit oder sogar darunter liegen. Damit sind gemäß Glg. 5.3 auch die resultierenden Emissionswirkungsquerschnitte von einem Rauschsignal in derselben Größenordnung überlagert, was die Spektren in diesem Bereich unbrauchbar macht. Um auch für diesen Spektralbereich – der in vielen Fällen den Spektralbereich der Lasertätigkeit darstellt – zuverlässige Wirkungsquerschnitte angeben zu können, wird zusätzlich auf die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung [Hub75, Mou86]

$$\sigma_{em}^{(\xi)} = \frac{1}{8\pi n^2 c \tau} \cdot \frac{\lambda^5 I_{em}^{(\xi)}(\lambda)}{\frac{1}{3} \sum_j \int \lambda \mathcal{M}_{em}^{(\xi_j)}(\lambda) d\lambda}, \quad (5.4)$$

welche die gemessenen Spektren  $I_{em}(\lambda)$  der spontanen Emission mit den stimulierten Emissionswirkungsquerschnitten  $\sigma_{em}(\lambda)$  verbindet, zurückgegriffen. Darin steht  $\xi_j$  mit  $j = 1, 2, 3$  für die drei möglichen Polarisationen<sup>2</sup>. Diese Methode setzt die Kenntnis der Brechzahlen  $n$  und der ebenfalls platzabhängigen Fluoreszenzlebensdauern  $\tau$  des zu untersuchenden Übergangs voraus.

Die Messung der polarisationsabhängigen Fluoreszenzspektren  $I_{em}^{(\xi)}(\lambda)$  erfolgte mit einem Fourier-Transformations-Spektrometer *Equinox 55* der Firma *Bruker*. Die Kristalle wurden dabei mit einem Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Laser angeregt. Der spektrale Verlauf der Detektor-Empfindlichkeit wurde anhand des Vergleichs eines gemessenen Spektrums einer Wolframlampe bei 2300 K mit dem theoretisch erwarteten Spektrum eines um die Emissivität von Wolfram korrigierten Schwarzkörperstrahlers bei derselben Temperatur bestimmt. Mit dieser Kurve wurde eine Eichung der gemessenen Spektren durchgeführt. Da die benötigte strahlende Lebensdauer  $\tau_{sp}$  einer direkten Messung nicht zugänglich ist, sondern sich mit der nichtstrahlenden Lebensdauer  $\tau_{ns}$  gemäß Glg. 2.34 zur messbaren Fluoreszenzlebensdauer  $\tau$  zusammensetzt, ist auch die Füchtbauer-Ladenburg-Methode mit einem relativ großen Fehler behaftet. Zudem ist das gemessene Spektrum besonders in Bereichen hoher Absorption nahe der Nullphononenlinie stark durch Reabsorption verfälscht. Um diese Verfälschung zu minimieren, erfolgte die Messung der Fluoreszenzspektren direkt an dünnen, für Scheibenlaser-Experimente präparierten Kristallproben. Da die Transmissions- bzw. Reflexionsspektren der Beschichtungen der Kristalle innerhalb des Spektralbereiches der Fluoreszenz nur um wenige Promille variieren (vgl. Abb. 6.5), sind diese als Fehlerquelle nahezu vernachlässigbar. Auch auf diese Weise ließ sich der Effekt der Reabsorption jedoch nicht völlig unterdrücken.

Aus der Reziprozitäts-Relation (Glg. 5.3) lässt sich mit Kenntnis des Zusammenhangs zwischen den messbaren Fluoreszenzspektren und den Spektren der stimulierten Emissionswirkungsquerschnitte nach der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung (Glg. 5.4) bereits ohne Kenntnis des Verhältnisses der Zustandssummen ein bei nicht-kubischen Systemen auftretendes Problem lösen: Durch die notwendigen Änderungen am Messaufbau bei der Messung der Spektren für die einzelnen Polarisationen ist die in Glg. 5.4 vorausgesetzte Richtigkeit der Intensitätsverhältnisse der einzelnen Polarisationen nicht mehr gegeben. Bei Kenntnis der Verhältnisse der Absorptionswirkungsquerschnitte in den einzelnen Polarisationen erlaubt jedoch die

<sup>2</sup>Im Falle uniaxialer Kristalle wird also für zwei Summanden das  $\sigma$ -Spektrum eingesetzt.

Reziprozitäts-Relation einen Rückschluss auf die Verhältnisse der polarisationsabhängigen Fluoreszenz-Intensitäten. Indem der Quotient aus den Reziprozitäts-Relationen für die einzelnen Polarisationen gebildet wird, ergibt sich

$$\frac{\sigma_{abs}^{(\xi_1)}(\lambda)}{\sigma_{abs}^{(\xi_2)}(\lambda)} = \frac{\sigma_{em}^{(\xi_1)}(\lambda)}{\sigma_{em}^{(\xi_2)}(\lambda)} = \frac{I_{em}^{(\xi_1)}(\lambda)}{I_{em}^{(\xi_2)}(\lambda)}, \quad (5.5)$$

worin  $\xi_1$  und  $\xi_2$  zwei beliebige Polarisationen darstellen. Auf diese Weise lassen sich die richtigen Intensitätsverhältnisse der Fluoreszenzkurven rekonstruieren.

Da die mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Spektren große Fehler in Bereichen geringer Absorption aufweisen, während die mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung ermittelten Emissionswirkungsquerschnitte besonders in Bereichen großer Absorption unzuverlässig sind, liegt eine Kombination der Resultate aus beiden Methoden nahe. Dabei wurden für die Berechnung der Emissionswirkungsquerschnitte zunächst die gemessenen Spektren der spontanen Fluoreszenz durch Multiplikation mit einem Faktor  $\lambda^5$  in ein nicht ohne weiteres messbares Spektrum der stimulierten Emission überführt. Dieser Zusammenhang ergibt sich aus den Einsteinkoeffizienten in Abschnitt 2.2.1, Glg. 2.20 und findet sich auch in der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung 5.4 wieder. Das auf diese Weise erhaltene Spektrum wurde gemeinsam mit den über die Reziprozitäts-Relation aus den Absorptionsspektren ermittelten Spektren in einem Diagramm aufgetragen (vgl. Abb. 5.20). Dann wurde eines der Spektren mit einem Faktor multipliziert, der im Wellenlängenbereich zwischen 1010 nm und 1040 nm zu einer bestmöglichen Übereinstimmung beider Spektren führte. Innerhalb dieses Bereiches wurde ein Schnittpunkt gewählt. Der von diesem Punkt aus kurzwelligere Bereich der Reziprozitäts-Kurve und der langwelligere Bereich der Fluoreszenzkurve wurden zu einer Kurve vereint. Über Gleichung 5.5 wurden die Spektren der einzelnen Polarisationen in das korrekte Verhältnis zueinander gebracht. Schließlich wurden diese Spektren wieder durch  $\lambda^5$  geteilt und als "reabsorptionsfreie" Fluoreszenzspektren in die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung eingesetzt. Durch Variation der in dieser Gleichung benutzten Lebensdauer wurde der Maximalwert der jeweiligen Kurve auf den mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Wert gebracht. Der Grad der Übereinstimmung des hierfür nötigen Wertes der Lebensdauer mit den experimentell und theoretisch ermittelten Werten für dieselbe kann nun als Indikator für die Genauigkeit der ermittelten Emissionswirkungsquerschnitte angesehen werden.

### 5.2.2 Verstärkungswirkungsquerschnitte

Aus den in Kapitel 2 hergeleiteten Lösungen der Ratengleichungen für  $\text{Yb}^{3+}$ -Laser ergibt sich, dass die Laserschwelle für ein verlustfreies System erreicht wird, sobald der Kristall transparent für eine Laserwellenlänge wird, d. h. eine ausreichende Zahl  $N_2$  von Laserionen im angeregten Zustand ist, damit die Wahrscheinlichkeit für stimulierte Emission gleich der für Absorption ist. Um zusätzlich die Resonatorverluste zu kompensieren, muss die durch

$$\beta = \frac{N_2}{N_{tot}} \quad (5.6)$$

definierte Inversion  $\beta$  je nach Auskoppelgrad und sonstigen Verlusten weiter vergrößert werden. Die Berechnung wellenlängenabhängiger Verstärkungswirkungsquerschnitte  $\sigma_{gain}^{(\xi)}(\lambda)$  gemäß

$$\sigma_{gain}^{(\xi)}(\lambda) = \beta \cdot \sigma_{em}^{(\xi)}(\lambda) - (1 - \beta) \cdot \sigma_{abs}^{(\xi)}(\lambda) \quad (5.7)$$

erlaubt dabei eine Voraussage der Polarisation und Wellenlänge, für welche diese Bedingung je nach Inversion  $\beta$  zuerst erfüllt wird. Bei bekannten Resonatorumlauf-Gesamtverlusten  $\gamma_{ges}$ , die auch die Auskoppelverluste beinhalten, lassen sich realistische Werte für  $\beta$  aus der Schwellbedingung 2.43 unter Berücksichtigung von Glg. 5.7 mit der Annahme kleiner Gesamtverluste ( $\gamma_{ges} \ll 1$ ) gemäß

$$\beta(\lambda_{las}) = \frac{\frac{\gamma_{ges}}{N_{ges} \cdot 2l} + \sigma_{abs}(\lambda_{las})}{\sigma_{abs}(\lambda_{las}) + \sigma_{em}(\lambda_{las})} \quad (5.8)$$

bestimmen.  $\beta$  kann dabei gemäß Glg. 5.6 nur Werte zwischen 0 und 1 annehmen.

Aus den nach Glg. 5.7 gewonnenen Spektren lässt sich weiterhin der Bereich möglicher Laserwellenlängen bei Einsatz wellenlängenselektiver Elemente voraussagen.

Wie in Abschnitt 3.3.3 bereits kurz erläutert, werden für die Erzeugung von Femtosekundenpulsen im modengekoppelten Betrieb große Verstärkungsbandbreiten benötigt. Damit ein Puls jedoch gleichzeitig die Inversion in einem weiten Wellenlängenbereich nutzen kann, muss das Verstärkungsprofil innerhalb dieses Wellenlängenbereichs relativ konstant und unstrukturiert sein. Somit lässt sich aus den Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte auch eine Abschätzung über die Eignung eines Materials zur Generierung kurzer Pulse ableiten.

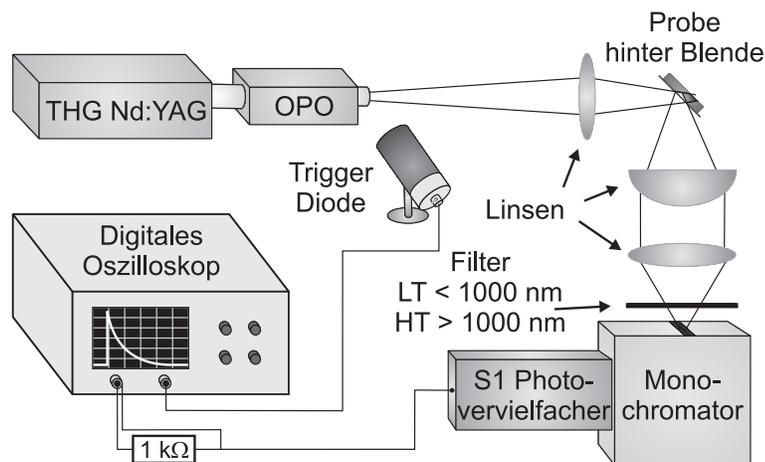
### 5.2.3 Fluoreszenzdynamik

#### Experimentelle Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer

Durch Messung des zeitlichen Verlaufes der Intensität der Fluoreszenz aus einem Energieniveau lässt sich die Fluoreszenzlebensdauer  $\tau$  dieses Niveaus bestimmen. Die Intensität sinkt dabei nach der Anregung exponentiell gemäß

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-\frac{t}{\tau}}. \quad (5.9)$$

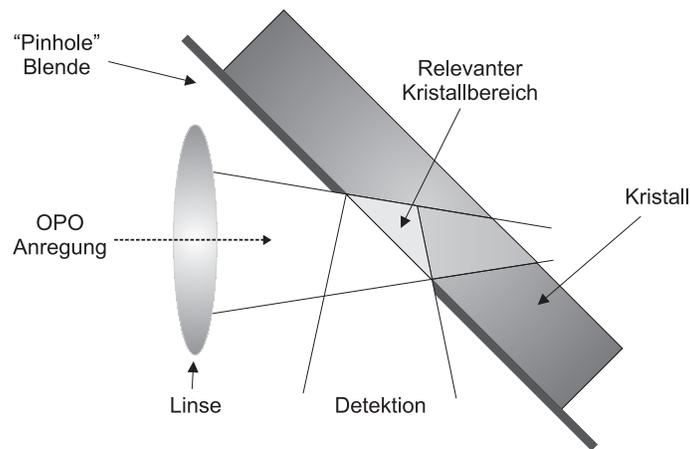
Gleichung 5.9 stellt dabei die Lösung der Differentialgleichung 2.10 dar. Insbesondere bei Materialien mit einem großen Überlapp von Absorption und Emission ist der Verlauf der Fluoreszenzabklingkurven jedoch häufig stark verfälscht. Der Grund hierfür liegt in der wiederholten Absorption und Emission des spontan emittierten Fluoreszenzlichtes innerhalb des betrachteten Kristallvolumens, welche zu einer Verlängerung der gemessenen Lebensdauer führt. Dieser Reabsorptionsprozess wird auch als Strahlungseinfang (engl. *radiation trapping*) bezeichnet. Die Kenntnis der tatsächlichen Fluoreszenzlebensdauer ist jedoch von großer Wichtigkeit für die Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung und um die Lasereigenschaften mittels der Ratengleichungen zu beschreiben. Zudem ist sie ein wichtiges Kriterium zur Bestimmung der Kristallqualität; so äußert sich beispielsweise die als Konzentrationslöschung bezeichnete Migration der Anregung zu Verunreinigungen mit anschließendem strahlenden oder nichtstrahlenden Zerfall besonders bei hochdotierten Kristallen in einer Verkürzung der gemessenen Fluoreszenzlebensdauer.



**Abbildung 5.2:** Schematische Darstellung des Messaufbaus bei der Messung der Fluoreszenzlebensdauer mit der Pinhole-Methode.

Bei den in dieser Arbeit spektroskopisch untersuchten Materialien handelt es sich hauptsächlich um  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Oxide. Da in  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien generell ein großer Überlapp zwischen den Absorptions- und Emissionsspektren vorliegt, ist der Einsatz eines Verfahrens zur Minimierung des Einflusses der Reabsorption notwendig. Um die tatsächlichen Fluoreszenzlebensdauern der untersuchten Proben zu bestimmen, wurde daher die Pinhole-Methode angewandt. Eine schematische Darstellung des gesamten Messaufbaus findet sich in Abb. 5.2. Bei dieser Methode befindet sich die Probe während der Messung hinter verschiedenen Lochblenden (engl. *pinhole*) mit Durchmessern von 0,5 mm bis 2,5 mm. Die Anregung der Probe erfolgt mit Laserpulsen aus einem optisch parametrischen Oszillator (kurz OPO), der die Laseremission eines gepulsten frequenzverdreifachten  $\text{Nd}^{3+}$ :YAG-Lasers in Licht der benötigten Wellenlänge konvertiert. Als Anregungswellenlänge wurde jeweils die Nullphononenlinie, die je nach Wirtsmaterial zwischen 970 nm und 985 nm liegt, gewählt. Der Einfall des Anregungslichtes erfolgt unter einem leicht von  $45^\circ$  abweichenden Winkel zur Kristalloberfläche, um eine direkte Reflexion des Pumplichtes in die Detektionsoptik zu vermeiden. Die OPO-Emission wird so fokussiert, dass der Durchmesser des Pumpstrahls beim Auftreffen auf den Kristall dem Durchmesser der größten verwendeten Blende entspricht. Die emittierte Fluoreszenz wird nun durch eine Sammellinse und eine weitere Linse auf den Eintrittsspalt eines 0,5 m SPEX Monochromators abgebildet. Vor dem Eintrittsspalt des Monochromators befindet sich ein Kantenfilter, der für Wellenlängen unter etwa 1000 nm hochreflektierend ist, während langwelligeres Licht transmittiert wird. Die Detektion erfolgt mittels eines bei Raumtemperatur betriebenen S1 Photovervielfachers, dessen Signal von einem digitalen Oszilloskop dargestellt und gespeichert wird. Die Signal-Detektion erfolgte bei der Wellenlänge maximalen Signals, die sich vor allem aus der Transmissionscharakteristik des verwendeten Filters, der Empfindlichkeitskurve des Photovervielfachers und den Fluoreszenzeigenschaften der untersuchten Probe ergibt und stets zwischen 1015 nm und 1020 nm lag.

Der thermische Besetzungsausgleich zwischen den Stark-Niveaus im  $^2\text{F}_{5/2}$ -Multipllett des  $\text{Yb}^{3+}$ -Ions erfolgt um Größenordnungen schneller als die erwartete Zerfallsdauer aus diesem Niveau. Da im Wellenlängenbereich um  $1\ \mu\text{m}$  ausschließlich Fluoreszenz aus diesem Niveau erwartet wird, konnte somit auf eine präzise Wellenlängenselektion verzichtet werden. Aus die-



**Abbildung 5.3:** Vergrößerte Darstellung des Kristalles mit dem hell dargestellten relevanten Volumen bei der Messung der Fluoreszenzlebensdauer mit der Pinhole-Methode.

sem Grund wurden die Spalte des verwendeten Spektrometers stets komplett geöffnet (3 mm) und damit die Signalintensität maximiert. Um die Signalintensität weiter zu verstärken, wurde ein  $1\text{ k}\Omega$ -Widerstand parallel zum Oszilloskop geschaltet und der interne Widerstand des Oszilloskops auf  $1\text{ M}\Omega$  gestellt. Die Zeitkonstante des vom Widerstand mit dem Kabel geformten RC-Glieds liegt wesentlich unter den zu messenden Lebensdauern und beeinflusst die Messung daher nicht. Dies wurde zusätzlich durch vergleichende Messungen mit und ohne diesen Widerstand belegt und wird auch durch die schnelle Aufbauzeit nach der Anregung in den Zerfallskurven bestätigt. Um das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu verbessern, wurde über 100 bis mehrere 1000 Anregungspulse integriert. Um eine perfekte zeitliche Überlagerung der einzelnen Messsignale zu erreichen und mögliche Schwankungen in der Pulswiederholungsrate der Anregungsquelle als Fehlerquelle auszuschließen, wurde die Aufnahme jeder einzelnen Messung durch das Oszilloskop jeweils ausgelöst durch die Detektion des Anregungspulses mittels einer externen Trigger-Diode.

Für die Auswertung wird das Signal zunächst so korrigiert, dass die Signalintensität vor und lange nach dem Anregungspuls Null beträgt. Ein linearer Fit an die logarithmische Darstellung des Verlaufes der Fluoreszenz nach der Anregung liefert nun die Übergangsrate  $A$ , wobei sich die Lebensdauer  $\tau$  aus dem Inversen dieser Rate ergibt. Infolge nichtlinearer und kooperativer Prozesse oder durch Übersättigung des Detektors durch Anregungslicht kann es bei den sehr kurz nach der Anregung vorliegenden hohen Anregungsdichten zu einer Abweichung vom exponentiellen Verlauf kommen. In Bereichen sehr geringer Signalintensität ist das Signal hingegen von einem starken Rauschen überlagert. Daher wurde zum Erlangen der in Abschnitt 5.3.1 dargestellten Messergebnisse in der Zerfallskurve für die jeweils kleinste Blende wenn möglich ein Zeitintervall nach der Anregung für den exponentiellen Fit gewählt, in dem ein rein exponentieller Abfall bei ausreichendem Signal-zu-Rausch-Verhältnis gegeben war. Die Zerfallskurven für die größeren Blenden wiesen dann in diesem Zeitintervall ebenfalls genügend Signalintensität auf.

Eine Auftragung der für die verschiedenen Blenden ermittelten Lebensdauern gegen den Blendendurchmesser ergibt einen linearen Zusammenhang. Dieser erlaubt eine lineare Extrapolation der Lebensdauer auf den Wert für Null Volumen bei einem Blendendurchmesser von

Null, welcher keinerlei Verfälschungen durch Reabsorption mehr unterliegen sollte.

Ein Ansatz zur theoretischen Untermauerung dieses bis zu diesem Zeitpunkt nur phänomenologischen Zusammenhangs wurde 2007 von H. Kühn et al. am Institut für Laser-Physik unternommen [Küh07]. Hiernach lautet die Differentialgleichung für einen exponentiellen Zerfall unter Hinzunahme eines zusätzlichen zweiten Terms auf der rechten Seite der Gleichung, welcher die Reabsorption beschreibt

$$\frac{dN(\vec{x}, t)}{dt} = -\frac{N(\vec{x}, t)}{\tau} + \sigma_{abs} N_g \int_V \frac{N(\vec{x}', t)}{\tau} \frac{e^{-|\vec{x}-\vec{x}'|\sigma_{abs}N_g}}{4\pi|\vec{x}-\vec{x}'|^2} dV', \quad (5.10)$$

worin  $N(\vec{x}, t)$  für die Dichte der angeregten Ionen steht,  $N_g$  für die Dotierungskonzentration sowie  $V$  für ein beliebiges, endliches angeregtes Kristallvolumen.

Da sich diese Gleichung für ein beliebiges endliches angeregtes Kristallvolumen nicht exakt lösen lässt, wird  $V$  zunächst durch ein unendliches homogen angeregtes Kristallvolumen  $V_\infty$  ersetzt. Jedoch könnten aus einem solchen Volumen überhaupt keine Photonen mehr entweichen, daher wird ein zusätzlicher exponentieller Dämpfungsterm  $\exp(-|\vec{x}-\vec{x}'|l^{-1})$  eingeführt, der das Entweichen der Photonen aus dem Kristall simuliert.  $l$  stellt darin die mittlere zurückgelegte Strecke eines emittierten Photons bis zum Verlassen des Kristalles dar. Mit diesen Annahmen lässt sich Glg. 5.10 umschreiben zu:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\frac{N(t)}{\tau} + \sigma_{abs} N_g \int_{V_\infty} \frac{N(t)}{\tau} \frac{e^{-|\vec{x}-\vec{x}'|(\sigma_{abs}N_g+l^{-1})}}{4\pi|\vec{x}-\vec{x}'|^2} dV', \quad (5.11)$$

Eine Auswertung des Integralterms in Kugelkoordinaten vereinfacht die Gleichung zu:

$$\frac{dN(t)}{dt} = \frac{N(t)}{\tau(1 + \sigma_{abs}N_g l)}. \quad (5.12)$$

Die Lösung dieser Gleichung lässt sich in analoger Form zu Glg. 5.9 darstellen als

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau'}} \quad \text{mit} \quad \tau' = \tau(1 + \sigma_{abs}N_g l). \quad (5.13)$$

Der tatsächlich relevante Kristallbereich bei Anwendung der Pinhole-Methode ist das in Abb. 5.3 hell dargestellte Volumen, das sich aus dem Schnittkörper des vom OPO angeregten Volumens und des vom Detektor direkt gesehenen Volumens ergibt. In den untersuchten Proben ist nun die Absorptionslänge  $\alpha^{-1}$  aus Glg. 5.1 meist in der Größenordnung der räumlichen Ausdehnung des relevanten Kristallbereiches, die durch den Radius der Blende vorgegeben wird, oder kleiner. Damit kann in erster Näherung davon ausgegangen werden, dass jedes Photon innerhalb des relevanten Kristallbereiches höchstens einmal reabsorbiert wird, bevor es diesen verlässt. Die mittlere zurückgelegte Weglänge  $l$  eines emittierten Photons vor dem Verlassen des Bereiches liegt folglich in derselben Größenordnung und ist direkt proportional zum Radius der Blende.

### Theoretische Bestimmung der strahlenden Lebensdauer

Nach Schlussfolgerungen von R. Ladenburg [Lad21], die auf Überlegungen A. Einsteins [Ein17] basieren und 1962 von B. R. Judd [Jud62] und G. S. Ofelt [Ofe62] unabhängig voneinander zur umfangreichen Judd-Ofelt-Theorie weiterentwickelt wurden, lässt sich aus den Absorptionswirkungsquerschnitten eines elektrischen Übergangs ein Rückschluss auf die Lebensdauer des

angeregten Zustands ziehen. Eine ausführlichere Herleitung dieser im Folgenden sehr kurz vorgestellten Zusammenhänge findet sich beispielsweise in [Dem93] oder [For99].

Zunächst lässt sich aus dem Integral über die in Wellenzahlen  $\bar{\nu}$  aufgetragenen Absorptionswirkungsquerschnitte  $\sigma_{ik}$  eines Übergangs  $i \rightarrow k$  die polarisationsabhängige Oszillatorstärke  $P_{ik}^{\xi}$  berechnen gemäß:

$$P_{ik}^{(\xi)} = \frac{4m_e \epsilon_0 c^2}{e^2} \int \sigma_{ik}^{(\xi)}(\bar{\nu}) d\bar{\nu}, \quad (5.14)$$

mit der Elektronenmasse und -ladung  $m_e$  bzw.  $e$ , der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$ , sowie der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Die Oszillatorstärke stellt damit ein charakteristisches Maß für den totalen Absorptionswirkungsquerschnitt dieses Übergangs dar. Für nicht-kubische Kristalle ergibt sich die effektive Oszillatorstärke  $P_{ik}^{eff}$  über alle drei Polarisierungen  $\xi_j$  zu

$$P_{ik}^{eff} = \frac{1}{3} \sum_j P_{ik}^{(\xi_j)}. \quad (5.15)$$

Nach [For99] besteht nun ein Zusammenhang zwischen der Übergangsrate  $A_{rad}$  und der Oszillatorstärke:

$$A_{rad} = \frac{2\pi e^2 n^2}{\epsilon_0 m c \bar{\lambda}^2} \cdot P_{ik}^{eff}, \quad (5.16)$$

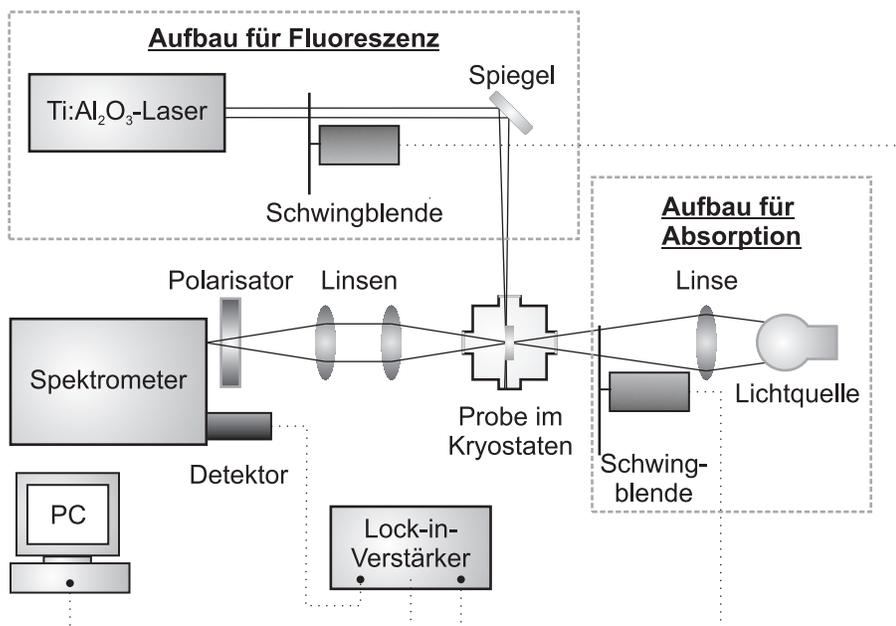
worin  $\bar{\lambda}$  die Schwerpunktswellenlänge des beobachteten Übergangs darstellt. Da im Falle von  $\text{Yb}^{3+}$  das Integral über die Absorptionswirkungsquerschnitte den Übergang aus den vier Stark-Niveaus des  ${}^2F_{7/2}$ -Multipletts in die drei Stark-Niveaus des  ${}^2F_{5/2}$ -Multipletts beinhaltet, muss nach [Lis05] ein Korrekturfaktor  $\frac{(2J+1)}{(2J'+1)}$  mit  $J = 7/2$  und  $J' = 5/2$  hinzugefügt werden, so dass sich schließlich folgender Zusammenhang zwischen der Übergangsrate  $A_{rad}$  und den integrierten Absorptionswirkungsquerschnitten ergibt:

$$A_{rad} = \frac{2\pi e^2 n^2}{\epsilon_0 m c \bar{\lambda}^2} \cdot \frac{4}{3} \cdot P_{ik}^{eff}. \quad (5.17)$$

Hieraus lässt sich über  $A_{rad} = 1/\tau_{sp}$  auch die strahlende Lebensdauer eines Übergangs abschätzen. Da diese grobe Abschätzung einen Fehler in der Größenordnung einiger 10% aufweist, wurde hier auf eine aufwändige Berücksichtigung der Dispersion der Brechzahlen verzichtet und als Brechzahl das arithmetische Mittel  $(n_x + n_y + n_z)/3$  aller Polarisierungen verwendet.

## 5.2.4 Tieftemperaturspektroskopie

Der Messaufbau für die Aufnahme der Spektren bei tiefen Temperaturen zur Bestimmung der Stark-Aufspaltung ist in Abb. 5.4 dargestellt. Bei diesen Messungen wurden die untersuchten Proben zunächst in einem Kryostaten auf etwa 10 K abgekühlt. Zur Aufnahme der Tieftemperatur-Fluoreszenzspektren wurde der in der oberen gestrichelten grauen Umrandung in Abb. 5.4 dargestellte Strahlengang eines  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ -Lasers zur Anregung der Probe verwendet. Um ein Aufheizen der Probe zu verhindern, betragen die gewählten Anregungsleistungen nur einige zehn Milliwatt. Zur Vermeidung starker Reabsorption erfolgte die Anregung zudem unter streifendem Einfall. Für die Ermittlung der Absorptionsspektren wurde die Transmission der breitbandigen Emission der in der rechten gestrichelten grauen Umrandung in



**Abbildung 5.4:** Schematische Darstellung des Messaufbaus für die Tieftemperatur-Spektroskopie. In den beiden gestrichelten grauen Umrandungen finden sich die unterschiedlichen Messaufbauten für Absorptions- und Fluoreszenz-Messungen.

Abb. 5.4 dargestellten Halogenlampe durch den Kristall aufgenommen. In beiden Fällen wurde das Anregungssignal zur Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses durch eine rotierende Schwingblende mit einer Frequenz von einigen 100 Hz moduliert, so dass abwechselnd mit der Fluoreszenz das reine Hintergrundsignal detektiert und vermittels eines "Lock-in"-Verstärkers vom Messsignal getrennt werden konnte. Das transmittierte bzw. emittierte Licht wurde auf den Spalt eines 1 m-Monochromators (SPEX 1000M) fokussiert und dahinter mit einer Si-Diode detektiert. Im Monochromator wurde ein für den Wellenlängenbereich um  $1\ \mu\text{m}$  optimiertes Gitter mit 600 Strichen/mm eingesetzt, mit dem bei der gewählten Spaltbreite eine Auflösung von etwa  $0,3\ \text{nm}$  bei einer Schrittweite von  $0,1\ \text{nm}$  erreicht wurde. Im Wellenlängenbereich um  $1\ \mu\text{m}$  entspricht diese Auflösung etwa drei Wellenzahlen ( $3\ \text{cm}^{-1}$ ). Die aufgenommenen Spektren wurden einer Korrektur bezüglich der Detektor-Empfindlichkeit und der spektralen Charakteristik des Monochromatorgitters unterzogen. Die Spektren dienen lediglich der Identifikation der energetischen Aufspaltung der Stark-Multipletts, aus diesem Grund wurden die Wirkungsquerschnitte der Tieftemperaturspektren nicht bestimmt. Da sich in Testmessungen die Spektren in den verschiedenen Polarisierungen in der Lage der Linien nicht unterscheiden, wurde außerdem zugunsten der Signalintensität auf die Aufnahme polarisationsabhängiger Spektren verzichtet.

### 5.3 Auswertung und Messergebnisse

In diesem Abschnitt erfolgt die Auswertung, Darstellung und Diskussion der mit den im ersten Teil dieses Kapitels vorgestellten Messverfahren und Apparaturen ermittelten Messergebnisse. Zunächst erfolgt von der Kenntnis anderer spektroskopischer Größen weitgehend un-

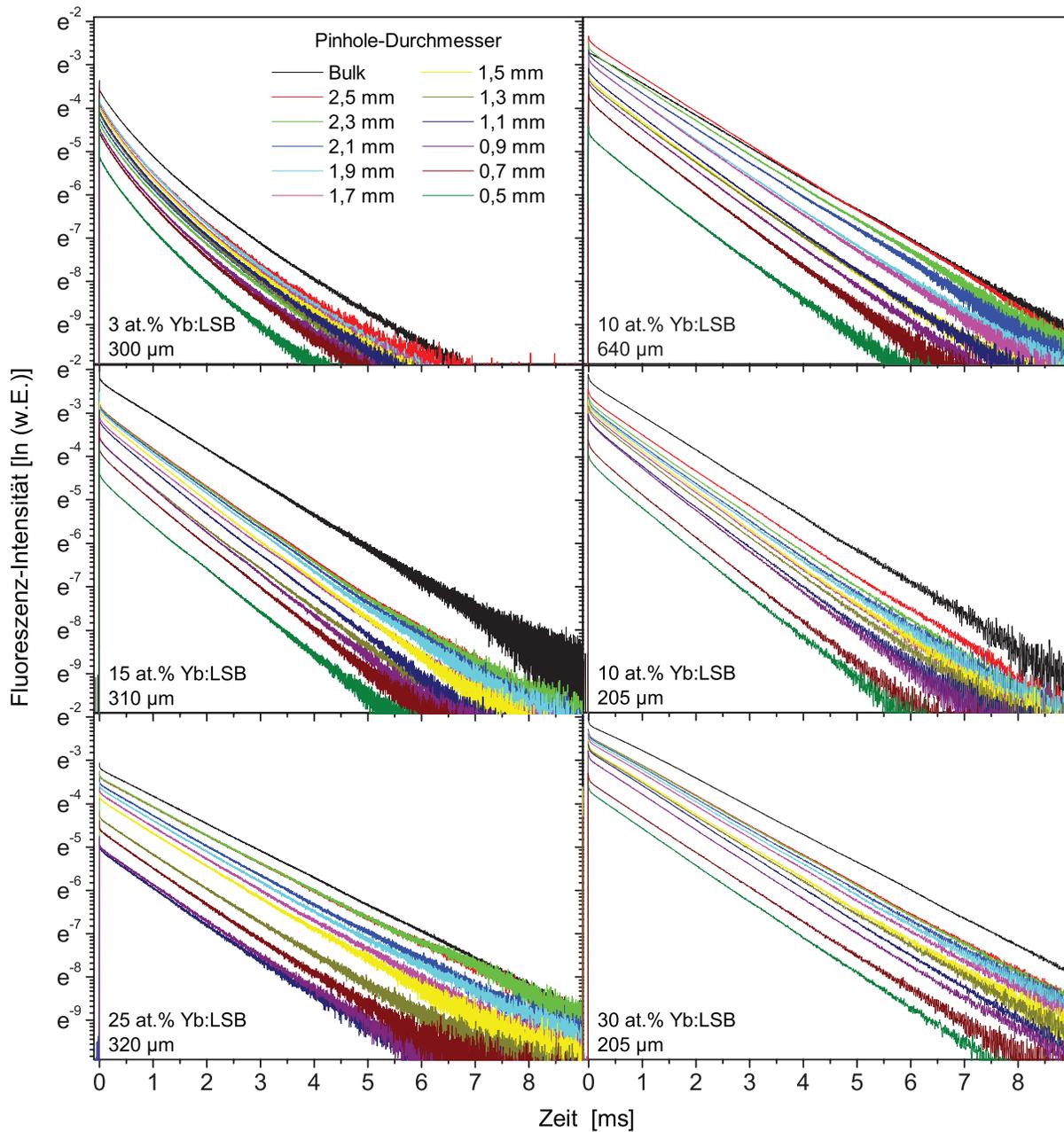
abhängige Analyse des zeitlichen Verlaufes der Fluoreszenzintensität nach der Anregung zur Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauern des  $^2F_{5/2}$ -Multipletts von  $Yb^{3+}$  in den verschiedenen Wirtsmaterialien, bevor die Ergebnisse der Ermittlung der Absorptionswirkungsquerschnitte vorgestellt werden. Da für die Ermittlung der Emissionswirkungsquerschnitte die Kenntnis der Stark-Aufspaltung in den beiden Multipletts von  $Yb^{3+}$  in den verschiedenen Wirtsgittern ein wichtiges Hilfsmittel darstellt (vgl. Abb. 5.1), folgt zunächst dieser Teil der Auswertung der spektroskopischen Untersuchungen. Erst darauf folgt die Präsentation der Ergebnisse der Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte. Es schließt sich eine Darstellung und Diskussion der aus den Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitten berechneten Verstärkungswirkungsquerschnitte an. Das Kapitel wird abgeschlossen von einer Fehlerbetrachtung und ersten Schlussfolgerungen aus den hier ermittelten Eigenschaften für den späteren Laserbetrieb.

### 5.3.1 Fluoreszenzdynamik

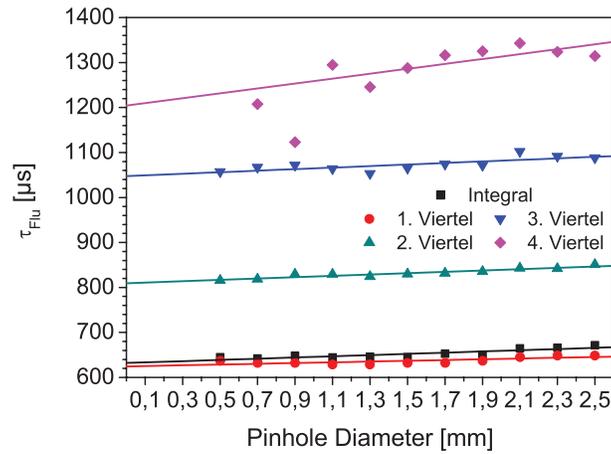
In diesem Abschnitt erfolgt eine Darstellung der Ergebnisse der Ermittlung der Fluoreszenzlebensdauer nach der Pinhole-Methode. Die aus der theoretischen Bestimmung nach Glg. 5.17 resultierenden Lebensdauern sind lediglich in Tab. 5.4 aufgeführt. In der Vergangenheit wurden für einige der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kristalle bereits erste Ergebnisse der Anwendung der Pinhole-Methode präsentiert (vgl. [Krä04, Joh04]). In der Zwischenzeit wurden jedoch systematische Fehlerquellen erkannt und beseitigt. Weiterhin standen für diese neuen Messungen Blenden mit Durchmessern von 0,5 mm bis 2,5 mm in Intervallen von 0,1 mm anstelle von bisher 0,5 mm zur Verfügung, wodurch der Fehler, welcher durch die Extrapolation auf Null Volumen entsteht, wesentlich verringert wird. Um den Messaufwand in vertretbaren Grenzen zu halten, wurden jedoch lediglich Blendendurchmesser in Intervallen von 0,2 mm verwendet.

#### Messung der Fluoreszenzdynamik an Yb:LSB

In Abb. 5.5 sind die Fluoreszenz-Abklingkurven einiger untersuchter Proben in logarithmischer Darstellung aufgetragen. In dieser Auftragung weist eine Exponentialkurve einen linearen Verlauf auf, so dass sich starke Abweichungen vom erwarteten Verlauf auf den ersten Blick erkennen lassen. Die in Abb. 5.5 dargestellten Kurven stellen jeweils eine Mittelung über durchschnittlich 400 Einzelmessungen dar, wobei anhand des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses offensichtlich ist, dass für die am geringsten dotierte Probe länger integriert wurde, als beispielsweise im Falle des 15 at.% dotierten Kristalles. Wie anhand der Theorie erwartet, ist in den meisten Fällen die Signalintensität der ohne Blende aufgenommenen Kurve (in Abb. 5.5 mit *“Bulk”* bezeichnet) am höchsten und diese weist die langsamste Abklingzeit auf. Wo dies nicht der Fall ist, kann dieser Umstand auf ein Nachjustieren innerhalb der Messreihe zurückgeführt werden. Es zeigt sich zunächst, dass bis auf die 3 at.%  $Yb^{3+}$ -dotierte Kristallprobe alle untersuchten Kristalle über ein weites Zeitintervall einen exponentiellen Verlauf der Fluoreszenzdynamik aufweisen. Die in Abb. 5.5 oben links dargestellten Zerfallskurven des 3 at.%  $Yb^{3+}$ -dotierten Kristalles hingegen lassen auch nach mehrfacher Wiederholung der Messung keinen realistischen exponentiellen Fit zu. Aus diesem Grund wurde zunächst eine Bestimmung der mittleren



**Abbildung 5.5:** Fluoreszenz-Abklingkurven unterschiedlich  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter LSB-Kristalle hinter Blenden verschiedenen Durchmessers. Die Dotierungskonzentration und Dicke der jeweils untersuchten Probe sind den Beschriftungen der einzelnen Graphen zu entnehmen. "Bulk" bezeichnet die ohne Blende gemessenen Abklingkurven.

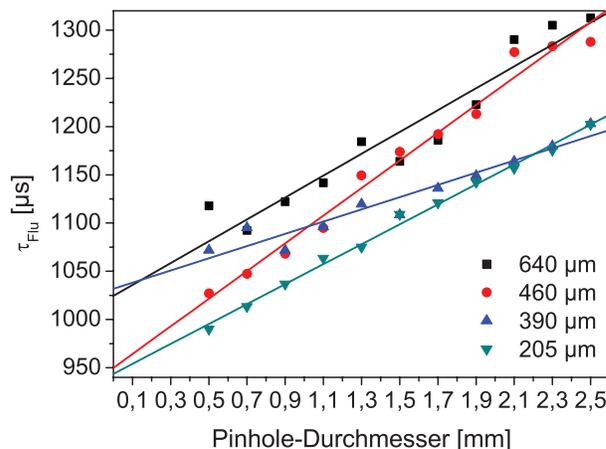


**Abbildung 5.6:** Anhand verschiedener Zeitintervalle auf den Abklingkurven ermittelte Fluoreszenzlebensdauern von  $\text{Yb}^{3+}$  in 3 at.% Yb:LSB in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser.

Zerfallsdauer  $\tau_{av}$  gemäß

$$\tau_{av} = \frac{\int I(t) dt}{I_0} \quad (5.18)$$

vorgenommen. Wie in Abb. 5.6 zu erkennen ist, weisen die so ermittelten Ergebnisse eine sehr gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der exponentiellen Fits im ersten Viertel der Zerfallskurve auf, was darauf zurückzuführen ist, dass dieses den weitaus größten Beitrag zum Integral in Glg. 5.18 liefert. Für die hinteren Teile der Zerfallskurve ergibt die Extrapolation auf Null hingegen eine Lebensdauer, die wesentlich abweicht von diesem Wert. Die vergleichsweise große Streuung der im vierten Viertel angefitzten Messpunkte für die kleinsten Blendendurchmesser kann dabei auf die sehr geringe Signalintensität zurückgeführt werden. Die resultierende Lebensdauer ist mit bis zu 1,2 ms beinahe doppelt so lang, wie im ersten Teil der Zerfallskurve. Es kann vermutet werden, dass in einer LSB-Probe mit derart geringer Dotierung die Kopplung zwischen den Dotierionen auf den  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen und den  $\text{La}^{3+}$ -Plätzen nur gering ist, so dass aus den resultierenden Zerfallskurven die Lebensdauern beider Plätze ermittelbar sind. Aufgrund der dennoch vorhandenen Kopplung und der Tatsache, dass für das  $\text{Sc}^{3+}$  zwei spektroskopisch leicht unterschiedliche Konfigurationen vorliegen, weist die Kurve nicht die typische Form eines zweifach-exponentiellen Abfalls mit einem relativ scharfen Knick zwischen zwei geraden unterschiedlicher Steigung in der logarithmischen Darstellung auf. Platzselektive Messungen der Lebensdauer bei tiefen Temperaturen ergaben für  $\text{Yb}^{3+}$  auf den  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen deutlich längere Lebensdauern als auf dem  $\text{La}^{3+}$ -Platz [Joh04], was diese These unterstützt. Abb. 5.6 kann weiterhin entnommen werden, dass – wie erwartet – der Effekt der Reabsorption in einem Kristall dieser niedrigen Dotierungskonzentration gering ist, was sich im flachen Verlauf der Extrapolationsfits äußert. Für die Ermittlung der Lebensdauer des 10 at.%-dotierten LSB-Kristalles wurde zunächst eine Probe von 640 µm Dicke verwendet. Obwohl in Abb. 5.5 im obersten Diagramm auf der rechten Seite für alle Abklingkurven ein exponentieller Verlauf angenommen werden kann, wurden aufgrund der vergleichsweise starken Streuung der Messwerte (vgl. Abb. 5.7) weitere Messungen an dünneren Proben vorgenommen. Die Fluoreszenzabklingkurven der dünnsten Probe sind in Abb. 5.5 direkt unter denen der dickeren Probe dargestellt. Es zeigt sich eine kontinuierliche Abnahme des Fehlers der linearen Extrapolation

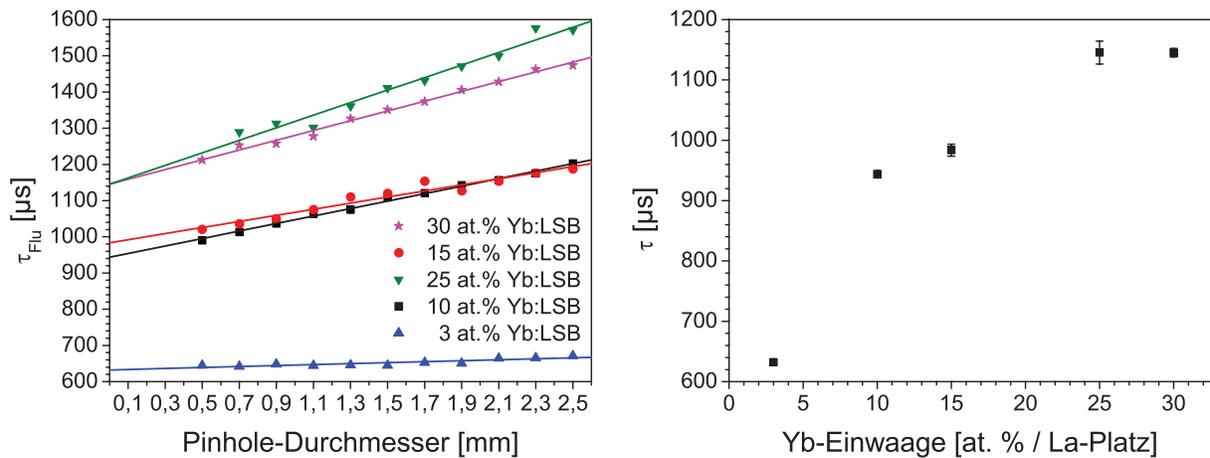


**Abbildung 5.7:** Fluoreszenzlebensdauern von  $\text{Yb}^{3+}$  in 10 at.% Yb:LSB-Proben verschiedener Dicke in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser.

mit der Probendicke von  $\pm 18 \mu\text{s}$  für die  $640 \mu\text{m}$  dicke Probe auf nur noch  $\pm 4 \mu\text{s}$  im Falle der  $205 \mu\text{m}$  dicken Probe. Da die Fehler der exponentiellen Fits an den einzelnen Fluoreszenzabklingkurven aufgrund der großen Zahl der Messpunkte (in der Regel 20 000) ebenfalls nur in der Größenordnung einiger Promille liegen, lässt sich die relativ große Streuung der für Kristalle verschiedener Dicken ermittelten extrapolierten Lebensdauern um beinahe 10% zwischen  $940 \mu\text{s}$  und  $1030 \mu\text{s}$  nicht allein durch den statistischen Fehler erklären. Eine weitere mögliche Fehlerquelle ist die Tatsache, dass es im verwendeten Messaufbau nur durch sehr präzise Justage möglich war, die flexiblen Blenden ohne Verbiegung direkt vor dem Kristall zu platzieren. Eine Verbiegung der Blende führt jedoch dazu, dass nicht mehr der gesamte Rand der Blende auf der Probe aufliegt, was die Abhängigkeit des detektierten Volumens vom Blendendurchmesser verfälscht. Da eine mögliche Verbiegung durch den Kristallhalter auf höchstens die Dicke der Kristalle limitiert war, wird das mit der dünnsten Probe ermittelte Ergebnis von  $940 \mu\text{s}$  für richtig gehalten.

Die Auswertung der Messungen an einer  $310 \mu\text{m}$  dicken, 15 at.%-dotierten Yb:LSB-Probe (Abb. 5.5, 2. Zeile, 1. Spalte) lieferte eine Lebensdauer von  $(984 \pm 10) \mu\text{s}$ , was in der Darstellung des Verlaufes der Lebensdauer in Abhängigkeit von der Dotierkonzentration in Abb. 5.8 (rechts) zu kurz erscheint. Jedoch lieferten auch vergleichende Absorptionmessungen Hinweise darauf, dass diese Probe niedriger als angegeben dotiert ist. Der Extrapolationsfit findet sich gemeinsam in der vergleichenden Auftragung der Ergebnisse für alle Dotierkonzentrationen in Abb. 5.8 (links).

In Abb. 5.5 unten links dargestellt sind die Fluoreszenzabklingkurven der 25 at.%-dotierten Yb:LSB-Probe. Die Auswertung dieser Probe resultierte in einer Lebensdauer von  $1,15 \text{ ms}$  (vgl. Abb. 5.8). Der Fehler des Extrapolationsfits war mit  $\pm 19 \mu\text{s}$  im Vergleich zu den Proben niedrigerer Dotierkonzentrationen relativ groß. Eine mögliche Erklärung hierfür ist die Tatsache, dass die Absorptionslänge einer Probe dieser Dotierkonzentration mit etwa  $1 \text{ mm}$  in  $\sigma$ -Polarisation bereits deutlich kleiner als der Durchmesser der größten Blende ist. Damit verliert die für den Schluss des linearen Zusammenhangs von Pinhole-Durchmesser und gemessener Lebensdauer aus Glg. 5.13 getätigte Annahme, dass jedes Photon in erster Näherung nur einmal reabsorbiert wird, ihre Gültigkeit. Dennoch kann das für diese Probe ermittelte Ergebnis



**Abbildung 5.8:** Links: Fluoreszenzlebensdauern unterschiedlich  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter LSB-Proben verschiedener Dicke in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser. Rechts: Extrapolierte Fluoreszenzlebensdauern von  $\text{Yb}^{3+}$  in LSB-Kristallen in Abhängigkeit von der  $\text{Yb}^{3+}$ -Konzentration in der Einwaage.

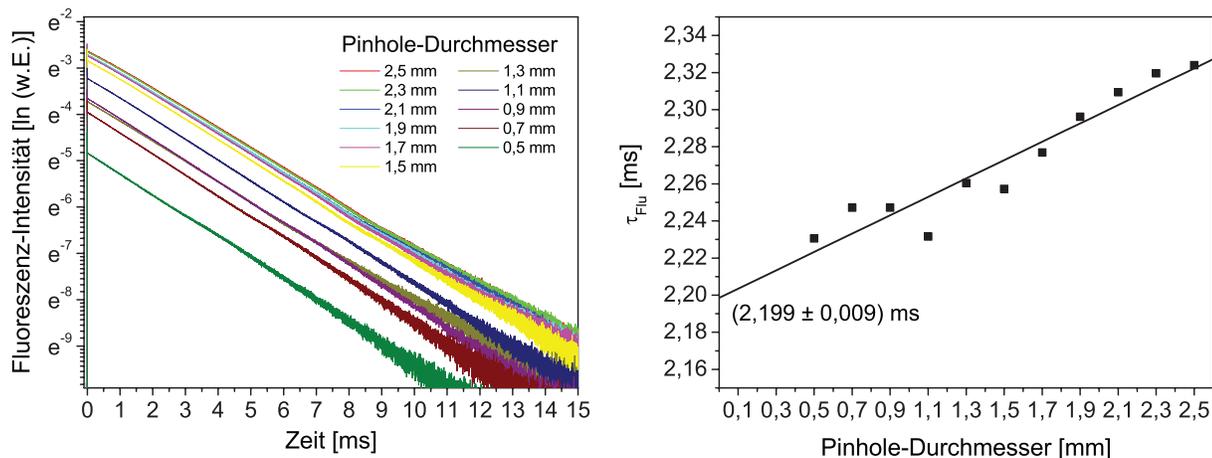
in Anbetracht des Verlaufes der Zerfallskurven und der Messwerte auf dem Extrapolationsfit (vgl. Abb. 5.8 links) noch als zuverlässig betrachtet werden. Der steilere Verlauf des Extrapolationsfits kann mit der größeren Dicke dieser Probe im Vergleich zur 30 at.-%-dotierten Probe begründet werden.

Für 30 at.-%-dotiertes LSB ist die Abweichung von der genannten Näherung sogar noch größer. Dennoch weisen auch dessen – in Abb. 5.5 unten rechts dargestellte – Abklingkurven einen exponentiellen Verlauf auf und es zeigt sich kein wesentlicher Unterschied zwischen der am ersten Viertel der Abklingkurve gefitteten Lebensdauer und der am letzten Viertel gefitteten Lebensdauer, was für eine sehr gute Kopplung zwischen den unterschiedlichen spektroskopischen Plätzen spricht. Die in Abb. 5.8 (links) dargestellte Auswertung ergibt eine identische Lebensdauer wie im Fall der 25 at.-%-dotierten Probe, der Fehler des Extrapolationsfits ist mit nur  $\pm 7 \mu\text{s}$  jedoch deutlich geringer, was ebenso wie der flachere Verlauf des Extrapolationsfits auf die geringere Dicke dieser Probe zurückgeführt wird.

In Abb. 5.8 (rechts) sind die extrapolierten Fluoreszenzlebensdauern aller untersuchten  $\text{Yb}^{3+}$ -Proben in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration aufgetragen. Es zeigt sich, dass mit zunehmender Dotierungskonzentration die Lebensdauer gegen einen Wert von etwa 1,15 ms steigt. Dieser Wert steht in vernünftiger Übereinstimmung mit der sich aus den Tieftemperatur-Lebensdauern der einzelnen spektroskopischen Plätze ergebenden Raumtemperatur-Lebensdauer unter Annahme einer perfekten Kopplung zwischen diesen Plätzen (vgl. [Joh04]).

### Messung der Fluoreszenzdynamik an Yb:YCOB

Für den 15 at.-%-dotierten Yb:YCOB-Kristall weisen die in Abb. 5.9 dargestellten Fluoreszenzabklingkurven für eine  $230 \mu\text{m}$  dicke Probe über einen sehr weiten Bereich einen rein exponentiellen Verlauf auf. Die durch die exponentiellen Fits über diese Zerfallskurven ermittelten Fluoreszenzlebensdauern für die einzelnen Blendendurchmesser weisen jeweils nur einen sehr geringen Fehler von unter 0,1% auf. Der Unterschied zwischen der ermittelten Fluoreszenzlebensdauer hinter dem größten Blendendurchmesser zu der extrapolierten Lebensdauer beträgt nur etwa 5% (vgl. Abb. 5.9). Dies spricht für einen sehr geringen Einfluss der Reabsorption in



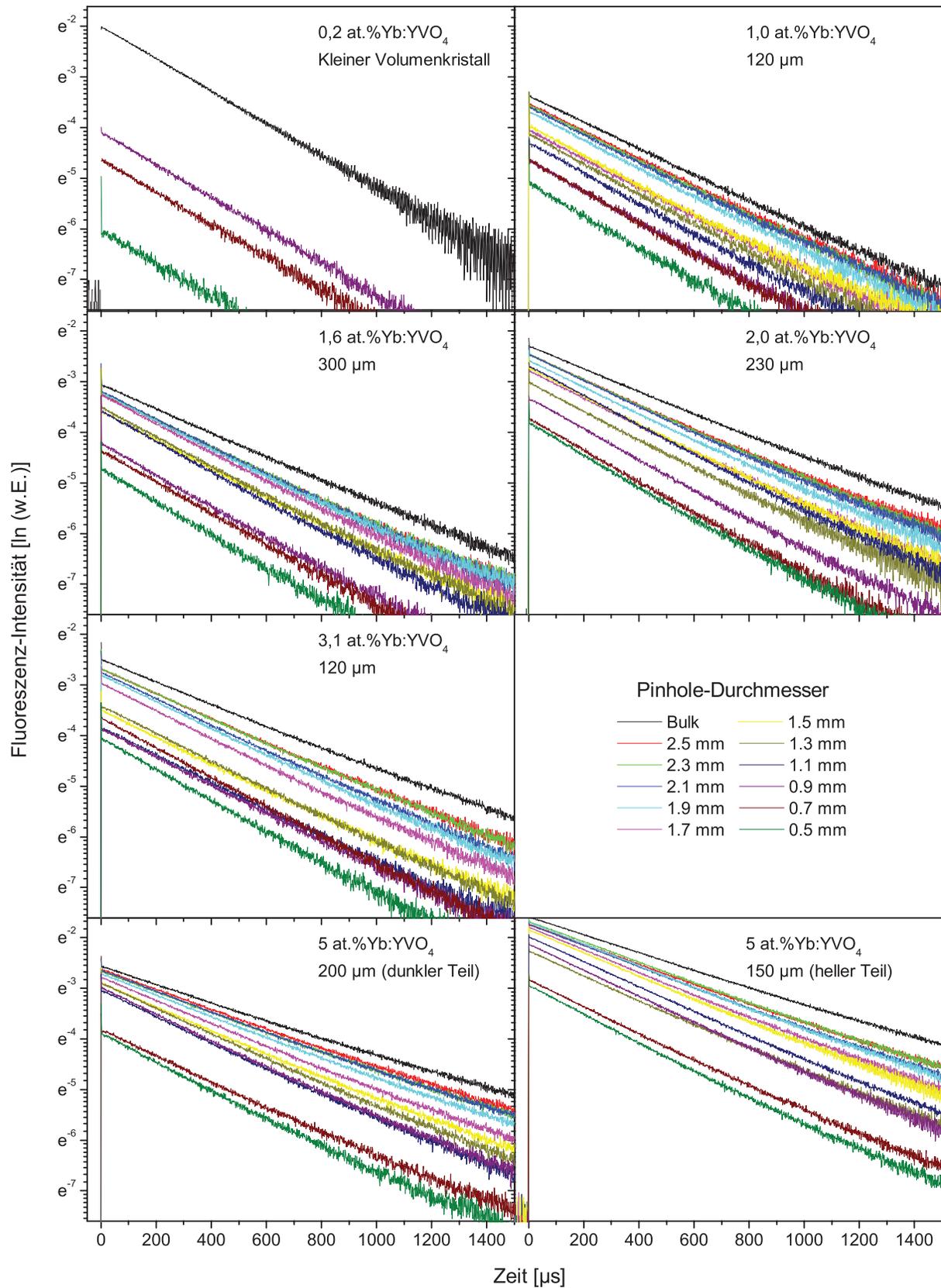
**Abbildung 5.9:** Links: Fluoreszenz-Abklingkurven von 15 at.-%-dotiertem Yb:YCOB hinter Blenden verschiedenen Durchmessers. Rechts: Fluoreszenzlebensdauern von 15 at.-%-dotiertem Yb:YCOB in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser.

Yb:YCOB, wie er auch anhand der in Abb. 5.14 auf S. 80 dargestellten Absorptionsspektren zu erwarten ist. Die resultierende Lebensdauer von  $(2\,199 \pm 9) \mu s$  steht daher in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen früherer Veröffentlichungen [Leb00] und gehört damit zu den längsten Lebensdauern von  $Yb^{3+}$  in Oxid-Kristallen. Beim Vergleich von Abb. 5.9 (rechts) mit den in Abb. 5.8 (links) oder in Abb. 5.11 (links) dargestellten Messdaten sollte das relativ kleine Zeitintervall der Ordinate berücksichtigt werden. Von diesem Material standen keine Proben anderer Dotierung zur Verfügung, eine Messung der Fluoreszenzlebensdauer eines 7 at.-%-dotierten Yb:GdCOB-Kristalles lieferte eine extrapolierte Lebensdauer von  $(2\,140 \pm 1) \mu s$ . Aufgrund der leicht unterschiedlichen Wirtsgitter hat diese Messung keine große Aussagekraft. Es ist jedoch anhand dieser Messung und der in der Literatur vorliegenden Daten nicht zu vermuten, dass eine ähnliche Abhängigkeit der Lebensdauer von der Dotierungskonzentration vorliegt wie sie in Yb:LSB beobachtet werden konnte.

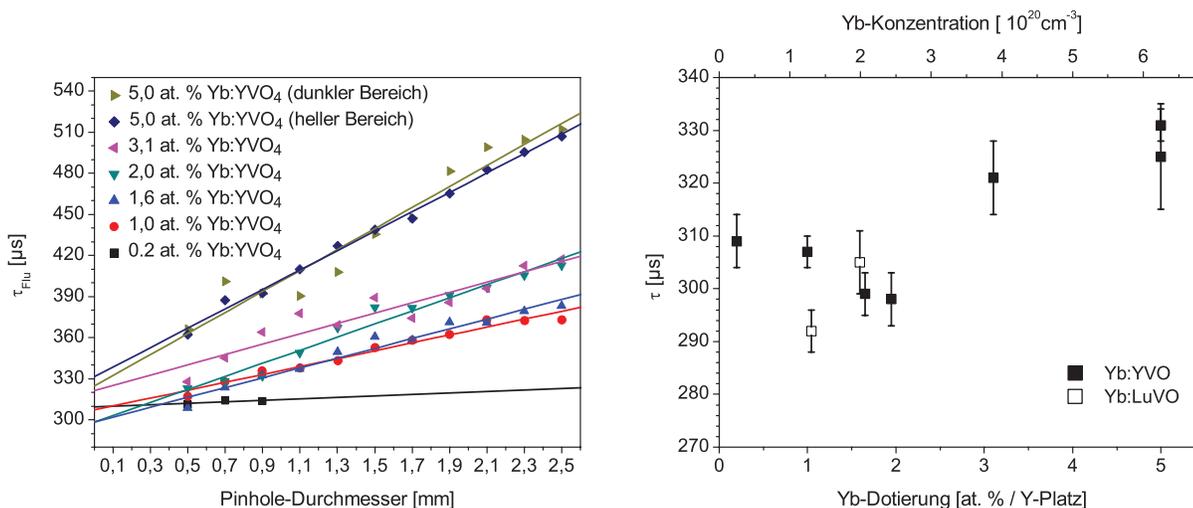
### Messung der Fluoreszenzdynamik an Yb:YVO

Bei ersten Versuchen der Bestimmung der Lebensdauer von  $Yb^{3+}$ -dotierten Vanadaten führte die Anregung der Proben mit der fokussierten OPO-Emission bereits nach wenigen hundert Pulsen zu einer Zerstörung der Probenoberfläche. Diese äußerte sich in einer Schwarzfärbung der Proben und führte zu einer Verfälschung der gewonnenen Messresultate. Aus diesem Grund wurde für die in Abb. 5.10 dargestellten Messkurven nur über etwa 10 OPO-Pulse integriert. Bei dieser Vorgehensweise war selbst nach Messung aller Zerfallskurven keine Veränderung der Kristalloberfläche festzustellen. Die geringe Integrationszeit führte zwar verglichen mit den Zerfallskurven der untersuchten Borat-Kristalle zu einem wesentlich schlechteren Signal-zu-Rausch-Verhältnis, aufgrund der hohen Zeitauflösung der Messung und der hohen Wirkungsquerschnitte des Materials betrug der Fehler jedoch bei keinem exponentiellen Fit an die einzelnen Zerfallskurven mehr als 1,2%. Hierbei ist anzumerken, dass jeweils nur der Bereich von ca.  $250 \mu s$  bis  $500 \mu s$  nach Anregung in den Fit einbezogen wurde. Fits an anderen Bereichen der Zerfallskurve lieferten jedoch stets vergleichbare Resultate.

Bei dem YVO-Kristall von 0,2 at.-%-Dotierung handelte es sich um einen sehr kleinen Volu-



**Abbildung 5.10:** Fluoreszenz-Abklingkurven unterschiedlich  $Yb^{3+}$ -dotierter YVO-Kristalle hinter Blenden verschiedenen Durchmessers. Die Dotierungskonzentration und Dicke der jeweils untersuchten Probe sind den Beschriftungen der einzelnen Graphen zu entnehmen. "Bulk" bezeichnet die ohne Blende gemessenen Abklingkurven.



**Abbildung 5.11:** Links: Fluoreszenzlebensdauern unterschiedlich  $Yb^{3+}$ -dotierter YVO-Kristalle in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser. Rechts: Extrapolierte Fluoreszenzlebensdauern von  $Yb^{3+}$  in YVO- (gefüllte Symbole) und LuVO-Kristallen (offene Symbole) in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration. Aufgrund der leicht unterschiedlichen Kationendichten in beiden Materialien gilt die untere Skala in at.% genau genommen nur für YVO. Die relative Abweichung beträgt jedoch für LuVO nur 4% und liegt damit innerhalb der Messgenauigkeit der Mikrosondenanalyse für derart geringe Dotierungskonzentrationen. Zu beachten ist die unterschiedliche Skalierung der Ordinate in beiden Teilabbildungen.

men-Kristall mit unregelmäßigen Oberflächen. Aufgrund der geringen Größe der Probe wurde auf die Präparation einer Scheibe verzichtet und die Messung wurde an einer Spaltfläche vorgenommen. Da diese Spaltfläche nur eine Größe von etwa  $1\text{ mm}^2$  aufwies, konnten nur für die kleinen Blendendurchmesser Zerfallskurven aufgenommen werden. Der Extrapolationsfit durch die drei vermessenen Blendendurchmesser lieferte eine Lebensdauer von  $(309 \pm 5)\mu s$  und ist im linken Teil von Abb. 5.11 dargestellt. Der Vergleich mit dem Resultat der Auswertung der am Volumen-Kristall aufgenommenen Zerfallskurve von  $312\mu s$  lieferte im Rahmen der Messgenauigkeit keinen Unterschied. Es kann also davon ausgegangen werden, dass in einem derart gering dotierten Kristall nahezu keine Verfälschung der Lebensdauer durch Reabsorption auftritt.

Für den 1 at.%-dotierten Yb:YVO-Kristall konnte zunächst mit einer Probe von  $650\mu m$  Dicke keine zuverlässige Auswertung der gewonnenen Zerfallskurven stattfinden. Die Wiederholung der Messung mit einer nur  $120\mu m$  dicken Probe lieferte die in Abb. 5.10 oben rechts dargestellten Zerfallskurven, die eine zuverlässige Auswertung mit einer sehr geringen Abweichung der angefitteten Zerfallsdauern für die einzelnen Blenden vom Extrapolationsfit (siehe Abb. 5.11) zuließen. Die resultierende Lebensdauer betrug  $(307 \pm 3)\mu s$ . Ohne Blende betrug die an dieser dünnen Scheibe ermittelte Lebensdauer  $383\mu s$ ; dies ist ein Hinweis darauf, dass die Pinhole-Methode für die Ermittlung der Lebensdauern  $Yb^{3+}$ -dotierter Vanadate schon bei diesen relativ geringen Dotierungskonzentrationen ein wichtiges Hilfsmittel darstellt.

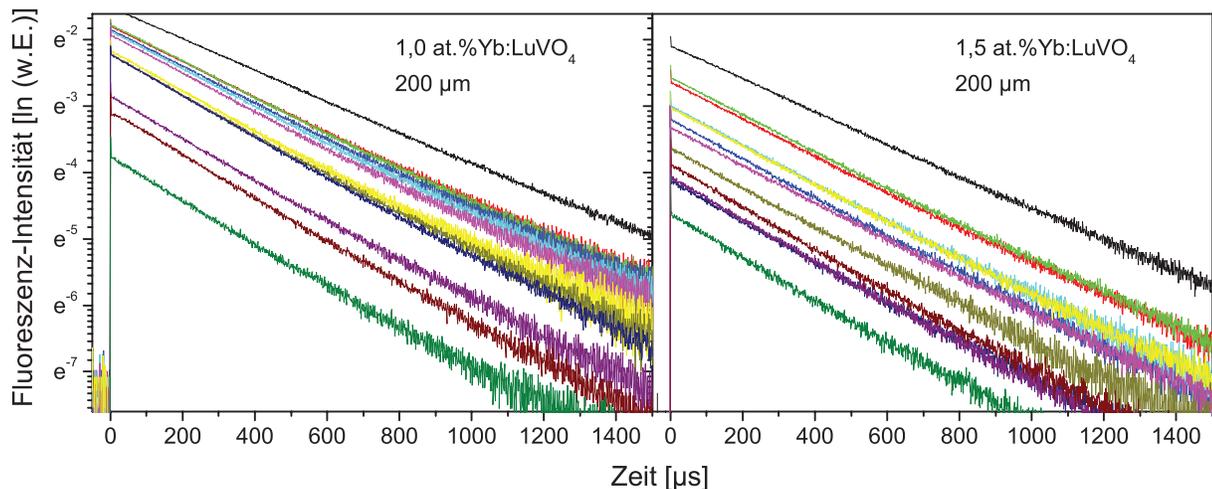
Für die höher dotierten Yb:YVO-Proben stieg die Abweichung zwischen den mit der Pinhole-Methode und den ohne Blende ermittelten Lebensdauern mit zunehmender Dotierungskonzentration weiter an. In allen Fällen zeigten die Zerfallskurven einen exponentiellen Verlauf und der Fehler des Extrapolationsfits lag bei maximal 3%. Die Ergebnisse aller Lebensdauermessungen

an  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten YVO-Proben sind in Abb. 5.11 graphisch dargestellt und in Tab. 5.3.1 mit den Dicken der untersuchten Proben und den jeweiligen Standardabweichungen aufgelistet. Zur Verdeutlichung des Effektes der Anwendung der Pinhole-Methode sind auch die ohne Pinhole an den jeweiligen Proben ermittelten Lebensdauern aufgeführt. Für dickere Volumenkristalle lassen sich bei fehlender Unterdrückung von Reabsorptionseffekten sogar Lebensdauern bis zu 1 ms in der Literatur finden [Zha99a, Lan03, Xia00].

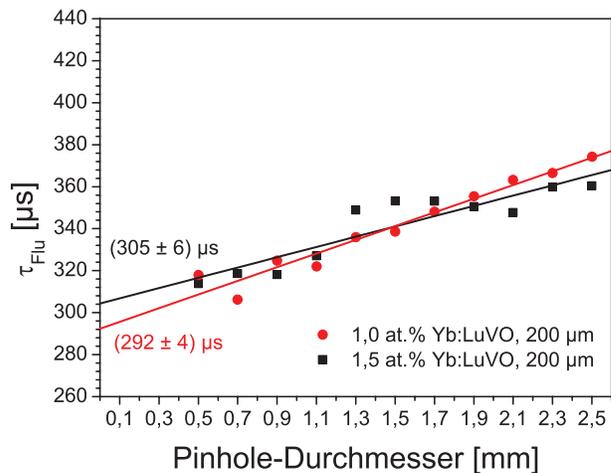
Aus der Tab. 5.3.1 ist ersichtlich, dass die aus den unterschiedlich gefärbten Bereichen eines 5,0 at.-%-dotierten Yb:YVO-Kristalles entnommenen Proben innerhalb der Fehlertoleranzen identische Fluoreszenzlebensdauern aufweisen. In Abb. 5.11 (rechts) ist der Verlauf der extrapolierten Fluoreszenzlebensdauer mit der Dotierungskonzentration angegeben. Es zeigt sich ein leichter Anstieg, allerdings in einem wesentlich geringeren Maße als im Falle von Yb:LSB. Trotz der geringen Standardabweichung bei der Bestimmung der Extrapolationsfits muss auch hier zunächst die Gültigkeit der Pinhole-Methode nach der in Abschnitt 5.2.3 hergeleiteten Theorie in Frage gestellt werden: Schon die Absorptionskoeffizienten von 1 at.-% dotiertem Yb:YVO überschreiten im Maximum einen Wert von  $10 \text{ cm}^{-1}$ . Damit liegt die Absorptionslänge in der Größenordnung der größten Blendenradien und ein Photon wird entgegen der für die Herleitung der Pinhole-Methode getätigten Annahme mit einer nicht zu vernachlässigenden Wahrscheinlichkeit mehr als einmal innerhalb des detektierten Volumens reabsorbiert. Es gilt bei dieser Betrachtung jedoch zu beachten, dass die mittlere Wellenlänge eines spontan emittierten Photons deutlich über der Wellenlänge maximaler Absorption liegt. Damit stellt der Vergleich von Absorptionslänge mit dem Pinhole-Radius nur einen groben Anhaltspunkt dar. Weiterhin kann aufgrund der unterschiedlichen Herstellungsarten und Hersteller der untersuchten Proben (vgl. Tab. 5.1) nicht von einer gleichbleibenden Kristallqualität ausgegangen werden. Obwohl auch bei anderen mittels der Pinhole-Methode untersuchten Kristallen (vgl. z. B. [Pet08a]) ein leichter Anstieg der Lebensdauer mit der Dotierungskonzentration beobachtet werden konnte, ist anhand der hier für Yb:YVO ermittelten Daten somit nicht eindeutig festzustellen, ob dies auf eine Änderung des Kristallfeldes oder auf einen systematischen Fehler der Pinhole-Methode zurückzuführen ist.

Yb <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Pinhole- Lebensdauer ( $\mu\text{s}$ )	Lebensdauer ohne Blende ( $\mu\text{s}$ )
0,2	Bulk	309 $\pm$ 5	312
1,0	120	307 $\pm$ 3	383
1,6	300	299 $\pm$ 4	426
2,0	230	298 $\pm$ 5	453
3,1	120	321 $\pm$ 7	457
5,0 (dunkler Bereich)	200	325 $\pm$ 10	561
5,0 (heller Bereich)	150	331 $\pm$ 3	571

**Tabelle 5.2:** Extrapolierte Lebensdauern der unterschiedlich dotierten Yb:YVO-Proben im Vergleich mit den ohne Blende direkt an den Scheiben der angegebenen Dicke gemessenen Lebensdauern.



**Abbildung 5.12:** Fluoreszenz-Abklingkurven unterschiedlich  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter LuVO-Kristalle hinter Blenden verschiedenen Durchmessers. Die Dotierungskonzentration und Dicke der jeweils untersuchten Probe sind den Beschriftungen der einzelnen Graphen zu entnehmen. Die farbliche Zuordnung der Zerfallskurven zu den verwendeten Blendendurchmessern erfolgte nach der Legende in Abb. 5.10.



**Abbildung 5.13:** Fluoreszenzlebensdauern unterschiedlich  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter LuVO-Proben in Abhängigkeit vom Pinhole-Durchmesser.

### Messung der Fluoreszenzdynamik an Yb:LuVO

Die in Abb. 5.12 dargestellten Fluoreszenzabklingkurven für 200  $\mu\text{m}$  dicke Proben der beiden zur Verfügung stehenden Dotierungskonzentrationen von Yb:LuVO wurden nach dem bereits im Abschnitt über Yb:YVO vorgestellten Verfahren aufgenommen und ausgewertet. Auch für dieses Material weisen alle aufgenommenen Zerfallskurven – wie es aufgrund der sehr ähnlichen Kristallmatrizen der beiden Vanadate zu erwarten war – in guter Näherung einen exponentiellen Abfall auf. Die resultierenden Fluoreszenzlebensdauern zeigen wie schon im Falle von Yb:YVO nur eine sehr geringe Abweichung von Extrapolationsfits (vgl. Abb. 5.13). Für die 1 at.-%-dotierte Probe ergibt sich eine extrapolierte Lebensdauer von  $(292 \pm 4) \mu\text{s}$ , für die 1,5 at.-%-dotierte Lebensdauer resultiert der Extrapolationsfit in einer nur geringfügig längeren

Lebensdauer von  $(305 \pm 6) \mu\text{s}$ . Beide Punkte wurden zusammen mit den Werten für Yb:YVO in Abb. 5.11 rechts dargestellt und lassen im Mittel eine geringfügig kürzere Lebensdauer von  $\text{Yb}^{3+}$  in LuVO im Vergleich zu YVO erkennen.

### Messung der Fluoreszenzdynamik an weiteren $\text{Yb}^{3+}$ - und $\text{Tm}^{3+}$ -dotierten Kristallen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Pinhole-Methode für die Bestimmung der Lebensdauern von  $\text{Yb}^{3+}$  in einigen weiteren Materialien angewandt. Weiterhin wurde erstmals die Eignung dieser Methode für die Bestimmung der Lebensdauer  $\text{Tm}^{3+}$ -dotierter Kristalle im Fluoreszenzbereich um  $1,7 \mu\text{m}$  nachgewiesen. Die Resultate dieser Messungen sind in den Tab. B.1 bis B.4 in Anhang B aufgelistet.

### 5.3.2 Absorptionswirkungsquerschnitte

Die gemäß den Gleichungen 5.1 und 5.2 ermittelten polarisationsabhängigen Spektren der bei Raumtemperatur ermittelten Wirkungsquerschnitte der Absorption aus dem unteren  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Stark-Multiplett in das obere  ${}^2\text{F}_{5/2}$ -Multiplett aller untersuchten Materialien sind in Abb. 5.14 auf S. 80 dargestellt. Die Auflösung beträgt für alle Messungen  $0,4 \text{ nm}$  bei einer Schrittweite von  $0,2 \text{ nm}$ . Die Parameter der untersuchten Kristalle sind Tab. 5.3 zu entnehmen. Zusätzlich zu den hier genannten Daten wurde der Spektralbereich hoher Absorption um die Nullphononenlinie für Yb:YCOB an einer  $0,234 \text{ mm}$  ( $\vec{E} \parallel \text{Y}, \text{X}$ ) bzw.  $0,200 \text{ mm}$  ( $\vec{E} \parallel \text{Z}$ ) dicken Probe detailliert vermessen.

Den untersuchten Materialien gemeinsam ist eine starke Absorption im für  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Kristalle typischen Bereich um  $980 \text{ nm}$ . Dieses als Nullphononenlinie bezeichnete Absorptionsmaximum wird durch den Übergang vom untersten Stark-Niveau des energetisch tiefer liegenden  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Stark-Multipletts in das unterste Stark-Niveau des oberen  ${}^2\text{F}_{5/2}$ -Stark-Multipletts verursacht. Während die Borate Yb:LSB und Yb:YCOB jedoch eine sehr breite, sich über einen spektralen Bereich von mehr als  $100 \text{ nm}$  erstreckende Absorptionsbande aufweisen, liefert der für  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Oxide relativ schmale Bereich nennenswerter Absorption der Vanadate Yb:YVO und Yb:LuVO von nur etwa  $70 \text{ nm}$  schon in den Raumtemperaturspektren einen ersten Hinweis auf die relativ geringe Stark-Aufspaltung des oberen Stark-Multipletts. Beim Vergleich der dargestellten Spektren dieser beiden Klassen von Materialien in Abb. 5.14 sollte die unterschiedliche Skalierung der Ordinatenachse berücksichtigt werden.

$\text{Yb}^{3+}$ -Dichte ( $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ )	Wirts- material	Hersteller	Länge (mm)
5,00	LSB	FIRN	$6,25 (\sigma), 5,2 (\pi)$
6,75	YCOB	ENSCP	$6,75 (\vec{E} \parallel \text{X}), 4 (\vec{E} \parallel \text{Y}, \text{Z})$
2,52	YVO	Solix	0,981
1,97	LuVO	ICM	2,1

**Tabelle 5.3:** Parameter der für die Absorptionmessungen verwendeten Kristallproben.

## Ytterbium-dotierte Borate

### Yb:LSB

Nachdem sich bei einer Neuauswertung der Mikrosondenanalyse einer in der Diplomarbeit von J. Johannsen [Joh04] verwendeten 25 at.% Yb<sup>3+</sup> eingewogenen LSB-Probe ergab, dass in diesem Kristall nur eine Ytterbium-Konzentration von 20,3% vorlag (vgl. Abschnitt 5.1.1 dieses Kapitels) und dies in den in [Joh04] angegebenen Wirkungsquerschnittsspektren nicht berücksichtigt worden war, ergab sich die Notwendigkeit einer Neubestimmung der Wirkungsquerschnitte von Yb:LSB. Zu diesem Zwecke wurde an einem nominell 15 at.%-dotierten Boule eine Mikrosondenanalyse [Ber] vorgenommen. Diese ergab lediglich eine Yb<sup>3+</sup>-Ionendichte von  $5,00 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , entsprechend einer unerwartet niedrigen Yb<sup>3+</sup>-Dotierungskonzentration von nur 11,1 at.% bezogen auf die Anzahl der La<sup>3+</sup>-Plätze im Wirtsgitter. Hieraus ergäbe sich ein Einbaukoeffizient von nur etwa 0,74, der sogar noch unter dem für die 25 at.%-dotierte Probe ermittelten Wert von 0,81 liegt. Es kann nicht abschließend geklärt werden, ob es sich hierbei um ein Missverständnis in der Kommunikation mit dem Züchter des Kristalles handelte, oder ob es sich um eine tatsächlich vorhandene Variation des Einbaukoeffizienten bei unterschiedlichen Dotierungskonzentrationen und/oder Züchtungsbedingungen handelt. In jedem Falle ergibt sich aus diesem Resultat die Empfehlung, in eventuellen zukünftigen Experimenten mit diesem Material von jedem neuen Boule eine Analyse der Zusammensetzung vornehmen zu lassen.

Die für die spektroskopischen Untersuchungen präparierten Proben wurden keiner kristallographischen Orientierung unterzogen, sondern gemäß der Aussage der Züchter anhand der Züchtungsachse, die mit der optischen Hauptachse übereinstimmen soll, orientiert. In polarisierten Messungen an einem senkrecht zur c-Achse geschnittenen Kristall (c-cut) konnte tatsächlich bis auf geringfügige Variationen der durch die auf Sc<sup>3+</sup>-Plätzen sitzenden Yb<sup>3+</sup>-Ionen (vgl. die Tieftemperaturspektren in Abb. 5.16) verursachten Absorption um 900 nm kein signifikanter Unterschied in den beiden "Pseudo"- $\sigma$ -Spektren festgestellt werden. Diese in beiden verschieden dotierten Proben zu erkennenden geringfügigen Variationen werden darauf zurückgeführt, dass es durch den relativ deutlich von eins abweichenden Einbaukoeffizienten auf den Sc<sup>3+</sup>-Plätzen zu einer vergleichsweise starken Variation der Dichte von Yb<sup>3+</sup>-Ionen auf diesen Plätzen über das Kristallvolumen kommt. Die für die weiteren spektroskopischen Untersuchungen getätigte Annahme einer triklinen Struktur mit nur zwei sich voneinander unterscheidenden Spektren scheint nach diesen Messungen somit dennoch gerechtfertigt.

Im weiteren Vorgehen wurden die Spektren an Proben mit parallel zur optischen Achse orientierten Flächen vermessen, um Zugriff auf beide Polarisierungen zu erhalten. Auch die auf diesem Wege ermittelten  $\sigma$ -Spektren waren für beide Kristalle nahezu identisch mit den an c-cut-Proben ermittelten. Bei diesen Messungen betrug das Verhältnis der maximalen Absorption in beiden Polarisierungen etwa 1,95 zu 1 für den nominell 15 at.% dotierten Kristall, während dieses Verhältnis in früheren Veröffentlichungen [Joh04, Dur01] etwa 2,66 zu 1 betrug. Anhand dieser neuen Messergebnisse, die sich in wiederholten Messungen auch an Proben mit anderen Dotierungskonzentrationen reproduzieren ließen, muss also nicht nur der absolute Wert der in [Joh04] angegebenen Absorptionswirkungsquerschnitte in Frage gestellt werden, sondern auch das relative Verhältnis der Spektren in beiden Polarisierungen zueinander. Dies wird auch durch bereits früher durchgeführte Messungen von J. Romero bestätigt [Rom03].

Das in Abb. 5.14 zuoberst dargestellte endgültige Absorptionsspektrum von Yb:LSB weist eine sehr starke Anisotropie auf. Für Licht mit Orientierung des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}$

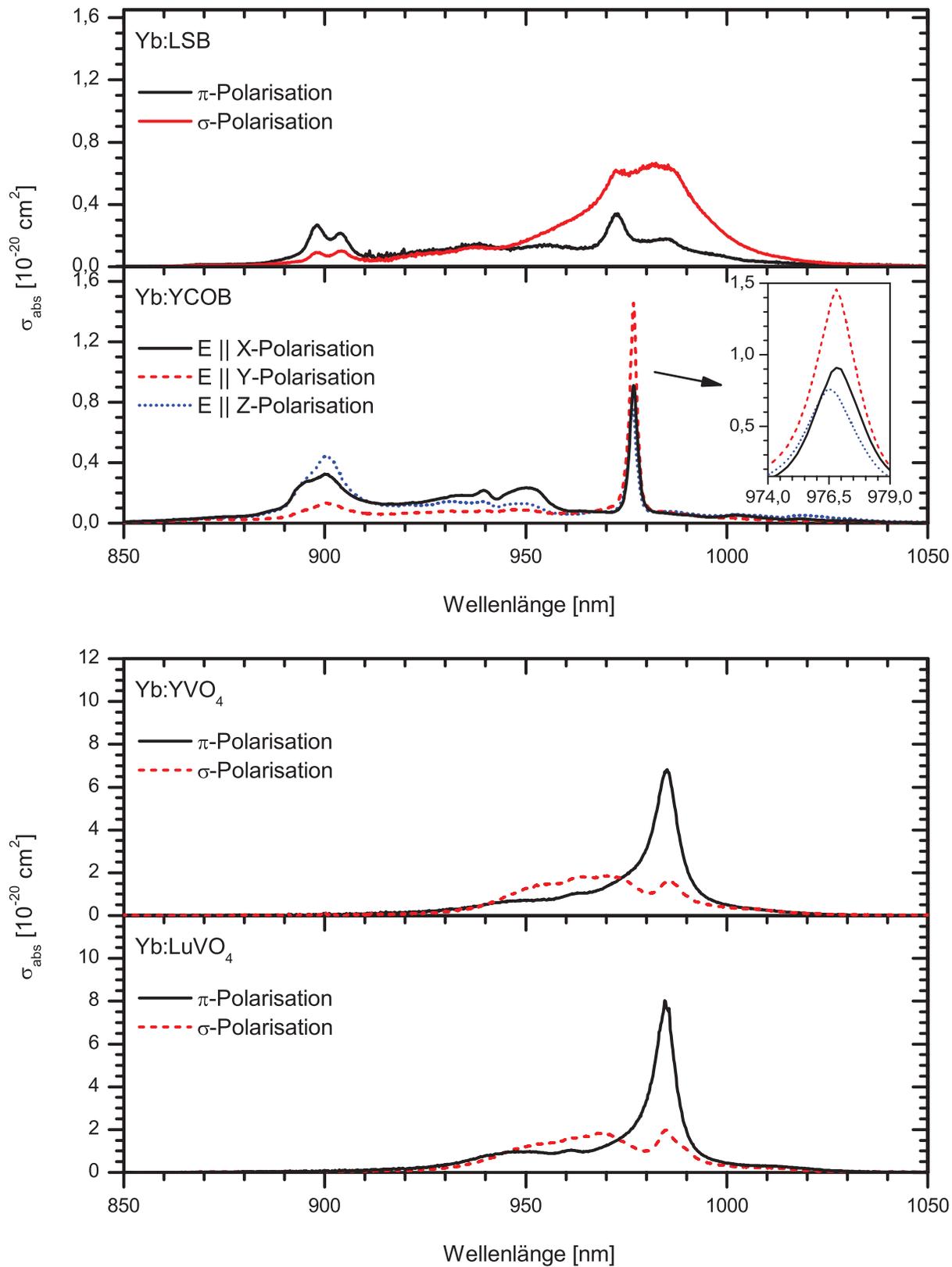
senkrecht zur optischen Achse des quasi-trigonalen Gitters ( $\sigma$ -Polarisation) beträgt der maximale Absorptionswirkungsquerschnitt  $0,66 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  im Bereich der Nullphononenlinie um 980 nm. Er ist damit beinahe doppelt so hoch wie für parallel zu dieser Achse orientiertes Licht ( $\pi$ -Polarisation), für welches der maximale Wirkungsquerschnitt  $0,34 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  beträgt. Im Bereich um 900 nm findet sich eine in beiden Polarisationen etwa gleichstark ausgeprägte Doppelstruktur, dazwischen erstreckt sich ein – besonders in  $\sigma$ -Polarisation – sehr breiter und kaum strukturierter spektraler Bereich geringerer Absorption.

Auffällig ist die mit mehr als 30 nm außerordentlich große spektrale Breite der Absorptionsbande in  $\sigma$ -Polarisation um die Nullphononenlinie herum, welche durch die relativ große energetische Differenz der Nullphononenlinien der drei spektroskopisch unterscheidbaren Plätze für das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion im Wirtsgitter verursacht wird. Durch diese breite Absorptionsbande ist Yb:LSB hervorragend geeignet für das effiziente Pumpen mit breitbandig emittierenden Laserdioden. Ebenfalls vorteilhaft für das Pumpen mit häufig nicht linear polarisierten fasergekoppelten Laserdioden ist die Tatsache, dass gerade die  $\sigma$ -Polarisation die höheren Wirkungsquerschnitte aufweist, denn für Lichteinfall parallel zur optischen Achse ist jedes Photon senkrecht zu dieser Achse polarisiert und damit den höheren Wirkungsquerschnitten ausgesetzt.

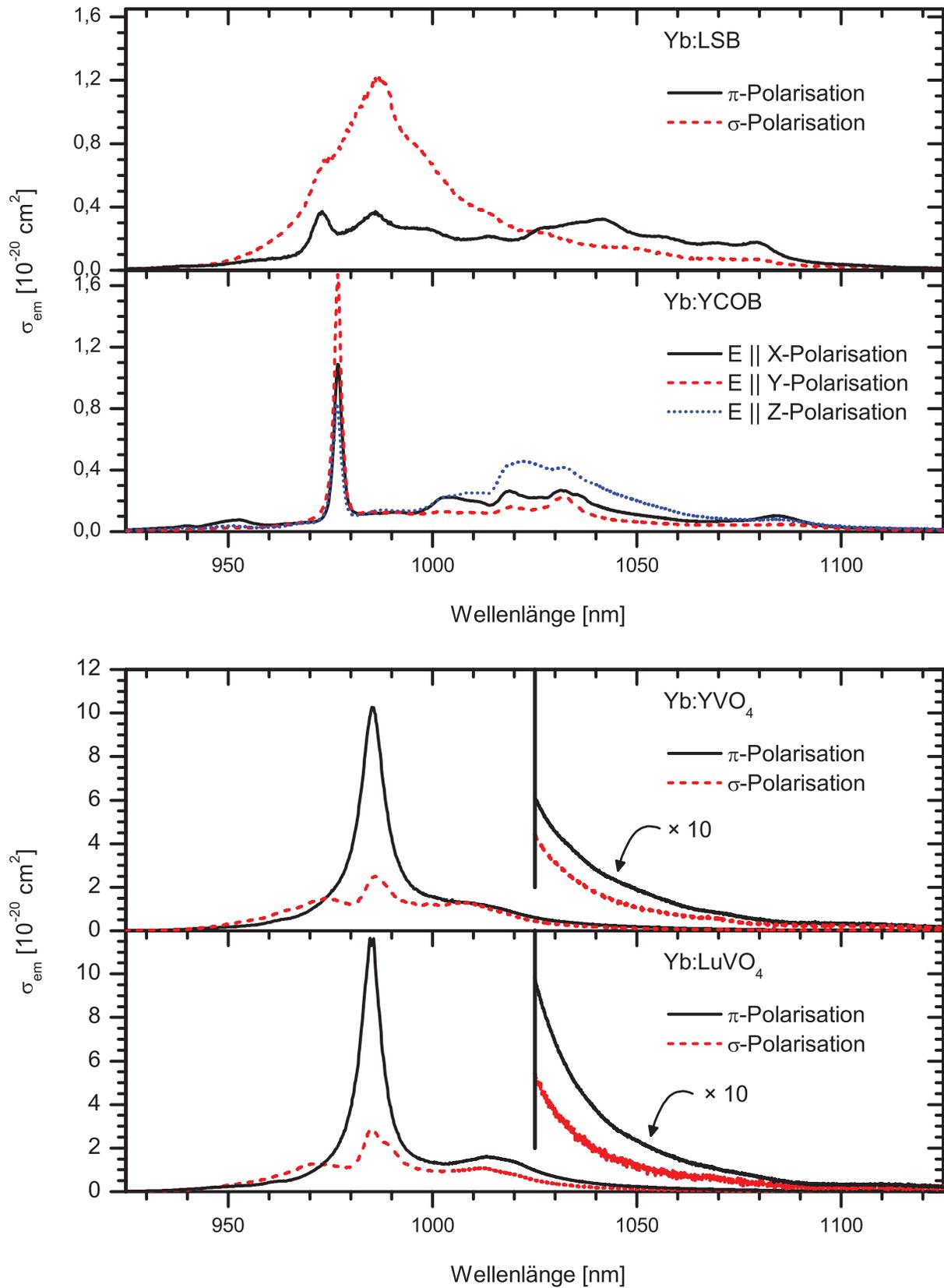
## Yb:YCOB

Trotz des leicht ungeordneten Gitters weist Yb:YCOB im Bereich der Nullphononenlinie nicht die erwartete inhomogene spektrale Verbreiterung der Absorption auf. Wie im vergrößerten Ausschnitt in Abb. 5.14 zu erkennen ist, ist die Breite dieser bei 976,6 nm gelegenen Bande im Gegenteil sogar noch geringer als die Breite der Nullphononenlinie in Yb:YAG (vgl. Anhang C) oder vielen anderen  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien mit geordnetem Gitter. Die Ursache hierfür ist in der sich nur um ca.  $16 \text{ cm}^{-1}$  (entsprechend ca. 1,5 nm) unterscheidenden Energie des Nullphononenlinien-Übergangs für die beiden spektroskopisch unterscheidbaren Plätze für das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion in YCOB zu finden (vgl. [Lup02] und Tab. 5.4). Die maximalen Absorptionswirkungsquerschnitte liegen in diesem Bereich mit  $1,46 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  am höchsten für Licht mit dem elektrischen Feldvektor  $\vec{E}$  parallel zur **Y**-Achse. Für die  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ -Polarisation hingegen ist der Wirkungsquerschnitt mit  $0,76 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  nur etwa halb so groß. Der Wirkungsquerschnitt für  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$  liegt mit  $0,91 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  zwischen diesen beiden Werten und ist mit dem von Yb:YAG (vgl. Anhang C) vergleichbar. Insgesamt konzentriert sich das Absorptionsvermögen von Yb:YCOB sehr stark auf die Nullphononenlinie: In  $\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$ -Polarisation ist die Absorption hier etwa zehnmal stärker als an jedem anderen Punkt des  ${}^2\text{F}_{7/2} \rightarrow {}^2\text{F}_{5/2}$ -Übergangs. Lediglich im Bereich um 900 nm findet sich wie in Yb:LSB eine weitere Absorptionsbande mit Doppelstruktur.

Die schmale Breite der Nullphononenlinie ist von Nachteil für das Pumpen mit Laserdioden, die ohne spezielle Maßnahmen zur Einengung der spektralen Breite meist eine Emission von einigen Nanometern Breite aufweisen. Aufgrund der im Vergleich mit den anderen untersuchten Materialien geringen Anisotropie der Wirkungsquerschnitte an der Nullphononenlinie liegt der effektive Absorptionswirkungsquerschnitt von Yb:YCOB dort auch für zirkular polarisiertes Licht in jedem Falle über dem von Yb:YAG (vgl. Anhang C).



**Abbildung 5.14:** Polarisationsabhängige Absorptionswirkungsquerschnitte der untersuchten Borate (oben) und Vanadate (unten). Zu beachten ist die unterschiedliche Skalierung der Ordinatenachse beider Graphen.



**Abbildung 5.15:** Polarisationsabhängige Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Borate (oben) und Vanadate (unten). In den Spektren der Vanadate sind die Emissionswirkungsquerschnitte zusätzlich in zehnfacher Vergrößerung dargestellt. Intervall und Skalierung der Ordinate sind identisch zur Darstellung der Absorptionswirkungsquerschnitte. Das Abszissenintervall ist jedoch um 75 nm rotverschoben.

## Ytterbium-dotierte Vanadate

### Yb:YVO

Das im oberen Graphen des unteren Teils von Abb. 5.14 dargestellte Absorptionsspektrum von Yb:YVO weist in  $\pi$ -Polarisation ein außerordentlich starkes Absorptionsmaximum von  $6,82 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  bei 985,2 nm auf. Die zugehörige Absorptionsbande hat eine spektrale Breite von 7,9 nm und stellt im Wesentlichen die einzige Struktur der Absorption in dieser Polarisation dar. Wie schon bei Dotierung mit  $\text{Nd}^{3+}$  beobachtet werden konnte [O’C66], sind auch bei  $\text{Yb}^{3+}$ -Dotierung die Wirkungsquerschnitte um beinahe eine Größenordnung höher als in YAG (vgl. Anhang C). In  $\sigma$ -Polarisation zeigt sich eine sehr breite und nur schwach strukturierte Bande um 970 nm mit deutlich schwächerer Absorption von maximal  $1,87 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ . Zusätzlich gibt es ein lokales Maximum im Bereich der Nullphononenlinie von  $1,62 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ .

Da die höhere Absorption in Yb:YVO in  $\pi$ -Polarisation zu beobachten ist, sind die effektiven Wirkungsquerschnitte für zirkular polarisiertes Licht in diesem Material niedriger, obwohl auch diese den Wert von Yb:YAG in jedem Falle noch deutlich übersteigen.

### Yb:LuVO

Das Absorptionsspektrum von Yb:LuVO ähnelt stark demjenigen von Yb:YVO. Im Vergleich zu den wenigen früheren Veröffentlichungen (z. B. [Liu05]) sind die im Rahmen dieser Arbeit für Yb:LuVO ermittelten Absorptionswirkungsquerschnitte um etwa 10% niedriger. Derartige Diskrepanzen werden häufig durch eine Überschätzung der eingebauten Dotierionenkonzentration verursacht, welche in diesen Messungen aufgrund einer sorgfältigen Analyse derselben [Ber] ausgeschlossen werden kann. Dennoch liegt der maximale Absorptionswirkungsquerschnitt in  $\pi$ -Polarisation mit  $8,03 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  bei 984,6 nm noch um etwa 20% über demjenigen von Yb:YVO. Dabei ist die im Vergleich etwas geringere Breite der zugehörigen Absorptionsbande von Yb:LuVO mit 5,8 nm immer noch ausreichend für effizientes Pumpen mit Laserdioden. In  $\sigma$ -Polarisation liegt der maximale Absorptionswirkungsquerschnitt von  $1,97 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  abweichend von Yb:YVO ebenfalls an der Nullphononenlinie. Die zweite, kurzwelligere und breitere Bande hat ihr Maximum von  $1,82 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  bei 969 nm.

### 5.3.3 Tieftemperaturspektroskopie

Im Emissionsspektrum von  $\text{Yb}^{3+}$  werden aufgrund der vierfachen Stark-Aufspaltung des unteren  $^2\text{F}_{7/2}$ -Multipletts genau vier durch elektronische Übergänge verursachte Linien erwartet. Diese markieren die Übergänge aus dem untersten Stark-Niveau des  $^2\text{F}_{5/2}$ -Multipletts, welches bei 10 K das einzig nennenswert besetzte Niveau des oberen Multipletts ist, in die vier Stark-Niveaus des unteren Multipletts. Umgekehrt sollten im Absorptionsspektrum bei tiefen Temperaturen drei elektronische Linien zu finden sein, die den Übergang aus dem untersten Stark-Niveau des unteren  $^2\text{F}_{7/2}$ -Multipletts in die drei Stark-Niveaus des oberen Multipletts markieren.

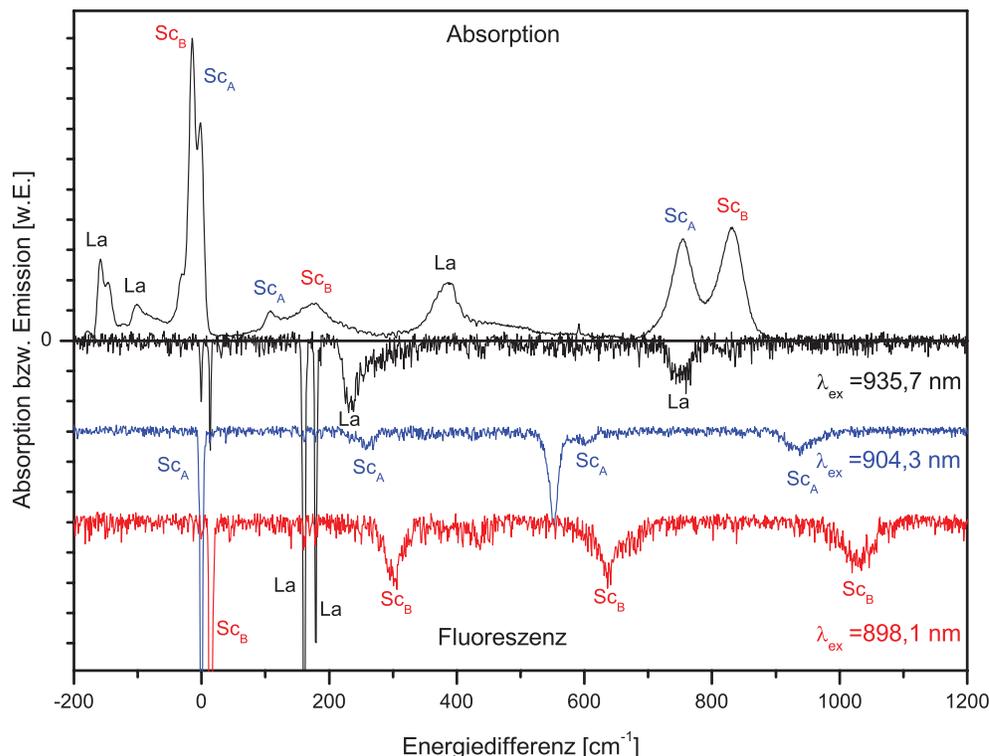
In realen Messungen findet sich jedoch in vielen Fällen eine wesentlich größere Anzahl von Linien und Strukturen. In den untersuchten Materialien ist dies hauptsächlich auf die teilweise ungeordnete Struktur und das Vorhandensein mehrerer Gitterplätze für das Dotierion zurückzuführen. Generell kann aber auch eine lokale Aufheizung, die bei den Fluoreszenz-Messungen

durch die Anregungsquelle und im Falle der Absorptions-Messungen durch die breitbandig emittierende Lichtquelle hervorgerufen wird, nicht komplett vermieden werden. Dies führt dazu, dass die tatsächlichen Temperaturen im vermessenen Bereich der Probe höher sind, als die vom Kryostaten angezeigten ca. 10 K. Bei höheren Temperaturen ist einerseits das Auftreten von phononischen Linien in den Spektren nicht vollständig unterbunden, andererseits führen die höheren Temperaturen dazu, dass – vor allem bei Materialien mit geringer Stark-Aufspaltung – aufgrund der thermischen Besetzung auch Absorption bzw. Emission aus den nächsthöheren Stark-Niveaus beobachtet werden kann. Aus den genannten Gründen ist die exakte Bestimmung der Stark-Aufspaltung, die für die Berechnung der Zustandssummen gemäß Glg. 2.31, die auch in der Reziprozitäts-Relation (Glg. 5.3) wiederzufinden ist und damit einen wichtigen Faktor zur Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte darstellt, keineswegs trivial. So kann trotz sorgfältiger Messung in vielen Fällen die exakte Lage der Stark-Niveaus nicht endgültig bestimmt werden. Da höher liegende Stark-Niveaus jedoch aufgrund ihrer auch bei Raumtemperatur niedrigen thermischen Besetzung nur einen geringen Einfluss auf die Zustandssummen haben, kann auch eine unvollständige Bestimmung der Lage der Stark-Niveaus durchaus hilfreich zur Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte sein. Umgekehrt können aber auch durch Einsetzen verschiedener Grenzwerte für die Fluoreszenzlebensdauer in die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung (Glg. 5.4) Maximal- und Minimalwerte für die Emissionswirkungsquerschnitte ermittelt werden, die über die Reziprozitäts-Relation zu einer Eingrenzung der Lage der Stark-Niveaus beitragen.

Um elektronische Übergänge von phononischen Übergängen unterscheiden zu können, wird häufig die Darstellung nach Buchanan [Buc67] (vgl. Abb. 5.18) gewählt. Hierbei wird zunächst die Energie der Nullphononenlinie von der Energieskala abgezogen, so dass die Größenordnung der Stark-Aufspaltung auf den ersten Blick abzulesen ist. Um nun die Identifikation der elektronischen Übergänge zu erleichtern, wird das Fluoreszenzspektrum außerdem um den neuen Ursprung punktgespiegelt. An die Nulllinie ankoppelnde Phononen liegen sich bei dieser Art der Auftragung gegenüber, während rein elektronische Linien nur im zugehörigen Spektrum erscheinen.

### Yb:LSB

In Abb. 5.16 sind die Tieftemperaturspektren von Yb:LSB nach Daten aus der Diplomarbeit von J. Johannsen [Joh04] in einer modifizierten Auftragung nach Buchanan dargestellt. Anhand der Tieftemperatur-Absorptionsspektren konnte die Lage der Nullphononenlinien der drei Gitterplätze für  $\text{Yb}^{3+}$  in Yb:LSB ermittelt werden. Platzselektive Fluoreszenzmessungen lieferten dann die Lage der Stark-Niveaus im  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Multiplett. Hier nicht dargestellte Anregungsmessungen ermöglichten die Zuordnung der Linien aus dem Absorptionsspektrum zu den verschiedenen Plätzen. Unter der Annahme, dass die beiden sehr ähnlich konfigurierten  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze auch eine ähnliche Stark-Aufspaltung erfahren, konnte anhand der Ähnlichkeit der beiden unteren Tieftemperatur-Fluoreszenzspektren in Abb. 5.16 eine weitere Zuordnung der Spektren zu den  $\text{La}^{3+}$ -Plätzen und den  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen erfolgen. Wie in Abschnitt 4.1.1 erläutert, werden unter Annahme eines identischen Einbaukoeffizienten doppelt so viele  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf den  $\text{Sc}_{\text{II}}^{3+}$ -Platz wie auf den  $\text{Sc}_{\text{I}}^{3+}$ -Platz eingebaut. Dennoch konnte auch anhand der Fluoreszenzintensität keine Zuordnung der Spektren zu den einzelnen  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen erfolgen. Deshalb sind die den  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätzen zugeordneten Spektren in Abb. 5.16 neutral mit  $\text{Sc}_A$  und  $\text{Sc}_B$  bezeichnet. Die ge-

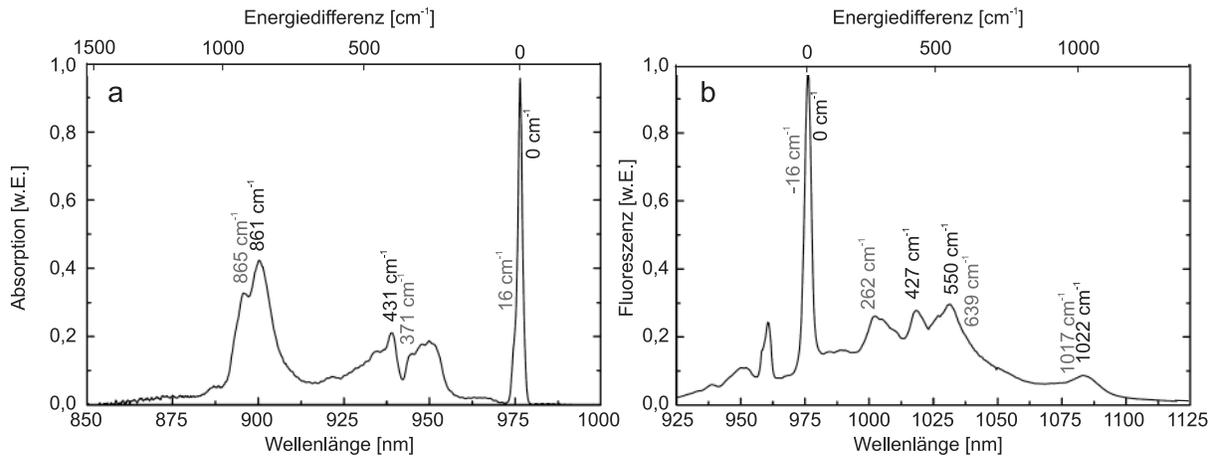


**Abbildung 5.16:**  $\pi$ -polarisiertes Absorptionsspektrum eines 25 at.%  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten LSB-Kristalles und platzselektiv angeregte  $\pi$ -polarisierte Fluoreszenzspektren eines 0,5 at.%  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten LSB-Kristalles bei kryogenen Temperaturen in der Darstellung nach Buchanan (Daten aus [Joh04]). Die Abszisse wurde normiert auf die Nullphononenlinie des  $\text{Sc}_A^{3+}$ -Platzes von  $10\,303\text{ cm}^{-1}$ .

neuen energetischen Lagen der ermittelten Stark-Niveaus für die drei unterschiedlichen Plätze und der resultierende Quotient der Zustandssummen sind Tab. 5.4 auf S. 98 zu entnehmen.

### Yb:YCOB

Da in der Literatur bereits intensive und präzise Untersuchungen zur Analyse der Lage der Stark-Niveaus in Yb:YCOB durchgeführt wurden, wurde in dieser Arbeit auf eine Aufnahme der Tieftemperaturspektren dieses Materials verzichtet. Die in Abb. 5.17 dargestellten Tieftemperaturspektren sind der Dissertation von P. A. Burns entnommen [Bur03]. Auch in diesen bei 12 K aufgenommenen Spektren weist Yb:YCOB noch sehr breite Banden auf. Zudem sind mehr Linien in den Spektren zu erkennen, als dies für einen Kristall mit nur einem Gitterplatz für das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion zu erwarten wäre. Der Grund hierfür ist in der teilweise ungeordneten Struktur dieses Materials zu finden, die einerseits zu einer inhomogenen Verbreiterung der Linien führt, zum anderen aber auch das Vorhandensein mehrerer Plätze für das Dotierion begünstigt, welche – ähnlich wie beim LSB – jeweils eine unterschiedliche Stark-Aufspaltung aufweisen. In dieser Abbildung kaum zu identifizieren, aber durch hochaufgelöste platzselektive Anregungsmessungen von Lupei et al. [Lup02] bewiesen, befinden sich somit in den Spektren in Abb. 5.17 die Linien der Übergänge zweier verschiedener  $\text{Yb}^{3+}$ -Plätze, die in der Abbildung mit 1 und 2 markiert sind. Lupei et al. schätzten die Verteilung der  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf die verschiedenen Plätze anhand der Signalintensitäten auf ein Verhältnis von 90% zu 10% zugunsten des Platzes 1 ab



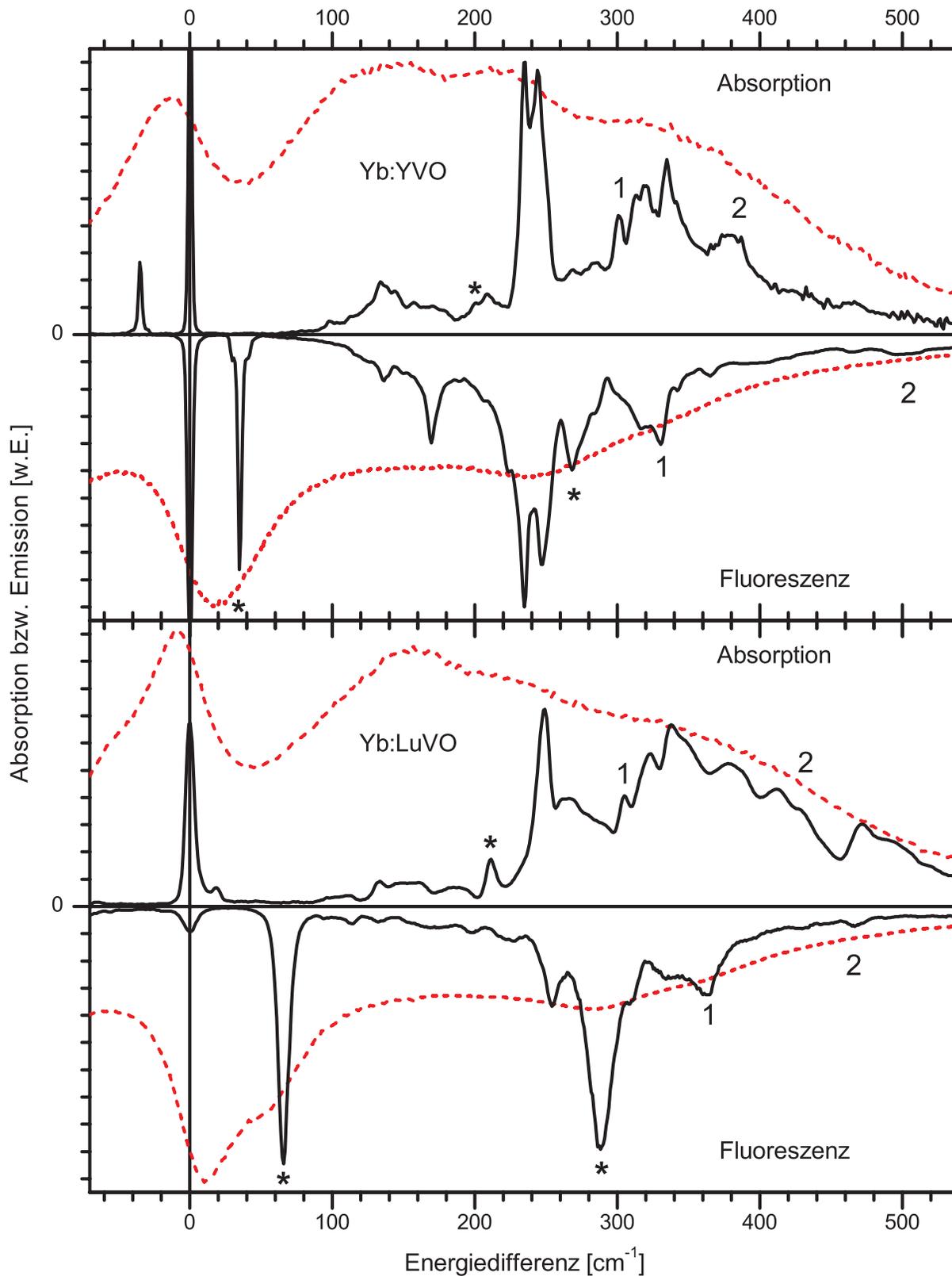
**Abbildung 5.17:** Unpolarisiertes Absorptions- (a) und Fluoreszenzspektrum (b) von Yb:YCOB bei kryogenen Temperaturen (modifizierte Darstellung nach [Bur03]). Die Wellenzahldifferenz zur Nulllinie markiert die den  $Y^{3+}$ -Plätzen zugeordneten Übergänge in schwarz und die den  $Ca^{3+}$ -Plätze zugeordneten in grau. Beim Vergleich mit anderen in dieser Arbeit dargestellten Tieftemperaturspektren ist auf die in dieser Abbildung abweichende invertierte Skalierung der Abszisse in Einheiten der Wellenlänge zu achten.

(vgl. auch Abb. 4.3). Die exakte Lage der einzelnen Stark-Niveaus beider Plätze in Einheiten der Wellenzahl sowie der sich nach Glg. 2.31 ergebende Quotient der Zustandssummen sind Tab. 5.4 auf S. 98 zu entnehmen.

### Yb:YVO und Yb:LuVO

Die nach den in Abschnitt 5.2.4 dargelegten Methoden ermittelten Absorptions- und Fluoreszenzspektren bei Temperaturen um 10 K sind in Abb. 5.18 in der oben erläuterten Auftragung nach Buchanan dargestellt. Es lassen sich viele gemeinsame Strukturen erkennen. Die Größenordnung der Stark-Aufspaltung beider Materialien beträgt sowohl in Absorption als auch in Fluoreszenz etwa  $500 \text{ cm}^{-1}$ . Aufgrund der engen Verwandtschaft dieser beiden Materialien haben schon die Raumtemperaturspektren in Abb. 5.14 auf S. 80 eine große Ähnlichkeit miteinander. So lässt sich vermuten, dass sowohl die Lage der Stark-Niveaus, als auch phononische Strukturen in beiden Materialien ähnliche Energien haben und sich damit aus der im Folgenden vorgenommenen gemeinsamen Auswertung der Tieftemperaturspektren für beide Materialien zusätzliche Rückschlüsse ziehen lassen. Unter Berücksichtigung der Auswertung der Tieftemperaturspektren von LuVO muss hierbei auch für YVO eine Neubewertung der in der Diplomarbeit des Autors [Krä04] bereits analysierten Tieftemperaturspektren erfolgen.

Aus der Berechnung der Emissionswirkungsquerschnitte nach der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung (Glg. 5.4) und dem Vergleich mit dem Absorptionsspektrum können bereits Grenzen für den Wert des Quotienten der Zustandssumme in der Reziprozitäts-Relation angenommen werden. Somit setzt die Kenntnis der Stark-Aufspaltung eines der beiden Stark-Multipletts auch für das andere Stark-Multiplett gewisse Grenzen für den Wert der Zustandssumme und damit die Lage der Stark-Niveaus, was deren Interpretation vereinfacht. Da die Fluoreszenzspektren – insbesondere für LuVO – relativ wenige zusätzliche Strukturen nicht elektronischen Ursprungs aufweisen, wurde zunächst mit deren Auswertung begonnen.



**Abbildung 5.18:** Unpolarisierte Fluoreszenz- und Absorptionsspektren von Yb:YVO (oben) und Yb:LuVO (unten) bei kryogenen Temperaturen in der Auftragung nach Buchanan [Buc67]. Die gestrichelt eingezeichneten  $\sigma$ -polarisierten Raumtemperaturspektren visualisieren den starken Einfluss der Temperatur auf die Spektren von Vanadaten. Eindeutig identifizierte elektronische Übergänge sind mit \* markiert, die zwei Alternativen für ein Ensemble von Linien, welches die jeweils höchsten Stark-Niveaus bezeichnet, sind mit 1 und 2 gekennzeichnet.

### Fluoreszenz: Stark-Aufspaltung des ${}^2F_{7/2}$ -Multipletts

Trotz ihrer – offensichtlich durch Reabsorption verursachten – ungewöhnlich geringen Intensität ist die Lage der Nullphononenlinie, die den Übergang auf das unterste Stark-Niveau des unteren Multipletts markiert, eindeutig zu identifizieren. Der energetische Abstand dieser beiden Niveaus beträgt in Yb:LuVO demnach  $10\,163\text{ cm}^{-1}$ , entsprechend einer Wellenlänge von 984,0 nm. Dies steht in guter Übereinstimmung mit dem Maximum des in Abb. 5.18 gestrichelt dargestellten Raumtemperaturspektrums. Der Grund für die dennoch vorhandene leichte Abweichung ist in dem geringen Abstand zum nächsten eindeutig zu identifizierenden elektronischen Übergang bei  $66\text{ cm}^{-1}$  zu finden. Beide Linien sind bei Raumtemperatur stark verbreitert und überlagern sich, so dass das Maximum der resultierenden Struktur zwischen diesen beiden Linien zu finden ist. Aufgrund des geringen energetischen Abstandes vom Grundzustand ist das Zielniveau dieser Fluoreszenz-Linie selbst bei sehr niedrigen Temperaturen noch schwach besetzt und verursacht auch im Absorptionsspektrum im selben Abstand links von der Nullphononenlinie eine sehr schwache, aber in Abb. 5.18 dennoch erkennbare Linie.

Ein ähnliches Bild zeigt sich im Tieftemperatur-Fluoreszenzspektrum von Yb:YVO. Auch hier ist die Nullphononenlinie eindeutig zu identifizieren; die Energie dieses Übergangs beträgt  $10\,160\text{ cm}^{-1}$  (entsprechend 984,2 nm). Eindeutig zu identifizieren ist außerdem ein weiterer elektronischer Übergang mit ebenfalls relativ geringem Abstand vom Grundzustand. Dieser Übergang bei  $35\text{ cm}^{-1}$  ist aus genannten Gründen ebenso im Absorptionsspektrum links von der Nullphononenlinie wiederzufinden.

Mit großer Wahrscheinlichkeit ist in LuVO nun der Übergang auf das nächsthöhere Stark-Niveau des unteren Multipletts bei  $288\text{ cm}^{-1}$  zu finden, denn die einzige energetisch niedriger liegende Struktur bei  $250\text{ cm}^{-1}$  taucht sowohl im Absorptionsspektrum auf, als auch in ähnlicher Form in den Spektren von Yb:YVO und wird daher für phononischen Ursprungs gehalten.

Aufgrund der getätigten Annahme einer vergleichbaren Aufspaltung des  ${}^2F_{7/2}$ -Multipletts für Yb:YVO und Yb:LuVO liegt der Schluss nahe, dass das Äquivalent dieses Übergangs in Yb:YVO in der Struktur bei  $268\text{ cm}^{-1}$  zu finden ist.

Unter der Voraussetzung, dass bis hierhin kein elektronischer Übergang übersehen wurde, hat die Lage des verbliebenen Stark-Niveaus auf die Ermittlung der Zustandssumme in Glg. 5.3 nur einen geringen Einfluss. Bei einem Gesamtwert von etwa 2,1 für die Zustandssumme<sup>3</sup> des unteren Multipletts in Yb:LuVO (Yb:YVO: 2,3) variiert der Beitrag des obersten Stark-Niveaus bei einer möglichen Lage zwischen  $300\text{ cm}^{-1}$  und  $500\text{ cm}^{-1}$  nur zwischen 0,24 und 0,09. Für das verbleibende Stark-Niveau kommen in LuVO zwei Linien bei  $364\text{ cm}^{-1}$  und  $466\text{ cm}^{-1}$  in Frage. Interessanterweise entsprechen die den beiden fraglichen Linien zugeordneten Energien genau den Grenzen der in den Laserexperimenten in Kapitel 6 beobachteten Wellenlängen im freilaufenden Betrieb von 1020 nm bzw. 1035 nm. In Yb:YVO finden sich die korrespondierenden Strukturen bei  $331\text{ cm}^{-1}$  bzw.  $497\text{ cm}^{-1}$ . Die energetisch weiter von der Nulllinie entfernten Strukturen sind in Abb. 5.18 mit 2 markiert, während die energetisch näher liegenden Linien mit 1 gekennzeichnet sind.

Da in beiden Materialien bereits effizienter Laserbetrieb mit niedrigen Schwellen und besonders bei Yb:LuVO relativ hohen Ausgangsleistungen (vgl. Abschnitt 4.3.2) erzielt wurde, ist nach den Ausführungen von DeLoach et al. [DeL93] zu vermuten, dass die Stark-Aufspaltung

<sup>3</sup>Da sich bei der Quotientenbildung der Faktor 2 für die Kramers-Entartung in Glg. 2.31 herauskürzt, wurde er bei der Angabe dieser und der folgenden Zustandssummen nicht berücksichtigt.

des  ${}^2F_{7/2}$ -Multipletts mehr als  $400\text{ cm}^{-1}$  beträgt, da ansonsten verstärkt Probleme durch eine thermische Besetzung der Stark-Niveaus auftreten würden. Hiernach müsste der verbleibende elektronische Übergang in beiden Materialien jeweils der in den Fluoreszenzspektren mit 2 bezeichnete Übergang größeren energetischen Abstandes von der Nulllinie sein.

### Absorption: Stark-Aufspaltung des ${}^2F_{5/2}$ -Multipletts

Unter Annahme der Richtigkeit der für die Auswertung der Tieftemperatur-Fluoreszenzspektren getätigten Überlegungen liegt die Zustandssumme  $Z_l$  des unteren Multipletts für Yb:LuVO bei 2,087 oder 2,184 bzw. für Yb:YVO bei 2,214 oder 2,296.

Im Abschnitt 5.3.4 werden mittels der Judd-Ofelt Theorie über die Oszillatorstärken die Lebensdauern von Yb:YVO und Yb:LuVO ermittelt. Diese Werte sind erfahrungsgemäß kürzer als die experimentell ermittelten Werte. Daher liefern sie bei Einsetzen in die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung eine Abschätzung für den maximalen Wert der Emissionswirkungsquerschnitte. Im Falle von YVO ergibt sich auf diese Weise ein dem Quotienten der Zustandssumme entsprechendes maximales Verhältnis der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{abs}/\sigma_{em}$  an der Nullphononenlinie von 1,74, für LuVO liegt dieser Wert bei 1,69. Umgekehrt ist davon auszugehen, dass tatsächlich gemessene Lebensdauern von  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien in der Regel eher durch Reabsorption verlängert sind, es ist somit nicht zu erwarten, dass Messwerte ermittelt werden, die kürzer als die tatsächliche intrinsische Lebensdauer sind. Einsetzen der kürzesten ermittelten Werte für die Fluoreszenzlebensdauern aus Abschnitt 5.3.1 liefert somit einen Mindestwert für  $\sigma_{abs}/\sigma_{em}$  bei  $\lambda_{ZL}$  von 1,31 für YVO und 1,24 für LuVO. Da an der Nullphononenlinie der Exponent der Exponentialfunktion in Glg. 5.3 Null ist, ist das Verhältnis  $\sigma_{abs}/\sigma_{em}$  der Wirkungsquerschnitte an dieser Stelle gleich dem Wert des Quotienten der Zustandssummen  $Z_l/Z_u$  in dieser Gleichung. Somit muss dieser Wert zwischen den beiden über die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung bestimmten Extrema liegen.

Mit Kenntnis der Grenzwerte für die Zustandssumme  $Z_l$  und das Verhältnis der Zustandssummen  $Z_l/Z_u$  lassen sich nun auch Grenzwerte für die Zustandssumme  $Z_u$  angeben. Für YVO ergibt sich ein Wert von 1,27 bis 1,75 für die Zustandssumme des oberen Laserniveaus, für LuVO sollte dieser Wert entsprechend zwischen 1,23 und 1,76 liegen. Aufgrund der neben der Nullphononenlinie nur zwei aufzufindenden Linien lässt sich damit die Lage dieser fehlenden Linien eingrenzen.

Zur Abschätzung der minimalen Aufspaltung zwischen dem untersten und dem nächsthöheren Stark-Niveau des oberen Multipletts kann zunächst die Annahme getätigt werden, dass die Aufspaltung insgesamt die in Abb. 5.18 dargestellten  $540\text{ cm}^{-1}$  nicht übersteigt und damit der Beitrag des obersten Stark-Niveaus zur Zustandssumme bei Raumtemperatur mindestens 0,075 betragen muss. Da das Grundniveau mit einem Wert von 1 in die Zustandssumme eingeht, muss der Beitrag des zweituntersten Stark-Niveaus unter 0,675 liegen, d. h. die Aufspaltung zwischen dem untersten und dem nächsthöheren Stark-Niveau des oberen Multipletts muss größer sein als  $81\text{ cm}^{-1}$ . Analoge Überlegungen ergeben für LuVO, dass das zweite Stark-Niveau mindestens  $79\text{ cm}^{-1}$  vom Grundzustand entfernt sein muss. Anhand dieser Überlegungen kann ein elektronischer Ursprung der Struktur bei  $19\text{ cm}^{-1}$  im Absorptionsspektrum von LuVO eindeutig ausgeschlossen werden. Möglicherweise handelt es sich hierbei um die Nullphononenlinie von  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf einem Gitterplatz anderer Symmetrie (vgl. Abschnitt 4.1.2). Die schwache Intensität dieser Struktur ließe auf eine nur geringe Anzahl von  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen in dieser Konfigu-

ration schließen, was ein Grund dafür sein kann, dass diese Linie in der Fluoreszenz nicht zu finden ist.

Um den maximalen energetischen Abstand zwischen den beiden untersten Stark-Niveaus des oberen Multipletts abzuschätzen, kann die von E. Antic-Fidancev vorgeschlagene Methode der Barycenter-Auftragung [Hau01] herangezogen werden. In dieser Auftragung wurden für unterschiedliche  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Materialien die Mittelwerte der energetischen Lage der Stark-Niveaus im  ${}^2\text{F}_{5/2}$ -Multiplett relativ zum Grundzustand gegen die des  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Multipletts aufgetragen. Es zeigt sich, dass die sich ergebenden Datenpunkte in guter Näherung auf einer Geraden mit der Geradengleichung

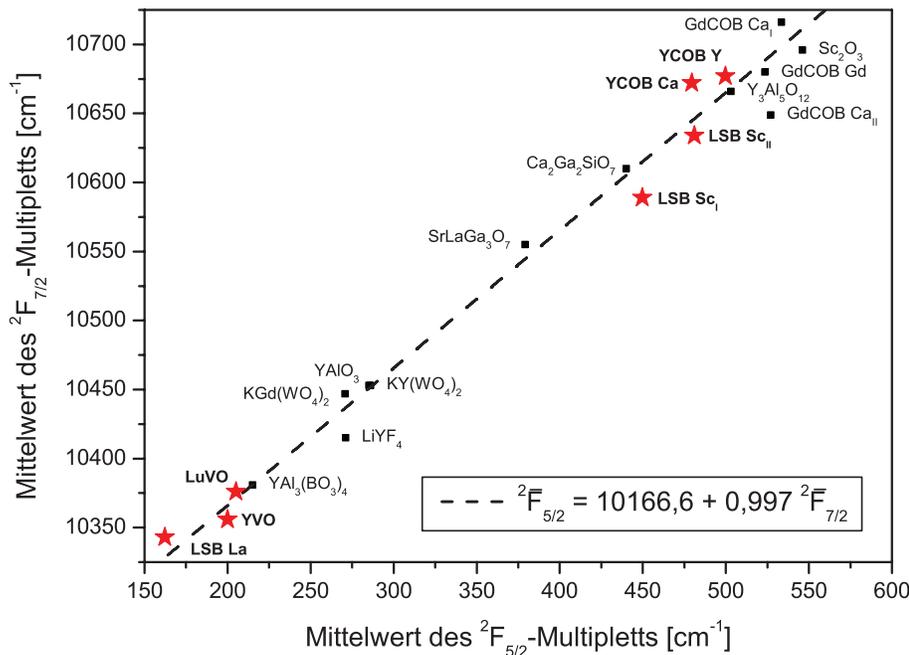
$${}^2\bar{F}_{5/2} = 10166,6 + 0,997 {}^2\bar{F}_{7/2} \quad (5.19)$$

liegen, worin  $\bar{F}$  für den Mittelwert der Lage aller Stark-Niveaus des jeweiligen Multipletts steht (vgl. Abb. 5.19). Diese Gleichung beruht auf der Annahme, dass die zusätzliche Aufspaltung der Stark-Niveaus durch das Kristallgitter in einer Form erfolgt, in welcher der Abstand der Mittelwerte fast konstant dem Abstand der Mittelwerte im freien Ion, der von E. Antic-Fidancev mit  $10\,166,6\text{ cm}^{-1}$  angegeben wird, bleibt.

Hieraus ergibt sich mit den bei der Auswertung der Tieftemperatur-Fluoreszenzspektren ermittelten Werten für die Lage der Stark-Niveaus im  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Multiplett, dass der Mittelwert der drei zu findenden Stark-Niveaus entweder nahe bei  $173\text{ cm}^{-1}$  oder  $198\text{ cm}^{-1}$  für YVO bzw.  $174\text{ cm}^{-1}$  oder  $216\text{ cm}^{-1}$  für LuVO liegen sollte. Da in die Ermittlung dieses Mittelwertes das untere Niveau mit Null eingeht, sollte die Summe der Abstände der beiden fehlenden Niveaus also  $518\text{ cm}^{-1}$  oder  $595\text{ cm}^{-1}$  für YVO bzw.  $523\text{ cm}^{-1}$  oder  $647\text{ cm}^{-1}$  für LuVO ergeben. Daraus folgt, dass das zweitunterste Niveau des oberen  ${}^2\text{F}_{5/2}$ -Multipletts nicht deutlich über etwa  $300\text{ cm}^{-1}$  für YVO bzw.  $325\text{ cm}^{-1}$  für LuVO liegen kann. Analog zur Aufspaltung des  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Multipletts wird zudem erwartet, dass die Niveaus in ihrer Lage in gewisser Form korrespondieren, d. h. in den Tieftemperaturspektren in Abb. 5.18 muss nach Linien gesucht werden, die zwischen ca.  $80\text{ cm}^{-1}$  und  $325\text{ cm}^{-1}$  vom Ursprung entfernt liegen und in beiden Spektren zu finden sind. Die Linie bei  $98\text{ cm}^{-1}$  in Yb:YVO, die in [Krä04] für elektronischen Ursprungs gehalten wurde, muss nach Vorliegen des Spektrums von Yb:LuVO anders bewertet werden, denn entsprechende Strukturen in Yb:LuVO finden ihr Gegenstück in den Fluoreszenzspektren und sind daher mit hoher Wahrscheinlichkeit phononischen Ursprungs. Gleiches gilt für alle weiteren Strukturen bis zu einem Abstand von  $200\text{ cm}^{-1}$  von der Nullphononenlinie.

Bei  $211\text{ cm}^{-1}$  findet sich im Absorptionsspektrum von Yb:LuVO eine Linie, die kein Gegenüber im Fluoreszenzspektrum hat. Im Yb:YVO Spektrum gibt es eine korrespondierende Doppelstruktur bei  $200\text{ cm}^{-1}$  und  $208\text{ cm}^{-1}$ . Die Linie bei  $208\text{ cm}^{-1}$  hat allerdings ein Gegenüber im Fluoreszenzspektrum, so dass die Linie bei  $200\text{ cm}^{-1}$  für elektronischen Ursprungs gehalten wird. Die bei dieser Betrachtung etwas geringere energetische Aufspaltung von Yb:YVO im Vergleich zu Yb:LuVO steht dabei in Übereinstimmung mit den schon für das  ${}^2\text{F}_{7/2}$ -Multiplett beobachteten Verhältnissen.

Um die Bedingung durch die Barycenter-Auftragung zu erfüllen, sollten die noch fehlenden Linien nun in Yb:YVO in etwa  $318\text{ cm}^{-1}$  oder  $395\text{ cm}^{-1}$  bzw. in Yb:LuVO in etwa  $312\text{ cm}^{-1}$  oder  $436\text{ cm}^{-1}$  Abstand von der Nullphononenlinie zu finden sein. Tatsächlich lassen sich sowohl bei  $300\text{ cm}^{-1}$  in Yb:YVO und  $305\text{ cm}^{-1}$  in Yb:LuVO (in Abb. 5.18 mit 1 gekennzeichnet), als auch bei  $389\text{ cm}^{-1}$  (Yb:YVO) und  $428\text{ cm}^{-1}$  (Yb:LuVO) (in Abb. 5.18 mit 2 gekennzeichnet) Linien finden, die diese Anforderungen erfüllen. Dabei erfüllen die jeweils niedrigeren



**Abbildung 5.19:** Auftragung der Mittelwerte der energetischen Lage der Stark-Niveaus des unteren  $^2F_{7/2}$ -Multipletts gegen die des oberen  $^2F_{5/2}$ -Multipletts (Barycenter-Auftragung) für einige  $Yb^{3+}$ -dotierte Laserkristalle (Daten aus [Hau01]). Mit fetter Schrift und  $\star$  sind die in dieser Arbeit untersuchten Materialien hervorgehoben.

Werte die Barycenter-Gleichung genau dann, wenn auch in den Fluoreszenzspektren der niedrigeren der beiden in Frage kommenden Werte gewählt wird und umgekehrt. So ergeben sich zwei Ensembles von Linien, die die Lage des jeweils höchsten Stark-Niveaus in beiden Multipletts in Yb:YVO und Yb:LuVO markieren könnten.

Für YVO ergibt sich für den Quotienten der Zustandssumme mit beiden Ensembles ein nahezu identischer Wert von 1,44, während sich für LuVO mit Ensemble 1 ein  $Z_l/Z_u$  von 1,35 ergibt und für Ensemble 2 ein Wert von 1,40.

Um mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung (Glg. 5.4) auf die entsprechenden Verhältnisse von Emissions- zu Absorptionsspektren zu kommen, muss für YVO eine Lebensdauer von 257  $\mu s$  eingesetzt werden. Für LuVO beträgt dieser Wert für Ensemble 1 ebenfalls 257  $\mu s$ , für Ensemble 2 beträgt der entsprechende Wert hingegen 248  $\mu s$ . Da in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Lebensdaueremessungen (vgl. Abschnitt 5.3.1) und auch bei der Bestimmung der Lebensdauer nach der Oszillator-Methode aus der Judd-Ofelt-Theorie tendenziell die niedrigeren Lebensdauern für Yb:LuVO ermittelt wurden, ist dies neben der guten Lasertätigkeit beider Materialien ein weiterer Hinweis auf die Alternative der größeren Stark-Aufspaltung, die durch Ensemble 2 gegeben wäre. Daher wird Ensemble 2 für das wahrscheinlichere gehalten und auch die in Abb. 5.19 eingefügten Datenpunkte für Yb:YVO und Yb:LuVO beziehen sich darauf.

### Fazit der spektroskopischen Untersuchungen bei tiefen Temperaturen

Die ermittelten Aufspaltungen der beiden Stark-Multipletts für alle untersuchten Materialien und Plätze fügen sich passend in die Auftragung der Mittelwerte der Lage der Stark-Niveaus des

unteren  ${}^2F_{7/2}$ -Multipletts gegen die des oberen  ${}^2F_{5/2}$ -Multipletts gemäß [Hau01] in Abb. 5.19. Da jedoch sowohl für die Auswertung der Vanadat-Spektren als auch von Lupei et al. für Yb:YCOB dieser Zusammenhang bereits als Hilfsmittel herangezogen wurde, ist die gute Übereinstimmung in diesen Fällen nicht überraschend.

### 5.3.4 Emissionswirkungsquerschnitte

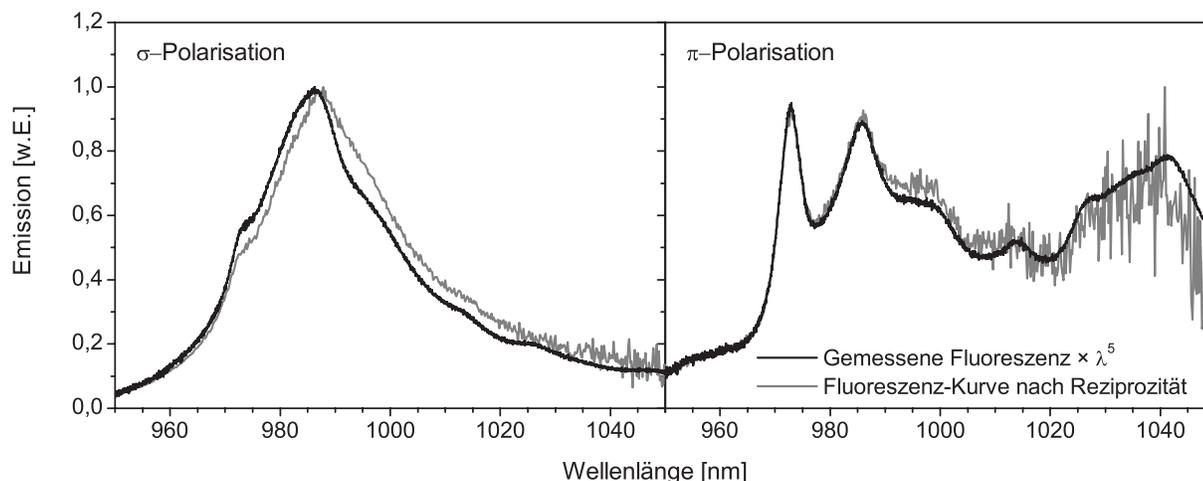
Mithilfe der in den Tieftemperaturuntersuchungen im vorherigen Abschnitt ermittelten Lage der Stark-Niveaus wurde für die verschiedenen Materialien der – Tab. 5.4 zu entnehmende – Quotient der Zustandssummen ermittelt. Mit diesen Daten wurden nach der im Abschnitt 5.2.1 beschriebenen Vorgehensweise die Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien ermittelt.

#### Borate

Für beide in dieser Arbeit untersuchten Borate gilt die Reziprozitäts-Relation aufgrund des Vorhandenseins mehrerer Gitterplätze für das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion nicht oder nur mit Einschränkungen. In Yb:YCOB werden nur geringe Abweichungen erwartet, da der  $\text{Ca}^{3+}$ -Platz nur von etwa 10% aller Dotierionen besetzt wird und die  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf beiden Plätzen eine sehr ähnliche Energie des Nullphononenübergangs aufweisen. Für Yb:LSB hingegen kann aufgrund der näherungsweise stöchiometrischen Verteilung auf die drei Gitterplätze mit bei tiefen Temperaturen energetisch um etwa  $160\text{ cm}^{-1}$  auseinander liegenden Nullphononenlinien durch Anwendung dieser Methode zunächst kein zuverlässiges Resultat erwartet werden.

#### Yb:LSB

Der Vergleich der mit  $\lambda^5$  multiplizierten Fluoreszenzspektren mit den über die Reziprozitäts-Relation gewonnenen Spektren ist in Abb. 5.20 für eine 25 at.%  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten LSB-Probe dargestellt. Die Fluoreszenzspektren wurden durch Anregung bei etwa 900 nm gewonnen und unterscheiden sich nicht von Spektren, welche bei Nullphononenlinienanregung aufgenommen wurden. Trotz der drei unterschiedlichen spektroskopischen Plätze und der damit nicht mehr zu rechtfertigenden Gültigkeit der Reziprozität zeigt sich besonders in  $\pi$ -Polarisation eine erstaunlich gute Übereinstimmung der spektralen Form beider Spektren. Daher wurde auch für dieses Material die in Abschnitt 5.2.1 beschriebene Methode der Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte angewandt. Der für die Bestimmung der absoluten Wirkungsquerschnitte benötigte Quotient der Zustandssummen wurde als gewichteter Mittelwert über die Quotienten der Zustandssummen der drei spektroskopischen Plätze ermittelt. Die Gewichtung erfolgte dabei über die prozentuale Verteilung der  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf die  $\text{La}^{3+}$ - und  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze im Wirtsgitter, die aus der Mikrosondenanalyse [Hei] bekannt ist. Da von den drei unterscheidbaren Tieftemperspektren nur dem  $\text{La}^{3+}$ -Platz eines eindeutig zugeordnet werden konnte, während eine eindeutige Zuordnung der anderen Spektren zum  $\text{Sc}_I^{3+}$  und dem doppelt so häufig im Gitter vorkommenden  $\text{Sc}_{II}^{3+}$  nicht erfolgen konnte, wurde von einer Gleichverteilung von  $\text{Yb}^{3+}$  auf beide  $\text{Sc}^{3+}$ -Plätze ausgegangen. Aufgrund der sehr ähnlichen Quotienten der Zustandssummen der beiden Plätze beträgt der aus dieser Annahme entstehende Fehler nur etwa 3%.



**Abbildung 5.20:** Vergleich der mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Emissionsspektren mit den tatsächlich gemessenen und mit  $\lambda^5$  multiplizierten Emissionsspektren für beide Polarisierungen von Yb:LSB.

Um die mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Wirkungsquerschnitte auch mit der Füchtbauer-Ladenburg-Methode zu erreichen, musste eine Lebensdauer von 0,95 ms verwendet werden.

Wie auch das Absorptionsspektrum weist das in Abb. 5.15 auf S. 81 dargestellte Emissionsspektrum von Yb:LSB eine starke Anisotropie zwischen den beiden Polarisierungen auf. Das Maximum der Emission von  $1,22 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  ist in  $\sigma$ -Polarisation bei 986,5 nm zu finden. In den Bereichen möglicher Lasertätigkeit überwiegt die Emission im  $\pi$ -polarisierten Spektrum, welches über einen sehr weiten Wellenlängenbereich zwischen 1000 nm und ca. 1080 nm eine sehr breite und vergleichsweise wenig strukturierte Emissionsbande mit Wirkungsquerschnitten von etwa  $0,25 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  aufweist.

### Yb:YCOB

Aufgrund des möglichen Einbaus von  $\text{Yb}^{3+}$  auf die  $\text{Ca}^{2+}$ -Plätze ist auch in diesem Material eine geringere Genauigkeit der Reziprozitäts-Relation zu erwarten. Da jedoch nur etwa 10% der  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen auf diesem Platz eingebaut werden und zusätzlich der Unterschied zwischen den Zustandssummen dieser beiden Plätze nur etwa 8% beträgt, ist der entstehende Fehler hinnehmbar gegenüber den bekannten anderen Fehlerquellen dieser Methode. Erwartungsgemäß ergab sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den errechneten und den experimentell bestimmten und mit  $\lambda^5$  multiplizierten Fluoreszenzspektren, welche ebenfalls unter Anregung um 900 nm aufgenommen wurden. Um die Ergebnisse der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung mit denen der Reziprozitäts-Relation in Einklang zu bringen, musste für die Lebensdauer ein Wert von 2,13 ms eingesetzt werden. Dieser Wert steht in erstaunlich guter Übereinstimmung zu der experimentell ermittelten Lebensdauer von 2,20 ms; die in Abb. 5.15 auf S. 81 dargestellten ermittelten Emissionswirkungsquerschnitte können damit als vergleichsweise genau angesehen werden.

Auffällig an diesem Spektrum ist die geringe Überschneidung mit dem auf der gegenüberliegenden Seite eingezeichneten Absorptionsspektrum: Bis auf den schmalen Bereich der Nullphononenlinie gibt es keine Bereiche größeren Überlapps von Absorption und Emission. In Verbind-

dung mit den langen Lebensdauern dieses Materials lässt sich hieraus auf besonders niedrige Schwellen für den Laserbetrieb schließen. Das Maximum der Emission von  $1,61 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  findet sich in  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ -Polarisation bei 976,6 nm. Der Bereich möglicher Lasertätigkeit erstreckt sich von ca. 1000 nm bis 1070 nm, wobei auch die in  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ -Polarisation am stärksten ausgeprägte Bande um 1085 nm hierfür geeignet scheint. Die Wirkungsquerschnitte in diesem Bereich betragen bis zu  $0,45 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ .

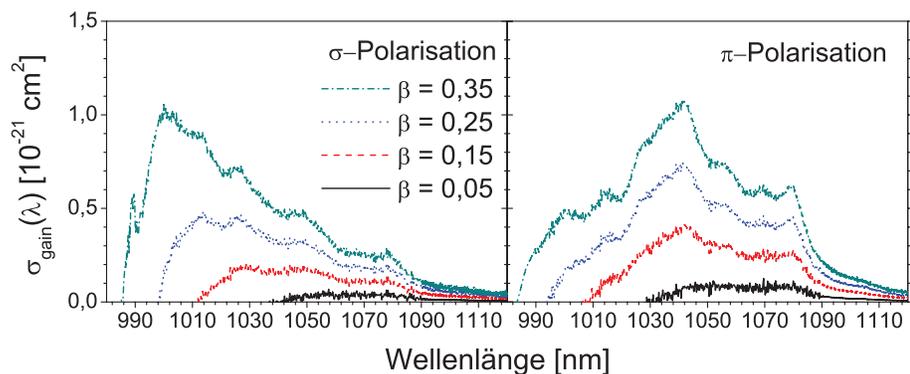
### Vanadate

Wegen der außerordentlich hohen Absorptionswirkungsquerschnitte der  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Vanadate sind die experimentell ermittelten Fluoreszenzspektren dieser Materialien selbst bei der Messung an dünnen Proben sehr stark durch Reabsorption verfälscht. Dieser Effekt zeigte sich bereits bei der Ermittlung der Lebensdauern, wo er zu einer sehr starken Verlängerung der an Volumen-Kristallen gemessenen Fluoreszenzlebensdauer führte. Besonders im Bereich der Nullphononenlinie in  $\pi$ -Polarisation beträgt trotz sorgfältiger Messung und der vergleichsweise geringen Dotierung von etwa 1,5 at.% die Verfälschung des Spektrums in beiden Materialien mehr als 50% gegenüber der mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Kurvenform. Da es aufgrund der hohen Anisotropie der Brechzahlen außerdem in den polarisierten Absorptionsmessungen selbst bei sehr geringen Abweichungen der Polarisation des einfallenden Lichtes von den kristallographischen Achsen schon zu Oszillationen in der transmittierten Intensität kommt, welche durch den exponentiellen Zusammenhang in der Reziprozitäts-Relation überproportional verstärkt werden, wurde das Emissionsspektrum in  $\sigma$ -Polarisation wie in Abschnitt 5.2.1 beschrieben ermittelt und das  $\pi$ -Spektrum mittels Glg. 5.5 daraus bestimmt. Die Fluoreszenzspektren wurden für beide Materialien unter Anregung bei etwa 950 nm aufgenommen.

### Yb:YVO

Um im Falle von Yb:YVO mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung die mit der Reziprozitäts-Relation ermittelten Emissionswirkungsquerschnitte zu erhalten, muss eine Lebensdauer von 261  $\mu\text{s}$  eingesetzt werden. Dieser Wert steht in vernünftiger Übereinstimmung mit dem bei den Lebensdaueremessungen ermittelten Wert von etwa 300  $\mu\text{s}$  für eine Probe gleicher Dotierung.

Die im unteren Teil von Abb. 5.15 auf S. 81 zu findenden Emissionswirkungsquerschnittspektren von Yb:YVO weisen aufgrund der geringen Stark-Aufspaltung einen außergewöhnlich großen Überschneidungsbereich zu den Absorptionswirkungsquerschnitten auf. Der Wellenlängenbereich maximaler Emission um 985 nm mit ungewöhnlich hohen Wirkungsquerschnitten von  $10,2 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  in  $\pi$ -Polarisation ist daher kaum der Lasertätigkeit zugänglich. Auch wenn es auf den ersten Blick scheint, als ob das Emissions-Spektrum von Yb:YVO relativ schmal sei, ist bei dieser Beurteilung die Skalierung der Ordinatenachse zu berücksichtigen. Ab einer Wellenlänge von 1025 nm – dem typischen Bereich möglicher Lasertätigkeit von  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Systemen – wurden daher in Abb. 5.15 auf S. 81 die Emissionswirkungsquerschnitte noch einmal um einen Faktor von zehn vergrößert dargestellt und damit die Ordinaten-Skalierung in dieselbe Größenordnung gebracht wie im Falle der darüber gezeigten Borate. Man sieht, dass in Yb:YVO durchaus noch bis zu einer Wellenlänge von 1070 nm oder sogar bis zu 1080 nm Emissionswirkungsquerschnitte existieren, die in der Größenordnung derer der Borate liegen und diese bei 1020 nm mit etwa  $0,5 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  sogar übersteigen. Insgesamt ist



**Abbildung 5.21:** Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:LSB für beide Polarisationen unter Annahme verschiedener Inversionen  $\beta$ .

das Spektrum sehr glatt und unstrukturiert.

### Yb:LuVO

Die für die Berechnung der in Abb. 5.15 auf S. 81 gezeigten Emissionswirkungsquerschnitte nötige Lebensdauer von 252  $\mu\text{s}$  steht etwa im selben vernünftigen Verhältnis zu den experimentell ermittelten Werten wie im Falle von Yb:YVO.

Die Emissionswirkungsquerschnitte von Yb:LuVO weisen eine sehr große Ähnlichkeit zu denen von Yb:YVO auf. Im Maximum sind sie mit  $11,3 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  etwas höher als im Falle von Yb:YVO und die Schulter im Bereich von 1015 nm ist geringfügig deutlicher ausgeprägt. Auch hier ist das Spektrum ab 1025 nm noch einmal in zehnfacher Vergrößerung dargestellt. Hieran ist zu erkennen, dass die Wirkungsquerschnitte von Yb:LuVO in den Bereichen möglicher Lasertätigkeit deutlich über denen von Yb:YVO liegen und einen Wert von  $0,7 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$  erreichen.

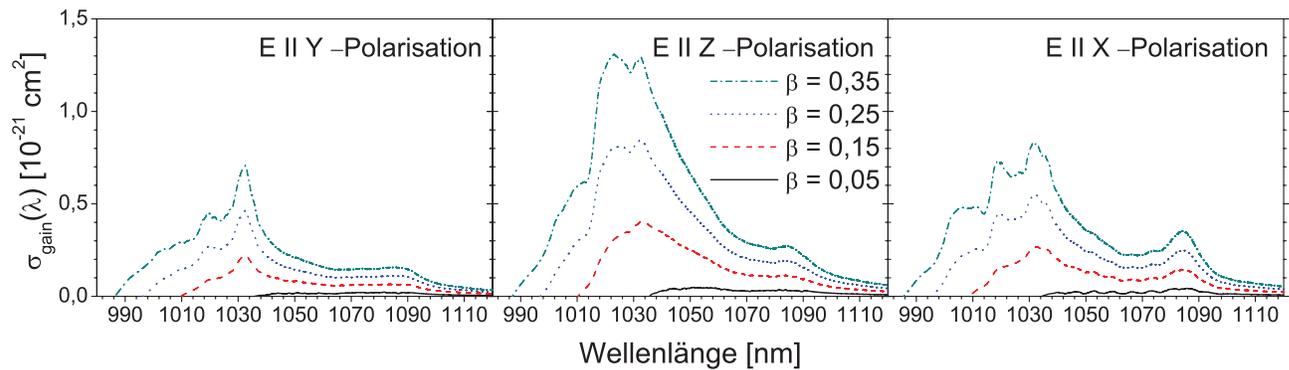
### 5.3.5 Verstärkungswirkungsquerschnitte

Anhand der bisher ermittelten spektroskopischen Parameter und für den Scheibenlaser typischer Auskoppelverluste von 1% bei internen Verlusten von unter 0,1% lassen sich für Kristalllängen von einigen 100  $\mu\text{m}$  für die untersuchten Materialien mit Glg. 5.8 notwendige Inversionen für den Laserbetrieb von etwa  $\beta = 0,08$  bis  $\beta = 0,32$  ermitteln. Wie sich anhand der Wirkungsquerschnittsspektren bereits abzeichnete, ist die notwendige Inversion für die Vanadate aufgrund der vergleichsweise hohen Reabsorption im Bereich möglicher Laserwellenlängen höher als für die Borate. Im Folgenden wurden die Wirkungsquerschnitte für alle Materialien bei denselben Inversionsraten nach Glg. 5.7 berechnet, um einen direkten Vergleich zwischen diesen Materialien zu ermöglichen.

### Borate

#### Yb:LSB

An den in Abb. 5.21 dargestellten polarisierten Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:LSB zeigt sich, dass im untersuchten Bereich der Inversion die absoluten Werte der



**Abbildung 5.22:** Polarisierte Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:YCOB unter Annahme verschiedener Inversionen  $\beta$ .

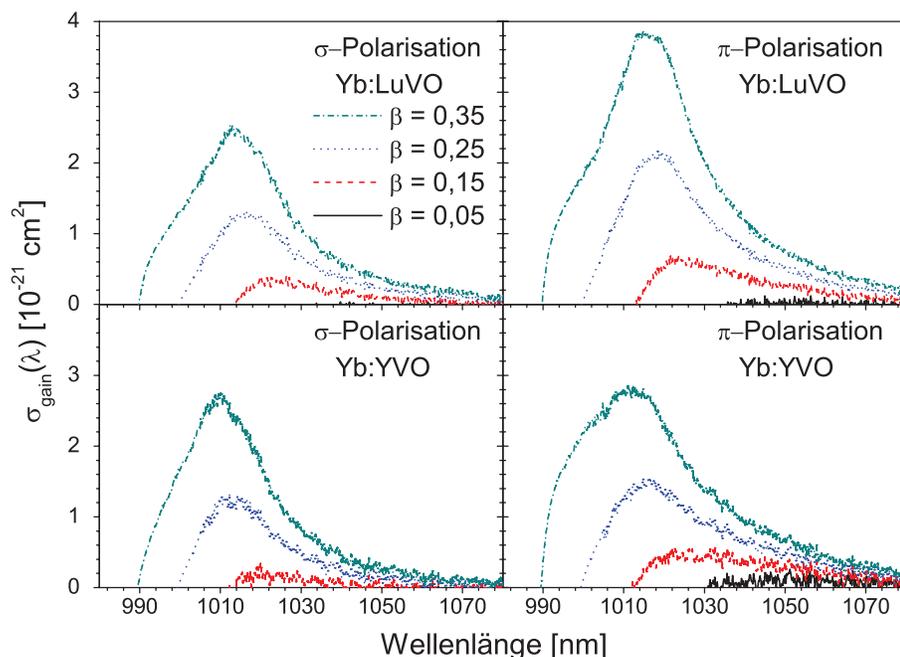
Verstärkung in  $\pi$ -Polarisation überwiegen. Lasertätigkeit wäre im freilaufenden Betrieb daher zunächst in dieser Polarisation zu erwarten. Für kleine Inversionsraten wird die höchste Verstärkung im Wellenlängenbereich zwischen 1050 nm und 1080 nm erzielt. Das Verstärkungsspektrum ist in diesem Wellenlängenbereich sehr homogen und unstrukturiert, so dass davon ausgegangen werden kann, dass im Mehrmodenbetrieb Moden mit sehr unterschiedlichen Wellenlängen gleichzeitig verstärkt werden, obwohl das Maximum bei etwa 1080 nm zu finden ist. Für größere Inversionen – die im Laserbetrieb bei Erhöhung des Auskoppelgrades benötigt werden, um die Schwelle für Laserbetrieb zu erreichen – verschiebt sich das Maximum der Verstärkung auf den Wellenlängenbereich um 1040 nm. In  $\sigma$ -Polarisation wird Verstärkung ebenfalls zuerst zwischen ca. 1050 nm und 1080 nm erzielt.

Mit zunehmenden Resonatorverlusten verschiebt sich die Wellenlänge der höchsten Verstärkung wie im  $\pi$ -Spektrum in den kurzwelligeren Bereich und hat bei einer Inversion von  $\beta = 0,35$  ihr Maximum bei für Yb<sup>3+</sup>-dotierte Systeme ungewöhnlich kurzwelligen 1003 nm. Insgesamt sind die absoluten Verstärkungswirkungsquerschnitte für Yb:LSB bei den angenommenen Inversionsraten von allen untersuchten Systemen die niedrigsten und überschreiten für realistische Inversionsraten  $1,06 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$  nicht. Daher wird ein empfindlich auf Verluste reagierender Laserbetrieb erwartet. Die Verstärkung wird jedoch bereits bei niedrigeren Inversionen erreicht als bei den Vanadaten, es dürften also niedrigere Pumpleistungen für das Einsetzen des Laserbetriebs notwendig sein. Die Verstärkung erstreckt sich über einen sehr weiten Bereich, so dass im spektral durchstimmbaren Betrieb Lasertätigkeit über einen Wellenlängenbereich von über 100 nm zwischen 990 nm und über 1100 nm erwartet werden darf. Erlaubt die Art der Wellenlängenselektion einen in der Auswahl der Polarisation freien Laserbetrieb<sup>4</sup>, so ist bei einer Wellenlänge von ca. 1025 nm ein Wechsel der Polarisation der Laseremission zu erwarten.

## Yb:YCOB

In den in Abb. 5.22 dargestellten Spektren der Verstärkung parallel zu den drei spektroskopischen Achsen von Yb:YCOB zeigt sich, dass für dieses Material bereits bei sehr geringen Inversionen in allen drei Orientierungen Verstärkung zwischen 1040 nm und 1090 nm erzielt

<sup>4</sup>Dies ist beim Durchstimmen mit einem doppelbrechenden Filter nicht gegeben, wohl aber z. B. bei Wellenlängenselektion mittels eines geeigneten Auskoppelspiegels.



**Abbildung 5.23:** Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:LuVO und Yb:YVO für jeweils beide Polarisationen unter Annahme verschiedener Inversionen  $\beta$ . In  $\sigma$ -Polarisation wird bei  $\beta = 0,05$  keine Verstärkung erreicht, daher sind die entsprechenden Kurven in beiden  $\sigma$ -Spektren nicht vertreten.

werden kann. Die höchsten Wirkungsquerschnitte erfährt dabei Licht, welches parallel zur  $\mathbf{Z}$ -Achse polarisiert ist. Dieses Spektrum weist auch den am wenigsten strukturierten Verlauf auf. Für höhere Inversionen verschiebt sich das Maximum von 1050 nm über 1030 nm bis 1020 nm in den kurzwelligeren Bereich und erreicht einen Wert von bis zu  $1,3 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ . Für Kristalle, die zum Zwecke maximaler Absorption senkrecht zur  $\mathbf{Z}$ -Achse geschnitten sind, ist die Verstärkung in  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ -Polarisation am höchsten, mit einem Verlauf der Wellenlänge maximaler Verstärkung ähnlich wie in  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ -Polarisation. Die Bandbreite möglicher Verstärkung bei den hier dargestellten Inversionen ist vergleichbar mit der im Falle von Yb:LSB und beträgt über 100 nm. Im Bereich von über 1090 nm ist die Verstärkung für die  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ -Polarisation am höchsten, so dass der größere spektrale Durchstimmbereich möglicherweise in dieser Polarisation zu erzielen ist.

## Vanadate

Aufgrund der großen Ähnlichkeit von Absorptions- und Emissionsspektren von Yb:YVO und Yb:LuVO kann die Ähnlichkeit der Verstärkungswirkungsquerschnitte nicht überraschen. Diese Spektren wurden daher zur besseren Vergleichbarkeit gemeinsam in einem Diagramm in Abb. 5.23 dargestellt. In beiden Materialien überwiegt die Verstärkung in  $\pi$ -Polarisation gegenüber derjenigen in  $\sigma$ -Polarisation. Bei der geringsten dargestellten Inversion von  $\beta = 0,05$  ist besonders für Yb:LuVO kaum Verstärkung zu erkennen. Es kann also für diese Materialien verglichen mit den Boraten mit erhöhten Pumpleistungsschwellen für den Laserbetrieb gerechnet werden. Aufgrund der sehr glatten und unstrukturierten Absorptions- und Emissionsspektren verschiebt sich das Maximum der Verstärkung für beide Materialien von ca. 1055 nm für sehr

geringe Inversionen mit steigender Inversion stetig in Richtung kürzerer Wellenlängen bis hin zu ca. 1010 nm. Während die absoluten Werte der Verstärkungswirkungsquerschnitte im Falle von Yb:LuVO mit ca.  $3,9 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$  im Maximum höher sind als im Falle von Yb:YVO mit  $2,8 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ , ist die Bandbreite der Verstärkung von Yb:YVO etwas breiter. Verglichen mit den Boraten ist die Verstärkung deutlich höher und deckt mit einer spektralen Breite von unter 100 nm einen schmaleren Wellenlängenbereich ab.

Insgesamt ist die Verstärkungsbandbreite aller untersuchten Kristalle deutlich größer als die im Anhang C dargestellten Verstärkungsspektren von Yb:YAG. Die absoluten Werte der Verstärkungswirkungsquerschnitte sind jedoch deutlich niedriger, so dass erwartet werden kann, dass in den Laserexperimenten deutlich geringere Auskoppelgrade für optimale Leistungsparameter verwendet werden müssen, als im Falle von Yb:YAG.

Material	Yb:LSB			Yb:YCOB		Yb:YVO	Yb:LuVO	Yb:YAG
<b>Lebensdauer</b> [ $\mu\text{s}$ ]								
Pinhole-Methode	1150			2199		310	300	951
Judd-Ofelt	1096			1617		227	205	962
Füchtbauer-Ladenburg	950			2127		261	252	940
<b>Stark-Aufspaltung</b>	Yb <sub>Sc,A</sub>	Yb <sub>Sc,B</sub>	Yb <sub>La</sub>	Yb <sub>Y</sub>	Yb <sub>Ca</sub>			
	0	0	0	0	0	0	0	0
$^2F_{7/2^-}$	259	287	21	427	262	35	66	584
Multiplett [ $\text{cm}^{-1}$ ]	602	622	70	550	639	268	288	635
	938	1015	588	1022	1017	497	466	783
$^2F_{5/2^-}$	10 303	10 289	10 142	10 245	10 261	10 160	10 163	10 328
Multiplett [ $\text{cm}^{-1}$ ]	10 407	10 477	10 201	10 676	10 632	10 360	10 374	10 752
	11 058	11 135	10 687	11 110	11 122	10 547	10 592	10 917
$Z_l/Z_u$	0,830	0,921	1,466	1,057	1,130	1,438	1,399	0,88
Gew. Mittelwert	1,072			1,065				
<b>Absorption</b>								
$\sigma_{abs,max}$ [ $10^{-20} \text{cm}^2$ ]	0,66			1,46		6,82	8,03	0,83
Polarisation	$\sigma$			$\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$		$\pi$	$\pi$	–
$\lambda(\sigma_{abs,max})$ [nm]	981			976,6		985,2	984,6	941 & 969
FWHM [nm]	>30			2,3		7,9	5,8	12,5 & 2,6
<b>Emission</b>								
$\sigma_{em,max}$ [ $10^{-20} \text{cm}^2$ ]	1,22			1,61		10,2	11,3	1,89
$\lambda(\sigma_{em,max})$ [nm]	986,5			976,9		985,2	984,8	1030
Polarisation	$\sigma$			$\vec{E} \parallel \mathbf{Y}$		$\pi$	$\pi$	–
$\sigma_{em}(\lambda_{las})$ [ $10^{-20} \text{cm}^2$ ]	0,25			0,45		0,5	0,7	1,89
Polarisation	$\pi$			$\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$		$\pi$	$\pi$	–
<b>Verstärkung</b>								
$\sigma_{gain,max}^{(\beta=0,35)}$ [ $10^{-21} \text{cm}^2$ ]	1,06			1,3		2,8	3,9	5,8
Polarisation	$\pi$			$\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$		$\pi$	$\pi$	–
$\lambda(\sigma_{gain,max})$ [nm]	1003-1078			1022-1083		1011-1053	1014-1053	1030-1048
$\Delta\lambda(\sigma_{gain} > 0)$ [nm]	986-1120			985-1120		989-1080	990-1080	980-1070

**Tabelle 5.4:** Spektroskopische Daten der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Kristalle und YAG. Mit  $\lambda(\sigma_{gain,max})$  ist der Wellenlängenbereich, in dem sich die Maxima der Verstärkungswirkungsquerschnitte für verschiedene Werte von  $\beta$  finden, bezeichnet.  $\Delta\lambda(\sigma_{gain} > 0)$  umfasst den gesamten spektralen Bereich, in dem Verstärkung auftritt. Die Werte für die Stark-Aufspaltung von Yb:LSB und Yb:YCOB wurden [Joh04] bzw. [Lup02] entnommen. Die Werte für Absorption und Emission von Yb:YAG entstammen [Mix99], dort nicht angegebene Werte wurden aus diesen Daten berechnet. Die Pinhole-Lebensdauer von Yb:YAG stammt aus [Küh07], dessen Stark-Aufspaltung aus [Bog77].

### 5.3.6 Fehlerbetrachtung

Die auf die verschiedenen Arten bestimmten Lebensdauern von Yb:YAG, welche in Tab. 5.4 angegeben sind, weisen eine bessere Übereinstimmung untereinander auf, als es für die verschiedenen Lebensdauern der anderen untersuchten Materialien der Fall ist. Dies spiegelt die erhöhte Schwierigkeit bei der Ermittlung polarisationsabhängiger spektroskopischer Eigenschaften wider. Im Falle der Vanadate kann der große Unterschied zwischen der experimentell bestimmten Fluoreszenzlebensdauer und den berechneten Lebensdauern möglicherweise auch damit erklärt werden, dass für Materialien mit großer Reabsorption und hohen Wirkungsquerschnitten auch der lineare Extrapolationsfit bei der Pinhole-Methode nur eine obere Abschätzung der Fluoreszenzlebensdauern darstellt [Küh08]. Für die Borate sei noch einmal auf die nicht voraussetzbare Gültigkeit der Reziprozitäts-Relation bei Vorhandensein mehrerer spektroskopischer Plätze hingewiesen. Besonders für die niedriger dotierten Vanadate ist eine weitere Fehlerquelle in der Genauigkeit der Bestimmung der Dotierungskonzentration mit der Mikrosondenanalyse zu finden. Diese wird mit einem absoluten Fehler von 0,1% angegeben. Für die untersuchte Yb:LuVO-Probe mit 1,5 at. %-Dotierung bedeutet das einen relativen Fehler von mehr als 5% alleine schon bei der Bestimmung der Absorptionswirkungsquerschnitte. Ein generelles Problem stellt auch die Ermittlung der zu verwendenden Brechzahlen dar. Aufgrund der quadratischen Abhängigkeit der Emissionswirkungsquerschnitte in der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung von  $n$  kann alleine der durch die ungenaue Kenntnis der hohen Brechzahlen von LuVO entstehende Fehler auf etwa 5% abgeschätzt werden. Auch eine mögliche Änderung der Brechzahl durch Einbringen des Dotierions in das Wirtsgitter kann üblicherweise nicht berücksichtigt werden. Weiterhin beruhen die in der Literatur zu findenden Sellmeier-Gleichungen besonders für relativ neue Materialien häufig nur auf wenigen Messwerten aus teilweise nur einer Quelle, so dass nicht ausgeschlossen werden kann, dass sie relativ große Fehler aufweisen. Eine weitere nicht zu vernachlässigende Fehlerquelle ist auf die Tatsache zurückzuführen, dass bei der Reziprozitäts-Relation die Gleichheit der atomaren Wirkungsquerschnitte nur bei Abwesenheit jeglicher nichtstrahlender Prozesse wie phononischer Übergänge gegeben ist, was nach [Aul82] beispielsweise für Nd:YAG zu einem Fehler in der Größenordnung von 20% führt, der für Yb<sup>3+</sup>-dotierte Materialien aufgrund des einfachen Energieniveauschemas jedoch niedriger liegen sollte.

Insgesamt kann somit für die hier dargestellten Absorptionswirkungsquerschnitte polarisierter Materialien von einem Fehler von etwa 5% ausgegangen werden. In zukünftigen Untersuchungen sollte jedoch für Yb:LSB aufgrund der nicht einheitlichen Bezugnahme der Dotierungskonzentration (vgl. [Rom05] und [Dur01]) und des möglicherweise variierenden Einbaukoeffizienten jede einzelne Charge zunächst einer spektroskopischen und/oder Mikrosondenanalyse unterzogen werden um größere Fehler zu vermeiden.

Für die Emissionswirkungsquerschnitte ist der Fehler aus den genannten Gründen wesentlich höher und wird mit etwa 20% beziffert. Die genannten Fehler beziehen sich jedoch nur auf die absolute Höhe der Wirkungsquerschnitte, in Bezug auf die spektrale Verteilung sind die Fehler deutlich geringer einzuschätzen. Daher liefert die Berechnung der Verstärkungswirkungsquerschnitte dennoch wichtige Informationen zur Vorhersage der Lasereigenschaften eines Materials, auch wenn die absoluten Werte sicher mit einem großen Fehler behaftet sind.

Die Pinhole-Methode hat sich als sehr hilfreiches Instrument zur Bestimmung der intrinsischen Fluoreszenzlebensdauer erwiesen. Für Materialien mit vergleichsweise geringer Reab-

sorption wie Yb:YCOB oder auch Yb:YAG bei für den effizienten Laserbetrieb geeigneten  $\text{Yb}^{3+}$ -Dotierungen liegt der Fehler dieser Methode sicher unter 5%. Im Falle von Yb:LSB aufgrund der drei spektroskopisch unterscheidbaren Plätze und im Falle der Vanadate aufgrund der hohen Reabsorption ist der Fehler jedoch höher und wird mit etwa 10% abgeschätzt.

Die Bestimmung der energetischen Lage der Stark-Niveaus in den Multipletts ist prinzipiell sehr genau möglich. Da jedoch eine fehlerhafte Identifizierung der durch die elektronischen Übergänge hervorgerufenen Linien nicht ausgeschlossen werden kann, besteht auch hier eine mögliche Fehlerquelle, welche allerdings nicht quantitativ beziffert werden kann.

### 5.4 Schlussfolgerungen aus den spektroskopischen und kristallographischen Eigenschaften

Anhand der bisher getätigten spektroskopischen Untersuchungen, deren Ergebnisse in Tab. 5.4 im Vergleich mit denen von Yb:YAG zusammengefasst sind und der Vorstellung der mechanischen und kristallographischen Eigenschaften der Wirtsmaterialien in Kapitel 4, welche in Tab. 4.3 dargestellt sind, kann bereits eine vorläufige Beurteilung der Eignung dieser Materialien auf ihren Einsatz im Scheibenlaser vorgenommen werden.

Die für die effiziente Absorption des eingestrahlteten Pumplichtes wichtige Größe der Absorptionslänge  $\alpha^{-1}$  kann bei Einstrahlung nicht linear polarisierten Lichtes in eine Kristallebene mit polarisationsabhängiger Absorption nicht angegeben werden, da sich die Absorption als Summe zweier Exponentialfunktionen mit unterschiedlichen Abklingkonstanten ergibt. Für eine grobe Abschätzung wird daher zunächst das Maximum des Mittelwertes der Absorption von monochromatischem Licht in allen drei Polarisierungen verwendet. Bei Annahme einer identischen  $\text{Yb}^{3+}$ -Dichte ergibt sich für die Vanadate eine etwa vier bis fünfmal kürzere Absorptionslänge verglichen mit Yb:YAG. Im Falle von Yb:YCOB liegt diese geringfügig unter derjenigen von Yb:YAG, während die Absorptionslänge für Yb:LSB deutlich darüber liegt. Berücksichtigt man dazu die Tatsache, dass die maximale Dotierbarkeit von Yb:LSB nur bei  $1,1 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  liegt, erscheint dieses Material anhand dieses Kriteriums am wenigsten geeignet für den Hochleistungsbetrieb im Scheibenlaser, der geringe Scheibendicken erfordert, während mit den anderen Materialien bei geeigneter Dotierung prinzipiell sogar dünnere Scheiben als im Falle von Yb:YAG verwendet werden könnten. Es ist allerdings zu erwarten, dass dieser Nachteil in diodengepumpten Systemen mit einer endlichen spektralen Breite der Pumpquelle durch die extrem breite Pumpbande von Yb:LSB teilweise kompensiert wird. Die Emissions- und Verstärkungswirkungsquerschnitte im Bereich möglicher Laserwellenlängen sind in allen Materialien deutlich niedriger und breitbandiger als im Falle von Yb:YAG. Daher kann nicht erwartet werden, dass diese Materialien im effizienten Dauerstrich-Hochleistungsbetrieb mit Yb:YAG konkurrieren können. In Bezug auf breitbandig durchstimmbaren Laserbetrieb und die Erzeugung und Verstärkung kurzer Pulse im mittleren Leistungsbereich scheinen sie Yb:YAG jedoch überlegen. Die ungewöhnlich lange Lebensdauer von Yb:YCOB in Verbindung mit dessen hoher Zerstörschwelle [Ye99] macht dieses Material möglicherweise geeignet für die Erzeugung hochenergetischer gütegeschalteter Pulse. Während die große Stark-Aufspaltung der Borate für einen geringen Überlapp zwischen Absorptions- und Emissionsspektren verantwortlich ist, tritt in den Vanadaten genau der gegenteilige Fall auf. Die große Reabsorption im Bereich möglicher Laserwellenlängen lässt folglich erwarten, dass für die Vanadate die Pumpleistungsschwellen

für den Laserbetrieb wesentlich höher sind, was durch die vergleichsweise kurzen Lebensdauern des angeregten Zustandes von  $\text{Yb}^{3+}$  in diesen Systemen verstärkt wird.

Weiterhin wird erwartet, dass diese Materialien empfindlich auf die bei hohen Pumpleistungen selbst im Scheibenlaseraufbau unvermeidliche Erwärmung des aktiven Mediums reagieren, da diese aufgrund der geringen Stark-Aufspaltung der Vanadate zu einer vermehrten thermischen Besetzung des Laserzielniveaus führt. Dies wird teilweise kompensiert durch die im Vergleich zu den Boraten wesentlich bessere Wärmeleitfähigkeit.

Alle untersuchten Wirtsmaterialien sind mittels der Czochralski-Methode herstellbar. Damit steht der Herstellung von Scheibenlaserkristallen mit ausreichenden Dimensionierungen in guter optischer Qualität und Reinheit nichts entgegen. Auch die geringe Tendenz zur Spaltbarkeit in den Vanadaten ändert daran nichts. In allen Fällen handelt es sich um nicht-kubische Systeme, was aufgrund der zu erwartenden polarisierten Laseremission für die resonatorinterne Verdopplung der Grundwelle von Vorteil ist.

Die Literaturdaten bezüglich der Zerstörschwellen sind selten unter vergleichbaren Bedingungen ermittelt worden, daher ist eine Gegenüberstellung dieser Daten nicht sinnvoll. Prinzipiell ist aber zumindest für YCOB aufgrund der Hochleistungs-Experimente von [Fei06] und YVO aufgrund der Erfahrungen bei Dotierung mit  $\text{Nd}^{3+}$  mit Zerstörschwellen zu rechnen, welche die Anwendung der im Rahmen dieser Arbeit zur Verfügung stehenden Pumpleistungen nicht limitieren.

Die Quellenlage bezüglich der thermischen Ausdehnung und thermischen Linsenbildung der untersuchten Materialien spricht für eine deutliche Anisotropie der verschiedenen kristallographischen Achsen bezüglich dieser Eigenschaften. Inwiefern sich dies bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten auf den Laserbetrieb auswirken wird, ist fraglich, da das Hauptaugenmerk nicht auf dem Betrieb bei möglichst guter Strahlqualität liegen wird und die zur Verfügung stehenden Pumpleistungen begrenzt sind.



# 6 Lasereperimente

Zum Abschluss des experimentellen Teils dieser Arbeit werden in diesem Kapitel die Ergebnisse der Lasereperimente mit den untersuchten Materialien präsentiert. Dieses Kapitel beginnt mit einer kurzen Vorstellung der zur Verfügung stehenden Pumpquellen und einer detaillierten Darstellung der für die Präparation der Scheibenlaserkristalle notwendigen Arbeitsschritte. Mit den auf diese Weise präparierten Scheiben wurden verschiedene Lasereperimente durchgeführt, deren Ergebnisse im darauf folgenden Abschnitt präsentiert werden. Dabei erfolgt zuerst eine Beschreibung der Ergebnisse der Leistungsskalierung im Scheibenlaser und eine Abschätzung der resonatorinternen Verluste, bevor im nächsten Abschnitt die spektrale Durchstimmbarkeit der untersuchten Materialien demonstriert wird. Mit Yb:LSB wurden in Kooperation mit dem Max-Born-Institut in Berlin zudem erste Experimenten zur Erzeugung kurzer Pulse durchgeführt, die hier ebenfalls kurz dargestellt werden. Das Kapitel schließt mit einer Zusammenfassung und Wertung der erzielten Laserresultate.

## 6.1 Die Pumpquellen

Als Pumpquellen standen eine JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode mit nominell 50 W maximaler Ausgangsleistung sowie eine JOLD-140-CAXF-6A-Laserdiode mit nominell 140 W maximaler Ausgangsleistung zur Verfügung.

### 6.1.1 Die JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode

Bei der von der Firma JENOPTIK hergestellten JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode handelt es sich um eine fasergekoppelte InGaAs-Laserdiode mit einem Faserdurchmesser von 600  $\mu\text{m}$  und einer numerischen Apertur von 0,22. Die nominale maximale Ausgangsleistung beträgt 50 W bei einer mittleren Wellenlänge von 981,5 nm. Bei Einstellen des maximalen Betriebsstroms von 45 A sind mit dieser Diode tatsächlich maximale Ausgangsleistungen von etwa 55 W realisierbar. Durch aktive Temperaturanpassung mittels zweier an den beiden internen Diodenbarren montierter Peltier-Elemente besteht die Möglichkeit, diese Diode in einem Wellenlängenbereich von ca. 972 nm bis 985 nm mit einer typischen Temperaturabhängigkeit von ca. 0,3 nm/ $^{\circ}\text{C}$  bei relativ konstanter Ausgangsleistung spektral durchzustimmen. Da die für die Temperaturanpassung zur Verfügung stehenden Temperatur-Kontrollgeräte jedoch nur über eine Leistung von 70 W anstelle der empfohlenen 300 W verfügten, konnte die Betriebstemperatur im oberen Leistungsbereich nicht über einen längeren Zeitraum stabil gehalten werden. Daher beträgt die maximale eingestrahelte Pumpleistung in den meisten mit dieser Diode durchgeführten Experimenten nicht mehr als 45 W. Die spektrale Halbwertsbreite der emittierten Strahlung hängt von der gewählten Betriebstemperatur und Ausgangsleistung ab und liegt zwischen ca. 2,2 nm und 3,1 nm bei einer mittleren Breite von 2,54 nm. Durch Wahl zweier unterschiedlicher Tem-

peraturen an den beiden Peltier-Elementen ist es prinzipiell möglich, die spektrale Breite der Emission zu beeinflussen, jedoch ergibt sich die geringste spektrale Breite in der Regel bei Wahl identischer Temperaturen.

### 6.1.2 Die JOLD-140-CAXF-6A-Laserdiode

Die JOLD-140-CAXF-6A-Laserdiode ist ebenfalls eine fasergekoppelte InGaAs-Laserdiode der Firma Jenoptik mit 600  $\mu\text{m}$  Faserdurchmesser und einer numerischen Apertur von 0,22, jedoch mit einer maximalen Ausgangsleistung von 140 W bei einer mittleren Wellenlänge von 976 nm. Im Unterschied zur JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode erfolgt die spektrale Anpassung der Wellenlänge ausschließlich durch die Variation der Kühlwassertemperatur. Diese kann in der Praxis nur auf ca. 1°C genau eingestellt werden; hierdurch wird die Optimierung der zentralen Pumpwellenlänge eingeschränkt. Aufgrund der kürzeren zentralen Wellenlänge war diese Diode nicht geeignet für das Pumpen der  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Vanadate mit dem Maximum der Absorption bei etwa 985 nm. Weiterhin ist die spektrale Halbwertsbreite mit etwa 3,5 nm deutlich größer als die spektrale Akzeptanzbreite der Nullphononenlinie von Yb:YCOB. Daher wurde diese Diode lediglich in einigen der Experimente mit Yb:LSB als Pumpquelle verwendet.

## 6.2 Präparation der Laserkristalle

Die Präparation von Scheibenlaserkristallen ist ein aufwändiger Prozess, der sich im Wesentlichen in folgende Arbeitsschritte gliedert: Nach der Herstellung der Kristalle erfolgt das Zuschneiden und die Politur der Rohlinge auf die berechneten Kristalldicken, bevor beide Seiten des Kristalles beschichtet werden. Abschließend wird die Scheibe auf einer Wärmesenke kontaktiert.

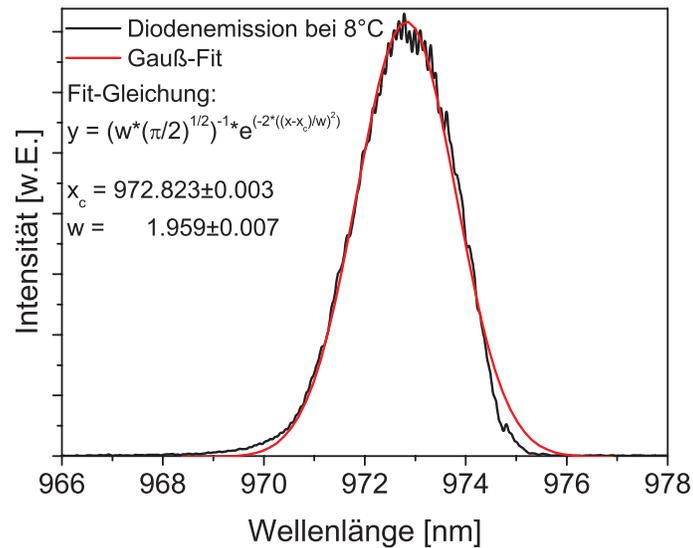
### 6.2.1 Herstellung

Die in dieser Arbeit für Lasereperimente verwendeten Kristalle wurden an verschiedenen Institutionen in China, Russland, Frankreich und Deutschland nach der Czochralski-Methode hergestellt. Eine kurze Beschreibung dieser Methode findet sich in Anhang A. Nähere Details zu den Züchtungsergebnissen sind bereits in Kapitel 4 erläutert.

Bei allen untersuchten Kristallen handelt es sich um nicht-kubische Systeme. Die kristallographische Orientierung der zur Verfügung gestellten Boules und Kristallproben wurde von den jeweiligen Züchtern vorgenommen.

### 6.2.2 Scheibendicke

Wie in Kapitel 3 bereits erläutert, sollte die Absorption des aktiven Mediums im Scheibenlaser mehr als 90% betragen, um effektiven Betrieb zu ermöglichen und Schäden an der Faser durch Rückkopplung des nicht absorbierten Pumplichtes zu vermeiden. Die tatsächlich absorbierte Pumpleistung im Scheibenlaserkristall errechnet sich dabei nach Glg. 3.8. Dabei gilt es jedoch zunächst, die reale Breite der Pumpquelle zu berücksichtigen und durch die Faltung mit

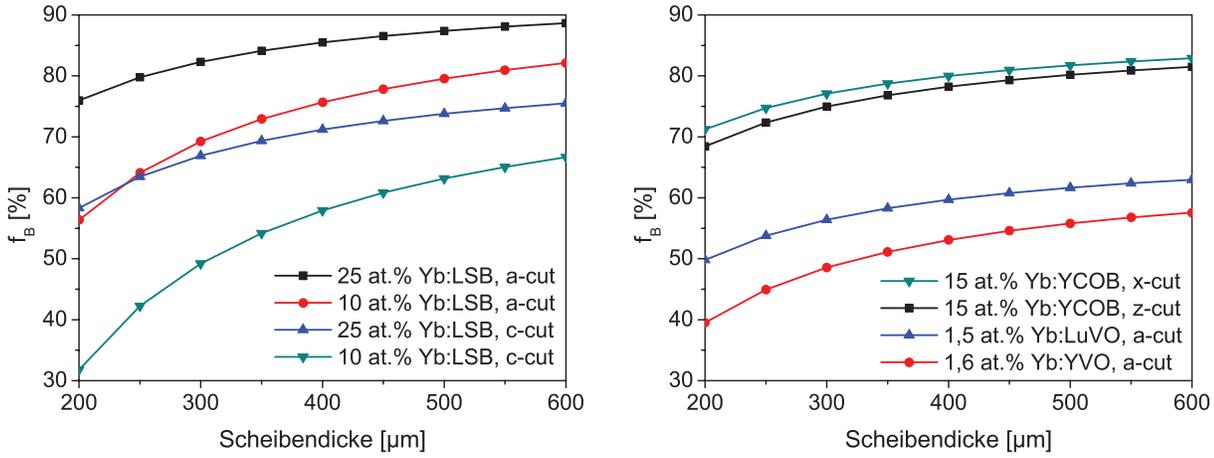


**Abbildung 6.1:** Emissionsspektrum der 50 W-Pumpdiode bei mittlerer Ausgangsleistung und 8°C Betriebstemperatur und Gauß-Fit.

dem Absorptionsspektrum eine effektive Absorption für die jeweilige Pumpwellenlänge zu ermitteln. Bei der für die meisten Experimente verwendeten Pumpquelle handelte es sich um die oben beschriebene JOLD-50-CPXF-2P-Laserdiode mit einer mittleren spektralen Breite von 2,54 nm. Um auf das Emissionsprofil der Diode bei beliebigen Wellenlängen Zugriff zu haben, wurde die spektrale Form der Emission der Diode mittels einer Gauß-Funktion der entsprechenden Halbwertsbreite angenähert. Das Beispiel in Abb. 6.1 zeigt, dass diese Annahme das Emissionsprofil in guter Näherung wiedergibt.

Mit Glg. 3.8 lässt sich nun die absorbierte Leistung berechnen. Der in dieser Gleichung enthaltene Ausbleichfaktor  $f_B$  ergibt sich über die zum Erreichen der Schwelle notwendige Inversion  $\beta$  aus Glg. 5.8 in Verbindung mit Glg. 3.6. Als Auskoppelverluste und Resonatorverluste wurden für den Scheibenlaser typische Werte von  $T_{ges,l} = 1\%$  und  $L_{int,l} = 0,1\%$  verwendet. Im Scheibenlaser addieren sich dabei die bei jedem Kristalldurchlauf auf dem Kristall stehenden Pumpleistungen, so dass insgesamt sehr hohe Pumpleistungsdichten entstehen und damit auch ein nicht zu vernachlässigendes Ausbleichen des gepumpten Niveaus auftritt. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Dotierungskonzentrationen und Orientierungen der verwendeten Materialien sind die sich ergebenden Ausbleichfaktoren  $f_B$  in Abhängigkeit von der Scheibendicke in Abb. 6.2 dargestellt.

Um den Einfluss der polarisationsabhängigen Absorption zu berücksichtigen, muss Glg. 3.8 modifiziert werden. Die Berücksichtigung der Änderung der Polarisation des Pumplichtes nach jedem doppelten Kristalldurchgang durch die anisotrope Absorption bei gleichzeitiger Verfolgung des Polarisationszustandes beim Durchlaufen der Pumpoptik ist nur schwer zu realisieren. Hinzu kommt, dass die Orientierung des Kristalles in allen Fällen so gewählt wurde, dass die Scheibenebene von zwei Kristallachsen aufgespannt wird. Da das Pumplicht im Scheibenlaser jedoch nicht senkrecht auf den Kristall trifft, sondern unter einem Winkel von etwa 35° kann auch die senkrecht zur Scheibenebene liegende Polarisation bei der Berechnung der Absorption nicht vernachlässigt werden. Vereinfachend wurde daher angenommen, dass die Polarisation des Pumplichtes zu je einem Drittel des Weges durch den Kristall senkrecht zu einer der drei



**Abbildung 6.2:** Abhängigkeit des Ausbleichfaktors  $f_B$  von der Scheibendicke bei 24fachem Kristalldurchlauf für alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Dotierungskonzentrationen und Orientierungen der verwendeten Materialien nach Glg. 3.6 mit  $T_{ges,l} = 1\%$  und  $L_{int,l} = 0,1\%$ .

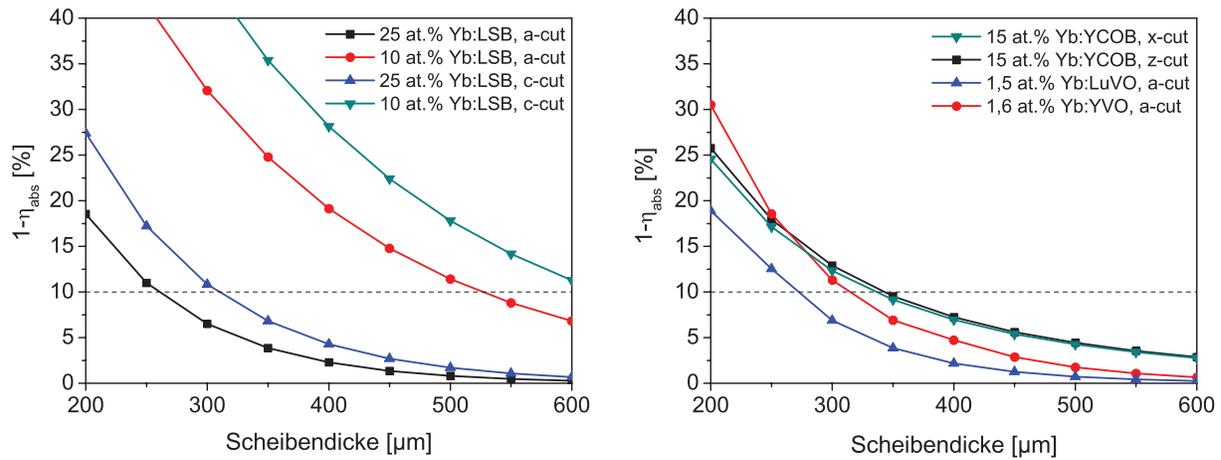
spektroskopischen Achsen steht. Damit lässt sich Glg. 3.8 modifizieren zu:

$$\eta_{abs} = 1 - \left( \prod_i^3 \exp \left[ -M_p \alpha^{(\xi_i)} \frac{\ell}{3} \right] \right) = 1 - \exp \left( -\frac{1}{3} M_p \sum_i^3 \left[ \sigma_{abs,p}^{(\xi_i)} \right] f_B N_{dot} \ell \right), \quad (6.1)$$

worin die Indizes  $\xi_i$  für die unterschiedlichen Polarisierungen im Kristall stehen. Für die Absorptionswirkungsquerschnitte wird in Glg. 6.1 also vereinfacht der Mittelwert aus den Absorptionswirkungsquerschnitten in allen drei Polarisierungen verwendet. Diese Abschätzung führt zu einer leichten Überbewertung des in der senkrecht zur Scheibenebene liegenden Polarisation absorbierten Anteils, welche jedoch im Vergleich zu dem Fehler bei der Ermittlung der spektroskopischen Daten und dem daraus resultierenden Ausbleichfaktor hinnehmbar erscheint. Die resultierenden Transmissionen des Pumplichtes für die unterschiedlichen untersuchten Materialien in Abhängigkeit von der Scheibendicke sind in Abb. 6.3 dargestellt. Anhand dieser Daten wurde die Präparation von Kristallen mit Dicken zwischen 0,15 mm und 0,6 mm in Auftrag gegeben; eine vollständige Auflistung der Kristalle findet sich in Anhang D. Da zunächst der Einfluss des Ausbleichens auf die Absorption unterschätzt wurde und die Berechnungen mit fehlerhaft hohen Wirkungsquerschnitten vorgenommen wurden (vgl. Abschnitt 5.3.2), sind die präparierten Dicken im Falle der Yb:LSB-Kristalle nach dem neuesten Kenntnisstand als teilweise zu gering zu betrachten.

### 6.2.3 Politur

Die orientierten Rohlinge wurden von der Firma Photon LaserOptik in Rodgau in Scheiben geschnitten, auf die gewünschte Dicke geläpft und durch eine Laserfeinstpolitur mit einer Oberflächengenauigkeit besser 250 nm versehen. Obwohl bei dieser Politur ein besonderer Fokus auf die Planparallelität der bearbeiteten Kristalle gelegt wurde, stellte sich heraus, dass dieser Faktor auf die Lasertätigkeit der Kristalle keinen messbaren Einfluss hat. Scheiben, die mit einem für modengekoppelte Experimente notwendigen Keil von  $0,1^\circ$  versehen wurden, lieferten im Rahmen der Messgenauigkeit identische Effizienzen im Laserbetrieb.



**Abbildung 6.3:** Anteil nicht absorbiertes Pumplicht nach 24 Pumplichtdurchläufen in Abhängigkeit von der Scheibendicke für alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Dotierungskonzentrationen und Orientierungen der verwendeten Materialien nach Glg. 6.3 mit  $T_{ges,l} = 1\%$  und  $L_{int,l} = 0,1\%$ . Unterhalb der gestrichelten Linie liegende Punkte stellen Scheibendicken dar, bei denen mehr als 90% der einfallenden Pumpleistung absorbiert wird.

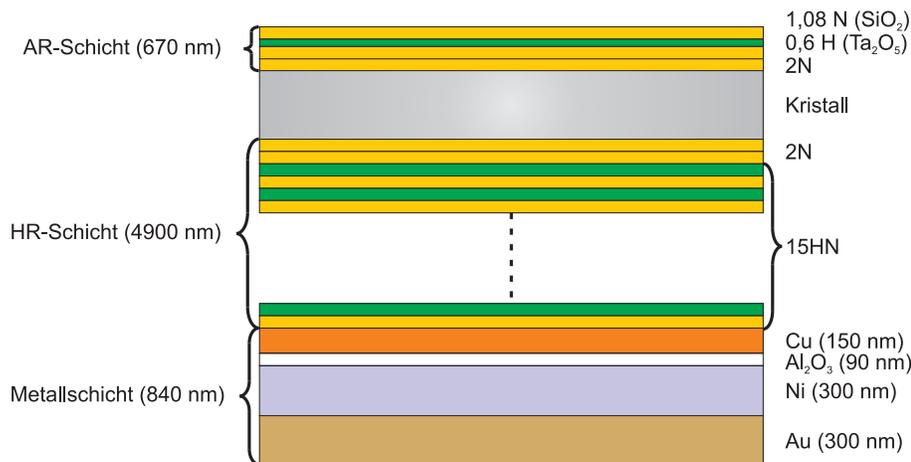
## 6.2.4 Beschichtung

Im Anschluss an die Politur erfolgte das Aufbringen der entspiegelnden bzw. hochreflektierenden Beschichtung auf Vorder- und Rückseite des Kristalles bei der Jenoptik Laser, Optik, Systeme GmbH mittels des APS-Verfahrens. APS steht dabei für das englische “*advanced plasma sputtering*”.

Bei den Beschichtungen handelt es sich um dielektrische Bragg-Schichten, also Schichtstapel, die alternierend aus einer Schicht mit einer hohen (H) und einer Schicht mit einer niedrigen (N) Brechzahl bestehen. Als Schichtmaterialien wurden in den Beschichtungen  $Ta_2O_5$  mit einer hohen und  $SiO_2$  mit einer niedrigen Brechzahl (vgl. Tab. 6.1) verwendet. In Abb. 6.4 sind die bekannten Parameter der beiden Beschichtungen dargestellt.

Nach dem Aufbringen der hochreflektierenden Schicht wurden zusätzlich eine 150 nm dicke Kupferschicht, eine 90 nm dicke  $Al_2O_3$ -Schicht sowie eine Nickel- und eine Goldschicht von je 300 nm Dicke aufgedampft. Die Kupferschicht dient dabei nur bei Einfall unter sehr großen Winkeln zur Senkrechten als zusätzlicher Reflektor. In der Hauptsache ist ihre Aufgabe, die folgenden Schichten fest mit dem dielektrischen Spiegel zu verbinden. Die  $Al_2O_3$ -Schicht dient als Sperrschicht um eine Diffusion der weiteren verwendeten Materialien in die dielektrischen Schichten zu verhindern. Die abschließende Goldschicht löst sich beim Auflöten schnell auf und dient lediglich dem Korrosionsschutz der darunterliegenden Nickelschicht, welche den Kristall überhaupt erst lötlbar macht, denn sie ist im Gegensatz zu den dielektrischen Schichten benetzbar [Lar08].

Anhand der Dicke der aufgetragenen dielektrischen Schichten sowie der Anzahl  $N$  der Schichtenpaare lassen sich die wellenlängenabhängigen Reflexionsdaten berechnen. Im einfachen Beispiel von  $\lambda_0/4$ -Schichten an Luft ( $n = 1$ ) und senkrechtem Einfall, wie es im Falle der hochreflektierenden Schicht bei einer einfachen Resonatorgeometrie gemäß Abb. 3.1 für die Laserwellenlänge gegeben ist, vereinfacht sich für die Reflexion  $R$  der zentralen Wellenlänge  $\lambda_0$  ein



**Abbildung 6.4:** Schichtenfolge und Systemdicken der hochreflektierenden (HR), entspiegelnden (AR) und metallischen Beschichtung der Scheibenlaserkristalle. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu.

umfangreicher Matrixformalismus (siehe z. B. [Haf03]) zu:

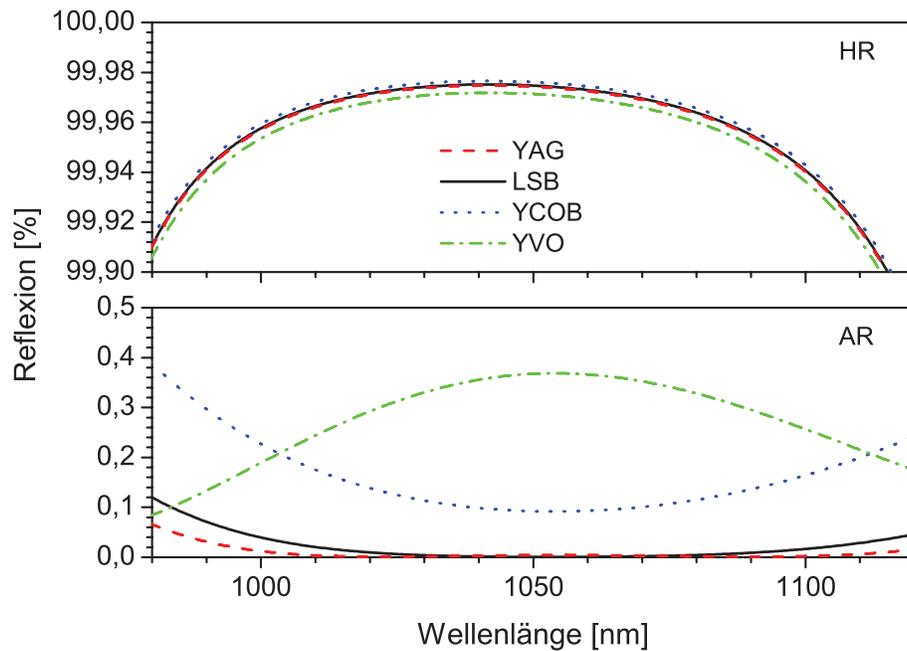
$$R = \left( \frac{n_2^{2N} - n_s n_1^{2N}}{n_2^{2N} + n_s n_1^{2N}} \right)^2. \quad (6.2)$$

Neben den Brechzahlen der Schichtmaterialien  $n_1$  und  $n_2$  und der Anzahl  $N$  der Schichten ist ein wichtiger Parameter in dieser Gleichung auch die Brechzahl  $n_s$  des Substratmaterials. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien weichen jedoch in ihrer Brechzahl teilweise erheblich vom Wert für YAG ab (vgl. Tab. 6.1).

Material	Orientierung	Mittlere Brechzahl bei 1 $\mu\text{m}$	Quelle
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	–	2,07	[Süß05]
SiO <sub>2</sub>	–	1,47	[Süß05]
Y <sub>3</sub> Al <sub>12</sub> O <sub>12</sub>	–	1,816	[Zel98]
Ca <sub>4</sub> YO(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	<b>Z</b> -cut	1,687	[Li00]
LaSc <sub>3</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	<b>a</b> -cut	1,788	[Mey94]
LaSc <sub>3</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	<b>c</b> -cut	1,828	[Mey94]
YVO <sub>4</sub>	<b>a</b> -cut	2,029	[Zdo87]
LuVO <sub>4</sub>	<b>a</b> -cut	2,085 <sup>1</sup>	[Jia01]

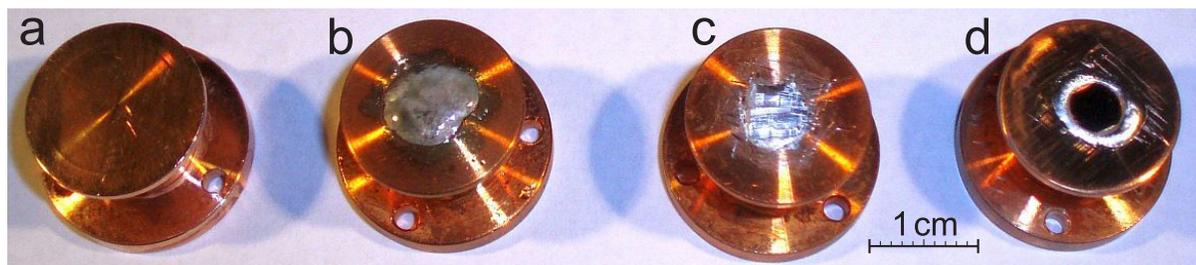
**Tabelle 6.1:** Brechzahlen der Schicht-Materialien Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> und SiO<sub>2</sub> sowie der untersuchten Wirtsmaterialien und YAG. Bei nicht-kubischen Systemen ist stets die gemittelte Brechzahl in der Scheibenebene angegeben.  
<sup>1</sup>In der Literatur sind für LuVO<sub>4</sub> lediglich die Brechzahlen für 633 nm zu finden [Ter96]. Diese sind geringfügig höher als im Falle von GdVO<sub>4</sub>, aber deutlich höher als für YVO<sub>4</sub>. Deswegen wird hier als vermutlich bessere Näherung der Wert für GdVO<sub>4</sub> angegeben.

Daher sind die vom Beschichter an einem mitbeschichteten Glasplättchen gemessenen mitgelieferten Reflexionsspektren nur als Anhaltspunkt für die tatsächlichen Werte zu sehen. Um



**Abbildung 6.5:** Rechnerische Reflexion der hochreflektiven (HR) und entspiegelnden (AR) Beschichtung unter senkrechtem Einfall bei Aufbringung auf verschiedene in dieser Arbeit untersuchte Materialien im Vergleich zu YAG. Zu beachten ist die unterschiedliche Skalierung der Ordinatenachse in beiden Graphen.

die Größenordnung der Abweichung von den Daten für YAG zu ermitteln, wurden anhand der in Abb. 6.4 dargestellten bekannten Schichtparameter mittels eines LabVIEW-Programms [Tel07] zunächst die Schichtcharakteristika für YAG errechnet. Dabei ergab sich eine gute Übereinstimmung mit den vom Beschichter genannten Daten. Im Anschluss daran wurden die Eigenschaften dieser Schichtsysteme auf den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien simuliert. In Abb. 6.5 sind die ermittelten Daten graphisch dargestellt. Während sich für die aus 32 Schichten bestehende hochreflektierende Beschichtung keine nennenswerten Abweichungen ergeben, zeigt sich bei dem aus nur vier Schichten bestehenden entspiegelnden Schichtsystem ein größerer Einfluss des Substrates. Dieser führt zu einem relativ deutlichen Unterschied in der Reflexion, insbesondere für  $\text{YVO}_4$ . Für die außerordentliche Brechzahl  $n_e$  von 2,169 ergibt sich sogar eine Reflexion der entspiegelnden Beschichtung von bis zu 0,85% unter senkrechtem bzw. 1,8% unter  $35^\circ$  Einfallswinkel. Letzteres entspricht dem Einfallswinkel des Pumplichtes auf den Kristall im verwendeten Scheibenlasermodul. Aufgrund der nicht bekannten Brechzahlen von  $\text{LuVO}_4$  wurden derartige Rechnungen für dieses Material nicht durchgeführt. In Anbetracht der vermutlich höheren Brechzahlen dürfte die Abweichung von den gewünschten Schichteigenschaften jedoch noch größer sein. Die daraus resultierenden Verluste verursachen sicher eine Beeinträchtigung der Lasertätigkeit mit diesen Materialien. Über die Größenordnung dieser Beeinträchtigung kann jedoch in Ermangelung von Kristallen mit geeigneterer Beschichtung nur spekuliert werden.



**Abbildung 6.6:** Fotografie verschiedener Kupferwärmesenken in unterschiedlichen Bearbeitungszuständen: a) Wärmesenke um Ausgangszustand; b) Nach dem Aufbringen des Indium-Zinn; c) Nach dem Entfernen der Oxidschicht und Reinigung im Ultraschallbad; d) Der fertig kontaktierte Kristall.

### 6.2.5 Kontaktierung

Für Hochleistungsanwendungen wird wegen seiner höheren thermischen und mechanischen Stabilität meist Gold-Zinn als Lot zum Kontaktieren der Kristalle auf der Wärmesenke verwendet. Da beim Auflöten des Gold-Zinn-Lotes Temperaturen von etwa  $300^{\circ}\text{C}$  benötigt werden, sollte die thermische Ausdehnung der Wärmesenke derjenigen des Kristalles angepasst werden, um beim Abkühlen eine unerwünschte Verbiegung des Kristalles zu vermeiden. Daher werden für die Kontaktierung von Yb:YAG meist Wärmesenken aus einer Kupfer-Wolfram-Legierung mit angepasstem Wärmeausdehnungskoeffizienten verwendet.

Dagegen ist für den in dieser Arbeit untersuchten Leistungsbereich von meist unter 50 W Pumpleistung bei 1,2 mm Pumpfleck-Durchmesser Indium-Zinn-Lot die bessere Wahl: Wegen des wesentlich niedrigeren Schmelzpunktes ist die Verarbeitung einfacher und eine Anpassung der Wärmeausdehnung nicht notwendig. Daher wurden alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kristalle mittels Indium-Zinn (In50Sn50) auf Kupfer- oder Kupfer-Wolfram-Wärmesenken gelötet. Die Lötung erfolgte in einem stickstoffgefluteten Gehäuse, um eine Oxidation des Indium-Zinn zu verhindern.

Die zuvor in einem erwärmten Ultraschallbad bei hoher Leistung in Aceton und anschließend in Ethanol gereinigte Wärmesenke (siehe Abb. 6.6 a) wird dabei zunächst auf einer  $170^{\circ}\text{C}$  warmen Heizplatte erhitzt. Der durch die Höhe der Wärmesenke gegebene Abstand der Kontaktierungsfläche von der Heizplatte sorgt dafür, dass dabei der Schmelzpunkt des In50Sn50 von etwa  $120^{\circ}\text{C}$  dennoch nur geringfügig überschritten wird.

Weder Kupfer noch Kupfer-Wolfram sind ohne zusätzlichen Einsatz von Flussmitteln benetzbar. Daher wird die erhitzte Wärmesenke großflächig mit einer geringen Menge flüssigen Flussmittels (Löthönig<sup>®</sup>) bedeckt. Die beim Erhitzen des Flussmittels entstehenden Gasblasen werden durch Reiben mit einem Glasstab entfernt. Auf das nun blasenfreie Flussmittel wird eine geringe Menge Indium-Zinn (ca. 50 mg) gegeben. Nach dem Aufschmelzen zieht sich dieses aufgrund der Oberflächenspannung trotz des Flussmittels auf der Wärmesenke zunächst zu einer Kugel zusammen. Durch Verreiben mit dem Glasstab lässt sich das Lot jedoch über den gesamten mit dem Flussmittel bestrichenen Bereich der Wärmesenke verteilen. Die vom Lot überzogene Fläche sollte dabei größer sein als die Fläche der zu kontaktierenden Scheibe. Anschließend wird die Wärmesenke zum Abkühlen auf eine Metallplatte gestellt (vgl. Abb. 6.6 b). Vom abgekühlten Lot wird mittels eines Skalpell die oberste matte oder schwarze Oxidschicht entfernt. Die so präparierte Wärmesenke wird erneut im Ultraschallbad gereinigt (siehe Abb. 6.6 c). Um einer Zerstörung der Kristallscheibe durch eine zu schnelle Erhitzung vor-

zubeugen, wird auf das noch kalte Indium-Zinn zunächst etwas Flussmittel aufgebracht und darauf die metallisierte Seite der Kristallscheibe gelegt. Die Wärmesenke wird nun auf der Heizplatte erneut auf ca. 170°C erhitzt. Nach dem Schmelzen des Lotes wird der Kristall mit einer schmalen Pinzette vorsichtig von der Seite gefasst und dergestalt in das Indium-Zinn und das Flussmittel gerieben, dass alle Gasblasen darunter verschwinden. Ist dies der Fall, kann die Scheibe (am besten mit einer Plastik-Pinzette mit hohem Schmelzpunkt) vorsichtig von oben gegen die Wärmesenke gedrückt werden und die Wärmesenke währenddessen mit einer zweiten Pinzette von der Heizplatte gehoben und auf einer kalten Metallplatte abgelegt werden. Erst nach dem Erstarren sollte der Anpressdruck auf die Scheibe gelöst werden, da die Dichte der Indium-Zinn-Legierung von 7,3 g/cm<sup>3</sup> diejenige vieler Wirtsmaterialien übersteigt, so dass die Kristalle bei Verwendung einer zu großen Menge Lotes auf diesem schwimmen würden. Das übliche Verfahren der Verwendung einer eigens zu diesem Zweck angefertigten Pressapparatur erschien aufgrund der häufig wechselnden Kristallgeometrie nicht praktikabel.

Nach dem Abkühlen auf Raumtemperatur erfolgt bei geringerer Leistung als zuvor eine abschließende Reinigung in Aceton und Ethanol im Ultraschallbad. Ein fertig kontaktierter Kristall ist in Abb. 6.6 d dargestellt.

Bei dieser Vorgehensweise und den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Pumpleistungen konnte die Kontaktierung in keinem Falle als offensichtlicher Grund für eine geringere Effizienz oder gar Zerstörung eines Kristalles ausgemacht werden. Auch sorgte das seiner oberflächenaufräudenden Wirkung gemäß aggressive Flussmittel nicht für eine erkennbare Beschädigung der dielektrischen Schichten. Lediglich bei Verwendung einer zu großen Menge Indium-Zinns und einem nicht sorgfältigen Aufpressen kam es gegebenenfalls zu einer Verkippung der Scheibe, die durch ein Nachjustieren des Goniometerkopfes im Scheibenlasermodul nicht mehr kompensiert werden konnte. Durch ein erneutes Aufheizen und Anpressen konnte dieses Problem jedoch in allen Fällen behoben werden.

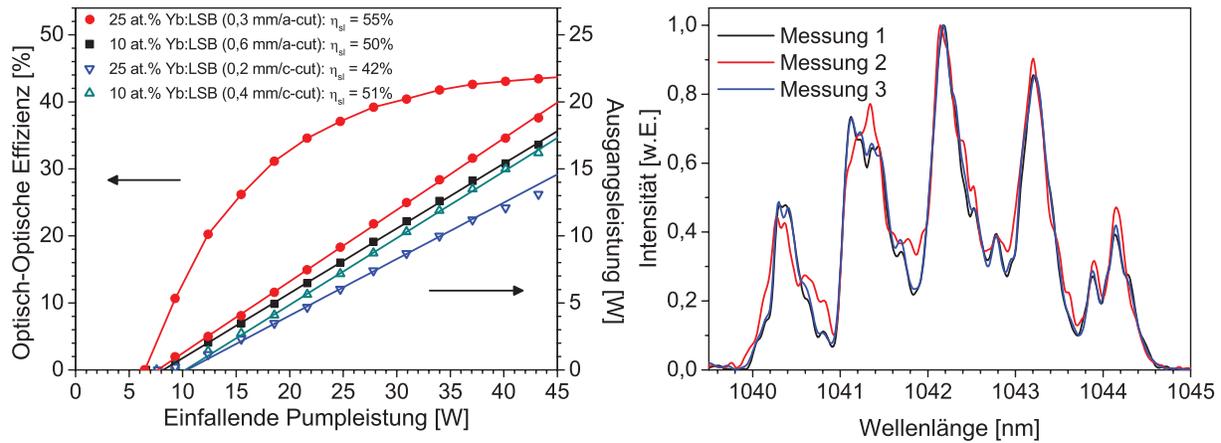
## 6.3 Leistungsskalierung im Scheibenlaseraufbau

Mit nach den im vorherigen Abschnitt beschriebenen Methoden präparierten Kristallen wurden Scheibenlaserexperimente in einem für 24 Pumplichtdurchläufe durch den Kristall ausgelegten Scheibenlasermodul durchgeführt. Über eine Einkoppeleinheit wurde eine 1:2 Abbildung des Faserendes der Pumpdiode auf dem Kristall erreicht, was zu einem Pumpfleckdurchmesser von 1,2 mm führte. Um eine Vergleichbarkeit der mit den unterschiedlichen Materialien erzielten Resultate zu gewährleisten, wurden alle Experimente zunächst in einem einfachen linearen Plan-Konkav-Resonator, der durch die verspiegelte Rückseite des jeweiligen Kristalles und einen Auskoppelspiegel von 100 mm Krümmungsradius gebildet wurde, durchgeführt. Eine schematische Darstellung dieses Aufbaus ist auf S. 25 dieser Arbeit in Abb. 3.1 zu finden. Um das Maximum der Ausgangsleistung in diesem Aufbau zu bestimmen, musste die Resonatorlänge in einem Bereich von ca. 60 mm bis 80 mm variiert werden. Da der Modenradius auf dem Kristall für einen solchen Aufbau nur zwischen ca. 100  $\mu\text{m}$  und 200  $\mu\text{m}$  variiert, führte diese Konfiguration zu einem Multimode-Betrieb mit verringerter Strahlqualität, welcher in allen Messungen unabhängig vom Wirtsmaterial in einem Wert für die Beugungsmaßzahl  $M^2$  von 15 bis 25 resultierte. Dieser Resonator gewährleistete jedoch einen stabilen Betrieb bei hoher Effizienz sowie guter Justierbarkeit und damit guter Vergleichbarkeit der verschiedenen Resultate. Wenn nicht anders angegeben, wurden alle Experimente mit der 50 W-Laserdiode als Pumpquelle durchgeführt.

### 6.3.1 Yb:LSB

Zunächst wurden Scheibenlaserexperimente mit Yb:LSB als aktivem Material durchgeführt. Dabei wurden Kristalle aus dem nominell 25 at.-%-dotierten Yb:LSB-Kristall sowie aus dem nominell 10 at.-%-dotierten Yb:LSB-Kristall präpariert. Während für die Berechnung der in Abb. 6.3 dargestellten Absorption der im Weiteren als 25 at.-%-dotiert bezeichneten Probe die durch die Mikrosondenanalyse bestimmte Dotierungskonzentration von 20,3 at.-% zugrunde gelegt wurde, ergab die Mikrosondenanalyse des 10 at.-%-dotierten Kristalles keine nennenswerte Abweichung von der vom Züchter angegebenen Dotierungskonzentration, so dass letztere in den Rechnungen verwendet wurde. Von beiden Kristallen wurden Scheiben in **a**-cut und **c**-cut-Orientierung angefertigt. Die Auflistung der zur Verfügung stehenden Scheiben mit den jeweiligen optimalen Leistungsparametern im Scheibenlaser findet sich im Anhang D in Tab. D.3.

In Abb. 6.7 auf der linken Seite sind die jeweils besten Resultate für die verschiedenen Orientierungen und Dotierungen von Yb:LSB dargestellt. Die optimalen Effizienzen und Ausgangsleistungen wurden in den meisten Fällen mit einem Auskoppelspiegel mit einer über den Bereich möglicher Wellenlängen sehr konstanten Transmission von 1,2% erzielt. In einigen Fällen konnten mit einem Spiegel mit einem weniger breiten Transmissionsprofil und einem leichten Anstieg der Transmission hin zu kürzeren Wellenlängen bei einem mittleren Auskopelgrad von etwa 1,0% geringfügig höhere Effizienzen realisiert werden. Bedingt durch das breite Emissionsprofil von Yb:LSB konnte mit diesem Spiegel der Laserbetrieb jeweils auf der Wellenlänge optimaler Auskopplung erfolgen. Weiterhin sind in Anhang D teilweise höhere als die hier genannten Ausgangsleistungen aufgeführt. Diese wurden unter Einstrahlung der maximalen Ausgangsleistung der verwendeten 50 W-Pumpdiode erzielt. Da bei dieser Leistung die benötigte optimale Pumpwellenlänge von etwa 973,5 nm nicht mehr erreicht werden konnte,



**Abbildung 6.7:** Links: Ausgangsleistungen in Abhängigkeit von der eingestrahlt Pumplleistung für verschieden dotierte und orientierte Yb:LSB-Kristalle bei einem Auskoppelgrad von 1,2% im Scheibenlaseraufbau. Für den mit höchster Effizienz betriebenen Kristall ist zusätzlich der Verlauf der optisch-optischen Effizienz eingezeichnet. Rechts: Typische Laserspektren eines 25 at.% Yb:LSB von 0,30 mm Dicke bei einem Auskoppelgrad von 1,6% und 25 W Pumplleistung aufgenommen zu verschiedenen Zeiten.

kam es aufgrund des mit steigender einfallender Pumplleistung sinkenden prozentualen Anteils der absorbierten Pumplleistung zu größeren Abweichungen vom linearen Verlauf der gegen die eingestrahlt Leistung aufgetragenen Ausgangsleistung.

### a-cut Orientierung

Die besten Laserresultate wurden mit einer 0,3 mm dicken, 25 at.%-dotierten Scheibe erzielt, die für Laseremission senkrecht zur **a**-Achse (**a**-cut) präpariert worden war. Diese Scheibe lieferte bei 0,8% Auskoppelgrad eine maximale Ausgangsleistung von 18,8 W bei einer eingestrahlt Pumplleistung von 43 W und einer Pumpwellenlänge von 973,5 nm. Bei einer Schwellpumplleistung von 6,5 W ergibt sich ein differentieller Wirkungsgrad  $\eta_{sl}$  von 55%, der optisch-optische Wirkungsgrad betrug etwa 44%. Von den 10 at.% Yb<sup>3+</sup>-dotierten Proben erwies sich eine 0,6 mm dicke Scheibe als am besten geeignet. 16,8 W Ausgangsleistung wurden hier bei einem differentiellen Wirkungsgrad von 50% erzielt. Die Laserwellenlänge variierte in diesen Experimenten in Abhängigkeit von der Pumplleistung zwischen ca. 1060 nm und 1035 nm. Mit steigendem Auskoppelgrad verschob sich die Emission in den kurzwelligeren Spektralbereich, wo auch die in Abb. 5.21 dargestellten Verstärkungswirkungsquerschnitte ihr Maximum finden. Die Laseremission war in allen Fällen parallel zur **c**-Achse polarisiert, also in  $\pi$ -Polarisation.

Die in Abschnitt 6.2.2 berechnete Absorption dieser beiden Scheiben beträgt jeweils etwa 91%. Für die Bestimmung der in dieser Arbeit genannten Wirkungsgrade wurde diese Abschätzung allerdings nicht berücksichtigt, sondern stets die einfallende Leistung herangezogen. Es sei hier allerdings angemerkt, dass dies nur zu einer Unterschätzung der maximal erzielbaren Effizienzen führen kann.

In Abb. 6.7 rechts sind drei mit dem schon für die Messung der Emission verwendeten Fourier-Transformations-Spektrometer *Equinox 55* der Firma *Bruker* aufgenommene typische Laserspektren des Scheibenlasers in der verwendeten Konfiguration dargestellt. Wie bereits in der Herleitung des "nulldimensionalen" Modells in Abschnitt 3.2 erläutert, erlaubt der verwen-

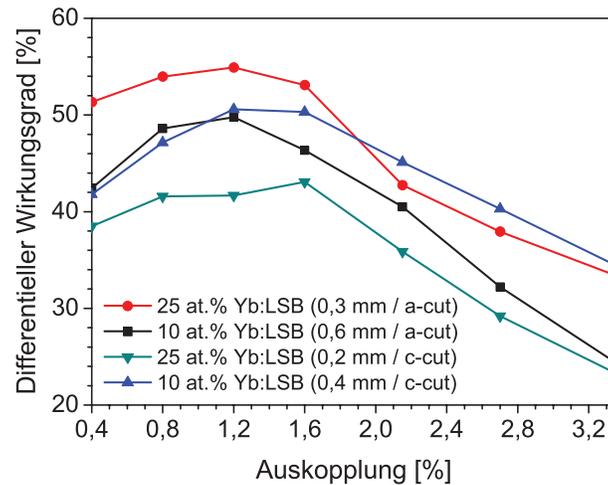
dete Resonator das Anschwingen diverser longitudinaler Lasermoden, was zu einem breiten Spektrum führt. In den drei in Abb. 6.7 rechts dargestellten Spektren, die direkt nacheinander aufgenommen wurden, ist deutlich zu erkennen, dass zu verschiedenen Zeiten unterschiedliche der konkurrierenden Moden anschwingen, so dass das Spektrum einer zeitlichen Variation unterliegt. Weiterhin ist durch die Dicke der Scheibe für bestimmte Wellenlängen eine weitere – aufgrund der hochtransmittierenden Beschichtung sehr weiche – Resonanzbedingung gegeben, die zu einer Modulation des Spektrums führt. Dabei sind die Maxima des modulierten Spektrums nicht präzise äquidistant, da einerseits die Form des unmodulierten Spektrums auch vom Verstärkungsprofil des Lasermaterials abhängt und andererseits die verwendeten Scheiben nicht exakt planparallel waren. In diesem Fall führt der durchschnittliche Abstand der Maxima von 0,95 nm auf eine mittlere Scheibendicke von etwa 0,315 mm, was in Anbetracht der Fertigungstoleranz und der Dicke der Beschichtungen von etwa 5,5  $\mu\text{m}$  in guter Übereinstimmung mit der für diese Scheibe vorgesehenen Dicke von 0,30 mm steht. Alle im Folgenden gezeigten Spektren wurden mit einem *Ocean Optics USB 2000* Handspektrometer aufgenommen. Aufgrund der geringeren spektralen Auflösung dieses Gerätes ist die durch diesen Etalon-Effekt verursachte Modulation der Emission nicht erkennbar. In diversen hochaufgelösten Messungen konnte jedoch belegt werden, dass diese stets vorhanden ist.

### c-cut Orientierung

In den Laserexperimenten mit den c-cut orientierten Kristallen zeigte sich, dass diese bei einer geringfügig kürzeren Wellenlänge von 973 nm gepumpt werden mussten, um die optimale Laserausgangsleistung zu erreichen. Dies ist damit zu begründen, dass die Absorption in diesem Kristall vermehrt in  $\sigma$ -Polarisation – deren Maximum etwas kurzwelliger liegt als in der  $\pi$ -Polarisation – stattfindet, da beide **a**-Achsen in der Scheibenebene liegen. Obwohl die verwendete Methode zur Berechnung der Absorption von gleichen effektiven Absorptionskoeffizienten für beide Orientierungen ausgeht<sup>1</sup>, darf davon ausgegangen werden, dass die tatsächliche Absorption der c-cut-Kristalle aufgrund der beiden in der Scheibenebene liegenden  $\sigma$ -Polarisationen höher ist als berechnet, während diese Methode für die a-cut-Kristalle tendenziell zu hohe Absorptionsraten liefert. Daher sind die angefertigten Kristalle in der Regel dünner als für a-cut Orientierung.

Mit den c-cut orientierten Kristallen war die Laseremission wie erwartet zufällig und nicht linear polarisiert, denn statt der bevorzugten  $\pi$ -Polarisation ist bei dieser Orientierung nur Lasertätigkeit in  $\sigma$ - oder "Pseudo"- $\sigma$ -Polarisation möglich. Mit einem 0,2 mm dicken 25 at.% Yb:LSB dieser Orientierung wurden 13,1 W mit einem differentiellen Wirkungsgrad von 42% erzielt. Für den 10%-dotierten Kristall von 0,4 mm Dicke lagen diese Werte bei 16,2 W und 51%. Bei einer errechneten Absorption von etwa 72% der Pumpleistung für diese beiden Kristalle ergeben sich normierte Wirkungsquerschnitte, die deutlich über denen von a-cut-orientierten Kristallen liegen. Da die Laseremission im letztgenannten Falle jedoch die  $\pi$ -Polarisation bevorzugt, obwohl auch die  $\sigma$ -Polarisation in der Scheibenebene liegt, erscheint dieses Resultat unrealistisch und liefert einen weiteren Hinweis auf die Ungenauigkeit der verwendeten Methode der Bestimmung des Anteils absorbierter Pumpleistung: Mit der 10%-dotierten Scheibe

<sup>1</sup>Dennoch auftauchende rechnerische Unterschiede in der Absorption für Kristalle gleicher Dicke ergeben sich lediglich aus der höheren erwarteten Schwelle für  $\sigma$ -polarisierte Lasertätigkeit, die zu einem höheren Ausbleichen der c-cut orientierten Kristalle führt.



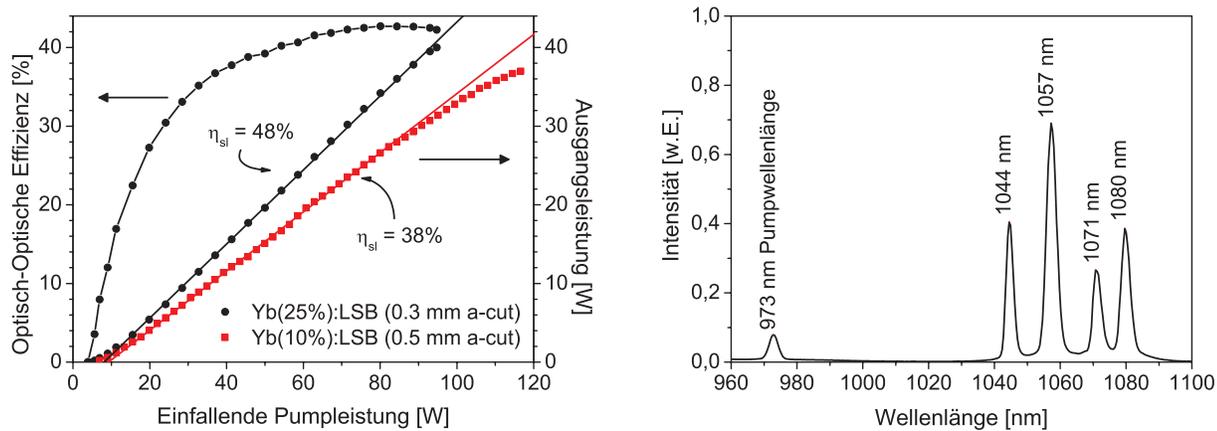
**Abbildung 6.8:** Differenzieller Wirkungsgrad in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad für verschieden dotierte und orientierte Yb:LSB-Kristalle

von 0,4 mm Dicke in **c-cut** Orientierung wurde bei geringfügig höherer Schwellpumpleistung ein vergleichbarer differentieller Wirkungsgrad erzielt wie für die identisch dotierte Scheibe von 0,6 mm Dicke in **a-cut** Orientierung. Somit ist also mindestens von einer vergleichbaren Absorption beider Scheiben auszugehen. Insgesamt war in den Laserexperimenten eine relativ starke Abhängigkeit des Wirkungsgrades vom Auskoppelgrad festzustellen. Wie in Abb. 6.8 dargestellt, kam es bereits bei Auskoppelgraden ab ca. 2,1% zu einem deutlichen Absinken des differentiellen Wirkungsgrades. Hingegen spricht der geringe Abfall der Effizienz für den geringsten systematisch untersuchten Auskoppelgrad von 0,4% für sehr geringe resonatorinterne Verluste (vgl. Abschnitt 6.4).

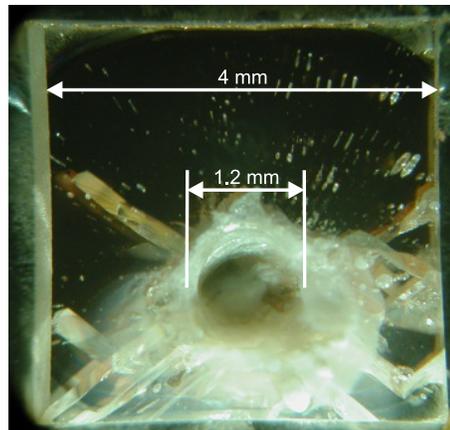
### Weitere Leistungsskalierung

In keinem der mit insgesamt 16 verschiedenen Kristallen durchgeführten Experimente unter Verwendung der 50 W-Pumpdiode kam es zu einer Beschädigung eines Kristalles. Hierdurch motivierte Experimente zur weiteren Leistungsskalierung wurden unter Verwendung der 140 W-Pumpdiode durchgeführt. Die Ergebnisse der mit **a-cut**-Proben durchgeführten Experimente sind in Abb. 6.9 auf der linken Seite dargestellt. Eine bereits für Experimente mit der 50 W-Diode verwendete 10 at.% Yb<sup>3+</sup>-dotierte LSB-Scheibe von 0,5 mm Dicke lieferte eine maximale Ausgangsleistung von 37 W bei einer Pumpleistung von 117 W. Dies entspricht einer optisch-optischen Effizienz von 32%. Der differentielle Wirkungsgrad betrug 38%. Ein leichter Abfall der Ausgangsleistung konnte für Pumpleistungen von über 95 W beobachtet werden, welcher bei Pumpleistungen über 105 W noch deutlicher wurde. Bei einer Pumpleistung von 120 W kam es schließlich zu einer Beschädigung des Kristalles (vgl. Abb. 6.10).

Da die hochreflektierende Beschichtung auf der Rückseite des Kristalles nur für eine maximale Pumpleistungsdichte von 5 kW/cm<sup>2</sup> ausgelegt war, während in diesem Experiment Werte von 10 kW/cm<sup>2</sup> überschritten wurden, wird davon ausgegangen, dass die Ursache der Beschädigung des Kristalles in einem Schaden an der hochreflektierenden Kristallrückseite zu suchen ist. Thermische Effekte im Kristall können als Ursache jedoch nicht gänzlich ausgeschlossen werden.

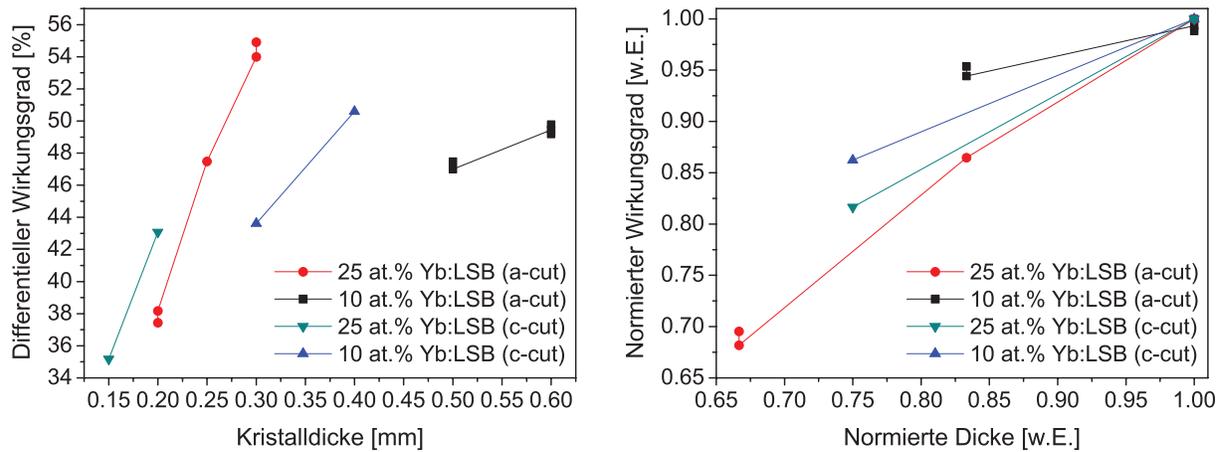


**Abbildung 6.9:** Links: Ausgangsleistungen in Abhängigkeit von der eingestrahelten Pumpleistung der 140 W-Pumpdiode für zwei unterschiedlich dotierte Yb:LSB-Kristalle bei einem Auskoppelgrad von 1,0%. Rechts: Laserspektrum bei mittleren Pumpleistungen mit gleichzeitiger Laseremission in vier deutlich verschiedenen Wellenlängenbereichen.



**Abbildung 6.10:** Fotografie der bei einer Pumpleistung von 120 W beschädigten 10 at.% Yb:LSB-Scheibe von 0,5 mm Dicke.

Eine höhere Effizienz konnte auch in diesen Experimenten mit dem 25 at.%  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Kristall von 0,3 mm Dicke erzielt werden. Bei einer Pumpleistung von 95 W wurden bei 40 W Ausgangsleistung eine optisch-optische Effizienz von 42% und ein differentieller Wirkungsgrad von 48% erreicht. Auf der rechten Seite von Abb. 6.9 ist ein während dieser Experimente beobachtetes Laserspektrum der 25 at.%-dotierten Scheibe mit gleichzeitiger Laseremission auf vier Wellenlängen dargestellt. Die im Vergleich mit der 50 W-Diode niedrigeren erzielten Effizienzen sind auf das bereits erwähnte ungeeigneter Emissionsprofil der 140 W-Diode und die eingeschränkte Möglichkeit der Optimierung der Pumpwellenlänge zurückzuführen. Der Vergleich des in Abb. 6.9 links aufgetragenen Verlaufes der gegen die Pumpleistung aufgetragenen Ausgangsleistungen beider mit der Hochleistungsdiode gepumpter Kristalle zeigt, dass sowohl für den 0,3 mm dicken 25 at.%-dotierten Kristall, als auch für wesentlich dickeren 10 at.%-dotierten Kristall das Abweichen vom linearen Verlauf bei etwa 95 W eingestrahelter Pumpleistung einsetzt. Dies ist ein Hinweis auf einen trotz der vergleichsweise niedrigen Wärmeleitfähigkeit von LSB sehr geringen Einfluss thermischer Effekte auf die Lasereigenschaften, denn eine haupt-



**Abbildung 6.11:** Links: Differentieller Laserwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Dicke der eingesetzten Yb:LSB-Scheibe für verschiedene Dotierungen und Orientierungen. Rechts: Daten aus dem linken Graphen in jeweils auf den maximalen differentiellen Wirkungsgrad und maximale untersuchte Kristalldicke normierten Einheiten.

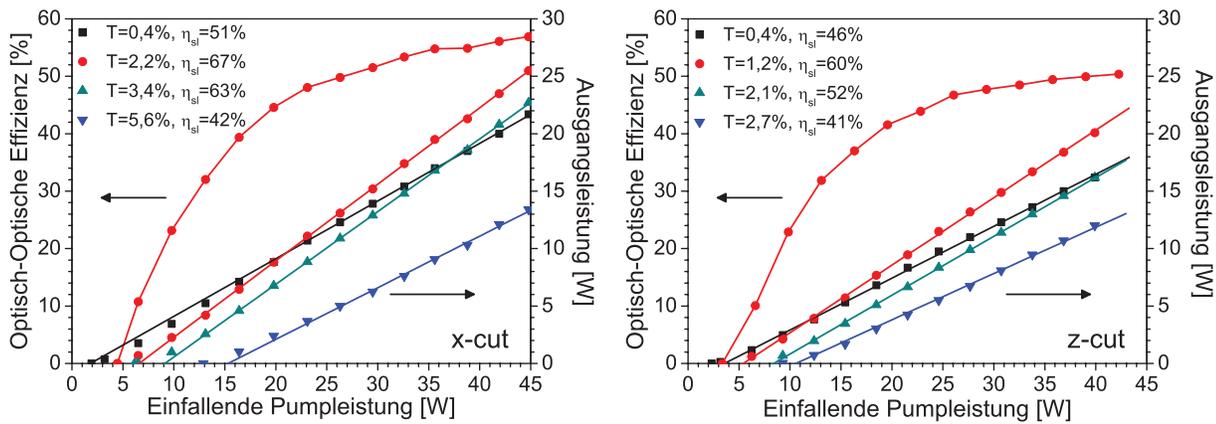
sächlich durch thermische Effekte entstehende Leistungseinbuße sollte sich bei einem dickeren Kristall schon bei geringeren Pumpleistungen zeigen.

Eine ähnliche Tendenz ist auch Abb. 6.11 links und der auf die jeweiligen Maximalwerte normierten Darstellung auf der rechten Seite von Abb. 6.11 zu entnehmen, in denen die Lasereffizienzen der unterschiedlich dotierten und orientierten Proben in Abhängigkeit von der Scheibendicke aufgetragen sind: Wie bereits in Abschnitt 6.2.2 vermutet, sind die präparierten Scheibendicken der Yb:LSB-Kristalle durchweg als zu dünn anzusehen. Dies äußert sich in allen Fällen in einem Anstieg der Lasereffizienz mit zunehmender Kristalldicke. Besonders in der normierten Darstellung auf der rechten Seite ist jedoch zu erkennen, dass der Anstieg für die dünneren und höher dotierten Kristalle steiler ist, als für die dickeren und geringer dotierten. Da beispielsweise in a-cut Orientierung die dickste Scheibe von 10 at.% Dotierung genau doppelt so dick wie die dickste Scheibe von 25 at.% Dotierung ist, sollte eine gleiche prozentuale Absenkung der Dicke im Falle der 10 at.%-dotierten Scheibe – aufgrund der nach den Gleichungen 5.8, 3.6 und 6.1 geringeren Gesamtabsorption – ein prozentual größeres Absinken der Absorption und damit der Effizienz zur Folge haben. Da dies nicht der Fall ist, lässt sich die Vermutung anstellen, dass im Falle der dicksten untersuchten Scheibe bereits thermische Effekte einsetzen. Für eine zuverlässige Aussage ist jedoch die Anzahl der untersuchten Dicken nicht ausreichend.

Dennoch lässt sich erwarten, dass bei Wahl einer geeigneten Kristalldicke der von J. Johannsen [Joh04] im Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-gepumpten Betrieb erreichte differentielle Wirkungsgrad von 64% insbesondere mit den 25 at.%-dotierten Scheiben in a-cut Orientierung auch im Scheibenlaseraufbau zu erreichen ist.

### 6.3.2 Yb:YCOB

Vom Yb:YCOB standen nur Proben einer Yb<sup>3+</sup>-Dotierung von 15 at.% zur Verfügung. Die korrespondierende Ionendichte von  $6,9 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  entspricht dabei etwa der Hälfte der Ionendichte im meistbenutzten Scheibenlasermaterial Yb:YAG bei der momentan als optimal geltenden Dotierungskonzentration von 10 at.%. In Anbetracht der geringen Wärmeleitfähigkeit

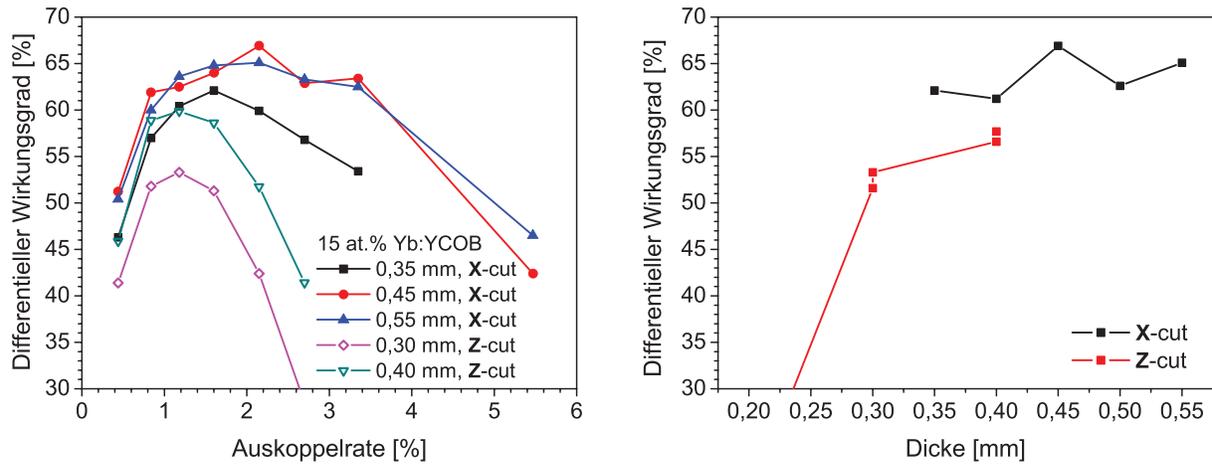


**Abbildung 6.12:** Ausgangsleistung gegen einfallende Pumpleistung für verschiedene Auskoppelgrade für 15 at.% Yb:YCOB-Kristalle verschiedener Orientierungen im Scheibenlaseraufbau. Links: 0,45 mm Dicke, X-cut Orientierung, rechts: 0,40 mm Dicke, Z-cut Orientierung.

von Yb:YCOB von nur 1,9 W/m·K wurden daher von diesem Material zunächst nur Proben in der Orientierung maximaler Absorption, also mit X- und Y-Achse in Scheibenebene (Z-cut) (vgl. Abb. 5.14 auf S. 80) mit relativ geringen Dicken bestellt. Diese Vorgehensweise wurde zusätzlich motiviert durch kürzlich von Liu et al. [Liu07b] publizierte Resultate mit effizientem Laserbetrieb nicht nur entlang der nach Abb. 5.22 bevorzugten  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ -Polarisation, sondern auch entlang der  $\vec{E} \parallel \mathbf{X}$ -Polarisation. Nachdem in ersten Experimenten jedoch auch in diesem Material keine offensichtlichen thermischen Probleme auftraten, wurden weitere Kristalle in X-cut Orientierung mit im Mittel größeren Dicken in Auftrag gegeben. Alle zur Verfügung stehenden Scheiben mit den jeweiligen erzielten Ausgangsleistungen und Wirkungsgraden im Scheibenlaser finden sich im Anhang D in Tab. D.4.

### X-cut Orientierung

In Abb. 6.12 ist die Ausgangsleistung gegen die einfallende Pumpleistung für die jeweils den effizientesten Laserbetrieb ermöglichenden Kristalldicken in den beiden Orientierungen für verschiedene Auskoppelgrade aufgetragen. Mit dem X-cut orientierten Kristall von 0,45 mm Dicke konnten die in dieser Abbildung links dargestellten höchsten im Rahmen dieser Arbeit erzielten Lasereffizienzen erzielt werden. Mit einem verglichen mit den anderen untersuchten Materialien hohen optimalen Auskoppelgrad von 2,3% konnte ein differentieller Wirkungsgrad von 67% realisiert werden. Bei einer niedrigeren Schwelle und nur geringfügiger Effizienzeinbuße konnte mit einem 1,6% Auskoppelspiegel die maximale Ausgangsleistung von 26 W bei 44,8 W eingestrahelter Pumpleistung, entsprechend einer optisch-optischen Effizienz von 58% realisiert werden. Die mit dem Auskoppelspiegel von 0,4% ermittelte Schwellpumpleistung für den Laserbetrieb von 1,9 W stellt zudem die niedrigste Schwelle aller in dieser Arbeit untersuchten Kristalle dar. Die Laseremission war in allen Fällen erwartungsgemäß in  $\vec{E} \parallel \mathbf{Z}$ -polarisiert. Die Laserwellenlänge verschob sich mit steigendem Auskoppelgrad von ca. 1057 nm bei  $T = 0,4\%$  in Richtung kürzerer Wellenlängen bis zu 1035 nm bei 2% Auskopplung. Bei höheren Auskoppelgraden änderte sich die Wellenlänge nicht weiter.

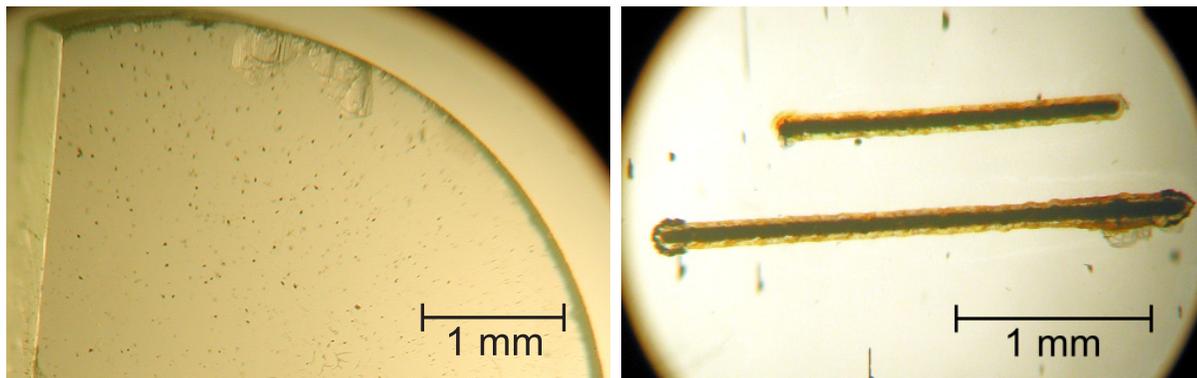


**Abbildung 6.13:** Links: Differentieller Wirkungsgrad von 15 at.% Yb:YCOB in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad für verschiedene Kristalldicken und Orientierungen. Rechts: Maximaler differentieller Wirkungsgrad derselben Scheiben in Abhängigkeit von der Kristalldicke.

### Z-cut Orientierung

Die besten Ergebnisse mit den **Z-cut** orientierten Proben wurden mit der dicksten zur Verfügung stehenden Scheibe von 0,4 mm Dicke erzielt. Eine maximale Ausgangsleistung von 20,1 W bei 40 W eingestrahelter Pumpleistung konnte mit einem Auskoppelspiegel von 1,2% Transmission für die Laserwellenlänge erzielt werden. In nicht in Abb. 6.12 dargestellten Ergebnissen mit Auskoppelspiegeln von 0,8% und 1,6% Transmission für die Laserwellenlänge konnte eine ähnliche Leistung wie für den 1,2% Auskoppelspiegel erzielt werden. Der differentielle Wirkungsgrad wie auch die optisch-optische Effizienz lagen mit maximal 60% bzw. 50% unter den mit den **X-cut** orientierten Kristall erzielten Resultaten. Für den Auskoppelspiegel mit  $T = 0,4\%$  betrug die Pumpleistungsschwelle für den Laserbetrieb nur 2,3 W, was ebenfalls unter den mit den anderen Materialien erzielten Schwellen liegt. In Kristallen dieser Orientierung betrug die Wellenlänge der Laseremission stets 1035 nm und die Emission war parallel zur **X**-Achse polarisiert.

In Abb. 6.13 ist die Abhängigkeit des differentiellen Wirkungsgrades vom Auskoppelgrad und von der Kristalldicke dargestellt. Es zeigt sich, dass mit **X-cut** orientierten Scheiben nicht nur für alle dargestellten Dicken bessere Effizienzen erzielt werden können als dies mit **Z-cut**-Kristallen der Fall ist, sondern dass überdies höhere Auskoppelgrade verwendet werden können und selbst mit über 5% Auskopplung noch Wirkungsgrade von beinahe 50% erzielt werden können. Im rechten Teil der Abbildung ist zu erkennen, dass bei Verwendung dickerer Kristalle mit **Z-cut** Orientierung möglicherweise noch höhere Effizienzen zu erzielen sind, während im Falle der **X-cut** orientierten Kristalle keine weitere Leistungssteigerung zu erwarten ist. In allen mit Yb:YCOB als aktivem Material im Scheibenlaser durchgeführten Experimenten konnte kein negativer Einfluss der frequenzverdoppelnden Eigenschaft des nicht-zentrosymmetrischen Wirtsgitters festgestellt werden.

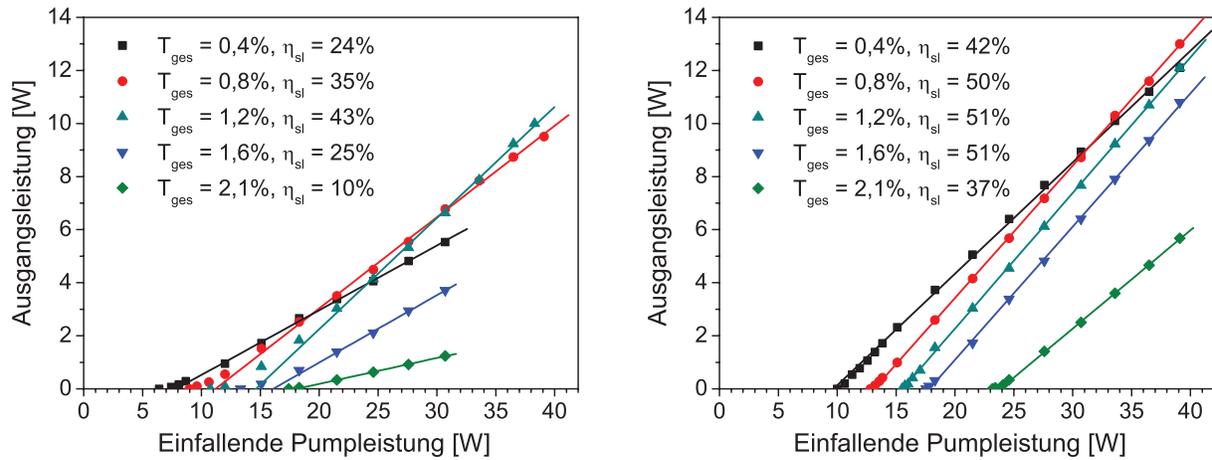


**Abbildung 6.14:** Links: Mikroskopaufnahme eines Teils des zur Präparation der Scheibenlasereperimente verwendeten 1,6 at.% Yb:YVO-Boules mit deutlich erkennbaren Einschlüssen. Rechts: Mikroskopaufnahme eines mittels des HEM-Verfahrens hergestellten 3,1 at.% Yb:YVO-Kristalles nach erfolglosen Lasereperimenten.

### 6.3.3 Yb:YVO und Yb:LuVO

Für die Lasereperimente mit den  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Vanadaten wurden zwei Kristalle mit Dotierungen von 1,6 at.% (YVO) bzw. 1,5 at.% (LuVO) verwendet. Aufgrund der geringfügig unterschiedlichen Kationendichten in beiden Materialien ergibt sich in beiden Fällen eine  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionendichte von  $2,0 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ , die um mehr als einen Faktor sechs niedriger liegt, als die für Yb:YAG als optimal beurteilte Ionendichte. Allerdings sind für  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierte Vanadate bisher keine Literaturdaten zu Laserbetrieb mit wesentlich höheren Dotierungskonzentrationen zu finden. Aussagen von V. Petrov [Pet07b] über erfolglose Lasereperimente mit 5 at.% Yb:GdVO<sub>4</sub> decken sich mit den Ergebnissen der mit einem am ILP mittels des HEM-Verfahrens hergestellten 3,1 at.%-dotierten Yb:YVO-Kristall durchgeführten eigenen Experimente. Auch bei diesen Experimenten konnte unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Pumpen trotz sorgfältiger Justage keine Lasertätigkeit erzielt werden. Im Laufe der Experimente kam es stattdessen an Einschlüssen innerhalb des Kristalles zu einer Zerstörung, die sich bei Veränderung der Kristallposition als Spur über die gesamte Kristalloberfläche zog (vgl. Abb. 6.14 rechts).

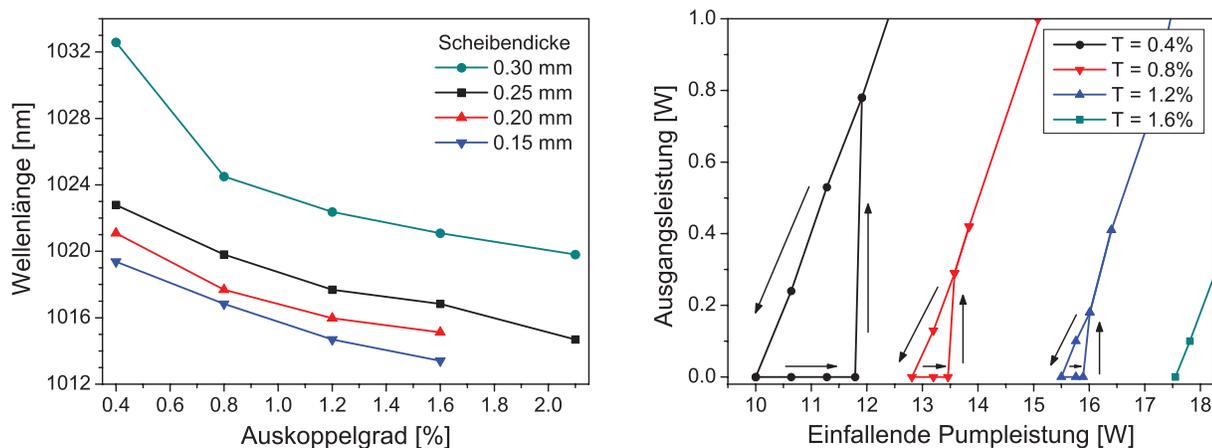
Trotz der geringen Dotierungskonzentration der für den Scheibenlaserbetrieb präparierten Kristalle ergaben sich aufgrund der hohen Absorptionswirkungsquerschnitte dieser Materialien schon für Scheiben in a-cut Orientierung mit Dicken zwischen 0,15 mm und 0,35 mm sinnvolle Absorptionsraten. Die besten Resultate sind in Abb. 6.15 dargestellt, einige Daten zu den mit den anderen Scheiben erzielten Laserparametern finden sich im Anhang D in Tab. D.1 und Tab. D.2. Bei diesen Experimenten ergab sich für beide Materialien aufgrund der für  $\text{Yb}^{3+}$  in oxidischen Wirtsgittern vergleichsweise langen Wellenlänge maximaler Absorption um 985 nm die Problematik, dass die Laserdiode für maximale Absorptionseffizienz oberhalb der vom Hersteller empfohlenen Betriebstemperaturen betrieben werden musste. In diesem Temperaturbereich kam es bereits zu einem relativ starken Absinken der Ausgangsleistung der Pumpdiode mit weiter zunehmender Temperatur, so dass die Laserausgangsleistung trotz eines möglicherweise verbesserten Anteils der Absorption sank. Somit kann nicht ausgeschlossen werden, dass mit noch höheren Betriebstemperaturen und damit verbundener noch langwelligerer Diodemission geringfügig effizienterer Laserbetrieb erzielt werden könnte.



**Abbildung 6.15:** Links: Ausgangsleistung gegen einfallende Pumpleistung für verschiedene Auskoppelgrade für einen 1,6 at.% Yb:YVO-Kristall von 0,25 mm Dicke im Scheibenlaseraufbau. Rechts: Ausgangsleistung gegen einfallende Pumpleistung für verschiedene Auskoppelgrade für einen 1,5 at.% Yb:LuVO-Kristall von 0,35 mm Dicke im Scheibenlaseraufbau.

## Yb:YVO

Im Falle von Yb:YVO als aktivem Material konnten die besten Resultate mit einer 0,25 mm dicken Scheibe erzielt werden. Die Ausgangsleistung war in allen Fällen  $\pi$ -polarisiert und betrug maximal 10 W bei einer eingestrahelten Pumpleistung von 38 W. Der hieraus resultierende niedrige optisch-optische Wirkungsgrad von nur 26% kann begründet werden mit einer vergleichsweise hohen Schwelle von 10,8 W mit dem verwendeten Auskoppelspiegel von 1,2% Transmission für die Laserwellenlänge. Hieraus ergibt sich ein differentieller Wirkungsgrad von 43%. Bei Verwendung von Auskoppelspiegeln mit höherem Auskoppelgrad kam es zu einer deutlichen Erhöhung der für den Laserbetrieb nötigen Schwellpumpleistung auf über 17 W. Dies wie auch der deutliche Abfall der Effizienz bei Verwendung des Auskoppelspiegels von 0,4% Transmission für die Laserwellenlänge spricht für relativ große parasitäre Verluste, die aufgrund der einfachen Resonatorgeometrie nur auf den Kristall und dessen Beschichtung zurückgeführt werden können. Für die Verluste kann teilweise die in Abschnitt 6.2.4 dargelegte Problematik der sehr stark von den Werten für YAG abweichenden Brechzahlen, welche zu einer Abweichung der Beschichtungseigenschaften von den gewünschten Eigenschaften führt, verantwortlich gemacht werden. Aber auch die in Abb. 6.14 links zu erkennenden schwarzen Einschlüsse im Kristall tragen mit großer Wahrscheinlichkeit zu diesen Verlusten bei. Beide genannten Phänomene könnten ebenfalls der Grund für die Zerstörung der dicksten für Laserexperimente präparierten Yb:YVO-Scheibe von 0,3 mm Dicke bei einer Pumpleistung von 50 W sein. Mit Scheiben geringerer Dicke sank im Falle von Yb:YVO die Effizienz deutlich ab, was hauptsächlich auf den zu geringen Anteil absorbiertes Leistung zurückzuführen ist. Es ist daher davon auszugehen, dass mit Yb:YVO prinzipiell auch im Scheibenlaser der mit Kristallen aus demselben Boule unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Pumpen erzielte differentieller Wirkungsgrad von 46% [Krä04] bei Einsatz dickerer Scheiben erreicht werden kann. Die Variation der Laserwellenlänge für Yb:YVO in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad für verschiedene Kristalldicken ist in Abb. 6.16 links dargestellt. Die beobachteten Wellenlängen zwischen 1032 nm für die dickste Scheibe bei der geringsten Auskopplung und 1013 nm für den höchsten verwendeten



**Abbildung 6.16:** Links: Laserwellenlänge in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad für verschiedene Kristalldicken von Yb:YVO. Rechts: Darstellung der Hysterese der Ausgangsleistung einer 0,35 mm dicken Yb:LuVO-Scheibe im Bereich der Laserschwelle für verschiedene Auskoppelgrade.

Auskoppelgrad mit der dünnsten Scheibe stehen in guter Übereinstimmung mit den Maxima der Verstärkungswirkungsquerschnitte in  $\pi$ -Polarisation für Inversionen zwischen  $\beta = 0,11$  und  $0,35$ .

### Yb:LuVO

Unter Verwendung von Yb:LuVO konnten mit der dicksten Scheibe von 0,35 mm Dicke die besten Resultate erzielt werden. Mit Auskoppelgraden von 0,8% bis 1,6% konnten jeweils differentielle Wirkungsgrade von knapp über 50% erzielt werden. Die maximal erzielte Ausgangsleistung betrug 13 W bei einer Pumpleistung von 39,1 W, resultierend in einem optisch-optischen Wirkungsgrad von 34%. Die Laseremission war in allen Fällen  $\pi$ -polarisiert. Unter Verwendung eines Auskoppelspiegels von nur 0,4% Transmission für die Laserwellenlänge sank der differentielle Wirkungsgrad im Vergleich zur maximal erzielbaren Effizienz deutlich geringer als im Falle von Yb:YVO. Dies spricht dafür, dass die Verluste in diesem Kristall niedriger sind als in den Yb:YVO-Scheibenlaserkristallen. Dennoch liegen die Schwellpumpleistungen für Yb:LuVO deutlich über denen von Yb:YVO und denen aller anderen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien und nehmen für die untersuchten Auskoppelgrade Werte zwischen 10 W und 23,2 W an. Für Kristalle mit Dicken von 0,15 mm und 0,2 mm konnte die Schwelle selbst bei Pumpleistungen von 25 W nicht erreicht werden. Bereits bei dieser Pumpleistung kam es in drei Fällen zu einer starken Beschädigung des Kristalles, die dem Schadenbild der in Abb. 6.10 dargestellten beschädigten Yb:LSB-Scheibe ähnelte. Für andere Yb:LuVO-Kristalle wurde hiernach ohne Laserbetrieb eine Pumpleistung von 20 W nicht mehr überschritten. So konnte nur noch mit zwei identischen 0,25 mm dicken Scheiben Laserbetrieb realisiert werden, allerdings in beiden Fällen mit differentiellen Wirkungsgraden von weniger als 30%. Dieser deutliche Unterschied zur 0,35 mm dicken Scheibe kann nicht alleine mit der verminderten Absorptionseffizienz erklärt werden, denn während der dickere Kristall rechnerisch 96% der Pumpleistung absorbiert, sollten die Scheiben von 0,25 mm Dicke immerhin noch 88% absorbieren.

In Anbetracht der verglichen mit Yb:YVO geringfügig höheren Absorptionswirkungsquer-

schnitte und der größeren Scheibendicke können die beobachteten sehr hohen Pumpleistungsschwellen für den Laserbetrieb nicht auf einen geringeren Anteil der absorbierten Pumpleistung zurückzuführen sein. Beim Vergleich der in Abb. 6.15 dargestellten Leistungskurven fällt weiterhin auf, dass diejenigen von Yb:LuVO nicht das für Yb<sup>3+</sup>-dotierte Materialien charakteristische flache ‐Auslaufen‐ der Leistungskurve in Richtung der Schwelle aufweisen. Hierdurch motiviert wurden genauere Untersuchungen des Verhaltens an der Schwelle durchgeführt.

### **Bistabilität an der Schwelle**

In diesen Untersuchungen konnte ein sehr deutliches bistabiles Verhalten der Laseremission beobachtet werden: Bei Verwendung beispielsweise eines Auskoppelgrades von 0,4% konnte im gut justierten Zustand die Pumpleistung bis auf 11,8 W erhöht werden, ohne dass die Laseroszillation einsetzte. Bei einer Pumpleistung von 11,9 W setzte die Laseroszillation ein und es stellte sich umgehend eine stabile Ausgangsleistung von 0,78 W ein. Bei weiterer Erhöhung der Pumpleistung folgte die Laserleistung der in in Abb. 6.15 dargestellten Leistungskurve. Beim Verringern der Pumpleistung ergab sich bis zu einer Pumpleistung von 11,9 W der identische Verlauf. Beim Absenken der Pumpleistung unter diesen Wert folgte die Leistungskurve jedoch weiterhin dem linearen Verlauf und die Laserausgangsleistung konnte kontinuierlich bis auf null heruntergefahren werden. Die so entstehenden Hystereseschleifen für verschiedene Auskoppelgrade sind in Abb. 6.16 auf der rechten Seite dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass dieser Effekt mit zunehmendem Auskoppelgrad geringer wird und bei einem Auskoppelgrad von 1,6% nicht mehr zu beobachten ist. Im Gegensatz zu Yb:LuVO konnte dieser Effekt mit Yb:YVO-Scheiben nicht beobachtet werden.

J. Liu et al. konnten diesen Effekt etwa gleichzeitig mit den im Rahmen dieser Arbeit getätigten Beobachtungen ebenfalls mit Yb<sup>3+</sup>-dotiertem LuVO und GdVO im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator, aber nicht mit anderen untersuchten Yb<sup>3+</sup>-dotierten Materialien beobachten [Liu06a]. Erklären lässt sich dieser Effekt folgendermaßen: Durch die aufgrund der hohen Reabsorptionsrate sehr hohe zum Erreichen der Laseroszillation notwendige Inversion und die damit verbundene sehr hohe Schwellpumpleistung von Yb:LuVO kommt es schon vor dem Erreichen der Laserschwelle zu einem signifikanten Anstieg der Temperatur innerhalb des Kristalles. Dies führt aufgrund der geringen Stark-Aufspaltung der Vanadate zu einer deutlichen Erhöhung der thermischen Besetzung des Laserzielniveaus und damit zu vermehrter Reabsorption, womit sich die notwendige Inversion weiter erhöht. Solange die Laseroszillation nicht einsetzt, ist die Lebensdauer der angeregten Zustände so lang, dass über Migration ein gewisser Anteil der Energie in nichtstrahlenden Zerfallsprozessen als Wärme an den Kristall abgegeben wird. Beim Einsetzen der Laseroszillation wird die Verweildauer in den angeregten Zuständen durch die stimulierte Emission drastisch verringert. Damit steigt der Anteil der über strahlende Zerfälle aus dem Kristall abtransportierten Energie deutlich an. Dies hat eine reduzierte Wärmeproduktion im Kristall zur Folge. Solange die Laseroszillation nun aufrechterhalten bleibt, überwiegen die strahlenden Zerfälle und der Kristall hat damit unterhalb der beim Erhöhen der Pumpleistung beobachteten Schwelle eine niedrigere Temperatur als ohne Laseroszillation. Wird nun der Auskoppelgrad erhöht, so steigt in jedem Laserkristall die zum Erreichen der Laseroszillation notwendige Inversion. Durch die hiermit verbundene größere Dichte angeregter Ionen steigt auch der Anteil der nichtstrahlenden Zerfälle, was bei großen Auskoppelgraden zu einer Verminderung der Effizienz des Laserbetriebs führt. In Yb:LuVO verringert sich nun

offensichtlich das Ausmaß der Hysterese mit zunehmendem Auskoppelgrad, weil sich das Verhältnis von strahlender zu nichtstrahlender Relaxation aus dem genannten Grund im Laserbetrieb weniger stark von dem ohne Laserbetrieb unterscheidet. Die reale Situation dürfte jedoch wesentlich komplizierter sein, da eine Erhöhung der thermischen Besetzung eines Laserzielniveaus auch das Ausweichen auf ein anderes und damit eine Änderung der Laserwellenlänge und/oder -Polarisation zur Folge haben kann.

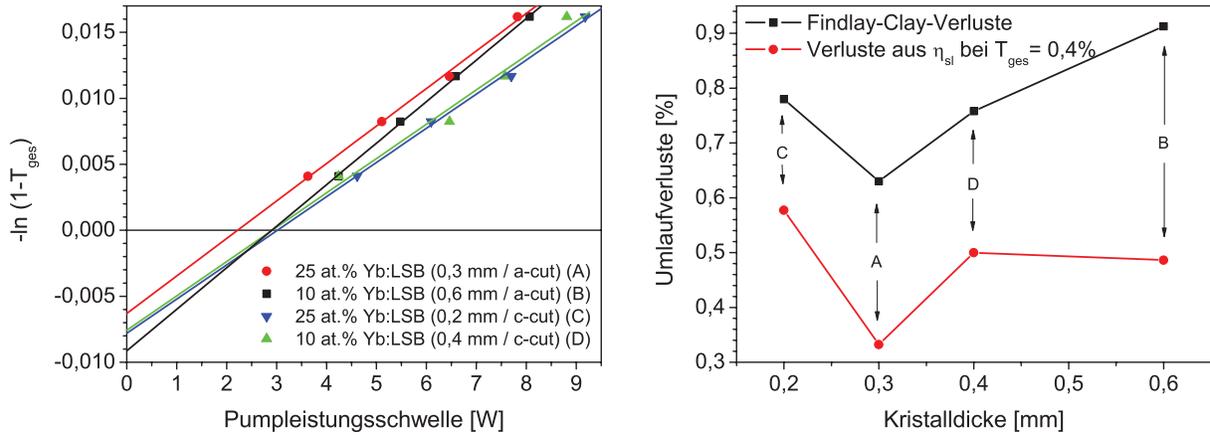
Liu et al. konnten durch Experimente mit einer modulierten Anregungsquelle, in denen sich das Ausmaß der Hysterese beträchtlich verringerte, nachweisen, dass mit großer Wahrscheinlichkeit thermische Effekte die Hauptursache für diese Beobachtung sind. Eine verbleibende Hysterese wurde zurückgeführt auf eine inhomogene Verteilung der Pumpleistung im Laserkristall, welche im hinteren Teil des Kristalles zu dem Effekt eines sättigbaren Absorbers führt. Diese Experimente konnten aufgrund der geschlossenen Pumpgeometrie im Scheibenlaser nicht nachvollzogen werden. Im Zwei-Pass-Aufbau hingegen war die zur Verfügung stehende Pumpleistung bei 985 nm nicht ausreichend um die Laserschwelle zu erreichen. Aufgrund der sehr homogenen Verteilung der Pumpleistung im Scheibenlaserkristall wäre zu erwarten, dass der Effekt völlig verschwindet.

Der hier erklärte Effekt könnte auch teilweise dafür verantwortlich sein, dass nur mit einem von insgesamt 12 für Scheibenlaserexperimente präparierten Yb:LuVO-Kristallen effizienter Laserbetrieb realisiert werden konnte. Wie bereits im Abschnitt 5.1 beschrieben, wies der Stab aus dem die Yb:LuVO-Scheibenlaserkristalle präpariert wurden, einen deutlichen Gradienten der Gelbfärbung entlang der Längsachse auf. Stellt diese Gelbfärbung nun einen Hinweis auf die Kristallqualität dar, so ist es möglich, dass schon eine geringe Veränderung der Anzahl der Zentren, an denen nichtstrahlende Zerfälle erfolgen können, zu einem deutlichen Ansteigen des oben beschriebenen Bistabilitätseffektes führt und damit die Schwelle für den Laserbetrieb deutlich steigt.

## 6.4 Abschätzung der resonatorinternen Verluste

Anhand der im letzten Abschnitt gewonnenen Daten für die Schwellpumpleistungen in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad wurde versucht, die Resonatorverluste nach der Methode von Findlay und Clay [Fin66] zu bestimmen. Diese Methode nutzt den sich aus den Ratengleichungen ergebenden und auch für Quasi-3-Niveau-Systeme gültigen linearen Zusammenhang zwischen der Schwellpumpleistung und den Resonatorverlusten. Bei einer graphischen Auftragung dieser Daten liefert der Theorie zufolge der Ordinatenschnittpunkt der linearen Extrapolation die Resonatorumlaufverluste. Bei Vernachlässigung des mit zunehmenden Auskoppelgrad ansteigenden Ausbleichfaktors stellt die Absorptionseffizienz in dieser Methode lediglich einen Faktor dar, der die Steigung der Geraden, nicht aber den Ordinatenschnittpunkt beeinflusst. Da diese einfache Abschätzung die bei höheren Auskoppelraten und damit verbundenen höheren Inversionsraten vermehrt auftretenden Energietransferprozesse nicht berücksichtigt, ist die Gültigkeit auf geringe Auskoppelgrade beschränkt.

Tatsächlich ergibt sich beispielsweise für die vier in Abb. 6.7 mit je einer Leistungskurve vertretenen Yb:LSB-Kristalle für Auskoppelraten zwischen 0,4% und 1,6% ein linearer Zusammenhang, der in Abb. 6.17 links dargestellt ist. Bei der Auftragung der resultierenden Kristallverluste gegen die Dicke im rechten Teil der Abbildung ergibt sich wie erwartet ein leichter



**Abbildung 6.17:** Links: Auftragung der logarithmischen Auskoppelverluste gegen die gemessene Schwellpumpleistung und lineare Extrapolation für verschieden dotierte und orientierte Yb:LSB-Scheibenlaserkristalle. Rechts: Vergleich der mit der Findlay-Clay-Methode ermittelten Resonatorumlaufverluste mit dem über den differentiellen Wirkungsgrad bei Verwendung eines Auskoppelspiegels mit 0,4% Transmission ermittelten oberen Grenzwert für die Verluste. Die Buchstaben A-D markieren in der linken und rechten Abbildung dieselben Kristalle.

Anstieg der Resonatorverluste mit zunehmender Kristalldicke. Der Ordinatenschnittpunkt einer möglichen Extrapolation auf Null könnte nach dieser Interpretation als Wert der nicht kristalldickenabhängigen Verluste, die vor allem durch Streuung am Auskoppelspiegel und den Beschichtungen entstehen, interpretiert werden. Die resultierenden Werte für die resonatorinternen Verluste erscheinen jedoch unrealistisch hoch.

Daher wurde über eine einfache Abschätzung ein oberer Grenzwert für die resonatorinternen Verluste vorgenommen: Betrachtet man für die resonatorinterne Leistung nur zwei Verlustkanäle – nämlich die gezielte Auskopplung  $T_{2,l}$  und die unerwünschten resonatorinternen Verluste  $L_{ges,l}$  – so verhalten sich die Wirkungsgrade der über diese beiden Verlustkanäle abgeführten Leistung umgekehrt proportional zum Verhältnis der Verlusten zum Auskoppelgrad (vgl. z. B. [Sve93]):

$$\frac{L_{ges,l}}{T_{2,l}} = \frac{\eta_{sl}}{\eta_L}, \quad (6.3)$$

worin  $\eta_{sl}$  und  $\eta_L$  die Wirkungsgrade der Leistungsabführung über den Auskoppelspiegel bzw. die Kristallverluste darstellen. Der maximal erzielbare differentielle Wirkungsgrad eines Lasersystems wird neben vielen nicht trivial zu bestimmenden Faktoren vor allem vom Stokes-Wirkungsgrad  $\eta_{St} = v_l/v_p$  begrenzt. Im Falle der Yb:LSB-Scheibenlaserkristalle mit einer Pumpwellenlänge von etwa 973 nm und einer Emissionswellenlänge von mindestens 1020 nm für die hier betrachteten Auskoppelgrade beträgt dieser etwa 95%. Selbst unter Vernachlässigung aller anderen die Leistung einschränkenden Faktoren – insbesondere der Absorptionseffizienz – ist hiernach offensichtlich, dass beispielsweise für den bei einem Auskoppelgrad von 0,4% mit über 50% differentiellem Wirkungsgrad betriebenen 25 at.% Yb:LSB-Kristall in a-cut Orientierung die Resonatorverluste geringer sein müssen als der Auskoppelgrad. Die sich nach dieser konservativen Abschätzung ergebenden oberen Grenzwerte für die Resonatorverluste sind zum Vergleich ebenfalls in Abb. 6.17 rechts eingetragen. Die hier nicht dargestellten Werte für andere Kristalle lagen ebenfalls durchweg unter den mit der Findlay-Clay-Methode bestimmten Verlusten. Der Grund hierfür dürfte hauptsächlich in der Tatsache zu finden sein, dass die

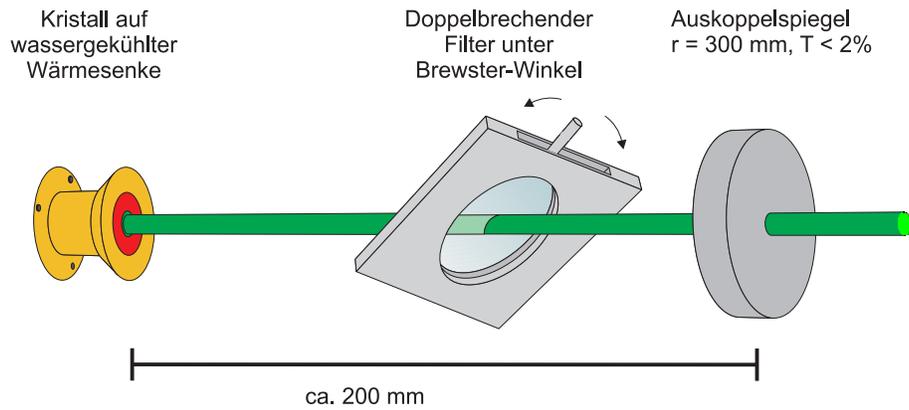
gemessenen Schwellen nicht mit den tatsächlichen “mittleren” Schwellwerten der gesamten, relativ großen Modenfläche im Scheibenlaser übereinstimmen, sondern die Laseroszillation in gewissen Bereichen durch Inhomogenitäten des Pumpspots oder der Dotierungskonzentration schon wesentlich früher einsetzt. Aber auch unter Verwendung der Abszissenschnittpunkte der Fit-Geraden für die differentiellen Wirkungsgrade als Schwellpumpleistung sanken die nach Findlay und Clay bestimmten Verluste nur knapp unter die mittels der oben genannten Abschätzung ermittelten oberen Grenzwerte. Die mit der Findlay-Clay-Methode ermittelten Schwellen würden weiter sinken, wenn die tatsächlich an der Schwelle absorbierte Leistung verwendet würde, da diese aufgrund des Ausbleichens bei hohen Auskoppelgraden prozentual geringer ist als bei geringen Auskoppelgraden, was zu einer geringeren Steigung der Fit-Geraden und damit einem niedrigeren Wert des Ordinatenabschnittes führen würde. Aufgrund der Ungenauigkeiten in der Bestimmung der absorbierten Leistung und des relativ hohen Aufwandes dieser Vorgehensweise erscheint die Findlay-Clay-Methode auch in Anbetracht des im Vergleich zum Resultat sehr großen Fehlers beim linearen Fit durch nur vier Messpunkte für die Bestimmung der resonatorinternen Verluste im  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Scheibenlasermedium als nicht geeignet.

Die Abschätzung der Verluste über die Effizienz beim geringsten verwendeten Auskoppelgrad bei Berücksichtigung der berechneten Absorptionseffizienz führt insgesamt zu dem Schluss, dass für die Verluste der zur Verfügung stehenden Kristalle – mit Ausnahme von Yb:YVO – der für Scheibenlaserkristalle typischerweise angegebene Wert von 0,1% durchaus realistisch erscheint. Für Yb:YVO werden diese Verluste um einen Faktor 2 bis 3 höher eingeschätzt.

## 6.5 Spektrale Durchstimbarkeit im Scheibenlaseraufbau

Unter Verwendung eines doppelbrechenden Filters unter Brewster-Winkel als wellenlängenselektierendem Element (vgl. Abschnitt 2.3.5) wurden mit allen untersuchten Lasermaterialien Experimente zur spektralen Durchstimbarkeit der Laseremission im Scheibenlaser durchgeführt. Der Scheibenlaseraufbau erscheint dabei im Vergleich zu einem longitudinal gepumpten Laseraufbau besonders geeignet für den sehr kurzwelligen Betrieb bei hohem Stokes-Wirkungsgrad. Im longitudinal gepumpten Laseraufbau verfolgt das Pumplicht üblicherweise den gleichen Strahlengang wie die Resonatormode. Daher muss zumindest ein Resonatorspiegel hochtransmittierend für die Pump- aber hochreflektierend für die Laserwellenlänge sein. Liegen diese Wellenlängen sehr nahe beieinander, stellt dies hohe Anforderungen an die verwendeten Resonatorspiegel. Im Scheibenlaser hingegen sind die Strahlengänge von Pump- und Laserstrahlung völlig voneinander entkoppelt, so dass mit den ohnehin vorhandenen breitbandigen Beschichtungen von Auskoppelspiegel und Kristallrückseite für den Bereich möglicher Laserwellenlängen die nötigen Voraussetzungen für breitbandig durchstimmbaren Laserbetrieb gegeben sind.

Um für den in einer Vorrichtung zum Drehen gehaltenen doppelbrechenden Filter unter Brewster-Winkel im Resonator platzieren zu können, musste der für die Leistungsskalierungsexperimente verwendete Auskoppelspiegel von 100 mm Krümmungsradius durch einen Auskoppelspiegel mit 300 mm Krümmungsradius ausgetauscht und die Resonatorlänge auf etwa 200 mm erhöht werden. Der Leistungsabfall im Vergleich zum kürzeren Resonator erwies sich als gering. Eine schematische Darstellung des für alle Experimente zur Untersuchung der spek-

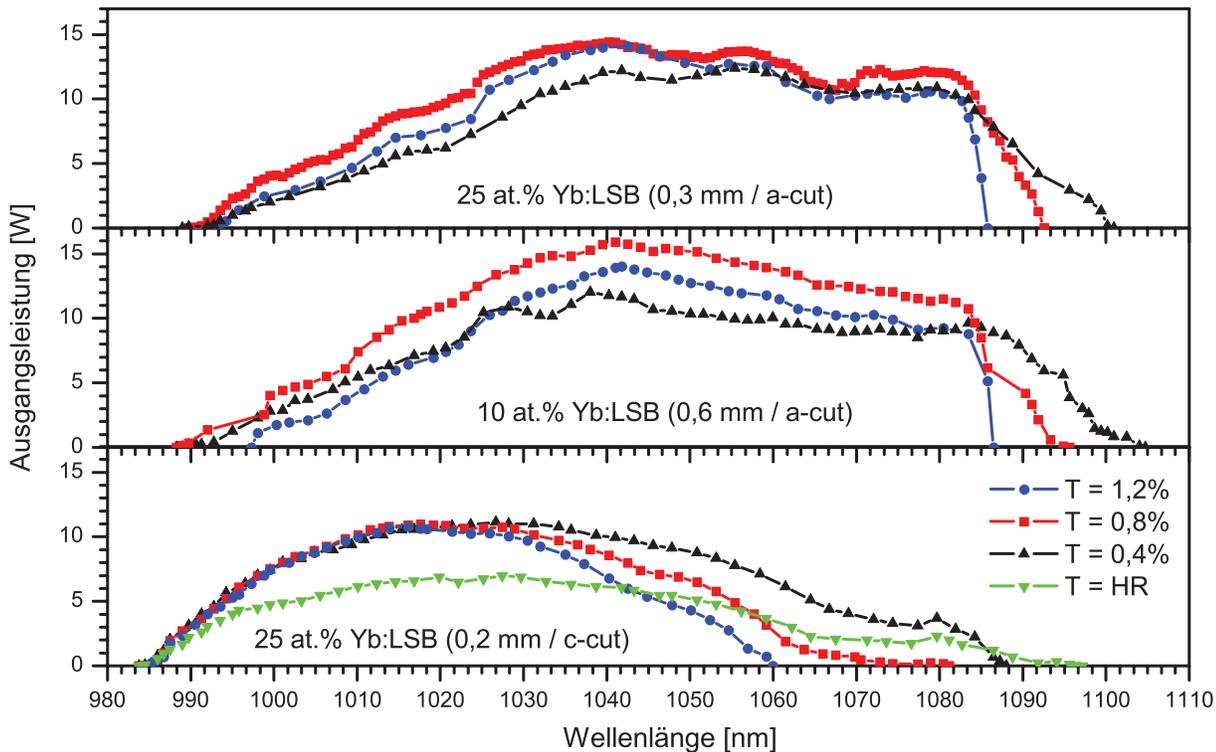


**Abbildung 6.18:** Vereinfachte schematische Darstellung des Aufbaus zur Untersuchung der spektralen Durchstimmbarkeit der Laseremission. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde das um den Kristall angeordnete Pumpmodul in dieser Abbildung nicht dargestellt.

tralen Durchstimmbarkeit verwendeten Resonators ist in Abb. 6.18 gegeben. Besonders bei Verwendung von Auskoppelspiegeln mit einer geringen Transmission für die Laserwellenlänge wurde stets ein Teil der Laserleistung über die Reflexion am doppelbrechenden Filter ausgekoppelt. Anhand des Verhältnisses der durch den Auskoppelspiegel emittierten Leistung zu der am Filter reflektierten konnte die zusätzliche Auskopplung je nach Justage auf etwa 0,1% bis 0,2% abgeschätzt werden.

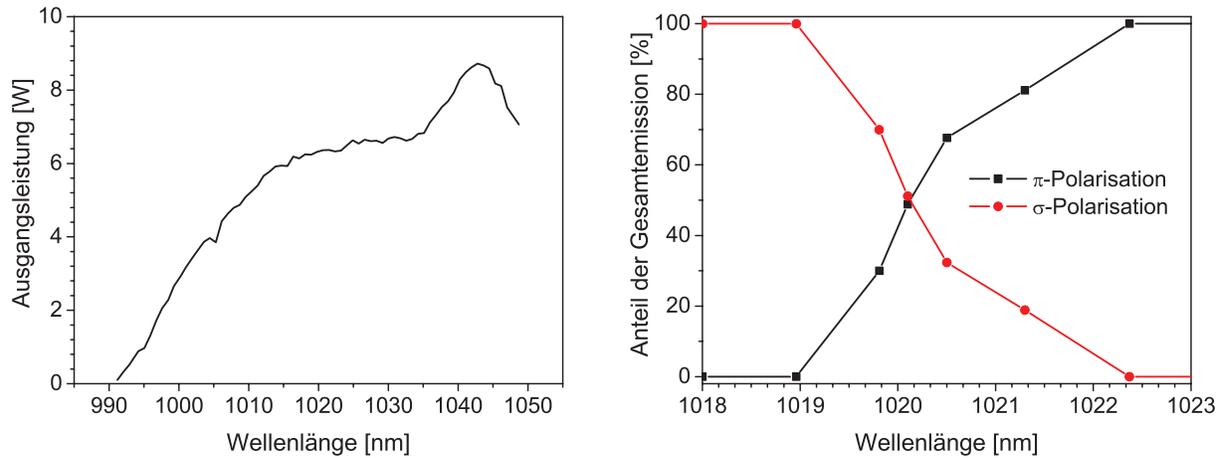
### Yb:LSB

Zunächst wurden Durchstimmexperimente mit Yb:LSB als aktivem Material durchgeführt. Da sich in den Skalierungsexperimenten gezeigt hatte, dass die Yb:LSB Scheiben eine Unterbrechung des Resonators auch bei hohen Pumpleistungen ohne Schaden überstehen, wurden diese bei einer Pumpleistung von 50 W aus der 140 W-Diode durchgeführt. Die Resultate dieser Experimente sind in Abb. 6.19 dargestellt. Für alle untersuchten Yb:LSB-Scheiben konnte ein kontinuierlicher spektraler Durchstimmbereich von über 100 nm mit maximalen Ausgangsleistungen von über 10 W realisiert werden. In dieser Konfiguration konnte der Lasertätigkeit über den breitesten spektrale Durchstimmbereich mit einer 10 at.% Yb:LSB-Scheibe von 0,6 mm Dicke in **a**-cut Orientierung erzielt werden (vgl. Abb. 6.19 mitte). Unter Verwendung eines breitbandigen Auskoppelspiegels mit nahezu konstanter Transmission von 0,4% für alle erzielten Laserwellenlängen konnte Laserbetrieb zwischen 988,3 nm und 1104,8 nm über einen Wellenlängenbereich von insgesamt 116,5 nm realisiert werden. Die Ausgangsleistung betrug dabei über einen Wellenlängenbereich von 80 nm mehr als die Hälfte der maximalen Ausgangsleistung von 12 W bei 1038 nm. Mit einem Auskoppelgrad von 0,8% konnte die Ausgangsleistung über einen weiten Wellenlängenbereich erhöht werden und erreichte ein Maximum von 15,9 W. Jedoch verringerte sich der spektrale Durchstimmbereich besonders im langwelligen Bereich um etwa 10 nm. Ein Auskoppelspiegel von  $T = 1,2\%$  brachte keine Verbesserung und führte zu niedrigeren Ausgangsleistungen und einem geringeren spektralen Durchstimmbereich, jedoch wurde in diesem Falle quasi die gesamte Ausgangsleistung durch den Auskoppelspiegel emittiert. Nahezu identische Resultate konnten mit einer 0,3 mm dicken 25 at.%-dotierten Scheibe in derselben Orientierung erzielt werden. Mit beiden Scheiben konnte unter Verwendung eines



**Abbildung 6.19:** Resultate der Durchstimmexperimente für unterschiedliche Kristallorientierungen und Dotierungen von Yb:LSB mit einem 1 mm dicken doppelbrechenden Quarzfilter bei einer Pumpleistung von 50 W aus der 140 W Pumpdiode für verschiedene Auskoppelgrade.

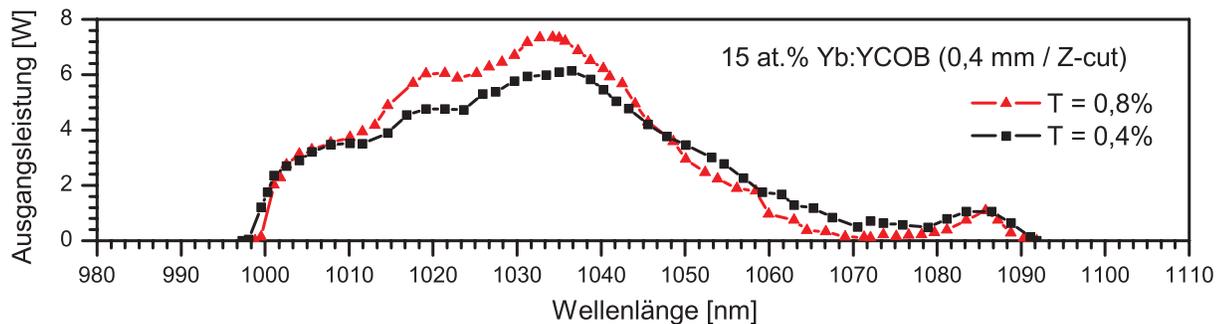
hochreflektierenden Auskoppelspiegels mit weniger als 0,1% Transmission für die Laserwellenlänge auch Laserbetrieb mit geringer Ausgangsleistung bei Wellenlängen bis zu 1120 nm realisiert werden, allerdings war dieser nicht stabil und kontinuierlich durchstimmbar. Es ist allerdings anzumerken, dass sowohl die in Abb. 6.5 dargestellten Reflexions- bzw. Transmissionseigenschaften der Scheibenbeschichtungen als auch die Transmissionseigenschaften der meisten verwendeten Spiegel sich im spektralen Bereich ab ca. 1100 nm deutlich verschlechterten. Somit kann nicht ausgeschlossen werden, dass Yb:LSB vor allem in Richtung des langwelligeren spektralen Bereiches noch ein größeres Durchstimmpotential aufweist. Auch mit einem c-cut orientierten Yb:LSB Kristall von 25 at.% Dotierung und 0,2 mm Dicke konnte verglichen mit anderen breitbandig spektral durchstimmbaren Lasersystemen wie Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [Alb86] oder Cr-dotierten Systemen [Sor05] noch sehr effizienter durchstimmbarer Laserbetrieb erzielt werden, zumal auch diese Experimente mit der weniger geeigneten 140 W-Pumpdiode durchgeführt wurden. Auffällig ist bei den mit Kristallen dieser Orientierung erzielten spektralen Durchstimmkurven deren ungewöhnlich geringe Strukturierung. Wie anhand der Verstärkungswirkungsquerschnitte in Abb. 5.21 und der Laserwellenlänge im freilaufenden Betrieb schon zu vermuten war, liegt die Wellenlänge der maximalen Ausgangsleistung von etwa 11 W in dieser Orientierung mit ca. 1017 nm wesentlich kurzwelliger als in a-cut Orientierung. Hieraus resultiert selbst mit dem Auskoppelspiegel von 1,2% Transmission für die Laserwellenlänge eine geringfügig weitere Durchstimmbarkeit in den kurzwelligen Bereich bis hinunter zu Wellenlängen von 984 nm. In dieser Orientierung wies die maximale Ausgangsleistung eine weniger starke Abhängigkeit vom verwendeten Auskoppelspiegel auf, die spektrale Durchstimmbarkeit



**Abbildung 6.20:** Links: Durch Verkippen eines dielektrisch beschichteten Glasplättchens mit einfallswinkelabhängiger Transmissionscharakteristik erzielte Resultate der Durchstimmexperimente mit Yb:LSB bei 31 W Pumpleistung aus der 50 W Pumpdiode. Rechts: Polarisation der emittierten Strahlung in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge.

in den langwelligen Wellenlängenbereich verringerte sich jedoch von 1097 nm bei Verwendung eines hochreflektierenden Auskoppelspiegels auf 1060 nm beim Einsatz eines Auskoppelgrades von 1,2%.

Wie ebenfalls schon anhand der Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte in Abb. 5.21 erwartet werden konnte, weist der durchstimmbare Laserbetrieb in  $\sigma$ -Polarisation des  $c$ -cut orientierten Kristalles ab einer Wellenlänge von etwa 1020 nm die höhere Effizienz auf als der  $a$ -cut Kristall. Um die Vermutung des Wechsels der Polarisation zu überprüfen, wurden weitere Durchstimmexperimente mit einem dielektrisch beschichteten Glasplättchen durchgeführt, welches in Abhängigkeit vom Einfallswinkel eine unterschiedliche Wellenlänge maximaler Transmission aufweist. Das spektrale Durchstimmen erfolgte durch einfaches Verkippen des Plättchens im Resonator. Aufgrund der relativ hohen Reflexion des Plättchens von je nach Wellenlänge etwa 1% wurde für diese Experimente ein hochreflektierender Auskoppelspiegel verwendet, so dass nahezu die gesamte Auskopplung über das beschichtete Glasplättchen erfolgte. Diese Art des spektralen Durchstimmens erlaubt ein Anschwingen der Laseroszillation auf beiden Polarisationen. In Abb. 6.20 sind auf der linken Seite die Ergebnisse der Durchstimmexperimente mit diesem Element dargestellt. Der spektrale Durchstimmbereich im langwelligen Bereich war hierbei begrenzt durch die Wellenlänge minimaler Reflexion bei senkrechtem Einfall auf das Plättchen von etwa 1048 nm. In Abb. 6.20 auf der rechten Seite ist der Verlauf der Polarisation der Laseremission im Wellenlängenbereich zwischen 1018 nm und 1023 nm dargestellt. Es ist zu erkennen, dass in diesem Bereich tatsächlich ein Wechsel der Polarisation stattfindet. Unter Verwendung eines nicht polarisationsselektierenden Elementes ist es also prinzipiell möglich, die Verstärkungsbandbreiten beider Polarisationen zu kombinieren und damit den Durchstimmbereich dieses Materials und insbesondere den ohnehin schon ungewöhnlich breiten spektralen Bereich hoher Ausgangsleistungen noch zu erweitern.



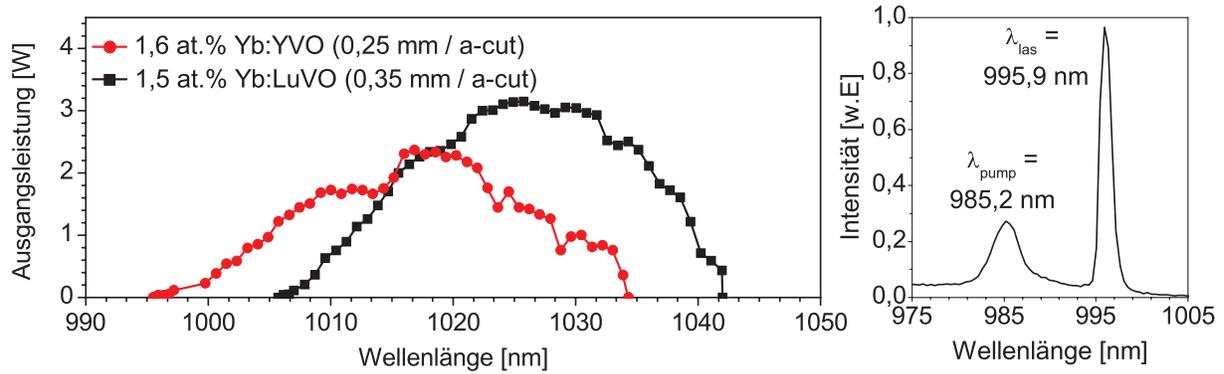
**Abbildung 6.21:** Resultate der Durchstimmexperimente mit einer 15 at.% Yb:YCOB-Scheibe von 0,3 mm Dicke in Z-cut Orientierung unter Verwendung eines 1 mm dicken doppelbrechenden Quarzfilters bei einer Pumpleistung von 30 W aus der 50 W Pumpdiode für verschiedene Auskoppelgrade.

## Yb:YCOB

Die Durchstimmexperimente mit den Yb:YCOB-Scheibenlaserkristallen wurden mit der 50 W-Diode durchgeführt. Um eine Zerstörung der Kristalle zu vermeiden und um die Emissionswellenlänge der Diode über den für die Durchstimmexperimente notwendigen längeren Zeitraum konstant halten zu können, wurden diese Experimente bei einer Pumpleistung von nur 30 W durchgeführt. In Abb. 6.21 sind die Ergebnisse dieser Experimente mit einer Z-cut orientierten 15 at.% Yb:YCOB-Scheibe in derselben Wellenlängenskalierung wie bei den Ergebnissen der Durchstimmexperimente mit Yb:LSB in Abb. 6.19 dargestellt. Der mit diesem Material erzielte spektrale Durchstimmbereich beträgt 95 nm zwischen 997 nm und 1092 nm und ist damit deutlich geringer, als es anhand der Spektren der Verstärkungswirkungsquerschnitte in Abb. 5.22 zu erwarten gewesen wäre. Obwohl der spektrale Durchstimmbereich bei Verwendung von Auskoppelspiegeln mit 0,4% oder 0,8% Transmission für die Laserwellenlänge nahezu unverändert bleibt, konnte bereits mit einem Auskoppelgrad von 1,2% im Bereich zwischen 1070 nm und 1080 nm keine Lasertätigkeit mehr realisiert werden. Die maximale Ausgangsleistung von 7,4 W in diesen Experimenten wurde bei einer Wellenlänge von ca. 1035 nm erzielt. Auch diese Ausgangsleistung ist trotz der geringen Auskoppelverluste am doppelbrechenden Filter deutlich niedriger, als in den Experimenten ohne Durchstimmelement im Resonator bei vergleichbarer Pumpleistung. Beide Effekte können auf während vorheriger Experimente aufgetretene Defekte am Durchstimmelement zurückgeführt werden, die zu Streuverlusten führen: Durch die notwendige Justage am Durchstimmelement kam es bei hohen Leistungen häufig zu einer Unterbrechung des Resonators mit der Folge hoher Spitzenleistungen bei den Relaxationsoszillationen im Zuge des Wiedereinsetzens der Laseroszillation. In ersten mit X-cut orientierten Yb:YCOB-Kristallen durchgeführten Experimenten konnte daher nur ein Durchstimmbereich zwischen ca. 1000 nm und 1065 nm realisiert werden. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, dass der spektrale Durchstimmbereich und insbesondere die Effizienz unter Verwendung eines unbeschädigten Durchstimmelementes noch gesteigert werden können.

## Yb:YVO und Yb:LuVO

Aufgrund der bereits beobachteten Beschädigung einiger Kristalle bei Pumpleistungen um 25 W und sogar schon darunter wurden die Experimente zur spektralen Durchstimmbarkeit der Yb<sup>3+</sup>-dotierten Vanadate im Scheibenlaser bei einer Pumpleistung von nur etwa 24,6 W durchge-



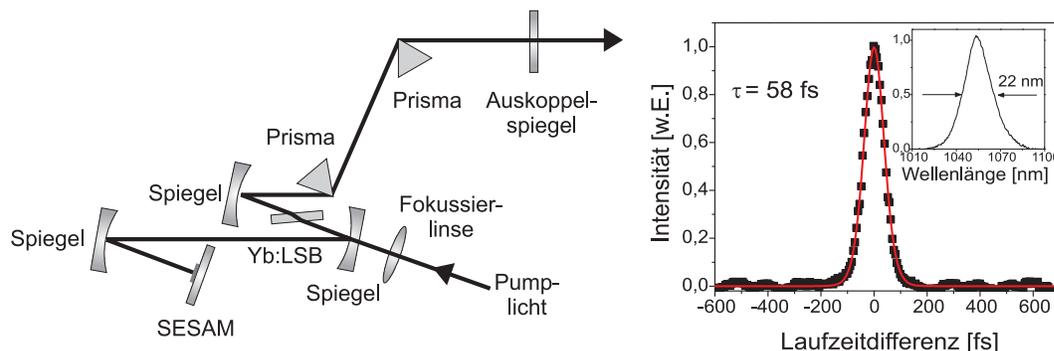
**Abbildung 6.22:** Links: Resultate der Durchstimmexperimente für 1,6 at.% Yb:YVO und 1,5 at.% Yb:LuVO mit einem 1 mm dicken doppelbrechenden Quarzfilter bei einer Pumpleistung von 24,6 W aus der 50 W Pumpdiode und 0,4% Auskopplung. Rechts: Spektrum der Pump- und Laserwellenlänge bei der kürzesten in Yb:YVO beobachteten Wellenlänge.

führt. Die resultierenden Durchstimmkurven mit einem zu diesem Zeitpunkt noch unbeschädigten Durchstimmelement sind in Abb. 6.22 links dargestellt. Während mit einer Yb:YVO-Scheibe von 0,25 mm Dicke unter Verwendung eines 0,4% transmittierenden Auskoppelspiegels ein Durchstimmbereich von 996 nm bis 1034 nm realisiert werden konnte, gelang es, den Yb:LuVO-Kristall von 0,35 mm Dicke zwischen 1006 nm und 1042 nm spektral durchzustimmen. Obwohl anhand des Vergleiches der Verstärkungswirkungsquerschnitte beider Materialien ablesbar ist, dass für Yb:LuVO das Maximum der Verstärkung geringfügig langwelliger liegt als im Falle von Yb:YVO, ist der deutlich kurzwelliger liegende Durchstimmbereich von Yb:YVO ein weiterer Hinweis auf erhöhte Verluste in diesem Material. Die geringen Ausgangsleistungen während dieser Experimente sind auf die im Vergleich zu den hohen Schwellpumpleistungen beider Materialien niedrigen eingestrahlten Pumpleistungen zurückzuführen. Auf der rechten Seite von Abb. 6.22 ist ein Spektrum der Pump- und Laserwellenlänge bei der kürzesten beobachteten Wellenlänge von Yb:YVO dargestellt. Bei einer Pumpwellenlänge von 985,2 nm konnte eine Laserwellenlänge von 995,9 nm realisiert werden, der geringe Quantendefekt von nur 1,07% gehört zu den niedrigsten jemals mit  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien realisierten. Bei der Bewertung dieses Ergebnisses ist jedoch anzumerken, dass die Ausgangsleistung in diesem Falle nur wenige 10 mW bei nahezu 25 W Pumpleistung betrug, es kann also nicht davon ausgegangen werden, dass der geringe Quantendefekt den Wärmeintrag im Kristall verminderte.

## 6.6 Modengekoppelte Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator

In Kooperation mit der Gruppe von V. Petrov am Max-Born-Institut in Berlin wurden mit einem eigens für diese Zwecke angefertigten Yb:LSB-Volumenkristall von 15 at.% Dotierung und 3 mm Länge Experimente zur Erzeugung von modengekoppelten Pulsen unter Verwendung eines sättigbaren Halbleiterspiegels (SESAM) [Kel03] durchgeführt.

Der für die Erzeugung möglichst kurzer Pulse gewählte Resonatoraufbau für diese Experimente ist in Abb. 6.23 links dargestellt. Da der Laserkristall nicht mit einer Beschichtung zur Vermeidung von Reflexion des Pump- und Laserlichtes versehen worden war und daher



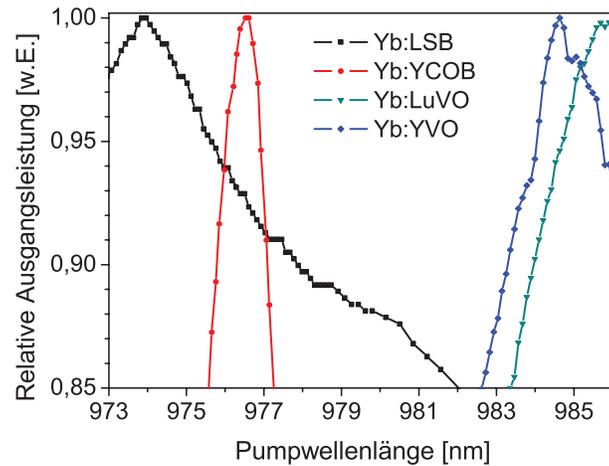
**Abbildung 6.23:** Links: Schematische Darstellung des Resonatoraufbaus für die modengekoppelten Laserexperimente mit Yb:LSB. Rechts: Autokorrelationskurve und Spektrum der nach externer Pulskompression kürzesten in diesem Aufbau unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Pumpen erzielten Pulse mit Yb:LSB.

unter dem Brewster-Winkel in den Resonator eingebracht werden musste, wurde er aufgrund der größeren Bandbreite für Laseremission in  $\pi$ -Polarisation im Resonator orientiert. Hierdurch wurde die Absorption des polarisierten Pumplichtes auf etwa 50% begrenzt. Das passive Modenkoppeln wurde durch Verwendung eines sättigbaren Halbleiterspiegels (SESAM) mit sättigbaren Verlusten von 0,5% und vernachlässigbaren nicht sättigbaren Verlusten sowie einer Sättigungsfluenz von  $20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  als Resonatorendspiegel erzielt. Zur Dispersionskompensation und Wellenlängenselektion wurden zusätzlich zwei SF10-Prismen im Resonator platziert.

Unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Pumpen konnten mit diesem Aufbau Pulse von 72 fs Länge und 79 mW mittlerer Leistung bei einer absorbierten Pumpleistung von 510 mW und einer zentralen Emissionswellenlänge von 1053 nm realisiert werden. Durch externe Pulskompression der nicht bandbreitenbegrenzten Pulse von 22 nm spektraler Breite (FWHM) mit einem zweiten Prismenpaar konnten diese unter geringer Leistungseinbuße auf 58 fs komprimiert werden. Eine Autokorrelationskurve dieser Pulse ist in Abb. 6.23 rechts dargestellt. Diese Pulse gehören zu den kürzesten jemals mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten Materialien erzielten.

Unter Verwendung einer Laserdiode mit ebenfalls linear polarisierter Emission wurden die kürzesten Pulse bei einer Pumpleistung von 2 W erzielt. Vor der externen Pulskompression betrug die Pulslänge 82 fs bei einer mittleren Leistung von 47 mW, nach der externen Kompression 67 fs bei 39 mW Ausgangsleistung. Die Pulsrepetitionsrate betrug in beiden Fällen 90 MHz. Die geringeren Ausgangsleistungen unter Diodenpumpen werden auf die geringere Absorption der etwa 4 nm breiten Diodenemission in der schmaleren  $\pi$ -polarisierten Absorptionsbande zurückgeführt. Hier besteht unter Verwendung hochtransmittierend beschichteter Kristalle, die in  $\sigma$ -Polarisation gepumpt werden könnten, Optimierungspotential.

Durch Verdrehen der im Resonator platzierten Prismen konnte die zentrale Wellenlänge der Pulse in einem weiten spektralen Bereich zwischen 1028 nm und 1057 nm variiert werden, wobei die Pulslänge im gesamten Bereich unter 200 fs lag und im kurzwelligen Spektralbereich möglicherweise durch die Transmissionseigenschaften des zum Einkoppeln der Pumpe verwendeten Spiegels begrenzt war. Weitere Details zu diesen von S. Rivier durchgeführten Experimenten finden sich in [Riv07b].



**Abbildung 6.24:** Darstellung der Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Pumpwellenlänge für Yb:LSB, Yb:YCOB, Yb:LuVO und Yb:YVO. Der Verlauf dieser Kurven hängt vom Gesamtanteil absorbiertes Leistung und der tatsächlichen Pumpleistung ab, daher geben diese Kurven nur die generelle Tendenz wieder. Das Abszissenintervall spiegelt die komplette Emissionsbandbreite der 50 W-Diode wieder.

## 6.7 Fazit der Laserexperimente

Mit allen untersuchten Materialien konnten durch die Verwendung der Scheibenlaser-Anordnung die Ausgangsleistungen in Bereiche skaliert werden, die bisher mit diesen Materialien nicht erreicht worden waren. Dies zeigt, dass dieses Konzept geeignet ist die Ausgangsleistung von Lasermaterialien mit ausreichender Absorptionsfähigkeit in auf andere Weise nur schwer erreichbare Leistungsbereiche zu skalieren. Auch die Ergebnisse der spektralen Durchstimmexperimente in Verbindung mit den realisierten hohen Ausgangsleistungen sind bisher mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten Materialien in keinem anderen Experiment übertroffen worden.

Die beste Effizienz im Laserbetrieb wurde dabei unter Verwendung von Yb:YCOB-Scheiben in X-cut Orientierung erzielt. Der erreichte differentielle Wirkungsgrad von maximal 67% ist vergleichbar mit den mit Yb:YAG erreichbaren Wirkungsgraden von knapp über 70% und kann möglicherweise unter Verwendung von höher dotierten Kristallen noch verbessert werden. Für die weitere Leistungsskalierung dieses Materials in naher Zukunft könnte sich allerdings die von allen untersuchten Materialien geringste spektrale Akzeptanz der Nullphononenlinie als problematisch erweisen, wie durch den Vergleich einzelner Beispiele für jedes Material in Abb. 6.24 verdeutlicht wird. Der spektrale Durchstimmbereich dieses Materials ist deutlich größer als im Falle von Yb:YAG. Allerdings konnte der anhand der spektroskopischen Daten als sehr groß eingeschätzte Durchstimmbereich im Scheibenlaser-Aufbau bisher nicht vollständig erschlossen werden.

Auch die mit den untersuchten Yb:LSB-Scheiben erreichten differentielle Wirkungsgrade von maximal 55% müssen vor dem Hintergrund der für die Bestimmung der notwendigen Scheibendicken als zu niedrig eingeschätzten Absorptionswirkungsquerschnitte als vielversprechend betrachtet werden. Der Verlauf der Wirkungsgrade mit der Dicke der Scheiben spricht dafür, dass diese unter Verwendung dickerer Kristalle mit der höchsten möglichen Dotierung von 25 at.% noch zu optimieren sind. In den Experimenten mit der 140 W-Pumpdiode konnte das große Potential zur weiteren Leistungsskalierung mit diesem Material demonstriert werden.

In den spektralen Durchstimmexperimenten wurde Lasertätigkeit nahezu im gesamten anhand der spektroskopischen Untersuchungen erwarteten spektralen Bereich von über 110 nm realisiert. Die hiermit demonstrierte extrem große und unstrukturierte Verstärkungsbandbreite von Yb:LSB konnte ausgenutzt werden, um in ersten Experimenten zur Modenkopplung mit diesem Material Pulslängen von 58 fs zu erzielen, die zu den kürzesten jemals mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten Materialien realisierten gehören. Anhand dieser Resultate muss Yb:LSB als sehr geeignet für die Erzeugung kurzer Pulse bei hohen Ausgangsleistungen im Scheibenlaser betrachtet werden.

Die mit den Vanadaten erzielten Ergebnisse im Scheibenlaserbetrieb müssen als vorläufig betrachtet werden. Zwar deuten die mit Yb:LuVO-Scheiben erreichten differentiellen Wirkungsgrade von bis zu 51% ein gewisses Potential dieses Materials an, jedoch konnte dieses Resultat mit keiner anderen der insgesamt 12 untersuchten Scheiben auch nur annähernd erreicht werden. Die verglichen mit den anderen untersuchten Materialien hohen Schwellen sowohl unter Verwendung von Yb:YVO- als auch von Yb:LuVO-Scheiben sowie das durch thermische Effekte verursachte bistabile Verhalten von Yb:LuVO an der Schwelle deuten darauf hin, dass diese Materialien nur bedingt für die weitere Leistungsskalierung im Scheibenlaser geeignet sind. Darauf deutet auch der vergleichsweise große Anteil bei relativ geringen Pumpleistungen beschädigter Kristalle hin. Das volle Potential beider Materialien konnte jedoch in Ermangelung einer Pumpdiode mit optimaler Emissionswellenlänge sicher noch nicht ausgeschöpft werden. Schon in den Skalierungsexperimenten, aber besonders in den Durchstimmexperimenten, in denen vom erwarteten spektralen Durchstimmbereich nur der kurzwelligere Teil für Lasertätigkeit erschlossen werden konnte, deuteten sich erhöhte resonatorinterne Verluste an. Dies ist in beiden Materialien zumindest teilweise auf die deutlich von den gewünschten Werten abweichenden Reflexionseigenschaften der ursprünglich für Yb:YAG optimierten Beschichtungen zurückzuführen. Zumindest in Yb:YVO kann jedoch auch davon ausgegangen werden, dass durch unter dem Mikroskop deutlich erkennbare Einschlüsse Verluste verursacht werden.

# 7 Resümee

## 7.1 Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit war die Untersuchung der Ytterbium-dotierten Borate  $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  und  $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  sowie der Vanadate  $\text{YVO}_4$  und  $\text{LuVO}_4$  auf ihre Eignung als aktives Material für den Einsatz im Scheibenlaser bei hohen Ausgangsleistungen. Das besondere Interesse galt dabei der spektralen Verstärkungsbandbreite dieser Materialien, welche sie für den Einsatz als breitbandig durchstimmbare Laserquellen und die Erzeugung kurzer Laserpulse im modengekoppelten Betrieb geeignet erscheinen lässt. Zunächst erfolgte eine umfassende spektroskopische Charakterisierung der Materialien. Mit den gewonnenen Erkenntnissen und den aus der Literatur bekannten kristallographischen Eigenschaften konnte eine vorläufige Beurteilung der Eignung dieser Materialien auf ihren Einsatz im Scheibenlaser vorgenommen werden. Die für den Betrieb im Scheibenlaser notwendigen Scheibendicken wurden bestimmt und entsprechende Laserkristalle präpariert. Mit diesen wurden umfangreiche Experimente zur Skalierung der Ausgangsleistung im Dauerstrichbetrieb im Scheibenlaseraufbau durchgeführt. In weiteren Untersuchungen wurde die spektrale Durchstimbarkeit der Laserwellenlänge für die verschiedenen Materialien untersucht. Im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator wurden zudem mit Yb:LSB erste Experimente zur Erzeugung kurzer Pulse durchgeführt.

Im spektroskopischen Teil dieser Arbeit wurde zunächst ein Fokus auf die detaillierte Untersuchung der Lebensdauern der oberen  $^2\text{F}_{5/2}$ -Multipletts von  $\text{Yb}^{3+}$  in den vier genannten Wirtsmaterialien gelegt. Hierzu wurde die Pinhole-Methode angewandt und verbessert, um die tatsächliche, nicht durch Reabsorptionseffekte verfälschte Lebensdauer bestimmen zu können. Für Yb:LSB und Yb:YVO lagen dabei Kristallproben verschiedener Dotierungen vor, so dass eine Aussage über die Abhängigkeit der Lebensdauer von der Dotierungskonzentration getroffen werden konnte. Während in Yb:LSB das schon von J. Johannsen [Joh04] beobachtete und erklärte deutliche Anwachsen der ermittelten Lebensdauern mit der Dotierungskonzentration bestätigt werden konnte, ergab sich in Yb:YVO nur ein leichter Anstieg der Lebensdauer um ca. 10% bei den höchsten untersuchten Dotierungskonzentrationen von 5 at.%. Da dieser Anstieg auch bei anderen am Institut für Laser-Physik untersuchten Wirtsmaterialien beobachtet werden konnte, ist es möglich, dass es sich hierbei nicht um eine Materialeigenschaft handelt. Vielmehr kann vermutet werden, dass es bei hohen Dotierungskonzentrationen und den damit verbundenen hohen Reabsorptionsraten zu einer wiederholten Reabsorption der Photonen innerhalb des detektierten Volumens kommt und damit die für die Herleitung des linearen Zusammenhangs zwischen Blenden-Durchmesser und gemessener Fluoreszenzlebensdauer getätigten Annahmen nicht mehr exakt gültig sind. Der Vergleich zu den ohne Blende gemessenen Lebensdauern belegt jedoch, dass auch in diesen Fällen die Pinhole-Methode noch ein wichtiges Hilfsmittel zur Unterdrückung lebensdauerer verlängernder Reabsorptionseffekte ist. In weiteren Messungen wurde erstmals die Eignung der Pinhole-Methode für die Bestimmung der Lebensdauer in  $\text{Tm}^{3+}$ -dotierten Materialien demonstriert.

Aufgrund der durch Mikrosondenanalysen belegten Abweichung des Einbaukoeffizienten von  $\text{Yb}^{3+}$  in LSB von dem in der Literatur angegebenen Wert von 1 wurden weiterhin die Absorptionswirkungsquerschnitte von Yb:LSB neu bestimmt. Voneinander abweichende Werte für die Einbaukoeffizienten bei verschiedenen  $\text{Yb}^{3+}$ -Einwaagen belegen, dass es in LSB-Kristallen möglicherweise eine Abhängigkeit dieses Wertes von den genauen Züchtungsbedingungen gibt. Daher erscheint für zukünftige Experimente mit diesem Material stets eine genaue Analyse der tatsächlich in den Kristall eingebauten Dotierungskonzentration unerlässlich.

Aus der in dieser Arbeit erstmals für Yb:LuVO getätigten Untersuchung der energetischen Lage der Stark-Niveaus der  $\text{Yb}^{3+}$ -Multipletts anhand von bei tiefen Temperaturen aufgenommenen Absorptions- und Fluoreszenzspektren ergaben sich Erkenntnisse, die eine Neuinterpretation der Tieftemperaturspektren von Yb:YVO ermöglichten. Hiermit liegen nun für alle untersuchten Materialien Daten für die Lage der Stark-Niveaus vor, die sich gut in die Barycenter-Auftragung nach [Hau01] einfügen.

Anhand dieser Daten konnten unter Verwendung der Reziprozitäts-Relation Emissionswirkungsquerschnitte für alle untersuchten Materialien bestimmt werden. Die mit der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung unter Verwendung der experimentell ermittelten Lebensdauer resultierenden Wirkungsquerschnitte stehen in guter Übereinstimmung mit diesen Daten. Dies spricht dafür, dass es sich bei den ermittelten spektroskopischen Daten für die einzelnen Materialien jeweils um in einem plausiblen Verhältnis zueinander stehende Werte handelt.

Mit Kenntnis der spektroskopischen Daten konnten unter Berücksichtigung der spektralen Eigenschaften der zur Verfügung stehenden Pumpquellen anhand des "nulldimensionalen" Modells die für eine effiziente Absorption der Pumpstrahlung notwendigen Scheibendicken bestimmt und entsprechende Laserkristalle präpariert werden. In einer Simulation der hochtransmittierenden und hochreflektierenden – ursprünglich für das Scheibenlaser-Standardmaterial Yb:YAG optimierten – Beschichtungen wurde insbesondere für die Anwendung an den Vanadaten eine deutliche Abweichung von den gewünschten Schichteigenschaften nachgewiesen. Diese ist begründet in den im Vergleich zu Yb:YAG deutlich höheren Brechzahlen dieser Materialien.

In den Laserexperimenten konnte mit Kristallen aller zur Verfügung stehenden Dotierungen und Orientierungen Laserbetrieb erzielt werden. In Experimenten zur Leistungsskalierung gelang es mit allen vier Wirtsmaterialien, die Ausgangsleistungen gegenüber den bisher in der Literatur dokumentierten Werten deutlich zu steigern. Die höchsten Ausgangsleistungen von bis zu 40 W unter 95 W einfallender Pumpleistung wurden dabei mit Yb:LSB erzielt. In Bezug auf die Effizienz konnten die besten Ergebnisse mit Yb:YCOB in X-cut Orientierung erzielt werden. Die erzielten differentiellen Wirkungsgrade von bis zu 67% liegen in der Größenordnung der mit Yb:YAG erzielten Wirkungsgrade.

Die mit den Vanadat-Kristallen als aktiven Materialien im Scheibenlaser erzielten Laserresultate müssen hingegen kritischer beurteilt werden. In beiden Materialien kam es schon bei Pumpleistungsdichten deutlich unter der angegebenen Zerstörschwelle der Beschichtung von  $5 \text{ kW/cm}^2$  im Fluoreszenzbetrieb zu Beschädigungen an den Kristallen. Weiterhin waren die zum Einsetzen des Laserbetriebes notwendigen Schwellpumpleistungen deutlich höher als im Falle der Borate oder bei YAG und die differentiellen Wirkungsgrade mit 51% für Yb:LuVO und 43% für Yb:YVO geringer. Dennoch konnten auch mit diesen Materialien die Ausgangsleistungen auf 13 W bzw. 10 W skaliert werden.

In den Untersuchungen zur spektralen Durchstimbarkeit der untersuchten Materialien er-

wies sich der Scheibenlaseraufbau als äußerst geeignet zur Realisation breitbandig durchstimmbaren Laserbetriebs. So konnte mit Yb:LSB ein kontinuierliches spektrales Durchstimmen der Laserwellenlänge von insgesamt maximal 117 nm zwischen 988 nm und 1005 nm erreicht werden. Die Ausgangsleistung lag dabei in einem Bereich von fast 70 nm über 10 W bei einer eingestrahnten Pumpleistung von 50 W. Mit Kristallen in c-cut Orientierung konnten zudem bei der – für Yb<sup>3+</sup>-dotierte Laser ungewöhnlich kurzen – Wellenlänge von 1000 nm noch Ausgangsleistungen von über 7,5 W erzielt werden. Auch mit Yb:YCOB konnte kontinuierlich durchstimmbarer Laserbetrieb in einem Wellenlängenintervall von über 90 nm zwischen etwa 1000 nm und 1090 nm demonstriert werden. In letztgenanntem Experiment waren Effizienz und Durchstimmbereich durch Verluste an einem geringfügig beschädigten Durchstimmelement eingeschränkt. Es kann davon ausgegangen werden, dass der abdeckbare Spektralbereich unter optimierten Bedingungen auch mit diesem Material noch vergrößert werden kann. Im Falle der Vanadate waren die erzielten spektralen Durchstimmbereiche besonders im langwelligen Spektralbereich aus den oben bereits genannten Gründen geringer als anhand der Verstärkungswirkungsquerschnitte erwartet werden konnte. Im kurzwelligen Spektralbereich hingegen konnte – allerdings bei geringer Effizienz – mit Yb:YVO eine Laserwellenlänge von 995,9 nm erreicht werden, was bei einer Pumpwellenlänge von 985,2 nm einem bisher mit Ytterbium-dotierten Materialien nur selten erreichten minimalem Quantendefekt von nur 1,1% entspricht.

In Zusammenarbeit mit dem Max-Born-Institut in Berlin wurden mit Yb:LSB erste Experimente zur Erzeugung modengekoppelter kurzer Pulse im konventionellen longitudinal gepumpten Resonator durchgeführt. Die unter Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Laser-Pumpen erzielten Pulslängen von 58 fs zählen zu den kürzesten jemals mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten Materialien erzielten.

Als Fazit der Laserexperimente lässt sich festhalten, dass das Scheibenlaserkonzept geeignet ist, um die Ausgangsleistung von Lasermaterialien mit ausreichender Absorptionsfähigkeit vermittels eines relativ einfachen und standardisierten Laseraufbaus in auf anderen Wegen nur schwer erreichbare Leistungsbereiche zu skalieren. Dabei erscheinen besonders die untersuchten Borate als geeignet zur weiteren Skalierung der Ausgangsleistung unter Vergrößerung des Pumpfleck-Durchmessers, da mit beiden Materialien bei im Scheibenlaser üblichen Pumpleistungsdichten von etwa 5 kW/cm<sup>2</sup> selbst bei Unterbrechung des Resonators keine Beschädigungen an den Scheiben beobachtet werden konnte. Im Falle von Yb:YCOB könnten außerdem unter Verwendung wesentlich höherer Dotierungskonzentrationen, mit denen ebenfalls bereits effizienter Laserbetrieb realisiert werden konnte [Aro01] und der damit geringeren nötigen Kristalldicke noch bessere Voraussetzungen zur Erzeugung von sehr hohen Leistungen geschaffen werden. Hohe Anforderungen an das Emissionsprofil der verwendeten Pumpquelle stellt dabei allerdings die sehr geringe spektrale Akzeptanzbreite der zum Pumpen verwendeten Nullphononenlinie um 976 nm. Diese können jedoch von modernen Bragg-Gitter-stabilisierten Hochleistungsdioden erfüllt werden. Im gepulsten Betrieb könnte sich aufgrund der hohen Pulsspitzenleistungen die nicht-zentrosymmetrische und damit frequenzverdoppelnde Kristallstruktur von Yb:YCOB trotz der geringen durchlaufenen Länge des aktiven Mediums negativ auswirken. Daher und auch aufgrund der größeren Verstärkungsbandbreite wird Yb:LSB für das geeignetere Material zum Einsatz im modengekoppelten Scheibenlaser gehalten.

Die Vanadate hingegen sind trotz einer deutlich besseren Wärmeleitfähigkeit offensichtlich weniger geeignet für den Einsatz bei hohen Pumpleistungen im Scheibenlaser. Dies liegt einerseits in der bisher nicht ausreichenden Qualität der zur Verfügung stehenden Kristalle begründet, die sich in beiden Materialien in Farbzentren äußerte und in Yb:YVO außerdem in unter

dem Mikroskop erkennbaren Einschlüssen. Zusätzlich liegt durch die vergleichsweise geringe Starkaufspaltung von  $\text{Yb}^{3+}$  in diesen Materialien schon prinzipiell eine größere Empfindlichkeit bezüglich einer Erwärmung des Laserkristalles vor. Dies äußert sich in den hohen zum Erreichen des Laserbetriebs notwendigen Pumpleistungsschwellen und im Falle von  $\text{Yb:LuVO}$  in dem thermisch verursachten bistabilen Verhalten an der Schwelle. Auch die prinzipiell möglichen sehr hohen  $\text{Yb}^{3+}$ -Konzentrationen in diesem Material erweisen sich nicht von Vorteil, da Laserbetrieb bisher nur mit sehr geringen Dotierungskonzentrationen von bis zu 2 at.% erzielt werden konnte.

## 7.2 Ausblick

In zukünftigen Experimenten sollte der Beobachtung der thermischen Entwicklung im Laserkristall in Abhängigkeit von der Pumpleistung im Laser- und Fluoreszenzbetrieb erhöhte Aufmerksamkeit geschenkt werden. Nur auf diese Weise sind mögliche Auswirkungen der geringen Wärmeleitfähigkeit der Borate und bereits beobachtete Auswirkungen der geringen Starkaufspaltung der Vanadate auch quantitativ zu erfassen. Diese Beobachtung könnte auch ohne eine hochauflösende Wärmebildkamera beispielsweise durch vergleichende Messungen der Temperatur des anströmenden sowie des abgeführten Kühlwassers erfolgen. Eine andere Möglichkeit besteht in der Aufnahme temperaturabhängiger Emissionsspektren, die zumindest im Fluoreszenzbetrieb mit den Spektren des gepumpten Kristalles verglichen werden und so eine grobe Auskunft über die Temperaturentwicklung geben könnten.

Durch den Aufbau von Resonatoren mit einem besseren Überlapp zwischen Pump- und Lasermode, welche einen Betrieb bei einer besseren Strahlqualität als der verwendete Mehrmodenresonator erlauben, könnte Kenntnis über die Auswirkungen der thermischen Eigenschaften der Laserkristalle auf die Strahlqualität erlangt werden. Dies ist insbesondere unter Berücksichtigung der – in allen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien durch die nicht-kubische Kristallstruktur gegebenen – Anisotropie dieser Eigenschaften von großer Wichtigkeit.

Der breitbandig durchstimmbare Betrieb vor allem von  $\text{Yb:LSB}$  im infraroten Spektralbereich eröffnet weiterhin die Möglichkeit, durch Frequenzverdopplung auch im sichtbaren Spektralbereich einen relativ großen Wellenlängenbereich zwischen etwa 500 nm und 550 nm zu erschließen. Im Vergleich zu bereits kommerziell erhältlichen frequenzverdoppelten Scheibenlaser-Systemen auf Basis von  $\text{Yb:YAG}$ , die einen wesentlich geringeren Bereich zwischen 505 nm und 527,5 nm abdecken [Sah08], wäre dies eine Verdopplung des zugänglichen Spektralbereiches.

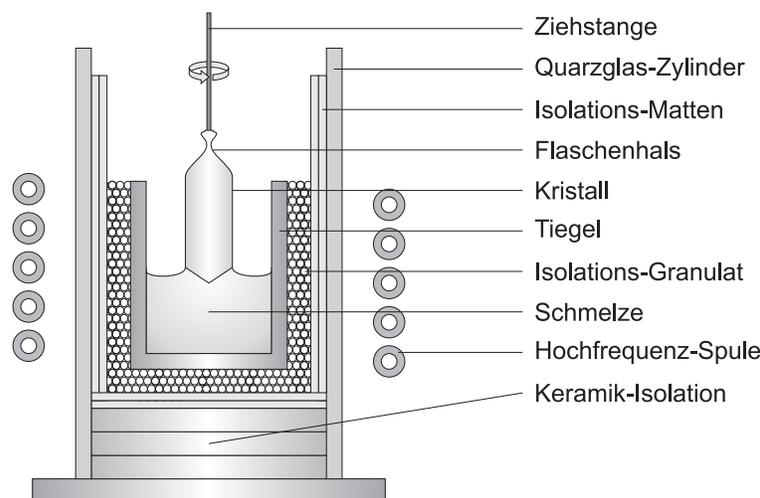
Für die nahe Zukunft sind zunächst mit  $\text{Yb:LSB}$ -Scheiben in Kooperation mit der Gruppe von U. Keller an der ETH in Zürich Experimente zum Modenkoppeln im Scheibenlaser vorgesehen. Scheiben mit einem für diese Experimente notwendigen Keil wurden bereits präpariert. Auch viele der  $\text{Yb:YCOB}$ -Scheiben sind bereits mit einem solchen Keil versehen worden und könnten bei Vorhandensein einer geeigneten Pumpquelle auf ihre Tauglichkeit in diesem Aufbau überprüft werden.

# A Herstellung von Kristallen mittels der Czochralski-Methode<sup>1</sup>

Das Czochralski-Verfahren (vgl. Abb. A.1) ist das gängigste Verfahren zur kommerziellen Herstellung hochwertiger Laserkristalle. Es wurde bereits 1916 von Jan Czochralski entwickelt und 1918 veröffentlicht [Czo18]. Fast alle in dieser Arbeit verwendeten Kristalle wurden nach diesem Verfahren hergestellt.

Bei der heutzutage üblichen Variante des Czochralski-Verfahrens werden die vorgemischten Ausgangsmaterialien in einem Tiegel im Inneren eines gasdicht verschließbaren Kessels platziert. Um den Tiegel herum wird ein Isolationsaufbau aus verschiedenen Keramiken aufgestellt, der den Tiegel einerseits in Position hält und andererseits für das zum optimalen Wachstum benötigte Temperaturprofil sorgt. Unter der benötigten Atmosphäre wird der Tiegel induktiv bis zum vollständigen Aufschmelzen der Einwaage aufgeheizt. Daraufhin wird die Schmelze unterkühlt, d. h. die Temperatur bis kurz unterhalb des Schmelzpunktes des Materials gesenkt. Bei den meisten Materialien kommt es dabei nicht direkt zum Auskristallisieren. Wird allerdings eine Ziehstange – die auch mit einem Impfkristall bestückt sein kann – in die Schmelze getaucht, so wirkt diese durch ihren Wärmeabtransport als Kristallisationskeim, die Schmelze erstarrt an ihr. Durch langsames Anheben der meist rotierenden Ziehstange wächst der Kristall Atomlage für Atomlage von der Ziehstange senkrecht nach unten. Um monokristalline Resultate auch ohne Impfkristall zu erzielen, wird kurz nach dem Animpfen die Temperatur wieder erhöht, so

<sup>1</sup>Dieser Abschnitt entspricht bis auf geringfügige Änderungen der Beschreibung des Czochralski-Verfahrens in der Diplomarbeit des Autors [Krä04].



**Abbildung A.1:** Schematische Darstellung des Züchtungsaufbaus bei der Züchtung nach dem Czochralski-Verfahren.

dass sich der Kristall nach Art eines Flaschenhalses stark verjüngt. Durch dieses Vorgehen wird die Zahl der Kristallisationskeime verringert. Hiernach wird die Temperatur gesenkt, bis der wachsende Kristall den gewünschten Durchmesser erreicht hat. In vielen Züchtungsanlagen für größere Kristalle wird die Temperatur computergesteuert anhand des Restgewichts der Schmelze dergestalt angepasst, dass ein Wachstum mit einer vorprogrammierten Form garantiert ist.

Mit zunehmendem Gewicht des gezogenen Kristalles steigt die Belastung der Ziehstange und des Flaschenhalses. Hierdurch wird die maximale Größe limitiert, dennoch können beispielsweise aus Silizium Einkristalle von mehr als  $100\,000\text{ cm}^3$  Volumen, 300 kg Gewicht und hervorragender kristallographischer Qualität, aber auch Laserkristalle von mehreren  $1000\text{ cm}^3$  Volumen auf diese Weise hergestellt werden [Mül07].

## B Fluoreszenzlebensdauern weiterer untersuchter Kristalle

In den folgenden Tabellen finden sich die resultierenden Ergebnisse der Bestimmung der Lebensdauern des angeregten Zustandes nach der Pinhole-Methode für weitere untersuchte Kristalle. Diese Kristalle wurden größtenteils im Auftrag anderer Institute vermessen. Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse unterbleibt daher an dieser Stelle und ist gegebenenfalls den zugehörigen Publikationen der jeweiligen Institute zu entnehmen. Um die Notwendigkeit der Anwendung eines Verfahrens zur Unterdrückung der Reabsorptionseffekte zu verdeutlichen, wurde in den Tabellen jeweils auch die ohne Blende oder mit dem größten Blendendurchmesser ermittelte Fluoreszenzlebensdauer angegeben. Die genannten Dotierungskonzentrationen entsprechen den Angaben der Auftraggeber bzw. bei selbst hergestellten Kristallen der Dotierungskonzentration der Einwaage und wurden nicht überprüft.

In Tab. B.1 sind zunächst die Ergebnisse der Lebensdauerermessungen an einigen in der kleinen Kristallzüchtungsanlage des ILP hergestellten  $\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$ -Kristalle unterschiedlicher  $\text{Yb}^{3+}$ -Dotierung aufgelistet. Außerdem wurde im Auftrag des MBI Berlin (vgl. Abschnitt 5.1) die Lebensdauer eines 5,6 at. %-dotierten  $\text{Yb}:\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$  vermessen.

$\text{Yb}^{3+}$ -Dotierung (at. %)	Wirtsmaterial	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Pinhole- Lebensdauer ( $\mu\text{s}$ )	Lebensdauer ohne Blende ( $\mu\text{s}$ )
1,0	$\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$	200	$1072 \pm 11$	1080
5,0	$\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$	130	$1087 \pm 10$	1130
7,5	$\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$	100	$1077 \pm 4$	1170
25,0	$\text{Li}_6\text{Y}(\text{BO}_3)_3$	200	$1138 \pm 5$	1310
5,6	$\text{YAl}_3(\text{BO}_3)_4$	Bulk	$449 \pm 6$	$689^1$

**Tabelle B.1:** Mit der Pinhole-Methode ermittelte Lebensdauern unterschiedlicher  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierter Borate im Vergleich mit den ohne Blende gemessenen Fluoreszenzlebensdauern. Mit "Bulk" sind Volumenkristalle mit nicht verzeichneter Dicke bezeichnet.

<sup>1</sup>Die hier angegebene Lebensdauer ist die hinter der größten Blende ermittelte Lebensdauer, da die Lebensdauer ohne Blende nicht aufgenommen wurde.

In Tab. B.2 sind die Resultate für einige Wolframate, darunter eine Konzentrationsreihe von hoch Yb<sup>3+</sup>-dotiertem KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, aufgelistet. Es handelt sich zudem teilweise um epitaktisch auf undotiertes Substrat gewachsene Proben. Die Kristalle wurden ebenfalls im Auftrag des MBI in Berlin vermessen.

Yb <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Wirts- material	Dicke (µm)	Pinhole- Lebensdauer (µs)	Lebensdauer mit größter Blende (µs)
5	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Bulk	330±11	440
25	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	200	326±6	439
35	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	200	281±7	369
50	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	200	234±1	389
60	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	200	221±16	407
80	KY(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	200	503±7 <sup>1</sup>	550 <sup>1</sup>
5	KLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Bulk	275±8	430
10	KLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Bulk	254±9	450
5	KLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Epi	299±2	435
10	KLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Epi	241±25	378
50	KLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Epi	224±2	280
5	KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Epi	407±8	603
7	KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Bulk	336±5	370
50	NaLu(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Bulk	353±6	535

**Tabelle B.2:** Mit der Pinhole-Methode ermittelte Lebensdauern unterschiedlicher Yb<sup>3+</sup>-dotierter Wolframate im Vergleich mit den ohne Blende gemessenen Fluoreszenzlebensdauern. Mit "Epi" sind Proben bezeichnet, die als epitaktisch aufgewachsene dünne Schichten mit unbekannter Dicke vorlagen. Mit "Bulk" sind Volumenkristalle mit nicht verzeichneter Dicke bezeichnet.

<sup>1</sup>Anhand des Verlaufes der einzelnen Zerfallskurven und des Verlaufes des Extrapolationsfits wird die für 80 at. %-dotiertes KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> ermittelte Lebensdauer keinesfalls für realistisch gehalten.

In Tab. B.3 sind die Lebensdauern zweier nicht den vorher genannten Gruppen zuzuordnen-der Kristalle aufgelistet. Auch diese Kristalle wurden im Auftrag des MBI in Berlin untersucht.

Yb <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Wirts- material	Dicke (µm)	Pinhole- Lebensdauer (µs)	Lebensdauer mit größter Blende (µs)
5	Ca <sub>3</sub> (NbGa) <sub>2</sub> Ga <sub>3</sub> O <sub>12</sub>	Bulk	791±19	1163
19	NaY(MoO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	220	290±7	413

**Tabelle B.3:** Mit der Pinhole-Methode ermittelte Lebensdauern weiterer Yb<sup>3+</sup>-dotierter Materialien im Vergleich mit den ohne Blende gemessenen Fluoreszenzlebensdauern. Mit "Bulk" sind Volumenkristalle mit nicht verzeichneter Dicke bezeichnet.

In Tab. B.4 sind die Ergebnisse der ersten Messungen der Lebensdauer mittels der Pinhole-Methode an Tm<sup>3+</sup>-dotierten Materialien aufgelistet. Diese Messungen wurden in Zusammenarbeit mit Dr. Carlos Zaldo vom Instituto de Ciencia de Materiales in Madrid durchgeführt. Alle Proben wurden im Bereich um 790 nm in das <sup>3</sup>H<sub>4</sub>-Multipllett angeregt und detektiert wurde die Fluoreszenz des <sup>3</sup>F<sub>4</sub>-Multipletts bei etwa 1,7 µm. Das Signal wurde mit einer PbS-Photodiode bei Raumtemperatur aufgenommen und durch Parallelschaltung des internen

1 M $\Omega$ -Widerstands des Oszilloskops mit einem 10 k $\Omega$ -Widerstand verstärkt. In den einzelnen Zerfallskurven zeigte sich aufgrund der indirekten Anregung des zu vermessenden Niveaus zunächst ein exponentielles Anwachsen des Fluoreszenzsignals. Dennoch war ab etwa 1,5 ms nach Anregung ein einfach exponentieller Fit der Abklingzeit möglich. Der teilweise sehr große Unterschied zwischen den ohne Blende und den mit der Pinhole-Methode ermittelten Lebensdauern zeigt, dass auch für Tm<sup>3+</sup>-dotierte Kristalle die Anwendung einer Reabsorptionseffekt-  
 unterdrückenden Methode sinnvoll ist. Ausführlichere Untersuchungen Tm<sup>3+</sup>-dotierter Kristalle mit der Pinhole-Methode sind für die nahe Zukunft geplant.

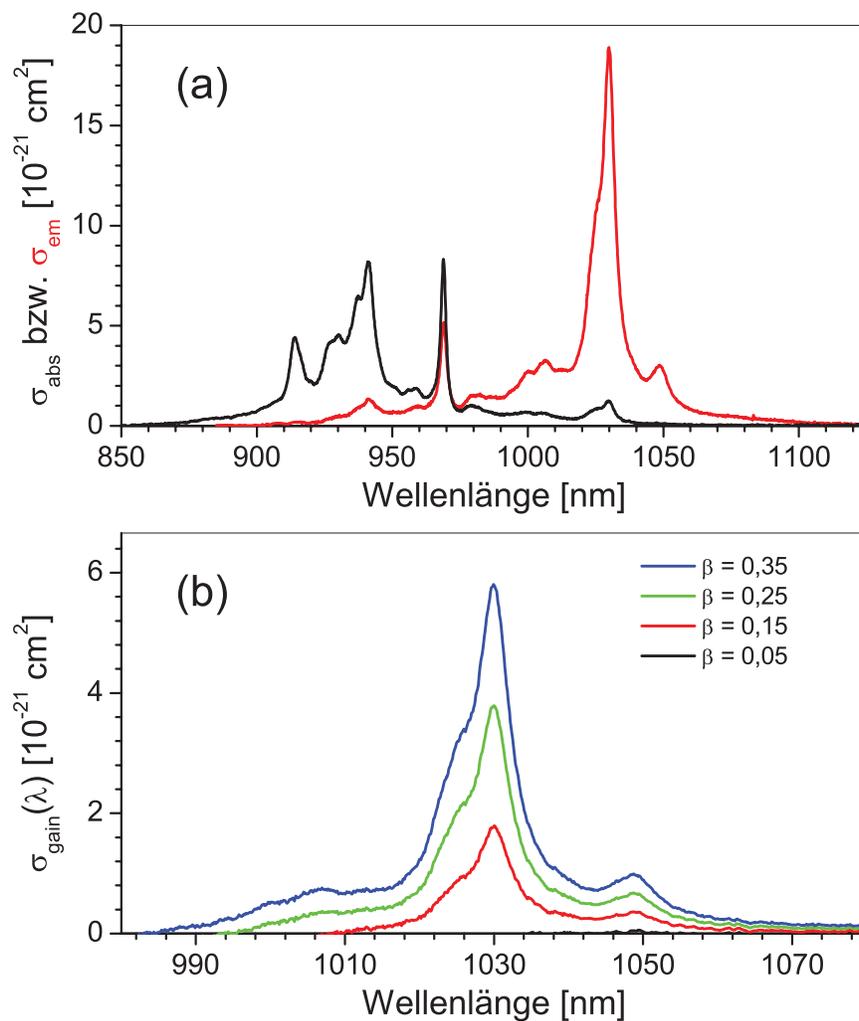
Tm <sup>3+</sup> -Dotierung (at.%)	Wirts- material	Dicke ( $\mu$ m)	Pinhole- Lebensdauer (ms)	Lebensdauer ohne Blende ( $\mu$ s)
5	NaY(WO <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	192	1,27 $\pm$ 0,02	1,50 <sup>1</sup>
5	NaLu(WO <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	207	1,20 $\pm$ 0,01	1,50 <sup>1</sup>
5	NaLa(WO <sub>2</sub> ) <sub>4</sub>	158	1,49 $\pm$ 0,01	1,55 <sup>1</sup>
5	NaGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	n. a.	1,50 $\pm$ 0,11	2,38
5	KGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	n. a.	0,90 $\pm$ 0,06	1,12
5	LuVO <sub>4</sub>	n. a.	0,57 $\pm$ 0,04	0,66

**Tabelle B.4:** Mit der Pinhole-Methode ermittelte Lebensdauern verschiedener Tm<sup>3+</sup>-dotierter Wolframate und LuVO im Vergleich mit den ohne Blende gemessenen Fluoreszenzlebensdauern. Mit n. a. sind Proben bezeichnet, die als dünne Scheibe nicht verzeichneter Dicke vorlagen.

<sup>1</sup>Die hier angegebene Lebensdauer ist die hinter der größten Blende ermittelte Lebensdauer, da die Lebensdauer ohne Blende nicht aufgenommen wurde.



# C Wirkungsquerschnittsspektren von Yb:YAG



**Abbildung C.1:** (a) Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte von Yb:YAG aus [Mix99], (b) Nach Daten von [Mix99] errechnete Verstärkungswirkungsquerschnitte von Yb:YAG. Zu beachten sind die sich unterscheidenden Skalierungen der Achsen beider Graphen.



# D Auflistung der in dieser Arbeit charakterisierten Scheibenlaserkristalle und ihrer Leistungsparameter

Name	Dotierung (at.%)	Dicke (mm)	Apertur (mm)	Orientierung	$P_{out}^{max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{slope}$ (%)	$\eta_{abs}^{theo}$ (%)	Bemerkung
1	1,6	0,15	Ø4	a-cut	5,52	40	18,6	50	
2	1,6	0,20	Ø6	a-cut	7,48	40	26	70	
3	1,6	0,25	Ø6	a-cut	10	40	43	81	
4	1,6	0,30	Ø6	a-cut	>3	50	13	89	defekt

**Tabelle D.1:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:YVO-Scheibenlaserkristalle.

Name	Dotierung (at.%)	Dicke (mm)	Apertur (mm)	Orientierung	$P_{out}^{max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{slope}$ (%)	$\eta_{abs}^{theo}$ (%)	Bemerkung
38	1,5	0,35	Ø5	a-cut	0	20	0	96	
39	1,5	0,35	Ø5	a-cut	13,1	40	51	96	
40	1,5	0,30	Ø5	a-cut	0	20	0	93	
41	1,5	0,30	Ø5	a-cut	0	20	0	93	
42	1,5	0,30	Ø5	a-cut	0	20	0	93	
43	1,5	0,25	Ø5	a-cut	3	40	23	87,5	
44	1,5	0,25	Ø5	a-cut	2	25	27,5	87,5	
45	1,5	0,25	Ø5	a-cut	nicht getestet		0	87,5	schlecht gelötet
46	1,5	0,20	Ø5	a-cut	0	25	0	81	defekt
47	1,5	0,20	Ø5	a-cut	0	25	0	81	defekt
48	1,5	0,15	Ø5	a-cut	0	25	0	66	defekt
49	1,5	0,15	Ø5	a-cut	0	22	0	66	

**Tabelle D.2:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:LuVO-Scheibenlaserkristalle.

Name	Dotierung (at.%)	Dicke (mm)	Apertur (mm)	Orien- tierung	$P_{out}^{max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{slope}$ (%)	$\eta_{abs}^{theo}$ (%)	Bemerkung
1	10	0,60	4 × 4	a-cut	17,3	43	49	91	
2	10	0,60	4 × 4	a-cut	17,4	43	50	91	
3	10	0,60	4 × 4	a-cut	17,2	43,0	49	91	
4	10	0,50	4 × 4	a-cut	14,3	43,0	41	86	
5	10	0,50	4 × 4	a-cut	37,0	117,0	47	86	defekt
6	10	0,50	4 × 4	a-cut	16,9	43,0	47	86	
7	25	0,30	4 × 4	a-cut	40,0	95,0	55	91,5	
8	25	0,30	4 × 4	a-cut	22,7	54,0	54	91,5	defekt
9	10	0,30	4 × 4	c-cut	14,9	43,0	45	56	
10	10	0,40	4 × 4	c-cut	16,2	43,0	51	72	
11	25	0,25	4 × 4	a-cut	16,5	43,0	47	86	
12	25	0,25	4 × 4	a-cut	>10	>30	–	86	schlechte Politur
13	25	0,20	4 × 4	a-cut	11,9	43,0	37	78	
14	25	0,20	4 × 4	a-cut	13,7	43,0	39	78	
15	25	0,20	4 × 4	c-cut	13,4	43,0	42	72	
16	25	0,15	4 × 4	c-cut	11,6	43,0	35	56	
A	15	0,45	Ø 5	a-cut	nicht getestet	–	–	95	0,1° Keil, schlechte Politur
B	15	0,40	Ø 5	a-cut	4	25	23	92	0,1° Keil, schlechte Politur
C	15	0,35	Ø 5	a-cut	nicht getestet	–	–	89	0,1° Keil schlechte Politur
D	15	0,30	Ø 5	a-cut	nicht getestet	–	–	83	0,1° Keil, schlechte Politur, defekt
E	25	0,30	Ø 6,3	a-cut	nicht getestet	–	–	91,5	0,1° Keil
F	25	0,25	Ø 6,3	a-cut	nicht getestet	–	–	78	0,1° Keil, schlechte Beschichtung
G	25	0,25	Ø 6,3	c-cut	nicht getestet	–	–	83	0,1° Keil, schlechte Beschichtung
H	15	0,40	Ø 5	a-cut	8	31	33	83	Rand von Politur beschädigt
J	15	0,35	Ø 5	a-cut	8,9	31	35	92	fleckig, Stellen
K	25	0,25	Ø 5	a-cut	9,8	25	52	78	
L	15	0,30	Ø 5	a-cut	7	31	29	83	Stellen
M	25	0,15	Ø 5	a-cut	7,4	31	32	69	großer Kratzer
90	25	0,25	4 × 4	a-cut	nicht getestet	–	–	86	0,1° Keil
91	25	0,30	4 × 4	a-cut	nicht getestet	–	–	91,5	0,1° Keil, n. n. gelötet
92	25	0,20	4 × 4	a-cut	nicht getestet	–	–	78	0,1° Keil, n. n. gelötet

**Tabelle D.3:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit präparierten und zum größten Teil untersuchten Yb:LSB-Scheibenlaserkristalle.

Name	Dotierung (at.%)	Dicke (mm)	Apertur (mm)	Orien- tierung	$P_{out}^{max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{slope}$ (%)	$\eta_{abs}^{theo}$ (%)	Bemerkung
G1	15	0,40	$6,3 \times 7$	Z-cut	13	30	52,7	93	
G2	15	0,40	$6,3 \times 7$	Z-cut	20,2	40	60	93	0,1° Keil
G3	15	0,40	$6,3 \times 7$	Z-cut	12,6	30	49,3	93	0,1° Keil, dezentral gelötet
G4	15	0,30	$6,3 \times 7$	Z-cut	13,5	30	53,3	87	0,1° Keil
G5	15	0,30	$6,3 \times 7$	Z-cut	13,2	30	51,6	87	0,1° Keil
G6	15	0,20	$6,3 \times 7$	Z-cut	5,4	30	17,9	74	0,1° Keil
G7	15	0,20	$6,3 \times 7$	Z-cut	nicht getestet		–	74	0,1° Keil, n. n. beschichtet
G8	15	0,20	$6,3 \times 7$	Z-cut	nicht getestet		–	74	0,1° Keil
Y1	15	0,35	$5 \times 3$	X-cut	24,9	45	62,1	91	0,1° Keil
Y2	15	0,40	$5 \times 3$	X-cut	nicht getestet		–	93	0,1° Keil
Y3	15	0,40	$5 \times 3$	X-cut	24,4	45	61,2	93	0,1° Keil
Y4	15	0,45	$5 \times 3$	X-cut	26	45	66,9	95	0,1° Keil
Y5	15	0,45	$5 \times 3$	X-cut	nicht getestet		–	95	0,1° Keil
Y6	15	0,50	$5 \times 3$	X-cut	25,3	45	62,6	96	0,1° Keil
Y7	15	0,50	$5 \times 3$	X-cut	nicht getestet		–	96	0,1° Keil
Y8	15	0,55	$5 \times 3$	X-cut	26	45	65,1	97	0,1° Keil

**Tabelle D.4:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit präparierten und zum größten Teil untersuchten Yb:YCOB-Scheibenlaserkristalle.



# E Quellen für die in Tab. 4.3 genannten Daten

Wirtsgitter	LaSc <sub>3</sub> (BO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	Ca <sub>4</sub> YO(BO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	YVO <sub>4</sub>	LuVO <sub>4</sub>	Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>
Akronym	LSB	YCOB	YVO	LuVO	YAG
Gittersymmetrie	[Dur01]	[Kuz01]	[Bro33]	[Mil52]	[Yod50]
Raumgruppe	[Dur01]	[Kuz01]	[Bro33]	[Mil52]	[Yod50]
Gitterkonstante	[Gor96]	[Kuz01]	[Xia00]	[Cha94]	[Dob04]
Winkel $\beta$	[Gor96]	[Kuz01]	[Xia00]	[Mil52]	[Yod50]
Kationenplätze	[Mey94]	[Aro01]	[Krä04]	[Zha04]	[Cze02]
Y <sup>3+</sup> -Dotierbarkeit	[Dur01]	[Ye99]	[Mil52]	[Mil52]	[Fag07]
Koordination Yb <sup>3+</sup>	[Dur01]	[Lup02]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]
Ionenradius Yb <sup>3+</sup>	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]
Kationenradius	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]
Platzsymmetrie	[Ost98, Tur69]	[Lup02]	[Kam90]	[Bar81]	[Kam90]
Mohs-Härte	d. A.	[Ye99]	[Cas08]	[Zha04]	[Cas08]
Dichte	[Mey94]	[Ye99]	[Rub66]	[Zha04]	[Sat06]
Herstellung	[Mey94]	[Ye99]	[Rub66]	[Ter96]	[Cas08]
Schmelzpunkt	[Mey94]	[Ye99]	[Lev69]	[Oka06]	[Cas80]
Brechzahlen	[Mey94]	[Li00]	[Zdo87]	[Jia01]	[Zel98]
Spezifische Wärme	[Mey94]	[Zha00] ( 20 at.%)	Mittelwert aus [Qin03, Fre04] [Sat06, Zha99b]	[Che07, Zha04]	[Che07, Zha04]
Temperaturleitfähigkeit	[Mey94]	d. A. (15 at.%)	d. A. [Qin03]	[Che07, Zha04] (d. A.)	[Che07, Zha04] [Fre08]
Wärmeleitfähigkeit	[Mey94]	[Dru00a] d. A. <sup>1</sup>	d. A. <sup>1</sup> [Qin03]	[Che07, Zha04] (d. A.)	[Che07, Zha04] [Fre08]
dn <sub>r</sub> /dT	[Mey94]	[Seg07]	[Ber02]		[Cze02]
dL/dT	[Mey94]	[Seg07]	[Zha99b, Sch72]	[Che07, Zha04]	[Cas08]

**Tabelle E.1:** Quellen für die kristallographischen Daten der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Wirtsmaterialien (d. A. = im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Werte).<sup>1</sup>Errechnet als Produkt aus dem Mittelwert der spezifischen Wärme, der in dieser Arbeit gemessenen Temperaturleitfähigkeit und der bekannten Dichte.



# Literaturverzeichnis

- [Aka96] G. Aka, A. Kahn-Harari, D. Vivien, J. M. Benitez, F. Salin und J. Godard. *A new non-linear and neodymium laser self-frequency doubling crystal with congruent melting:  $\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$  (GdCOB)*. European Journal of Solid State and Inorganic Chemistry **33** (8), 727 (1996).
- [Alb86] P. Albers, E. Stark und G. Huber. *Continuous-wave laser operation and quantum efficiency of titanium-doped sapphire*. Journal of the Optical Society of America B **3** (1), 134 (1986).
- [And70] J. S. Andersen und A. S. Khan. *Phase Equilibria in the Vanadium-Oxygen System*. Journal of the Less-Common Metals **22**, 209 (1970).
- [Aro01] A. Aron, G. Aka, B. Viana, A. Kahn-Harari, D. Vivien, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, N. Lenain und M. Jacquet. *Spectroscopic properties and laser performances of  $\text{Yb}:\text{YCOB}$  and potential of the  $\text{Yb}:\text{LaCOB}$  material*. Optical Materials **16**, 181 (2001).
- [Aug99] F. Augé, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, F. Mougel, G. Aka, A. Kahn-Harari und D. Vivien. *Efficient and tunable continuous-wave diode-pumped  $\text{Yb}^{3+}:\text{Ca}_4\text{GdO}(\text{BO}_3)_3$  laser*. Applied Optics **38** (6), 976 (1999).
- [Aul82] B. F. Aull und H. P. Jenssen. *Vibronic Interaction in Nd:YAG Resulting in Nonreciprocity of Absorption and Stimulated Emission Cross Sections*. IEEE Journal of Quantum Electronics **QE-18** (5), 925 (1982).
- [Bar81] E. J. Baran, M. E. Escobar, L. L. Fournier und R. R. Filgueira. *Die Raman-Spektren der Orthovanadate der Seltenen Erden*. Zeitschrift für anorganische allgemeine Chemie **472**, 193 (1981).
- [Ber] H.-J. Bernhard. *Mikrosondenuntersuchungen durchgeführt am Institut für Geologie, Mineralogie und Geophysik der Ruhr-Universität Bochum*.
- [Ber99] N. Berner, A. Diening, E. Heumann, G. Huber, A. Voß, M. Karszewski und A. Giesen. *Tm:YAG: A Comparison between endpumped Laser-rods and the "Thin-Disk"-Setup*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers Conference 1999* (1999).
- [Ber02] J. C. Bermudez-G., V. J. Pinto-Robledo, A. V. Kir'yanov und M. J. Damzen. *The thermo-lensing effect in a grazing incidence, diode-side-pumped Nd:YVO<sub>4</sub> laser*. Optics Communications **210**, 75 (2002).

- [Bog77] G. A. Bogomolova, L. A. Bumagina, A. A. Kaminskii und B. Z. Malkin. *Crystalline Field in Laser Garnets with  $TR^{3+}$  Ions in Exchange Charge Model*. Fizika Tverdogo Tela (Physics of the Solid State) **19** (8), 1439 (1977).
- [Bra92] T. Brabec, C. Spielmann, P. F. Curley und F. Krausz. *Kerr lens mode locking*. Optics Letters **17** (18), 1292 (1992).
- [Bro33] E. Broch. *Die Kristallstruktur von Yttriumvanadat*. Zeitschrift für Physikalische Chemie, Abteilung B: Chemie der Elementarprozesse, Aufbau der Materie **20**, 345 (1933).
- [Bru02] F. Brunner, T. Südmeyer, E. Innerhofer, F. Morier-Genoud, R. Paschotta, V. E. Kisel, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, J. Gao, K. Kontag, A. Giesen und U. Keller. *240-fs pulses with 22-W average power from a mode-locked thin-disk Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser*. Optics Letters **27** (13), 1162 (2002).
- [Bru04] F. Brunner, E. Innerhofer, S. V. Marchese, T. Südmeyer, R. Paschotta, T. Usami, H. Ito, G. Arisholm und U. Keller. *Powerful red-green-blue laser source pumped with a mode-locked thin disk laser*. Optics Letters **29** (16), 1921 (2004).
- [Bru05] A. Bruesselbach und D. S. Sumida. *A 2.65-kW Yb:YAG single-rod laser*. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **11** (3), 600 (2005).
- [Buc67] R. A. Buchanan, K. A. Wickersheim, J. J. Pearson und G. F. Herrmann. *Energy Levels of Yb<sup>3+</sup> in Gallium and Aluminum Garnets I. Spectra*. Physical Review **159** (2), 245 (1967).
- [Bur03] P. A. Burns. *Novel Miniature Laser Sources Based on Ytterbium Doped Crystals*. Dissertation, Centre for Lasers and Applications, Macquarie University, Sydney NSW Australia (2003).
- [Cas80] J. L. Caslavsky und Dennis J. Viechnicki. *Melting behaviour and metastability of yttrium aluminium garnet (YAG) and YAlO<sub>3</sub> determined by optical differential thermal analysis*. Journal of Materials Science **15**, 1709 (1980).
- [Cas08] [www.casix.com/product/prod\\_cry\\_ndyvo4.html](http://www.casix.com/product/prod_cry_ndyvo4.html). Internetseite der Firma Casix, Zugriffsdatum 10.04.2008 (2008).
- [Cha94] B. C. Chakoumakos, M. M. Abraham und L. A. Boatner. *Crystal Structure Refinement of Zircon-Type MVO<sub>4</sub> (M= Sc, Y, Ce, Pr, Nd, Tb, Ho, Er, Tm, Yb, Lu)*. Journal of Solid State Chemistry **109** (1), 197 (1994).
- [Cha98] B. H. T. Chai, J. M. Eichenholz, Q. Ye, D. A. Hammons, W. K. Jang, L. Shah, G. M. Luntz und M. Richardson. *Self-Frequency Doubled Nd:YCOB laser*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers Conference 1998*, 56–58 (1998).
- [Che07] Y. Cheng, H. J. Zhang, Y. G. Yu, J. Y. Wang, X. T. Tao, J. H. Liu, V. Petrov, Z. C. Ling, H. R. Xia und M. H. Jiang. *Thermal properties and continuous-wave laser performance of Yb:LuVO<sub>4</sub> crystal*. Applied Physics B **86**, 681 (2007).

- [Con02] K. Contag. *Modellierung und numerische Auslegung des Yb:YAG Scheibenlasers*. Dissertation, Universität Stuttgart, Institut für Strahlwerkzeuge (2002).
- [Cze02] C. Czeranowsky. *Resonatorinterne Frequenzverdopplung von diodengepumpten Neodym-Lasern mit hohen Ausgangsleistungen im blauen Spektralbereich*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2002).
- [Czo18] J. Czochralski. *Ein neues Verfahren zur Messung der Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle*. Zeitschrift für Physikalische Chemie **92**, 219 (1918).
- [d'A98] J. d'Ans und E. Lax. *Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band 3: Elemente, anorganische Verbindungen und Materialien, Minerale* (Springer Verlag, 1998).
- [Deg89] J. J. Degnan. *Theory of the Optimally Coupled Q-Switched Laser (Mit der Ersetzung  $n_i = R_p \cdot \tau$  in Glg. 13)*. IEEE Journal of Quantum Electronics **25** (2), 214 (1989).
- [DeL93] L. D. DeLoach, S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway und W. F. Krupke. *Evaluation of Absorption and Emission Properties of Yb<sup>3+</sup> Doped Crystals for Laser Applications*. IEEE Journal of Quantum Electronics **29** (4), 1179 (1993).
- [Dem93] Wolfgang Demtröder. *Laserspektroskopie – Grundlagen und Techniken* (Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1993), 3 Auflage.
- [DeS74] L. G. DeShazer, M. Bass, U. Ranon, J. K. Guha und E. D. Reed. *Laser Performance of Nd<sup>3+</sup> and Ho<sup>3+</sup> in YVO<sub>4</sub>, and Nd<sup>3+</sup> in Gadolinium Gallium Garnet (GGG)*. IEEE Journal of Quantum Electronics **QE10** (9), 683 (1974).
- [Die98a] A. Dienes, B.-M. Dicks, E. Heumann, G. Huber, A. Voß, M. Karszewski und A. Giesen. *High-power Tm:YAG thin-disk laser*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 1998* (1998).
- [Die98b] A. Dienes, E. Heumann, G. Huber und O. Kuzmin. *High Power Diode-pumped Yb,Er:LSB Laser at 1.65  $\mu$ m*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 1998*, 299–300 (1998).
- [Dob04] L. Dobrzycki, E. Bulska, D. A. Pawlak, Z. Frukacz und K. Wozniak. *Structure of YAG crystals doped/substituted with erbium and ytterbium*. Inorganic Chemistry **43** (24), 7656 (2004).
- [Dru00a] F. Druon, F. Augé, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A. Aron, F. Mougél, G. Aka und D. Vivien. *Efficient, tunable, zero-line diode-pumped continuous-wave Yb<sup>3+</sup>:Ca<sub>4</sub>LnO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (Ln = Gd, Y) lasers at room temperature and application to miniature lasers*. Journal of the Optical Society of America B **17** (1), 18 (2000).
- [Dru00b] F. Druon, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A. Courjaud, C. Hönniger, F. Salin, A. Aron, F. Mougél, G. Aka und D. Vivien. *Generation of 90-fs pulses from a mode-locked diode-pumped Yb<sup>3+</sup>:Ca<sub>4</sub>GdO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> laser*. Optics Letters **25** (6), 423 (2000).

- [Dru02a] F. Druon, S. Chénais, P. Raybaut, F. Balembois, P. Georges, R. Gaumé, G. Aka, B. Viana, D. Viven, J. P. Chambaret, S. Mohr und D. Kopf. *Largely tunable diode-pumped sub-100-fs Yb:BOYS laser*. Applied Physics B **74** (Suppl. 1), 201 (2002).
- [Dru02b] F. Druon, G. J. Valentine, S. Chénais, R. Raybaut, F. Balembois, P. Georges, A. Brun, A. J. Kemp, D. J. L. Birkin, W. Siebett, S. Mohr, D. Kopf, D. Burns, A. Courjaud, C. Hönninger, F. Slin, R. Gaume, A. Aron, G. Aka, B. Viana, C. Clerc und H. Bernas. *Diode-pumped femtosecond oscillators using ultra-broad-band Yb-doped crystals and modelocked using low-temperature grown or ion implanted saturable-absorber mirrors*. European Physical Journal - Applied Physics **20** (3), 177 (2002).
- [Dur01] S. T. Durmanov, O. V. Kuzmin, G. M. Kuzmicheva, S. A. Kutovio, A. A. Martynov, E. K. Nesynov, V. L. Panyutin, Y. P. Rudnitsky, G. V. Smirnov, V. L. Hait und V. I. Chizhikov. *Binary rare-earth scandium borates for diode-pumped lasers*. Optical Materials **18**, 243 (2001).
- [Eic06] J. Eichler und H. J. Eichler. *Laser – Bauformen, Strahlführung, Anwendungen* (Springer-Verlag, 2006), 6 Auflage.
- [Ein16] A. Einstein. *Strahlungs-Emission und Absorption nach der Quantentheorie*. Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft **18**, 318 (1916).
- [Ein17] A. Einstein. *Zur Quantentheorie der Strahlung*. Physikalische Zeitschrift **18**, 121 (1917).
- [Erd93] S. Erdei und F. W. Ainger. *Crystal Growth of YVO<sub>4</sub> using the LHPG Technique*. Journal of Crystal Growth **128**, 1025 (1993).
- [Erm99] F. S. Ermeneux, C. Goutaudier, R. Moncorge, M. T. Cohen-Adad, M. Bettinelli und E. Cavalli. *Comparative optical characterization of various Nd<sup>3+</sup>:YVO<sub>4</sub> single crystals*. Optical Materials **13**, 193 (1999).
- [Fag07] D. Fagundes-Peters, N. Martynyuk, K. Lünstedt, V. Peters, K. Petermann, S. Basun, V. Laguta und A. Hofstätter. *High quantum efficiency YbAG-crystals*. Journal of Luminescence **125**, 238 (2007).
- [Fei06] Y. T. Fei, B. H. T. Chai, C. A. Ebberts, Z. M. Liao, K. I. Schaffers und P. Thelin. *Large-aperture YCOB crystal growth for frequency conversion in the high average power laser system*. Journal of Crystal Growth **290**, 301 (2006).
- [Fin66] D. Findlay und R. Clay. *The Measurement of Internal Losses in 4-Level Lasers*. Physics Letters **20** (3), 277 (1966).
- [For99] L. Fornasiero. *Nd<sup>3+</sup>- und Tm<sup>3+</sup>-dotierte Sesquioxide*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1999).
- [För48] T. Förster. *Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz*. Annalen der Physik **437** (1), 55 (1948).

- [Fre04] S. T. Fredrich. *Charakterisierung der Lasereigenschaften von Nd:YVO<sub>4</sub> und Nd:GdVO<sub>4</sub>*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2004).
- [Fre08] S. T. Fredrich-Thornton. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Fue72] H. Fuess und A. Kallel. *Refinement of the Crystal Structure of Some Rare Earth Vanadates RVO<sub>4</sub> (R = Dy, Tb, Ho, Yb)*. Journal of Solid State Chemistry **5**, 11 (1972).
- [Gie94] A. Giesen, H. Hügel, A. Voß, K. Wittig, U. Brauch und H. Opower. *Scalable concept for diode-pumped high-power solid-state lasers*. Applied Physics B **58** (5), 365 (1994).
- [Gie99] A. Giesen, G. Hollemann und I. Johannsen. *Diode-pumped Nd:YAG thin disc laser*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 1999* (1999).
- [Gie07a] A. Giesen und J. Speiser. *Fifteen Years of Work on Thin-Disk Lasers: Results and Scaling Laws*. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **13** (3), 598 (2007).
- [Gie07b] A. Giesen, J. Speiser, R. Peters, C. Kränkel und K. Petermann. *Thin-Disk Lasers Come of Age – As the technology matures, scientists fine-tune performance*. Photonics Spectra **May**, 52 (2007).
- [Gor96] A. V. Goryunov, G. M. Kuz'micheva, B. V. Mukhin, E. V. Zharikov, A. Y. Ageev, S. A. Kutovoi und O. V. Kuz'min. *X-ray diffraction study of the crystals LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>4</sub>)<sub>4</sub> activated with chromium and neodymium ions*. Zhurnal Neorganicheskoi Khimii **41** (10), 1605 (1996).
- [Gri04] U. Griebner, V. Petrov, K. Petermann und V. Peters. *Passively mode-locked Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser*. Optics Express **12** (14), 3125 (2004).
- [Gui05] O. Guillot-Noël, P. Goldner, M. Bettinelli und E. Cavalli. *Electron paramagnetic resonance study of the multisite character of Yb<sup>3+</sup> ions in LuVO<sub>4</sub> single crystals*. Journal of Physics: Condensed Matter **17**, 3061 (2005).
- [Haf03] Heinz Haferkorn. *Optik – Physikalisch-technische Grundlagen und Anwendungen* (Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2003), 4 Auflage.
- [Ham98] D. A. Hammons, J. M. Eichenholz, Q. Ye, B. H. T. Chai, L. Shah, R. E. Peale, M. Richardson und H. Qiu. *Laser action in Yb<sup>3+</sup>:YCOB (Yb<sup>3+</sup>:YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>)*. Optics Communications **156** (4-6), 327 (1998).
- [Har94] S. Hartung. *Cr<sup>3+</sup> dotiertes LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub>: Spektroskopie und Lasereigenschaften*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1994).
- [Hau01] P. H. Haumesser, R. Gaumé, B. Viana, E. Antic-Fidancev und D. Vivien. *Spectroscopic and crystal-field analysis for new Yb-doped laser materials*. Journal of Physics: Condensed Matter **13**, 5427 (2001).
- [Hei] S. Heidrich. *Mikrosondenuntersuchungen durchgeführt am Mineralogisch-Petrographischen Institut der Universität Hamburg*.

- [Hen89] B. Henderson und G. Imbusch. *Optical Spectroscopy of inorganic Solids* (Clarendon Press, Oxford, 1989).
- [Heu99] E. Heumann, K. Sebald, S. Kück, G. Huber und O. V. Kuzmin. *Spectroscopy and first laser proof of praseodymium lanthanum scandium borate*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers Conference 1999*, 621–624 (1999).
- [Hil06] M. Hildebrandt, U. Bünting, U. Kosch, D. Haussmann, T. Levy, M. Krause, O. Müller, U. Bartuch und W. Viöl. *Diode-pumped Yb:KYW thin-disk laser operation with wavelength tuning to small quantum defects*. *Optics Communications* **259** (2), 796 (2006).
- [Hön99a] C. Hönniger, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, M. Moser und U. Keller. *Q-Switching stability limits of continuous-wave passive mode locking*. *Journal of the Optical Society of America B* **16** (1), 46 (1999).
- [Hön99b] C. Hönniger, R. Paschotta, F. Morier-Genoud, G. Zhang, M. Moser, S. Biswal, J. Nees, A. Braun, G. A. Mourou, I. Johannsen, A. Giesen, W. Seeber und U. Keller. *Ultrafast ytterbium-doped bulk lasers and laser amplifiers*. *Applied Physics B* **69** (1), 3 (1999).
- [Hub75] G. Huber, W. W. Krühler, W. Bludau und H. G. Danielmeyer. *Anisotropy in the laser performance of NdP<sub>5</sub>O<sub>14</sub>*. *Journal of Applied Physics* **46** (8), 3580 (1975).
- [IPG08] [www.ipgphotonics.com](http://www.ipgphotonics.com). Internetseite der IPG Photonics Corporation, Zugriffsdatum 26.06.2008 (2008).
- [Iwa97] M. Iwai, T. Kobayashi, H. Furuya, Y. Mori und T. Sasaki. *Crystal growth and optical characterization of rare-earth (Re) calcium oxyborate ReCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (Re=Y or Gd) as new nonlinear optical material*. *Japanese Journal of Applied Physics* **36** (3A), L276 (1997).
- [Jia01] H. D. Jiang, H. J. Zhang, J.Y. Wang, H. R. Xia, X. B. Hu, B. Teng und C. Q. Zhang. *Optical and laser properties of Nd:GdVO<sub>4</sub> Crystal*. *Optics Communications* **198** (4-6), 447 (2001).
- [Joh04] J. Johannsen. *Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> und Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> als neue migrationshemmende Scheibenlasermaterialien*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2004).
- [Jud62] B. R. Judd. *Optical Absorption Intensities of Rare-Earth Ions*. *Physical Review* **127** (3), 750 (1962).
- [Kam90] A. A. Kaminskii. *Laser Crystals – Their Physics and Properties* (Springer-Verlag, 1990), 2 Auflage.
- [Kel96] U. Keller, K. J. Weingarten, F. X. Kärntner, D. Kopf, B. Braun, I. D. Jung, R. Fluck, C. Hönniger, N. Matuschek und J. Aus der Au. *Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM's) for Femtosecond to Nanosecond Pulse Generation in Solid-State Lasers*. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **2** (3), 435 (1996).

- [Kel03] U. Keller. *Recent developments in compact ultrafast lasers*. Nature **424**, 831 (2003).
- [Küh07] H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters und K. Petermann. *A model for the calculation of radiation trapping and description of the pinhole method*. Optics Letters **32** (13), 1908 (2007).
- [Küh08] H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *The pinhole method: lifetime measurements without radiation trapping*. In: *Proceedings of International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter*, 517 (2008).
- [Kil08] A. Killi. *Abschlussbericht des BMBF-Projektes 13N8377* (2008). Die entsprechenden Messungen wurden im Rahmen des BMBF-Projektes von der Trumpf Laser GmbH + Co. KG durchgeführt.
- [Kis04] V. E. Kisel, A. E. Troshin, N. A. Tolstik, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova und M. I. Kupchenko. *Spectroscopy and continuous-wave diode-pumped laser action of  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$* . Optics Letters **29** (21), 2491 (2004).
- [Kis05a] V. E. Kisel, A. E. Troshin, N. A. Tolstik, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova und M. I. Kupchenko. *Femtosecond pulse generation with a diode-pumped  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$  laser*. Optics Letters **30** (10), 1150 (2005).
- [Kis05b] V. E. Kisel, A. E. Troshin, N. A. Tolstik, V. G. Shcherbitsky, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova und M. I. Kupchenko. *Q-switched  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$  laser with Raman self-conversion*. Applied Physics B **80** (4-5), 471 (2005).
- [Krä04] C. Kränkel. *HEM-Züchtung und Charakterisierung des neuen Lasermaterials  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$* . Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2004).
- [Kut91] S. A. Kutovoi, V. V. Laptev und S. Y. Matsnev. *Lanthanum scandoborate as a new highly efficient active medium of solid state lasers*. Soviet Journal of Quantum Electronics **21** (2), 131 (1991).
- [Kuz01] G. M. Kuz'micheva, A. Y. Ageev, V. B. Rybakov, V. L. Panyutin, Y. M. Yu und V. I. Chizhikov. *Growth and X-ray diffraction study of  $\text{YCa}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3:\text{Ce,Er,Yb}$  crystals*. Inorganic Materials **37** (10), 1051 (2001).
- [Lad21] R. Ladenburg. *Die quantentheoretische Deutung der Zahl der Dispersionselektronen*. Zeitschrift für Physik **4** (4), 451 (1921).
- [Lag05] A. A. Lagatsky, A. R. Sarmani, C. T. A. Brown, W. Sibbett, V. E. Kisel, A. G. Selivanov, I. A. Denisov, A. E. Troshin, K. V. Yumashev, N. V. Kuleshov, V. N. Matrosov, T. A. Matrosova und M. I. Kupchenko.  *$\text{Yb}^{3+}$ -doped  $\text{YVO}_4$  crystal for efficient Kerr-lens mode locking in solid-state lasers*. Optics Letters **30** (23), 3234 (2005).
- [Lan03] J. M. Lan, J. Z. Chen, F. Y. Guo, S. K. Gao, X. L. Huo und N. F. Zhuang. *Study on the Growth and Spectrum Properties of  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$* . Journal of Synthetic Crystals (in chinesischer Sprache) **32** (1), 44 (2003).

- [Lar01] M. Larionov, J. Gao, S. Erhard, A. Giesen, K. Contag, V. Peters, E. Mix, L. Fornasiero, K. Petermann, G. Huber, J. Aus der Au, G. J. Spühler, F. Brunner, R. Paschotta, U. Keller, A. A. Lagatsky, A. Abdolvand und N. Kuleshov. *Thin Disk Laser Operation and Spectroscopic Characterization of Yb-doped Sesquioxides and Potassium Tungstate*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers and Photonics Conference 2001* (2001).
- [Lar05] M. Larionov, K. Schuhmann, J. Speiser, C. Stolzenburg und A. Giesen. *Nonlinear Decay of the Excited State in Yb:YAG*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers and Photonics Conference 2005* (2005).
- [Lar08] M. Larionov. *Kontaktierung und Charakterisierung von Kristallen für Scheibenlaser*. Dissertation, Institut für Strahlwerkzeuge, Universität Stuttgart (2008).
- [Las05] *Ceramic slab Nd:YAG laser emits 5 kW*. *Laser Focus World* **41** (10), 11 (2005).
- [Leb00] V. A. Lebedev, I. V. Voroshilov, A. N. Gavrilenko und B. V. Ignatiev. *Kinetic and spectroscopic investigations of Yb:YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (Yb:YCOB) single crystals*. *Optical Materials* **14**, 171 (2000).
- [Lev69] E. M. Levin, C. R. Robbins und H. F. McMurdie. *Phase Diagrams for Ceramists*, Band 1 (The American Ceramic Society, 1969).
- [Li00] L. X. Li, M. Guo, H. D. Jiang, X. B. Hu, Z. S. Shao, J. Y. Wang, J. Q. Wei, H. R. Xia, Y. G. Liu und M. H. Jiang. *Growth and Spectra of YCOB and Nd:YCOB Crystals*. *Crystal Research and Technology* **35** (11-12), 1361 (2000).
- [Lis05] R. Lisiecki, W. Ryba-Romanowski, T. Lukasiewicz, H. Mond<sup>1</sup> und K. Petermann. *Assessment of Laser Potential of YVO<sub>4</sub>:Yb, Ho and YVO<sub>4</sub>:Yb, Tm*. *Laser Physics* **15** (2), 1 (2005).
- [Liu01] H. Liu, J. Nees und G. Mourou. *Diode-pumped Kerr-lens mode-locked Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser*. *Optics Letters* **26** (21), 1723 (2001).
- [Liu04] J. H. Liu, H. J. Zhang, Z. P. Wang, J. Y. Wang, Z. S. Shao, M. H. Jiang und H. Weber. *Continuous-wave and pulsed laser performance of Nd:LuVO<sub>4</sub> crystal*. *Optics Letters* **29** (2), 168 (2004).
- [Liu05] J. H. Liu, X. Mateos, H. J. Zhang, J. Y. Wang, M. H. Jiang, U. Griebner und V. Petrov. *Continuous-wave laser operation of Yb:LuVO<sub>4</sub>*. *Optics Letters* **30** (23), 3162 (2005).
- [Liu06a] J. H. Liu, V. Petrov, U. Griebner, F. Noack, H. J. Zhang, J. Y. Wang und M. H. Jiang. *Optical bistability in the operation of a continuous-wave diode-pumped Yb:LuVO<sub>4</sub> laser*. *Optics Express* **14** (25), 12183 (2006).
- [Liu06b] J. H. Liu, V. Petrov, H. J. Zhang, J. Y. Wang und M. H. Jiang. *High-power laser performance of a-cut and c-cut Yb:LuVO<sub>4</sub> crystals*. *Optics Letters* **31** (22), 3294 (2006).

---

<sup>1</sup>M. Mond wurde in dieser Veröffentlichung fälschlicherweise als H. Mond bezeichnet.

- [Liu07a] F. Q. Liu, H. R. Xia, S. D. Pan, W. L. Gao, D. G. Ran, S. Q. Sun, Z. C. Ling, H. J. Zhang, S. R. Zhao und J. Y. Wang. *Passively Q-switched Nd:LuVO<sub>4</sub> laser using Cr<sup>4+</sup>:YAG as saturable absorber*. Optics and Laser Technology **39** (7), 1449 (2007).
- [Liu07b] J. H. Liu, H. J. Zhang, J. Y. Wang und V. Petrov. *Output-coupling-dependent polarization state of a continuous-wave Yb:YCa<sub>4</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> laser*. Optics Letters **32** (20), 2909 (2007).
- [Lün07] K. Lünstedt, N. Pavel, K. Petermann und G. Huber. *Continuous-wave simultaneous dual-wavelength operation at 912 nm and 1063 nm in Nd:GdVO<sub>4</sub>*. Applied Physics B **86**, 65 (2007).
- [Lue99] H. Lueken. *Magnetochemie. Eine Einführung in Theorie und Anwendung* (Teubner Verlag, Stuttgart, Leipzig, 1999), 1. Auflage.
- [Lup02] A. Lupei, G. Aka, E. Antic-Fidancev, B. Viana, D. Vivien und P. Aschehoug. *Selective excitation study of Yb<sup>3+</sup> in GdCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> and YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>*. Journal of Physics: Condensed Matter **14**, 1107 (2002).
- [Mar07] S. V. Marchese, C. R. E. Baer, R. Peters, C. Kränkel, A. G. Engqvist, M. Golling, D. J. H. C. Maas, K. Petermann, T. Südmeyer, G. Huber und U. Keller. *Efficient femtosecond high power Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk laser*. Optics Express **15** (11), 16966 (2007).
- [Mar08] S. V. Marchese, C. R. E. Baer, A. G. Engquist, S. Hashimoto, D. J. C. Haas, M. Golling, T. Südmeyer und U. Keller. *Femtosecond thin disk laser oscillator with pulse energy beyond the 10-microjoule level*. Optics Express **16** (9), 6397 (2008).
- [Mat06] X. Mateos, J. H. Liu, H. J. Zhang, J. Y. Wang, M. H. Jiang, U. Griebner und V. Petrov. *Continuous-wave laser operation of Tm:LuVO<sub>4</sub> near 1.9 μm under Ti:sapphire and diode laser pumping*. Physica status solidi A **203** (4), R19 (2006).
- [Mau02] C. Maunier, J. L. Doualan, R. Moncorgé, A. Speghini, M. Bettinelli und E. Cavalli. *Growth, spectroscopic characterization, and laser performance of Nd:LuVO<sub>4</sub>, a new infrared laser material that is suitable for diode pumping*. Journal of the Optical Society of America B **19** (8), 1794 (2002).
- [McC64] D. E. McCumber. *Einstein Relations Connecting Broadband Emission and Absorption Spectra*. Physical Review **136** (4A), A954 (1964).
- [McD07] L. McDonagh, R. Wallenstein und A. Nebel. *111 W, 110 MHz repetition-rate, passively mode-locked TEM<sub>00</sub> Nd:YVO<sub>4</sub> master oscillator power amplifier pumped at 888 nm*. Optics Letters **32** (10), 1259 (2007).
- [Mey94] J.-P. Meyn. *Neodym-Lanthan-Scandium-Borat: Ein neues Material für miniaturisierte Festkörperlaser*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1994).
- [Mil52] W. O. Milligan und L. W. Vernon. *Crystal structure of heavy metal orthovanadates*. Journal of Physical Chemistry **56**, 145 (1952).

- [Mix99] E. Mix. *Kristallzüchtung, Spektroskopie und Lasereigenschaften Yb-dotierter Sesquioxide*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1999).
- [Mül07] G. Müller. *Review: The Czochralski Method – where we are 90 years after Jan Czochralski's invention*. *Crystal Research and Technology* **42** (12), 1150 (2007).
- [Moo70] H. W. Moos. *Spectroscopic Relaxation Processes of Rare Earth Ions in Crystals*. *Journal of Luminescence* **1-2**, 106 (1970).
- [Mor98] J. Morikawa und T. Hashimoto. *Analysis of High-Order Harmonics of Temperature Wave for Fourier Transform Thermal Analysis*. *Japanese Journal of Applied Physics* **37** (12A), L1484 (1998).
- [Mou86] P. F. Moulton. *Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. *Journal of the Optical Society of America B* **3** (1), 125 (1986).
- [Neu09] J. Neuhaus, D. Bauer, J. Kleinbauer, A. Killi, S. Weiler, D. H. Sutter und T. Dekorsy. *Pulse Energies Exceeding 20 μJ Directly from a Subpicosecond Yb:YAG Oscillator by Use of an Active Angular Multiplexing*. In: *Proceedings of Advanced Solid-State Lasers and Photonics Conference 2009* (2009).
- [New08] *Newport Produktkatalog 2008/2009 S. 593* (2008).
- [Nor92] R. Norrestam und M. Nygren. *Structural Investigations of New Calcium-Rare Earth (R) Oxyborates with the Composition Ca<sub>4</sub>RO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>*. *Chemical Materials* **4**, 737 (1992).
- [O'C66] J. R. O'Connor. *Unusual Crystal-Field Energy Levels and Efficient Laser Properties of YVO<sub>4</sub>:Nd*. *Applied Physics Letters* **9** (11), 407 (1966).
- [O'C67] J. R. O'Connor. *Optical and Laser Properties of Nd<sup>3+</sup> and Eu<sup>3+</sup> doped YVO<sub>4</sub>*. *Transactions of the Metallurgical Society AIME* **239**, 362 (1967).
- [Ofe62] G. S. Ofelt. *Intensities of Crystal Spectra of Rare-Earth Ions*. *The Journal of Chemical Physics* **37** (3), 511 (1962).
- [Oka06] K. Oka, H. Onoki, H. Shibata und H. Eisaki. *Crystal growth of rare-earth orthovanadate (RVO<sub>4</sub>) by the floating-zone method*. *Journal of Crystal Growth* **286**, 288 (2006).
- [Ost98] V. Ostroumov, T. Jensen, J.-P. Meyn, G. Huber und M. A. Noginov. *Study of luminescence concentration quenching and energy transfer upconversion in Nd-doped LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> and GdVO<sub>4</sub> laser crystals*. *Journal of the Optical Society of America B* **15** (3), 1052 (1998).
- [Pau04] G. Paunescu, J. Hein und R. Sauerbrey. *100-fs diode-pumped Yb:KGW mode-locked laser*. *Applied Physics B* **79** (5), 555 (2004).
- [Pav08] N. Pavel, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *In-band pumping of Nd-vanadate thin-disk lasers*. *Applied Physics B* **91** (3-4), 415 (2008).

- [Pet05] K. Petermann, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, M. Mond, V. Peters, J. J. Romero, S. Kutovoi, J. Speiser und A. Giesen. *Highly Yb-doped oxides for thin-disc lasers*. Journal of Crystal Growth **275**, 134 (2005).
- [Pet07a] R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Broadly tunable high-power Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk laser with 80% slope efficiency*. Optics Express **15** (11), 7075 (2007).
- [Pet07b] V. Petrov. *Persönliche Mitteilung* (2007).
- [Pet08a] R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Crystal growth by the heat exchanger method, spectroscopic characterisation, and laser operation of high purity Yb<sup>3+</sup>-doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. Journal of Crystal Growth **310** (7-9), 1934 (2008).
- [Pet08b] R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Power scaling potential of Yb:NGW in thin disk laser configuration*. Applied Physics B **91** (25), 25 (2008).
- [Pol03] A. Polity, D. Schwabe, L. Ackermann und K. Dupré. *Transmission spectra of crystals at elevated temperatures for the calculation of internal radiant heat transport during crystal growth Part 2: Spectra of YAG:Cr, YVO<sub>4</sub>:Nd and the bandgap variation of various materials*. Crystal Research and Technology **38** (10), 874 (2003).
- [Qin03] L. J. Qin, X. L. Meng, H. Y. Shen, L. Zhu, B. C. Xu, L. X. Huang, H. R. Xia, P. Zhao und G. Zheng. *Thermal conductivity and refractive indices of Nd:GdVO<sub>4</sub> crystals*. Crystal Research and Technology **9**, 793 (2003).
- [Qiu02] H. Qiu, P. Yang, J. Dong, P. Deng, J. Xu und W. Chen. *The influence of Yb concentration on laser crystal Yb:YAG*. Materials Letters **55**, 1 (2002).
- [Riv05] S. Rivier, M. Rico, U. Griebner, V. Petrov, M. D. Serrano, F. Esteban-Betegon, C. Cascales, C. Zaldo, M. Zorn und M. Weyers. *Sub-80fs pulses from a mode-locked Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 2005* (2005).
- [Riv06] S. Rivier, X. Mateos, J. H. Liu, V. Petrov, U. Griebner, M. Zorn, M. Weyers, H. J. Zhang, J. Y. Wang und M. H. Jiang. *Passively mode-locked Yb:LuVO<sub>4</sub> oscillator*. Optics Express **14** (24), 11668 (2006).
- [Riv07a] S. Rivier, A. Garcia-Cortes, J. M. C. Torres, U. Griebner, M. D. Serrano, C. Cascales, X. Mateos, C. Zaldo und V. Petrov. *Mode-locking of the Yb:NaY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 2007*, 466 (2007).
- [Riv07b] S. Rivier, A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, M. Zorn, M. Weyers, A. Klehr und G. Erbert. *Ultrashort pulse Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> mode-locked oscillator*. Optics Express **15** (23), 15539 (2007).
- [Rom03] J. J. Romero. *Unveröffentlichte, am Institut für Laser-Physik durchgeführte Absorptionsmessungen*. (2003).

- [Rom05] J. J. Romero, J. Johannsen, M. Mond, K. Petermann, G. Huber und E. Heumann. *Continuous-wave laser action of Yb<sup>3+</sup>-doped lanthanum scandium borate*. Applied Physics B **80**, 159 (2005).
- [Rub66] J. J. Rubin und L. G. Van Uitert. *Growth of Large Yttrium Vanadate Single Crystals for Optical Maser Studies*. Journal of Applied Physics **37** (7), 2920 (1966).
- [Rut00] T. S. Rutherford, W. M. Tulloch, E. K. Gustafson und R. L. Byer. *Edge-Pumped Quasi-Three-Level Slab Lasers: Design and Power Scaling*. IEEE Journal of Quantum Electronics **36** (2), 205 (2000).
- [Süß05] U. Süß. *Persönliche Mitteilung (Da die Brechzahl einer dielektrischen Schicht unter anderem von der Art der Aufbringung abhängt, wurden hier die von Jenoptik genannten Daten übernommen.)* (2005).
- [Sah08] <http://www.sahajanand.eu/Products/DuoWave.html>. Internetseite der Firma Sahajanand, Zugriffsdatum 25.07.2008 (2008).
- [Sat06] Y. Sato und T. Taira. *The studies of thermal conductivity in GdVO<sub>4</sub>, YVO<sub>4</sub>, and Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> measured by quasi-one-dimensional flash method*. Optics Express **14** (22), 10528 (2006).
- [Sch72] H. C. Schopper und W. Urban. *Measurements of the Temperature Dependence of the Lattice Parameters of some Rare Earth Compounds with Zircon Structure*. Solid State Communications **11** (8), 955 (1972).
- [Sch06] M. Schellhorn. *Performance of a Ho:YAG thin-disc laser pumped by a diode-pumped 1.9 µm thulium laser*. Applied Physics B **85** (4), 549 (2006).
- [Sch07] M. Scheid, F. Markert, J. Walz, J. Y. Wang, M. Kirchner und T. W. Hänsch. *750 mW continuous-wave solid-state deep ultraviolet laser source at the 253.7 nm transition in mercury*. Optics Letters **32** (8), 955 (2007).
- [Süd08] T. Südmeyer, Y. Imai, H. Masuda, N. Eguchi, M. Saito und S. Kubota. *Efficient 2<sup>nd</sup> and 4<sup>th</sup> harmonic generation of a single-frequency, continuous-wave fiber amplifier*. Optics Express **16** (3), 1546 (2008).
- [Seg07] P. Segonds, B. Boulanger, B. Ménard, J. Zaccaro, J. P. Salvestrini, M. D. Fontana, R. Moncorgé, F. Porée, G. Gadret, J. Mangin, A. Brenier, G. Boulon, G. Aka und D. Pelenc. *Optical Characterisation of YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> and Nd:YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> crystals*. Optical Materials **29**, 975 (2007).
- [Sha99] L. Shah, Q. Ye, J. M. Eichenholz, D. A. Hammons, M. Richardson, B. H. T. Chai und R. E. Peale. *Laser tunability in Yb<sup>3+</sup>:YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> {Yb:YCOB}*. Optics Communications **167**, 149 (1999).
- [Sor05] E. Sorokin, S. Naumov und I. T. Sorokina. *Ultrabroadband Infrared Solid-State Lasers*. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **11** (3), 690 (2005).

- [Sve93] O. Svelto. *Principles of Lasers* (Plenum Press, New York, 1993), 2. Auflage.
- [Tel07] F. Tellkamp. *Coating Calculator*. LabVIEW-Programm (2007).
- [Ter96] Y. Terada, K. Shimamura, V. V. Kochurikhin, L. V. Barashov, M. A. Ivanov und T. Fukuda. *Growth and optical properties of ErVO<sub>4</sub> and LuVO<sub>4</sub> single crystals*. Journal of Crystal Growth **167**, 369 (1996).
- [Tin64] M. Tinkham. *Group Theory and Quantum Mechanics* (McGraw-Hill, New York, 1964).
- [Tok08] M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, S. Hosokawa, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii. *Diode-pumped 65 fs Kerr-lens mode-locked Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and non-doped Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> combined ceramic laser*. Optics Letters **33** (12), 1380 (2008).
- [Tur69] A. G. Turnbull. *The infrared Spectrum of Huntite: Site Symmetry and Isotope Effects*. Australian Journal of Chemistry **22**, 2237 (1969).
- [Uem08] S. Uemura und K. Torizuka. *Kerr-Lens Mode-Locked Diode-Pumped Yb:YAG Laser with the Transverse Mode Passively Stabilized*. Applied Physics Express **1**, 0120071 (2008).
- [Val00] G. J. Valentine, A. J. Kemp, D. J. L. Birkin, D. Burns, F. Balembois, P. Georges, H. Bernas, A. Aron, G. Aka, W. Sibbett, A. Brun, M. D. Dawson und E. Bente. *Femtosecond Yb:YCOB laser pumped by narrow-stripe laser diode and passively modelocked using ion implanted saturable-absorber mirror*. Electronics Letters **36** (19), 1621 (2000).
- [Voß02] A. Voß. *Der Scheibenlaser: Theoretische Grundlagen des Dauerstrichbetriebs und erste experimentelle Ergebnisse anhand von Yb:YAG*. Dissertation, Universität Stuttgart, Institut für Strahlwerkzeuge (2002).
- [Vog97] H. Vogel. *Gerthsen Physik* (Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1997), 19 Auflage.
- [Wun77] J. A. Wunderlich, J. G. Sliney und L. G. DeShazer. *Stimulated Emission at 2.04  $\mu\text{m}$  in Ho<sup>3+</sup>-doped ErVO<sub>4</sub> and YVO<sub>4</sub>*. IEEE Journal of Quantum Electronics **13** (2), 69 (1977).
- [Xia00] H. R. Xia, L. X. Li, H. J. Zhang, X. L. Meng, L. Zhu, Z. H. Yang, X. S. Liu und J. Y. Wang. *Raman Spectra and Laser Properties of Yb-doped Yttrium Orthovanadate Crystals*. Journal of Applied Physics **87** (1), 269 (2000).
- [Yan76] P. P. Yaney und L. G. DeShazer. *Spectroscopic Studies and Analysis of the Laser States of Nd<sup>3+</sup> in YVO<sub>4</sub>*. Journal of the Optical Society of America **66** (12), 1405 (1976).
- [Ye99] Q. Ye und B. H. T. Chai. *Crystal growth of YCa<sub>4</sub>O(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> and its orientation*. Journal of Crystal Growth **197**, 228 (1999).

- [Yod50] H. S. Yoder und M. L. Keith. *Complete Substitution of Aluminum for Silicon: The System  $(MnO)_3Al_{12}O_3(SiO_2)_3 - (Y_2O_3)_3(Al_{12}O_3)_5$* . Geological Society of America, Bulletin **61**, 1516 (1950).
- [Zao06] Y. Zaouter, J. Didierjean, E. Balembois, G. L. Leclin, F. Druon, P. Georges, J. Petit, P. Goldner und B. Viana. *47-fs diode-pumped  $Yb^{3+}:CaGdAlO_4$  laser*. Optics Letters **31** (1), 119 (2006).
- [Zdo87] A. Zdobnikov, L. Kislovskii und A. Korovkin. *Optical Properties of the  $YVO_4$  Crystal*. Optics and Spectroscopy **62** (5), 620 (1987).
- [Zel98] D. E. Zelmon, D. L. Small und R Page. *Refractive-index measurements of undoped yttrium aluminum garnet from 0.4 to 5  $\mu m$* . Applied Optics **37**, 4933 (1998).
- [Zha99a] H. J. Zhang, X. L. Meng, L. Zhu, P. Wang, X. S. Liu, Z. H. Yang, J. Dawes und P. Dekker. *Growth, Morphology and Characterization of  $Yb:YVO_4$  Crystal*. Physica Status Solidi A **175**, 705 (1999).
- [Zha99b] H. J. Zhang, L. Zhu, X. L. Meng, Z. H. Yang, C. Q. Wang, W. T. Yu, Y. T. Chow und M. K. Lu. *Thermal and Laser Properties of  $Nd:YVO_4$  Crystal*. Crystal Research and Technology **34** (8), 1011 (1999).
- [Zha00] H. J. Zhang, X. L. Meng, L. Zhu, X. S. Liu, R. Cheng, Z. H. Yang, S. Zhang und L. Sun. *Growth and thermal properties of  $Yb:Ca_4YO(BO_3)_3$  crystal*. Materials Letters **43** (1-2), 15 (2000).
- [Zha04] S. R. Zhao, H. J. Zhang, J. Y. Wang, H. K. Kong, X. F. Cheng, J. H. Liu, J. Li, Y. T. Lin, X. B. Hu, X. G. Xu, X. Q. Wang, Z. S. Shao und M. H. Jiang. *Growth and characterisation of the new laser crystal  $Nd:LuVO_4$* . Optical Materials **26**, 319 (2004).

# Veröffentlichungen

## Veröffentlichungen in wissenschaftlichen Zeitschriften

- C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, S. T. Fredrich, J. Johannsen, M. Mond, G. Huber, M. Bernhagen und R. Uecker  
*Continuous wave laser operation of  $Yb^{3+}:YVO_4$*   
Appl. Phys. B **79**, 543-546 (2004)
- S. Rivier, A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, M. Zorn, M. Weyers, A. Klehr und G. Erbert  
*Ultrashort pulse  $Yb:LaSc_3(BO_3)_4$  mode-locked oscillator*  
Opt. Express **15** (23), 15539-15544, (2007)
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Crystal growth by the heat exchanger method, spectroscopic characterisation, and laser operation of high purity  $Yb^{3+}$ -doped  $Lu_2O_3$*   
J. Cryst. Growth **310** (7-9), 1934-1938 (2008)
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*Continuous-wave high power laser operation and tunability of  $Yb:LaSc_3(BO_3)_4$  in thin disk configuration*  
Appl. Phys. B **87**, 217-220 (2007)
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Broadly tunable high power  $Yb:Lu_2O_3$  thin disk laser with 80% slope efficiency*  
Opt. Express **15** (11), 7075-7082 (2007)
- H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters und K. Petermann  
*A model for the calculation of radiation trapping and description of the pinhole method*  
Opt. Lett. **32** (13), 1908-1910 (2007)
- S. V. Marchese, C. R. E. Baer, A. G. Engqvist, M. Golling, D. J. H. C. Maas, T. Südmeyer, U. Keller, R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Efficient femtosecond high power  $Yb:Lu_2O_3$  thin disk laser*  
Opt. Express **15** (25), 16966-16971, 2007

- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Power scaling potential of Yb:NGW in thin disk laser configuration*  
Appl. Phys. B textbf91 (1), 25-28, 2008
- N. Pavel, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*In-band pumping of Nd-vanadate thin-disk lasers*  
Appl. Phys. B. **91** (2-4), 415-419, 2008

## Weitere schriftliche Veröffentlichungen

- C. Kränkel  
*HEM-Züchtung und Charakterisierung des neuen Lasermaterials Yb<sup>3+</sup>:YVO<sub>4</sub>*  
Universität Hamburg, Diplomarbeit (2004)
- A. Giesen, J. Speiser, R. Peters, C. Kränkel und K. Petermann,  
*Thin-Disk Lasers Come of Age – As the technology matures, scientists fine-tune performance*  
Photonics Spectra pp. 52-58 May 2007

## Beiträge zu internationalen Konferenzen

### Vorträge

- C. Kränkel, J. Johannsen, M. Mond, K. Petermann und G. Huber  
*High-Power Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> Thin Disk Laser*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2006, Lake Tahoe, USA, Beitrag WD2
- J. Liu, V. Petrov, X. Mateos, U. Griebner, H. Zhang, J. Wang, M. Jiang, C. Kränkel und K. Petermann  
*Continuous-wave lasing of Yb:LuVO<sub>4</sub>*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2006, Lake Tahoe, USA, Beitrag TuB20
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*High-Power Yb:LSB Thin-Disk Laser with Broad Tunability*  
15th International Laser Physics Workshop LPHYS '06, Lausanne, Schweiz, Beitrag 4.3.1
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Spectroscopic Investigation and Laser Operation of Yb<sup>3+</sup> in the Promising Thin-Disk Laser Material NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*

- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*A 100 nm Tunable High-power Yb<sup>3+</sup>:LSB Thin Disk Laser*  
2<sup>nd</sup> EPS-QEOD Europhoton Conference 2006, Pisa, Italien, Beitrag ThA5
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Spectroscopic Investigation, Energy Migration, and Laser Operation of Yb<sup>3+</sup> in the New Thin-Disk Laser Material NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*  
2<sup>nd</sup> EPS-QEOD Europhoton Conference 2006, Pisa, Italien, Beitrag WeD6
- S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*Yb-doped oxides for high power thin-disk lasers*  
2<sup>nd</sup> Laser Ceramic Symposium 2006, Tokio, Japan, Beitrag 10aAS6
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*High Power Operation of Yb:LuVO<sub>4</sub> and Yb:YVO<sub>4</sub> Crystals in the Thin-Disk Laser Setup*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2007, Vancouver, Kanada, Beitrag MA 3
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Thin-Disk Laser Operation of Yb<sup>3+</sup>-Doped NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2007, Vancouver, Kanada, Beitrag MA 4
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Spectroscopy and high efficiency laser operation of high purity Yb<sup>3+</sup>-doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> grown by the heat exchanger method*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe-EQEC) 2007, München, Beitrag CA7-3-WED
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*High power thin disk laser operation of Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with 80% slope efficiency,*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe-EQEC) 2007, München, Post-Deadline Beitrag CP1-7
- K. Petermann, R. Peters, C. Kränkel und G. Huber  
*Crystal growth by the heat exchanger method and spectroscopic characterisation of high purity Yb<sup>3+</sup>-doped Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*  
15th International Conference on Crystal Growth (ICCG) 2007, Salt Lake City, USA

- S. Rivier, A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, M. Zorn, M. Weyers und G. Erbert  
*Passively mode-locked Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> oscillator*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2008, Nara, Japan, Beitrag ME1
- S. V. Marchese, C. R. E. Baer, A. G. Engqvist, M. Golling, D. J. H. C. Maas, T. Südmeyer, U. Keller, R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Efficient femtosecond Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk laser*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2008, Nara, Japan, Beitrag ME5
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Influence of the Yb-doping concentration on the efficiency of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk lasers*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2008, Nara, Japan, Beitrag MF2
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*Efficient cw Thin Disk Laser Operation of Yb:Ca<sub>4</sub>YO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> with 20 W Output Power*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2008, Nara, Japan, Beitrag MF5
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*Broad Wavelength Tunability at High Output Power using Yb-doped Oxides in the Thin Disk Laser Setup*  
9. German Russian Laser Symposium 2008, Lübeck/Hamburg, Beitrag VIII-4
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber  
*High power Sesquioxide Lasers: Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag CTuKK4
- S. V. Marchese, C. R. E. Baer, R. Peters, C. Kränkel, A. G. Engqvist, M. Golling, D. J. H. C. Maas, K. Petermann, T. Südmeyer, G. Huber und U. Keller  
*Efficient femtosecond high power Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk laser*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag CFI1
- R. Peters, C. Kränkel, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Petermann und G. Huber  
*Novel Highly Yb-doped Thin-disc Lasers*  
3<sup>rd</sup> EPS-QEOD Europhoton Conference 2008, Paris, Frankreich, Invited Talk

## Poster

- C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, M. Mond, K. Petermann und G. Huber  
*Continuous wave laser operation of Yb<sup>3+</sup>:YVO<sub>4</sub>*

- C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, V. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*Low temperature spectroscopy of  $Yb^{3+}:YVO_4$*   
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe-EQEC) 2005, München, Beitrag TE-19-TUE
- J. Liu, X. Mateos, U. Griebner, V. Petrov, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, H. Zhang, J. Wang und M. Jiang  
*Diode-pumped  $Yb:TV_4O_{14}$  ( $T=Y, Gd, \text{ and } Lu$ ) lasers provide output powers exceeding 4 W in the continuous-wave regime*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2006), Long Beach, USA, Beitrag CThN6
- N. Pavel, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*In-band Pumped, High-Power Intracavity Frequency Doubled Nd-Vanadate Thin-Disk Lasers at 530 nm*  
Advanced Solid-State Photonics Conference 2008, Nara, Japan, Beitrag MC41
- N. Pavel, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*High-Power Emission of Nd-Vanadate Thin-Disk Lasers In-band Pumped at 0.88- $\mu\text{m}$  Directly into the Emitting Level*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag JTua1
- C. Kränkel, H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*Determination of Fluorescence Lifetimes of  $Yb^{3+}$  in different Borate and Vanadate Hosts using the Pinhole Method*  
Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag JTua4
- H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber  
*The pinhole method: lifetime measurements without radiation trapping*  
International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL '08), Lyon, Frankreich, 2008, Beitrag WE-P-084
- L. Aarts, D. Amans, A. Belsky, B. Bezhanov, G. Burato, C. de Mello Donega, C. Dujardin, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Horchani-Naifer, S. Ivanov, I. Kamenskikh, S. Kutovoi, C. Kränkel, D. Krasikov, G. Ledoux, A. Meijerink, V. Mikhailin, K. Ovanesyan, C. Pedrini, K. Petermann, R. Peters, A. Petrosyan, A. Scherbinin, G. Shapochkin, G. Shirinyan, D. Spassky, D. van der Linden, A. Vasil'ev, V. Vlasov, A. Zagumennyi, Y. Zavartsev

*Search for Efficient Ytterbium-Doped Scintillators with Charge-Transfer Luminescence*  
International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL '08), Lyon, Frankreich, 2008, Beitrag MO-P-036

## Beiträge zu nationalen Konferenzen

### Vorträge

- C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, M. Mond, K. Petermann und G. Huber  
*Spektroskopie und Lasereigenschaften von  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$*   
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2005, Berlin, Beitrag Q 66.1
- J. Johannsen, M. Mond, C. Kränkel, K. Petermann, G. Huber, L. Ackermann, D. Rytz und K. Dupré  
*Quantenwirkungsgrade von  $\text{Yb}:\text{LSB}$  und  $\text{Yb}:\text{NGW}$  als Schlüsselparameter für den Hochleistungslaserbetrieb*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2005, Berlin, Beitrag Q 66.3
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann  
 *$\text{Yb}:\text{NGW}$  und  $\text{Yb}:\text{LSB}$ : Zwei neue Lasermaterialien für Hochleistungs-Scheibenlaser*  
Arbeitskreistagung Kristalle für Laser und NLO der Deutschen Gesellschaft für Kristallwachstum und Kristallzüchtung (DGKK), 2005, Idar-Oberstein
- C. Kränkel, M. Mond, K. Petermann, G. Huber  
*Hochleistungs- $\text{Yb}:\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$ -Scheibenlaser mit weitem Durchstimmbereich*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2006, Frankfurt, Beitrag Q 11.3
- R. Peters, C. Kränkel, C. Hirt, S. T. Fredrich-Thornton, K. Petermann und G. Huber  
 *$\text{Yb}^{3+}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Hochleistungslaser, Züchtung und Lasereigenschaften*  
Arbeitskreistagung Kristalle für Laser und NLO der Deutschen Gesellschaft für Kristallwachstum und Kristallzüchtung (DGKK), 2007, Berlin
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann, G. Huber, *Hocheffizienter  $\text{Yb}:\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Scheibenlaser*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2008, Darmstadt, Beitrag Q 11.4
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber  
*Efficient cw Thin Disk Laser Operation of  $\text{Yb}:\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  with 20 W Output Power*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2008, Darmstadt, Beitrag Q

**Poster**

- C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, R. Peters und G. Huber  
*Starkaufspaltung und Wirkungsquerschnitte des neuen Lasermaterials  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$*   
Norddeutscher Lasertag 2004, Hamburg
- C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, G. Huber  
*Leistungsskalierung und Durchstimmexperimente mit Yb-dotierten Vanadaten und Boraten im Scheibenlaseraufbau*  
Norddeutscher Lasertag 2006, Hannover
- R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann, G. Huber  
*Untersuchung von Ytterbium-dotierten Natrium-Gadolinium-Wolframat-Scheibenlasern*  
Norddeutscher Lasertag 2006, Hannover
- R. Peters, C. Kränkel, C. Hirt, N.-O. Hansen, K. Petermann, G. Huber  
*Kristallzucht, Spektroskopie und Lasereigenschaften von hochreinem  $\text{Yb}:\text{Lu}_2\text{O}_3$*   
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2007, Düsseldorf, Beitrag Q 240
- C. Kränkel, R. Peters, N.-O. Hansen, C. Hirt, K. Petermann, G. Huber  
*Ytterbium-dotierte Vanadate als aktive Materialien im Scheibenlaseraufbau*  
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2007, Düsseldorf, Beitrag Q 241

**Vorträge im Rahmen von Gruppenseminaren**

- C. Kränkel  
*HEM-Zucht: Ein mögliches Verfahren zur Herstellung des neuen Lasermaterials  $\text{Yb}^{3+}:\text{YVO}_4$*   
Seminar über Festkörperlaser, Universität Hamburg (2004)
- C. Kränkel, R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Petermann, G. Huber  
*New Yb-doped oxide materials for thin-disk laser applications*  
Gruppenseminar der Gruppe Kurzzeit-Laser Physik, ETH Zürich, Schweiz (2007)



# Danksagung

Diese Arbeit entstand in den Jahren 2005 bis 2008 im Arbeitsbereich Festkörperlaser des Instituts für Laser-Physik der Universität Hamburg.

Es war mir eine große Freude, meine Promotion unter so ausgezeichneten Bedingungen, wie sie dort unter der Leitung von Prof. Günter Huber herrschen, durchführen zu dürfen. Im Laufe meiner Arbeit hatte ich bei einigen Auslandsbesuchen und in Gesprächen mit auswärtigen Gästen die Gelegenheit, mich davon zu überzeugen, dass die hervorragende technische Ausstattung keineswegs als Selbstverständlichkeit hingenommen werden kann. Neben der spannenden und ertragreichen Aufgabenstellung und den großen wissenschaftlichen Freiheiten die mir bei der Bewältigung dieser Aufgaben gewährt wurden, bezieht sich mein Dank daher ganz explizit auch auf Prof. Hubers weise Führung in den vergangenen Jahrzehnten, die dazu führte, dass ich diese Bedingungen vorfinden durfte.

Auch Dr. Klaus Petermann gebührt hierfür sicher ein großer Teil des Dankes. Zudem möchte ich ihm danken dafür, dass er auch zu später Stunde nicht nur stets ein offenes Ohr für meine Fragen hatte, sondern meist auch eine gute Antwort.

Meinem Zimmer- und Themenkollegen Rigo Peters möchte ich für seinen unerschütterlichen Optimismus, unzählige Diskussionen und Inspirationen, das Korrekturlesen dieser Arbeit sowie erstaunlich viele schöne Tage auf gemeinsamen Konferenz-“Urlauben” danken.

Susanne T. Fredrich-Thornton hätte sich in den vergangenen beinahe zehn Jahren unserer gemeinsamen Studienzeit eine eigene Seite in dieser Danksagung verdient. Die Kurzfassung lautet einfach: “domo arigato gozaimasu” - Danke, und alles!

Außerdem gebührt mein Dank: Matthias “Rosa” Fechner und Henning Kühn für das Korrekturlesen von Teilen dieser Arbeit, Florian Wittkötter für wichtige Cary-Messungen, Friedjof Tellkamp fürs Basteln, Stefan Garbers für schnelle Werkstatt-Hilfen, Robert Fischer für das Verschwindenlassen unbequemer Kristallproben und Silke Frömmig für starken Kaffee sowie Jörg Siebenmorgen für PC- und L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X-Hilfe, Dr. René Hartke für gute Fragen und ein tolles Tuning-Tool und Dr. Bert Neubert für nachhaltiges Socializing auf Konferenzen.

Für hilfreiche Vorarbeit mit LSB möchte ich Prof. Jan-Peter Meyn, Jens Johannsen und Dr. Michael Mond meinen Dank aussprechen und Dr. Juan J. Romero ein “muchas gracias”.

A “thank you very much” goes to Dr. Blair Thornton for high-speed English-corrections in a high-speed train.

“Blagodaria” an Dr. Valentin Petrov, “merci” an Dr. Simon Rivier, “danke” an Dr. Uwe Griebner und “xièxie” an Dr. Junhai Liu vom Max-Born-Institut in Berlin für eine sehr gute Zusammenarbeit in den vergangenen Jahren und das zur Verfügung stellen etlicher Kristallproben.

Wichtige Hinweise und Ersatzteile für den Scheibenlaser wurden stets schnell und unkompliziert von Jochen Speiser, Dr. Mikhail Larionov und PD Dr. Adolf Giesen vom Institut für Strahlwerkzeuge in Berlin zur Verfügung, dafür gebührt ihnen ebenfalls mein Dank.

Für die Herstellung und Bereitstellung des in dieser Arbeit verwendeten Yb:YVO<sub>4</sub>-Kristalles gebührt mein Dank Dr. Reinhard Uecker und Margitta Bernhagen vom Institut für Kristallzüch-

tung in Berlin. For doing the same job with Yb:YCOB and Yb:LSB a “merci beaucoup” to Prof. Gerard Aka und Dr. Pascal Loiseau from the ENSCP in Paris, France and a “dziakuju” to Dr. Sergey A. Kutovoi from the FIRN in Krasnodar, Belarus, respectively. And once I’m in Belarus, another “dziakuju” to the BNTU Minsk researchers Nikolai Tolstik for late night discussions at the ILP and Maxim Gaponenko for fun in Pisa.

Dr. Nicolaie Pavel from the National Institute for Laser, Plasma and Radiation Physics in Bucarest, Romania, earned a “multumesc” for sharing his great experience in publishing results in many helpful conversations.

Prof. Ursula Keller von der ETH Zürich danke ich für die Erstellung des Zweitgutachtens dieser Arbeit. Außerdem durfte ich in ihren Laboren Experimente zum Modenkoppeln im Scheibenlaser durchführen; hierfür und für die dabei erfahrene Gastfreundlichkeit geht an sie und ihre Mitarbeiter Dr. Thomas Südmeyer, Dr. Sergio V. Marchese und Cyrill R. E. Bär ebenfalls ein großes Dankeschön. Den drei letztgenannten Herren danke ich schließlich noch für ein legendäres Rahmenprogramm zur ASSP in Nara.

Ein abschließender offizieller Dank geht an das BMBF für die Förderung des Projektes “Scheibenlaser höchster Brillanz” unter der Projektnummer 13N 8382.

Diese Arbeit wäre in dieser Form außerdem nicht entstanden ohne einen wunderbaren Familien- und Freundeskreis. Liebe & Verehrung gehen daher auch an: Aleks, Ali, Bela, Chris, meine Eltern, Emmo, Farin, Flo, Gabi, Heike, Holzer, Isabella, Janina, Jasmin, Jenny, Julia, Juliane, Katrin, Kloe, Konsti, Laufi, Lüde, Marcin, Markus, Mel, Melanie, Melli, Micha, Micha, Micka, Nuria, meine Oma, Renald, Rod, Sabine, Silvia, Sonja, Stefan, Steffi, Thorsten, Tina, Tobi, Ulli, Ulli, ganz Wilhelmsburg, Zimmermann und Zora sowie auf besondere Weise Kerim Dahmani (\*11.01.1983, † 22.01.2005).