

# **Ytterbium-dotierte Sesquioxide als hocheffiziente Lasermaterialien**

## **Dissertation**

zur Erlangung des Doktorgrades  
des Department Physik  
der Universität Hamburg

vorgelegt von  
**Rigo Peters**  
aus Neubrandenburg

Hamburg  
2009

Gutachter der Dissertation:

Prof. Dr. G. Huber  
Prof. Dr. K. Sengstock  
Prof. Dr. M. Pollnau

Gutachter der Disputation:

Prof. Dr. G. Huber  
Priv. Doz. Dr. V. M. Baev

Datum der Disputation:

08. April 2009

Vorsitzender des Prüfungsausschusses:

Dr. K. Petermann

Vorsitzender des Promotionsausschusses:

Prof. Dr. R. Klanner

Dekan der Fakultät für Mathematik,  
Informatik und Naturwissenschaften:

Prof. Dr. H. Graener

# Kurzfassung

R. Peters, *Ytterbium-dotierte Sesquioxide als hocheffiziente Lasermaterialien*

Gegenstand dieser Arbeit ist die Charakterisierung Yb-dotierter Sesquioxide sowie des Wolframats  $\text{Yb:NaGd(WO}_4)_2$  (NGW) hinsichtlich ihrer Eignung als aktive Materialien im Scheibenlaser. Ein weiterer Schwerpunkt liegt in der Weiterentwicklung und Optimierung des für die Hochtemperatur-Kristallzüchtung der Sesquioxide eingesetzten Kristallzüchtungsverfahrens.

Hierzu wurden mittels der Heat-Exchanger-Method  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ -,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - und  $\text{LuScO}_3$ -Kristalle unterschiedlicher Yb-Dotierungskonzentrationen hergestellt und der Einfluss der Züchtungsatmosphäre und der Tiegelform untersucht. In allen Fällen konnten erstmals sehr große Einkristalle hergestellt werden, im Falle von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  mit einem Volumen von bis zu  $30\text{ cm}^3$ . Anhand der Bestimmung der Lebensdauer des angeregten Zustandes von  $\text{Yb}^{3+}$  in den verschiedenen Materialien mit Hilfe der Pinhole-Methode konnte bei den Yb-dotierten Sesquioxiden eine deutliche Verminderung der Konzentrationslöschung im Vergleich zu früheren Arbeiten beobachtet werden. Dies ist ein Hinweis auf die ausgezeichnete Qualität der hergestellten Kristalle. Mit den ebenfalls ermittelten Absorptionswirkungsquerschnitten wurden über die Reziprozitäts-Relation und die Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung die Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Sesquioxide und des Yb:NGW bestimmt. Desweiteren wurde der Verlauf der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Yb-Dotierungskonzentration ermittelt. Die experimentellen Daten lagen in guter Übereinstimmung mit dem nach einem Modell von Klemens ermittelten theoretischen Verlauf und belegen die gute Eignung der Sesquioxide, vor allem von  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$ , hinsichtlich dieses Gesichtspunktes für Hochleistungsanwendungen.

Um weitere Aussagen über die Qualität der hergestellten Yb-dotierten Sesquioxide treffen zu können, wurden Laserexperimente unter Anregung mit einem Ti:Saphir-Laser durchgeführt. Bis zu einer Dotierungskonzentration von etwa 5 at.% Yb zeigten alle untersuchten Proben einen effizienten Laserbetrieb mit differentiellen Wirkungsgraden von bis zu 85%. Dies gilt auch für  $\text{Yb:LuScO}_3$ , für welches erstmals Laserbetrieb demonstriert wurde. In weiteren Experimenten konnte mit diesen Materialien der bisher effizienteste Laserbetrieb im Scheibenlaser mit differentiellen Wirkungsgraden von mehr als 80%, optischen Wirkungsgraden von über 73% und typischen Ausgangsleistungen um 35 W realisiert werden. Unter Verwendung von Yb:NGW kam es aufgrund der weniger guten thermischen Eigenschaften sowohl bei der Beschichtung der Scheibenlaserkristalle als auch im späteren Laserbetrieb zu Beschädigungen der Proben. Die höchste mit diesem Material erreichte Ausgangsleistung von 18,3 W wurde bei einem optischen Wirkungsgrad von etwa 42% erzielt. Experimente zur spektralen Durchstimmbarkeit ergaben für die Sesquioxide einen typischen Durchstimmbereich von 1000 nm bis 1110 nm, wobei die Ausgangsleistung bei einer Pumpleistung von 32 W über einen Wellenlängenbereich von 95 nm mehr als 10 W beträgt.

In Kooperation mit der ETH Zürich wurde erstmals ein modengekoppelter  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  Scheibenlaser demonstriert. Dabei konnte bei einer mittleren Ausgangsleistung von 20,5 W eine minimale Pulsdauer von 370 fs erzielt werden. Der höchste optische Wirkungsgrad betrug 43%. Die erzielten Resultate übertreffen die bisher mit Standardmaterial Yb:YAG erreichten Ergebnisse in Bezug auf Effizienz und Pulsdauer deutlich.

# Abstract

R. Peters, *Ytterbium-doped sesquioxides as highly efficient laser materials*

The subject of this thesis is the characterization of Yb-doped sesquioxides and NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (NGW) with regard to their applicability as gain-materials in the thin-disk laser setup. Special attention is paid to the growth technique used for the production of high melting sesquioxides.

For that aim Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and LuScO<sub>3</sub> crystals with different doping concentrations were grown using the heat exchanger method (HEM). The influence of the growth atmosphere and crucible design is investigated. For the first time, very large single crystalline samples of all sesquioxides could be grown, in case of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> up to a volume of 30 cm<sup>3</sup>. The excited state lifetime of Yb<sup>3+</sup> in these hosts is determined in spectroscopic investigations using the pinhole-method. In contrast to former publications, no decrease of the fluorescence lifetime with increasing Yb-concentration was observed. This can be attributed to the high purity of the crystals. Additionally, the absorption and emission cross sections of the investigated sesquioxides and Yb:NGW are determined. The thermal conductivities of the grown sesquioxide crystals were determined by the heat wave analysis method, focusing on the influence of the Yb-doping concentration. This dependency could well be fitted by a simple theoretical model by Klemens. These investigations on thermal conductivity confirmed the suitability of sesquioxides, especially that of Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, for high power laser applications.

Laser properties of the HEM-grown crystals are investigated using a longitudinal resonator and a Ti:sapphire laser as a pump source. Up to a doping concentration of 5 at.% Yb highly efficient laser operation is observed for all samples with slope efficiencies up to 85%. This also applies for the stoichiometrically mixed Yb:LuScO<sub>3</sub> for which laser operation is demonstrated for the first time. In further experiments with the same materials the most efficient laser operation ever obtained in the thin-disk laser setup is achieved. With output powers in the range of 35 W the typical slope efficiency is above 80% at optical-to-optical efficiencies of more than 73% with respect to the incident pump power. In case of Yb:NGW a large fraction of the samples was damaged during the coating process and the laser experiments due to the poor thermal properties. Nevertheless, a maximum output power of 18.3 W with an optical-to-optical efficiency of 42% could be achieved. Furthermore, spectral tuning experiments are performed in the thin-disk laser setup. For the sesquioxides the typical tuning range is from 1000 nm to 1110 nm with more than 10 W of output power over a spectral range of more than 95 nm for a launched pump power of 32 W.

In cooperation with the ETH Zurich a passively mode-locked Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin-disk laser is realized for the first time. The achieved minimum pulse duration is 370 fs at an average output power of more than 20 W. The highest optical-to-optical efficiency is 43%. These results suggest that the use of Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> as a gain material yields superior performance to standard Yb:YAG thin-disk lasers in terms of efficiency and pulse duration.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>VII</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>XI</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Motivation . . . . .	1
1.2 Zielsetzung und Gliederung der Arbeit . . . . .	3
<b>2 Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1 Das Seltenerd-Ion . . . . .	5
2.1.1 Freies Ion . . . . .	5
2.1.2 Einfluss des Kristallfeldes . . . . .	7
2.2 Wechselwirkung von Strahlung und Materie . . . . .	7
2.2.1 Intraionische Prozesse . . . . .	7
2.2.2 Interionische Prozesse . . . . .	11
2.2.3 Das $\text{Yb}^{3+}$ -Ion . . . . .	13
2.3 Grundlagen der Laserphysik . . . . .	14
2.3.1 Modell des Grundzustandslasers . . . . .	15
2.3.2 Spektral durchstimmbarer Laserbetrieb . . . . .	19
2.3.3 Modenkopplung . . . . .	20
2.4 Das Scheibenlaserkonzept . . . . .	23
2.4.1 Prinzip . . . . .	23
2.4.2 Pumpoptik . . . . .	24
2.4.3 Analytisches Modell des Scheibenlasers . . . . .	24
<b>3 Die verwendeten Wirtsmaterialien</b>	<b>31</b>
3.1 Anforderungen an das aktive Material im Scheibenlaser . . . . .	31
3.2 Bisher im Scheibenlaser verwendete Materialien . . . . .	32
3.3 Das Wolframat $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$ . . . . .	33
3.3.1 Kristallographische Eigenschaften . . . . .	33
3.3.2 Optische Eigenschaften . . . . .	35
3.3.3 Thermische Eigenschaften . . . . .	35
3.4 Die Sesquioxide $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , $\text{Y}_2\text{O}_3$ und $\text{Lu}_2\text{O}_3$ . . . . .	36
3.4.1 Kristallographische Eigenschaften . . . . .	36
3.4.2 Optische Eigenschaften . . . . .	37
3.4.3 Thermische Eigenschaften . . . . .	37
3.5 Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit . . . . .	38
3.5.1 Messung der Temperaturleitfähigkeit . . . . .	38

## Inhaltsverzeichnis

3.5.2	Verlauf der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration . . . . .	40
3.6	Bisher mit den untersuchten Materialien erzielte Laserresultate . . . . .	46
3.6.1	NGW . . . . .	46
3.6.2	Sesquioxide . . . . .	47
<b>4</b>	<b>Kristallzuchtung hochschmelzender Oxide</b>	<b>49</b>
4.1	Züchtungsverfahren . . . . .	49
4.1.1	Das Czochralski-Verfahren . . . . .	50
4.1.2	Das Nacken-Kyropoulos-Verfahren . . . . .	52
4.1.3	Das Bridgman-Verfahren . . . . .	52
4.1.4	Die Micro-Pulling-Down-Methode . . . . .	53
4.1.5	Das HEM-Verfahren . . . . .	53
4.1.6	Sesquioxid-Keramiken . . . . .	54
4.2	Kristallzuchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren . . . . .	55
4.2.1	Beschreibung der Züchtungsanlage . . . . .	55
4.2.2	Die verwendeten Tiegel . . . . .	56
4.2.3	Der Isolationsaufbau . . . . .	58
4.2.4	Die Züchtungsatmosphäre . . . . .	59
4.2.5	Der Züchtungsverlauf . . . . .	63
4.2.6	Züchtungsergebnisse . . . . .	65
4.2.7	Zusammenfassung der Ergebnisse und weitere Optimierung . . . . .	73
<b>5</b>	<b>Spektroskopische Untersuchungen</b>	<b>77</b>
5.1	Spektroskopische Messverfahren . . . . .	77
5.1.1	Bestimmung der Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte . . . . .	77
5.1.2	Fluoreszenzdynamik . . . . .	79
5.2	Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien . . . . .	82
5.2.1	Stark-Aufspaltung . . . . .	82
5.2.2	Fluoreszenzdynamik . . . . .	83
5.2.3	Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte . . . . .	87
5.2.4	Verstärkungswirkungsquerschnitte . . . . .	91
5.2.5	Zusammenfassung der spektroskopischen Eigenschaften . . . . .	93
<b>6</b>	<b>Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator</b>	<b>95</b>
6.1	Aufbau . . . . .	95
6.2	Ergebnisse . . . . .	96
6.3	Fazit . . . . .	99
<b>7</b>	<b>Scheibenlaserexperimente</b>	<b>101</b>
7.1	Präparation der Laserkristalle . . . . .	101
7.1.1	Politur . . . . .	101
7.1.2	Beschichtung . . . . .	102
7.1.3	Kontaktierung . . . . .	103
7.2	Verwendete Pumpquellen . . . . .	104

7.3	Abschätzung der optimalen Betriebsparameter . . . . .	105
7.3.1	Randbedingungen . . . . .	105
7.3.2	Temperatur der Scheiben . . . . .	106
7.3.3	Absorptionseffizienz . . . . .	108
7.3.4	Auslegung der optimalen Parameter . . . . .	111
7.4	Dauerstrichbetrieb bei fester Laserwellenlänge . . . . .	114
7.4.1	Yb:NGW . . . . .	115
7.4.2	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Yb:LuScO <sub>3</sub> . . . . .	118
7.4.3	Lasereigenschaften von hochdotiertem Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	127
7.5	Dauerstrichbetrieb mit Variation der Laserwellenlänge . . . . .	131
7.5.1	Yb:NGW . . . . .	131
7.5.2	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Yb:LuScO <sub>3</sub> . . . . .	132
7.5.3	Resonator mit mehreren Verstärkungsmedien . . . . .	135
7.6	Modengekoppelter Betrieb im Scheibenlaser . . . . .	138
7.6.1	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	138
7.7	Fazit der Laserexperimente . . . . .	140
<b>8</b>	<b>Resümee</b>	<b>143</b>
8.1	Zusammenfassung . . . . .	143
8.2	Ausblick . . . . .	146
	<b>Anhang</b>	<b>148</b>
<b>A</b>	<b>Phasendiagramme von Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und ZrO<sub>2</sub></b>	<b>149</b>
<b>B</b>	<b>Brechzahlen und Sellmeier-Gleichungen von Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und NGW</b>	<b>153</b>
<b>C</b>	<b>Quellenangaben für Tabelle 3.2</b>	<b>155</b>
<b>D</b>	<b>Starkniveaus von Yb<sup>3+</sup> in Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, NGW und YAG</b>	<b>157</b>
<b>E</b>	<b>Auffistung der untersuchten Scheibenlaserkristalle</b>	<b>159</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>162</b>
	<b>Veröffentlichungen</b>	<b>177</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>187</b>





# Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung der intraionischen Prozesse . . . . .	8
2.2	Schematische Darstellung möglicher interionischer Prozesse . . . . .	12
2.3	Schematische Darstellung der verschiedenen Lasertypen . . . . .	15
2.4	Transmissionskurven eines Lyot-Filters . . . . .	20
2.5	Zeitliches Verhalten der Intensität von sieben überlagerten Moden . . . . .	21
2.6	Brechungsindexprofil und Feldverteilung eines antiresonanten SESAM . . . . .	22
2.7	Prinzipieller Aufbau eines Scheibenlasers . . . . .	24
2.8	Schematische Darstellung des verwendeten Scheibenlasermoduls . . . . .	25
3.1	Schematische Darstellung der Kristallstruktur von $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$ . . . . .	34
3.2	Schematische Darstellung der Bixbyit-Struktur der Sesquioxide . . . . .	37
3.3	Normierter Verlauf der Streustärke $\epsilon$ für unterschiedliche Massenverhältnisse von Dotierion und substituiertem Ion . . . . .	42
3.4	Konzentrationsabhängige Wärmeleitfähigkeit verschiedener Kristalle . . . . .	44
3.5	Verlauf der Wärmeleitfähigkeit im relevanten Dotierbereich . . . . .	45
4.1	Schematische Darstellung verschiedener tiegelbasierter Züchtungsverfahren . . . . .	51
4.2	Schematische Darstellung der HEM-Züchtung . . . . .	53
4.3	Schematische Darstellung des Pumpenkreislaufs des HEM-Systems . . . . .	55
4.4	Schematische Darstellung des Aufbaus für die HEM-Züchtung . . . . .	58
4.5	Phasendiagramm von $\text{Re-Lu-O}_2$ . . . . .	61
4.6	Verlauf des Rhenium-Dampfdrucks in Abhängigkeit von der Temperatur . . . . .	62
4.7	Bilder des Tiegelinhalts nach dem Vorschmelzen . . . . .	63
4.8	Gemessener Sauerstoffpartialdruck am Beispiel eines Aufschmelzvorgangs . . . . .	65
4.9	Mikroskopaufnahmen verschiedener Sesquioxid-Kristalle . . . . .	67
4.10	Absorptionsspektren verschiedener $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Kristalle vor und nach dem Tempern . . . . .	68
4.11	Mikroskopaufnahme des Animpfbereichs eines $\text{Yb}(5 \text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$ . . . . .	69
4.12	Absorptionsmessung und Mikroskopaufnahme einer $\text{Er}(0,3 \text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$ Probe mit metallischen Einschlüssen nach Tempern an Luft . . . . .	70
4.13	Ortsabhängige Mikrosondenanalyse verschiedener Rheniumpartikel . . . . .	71
4.14	Ortsabhängige Mikrosondenanalyse verschiedener Kristalle . . . . .	73
5.1	Messaufbau zur Emissionsmessung . . . . .	78
5.2	Messaufbau der Pinhole-Methode zur Fluoreszenzlebensdauer-Messung . . . . .	80
5.3	Stark-Aufspaltung der untersuchten Materialien im Vergleich zu $\text{Yb:YAG}$ . . . . .	83
5.4	Fluoreszenzabklingkurve und Abhängigkeit der gemessenen Lebensdauer vom Pinhole-Durchmesser . . . . .	84
5.5	Dotierungsabhängige Fluoreszenzlebensdauer für $\text{Yb:NGW}$ . . . . .	85

## Abbildungsverzeichnis

5.6	Dotierungsabhängige Fluoreszenzlebensdauern verschiedener Sesquioxide . . .	86
5.7	Absorptionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien . . . . .	88
5.8	Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien . . . . .	89
5.9	Verstärkungswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG . . . . .	92
6.1	Schematische Darstellung des Aufbaus der Laserexperimente unter Anregung eines Ti:Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Lasers . . . . .	95
6.2	Lasercharakteristik aller untersuchten Sesquioxid-Kristalle unter Ti:Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Anregung . . . . .	97
7.1	Emissionsprofile der verwendeten Pumpdioden . . . . .	104
7.2	Berechnete mittlere Kristalltemperatur in Abhängigkeit der Pumpleistung . . .	107
7.3	Berechnete integrierte Absorptionswirkungsquerschnitte . . . . .	109
7.4	Berechnete Absorptionseffizienz der untersuchten Materialien und Yb:YAG . .	110
7.5	Berechneter optimaler Auskoppelgrad in Abhängigkeit der internen Verluste . .	112
7.6	Berechnete optische Effizienz und optimale Kristalldicke für Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	113
7.7	Berechnetes optimales Produkt aus Dicke und Dotierung für Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	114
7.8	Leistungskurven eines 0,1 mm dicken Yb(15,3 at.%):NGW . . . . .	115
7.9	Absorptionseffizienz und differentieller Wirkungsgrad einer Yb:NGW-Scheibe	116
7.10	Laserspektrum und maximale differentielle Wirkungsgrade von Yb:NGW . . .	117
7.11	Bilder zweier bei etwa 25 W Pumpleistung beschädigter NGW-Scheiben . . . .	118
7.12	Leistungskurven eines 0,15 mm dicken Yb(5 at.%):Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	119
7.13	Differentieller Wirkungsgrad und Laserschwelle eines 0,25 mm dicken, 5 at.% Yb-dotierten Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Kristalls in Abhängigkeit des Auskoppelgrades . . . . .	120
7.14	Maximaler differentieller Wirkungsgrad von Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> in Abhängigkeit der Dicke und Dotierung . . . . .	121
7.15	Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente mit Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	123
7.16	Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente mit Yb:LuScO <sub>3</sub> . . . . .	124
7.17	Einfluss der Pumpwellenlänge auf die Ausgangsleistung bei Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . .	125
7.18	Leistungskurven von Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bei Verwendung der JOLD140-Laserdiode . . . . .	126
7.19	Leistungskurven verschiedener Yb(10 at.%):Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheiben . . . . .	127
7.20	Degradationsverhalten einer Yb(10 at.%):Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibe . . . . .	128
7.21	Degradationsverhalten einer Yb(5 at.%):Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibe . . . . .	130
7.22	Resultate Durchstimmexperimente Yb:NGW . . . . .	131
7.23	Resultate Durchstimmexperimente zweier Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Kristalle . . . . .	132
7.24	Resultate der Durchstimmexperimente aller Sesquioxide . . . . .	133
7.25	Berechnete und gemessene Durchstimmkurven eines Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Kristalls . . . .	134
7.26	Kurzzeitverhalten Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> bei einer Laserwellenlänge von 1115 nm . . . .	135
7.27	Schematische Darstellung des Resonatoraufbaus mit zwei Pumpkammern . . .	136
7.28	Resultate der Durchstimmexperimente unter Verwendung mehrerer Pumpkammern . . . . .	137

7.29	Schematische Darstellung des Resonatoraufbaus für die Modenkopplungsexperimente eines Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibenlasers . . . . .	138
7.30	Autokorrelations- und optisches Spektrum des modengekoppelten Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibenlasers . . . . .	139
7.31	Ausgangsleistung und optische Effizienz des modengekoppelten Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibenlasers . . . . .	140
A.1	Phasendiagramm Re-Sc-O <sub>2</sub> . . . . .	150
A.2	Phasendiagramm Re-Y-O <sub>2</sub> . . . . .	150
A.3	Phasendiagramm Re-Zr-O <sub>2</sub> . . . . .	151
B.1	Brechzahlen von Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> und Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	154
B.2	Brechzahlen von NGW. . . . .	154

## *Abbildungsverzeichnis*

# Tabellenverzeichnis

3.1	Temperatur- und Wärmeleitfähigkeiten der untersuchten Sesquioxide. . . . .	39
3.2	Relevante Eigenschaften der untersuchten Materialien . . . . .	48
4.1	Auflistung der verwendeten Rheniumtiegel . . . . .	57
4.2	Einfluss der Sauerstoffkonzentration in der Atmosphäre auf die Züchtungsergebnisse . . . . .	74
4.3	Liste der hergestellten Kristalle . . . . .	76
5.1	Spektroskopischen Eigenschaften der untersuchten Materialien . . . . .	94
7.1	Spezifikationen der verwendeten Laserdioden . . . . .	105
7.2	Parametersatz für die Verwendung im analytischen Modell . . . . .	106
7.3	Zusammenfassung der Scheibenlaserexperimente . . . . .	141
B.1	Sellmeier-Gleichungen für die undotierten Sesquioxide sowie für NGW. . . . .	153
C.1	Quellenangaben für Tab. 3.2. . . . .	155
D.1	Starkaufspaltung und Zustandssummen von $\text{Yb}^{3+}$ in den untersuchten Materialien sowie in YAG. . . . .	157
E.1	Auflistung der verwendeten Yb:NGW-Scheibenlaserkristalle. . . . .	159
E.2	Auflistung der verwendeten Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibenlaserkristalle. . . . .	160
E.3	Auflistung der verwendeten Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Scheibenlaserkristalle. . . . .	161
E.4	Auflistung der verwendeten Yb:LuScO <sub>3</sub> -Scheibenlaserkristalle. . . . .	161

## *Tabellenverzeichnis*

# 1 Einleitung

## 1.1 Motivation

Diodengepumpte Festkörperlaser (engl. *diode pumped solid-state lasers, DPSSLs*) finden heutzutage vielfältige Verwendung in den unterschiedlichsten Bereichen wie der Medizin, Spektroskopie, Nachrichten- oder Messtechnik. Auch in der Materialbearbeitung werden DPSSLs beispielsweise zum Schweißen, Schneiden oder zum Bohren eingesetzt. Hier hat sich neben anderen der sogenannte *Scheibenlaser* [Gie94] als eines der herausragendsten Laserkonzepte etabliert, da er eine hohe Effizienz mit einer ausgezeichneten Strahlqualität verbindet. Dieses Laserkonzept, welches gemeinsam vom Institut für Strahlwerkzeuge (IFSW) und dem Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Stuttgart entwickelt wurde [Bra93, Bra94], beruht auf einem aktiven Medium in Form einer dünnen Kristallscheibe, welche an einer der Stirnflächen für Pump- und Laserwellenlänge verspiegelt ist und über diese großflächig gekühlt wird. Durch die Kühlung in Richtung der Resonatorachse und die geringe Dicke der Scheibe bilden sich vorwiegend axiale Temperaturgradienten aus. Dadurch werden sowohl die Stärke der thermischen Linse als auch deren sphärischen Aberrationen gering gehalten. Die Skalierung der Ausgangsleistung erfolgt dabei unter Beibehaltung der maximalen Leistungsdichten über die Vergrößerung der Durchmesser von gepumptem Bereich und Lasermode. Der sich aus der geringen Dicke des Lasermediums ergebende Nachteil der verminderten Absorption, die für einen Doppeldurchgang typischerweise nur 15% - 30% beträgt, wird durch eine spezielle Pumpoptik behoben, mithilfe derer die Pumpstrahlung mehrfach durch den Kristall geführt wird. Ein weiterer Vorteil dieser Pumpoptik ist die aus dem Mehrfachdurchlauf resultierende hohe effektive Pumpleistungsdichte, womit sich das Scheibenlaserkonzept besonders für den Einsatz von Quasi-Drei-Niveau Materialien eignet. So ist es nicht überraschend, dass das bisher am besten untersuchte Lasermedium für den Scheibenlaser auf  $\text{Yb}^{3+}$  als aktivem Ion basiert. Dieses zeichnet sich aufgrund seines einfachen Energieniveauschemas mit nur zwei Energieniveaus durch einen niedrigen Quantendefekt aus. Als Wirtsmaterial hat sich Yttrium-Aluminium-Granat (YAG) aufgrund seiner guten thermomechanischen Eigenschaften etabliert. So konnten mit Yb:YAG im Scheibenlaser bisher die höchsten mit diesem Konzept erreichten Ausgangsleistungen von 5,3 kW für eine Scheibe und fast 10 kW bei Verwendung eines Resonators mit mehreren Scheiben erzielt werden [Gie07a]. Die maximal erreichbare optische Effizienz beträgt etwa 65%. Kommerzielle Systeme erreichen heutzutage eine Ausgangsleistung von 8 kW bei einem Strahlparameterprodukt von 8 mm·mrad [Tru09].

Im Hochleistungsbetrieb stellen vor allem die thermischen Eigenschaften des aktiven Materials begrenzende Faktoren im Hinblick auf Effizienz und Strahlqualität des Lasers dar. So ist die mittlere Kristalltemperatur bei gleichem Wärmeeintrag vom Inversen der Wärmeleitfähigkeit des Materials abhängig. Da zudem ein linearer Zusammenhang zwischen Kristalltemperatur und -dicke besteht, ist es wünschenswert, dass die zur effizienten Absorption des Pumplichts notwendige Scheibendicke möglichst gering ist. Um dies zu erreichen, ohne dafür die Anzahl

## 1 Einleitung

der Pumpdurchlichtgänge zu erhöhen, ist eine höhere Dotierungskonzentration erforderlich. In diesem Punkt zeigten sich in der Vergangenheit unerwartete Probleme, welche die im Scheibenlaser verwendbare Yb-Konzentration in Yb:YAG auf 10 at.% - 12 at.% begrenzen [Lar08a]. Dabei kommt es bei hohen Dichten der angeregten Yb-Ionen zum Auftreten zusätzlicher Verlustprozesse, die zu einem starken Aufheizen der Kristalle führen. Eine vollständige Erklärung für dieses Verhalten liegt bisher nicht vor. Umfassende Untersuchungen zu diesem Thema sind Gegenstand aktueller Forschung [Fre09]. Diese Problematik beschränkt die minimale Dicke, bei der noch effiziente Absorption und damit effizienter Laserbetrieb in Yb:YAG erzielt werden kann, auf etwa 150  $\mu\text{m}$  - 200  $\mu\text{m}$ . Eine Möglichkeit bei gleicher Ionendichte eine Verbesserung der Lasereigenschaften zu erzielen, sind daher Wirtsmaterialien, welche eine höhere Wärmeleitfähigkeit aufweisen und damit auch bei Scheiben dieser Dicke eine zu starke Aufheizung des Kristalls vermeiden. Eine andere Möglichkeit ist die Wahl von Wirtsgittern, in denen das Yb-Ion deutlich höhere Wirkungsquerschnitte besitzt, wodurch eine geringere Scheibendicke gewählt werden kann. Auch eine weitere Verringerung des ohnehin schon geringen Quantendefekts von Yb:YAG, das typischerweise in eine Absorptionsbande um 940 nm gepumpt wird, welche für die effektive Absorption breitbandiger Emission von Laserdioden besser geeignet ist als die schmale Nullphononenlinie um 969 nm, wäre von Vorteil. Auf diese Weise kann bereits die Wärmeerzeugung im Kristall reduziert werden.

In all diesen Gesichtspunkten stellt die Gruppe der kubischen Sesquioxide mit  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  eine äußerst vielversprechende Alternative zu YAG dar. Die maximalen Absorptionswirkungsquerschnitte dieser Materialien bei Yb-Dotierung liegen im Bereich um 975 nm und sind bei einer vergleichbaren Breite der Nullphononenlinie deutlich höher als diejenigen von Yb:YAG. Auch die Wärmeleitfähigkeit dieser Wirtsmaterialien liegt, bei ansonsten vergleichbaren thermischen, mechanischen und optischen Eigenschaften, zum Teil deutlich über derjenigen von YAG. Besonders Yb: $\text{Lu}_2\text{O}_3$  ist an dieser Stelle hervorzuheben, da es bei scheibenlasertypischen Yb-Konzentrationen eine etwa doppelt so hohe Wärmeleitfähigkeit wie Yb:YAG besitzt. Aufgrund der hohen Schmelzpunkte der Sesquioxide ist die Herstellung großer, qualitativ hochwertiger Kristalle mit konventionellen Züchtungsverfahren wie der Czochralski-Technik nur bedingt möglich. Dies begrenzte die in bisherigen Untersuchungen erreichten optischen Wirkungsgrade auf etwa 50% [Pet01, Lar01]. Um das Potential dieser Lasermedien ausschöpfen zu können, ist die Entwicklung eines Züchtungsprozesses erforderlich, der es erlaubt Kristalle in hoher Qualität und großen Abmessungen herzustellen. Vielversprechende Resultate lieferten in diesem Zusammenhang erste Züchtungsversuche nach dem HEM-Verfahren (engl. *heat exchanger method*) [Pet02a].

In speziellen Anwendungsbereichen wie dem spektral durchstimmbaren Laserbetrieb oder der Erzeugung ultrakurzer Pulse besitzt Yb:YAG aufgrund seiner für  $\text{Yb}^{3+}$  vergleichsweise geringen Verstärkungsbandbreite Nachteile. So wurden bisher mit mittels eines sättigbaren Halbleiterspiegels (SESAM) passiv modengekoppeltem Yb:YAG im longitudinal gepumpten Resonator minimale Pulsdauern von 340 fs erreicht [Kel96]. Im Scheibenlaser betrug die minimale mit Yb:YAG erreichte Pulsdauer etwa 705 fs, allerdings bei deutlich höheren Ausgangsleistungen von bis zu 80 W [Bru04]. Die bisher höchste Pulsenergie von 25,9  $\mu\text{J}$  wurde kürzlich unter Verwendung einer aktiven Multipasszelle realisiert [Neu08]. Insgesamt konnten also mit Yb:YAG im modengekoppelten Betrieb bereits sehr hohe Ausgangsleistungen erzielt werden, jedoch war die Pulslänge durch die limitierte Bandbreite begrenzt. Auf der anderen Seite konnten mit dem breitbandig emittierenden monoklinen Doppelwolframat Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>



(Yb:KYW) deutlich kürzere Pulsdauern von 240 fs realisiert werden [Bru02]. In diesem Fall war jedoch die Ausgangsleistung durch die Anisotropie der thermischen Eigenschaften des Materials begrenzt. Yb-dotierte Sesquioxide weisen bei zu Yb:YAG vergleichbaren oder besseren spektroskopischen und thermomechanischen Eigenschaften eine größere Bandbreite auf und könnten daher bei ähnlichen mittleren Ausgangsleistungen deutlich kürzere Pulse und damit wesentlich höhere Spitzenleistungen als Yb:YAG erreichen, was für viele Anwendungen von Vorteil ist.

Um noch kürzere Pulsdauern zu ermöglichen, müssen Materialien mit größerer Verstärkungsbandbreite eingesetzt werden. In der Vergangenheit haben sich dabei unter anderem die tetragonalen Doppelwolframate als interessant erwiesen [Riv05, Gar07]. Diese zeigen aufgrund einer hohen Unordnung des Gitters starke inhomogene Linienverbreiterungen, woraus sehr große Verstärkungsbandbreiten resultieren [Cas06]. Die ungeordnete Struktur wirkt sich aber auch negativ auf die thermomechanischen Eigenschaften aus, weshalb diese Materialien in der Regel eine geringe Wärmeleitfähigkeit aufweisen. Die bisher erzielten Ausgangsleistungen im longitudinal gepumpten Resonator sind dadurch meist auf den Bereich unter 1 W begrenzt. Im Gegensatz zum bereits erwähnten Yb:KYW, mit welchem im Dauerstrichbetrieb bereits Ausgangsleistungen von bis zu 1,1 kW realisiert werden konnten [Tru04], ist die Anisotropie der thermomechanischen Eigenschaften im Falle der tetragonalen Doppelwolframate hingegen deutlich geringer.

## 1.2 Zielsetzung und Gliederung der Arbeit

Die Zielsetzung dieser Arbeit kann in zwei Bereiche untergliedert werden. Zum einen soll das HEM-Verfahren zur Herstellung Yb-dotierter Sesquioxide untersucht und weiterentwickelt werden. Zum anderen sollen die dabei hergestellten Kristalle hinsichtlich ihrer Eignung zur Leistungsskalierung im Scheibenlaser charakterisiert werden. Neben den Sesquoxiden wird das zur Gruppe der tetragonalen Doppelwolframate gehörende Yb:NGW untersucht, um herauszufinden, inwieweit derartige Materialien trotz ihrer geringen Wärmeleitfähigkeit zur Leistungsskalierung im Scheibenlaser geeignet sind.

Im Anschluss an diese Einleitung werden in Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen für das Verständnis der spektroskopischen Eigenschaften Seltenerd-dotierter Festkörper unter besonderer Berücksichtigung des Yb-Ions vorgestellt. Es wird ferner eine kurze Einführung in die Theorie des Grundzustandslasers gegeben und das in dieser Arbeit verwendete Scheibenlaserkonzept sowie ein analytisches Modell zur Beschreibung des Scheibenlasers vorgestellt. Mit Hilfe dieses Modells werden in Kapitel 3 die für das Scheibenlaserdesign spezifischen Anforderungen an das Lasermaterial formuliert und die kristallographischen sowie die grundlegenden optischen und thermischen Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien unter diesen Gesichtspunkten diskutiert. Mit Kapitel 4 schließt sich eine ausführliche Vorstellung der Hochtemperatur-Kristallzucht der kubischen Sesquioxide an. Hierbei werden zunächst die in der Vergangenheit für diesen Zweck eingesetzten Züchtungsverfahren und die damit erzielten Ergebnisse zusammengefasst, bevor ausführlich auf das im Rahmen dieser Arbeit verwendete HEM-Verfahren eingegangen wird. Dabei werden nacheinander ein für diesen Temperaturbereich geeigneter Züchtungsaufbau, die Prozessführung sowie die Züchtungsergebnisse vorgestellt. Im Kapitel 5 werden die Ergebnisse der spektroskopischen Unter-

## *1 Einleitung*

suchungen präsentiert und mit den Eigenschaften von Yb:YAG verglichen. In Kapitel 6 und 7 werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Laserexperimente präsentiert. Dabei werden zunächst Untersuchungen der Lasereigenschaften der hergestellten Sesquioxide in einem longitudinal gepumpten Resonator unter Anregung mit einem Ti:Saphir-Laser vorgestellt. Daran anschließend werden die Experimente zur Leistungsskalierung und spektralen Durchstimmbarkeit im Scheibenlaser ausführlich diskutiert. Zudem werden in diesem Kapitel die Resultate der ersten Experimente zur passiven Modenkopplung eines Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers vorgestellt. Am Schluss werden die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf weitere Experimente gegeben.

## 2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen besprochen, die zum Verständnis der im weiteren Verlauf der Arbeit durchgeführten Spektroskopie- und Laserexperimente notwendig sind. Um die optischen Eigenschaften der Seltenerd-Ionen diskutieren zu können, wird zunächst deren energetische Struktur sowie der Einfluss des Kristallfeldes auf diese vorgestellt. Die Beschreibung der Wechselwirkung von Strahlung mit Materie stellt die Grundlage für die anschließende Diskussion der laserphysikalischen Eigenschaften eines Seltenerd-Ion dotierten Materials dar. Dabei wird zunächst ein allgemeines physikalisches Modell zur Beschreibung von Festkörperlasern mittels Ratengleichungen eingeführt. Abschließend werden das Prinzip und der Aufbau des Scheibenlasers näher erläutert und die zuvor gemachten Überlegungen anhand eines analytischen Modells auf diesen übertragen.

### 2.1 Das Seltenerd-Ion

Die Gruppe der Seltenen Erden besteht aus den Elementen Scandium und Yttrium sowie den Lanthaniden, also den Elementen von Lanthan (Ordnungszahl 57) bis Lutetium (OZ 71). Aufgrund ihrer Elektronenkonfiguration zeichnen sich diese durch sehr ähnliche chemische Eigenschaften aus, da die dafür verantwortlichen äußeren Schalen (5s-, 5p- und 6s) vollständig besetzt sind. Die für die optischen Eigenschaften verantwortliche 4f-Schale wird mit steigender Ordnungszahl beginnend bei Cer (ein 4f-Elektron) bis zu Ytterbium (vollbesetzte 4f-Schale) aufgefüllt. In einer Kristallmatrix liegen diese Elemente meist in Form von dreifach positiv geladenen Ionen vor, denen im Vergleich zum neutralen Ion die beiden 6s- und eines der 4f-Elektronen fehlen. Durch die weiterhin besetzten außen liegenden 5s- und 5p-Orbitale werden die in der 4f-Schale befindlichen Elektronen größtenteils vom Kristallfeld abgeschirmt. Daraus ergeben sich zum einen relativ schmale Linienbreiten für optische Übergänge innerhalb der 4f-Schale (typischerweise einige  $10 \text{ cm}^{-1}$ ), zum anderen ist die Änderung der elektronischen Struktur der Ionen in verschiedenen Wirtsgittern sehr gering. Daher ist es zulässig, die Energieniveaus in erster Näherung wie die eines freien Ions zu behandeln und das Kristallfeld anschließend als Störung zu berücksichtigen.

#### 2.1.1 Freies Ion

Um die energetischen Verhältnisse des Ions zu beschreiben, muss der Hamilton-Operator aufgestellt und die Schrödinger-Gleichung anschließend gelöst werden. In seiner allgemeinen Form kann der Hamilton-Operator unter der Annahme eines ortsfesten Kerns durch

$$H = \sum_{i=1}^N \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{r_i}^2 - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} \right) + \sum_{i<j=1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \quad (2.1)$$

## 2 Grundlagen

beschrieben werden. Der erste Term stellt dabei die kinetische Energie der  $N$  Elektronen des Atoms dar, der zweite die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen mit dem Kern der Kernladungszahl  $Z$  im Abstand  $r_i$ . Der letzte Term, welcher die abstoßende Wechselwirkung der einzelnen Elektronen untereinander enthält, wobei  $r_{ij}$  der Abstand zwischen dem Elektron  $i$  und  $j$  ist, verhindert eine Separation in  $N$  Einteilchen-Probleme, wodurch die Schrödingergleichung nicht analytisch gelöst werden kann. Es wird daher in der sogenannten Zentralfeldnäherung ein kugelsymmetrisches effektives Zentralpotential  $V(\vec{r}_i)$  eingeführt, welches näherungsweise die potentielle Energie der Elektronen im Feld des Kerns und der restlichen  $(N-1)$  Elektronen beschreibt. Der Hamilton-Operator ergibt sich dadurch zu

$$H_0 = \sum_{i=1}^N \left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{r_i}^2 + V(\vec{r}_i) \right). \quad (2.2)$$

Die Schrödingergleichung

$$H_0 \Psi_0 = E_0 \Psi_0 \quad (2.3)$$

ist nun separabel, wobei die Lösung

$$\Psi_0 = \prod_{i=1}^N |n_i l_i m_l m_s\rangle \quad (2.4)$$

ein Produkt aus Ein-Elektronen-Wellenfunktionen ist. Die Energieeigenwerte der Wellenfunktionen  $|n_i l_i m_l m_s\rangle$  hängen lediglich von der Hauptquantenzahl  $n_i$  und der Bahndrehimpulsquantenzahl  $l_i$  ab. Durch die Kugelsymmetrie des zur Näherung verwendeten Potentials sind  $n_i$  und  $l_i$  bezüglich der magnetischen Quantenzahl  $m_l$  und der Spinquantenzahl  $m_s$  entartet.

Damit das Pauli-Prinzip erfüllt ist, muss die Gesamtwellenfunktion  $\Psi_0$  vollständig antisymmetrisch sein. Dies kann über die Verwendung der Slater-Determinante, einer Konstruktion für antisymmetrische Produktzustände, anstelle des einfachen Produktansatzes erreicht werden [Hen89]. Das Zentralpotential kann schließlich über das Hartree-Fock-Verfahren iterativ ermittelt werden [Sch02].

Die bisher vernachlässigte Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander sowie die Spin-Bahn-Wechselwirkung können nun als Störterme  $H_{EE}$  bzw.  $H_{SB}$  eingeführt werden:

$$H_{EE} = \sum_{i < j=1}^N \frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)r_{ij}} - \sum_{i=1}^N \left( -\frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r_i} + V(r_i) \right) \quad (2.5)$$

und

$$H_{SB} = - \sum_{i=1}^N \frac{1}{2m^2 c^2 r_i} \cdot \frac{dV(r_i)}{dr_i} \cdot l_i \cdot s_i. \quad (2.6)$$

Es ergibt sich somit für den Hamilton-Operator des Gesamtsystems

$$H = H_0 + H_{EE} + H_{SB}. \quad (2.7)$$

Je nachdem, welche Störung die Energieeigenwerte stärker beeinflusst, lassen sich zwei Fälle unterscheiden.

Ist  $H_{SB}$  der dominierende Operator, koppeln zunächst bei jedem Elektron der Bahndrehimpuls  $\vec{l}_i$  und der Spin  $\vec{s}_i$ . Der Gesamtdrehimpuls ergibt sich dabei zu  $\vec{J} = \sum \vec{j}_i$  mit  $\vec{j}_i = \vec{l}_i + \vec{s}_i$ .

Dieser als *jj*-Kopplung bezeichnete Fall lässt sich in guter Näherung bei schweren Elementen wie z. B. Blei anwenden.

Überwiegt die Coulomb-Wechselwirkung, kommt es zur sogenannten *LS*- oder Russell-Saunders-Kopplung. Hierbei koppeln zunächst die Bahndrehimpulse  $\vec{l}_i$  zu  $\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i$  und die Spins  $\vec{s}_i$  zu  $\vec{S} = \sum_i \vec{s}_i$ . Der Gesamtdrehimpuls ergibt sich anschließend zu  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ .

Bei den Seltenen Erden sind die Störoperatoren  $H_{SB}$  und  $H_{EE}$  von etwa gleicher Größenordnung. Man spricht in diesem Fall von einer intermediären Kopplung, wobei eine Linearkombination von LS-Zuständen mit dem Gesamtdrehimpuls  $\vec{J}$  verwendet wird. Die Notation  $^{2S+1}L_J$  wird aus der Russell-Saunders-Kopplung übernommen.

### 2.1.2 Einfluss des Kristallfeldes

Befindet sich das Ion in einer Kristallmatrix, so ergibt sich eine Wechselwirkung der Elektronen der 4f-Schale und dem elektromagnetischen Feld der umgebenden Ionen, den sogenannte Liganden. Aufgrund der Abschirmung der 4f-Schale durch die äußeren Elektronen der 5s- und 5p-Schalen ist der Einfluss des Kristallfeldes im Vergleich zu den bisher behandelten Störtermen um etwa eine Größenordnung geringer. Der Hamiltonoperator (Gl. 2.7) wird um einen weiteren Störterm der Form

$$H_{LF} = -e \sum_{k=1}^N \vec{E}(\vec{r}_i) \cdot \vec{r}_i \quad (2.8)$$

für das Ligandenfeld erweitert. Für Ionen mit gerader Elektronenzahl wird die Entartung bezüglich  $M_J$  vollständig aufgehoben. Bei ungerader Elektronenzahl wie bei  $\text{Yb}^{3+}$  (67 Elektronen) bleibt nach dem Kramers-Theorem eine  $(J + \frac{1}{2})$ -fache Entartung erhalten. Es ergibt sich somit für das  $^2F_{5/2}$ -Multipllett des  $\text{Yb}^{3+}$  eine dreifache und für das  $^2F_{7/2}$ -Multipllett eine vierfache Aufspaltung. Diese beträgt in der Regel einige  $100 \text{ cm}^{-1}$  und ist damit etwa eine Größenordnung geringer als die durch  $H_{SB}$  und  $H_{EE}$  verursachte Aufspaltung.

## 2.2 Wechselwirkung von Strahlung und Materie

Bei der Wechselwirkung von Strahlung und Materie kann prinzipiell zwischen zwei Arten unterschieden werden. Bei intraionischen Prozessen ist lediglich ein Ion beteiligt, während bei interionischen Prozessen eine Wechselwirkung zwischen mehreren Ionen stattfindet.

### 2.2.1 Intraionische Prozesse

Zu den intraionischen Prozessen gehören neben der Absorption die spontane und die stimulierte Emission. Auch die nichtstrahlende Relaxation von angeregten Ionen, bei der die Energie in Form von Phononen an das Gitter abgegeben wird, wird dazugezählt. Schematisch sind diese vier Prozesse in Abb. 2.1 dargestellt.

#### Spontane Emission

Als spontane Emission versteht man die spontane Relaxation eines angeregten Ions in den Grundzustand unter Aussendung eines Photons der Energie  $\Delta E = h\nu$ . Die Änderung der Be-

## 2 Grundlagen

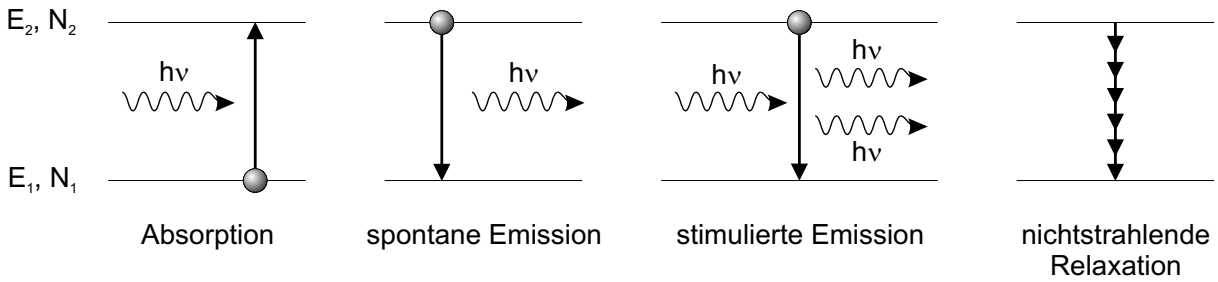


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der intraionischen Prozesse.

setzungsdichte  $N_2$  des oberen Niveaus kann dabei durch

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_{sp} = -AN_2 \quad (2.9)$$

beschrieben werden, wobei  $A$  den Einsteinkoeffizienten mit der Definition  $A = 1/\tau_i$  darstellt. Im ungestörten Fall folgt der zeitliche Verlauf der Fluoreszenzintensität also einem einfach exponentiellen Verlauf. Wird die Besetzung des oberen Niveaus zusätzlich durch Prozesse, wie z. B. Energietransfer zu Verunreinigungen oder nichtstrahlende Zerfälle verringert, so wird in der Regel eine Abweichung vom einfach exponentiellen Verlauf beobachtet. Die gesamte Zerfallsrate des Niveaus kann in diesem Falle durch eine Summe der Übergangsraten aller möglichen Zerfallskanäle gemäß

$$A_{i,ges} = \sum A_{ij} = \sum \frac{1}{\tau_{ij}} \quad (2.10)$$

beschrieben werden.

### Absorption und stimulierte Emission

Entspricht die Energie eines Photons dem Energieunterschied zwischen dem Grundzustand und einem energetisch höher liegenden Zustand, so ist die Absorption des Photons möglich. Das Ion geht dabei in einen angeregten Zustand über.

Die Abschwächung der Lichtintensität im Material kann dabei durch das Lambert-Beer-Gesetz

$$I = I_0 e^{-(\alpha \cdot d)} \quad (2.11)$$

beschrieben werden [Sve89]. Hierbei sind  $I_0$  und  $I$  die Intensität der elektromagnetischen Welle vor bzw. nach dem Durchgang durch das Medium der Dicke  $d$  mit dem materialspezifischen Absorptionskoeffizienten  $\alpha$ .

Die Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{12}$  für einen solchen Prozess ist dabei über das Produkt aus dem Photonenfluss  $F$  und dem Absorptionswirkungsquerschnitt  $\sigma_{12}$  gegeben. Die zeitliche Änderung der Besetzungsdichte  $N_1$  des energetisch tieferliegenden Niveaus kann demnach durch

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

dargestellt werden.

## 2.2 Wechselwirkung von Strahlung und Materie

Bei der stimulierten Emission induziert ein eingestrahktes Photon mit der Energie  $\Delta E = E_2 - E_1$  durch Wechselwirkung mit einem sich im angeregten Zustand  $E_2$  befindenden Ion die Emission eines weiteren, in Ausbreitungsrichtung, Frequenz, Phase und Polarisation identischen, also kohärenten Photons. Analog zur Absorption ergibt sich die Übergangsrate zu

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_{stim} = W_{21}N_2 = -\sigma_{21}FN_2. \quad (2.13)$$

Dabei ist  $\sigma_{21}$  der Wirkungsquerschnitt für den Übergang von  $E_2$  nach  $E_1$  und es gilt für nicht-entartete Niveaus [Ein16]:

$$\sigma_{21} = \sigma_{12} = \sigma_{atomar}. \quad (2.14)$$

Aus den Gln. 2.12 und 2.13 kann zusammen mit Gl. 2.14 folgende Bilanzgleichung für den Photonenfluss aufgestellt werden:

$$dF = (\sigma_{21}FN_2)dz - (\sigma_{12}FN_1)dz = \sigma F(N_2 - N_1)dz. \quad (2.15)$$

Anhand von Gl. 2.15 wird deutlich, dass eine Zunahme des Photonenflusses, also eine Verstärkung des eingestrahkten Lichts, nur unter der Bedingung  $N_2 > N_1$  gegeben ist. Die Bestimmung der Übergangswahrscheinlichkeiten  $W_{12}$  und  $W_{21}$  kann in einer halbklassischen Näherung vorgenommen werden. Während das Atom quantenmechanisch über die Schrödinger-Gleichung behandelt wird, wird die elektromagnetische Strahlung klassisch mit den Maxwell-Gleichungen beschrieben.

Für ein Atom mit zwei Energieniveaus der Energien  $E_1 < E_2$  und den dazugehörigen Wellenfunktionen

$$\Psi_{(1,2)}(\vec{r}, t) = \psi_{1,2} \cdot \vec{r} \cdot e^{-i(E_{1,2}/\hbar)t} \quad (2.16)$$

ergibt sich die Übergangsfrequenz  $\omega_0$  zu

$$\omega_0 = (E_2 - E_1)/\hbar. \quad (2.17)$$

Unter der Annahme die eingestrahkte elektromagnetische Welle mit der Frequenz  $\omega$  sei monochromatisch und  $\omega \simeq \omega_0$ , kann das elektrische Feld am Ort des Atoms als periodisch oszillierend mit  $\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot \sin(\omega t)$  beschrieben werden. Aus der Wechselwirkung der elektromagnetischen Welle  $\vec{E}$  mit dem elektrischen Dipolmoment  $\vec{\mu}$  ergibt sich für das Atom eine zusätzliche Energie  $H'$ , die mit Hilfe der zeitabhängigen Störungsrechnung beschrieben werden kann.

Mit  $\vec{\mu} = e \cdot \vec{r}$  ergibt sich

$$H'(t) = \vec{\mu} \cdot \vec{E} = e\vec{r} \cdot \vec{E}_0 \cdot \sin(\omega t). \quad (2.18)$$

Ist die Wellenlänge viel größer als die atomaren Dimensionen kann die Übergangsrate  $W_{12}$  zwischen den beiden Zuständen  $\psi_1$  und  $\psi_2$  mit dem Matrixelement des elektrischen Dipolmomentoperators

$$|\vec{\mu}| = |\vec{\mu}_{21}| = |\vec{\mu}_{12}| = e \int \psi_2^* \vec{r} \psi_1 dV \quad (2.19)$$

gemäß

$$W_{12} = \frac{\pi^2}{3\hbar^2} |\vec{\mu}|^2 E_0^2 \cdot \delta(\nu - \nu_0) \quad (2.20)$$

beschrieben werden.

## 2 Grundlagen

### Auswahlregeln

Gleichung 2.20 zeigt anschaulich, dass die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei Zuständen null wird, wenn das Matrixelement  $|\vec{\mu}|$  verschwindet. Es gelten prinzipiell folgende Regeln für elektrische Dipolübergänge [Hen89]:

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

Die innerhalb der 4f-Schale der freien Seltenerd-Ionen auftretenden Übergänge sind gemäß diesen Regeln aufgrund einer Paritätsverletzung verboten. Aufgrund azentrischer Störungen, hervorgerufen durch das Kristallfeld, weicht das Ion jedoch von der ursprünglichen Inversions-symmetrie ab, wodurch Zustände anderer Parität beigemischt und diese Übergänge schwach erlaubt werden.

Weitere Übergänge, hervorgerufen u.a. durch die magnetische Dipol- oder elektrische Quadrupolwechselwirkung, können für die meisten Lanthanid-Ionen vernachlässigt werden, da die Übergangswahrscheinlichkeiten in der Regel einige Größenordnungen kleiner sind. Ausnahmen stellen z. B.  $\text{Er}^{3+}$ ,  $\text{Eu}^{3+}$  oder  $\text{Yb}^{3+}$  dar, bei denen die magnetische Dipolwechselwirkung für gewisse Übergänge von gleicher Stärke sein kann und daher bei spektroskopischen Untersuchungen berücksichtigt werden muss [Kam90].

### Linienbreite

Bei den bisherigen Betrachtungen wurden die Energieniveaus stets als unendlich scharf angenommen und mit  $\delta$ -Funktionen beschrieben. Tatsächlich besitzen die Energieniveaus aber eine endliche Breite, sodass die  $\delta$ -Funktion in Gl. 2.20 durch eine normierte Linienformfunktion  $g(\nu - \nu_0)$  mit  $\int g(\nu - \nu_0) = 1$  ersetzt werden muss. Der Verlauf dieser Linienform hängt dabei vom Mechanismus der Verbreiterung ab. Je nach Ursache unterscheidet man zwischen homogener und inhomogener Verbreiterung.

Zur homogenen Verbreiterung gehört die natürliche Linienbreite, welche sich aus der Energie-Zeit-Unschärfe zu

$$\Delta\nu = \frac{1}{2\pi\tau_i} \quad (2.21)$$

ergibt. Dabei ist  $\tau_i$  die Lebensdauer des angeregten Niveaus. Für  $\text{Yb}^{3+}$  beträgt die natürliche Linienbreite lediglich 100 - 200 Hz und kann daher vernachlässigt werden. Wichtiger ist die in Festkörpern vorkommende phononische Verbreiterung, welche durch die Wechselwirkung der Ionen mit den Gitterschwingungen hervorgerufen wird.

Zu den inhomogenen Verbreiterungen zählen statistische Variationen der lokalen Umgebung der optisch aktiven Ionen. Diese sind vor allem in Gläsern stark ausgeprägt. Zudem spielt die inhomogene Linienbreite bei Kristallen, welche mindestens zwei verschiedene substituierbare Kationen-Plätze besitzen, eine wichtige Rolle.

Während die homogenen Linienverbreiterungen zu einem Lorentz-Profil der Banden führen, haben die inhomogenen Verbreiterungen stets ein Gauß-Profil. Liegen homogene und inhomogene Anteile in der gleichen Größenordnung vor, ergibt sich als Linienform die Integralfaltung aus Lorentz- und Gauß-Profil, das sogenannte Voigt-Profil.



### Nichtstrahlende Relaxation

Neben den bereits beschriebenen Prozessen kann die Energie eines angeregten Zustands auch in nichtstrahlender Form abgegeben werden. Dabei relaxiert das Ion unter Anregungen von Gitterschwingungen in einen energetisch niedrigeren Zustand. Die  $n$  abgegebenen Phononen haben dabei zusammen die Energie

$$E = E_2 - E_1 = n \cdot h\nu_{ph}. \quad (2.22)$$

Bei tiefen Temperaturen gilt für die Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{ns}$ :

$$W_{ns} = W_0 \cdot e^{-\alpha(E_2-E_1)}, \quad (2.23)$$

wobei  $W_0$  und  $\alpha$  materialspezifische Konstanten sind. Mit zunehmender Temperatur steigt die mittlere Anzahl von Phononen. Für einen  $n$ -Phononen-Prozess kann die temperaturabhängige Übergangsrate nach [Moo70] beschrieben werden als

$$W_{ns}(T) = W_0 \cdot e^{-\alpha(E_2-E_1)} \cdot \left(1 - e^{-\frac{h\nu_{ph}}{kT}}\right)^{-n}. \quad (2.24)$$

Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Übergang nimmt mit  $n$ -ter Ordnung ab und ist daher in der Regel nur für energetisch dicht benachbarte Niveaus von Bedeutung.

Dieser zusätzliche Zerfallskanal wird mit  $W_{ns} = 1/\tau_{ns}$  in der Gesamtlebensdauer

$$\frac{1}{\tau_f} = \frac{1}{\tau_i} + \frac{1}{\tau_{ns}} \quad (2.25)$$

berücksichtigt.

### 2.2.2 Interionische Prozesse

Bei interionischen Prozessen findet ein Energietransfer von einem angeregten Donatorion  $D^*$  auf ein Akzeptorion A in folgender Form statt:

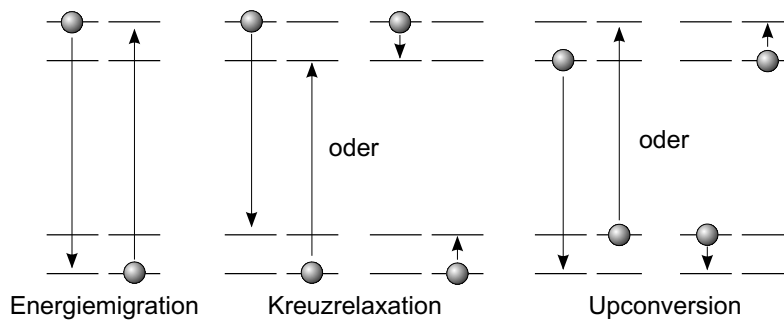


Dabei können das Donator- und das Akzeptorion desselben oder unterschiedlichen Typs sein. Letzteres wird z. B. zur Sensibilisierung schlecht absorbierender Laserionen ausgenutzt. Dabei dient ein Ion (z. B.  $Tm^{3+}$ ) als effektiver Absorber und gibt in einem zweiten Schritt die Energie an das Laserion (z. B.  $Ho^{3+}$ ) ab. Da hierbei die Besetzung im Donatorion reduziert wird, wirkt dies zudem verkürzend auf die Fluoreszenzlebensdauer.

Bei den Seltenerd-Ionen genügt es in erster Näherung die Dipol-Dipol-Wechselwirkung als Grundlage für den Energietransfer zwischen zwei Ionen zu betrachten [För48, Dex53]. Die Übergangswahrscheinlichkeit ergibt sich nach [Sve89] zu:

$$W_{DA} = \left(\frac{3}{64\pi^5}\right) \left(\frac{1}{R^6}\right) \left[\frac{1}{\tau_i} \int_0^\infty \left(\frac{c_0}{n\nu}\right)^4 g_D(\nu)\sigma_A(\nu)d\nu\right]. \quad (2.27)$$

## 2 Grundlagen



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung möglicher interionischer Prozesse.

Hierbei sind  $\tau_i$  und  $g_D(\nu)$  die Lebensdauer bzw. die Emissionsfunktion des Donators,  $\sigma_A(\nu)$  der Absorptionswirkungsquerschnitt des Akzeptors und  $n$  der Brechungsindex des Wirtsgitters. Wie anhand von Gl. 2.27 zu erkennen ist, hängt die Übergangswahrscheinlichkeit stark vom Überlapp der Emission des Donators und der Absorption des Akzeptors ab. Zudem geht der Abstand der wechselwirkenden Ionen mit  $R^{-6}$  in die Übergangsrate ein. Somit ist mit zunehmender Dotierungskonzentration eine starke Zunahme der Übergangswahrscheinlichkeit zu erwarten.

Multipol-Terme höherer Ordnung wie z. B. die Dipol-Quadrupol-Wechselwirkung ( $\sim R^{-8}$ ) können - wie eingangs erwähnt - in der Regel vernachlässigt werden. Je nach Art und Zustand der beteiligten Ionen unterscheidet man folgende interionische Prozesse:

### Energiemigration

Die Energiemigration ist ein resonanter Transferprozess zwischen gleichartigen Ionen (Abb. 2.2 links). Dabei geht zunächst keine Anregungsenergie für das System verloren. Da diese jedoch über große Teile des Kristalls verteilt werden kann, werden alle im Weiteren vorgestellten interionischen Prozesse hierdurch unterstützt.

Gelangt die Anregungsenergie an Gitterfehlstellen oder Verunreinigungen, kann ein nicht-strahlender Zerfall erfolgen. Es handelt sich dabei also um einen zusätzlichen Verlustprozess für das System, der sich spektroskopisch in einer Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer des angeregten Niveaus bemerkbar macht. Da die Migrationswahrscheinlichkeit zu Störstellen mit der Dotierungskonzentration wächst, bezeichnet man diesen Prozess als Konzentrationslöschung (engl. *concentration-quenching*).

### Kreuzrelaxation

Bei der Kreuzrelaxation gibt das angeregte Donatorion einen Teil seiner Energie an ein Akzeptorion ab, wodurch Letzteres in einen energetisch höheren Zustand gehoben wird. Die Energie des Akzeptors ist dabei nach dem Energieübertrag geringer als die Energie des Donators vor der Relaxation (Abb. 2.2 mitte). Dieser Prozess kann je nach Dotierung zu großen Verlusten führen, wenn dabei das obere Laserniveau entvölkert wird. Er kann jedoch auch zum effizienten Pumpen von Ionen, wie z. B.  $\text{Tm}^{3+}$ , verwendet werden, wenn durch einen Kreuzrelaxationsprozess das obere Laserniveau bevölkert wird.

### Upconversion

Den umgekehrten Prozess stellt die Upconversion dar. Hierbei ist der energetische Zustand des Akzeptorions nach der Wechselwirkung höher als der Ausgangszustand des Donatorions vor dem Transfer (Abb. 2.2 rechts). Auch die Upconversion stellt einen potentiellen Verlustkanal für den Laser dar, da die anschließende Relaxation in die tiefer liegenden Energieniveaus mit einem Energieverlust einhergeht. Dies führt in den meisten Fällen zur Produktion von Wärme.

Der Prozess lässt sich allerdings auch für sogenannte Upconversionlaser nutzen. Bei diesen wird eine Besetzung von Niveaus erreicht, welche energetisch über der Energie der Pump-Photonen liegen.

### Reabsorption

Bei der Reabsorption werden spontan oder stimuliert emittierte Photonen von einem anderen Ion gleicher Art innerhalb des Kristalls wieder absorbiert. Besonders bei Ionen wie dem  $\text{Yb}^{3+}$ , bei dem sich die Absorptions- und Emissionsbanden stark überlappen, ist dieser Effekt stark ausgeprägt. Spektroskopisch äußert sich die Reabsorption zum einen durch eine Verlängerung der gemessenen Fluoreszenzabklingzeit (s. Kap. 5.2.2), zum anderen in einer Verfälschung der spektralen Form der Fluoreszenzspektren (s. Kap. 5.1.1).

### 2.2.3 Das $\text{Yb}^{3+}$ -Ion

Mit der Ordnungszahl 70 und der Elektronenkonfiguration<sup>1</sup>  $[\text{Xe}]4f^{14}6s^2$  befindet sich das Ytterbium vor Lutetium am Ende der Lanthanidreihe. Es tritt in der Regel als trivalentes  $\text{Yb}^{3+}$  ( $[\text{Xe}]4f^{13}$ ) auf, kann aber im Festkörper auch im divalenten Zustand als  $\text{Yb}^{2+}$  ( $[\text{Xe}]4f^{14}$ ) stabilisiert werden.

Infolge der Lanthaniden-Kontraktion rücken die im Vergleich zur 4f-Schale weiter außen liegenden 5s- und 5d-Orbitale näher an den Kern, wodurch die Abschirmung des optisch aktiven 4f-Orbitals vom Ligandenfeld verringert wird. Als Folge kommt es zu einer relativ starken Kopplung des Gitters an die Übergänge innerhalb der 4f-Schale. Dies äußert sich unter anderem in einer mit der Ordnungszahl zunehmenden phononischen Verbreiterung der Absorptions- und Emissionslinien.

Mit nur zwei 4f-Energieniveaus hat das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion eines der einfachsten Energieniveauschemata innerhalb der Lanthanidenreihe. Der Grundzustand wird vom  $^2F_{7/2}$ -Multipllett gebildet, welches in der Regel einige  $100\text{ cm}^{-1}$  aufgespalten ist. Das nächsthöhere  $^2F_{5/2}$ -Multipllett liegt etwa  $10.000\text{ cm}^{-1}$  darüber. Das darauf folgende 5d-Niveau liegt etwa  $100.000\text{ cm}^{-1}$  über dem Grundzustand des  $\text{Yb}^{3+}$ . Somit sind Prozesse wie Absorption aus angeregten Zuständen (ESA), Upconversion oder Kreuzrelaxation nahezu ausgeschlossen. Im Gegensatz zu den meisten anderen Seltenerd-Ionen können dadurch höhere Dotierungskonzentrationen verwendet werden. Limitiert wird die Dotierbarkeit in den meisten  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien vor allem aufgrund von Energiemigration mit anschließendem Transfer zu Verunreinigungen. Hinzu kommen bisher nicht vollständig geklärte Verlustprozesse [Lar05], die momentan im Rahmen der Doktorarbeit von S.T. Fredrich-Thornton am Institut für Laser-Physik untersucht werden. Eine

<sup>1</sup>[Xe]-Elektronenkonfiguration:  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 4d^{10} 5s^2 5p^6$

## 2 Grundlagen

kurze phänomenologische Betrachtung dieser Prozesse wird in Kap. 6 gegeben, da entsprechende Effekte auch bei den in dieser Arbeit untersuchten Wirtsmaterialien beobachtet wurden.

Verluste durch reine nichtstrahlende Relaxation sind hingegen äußerst gering, da bei typischen Phononenenergien um  $1000\text{ cm}^{-1}$  etwa 10 Phononen nötig wären, wodurch der Übergang sehr unwahrscheinlich wird.

Aufgrund der bereits erwähnten relativ starken Elektron-Phonon-Kopplung und der damit verbundenen phononischen Verbreiterung der Übergänge ist das  $\text{Yb}^{3+}$ -Ion hervorragend für das optische Pumpen mittels Laserdioden geeignet, da diese in den meisten Fällen Emissionsbandbreiten von einigen Nanometern aufweisen. Die höchsten Wirkungsquerschnitte in Absorption und Emission liegen in der Regel auf der Nullphononenlinie, also dem Übergang zwischen den jeweils untersten Starkniveaus der beiden 4f-Multipletts, welche für die meisten Materialien im Bereich zwischen 970 nm und 985 nm liegt.

Der Quantendefekt, welcher lediglich durch die Stark-Aufspaltung der 4f-Niveaus vorgegeben ist, beträgt in der Regel weniger als 10% und ist damit im Vergleich zum gängigsten Laserion, dem  $\text{Nd}^{3+}$ , bei dem dieser Wert im Vierniveaubetrieb bei etwa 24% liegt, deutlich geringer. Es lassen sich so prinzipiell Wirkungsgrade von mehr als 90% erreichen. Durch diese höhere Effizienz ist unter anderem der Wärmeeintrag ins Lasermedium geringer, woraus Vorteile für Hochleistungssysteme resultieren (vgl. Kap. 2.4.3).

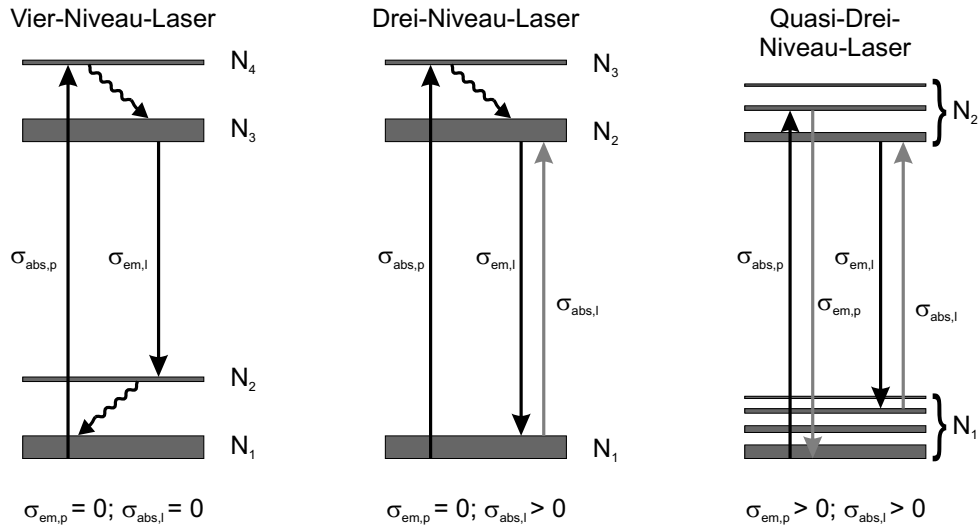
Nachteilig ist allerdings der damit verbundene große Überlapp von Absorptions- und Emissionsbanden, wodurch es zu Reabsorption auf der Laserwellenlänge kommen kann, was unter anderem zu einer höheren Laserschwelle führt (s. Kap. 2.3).

Vorteilhaft wirken sich die breiten Emissionsbanden auf die spektrale Durchstimbarkeit (i.d.R. einige 10 nm) sowie für die Erzeugung von Femtosekunden-Pulsen mittels Modenkopplung aus.

### 2.3 Grundlagen der Laserphysik

In einem Festkörperlaser wird die Anregungsenergie in der Regel in Form von Pumpphotonen zur Verfügung gestellt, welche vom aktiven Medium absorbiert werden. Die Energie kann anschließend in Form von spontaner oder stimulierter Emission vom Medium abgegeben werden. Um mittels stimulierter Emission den Photonenfluss verstärken zu können, muss im Lasermedium eine Besetzungsinversion vorliegen. Dies ist für ein reines Zwei-Niveau-System nicht möglich, da sich Absorption und stimulierte Emission aufgrund von Gl. 2.14 bei gleicher Besetzung aufheben. Es müssen also mindestens drei verschiedene Energieniveaus am Prozess beteiligt sein, um Inversion zu erzeugen. Je nach Lage, Anzahl und Abstand der beteiligten Niveaus spricht man im Allgemeinen von Vier-Niveau-, Drei-Niveau- oder Quasi-Drei-Niveau-Lasern. Spontan emittierte Photonen können bei Inversion zwischen den verschiedenen Niveaus auf bestimmten Wellenlängen verstärkt werden. Eine Erhöhung der Verstärkung ist möglich, indem man die emittierten Photonen mit Spiegeln an zwei Seiten des Kristalls in diesen zurückkopelt. Im Falle eines stabilen Resonators bildet sich eine stehende elektromagnetische Welle aus. Der Laser schwingt an, wenn durch die Verstärkung die vorhandenen Verluste im Resonator kompensiert werden.

Die Beschreibung der Vorgänge im Laserbetrieb kann durch die sogenannten Rategleichungen erfolgen. Dabei wird der zeitliche Verlauf der Besetzung der beteiligten Niveaus in einem



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der verschiedenen Lasertypen. Vier-Niveau-Laser (links), Drei-Niveau-Laser (mitte), Quasi-Drei-Niveau-Laser (rechts). Gewellte Pfeile stehen für eine schnelle, meist nichtstrahlende Relaxation in das nächsttieferliegende Niveau.

einfachen analytischen Modell dargestellt. Im folgenden Abschnitt werden die wesentlichen Gleichungen für den Dauerstrichbetrieb eines Grundzustandlasers hergeleitet.

### 2.3.1 Modell des Grundzustandlasers

Bei Lasern auf Basis von  $\text{Yb}^{3+}$  ist das obere Laserniveau in der Regel das unterste Stark-Niveau des  $^2F_{5/2}$ -Multipletts. Das untere Laserniveau ist ein Stark-Niveau des  $^2F_{7/2}$ -Multipletts bzw. je nach Wellenlänge ein vibronisches Niveau. Die Besetzung der thermisch gekoppelten Stark-Niveaus  $N_i$  eines Multipletts  $m$  erfolgt nach der Boltzmann-Statistik gemäß

$$f_{m,i} = \frac{N_i}{N_t} = \frac{1}{Z_m} g_{m,i} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,i}}{k_B T}\right), \quad (2.28)$$

wobei  $N_t$  die Gesamtbesetzungsdichte des Multipletts und  $Z_m$  die Zustandsumme mit

$$Z_m = \sum_j g_{m,j} \cdot \exp\left(-\frac{E_{m,j}}{k_B T}\right) \quad (2.29)$$

ist. Da die Energiedifferenz zwischen den Stark-Niveaus eines Multipletts in der Regel vergleichbar mit der typischen Phononenenergie des Festkörpers ist, sind diese Niveaus durch Phononen stark gekoppelt. Das thermische Gleichgewicht innerhalb eines Multipletts stellt sich dadurch innerhalb von Pikosekunden ein. Bei Raumtemperatur befinden sich i. d. R. einige Prozent der Ionen des  $^2F_{7/2}$ -Multipletts im Laserzielniveau, während das obere Laserniveau etwa 60 - 90% der Gesamtbesetzung des  $^2F_{5/2}$ -Multipletts aufweist. Laser, deren unteres Laserniveau ein thermisch besetztes Niveau des Grundzustandsmultipletts ist, werden als Grundzustandlaser bezeichnet.

## 2 Grundlagen

### Ratengleichungen für das aktive Medium

Für die Rate, mit der Pumpphotonen pro Volumeneinheit vom aktiven Medium absorbiert werden, ergibt sich analog zu Gl. 2.15 [Con02]

$$W_p = (f_{u,p}N_1 - f_{o,p}N_2)\sigma_p \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p}, \quad (2.30)$$

wobei  $N_{1,2}$  die Dichte der aktiven Ionen im unteren bzw. oberen Multiplett und  $f_{u,p}$  und  $f_{o,p}$  die relative Besetzung der am Pumpprozess beteiligten Stark-Niveaus der beiden Multipletts sind.  $E_{p,eff}$  stellt die effektive Pumpleistungsdichte pro Fläche und  $h\nu_p$  die Energie eines Pumpphotons dar. Da die Absorptionsrate sowohl durch Absorption aus dem unterem Pumpniveau als auch durch Emission aus dem oberen Pumpniveau bestimmt wird, werden effektive Wirkungsquerschnitte eingeführt, welche die relative Besetzung des jeweiligen Multipletts berücksichtigen. Da beide Prozesse den gleichen atomaren Wirkungsquerschnitt  $\sigma_p$  besitzen, kann mit den effektiven Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitten auf der Pumpwellenlänge

$$\sigma_{abs,p} = f_{u,p}\sigma_p \quad \text{und} \quad \sigma_{em,p} = f_{o,p}\sigma_p \quad (2.31)$$

Gl. 2.30 umgeschrieben werden zu

$$W_p = (\sigma_{abs,p}N_1 - \sigma_{em,p}N_2) \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p}. \quad (2.32)$$

Die Rate, mit der Laserphotonen pro Volumeneinheit emittiert werden, ergibt sich analog zu Gl. 2.32 zu

$$W_l = (\sigma_{em,l}N_2 - \sigma_{abs,l}N_1) \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l}, \quad (2.33)$$

wobei  $E_{r,eff}$  die effektive resonatorinterne Leistungsdichte und  $h\nu_l$  die Energie eines Laserphotons ist. Da für die Besetzungsdichten

$$N_{dot} = N_1 + N_2 \quad (2.34)$$

gilt, genügt es lediglich die Ratengleichung für ein Multiplett aufzustellen. Mit der Rate

$$W_s = \frac{N_2}{\tau_f}, \quad (2.35)$$

mit der das angeregte Ion spontan, strahlend oder nichtstrahlend in den Grundzustand relaxiert, ergibt sich als Ratengleichung für das obere Multiplett

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} = & \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} ((N_{dot} - N_2)\sigma_{abs,p} - N_2\sigma_{em,p}) - \frac{N_2}{\tau_f} \\ & - \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} (N_2\sigma_{em,l} - (N_{dot} - N_2)\sigma_{abs,l}). \end{aligned} \quad (2.36)$$

### Ratengleichung für die resonatorinterne Leistung

Die resonatorinterne Leistung  $P_r$  kann durch eine Ratengleichung beschrieben werden, die sowohl die Zunahme der Leistung durch die Verstärkung innerhalb des Lasermediums als auch die Abnahme durch resonatorinterne Verluste  $L_{int}$  und Auskopplung  $T_{oc}$  enthält. Dargestellt als Quotient der im Resonator enthaltenen Laserenergie  $Q_r$  und der Umlaufzeit  $T_r$  ergibt sie sich gemäß

$$P_r = \frac{Q_r}{T_r} = \int_{V_r} q_r dV \cdot \frac{c}{2L_{r,eff}}. \quad (2.37)$$

Dabei ist  $q_r$  die Energiedichte pro Volumen,  $V_r$  das Resonatorvolumen und

$$L_{r,eff} = L_r + \frac{M_r}{2}(n_{Kr} - 1)d_{Kr} \quad (2.38)$$

die effektive Resonatorlänge, wobei  $L_r$  die Länge des Resonators zwischen den beiden Endspiegeln,  $M_r$  die Anzahl der Kristalldurchläufe,  $n_{Kr}$  den Brechungsindex und  $d_{Kr}$  die Kristalllänge bezeichnet. Durch Multiplikation mit der Lichtgeschwindigkeit im Medium, erhält man aus der Energiedichte  $q_r$  die effektive Leistungsdichte  $E_{r,eff}$  gemäß

$$E_{r,eff} = q_r \cdot \frac{c}{n}. \quad (2.39)$$

Die Zunahme der effektiven Leistungsdichte durch Verstärkung kann durch

$$\frac{dE_{r,eff}}{dt} = \frac{dE_{r,eff}}{dz} \cdot \frac{c}{n} = g \cdot E_{r,eff} \cdot \frac{c}{n} \quad (2.40)$$

mit dem lokalen Verstärkungskoeffizienten

$$g = \sigma_{em,l}N_2 - \sigma_{abs,l}N_1 \quad (2.41)$$

beschrieben werden.

Für die zeitliche Zunahme der resonatorinternen Leistung  $P_r$  aufgrund von Verstärkung ergibt sich mit Gl. 2.37, Gl. 2.39 und Gl. 2.40

$$\frac{P_r}{dt} = \int_{V_r} \frac{dq_r}{dt} dV \cdot \frac{c}{2L_{r,eff}} = \int_{V_{Kr}} g \cdot E_{r,eff} dV \cdot \frac{c}{2L_{r,eff}}. \quad (2.42)$$

Wird die Abnahme der resonatorinternen Leistung durch resonatorinterne Verluste  $L_{int}$  und Auskoppelverlusten  $R_{oc}$  gemäß

$$\frac{dP_r}{dt} = -\frac{1}{\tau_p} P_r \quad (2.43)$$

mit der Resonatorabklingzeit  $\tau_p$  beschrieben, so ergibt sich aus den Verlusten pro Umlauf

$$(1 - L_{int})(1 - T_{oc})P_r = \exp\left(-\frac{T_r}{\tau_p}\right) P_r \quad (2.44)$$

für den Kehrwert der Resonatorabklingzeit

$$\frac{1}{\tau_p} = -\frac{\ln(1 - L_{int}) + \ln(1 - T_{oc})}{T_r} = -(\ln(1 - L_{int}) + \ln(1 - T_{oc})) \frac{c}{2L_{r,eff}}. \quad (2.45)$$

Für die zeitliche Änderung der resonatorinternen Leistung erhält man somit letztendlich

$$\frac{dP_r}{dt} = \left[ \int_{V_{Kr}} g \cdot E_{r,eff} dV + [\ln(1 - L_{int}) + \ln(1 - T_{oc})] P_r \right] \frac{c}{2L_{r,eff}}. \quad (2.46)$$

## 2 Grundlagen

### Ratengleichungen für den stationären Betrieb

Im Dauerstrich-Betrieb sind die Verstärkung durch das Lasermedium und die Verluste pro Umlauf gleich groß und es gilt  $\frac{dP_r}{dt} = 0$ , wodurch sich aus Gl. 2.46 die Gleichung

$$P_r [-\ln(1 - L_{int}) - \ln(1 - T_{oc})] = \int_{V_{Kr}} g \cdot E_{r,eff} dV \quad (2.47)$$

ergibt. Im stationären Betrieb gilt zudem  $\frac{dN_2}{dt} = 0$ , womit sich Gl. 2.36 umformen lässt zu

$$N_2 = \frac{\frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} \sigma_{abs,p} + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} \sigma_{abs,l}}{\frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} (\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}) + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} (\sigma_{abs,l} + \sigma_{em,l}) + \frac{1}{\tau_f}} N_{dot} . \quad (2.48)$$

Setzt man Gl. 2.48 in die stationäre Resonatorgleichung 2.47 ein, so ergibt sich für die umlaufende resonatorinterne Leistung  $P_r$  als Funktion der Pumpleistung:

$$P_r = \frac{N_{dot}}{-\ln(1 - L_{int}) - \ln(1 - T_{oc})} \times \int_{V_{Kr}} \left[ \frac{\left( \frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} \sigma_{abs,p} + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} \sigma_{abs,l} \right) (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) E_{r,eff}}{\frac{E_{p,eff}}{h\nu_p} (\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}) + \frac{E_{r,eff}}{h\nu_l} (\sigma_{abs,l} + \sigma_{em,l}) + \frac{1}{\tau_f}} - \sigma_{abs,l} E_{r,eff} \right] dV . \quad (2.49)$$

Die Ausgangsleistung des Lasers kann anschließend über die Integration der ausgekoppelten Leistungsdichte über die Querschnittsfläche  $A_{Kr}$  des laseraktiven Mediums berechnet werden:

$$P_l = T_{oc} \int_{A_{Kr}} E_r dA = T_{oc} P_r . \quad (2.50)$$

### Lösungen der Ratengleichungen

Für den allgemeinen Fall lässt sich Gl. 2.49 nicht analytisch lösen. Es müssen daher gewisse Näherungen eingeführt werden, um analytische Lösungen zu erhalten. Ein einfaches Modell ist das sogenannte nulldimensionale Modell, welches im Abschnitt 2.4.3 genauer erläutert wird [Vos02]. In diesem wird von konstanten Größen innerhalb des gesamten laseraktiven Mediums ausgegangen. Räumliche Variationen, wie z. B. eine radiale Pumpstrahlverteilung oder eine axiale Temperaturverteilung, werden darin nicht berücksichtigt.

Will man die räumliche Verteilung der Pump- und Laserstrahlung innerhalb des aktiven Mediums einführen, lassen sich die Gleichungen in der Regel nur noch numerisch lösen. Auch die Temperaturverteilung innerhalb des Lasermediums kann insbesondere bei Quasi-Drei-Niveau-Systemen großen Einfluss auf die Lasereigenschaften haben, da die thermische Besetzung der Stark-Niveaus innerhalb des Multipletts und damit auch die Wirkungsquerschnitte gemäß der Boltzmannverteilung (Gl. 2.31) eine exponentielle Temperaturabhängigkeit aufweisen. Ein Vergleich der Ergebnisse des nulldimensionalen Modells mit verschiedenen numerischen Modellen kann in der Arbeit von K. Contag [Con02] nachvollzogen werden.

Im weiteren Verlauf der Arbeit werden trotz der leichten Abweichungen zu den numerischen Berechnungen die analytischen Lösungen unter der Annahme räumlich konstanter Parameter verwendet, um die Lasereigenschaften in erster Näherung abzuschätzen (Kap. 2.4.3 und Kap. 6).



### 2.3.2 Spektral durchstimmbarer Laserbetrieb

Da die Linienbreite von optischen Übergängen in Festkörpern stets eine endliche Breite aufweist, besteht in vielen Fällen die Möglichkeit, Laserbetrieb auch abseits des Verstärkungsmaximums zu erzielen. Insbesondere Laserionen aus der Gruppe der Übergangsmetalle (Ti, Cr) sowie einige Vertreter der Seltenerd-Ionen (Tm, Yb) besitzen aufgrund ihrer relativ starken Kopplung an das Kristallgitter breite Emissionsprofile. Um die Wellenlänge des Lasers zu variieren, können im einfachsten Fall Resonatorspiegel mit entsprechenden Reflexionseigenschaften verwendet werden. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Nutzung von wellenlängenselektiven Elementen. Hierbei unterscheidet man zwischen dispersiven Elementen wie Prismen oder Reflexionsgitter und nichtdispersiven Elementen, zu denen Etalons und doppelbrechende Filter (engl. *birefringent filter*) gehören. Insbesondere Etalons und doppelbrechende Filter finden aufgrund ihrer einfachen Handhabung in der Praxis häufig Verwendung und sollen, da sie auch im Rahmen dieser Arbeit eingesetzt wurden, im Folgenden näher erläutert werden.

#### **Etalon**

Ein Etalon ist in den meisten Fällen ein planparalleles Glasplättchen. Für eine Welle der Wellenlänge  $\lambda$  besitzt es ein Transmissionsmaximum mit der Resonanzbedingung

$$nd_e = m\lambda, \quad (2.51)$$

wobei  $m$  eine ganze Zahl und  $d_e$  die effektive Dicke des Etalons in Strahlrichtung ist, welche vom Brechungsindex  $n$ , dem Einfallswinkel und der tatsächlichen Dicke des Etalons abhängt. Durch Verkippen des Plättchens kann die effektive Dicke geändert und somit die spektrale Lage des Transmissionsmaximums variiert werden. Da Spektralbereiche, welche die Resonanzbedingung nicht erfüllen, höhere Verluste erfahren, ist so eine Selektion der Wellenlänge möglich. Der freie Spektralbereich (free spectral range, FSR), d.h. der Frequenzabstand zweier Transmissionsmaxima, ergibt sich zu

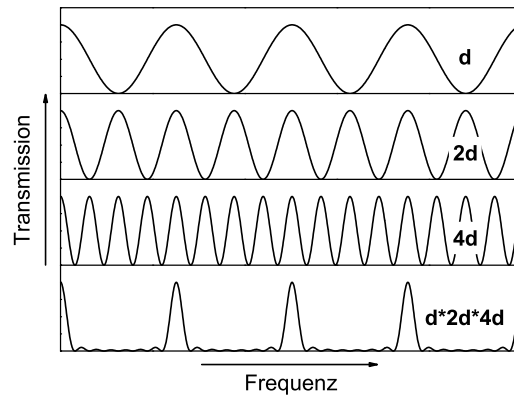
$$\delta\nu = \frac{c}{2nd_e}. \quad (2.52)$$

Um Reflexionsverluste an der Oberfläche des Plättchens zu vermeiden, können beide Endflächen zudem teilweise entspiegelt werden.

#### **Doppelbrechende Filter**

Doppelbrechende Filter bestehen im einfachsten Fall aus einer Platte eines geeigneten doppelbrechenden Kristalls wie z. B. Quarz, welche im Brewster-Winkel in den Resonator eingefügt wird. Die optische Achse des Kristalls ist dabei parallel zur Oberflächenebene der Platte orientiert. Durch den Brewster-Winkel erfahren Polarisationsrichtungen, welche nicht parallel zu der durch den Einfallswinkel aufgespannten Ebene liegen, Reflexionsverluste, wodurch der Laser in den meisten Fällen nur in einer Polarisationsrichtung oszilliert. Beim Durchlaufen des doppelbrechenden Elementes kommt es zur Aufspaltung in zwei Teilstrahlen gemäß den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindizes  $n_o$  und  $n_e$ . Beide Wellen propagieren im Kristall entsprechend  $n_e$  und  $n_o$  mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten, sodass sie am Ende der Platte eine Phasendifferenz aufweisen. Ist diese ungleich einem Vielfachen von  $2\pi$ , so ergibt sich ein elliptisch polarisierter Strahl oder eine Drehung der Polarisation, was zu Reflexionsverlusten

## 2 Grundlagen



**Abbildung 2.4:** Transmissionskurven der Einzelkomponenten sowie eines zusammengesetzten Lyot-Filters aus drei Platten.

am doppelbrechenden Filter führt. Lediglich für den Fall eines ganzzahligen Vielfachen von  $2\pi$  entsprechend

$$\frac{2\pi}{\lambda}(n_e - n_o)d_e = 2m\pi, \quad (2.53)$$

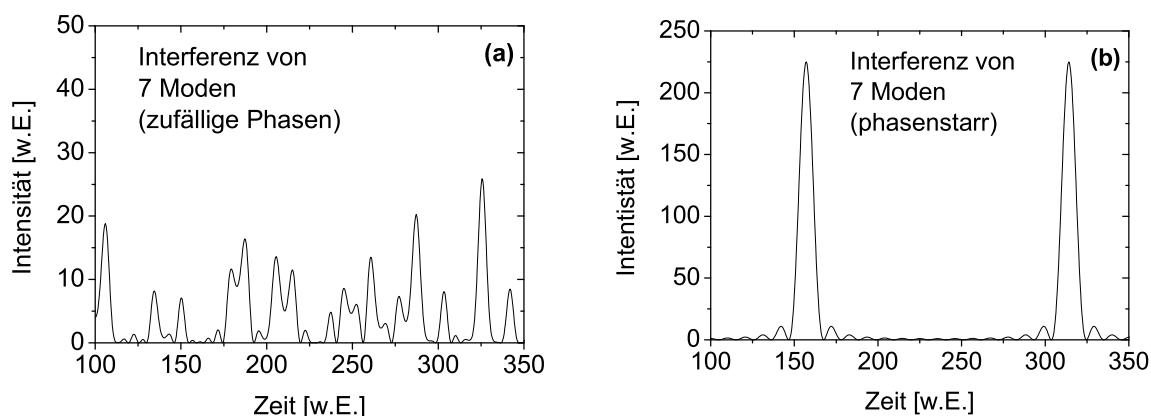
wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des Strahls,  $d_e$  die Dicke der Platte entlang der Strahlrichtung und  $m$  eine ganze Zahl ist, bleibt die Polarisation der Welle nach Durchlaufen der Platte unverändert, wodurch die Verluste minimal werden. Das spektrale Durchstimmen dieses Verlustminimums kann nun über die Rotation der Platte um die Flächennormale erfolgen. In diesem Fall verändert sich die Brechzahl  $n_e$ , da diese vom Winkel zwischen der optischen Achse und dem elektrischen Feldvektor abhängt. Der freie Spektralbereich ergibt sich analog zu Gl. 2.52 gemäß

$$\delta\nu = \frac{c}{\Delta n d_e}. \quad (2.54)$$

Für eine Dicke von 1 mm ergibt sich für Quarz ein freier Spektralbereich von etwa 100 nm bei einer zentralen Wellenlänge von 1  $\mu\text{m}$ . Über die Kombination mehrerer doppelbrechender Platten in einem sogenannten Lyot-Filter kann bei Erhalt des FSR der dünnsten Platte die Linibreite deutlich reduziert werden. Als Beispiel ist ein System aus drei verschiedenen Platten der Dicke  $d$ ,  $2d$  und  $4d$  gegeben (Abb. 2.4). Dabei kann die Kombination der unterschiedlichen Transmissionseigenschaften der jeweiligen Platten durch ein Produkt der Transmissionsfunktionen beschrieben werden.

### 2.3.3 Modenkopplung

Neben dem Dauerstrichbetrieb gibt es mit dem gütegeschalteten Betrieb (engl. *Q-Switching*), dem cw-modengekoppelten Betrieb (engl. *cw-modelocking*) und dem gütegeschalteten Modenkoppeln (engl. *Q-switched mode-locking*) noch drei weitere Betriebsarten [Koe99]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Experimente zum cw-modengekoppelten Betrieb von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> im Scheibenlaser durchgeführt (Kap. 7.6), zu deren Verständnis im Folgenden eine sehr kurze Einführung in das hierbei angewandte Solitonen-Modenkoppeln mittels eines sättigbaren Halb-



**Abbildung 2.5:** Zeitliches Verhalten der Intensität von sieben überlagerten Moden mit links: zufälligen Phasen und rechts: fester Phasenbeziehung.

leiterspiegels (engl. *semiconductor saturable absorber mirror, SESAM*) gegeben werden soll. Weitere Details sind z. B. in [Mar08a] zu finden.

Unter Modenkopplung versteht man die Synchronisation aller longitudinalen Lasermoden zur Erzeugung kurzer Laserpulse. Die einzelnen Moden weisen eine konstante Phasenbeziehung zueinander auf, man spricht hier auch von einer Phasenkopplung. Beim SESAM-Modenkoppeln wird diese Synchronisation durch einen sättigbaren Halbleiterspiegel erreicht. Dieses Prinzip kann wie folgt erklärt werden.

Auf kurzen Zeitskalen sind in Lasern, bei denen mehr als eine Lasermode oszilliert, aufgrund von konstruktiver und destruktiver Interferenz der verschiedenen stehenden Wellen starke Schwankungen der Intensität zu beobachten (vgl. Abb. 2.5a). Für Moden, deren Phasenbeziehung konstant ist, ergibt sich eine Schwebung, wobei zeitliche Bereiche vorkommen, in denen die Intensität nahezu null ist. Zu anderen Zeiten kommt es zur konstruktiven Interferenz, sodass sich ein Puls hoher Intensität ergibt (vgl. Abb. 2.5b).

Um die Lasemoden phasenstarr miteinander zu koppeln, werden in den Resonator zusätzlich modulierbare Verluste eingebracht. Die Modulation dieser Verluste wird anschließend mit der Umlaufzeit der Photonen im Resonator getaktet. Dadurch wird ein zeitliches Fenster erzeugt, in dem Nettoverstärkung vorhanden ist. Aufgrund dieser Randbedingung können nur die Lasermoden anschwingen, deren Überlagerung einen Puls ergibt, welcher im Moment geringster Verluste den Modulator durchläuft. Durch destruktive Interferenz heben sich diese phasenstarr überlagerten Moden in der restlichen Zeit auf, wodurch sie im Gegensatz zu allen anderen potentiellen Lasermoden nahezu keine Verluste durch den Modulator erfahren.

Der zeitliche Abstand zwischen zwei Pulsen ist dabei

$$\tau = 2L/c \quad (2.55)$$

gleich der Umlaufzeit des Pulses im Resonator. Diese Zeit entspricht einer Frequenz, die exakt dem Modenabstand im Laser  $\Delta\nu = 1/\tau$  entspricht. Die minimal erreichbare Pulsdauer hängt von der Anzahl  $N$  der kohärent zueinander im Resonator schwingenden Moden ab. Da die Bandbreite der Pulse über  $N\Delta\nu$  mit der Zahl der Moden und dem Modenabstand verknüpft ist, ist die Pulsdauer umgekehrt proportional zur Bandbreite. Es gilt weiter die Unschärferelation,

## 2 Grundlagen

wobei für einen gaussförmigen Puls

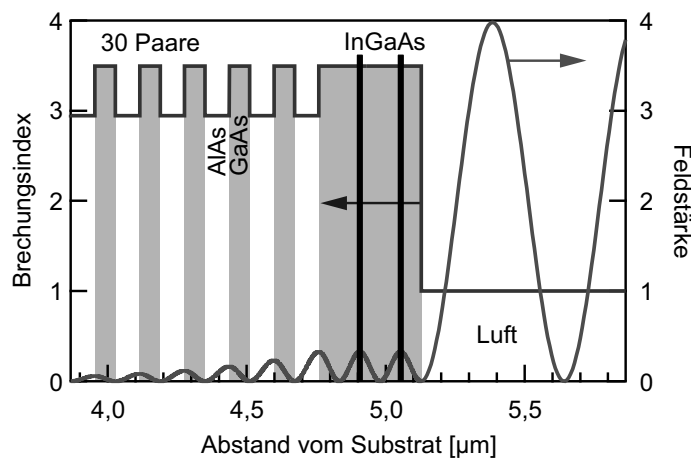
$$\Delta t = 0,44/N\Delta\nu \quad (2.56)$$

gilt. Der Wert 0,44 wird dabei als Zeit-Bandbreiten Produkt (engl. *time-bandwidth product*) bezeichnet. Für Ultrakurzpulslaser wird als Verlauf häufig ein Sekans Hyperbolicus ( $\text{sech}^2$ ) angenommen, welcher ein Zeit-Bandbreiten Produkt von 0,315 besitzt. Damit die einzelnen Moden trotz ihrer unterschiedlichen Frequenz kohärent zueinander bleiben, muss die Dispersion des Resonators kompensiert werden.

### Passives Modenkoppeln mittels sättigbarer Halbleiterspiegel

Durch die Verwendung von sättigbaren Absorbern innerhalb des Resonators wird die Modulation durch den Puls selbst durchgeführt [New74, Hau75]. Für Pulse im sub-Pikosekundenbereich sind aus Dispersionsgründen spezielle Stabilisierungsmaßnahmen erforderlich. Dies kann durch die Einführung von Selbstphasenmodulation (self phase modulation, SPM) und Gruppenlaufzeitverzögerung (group delay dispersion, GDD) in die Laserkavität erfolgen. Sind beide Effekte im Gleichgewicht, bilden sich Solitonen-Pulse aus, weshalb dieser Mechanismus auch Solitonen-Modenkopplung genannt wird [Kär95, Pas01]. Für einen solchen Puls heben sich die Phasenverschiebungen durch Selbstphasenmodulation und Gruppenlaufzeitverzögerung exakt auf, wodurch der Puls trotz Dispersion zeitlich und räumlich kompakt bleibt. Für Fluktuationen im Untergrund nach dem Puls gilt diese Bedingung nicht, da nicht genügend Selbstphasenmodulation erzeugt wird, wodurch sie durch die negative Dispersion in der Kavität zeitlich auseinanderlaufen und in zeitliche Bereiche kommen, in denen sie Verluste durch den Absorber erfahren. Der Absorber selbst ist dabei nur für den Start der Modenkopplung und für die Absorption von unerwünschtem Untergrund verantwortlich.

Halbleitermaterialien eignen sich hervorragend für den Einsatz als sättigbare Absorber, da sie Lebensdauern im ns- bis ps-Bereich besitzen und im Sichtbaren und nahen Infrarotbereich zur Verfügung stehen. Werden diese Halbleitermaterialien als Quantentopf (engl. *quantum well*, *QW*) oder Quantenpunkte (engl. *quantum dot*, *QD*) in eine Spiegelstruktur eingebettet, können



**Abbildung 2.6:** Brechungsindexprofil und Feldverteilung eines antiresonanten SESAM mit zwei eingebetteten InGaAs Schichten.

sättigbare Halbleiterspiegel hergestellt werden [Kel92, Kel96]. Im Gegensatz zur Modenkopplung mittels Kerr-Effekt (engl. *kerr lens mode locking, KLM*) [Spe91] können die Absorberparameter weitestgehend frei gewählt werden und die Kavität muss nicht an der Stabilitätsgrenze betrieben werden.

Der schematische Aufbau eines SESAM ist in Abb. 2.6 dargestellt. Licht, welches den sättigbaren Halbleiter (in diesem Fall InGaAs) durchläuft, kann Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband anregen, wodurch ein Teil in den Halbleiterschichten absorbiert wird. Ein starker Laserpuls regt dabei so viele Elektronen in höhere Zustände an, dass die Absorption gesättigt werden kann. Durch Aufbringen der Halbleiterschichten auf einen Spiegel, ist die Reflektivität des Systems umso größer, je höher die eingestrahelte Lichtleistung ist. Fluktuationen im Dauerstrichbetrieb können so nach vielen Umläufen in modengekoppelten Pulsen resultieren. Je nach Anzahl, Dicke und wie tief die Absorberschichten in den Spiegelschichten liegen, ergeben sich unterschiedliche Sättigungsintensitäten.

## 2.4 Das Scheibenlaserkonzept

In diesem Kapitel soll zunächst das Prinzip und der Aufbau des Scheibenlasers näher erläutert werden. Anschließend wird das nulldimensionale Modell als einfachstes analytisches Modell zur Lösung der Ratengleichungen aus Kap. 2.3.1 diskutiert und damit die theoretische Grundlage für die Abschätzung der Lasereigenschaften in Kap. 6 geschaffen.

### 2.4.1 Prinzip

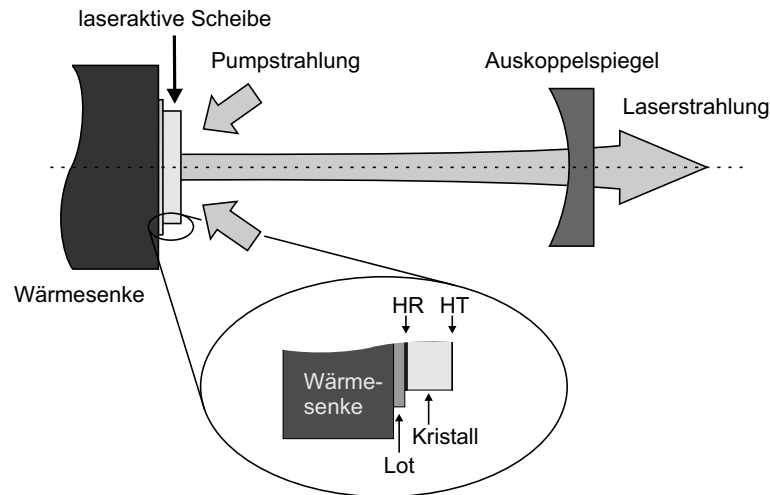
Im Scheibenlaser liegt das aktive Medium in Form einer dünnen Scheibe vor (typischerweise einige 100  $\mu\text{m}$ ), welche von einer Seite gekühlt wird (vgl. Abb. 2.7). Diese Seite ist für die Pump- als auch die Laserwellenlängen hochreflektierend verspiegelt, während die Vorderseite antirefektiv beschichtet ist. Durch die Kühlung in Richtung der Resonatorachse ergeben sich im Vergleich zu z. B. Stablasern einige wichtige Vorteile. Da das aktive Medium mit Dicken von einigen hundert Mikrometern deutlich dünner ist als der Durchmesser des gepumpten Bereichs, bilden sich vorwiegend axiale Temperaturgradienten aus. Dadurch werden zum einen die Größe, zum anderen die sphärischen Abberationen der thermischen Linse verringert. Durch das günstige Verhältnis von Oberfläche zu Volumen wird das aktive Medium zudem sehr effizient gekühlt.

Damit das Pumplicht trotz der geringen Scheibendicke effizient absorbiert werden kann, wird die Pumpstrahlung über eine spezielle Optik mehrfach durch die Scheibe geführt. Dadurch lassen sich gleichzeitig hohe effektive Pumpleistungsdichten im aktiven Medium erzeugen, welche u.a. für den effizienten Betrieb von Quasi-Drei-Niveau-Lasern erforderlich sind (Kap. 2.3.1).

Ein Nachteil dieses Konzeptes ist allerdings die geringe Verstärkung pro Resonatorumlauf, wodurch der Laser sehr empfindlich gegenüber Verlusten ist. Als Folge dessen können in der Regel nur relativ geringe Auskoppelgrade verwendet werden, wodurch schon geringe resonatorinterne Verluste zu einer deutlichen Verringerung des Resonatorwirkungsgrads und damit der maximal erzielbaren Effizienz führen.

Die Leistungsskalierung erfolgt bei konstant gehaltener Pumpleistungsdichte über die Vergrößerung des Pumpfleckdurchmessers. Im Dauerstrichbetrieb konnten so Ausgangsleistungen

## 2 Grundlagen



**Abbildung 2.7:** Prinzipieller Aufbau eines Scheibenlasers. Das aktive Medium in Form einer dünnen Scheibe ist auf der Vorderseite antirefektiv, auf der Rückseite hochreflektiv für Pump- und Laserwellenwellen beschichtet. Die Rückseite wird über ein metallisches Lot fest mit einer wassergekühlten Wärmesenke verbunden. Der Resonator wird anschließend aus der HR-Schicht und einem Auskoppelspiegel gebildet.

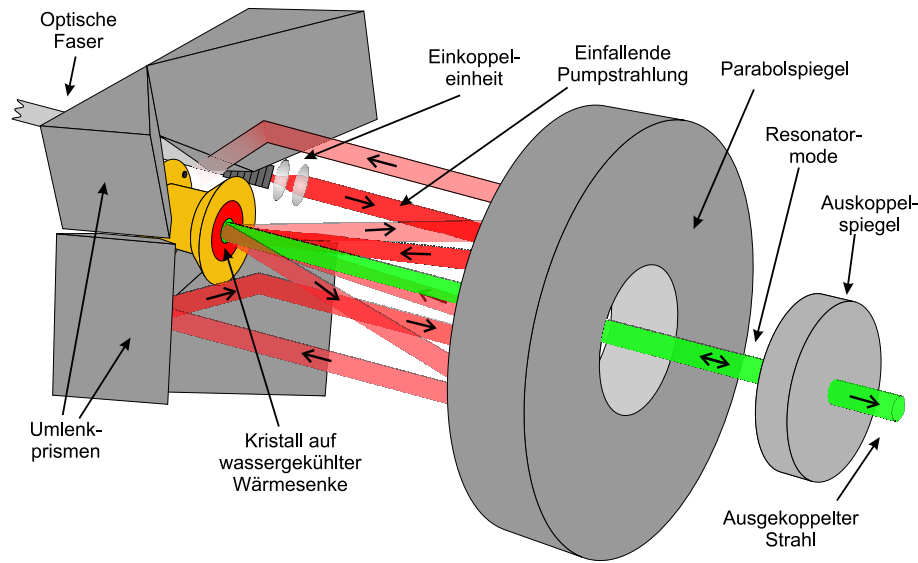
von über 5,3 kW aus einer Scheibe und mehr als 9 kW mit mehreren gekoppelten Scheiben erzielt werden [Gie07a].

### 2.4.2 Pumpoptik

Die Pumpoptik besteht im Allgemeinen aus einer Kollimationsoptik, einem Parabolspiegel sowie zwei Prismenpaaren (Abb. 2.8). Die Strahlung der Pumpdioden wird über eine optische Faser zum Modul transportiert und dort über ein Linsenpaar zunächst kollimiert. Der kollimierte Pumpstrahl trifft anschließend parallel zur Symmetrieachse auf den Parabolspiegel, der ihn auf den Kristall fokussiert, welcher sich im Brennpunkt des Spiegels befindet. Das Abbildungsverhältnis zwischen Faserende und Kristall und damit die Pumpfleckgröße auf der Scheibe, ergibt sich dabei durch das Verhältnis der Brennweiten von Parabolspiegel und Kollimationslinse. Pumpstrahlung, die nicht im aktiven Medium absorbiert wurde, trifft anschließend erneut auf den Parabolspiegel und wird kollimiert. Nach Reflexion an den Außenkanten eines verspiegelten Prismenpaares wird die kollimierte Strahlung auf einen benachbarten Bereich auf dem Parabolspiegel umgelenkt und von dort erneut auf die Scheibe abgebildet. Die Pumpstrahlung wird so noch einige weitere Male auf den Kristall abgebildet, bis alle Teilflächen des Parabolspiegels benutzt wurden. Nach der letzten Kollimation erfolgt eine Reflexion an der Dachkante eines der Prismenpaare, sodass alle Elemente der Pumpoptik in umgekehrter Reihenfolge erneut durchlaufen werden. Auf diese Weise können in kommerziell erhältlichen Modulen bis zu 32 Pumpstrahldurchgänge realisiert werden.

### 2.4.3 Analytisches Modell des Scheibenlasers

Aufbauend auf den in Kap. 2.3.1 vorgestellten Überlegungen soll im Folgenden das Nulldimensionale Modell als Lösung der Ratengleichungen, insbesondere Gl. 2.49 erläutert werden.



**Abbildung 2.8:** Schematische Darstellung des verwendeten Scheibenlasermoduls. Die Pumpstrahlung durchläuft die Scheibe insgesamt 24 mal, bevor sie wieder auf die Faser abgebildet wird. Die Darstellung wurde [Krä08] entnommen.

Da durch die geringe Scheibendicke sowie die mehrfachen Pumplichtdurchgänge die Inversion in der Scheibe relativ homogen über die Länge des aktiven Mediums verteilt und damit alle laserrelevanten Größen innerhalb des laseraktiven Mediums näherungsweise homogen sind, kann das sogenannte nulldimensionale Modell als einfachstes analytisches Modell zur Beschreibung des Lasers verwendet werden [Con02]. Nimmt man weiter an, dass die Verstärkung pro Durchlauf aufgrund der geringen Dicke der Scheibe klein ist, kann diese in erster Näherung vernachlässigt werden und es gilt bei  $M_r$  Durchläufen durch die Scheibe für die effektive resonatorinterne Leistungsdichte pro Fläche

$$E_{r,eff} \approx M_r E_r. \quad (2.57)$$

Da sowohl die resonatorinternen Verluste  $L_{int}$  als auch die Auskoppelverluste  $T_{oc}$  im Scheibenlaser in der Regel gering sind, gilt

$$-\ln(1 - L_{int}) - \ln(1 - T_{oc}) \approx L_{int} + T_{oc}. \quad (2.58)$$

Aufgrund der angenommenen transversalen Homogenität der Leistungsdichte, entfällt die Integration über die gepumpte Fläche und Gl. 2.47 lässt sich vereinfachen zu

$$E_r(L_{int} + T_{oc}) = [N_2(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot}\sigma_{abs,l}] M_r E_r d_{Kr}. \quad (2.59)$$

Durch das Produkt aus Pumpleistungsdichte  $E_p$  und Absorptionseffizienz  $\eta_{abs}$  wird eine effektive Pumpleistungsdichte  $E_{p,eff}$  gemäß

$$E_{p,eff} \alpha d_{Kr} = E_p [1 - \exp(-M_p \alpha d_{Kr})] \quad (2.60)$$

eingeführt, wodurch sich

$$E_{p,eff} = E_p \frac{\eta_{abs}}{\alpha d_{Kr}} \quad (2.61)$$

## 2 Grundlagen

ergibt. Die Absorptionseffizienz ist dabei durch

$$\eta_{abs} = 1 - \exp(-M_p \alpha d_{Kr}) = 1 - \exp(-M_p \sigma_{abs,p} f_B N_{Dot} d_{Kr}) \quad (2.62)$$

gegeben. Der Faktor  $f_B$  steht darin für das Ausbleichen der Absorption aufgrund der Besetzung des oberen Niveaus:

$$f_B = 1 - \frac{\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}}{\sigma_{abs,p}} \frac{N_2}{N_{dot}}. \quad (2.63)$$

Die Ratengleichung für das obere Multipllett (Gl. 2.36) lässt sich somit schreiben als:

$$\frac{dN_2}{dt} = \frac{E_p}{h\nu_p} \frac{\eta_{abs}}{d_{Kr}} - \frac{N_2}{\tau_f} - M_r \frac{E_r}{h\nu_l} [N_2(\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot}\sigma_{abs,l}]. \quad (2.64)$$

### Laserschwelle

Mit Hilfe der Schwellbedingung Gl. 2.59 erhält man die für den Dauerstrichbetrieb des Lasers notwendige Besetzungsdichte des oberen Niveaus an der Laserschwelle

$$N_{2,s} = N_{dot} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} + \frac{L_{int} + T_{oc}}{M_r d_{Kr} (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})}. \quad (2.65)$$

Gleichzeitig ergibt sich aus der Ratengleichung Gl. 2.64 für die Besetzungsdichte des oberen Niveaus im stationären Fall

$$N_2 = \frac{\frac{E_p}{h\nu_p} \frac{\eta_{abs}}{d_{Kr}} + M_r \frac{E_r}{h\nu_l} \sigma_{abs,l} N_{dot}}{M_r \frac{E_r}{h\nu_l} (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) + \frac{1}{\tau_f}}. \quad (2.66)$$

Durch Kombination der Gln. 2.65 und Gl. 2.66 kann nun für die resonatorinterne Leistungsichte in Abhängigkeit von der Pumpleistungsdichte der Ausdruck

$$E_r = \frac{1}{L_{int} + T_{oc}} \eta_{st} \eta_{abs} (E_p - E_{p,s}) \quad (2.67)$$

eingeführt werden, wobei

$$\eta_{st} = \frac{\nu_l}{\nu_p} \quad (2.68)$$

den Stokes-Wirkungsgrad bezeichnet.  $E_{p,s}$  beschreibt dabei die Pumpleistungsdichte an der Laserschwelle, welche durch

$$E_{p,s} = \frac{h\nu_p}{\tau_f \eta_{abs}} d_{Kr} N_{2,s} = \frac{h\nu_p}{\tau_f \eta_{abs}} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} N_{dot} d_{Kr} + \frac{h\nu_p}{\tau_f \eta_{abs}} \frac{L_{int} + T_{oc}}{M_r (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})} \quad (2.69)$$

gegeben ist. Der erste Term beschreibt über den Zusammenhang zur Besetzungsdichte des oberen Niveaus

$$N_{2,t} = \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} N_{dot} \quad (2.70)$$

die sogenannte Transparenzschwelle. Sie tritt nur bei Drei-Niveau- und Quasi-Drei-Niveau-Systemen auf, da  $\sigma_{abs,l}$  in diesen in der Regel größer null ist. Der zweite Term, welcher interne Verluste und Auskoppelverluste berücksichtigt, kann als Resonatorschwelle bezeichnet werden und beschreibt die Schwelle in Vier-Niveau-Systemen.

Bei Quasi-Drei-Niveau-Systemen ist die Transparenzschwelle aufgrund der Besetzung des unteren Laserniveaus stark von der Kristalltemperatur abhängig und liegt bei üblichen Betriebstemperaturen in der Regel über der Resonatorschwelle.



### Wirkungsgrad

Für die Ausgangsleistung  $P_l$  des Lasers ergibt sich unter Berücksichtigung des Auskoppelgrades und der gepumpten Querschnittsfläche  $A_p$

$$P_l = \frac{T_{oc}}{L_{int} + T_{oc}} \eta_{st} \eta_{abs} (P_p - A_p E_{p,s}) \quad (2.71)$$

und für den optischen Wirkungsgrad des Lasers

$$\eta_{opt} = \frac{P_l}{P_p} = \frac{T_{oc}}{L_{int} + T_{oc}} \eta_{st} \eta_{abs} \left( 1 - \frac{A_p E_{p,s}}{P_p} \right). \quad (2.72)$$

Dieser ist zum einen durch den differentiellen Wirkungsgrad

$$\eta_{st} = \frac{dP_l}{dP_p} = \frac{T_{oc}}{L_{int} + T_{oc}} \eta_{st} \eta_{abs} \quad (2.73)$$

und zum anderen durch die Laserschwelle  $P_s = A_p E_{p,s}$  bestimmt. Der differentielle Wirkungsgrad  $\eta_{st}$  ist dabei neben dem Stokes- und dem Absorptionseffizienzgrad auch durch den Resonatorwirkungsgrad

$$\eta_r = \frac{T_{oc}}{L_{int} + T_{oc}} \quad (2.74)$$

gegeben. Dieser beträgt bei typischen resonatorinternen Verlusten von  $L_{int} = 0,1\%$  und Auskoppelgraden von einigen Prozent zwischen 90% und 98%. Eine wesentliche Erhöhung des Wirkungsgrads durch geringere resonatorinterne Verluste und damit einen höheren Resonatorwirkungsgrad kann also nicht erzielt werden. Den größten Einfluss auf den differentiellen Wirkungsgrad hat demnach die Absorptionseffizienz.

Genau darin besteht ein Nachteil bei herkömmlichen Pumpkonzepten zum Endpumpen von Quasi-Drei-Niveau-Systemen. Bei gegebener Dotierungskonzentration wird über die Kristalldicke sowohl die Absorptionseffizienz bestimmt, welche für einen hohen differentiellen Wirkungsgrad möglichst groß sein sollte, als auch die Laserschwelle festgelegt, welche mit der Kristalldicke zunimmt. Das Scheibenlaserkonzept mit mehreren Pumpstrahldurchgängen durch den Kristall besitzt hier den Vorteil, dass durch die Erhöhung der Anzahl der Pumpstrahldurchgänge die Absorptionseffizienz gesteigert oder die Kristalldicke und damit die Laserschwelle verringert werden kann.

An dieser Stelle kann bereits die allgemeine Gleichung für den optimalen Auskoppelgrad aufgestellt werden. Setzt man Gl. 2.69 in Gl. 2.72 ein und differenziert nach dem Auskoppelgrad, so ergibt sich durch Bestimmung der Nullstelle der optimale Auskoppelgrad zu

$$T_{oc,opt} = \sqrt{L_{int} M_r \left[ \frac{E_p}{h\nu_p} \eta_{abs} \tau_f (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot} \sigma_{abs,l} d_{Kr} \right]} - L_{int}. \quad (2.75)$$

Mit dem Koeffizienten für Kleinsignalverstärkung

$$g_0 = \frac{E_p}{h\nu_p} \frac{\eta_{abs}}{d_{Kr}} \tau_f (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}) - N_{dot} \sigma_{abs,l} \quad (2.76)$$

ergibt sich somit der allgemeine Zusammenhang

$$T_{oc,opt} = \sqrt{L_{int} M_r g_0 d_{Kr}} - L_{int}. \quad (2.77)$$

### Kristalltemperatur

Im verwendeten eindimensionalen Modell kann die mittlere Kristalltemperatur unter der Annahme eines eindimensionalen Wärmeflusses in axialer Richtung durch Lösen der Wärmeleitungsgleichung berechnet werden. Dazu wird zunächst die abzuführende Flächenleistungsdichte der Wärme  $\dot{q}_A$  betrachtet. Setzt man eine ideale Quanteneffizienz voraus, kann  $\dot{q}_A$  aus der energetischen Differenz zwischen absorbierten Pumpphotonen und emittierten Laser- und Fluoreszenzphotonen gemäß

$$\dot{q}_A = (E_p - E_{p,s})\eta_{abs} \left(1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_l}\right) + E_{p,s}\eta_{abs} \left(1 - \frac{\lambda_p}{\lambda_f}\right) \quad (2.78)$$

berechnet werden. Dabei ist  $\bar{\lambda}_f$  die mittlere Wellenlänge der Fluoreszenz. Durch die homogene Wärmeerzeugung im aktiven Medium ergibt sich ein parabolischer Temperaturverlauf in axialer Richtung. Zusammen mit dem Wärmewiderstand  $R_{th}$  der gesamten Beschichtung, bestehend aus HR-Spiegel und Metallschichten sowie dem Kühlsystem, ergibt sich bei einer gegebenen Kühltemperatur  $T_K$  die mittlere Kristalltemperatur zu

$$\bar{T}_{Kr} = T_K + \dot{q}_A R_{th} + \frac{1}{3} \dot{q}_A \frac{d_{Kr}}{\lambda_{th}}, \quad (2.79)$$

wobei  $\lambda_{th}$  die Wärmeleitfähigkeit des Materials darstellt. Bei identischer Pumpleistung und einer konstanten Flächenleistungsdichte nähme die mittlere Kristalltemperatur demnach linear mit der Kristalldicke zu.

### Abschätzung der optimalen Parameter

Anhand der bisher vorgestellten Überlegungen ist es möglich, Vorhersagen über die optimale Auslegung einiger Parameter bezüglich der optischen Effizienz zu treffen. So können beispielsweise für verschiedene Randbedingungen wie Dotierung oder Pumpwellenlänge, die optimale Kristalldicke oder der Auskoppelgrad und der damit verbundene maximal erreichbare Wirkungsgrad abgeschätzt werden.

Um die optimalen Betriebsparameter analytisch bestimmen zu können, muss von einer konstanten Kristalltemperatur ausgegangen werden. Dies entspricht im Allgemeinen jedoch nicht den Randbedingungen eines realen Systems, da dort die Kristalltemperatur von der Kristalldicke und der absorbierten Pumpleistung abhängt. Die Abschätzungen können jedoch den prinzipiellen Zusammenhang der wichtigsten Betriebsparameter verdeutlichen und in erster Näherung für die Auslegung des realen Systems verwendet werden.

Hierzu wird zunächst der optische Wirkungsgrad bezüglich der Kristalldicke maximiert. Man erhält das Maximum aus der Nullstelle der ersten Ableitung des optischen Wirkungsgrades  $\eta_{opt}$  (Gl. 2.72) nach der Kristalldicke  $d_{Kr}$ :

$$\left(1 - \frac{E_{p,s}}{E_p}\right) \frac{d\eta_{abs}}{dd_{Kr}} = \frac{\eta_{abs}}{E_p} \frac{dE_{p,s}}{dd_{Kr}}. \quad (2.80)$$

In diesem Fall halten sich die Zunahme der Absorption und der Schwellpumpleistungsdichte mit der Kristalldicke die Waage. Durch Einsetzen der Gleichungen 2.62 und 2.69 für  $\eta_{abs}$  und

$E_{p,s}$  erhält man einen Ausdruck für den optimalen Absorptionsgrad

$$\eta_{abs,opt} = 1 - \frac{\frac{h\nu_p}{\tau_f} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}}}{M_p E_p \left( \sigma_{abs,p} - \frac{\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} \sigma_{abs,l} \right)}. \quad (2.81)$$

Durch Einführung einer effektiven Transparenzpumpleistungsdichte  $E_{t,eff}$  kann Gl. 2.81 weiter vereinfacht werden. Die effektive Transparenzpumpleistungsdichte ist dabei die sich durch die hin- und rücklaufenden Wellen ergebene effektive Pumpleistungsdichte, bei der das aktive Medium die Transparenzschwelle erreicht. Sie ist durch

$$E_{t,eff} = \frac{h\nu_p}{\tau_f} \frac{1}{\sigma_{abs,p} f_{B,trans}} \cdot \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} \quad (2.82)$$

gegeben, wobei

$$f_{B,trans} = 1 - \frac{\sigma_{abs,p} + \sigma_{em,p}}{\sigma_{abs,p}} \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l}} \quad (2.83)$$

der Ausbleichfaktor an der Transparenzschwelle ist. Damit kann  $E_{t,eff}$  zu

$$E_{t,eff} = \frac{h\nu_p}{\tau_f} \frac{f_{abs,l}}{\sigma_{abs,p}(1 - f_{abs,l}f_{em,p})} \quad (2.84)$$

vereinfacht werden, wobei die Faktoren

$$f_{abs,l} = \frac{\sigma_{abs,l}}{\sigma_{em,l}} \quad f_{em,p} = \frac{\sigma_{em,p}}{\sigma_{abs,p}} \quad (2.85)$$

ein Maß für die Reabsorption auf der Laserwellenlänge bzw. für die Emission auf der Pumpwellenlänge sind. Unter Verwendung von  $E_{t,eff}$  lautet die Gleichung für den optimalen Auskoppelgrad

$$\eta_{abs,opt} = 1 - \frac{E_{t,eff}}{M_p E_p}. \quad (2.86)$$

Die optimale Kristalldicke kann nun errechnet werden, indem man Gl. 2.62 nach der Kristalldicke auflöst:

$$d_{Kr,opt} = \frac{1}{N_{dot}} \left[ \frac{\ln\left(\frac{M_p E_p}{E_{t,eff}}\right)}{M_p \sigma_{abs,p} f_{B,trans}} + \frac{L_{int} + T_{oc,opt}}{M_r (\sigma_{em,l} + \sigma_{abs,l})} \cdot \frac{1 + f_{em,p}}{f_{B,trans}} \right]. \quad (2.87)$$

Für die optimale Schwellpumpleistungsdichte ergibt sich aus Gl. 2.69 nach Einsetzen der optimierten Größen  $\eta_{abs,opt}$  und  $d_{kr,opt}$

$$E_{p,s,opt} = \frac{\ln\left(\frac{M_p E_p}{E_{t,eff}}\right) \cdot E_p}{\frac{M_p E_p}{E_{t,eff}} - 1} + \frac{h\nu_p}{\tau_f} \cdot \frac{L_{int} + T_{oc,opt}}{M_r \left(1 - \frac{E_{t,eff}}{M_p E_p}\right) \sigma_{em,l} (1 - f_{abs,l} f_{em,p})}. \quad (2.88)$$

Den optimalen Auskoppelgrad  $T_{oc,opt}$  erhält man analog aus der Nullstelle der Ableitung des optischen Wirkungsgrades (Gl. 2.72) und Einsetzen der optimierten Größen  $\eta_{abs,opt}$  und  $E_{p,s,opt}$ :

$$T_{oc,opt} = \sqrt{L_{int} M_r \sigma_{em,l} (1 - f_{abs,l} f_{em,p}) \frac{E_p \tau_f}{h\nu_p} \left[ 1 - \frac{E_{t,eff}}{M_p E_p} \left[ 1 + \ln\left(\frac{M_p E_p}{E_{t,eff}}\right) \right] \right]} - L_{int}. \quad (2.89)$$

## 2 Grundlagen

Unter Verwendung aller optimierten Größen ergibt sich schließlich der maximale optische Wirkungsgrad zu

$$\eta_{opt,max} = \frac{T_{oc,opt}}{L_{int} + T_{oc,opt}} \eta_{st} \eta_{abs,opt} \left( 1 - \frac{E_{p,s,opt}}{E_p} \right). \quad (2.90)$$

Die hier erhaltenen Lösungen werden in Kap. 7.3 zur Berechnung der relevanten Kristall- und Betriebsparameter verwendet und anschließend mit den experimentell erhaltenen Werten verglichen.

## 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

In diesem Kapitel sollen zunächst die grundsätzlichen Anforderungen an aktive Medien für den Hochleistungsbetrieb im Scheibenlaser formuliert sowie die bisher mit diesem Laserkonzept erzielten Resultate vorgestellt werden. Unter diesen Gesichtspunkten werden anschließend die wichtigsten physikalischen Eigenschaften der im weiteren Verlauf untersuchten Materialien vorgestellt. Dazu werden zunächst die kristallographischen Eigenschaften der Wirtsgitter besprochen, welche durch den Einfluss auf das Kristallfeld unter anderem die spektroskopischen Eigenschaften bestimmen. Eine Diskussion der für Hochleistungslaser besonders wichtigen thermischen Eigenschaften schließt diesen Teil ab. Hierbei wird insbesondere auf die Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit der verschiedenen Wirtsmaterialien eingegangen. Das Ende des Kapitels bildet ein kurzer Überblick über die bisher mit den untersuchten Wirtsmaterialien veröffentlichten Laserergebnisse.

### 3.1 Anforderungen an das aktive Material im Scheibenlaser

Um die Vorteile des in Kap. 2.4 vorgestellten Scheibenlaserkonzepts optimal ausnutzen zu können, muss das verwendete aktive Medium zahlreiche Anforderungen erfüllen. Diese ergeben sich zum einen aus der Geometrie des Scheibenlasers, zum anderen aus praktischen Erwägungen wie der Präparation der Kristalle oder den vorhandenen Pumpquellen.

Für den Laserbetrieb bei hohen bis sehr hohen Ausgangsleistungen stellt der Abtransport der im Lasermedium erzeugten Wärme die größte Herausforderung dar. Die Menge der erzeugten Wärme wird dabei hauptsächlich durch das aktive Ion, genauer den Quantendefekt vorgegeben. Somit sind Laserionen von Vorteil in denen der energetische Unterschied zwischen der Pump- und Laserwellenlänge möglichst gering ist. Der Abtransport der erzeugten Wärme hingegen wird zum einen durch das Wirtmaterial, insbesondere durch dessen Wärmeleitfähigkeit bestimmt, zum anderen sinkt die mittlere Temperatur im Kristall mit dessen Dicke (vgl. Gl. 2.79). Es sind daher Materialien von Vorteil, die bereits intrinsisch eine hohe Wärmeleitfähigkeit aufweisen. Auch sollten die thermo-mechanischen Eigenschaften möglichst isotrop sein, um im Betrieb starke Zugspannungen in der Scheibe zu vermeiden. Um eine möglichst geringe Scheibendicke wählen zu können, sollte das aktive Ion im Lasermedium möglichst hohe Absorptionswirkungsquerschnitte aufweisen - aufgrund der bisher kommerziell erhältlichen Pumpdioden idealerweise mit einer Absorptionsbandbreite von mehr als 2 nm - 3 nm. Auch eine Erhöhung der Dotierungskonzentration ermöglicht die Nutzung geringerer Scheibendicken. Es sollten daher nach Möglichkeit keine Verlustprozesse auftreten, die mit der Dichte der aktiven Ionen zunehmen. Hierzu zählen die bereits in Kap. 2.2.2 vorgestellten Prozesse der Upconversion oder die Energiemigration mit anschließender Deposition in Verunreinigungen. Während der erstgenannte Punkt durch die Wahl des aktiven Ions beeinflusst wird, kann Letzterer durch eine hohe Reinheit des Lasermediums verringert werden. Zudem muss das Wirtsmaterial eine gewis-

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

se Festigkeit besitzen, damit es in den erforderlichen Dicken von teilweise weniger als 100  $\mu\text{m}$  präpariert werden kann. Eine starke Spaltbarkeit der Materialien ist in dieser Hinsicht hinderlich. Auch die bei sehr hohen Ausgangsleistungen erforderlichen Scheibendurchmesser in der Größenordnung von Zentimetern müssen herstellbar sein, optimalerweise in einem gängigen Kristallzuchtungsverfahren wie der Czochralski-Technik (vgl. Kap. 4.1.1). Um die thermische Linse und die damit einhergehende Verschlechterung der Strahlqualität gering zu halten, sollte sich zudem die Brechzahl des Wirtsmaterials kaum mit der Temperatur ändern.

Für spezielle Anwendungen, wie dem Laserbetrieb mit Variation der Wellenlänge oder der Erzeugung ultrakurzer Pulse mittels Modenkopplung sind zudem große Verstärkungsbandbreiten erforderlich (vgl. Kap. 2.3.3).

## 3.2 Bisher im Scheibenlaser verwendete Materialien

Seit der Entwicklung des Scheibenlasers wurden verschiedene Wirtsmaterialien und aktive Ionen in diesem Laserkonzept untersucht. So wurden verschiedene Übergänge von  $\text{Nd}^{3+}$  in YAG [Gie99] sowie den Vanadaten  $\text{YVO}_4$  [Pav08] und  $\text{GdVO}_4$  [Lün07] mit Ausgangsleistungen von einigen 10 W demonstriert. Im Bereich um 2  $\mu\text{m}$  wurde Laserbetrieb im Scheibenlaser mit  $\text{Tm}^{3+}$  - [Die98, Ber99] sowie  $\text{Ho}^{3+}$ -dotiertem YAG [Sch06] mit Ausgangsleistungen unter 10 W realisiert.

Die meiste Aufmerksamkeit richtete sich jedoch aus den bereits erwähnten Gründen auf Ytterbium-dotierte Materialien. Hierbei hat sich insbesondere Yb:YAG als geeignetes Lasermedium bewiesen, welches mit seinen thermischen Eigenschaften sowie den breiten Absorptionsbanden um 940 nm gut für den Laserbetrieb bei hohen Leistungen sowie das optische Pumpen mit kommerziell erhältlichen InGaAs-Laserdioden geeignet ist. Unter Verwendung dieses Materials wurden bisher aus einer einzigen Scheibe Ausgangsleistungen von bis zu 5,3 kW bei einer optischen Konversionseffizienz von 65% erreicht [Gie07a]. Durch die Kombination mehrerer Scheiben in einem Resonator konnte die Leistung sogar auf etwa 9,5 kW gesteigert werden. Im modengekoppelten Betrieb wurden Pulsdauern von 705 fs bei einer mittleren Ausgangsleistung von etwa 80 W und Pulswiederholraten von 57 MHz erreicht [Bru04]. Durch Verringerung der Repetitionsrate auf 4 MHz konnte die hierbei erzielte Pulsenergie von 1,4  $\mu\text{J}$  auf 11  $\mu\text{J}$  erhöht werden [Mar08b]. Neuhaus et al. erreichten in kürzlich veröffentlichten Arbeiten unter Verwendung einer Multipasskavität Subpikosekundenpulse mit Pulsenergien von bis zu 25,9  $\mu\text{J}$  und Repetitionsraten im MHz-Bereich [Neu08]. Im Allgemeinen ist die mit Yb:YAG im Scheibenlaser erreichbare Pulslänge aufgrund der vergleichsweise geringen Emissionsbandbreite auf den Bereich um 1 ps beschränkt.

Neben YAG als Wirtsmaterial für  $\text{Yb}^{3+}$  wurden auch die monoklinen Doppel-Wolframate wie z. B. KYW ( $\text{KY}(\text{WO}_4)_2$ ) im Scheibenlaser untersucht. Diese besitzen den Vorteil, dass die Nullphononenlinie im Bereich um 980 nm eine relativ große spektrale Bandbreite aufweist und sich daher - im Gegensatz zu derjenigen von Yb:YAG - sehr gut zum optischen Pumpen mit Laserdioden eignet. Die in diesem Bereich vorliegenden Absorptionswirkungsquerschnitte gehören zu den höchsten unter den  $\text{Yb}^{3+}$ -dotierten Materialien [Kul97, Pet07]. Zudem besitzen sie eine deutliche größere Emissionsbandbreite im Bereich um 1030 nm, wodurch in der Vergangenheit im modengekoppelten Betrieb Pulsdauern von etwa 240 fs bei einer mittleren Leistung von 22 W erreicht worden sind [Bru02]. Die bisher höchste erzielte Ausgangsleistung eines

Scheibenlasers auf Basis von Yb:KYW liegt bei etwa 1,1 kW bei einem optisch-optischen Wirkungsgrad von mehr als 60% [Kil08]. Nachteilig bei diesem Material ist eine große Anisotropie in den thermischen Eigenschaften, wodurch die Skalierung zu höheren Ausgangsleistungen erschwert wird. Auch das für die Herstellung dieser Materialgruppe notwendige Züchtungsverfahren aus der Lösung bringt Nachteile wie einen höheren Grad an Verunreinigungen sowie geringe Züchtungsgeschwindigkeiten mit sich.

Ähnliche spektroskopische Eigenschaften in Bezug auf die spektrale Bandbreite der Übergänge bieten einige Vertreter aus der Gruppe der Borate. Untersuchungen von Yb: $\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  (Yb:LSB) und Yb: $\text{Ca}_4\text{YO}(\text{BO}_3)_3$  (Yb:YCOB) am Institut für Laser-Physik im Rahmen der Doktorarbeit von C. Kränkel [Krä08] belegen das Potential dieser Materialien zur Erzeugung ultrakurzer Pulse. Dabei wurde mit Yb:LSB eine Ausgangsleistung von 40 W bei einem differentiellen Wirkungsgrad von 55% demonstriert. Bei geringeren Ausgangsleistungen konnte die Laserwellenlänge in einem Bereich von 988 nm - 1105 nm kontinuierlich durchgestimmt werden. Mit Yb:YCOB wurde bei etwas höheren Effizienzen eine Ausgangsleistung von bis zu 26 W bei einer Pumpleistung von 45 W und einem differentiellen Wirkungsgrad von 67% erreicht. In der gleichen Arbeit wurden auch die Vanadate  $\text{YVO}_4$  und  $\text{LuVO}_4$  als Wirtsmaterialien für Yb-Scheibenlaser untersucht. Aufgrund geringer Kristallqualität war die Ausgangsleistung jedoch in diesen Fällen auf den Bereich um 10 W begrenzt.

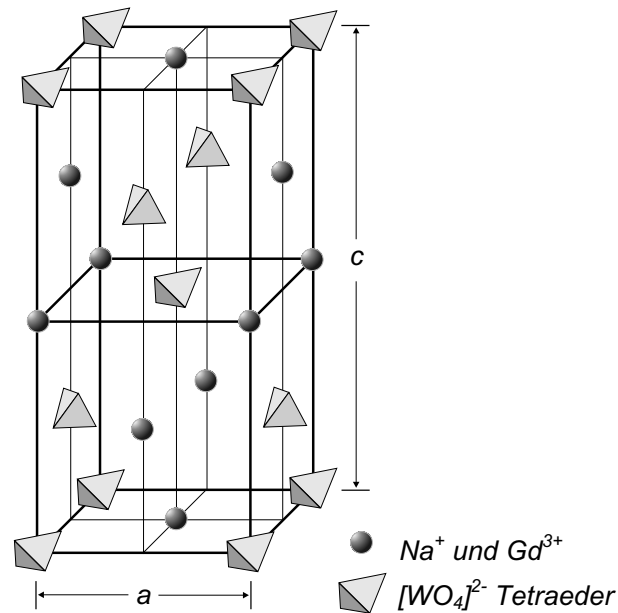
Auch die Gruppe der Sesquioxide wurde in der Vergangenheit als Wirtsmaterial für den Scheibenlaser untersucht. Deren ausgezeichnete Wärmeleitfähigkeit übertrifft diejenige von Yb:YAG, wodurch sich prinzipiell Vorteile bei hohen Pumpleistungen ergeben. Aufgrund mangelhafter Kristallqualität, bedingt durch die schwierige Herstellung dieser Materialien, lagen die erreichten Effizienzen in bisherigen Untersuchungen jedoch unter denen von Yb:YAG. So wurde mit Yb: $\text{Sc}_2\text{O}_3$  eine maximale Ausgangsleistung von 124 W bei 245 W Pumpleistung und einem optisch-optischen Wirkungsgrad von 49% erzielt [Pet01]. Bei geringeren Pumpleistungen um 40 W betrug der maximale differentielle Wirkungsgrad 61% [Lar01]. Im Fall von Yb: $\text{Lu}_2\text{O}_3$ , welches bei Yb-Dotierung die besten thermischen Eigenschaften innerhalb der kubischen Sesquioxide besitzt, war der differentielle Wirkungsgrad auf etwa 57% begrenzt, wodurch ein optischer Wirkungsgrad von 50% nicht überschritten wurde [Pet01].

## 3.3 Das Wolframat $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$

### 3.3.1 Kristallographische Eigenschaften

Verbindungen der Doppel-Wolframate oder der ihnen sehr ähnlichen Doppel-Molybdate mit der allgemeinen Formel  $MT(\text{XO}_4)_2$ , wobei  $M$  ein einfach geladenes Alkali-Kation (Li - Cs),  $T$  ein trivalentes Kation (Al, Ga, In, Cr, Bi, Y, La, oder die Lanthanide  $\text{Ln} = \text{Ce} - \text{Lu}$ ) und  $X = \text{W}$  oder  $\text{Mo}$  ist, können sowohl in geordneten Strukturen mit separaten Plätzen für die  $M$  und  $T$  Kationen als auch in ungeordneten Strukturen auftreten. In Letzterer sind die  $M$  und  $T$  Kationen statistisch auf demselben Platztyp verteilt [Bor68, Pet64]. Einige der in geordneten Strukturen kristallisierenden Vertreter dieser Gruppe, wie die stark anisotropen, biaxialen und monoklinen  $\text{KT}'(\text{WO}_4)_2$  ( $T' = \text{Y}, \text{Gd}, \text{Lu}$ ) stellen aufgrund der hohen Wirkungsquerschnitte von in dieses Gitter eingebauten Seltenerd-Ionen sehr geeignete Wirtsgitter für effiziente Laser dar [Kul97, Bou03].

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Kristallstruktur von  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  (nach [Vor03]). Die  $(\text{WO}_4)^{2-}$  Tetraeder sind dabei aus Zwecken der Übersichtlichkeit verkleinert dargestellt.

Die in ungeordneten Strukturen wachsenden Vertreter dieser Gruppe kristallisieren hingegen in der tetragonalen Scheelit-Struktur des  $\text{CaWO}_4$  mit der Raumgruppe  $C_{4h}^6$  ( $I4_1/a$ ) aus [Zha03, Puj01]. Die statistische Verteilung der Kationen sorgt dabei für ein lokal variierendes Kristallfeld. Dies drückt sich in einer starken inhomogenen Linienverbreiten und damit großen spektralen Bandbreiten der elektronischen Übergänge der Seltenerd-Ionen aus. Die ungeordneten Doppel-Wolframate und -Molybdate sind daher besonders für die Anwendung in durchstimmbaren und Kurzpuls-Lasern von großem Interesse. Durch den uniaxialen Charakter ist zudem nur eine Anisotropie der thermischen- und mechanischen Eigenschaften entlang zweier verschiedener Achsen zu verzeichnen, wodurch die Präparation im Vergleich zu den monoklinen Doppel-Wolframat vereinfacht wird.

Innerhalb dieser Gruppe nehmen Verbindungen der Form  $\text{NaT}'(\text{WO}_4)_2$  mit  $T = \text{La, Nd-Er und Bi}$ , zu denen auch das im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchte  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  (NGW) gehört, eine besondere Rolle ein, da diese kongruent schmelzen ( $T_m(\text{NGW}) = 1253 \text{ °C}$ ) und damit in großen Dimensionen nach dem Czochralski-Verfahren hergestellt werden können [Rod71]. Zudem durchlaufen diese Kristalle keine Phasenumwandlungen während des Abkühlens vom Schmelzpunkt auf Raumtemperatur, wodurch weitestgehend defektfreie Einkristalle hergestellt werden können [Fau96].

Die Struktur von NGW ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Um die Wolframionen herum ordnen sich je vier Sauerstoffatome zu einem Tetraeder an, welche in dieser Darstellung vereinfacht zu einem  $(\text{WO}_4)^{2-}$  Tetraeder zusammengefasst wurden. Die Kationen verteilen sich statistisch auf einen Gitterplatz mit  $S_4$ -Symmetrie, wobei das  $\text{Yb}^{3+}$  ausschließlich das  $\text{Gd}^{3+}$  substituiert. Die Gd-Kationendichte beträgt  $6,4 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  und ist damit etwa halb so hoch wie in YAG. Die maximale Yb-Dotierbarkeit von  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  beträgt etwa 40%. Oberhalb dieser Yb-Konzentration lässt sich das Material aufgrund des inkongruenten Schmelzverhaltens von  $\text{NaYb}(\text{WO}_4)_2$  nicht mehr nach dem Czochralski-Verfahren herstellen [Liu05].



Neuere kristallographische Untersuchungen an NGW ergaben eine leichte Abweichung von der bisher angenommenen Raumgruppe  $I4_1/a$  [Cas06]. Demnach liegt die Raumgruppe  $I\bar{4}$  von etwas niedrigerer Symmetrie vor. In dieser existieren zwei unterschiedliche Platztypen (2b, 2d), welche zwar die gleiche Symmetrie ( $S_4$ ), jedoch leicht verschiedene Abstände zu den Sauerstoffliganden und damit unterschiedliche Kristallfelder besitzen. Der 2b-Platz wird hierbei von den dreiwertigen Kationen mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 60% - 65%, der 2d-Platz mit etwa 35% - 40% besetzt. Zudem ist jeder dieser Plätze durch eine bestimmte Na-Gd/Yb Verteilung in der ersten Kationenschale charakterisiert. Auswirkungen hat dies unter anderem auf die spektroskopischen Eigenschaften, da hierdurch eine zusätzliche Verbreiterung der Absorptions- und Emissionsbanden auftritt.

### 3.3.2 Optische Eigenschaften

Aufgrund der uniaxialen Kristallstruktur ergeben sich entlang der beiden spektroskopisch unterscheidbaren Achsen von NGW geringfügig voneinander abweichende Brechzahlen von  $n_o=1,948$  und  $n_e=1,943$  [Cas06]. Der Verlauf der Brechzahlen in Abhängigkeit der Wellenlänge sowie die entsprechenden Sellmeier-Gleichungen sind in Anhang B angegeben.

Der Transparenzbereich von NGW reicht von etwa 320 nm bis  $4,5 \mu\text{m}$  [Cas06]. Er ist damit vor allem im kurzwelligen Bereich deutlich kleiner als bei den Sesquioxiden oder YAG. Die Grenze im Infrarotbereich wird dabei auf eine 2-Phononen-Absorption der größten Gitterschwingungsenergie von  $911 \text{ cm}^{-1}$  zurückgeführt.

### 3.3.3 Thermische Eigenschaften

In Isolatoren ist der Wärmetransport nahezu ausschließlich durch Phononen bestimmt. Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{th}$  kann über die Wärmekapazität  $c_v$  pro Volumeneinheit, die Schallgeschwindigkeit  $v_s$  sowie die mittlere freie Weglänge  $l_p$  der Phononen über

$$\lambda_{th} = \frac{1}{3} \cdot c_v \cdot v_s \cdot l_p \quad (3.1)$$

beschrieben werden [Kit89]. Da optische Phononen aufgrund ihrer geringen Dispersion nur eine kleine Schallgeschwindigkeit besitzen, kann deren Beitrag zur Wärmeleitung vernachlässigt werden. Der Energietransport erfolgt daher hauptsächlich über akustische Phononen. Die mittlere freie Weglänge dieser ist bei Raumtemperatur durch Streuung an Gitterdefekten (Fehlstellen, Verunreinigungen) sowie durch Umklappprozesse verringert. Im undotierten Fall dominieren dabei die Umklappprozesse [Sla62]. Die Streuung an Gitterdefekten wird ab einer Verunreinigung der Kristalle mit mehr als 0,1% Fremdatomen bemerkbar und kann bei größeren Dotierungskonzentrationen sogar dominant werden. Korngrenzen spielen bei Raumtemperatur keine Rolle, da die mittlere freie Weglänge der Phononen selbst in Keramiken typischerweise unterhalb der Kristallitgrößen liegt. Auch die Gitterstruktur selbst beeinflusst die Wärmeleitfähigkeit, da mit deren Komplexität unter anderem die Wahrscheinlichkeit von Gitterfehlern zunimmt [Oli66].

Die tetragonalen Doppel-Wolframate nehmen in Bezug auf ihre thermischen Eigenschaften eine intermediäre Rolle zwischen den geordneten, monoklinen Wolframatn und Gläsern ein. Die Wärmeleitfähigkeit von Yb:NGW bei Raumtemperatur ist je nach Kristallachse mit

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

$\lambda_{th} = 1,1 - 1,2 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  deutlich geringer als bei den monoklinen Doppel-Wolframaten wie KGW oder KYW ( $\lambda_{th} = 2,6 - 3,8 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ) [Fan06]. Von Vorteil ist hingegen die geringere Anisotropie der Wärmeausdehnungskoeffizienten für unterschiedliche Kristallrichtungen, welche bei NGW mit  $6,7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [100] und  $16,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [001] etwas kleiner ist als bei KGW, für die Werte von  $1,6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [010],  $4 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [100] und  $8,5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  [001] angegeben werden [Fan06]. Dies kann sich insbesondere auf die Skalierbarkeit der Laserleistung im Scheibenlaser auswirken. Große Unterschiede der thermischen Ausdehnungskoeffizienten können bei Erwärmung des Materials zu starken Zugspannungen führen, da die Kristalle bisher stets auf Wärmesenken mit isotropen Ausdehnungskoeffizienten montiert sind.

Eine starke Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Konzentration des Dotierions ist aufgrund der durch die ungeordnete Struktur bereits intrinsisch stark gestörten Phononenpropagation nicht zu erwarten.

## 3.4 Die Sesquioxide $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , $\text{Y}_2\text{O}_3$ und $\text{Lu}_2\text{O}_3$

### 3.4.1 Kristallographische Eigenschaften

Die Sesquioxide der Seltenen Erden kristallisieren je nach Kationengröße, Temperatur und Druck in unterschiedlichen Strukturen aus. Sesqui (lat. für eineinhalb) steht hier für das Verhältnis von Metall- zu Sauerstoffatomen. Während  $\text{La}_2\text{O}_3$ - $\text{Tb}_2\text{O}_3$  bei Raumtemperatur stets eine monokline Struktur einnehmen, bildet sich bei  $\text{Dy}_2\text{O}_3$ - $\text{Lu}_2\text{O}_3$  sowie  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  die kubische Bixbyit-Struktur aus [Pau30, Rot60, Hoe66, Gme74]. Diese ist mit Ausnahme von  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , bei dem bei etwa  $2280 \text{ }^\circ\text{C}$  eine Umwandlung in eine hexagonale Hochtemperaturphase stattfindet [Tsu88], bis zum Schmelzpunkt stabil.

Die Bixbyit-Struktur (Abb. 3.2a) gehört zur Raumgruppe  $\text{Ia}\bar{3} (\text{T}_h^2)$  [Pau30, Sch70a]. In der Einheitszelle befinden sich 16 Formeleinheiten mit insgesamt 32 Kationen. Die Gitterkonstante beträgt etwa  $10 \text{ \AA}$ . Die Kationendichte von etwa  $3 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  ist verglichen mit anderen Wirtsmaterialien sehr hoch. Unter den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Sesquioxiden besitzt  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  aufgrund des geringsten Kationenradius die höchste Kationendichte, gefolgt von  $\text{LuScO}_3$ ,  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  (vgl. Tab. 3.2).

Die Kationen der Elementarzelle unterteilen sich in zwei jeweils sechsfach koordinierte Platztypen unterschiedlicher Symmetrie. 24 der 32 Kationen befinden sich in  $\text{C}_2$ -, die verbleibenden 8 in  $\text{C}_{3i}$ -Symmetrie (Abb. 3.2b). Die zweizählige Symmetrieachse der  $\text{C}_2$ -Plätze verläuft dabei entlang der [100]-Richtung. Die dreizählige Achse der  $\text{C}_{3i}$ -Plätze liegt parallel zur Raumdiagonalen [111]. Entlang der (111)-Ebenen liegen leicht ausgeprägte Spaltflächen vor [Sch70a]. Die Besetzung der einzelnen Symmetrieplätze durch die Dotierionen erfolgt statistisch. Dies gilt auch für die ebenfalls in der Bixbyit-Struktur kristallisierenden Mischkristalle  $\text{LuYO}_3$  und  $\text{ScYO}_3$  sowie für das im weiteren Verlauf der Arbeit verwendete  $\text{LuScO}_3$  [Mix99].

$\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  sowie deren Mischkristalle sind in undotierter Form farblos. Die Härte nach Mohs liegt für alle Sesquioxide bei etwa  $6\frac{1}{2}$ .

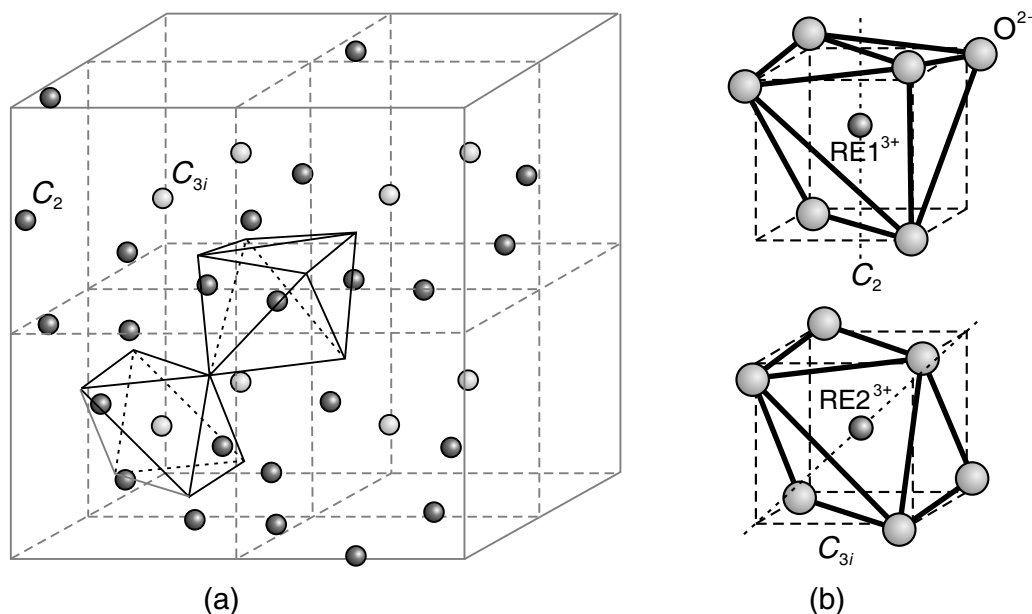
### 3.4.2 Optische Eigenschaften

Der Transparenzbereich der kubischen Sesquioxide reicht von etwa  $8\ \mu\text{m}$  bis in den UV-Bereich [Nig68, Hei73, Mix99, Tol09]. Der Transparenzbereich erstreckt sich dabei in  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  am weitesten in den Ultravioletten Bereich und liegt bei  $210\ \text{nm}$ . Für  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  liegt diese Grenze mit  $220\ \text{nm}$  bzw.  $225\ \text{nm}$  bei geringfügig höheren Wellenlängen. Mit zunehmender Yb-Dotierung verschiebt sich die UV-Grenze des Transparenzbereichs aufgrund eines Charge-Transfer-Überganges des Ytterbiums zu größeren Wellenlängen bis hin zu  $250\ \text{nm}$  für reines  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  [Nak79].

Der Verlauf der Brechungsindizes sowie die entsprechenden Sellmeier-Gleichungen sind in Anhang B aufgeführt. Bei einer Wellenlänge von  $1035\ \text{nm}$  ergibt sich demnach ein Wert von  $n = 1,97$  für  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $n = 1,89$  für  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $n = 1,91$  für  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ .

### 3.4.3 Thermische Eigenschaften

Die thermischen Eigenschaften der Sesquioxide sind einer der Gründe für das große Interesse an dieser Materialklasse, insbesondere als Wirtsmaterial für Festkörperlaser. In der Literatur finden sich hierzu stark unterschiedliche Werte. So berichteten Klein und Croft in den 60er Jahren erstmals über die Wärmeleitfähigkeit von  $\text{Y}_2\text{O}_3$  mit einem Wert von  $\lambda_{th} = 27\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  [Kle67]. In späteren Veröffentlichungen konnten diese Messungen allerdings nicht bestätigt werden. So geben Zhuze et al. für  $\text{Y}_2\text{O}_3$  lediglich  $\lambda_{th} = 6,3\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  an [Zhu68]. Umfangreiche Untersuchungen der thermischen Eigenschaften von undotierten sowie mit Nd- und Yb-dotierten Sesquioxiden wurden von Fornasiero und Mix durchgeführt [For99a, Mix99]. Es ergab sich für alle untersuchten Materialien eine Abnahme der Wärmeleitfähigkeit mit steigender Dotierungskonzentration. Die stärkste Abnahme wurde dabei bei  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  von  $\lambda_{th} = 16,6\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung der Bixbyit-Struktur der Sesquioxide. a) Gesamte Einheitszelle, wobei die Sauerstoffatome aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt wurden. b) Detailansichten der Kationenplätze, oben:  $C_2$ -, unten:  $C_{3i}$ -Symmetrie [Pau30].

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

im undotierten Fall auf  $\lambda_{th} = 6,6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  bei einer Dotierungskonzentration von 2,5 at.% Yb festgestellt.  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  zeigte unter allen Sesquioxiden die geringste Abnahme der Wärmeleitfähigkeit bei Yb-Dotierung. So lag bei 3 at.% Yb die Wärmeleitfähigkeit mit  $\lambda_{th} = 11 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  nur wenig unter dem Wert von  $\lambda_{th} = 12,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  des undotierten Materials. Die Beobachtungen stehen dabei qualitativ in guter Übereinstimmung zu dem aus den theoretischen Überlegungen erwarteten Verhalten, da nicht nur die Anzahl der Verunreinigungen, sondern auch deren Massenunterschied zum substituierten Element entscheidend für den Wärmetransport im Kristall ist. Der geringe Unterschied zwischen Lu (174,97 g/mol) und Yb (173,04 g/mol) von etwa 1% sorgt dabei für eine relativ schwache Störung der Phononenpropagation. Im Gegensatz dazu unterscheiden sich die Massen von Sc (44,96 g/mol) und Y (88,91 g/mol) deutlich von Yb, wodurch es zu einer erheblichen Störung des Gitters und damit zu einem stärkeren Abfall der Wärmeleitfähigkeit bei Yb-Dotierung kommt.

## 3.5 Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit

Da im Rahmen der vorliegenden Arbeit Kristalle mit unterschiedlichen Yb-Konzentrationen hergestellt und verwendet wurden, erschien es notwendig, den Verlauf der Wärmeleitfähigkeit mit zunehmender Dotierungskonzentration genauer zu untersuchen.

### 3.5.1 Messung der Temperaturleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{th}$  der untersuchten Proben wurde anhand der Messung der Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$  bestimmt. Bei bekannter Wärmekapazität  $c_p$  und Dichte  $\rho$  lässt sich über

$$\lambda_{th} = \alpha \cdot \rho \cdot c_p \quad (3.2)$$

die Wärmeleitfähigkeit berechnen.

Die Temperaturleitfähigkeit wurde mit einem Gerät des Typs Mobile 1 der Firma ai-Phase gemessen. Dabei wird die Probe zwischen zwei Thermo-Kontakten gelagert. Anschließend werden von einem Kontakt aus Wärmewellen durch die Probe geleitet und der zeitliche Verlauf sowie die Phase der am zweiten Kontakt ankommenden Welle aufgenommen. Mit der während der Messung ebenfalls bestimmten Kristalldicke  $d$  kann über den Zusammenhang

$$\Delta\Phi = -\frac{d}{\sqrt{2a}}\sqrt{\omega} - k, \quad (3.3)$$

wobei  $k$  eine Konstante ist, durch Messung der Phasendifferenz  $\Delta\Phi$  für unterschiedliche Frequenzen  $\omega$  die Temperaturleitfähigkeit der untersuchten Probe ermittelt werden. Details zu diesem Verfahren finden sich in [Mor98].

Die Proben wurden jeweils auf eine Dicke von etwa 500  $\mu\text{m}$  präpariert. Alle Messungen wurden, um eine Aussage über die Reproduzierbarkeit der Messergebnisse treffen zu können, mehrfach für unterschiedliche Kristallstellen durchgeführt und anschließend gemittelt. Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in Tab. 3.1 dargestellt. Unter der Annahme einer in erster Näherung konstanten Wärmekapazität (vgl. Tab. 3.2) ergeben sich unter Verwendung von Gl. 3.2 die ebenfalls in Tab. 3.1 aufgeführten Wärmeleitfähigkeiten. Dabei wurde für die Dichte bei unterschiedlichen Dotierungen ein linearer Zusammenhang zwischen dem undotierten

### 3.5 Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit

Wirtsmaterial	Yb-Dotierung (at.%)	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Temperaturleitfähigkeit ( $10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ )	Wärmeleitfähigkeit ( $\text{Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )	Bemerkung	
$\text{Lu}_2\text{O}_3$	-	$492 \pm 1$	$5,6 \pm 0,2$	$12,6 \pm 0,4$	E	
	-	$449 \pm 3$	$5,6 \pm 0,2$	$12,7 \pm 0,5$		
	0,15	$446 \pm 1$	$5,4 \pm 0,2$	$12,3 \pm 0,6$		
	$\text{Lu}_2\text{O}_3$	0,5	$392 \pm 4$	$5,5 \pm 0,3$	$12,5 \pm 0,6$	G
		0,96	$472 \pm 3$	$5,2 \pm 0,1$	$11,8 \pm 0,3$	
		2,17	$501 \pm 2$	$5,4 \pm 0,2$	$12,2 \pm 0,5$	NK,G
		3,27	$449 \pm 3$	$5,2 \pm 0,1$	$11,7 \pm 0,3$	
		3,8	$461 \pm 1$	$5,3 \pm 0,3$	$12,0 \pm 0,6$	
		5,14	$502 \pm 4$	$5,2 \pm 0,2$	$11,6 \pm 0,3$	
$\text{Lu}_2\text{O}_3$	10,0	$506 \pm 1$	$5,0 \pm 0,2$	$11,2 \pm 0,4$		
	$\text{Sc}_2\text{O}_3$	-	$504 \pm 2$	$6,7 \pm 0,2$	$18,0 \pm 0,6$	E
2,4 $\pm$ 0,1		$498 \pm 1$	$2,6 \pm 0,1$	$7,3 \pm 0,1$		
$\text{Y}_2\text{O}_3$	-	$466 \pm 2$	$5,9 \pm 0,5$	$13,4 \pm 1,1$	E	
	3,2	$339 \pm 5$	$3,3 \pm 0,1$	$7,4 \pm 0,4$		
$\text{Yb}_2\text{O}_3$	-	$367 \pm 16$	$2,9 \pm 0,2$	$7,7 \pm 0,6$	V,G	
	-	$428 \pm 2$	$3,0 \pm 0,1$	$8,0 \pm 0,4$		
$\text{LuScO}_3$	-	$442 \pm 7$	$1,3 \pm 0,1$	$3,6 \pm 0,2$	E	
	1,05	$482 \pm 1$	$1,2 \pm 0,1$	$3,5 \pm 0,1$		
	3,15	$497 \pm 1$	$1,2 \pm 0,1$	$3,5 \pm 0,1$		

**Tabelle 3.1:** Gemessene Temperatur- und daraus berechnete Wärmeleitfähigkeiten der untersuchten Yb-dotierten Sesquioxide. Soweit nicht anders angegeben wurden alle Kristalle mittels HEM-Verfahren hergestellt. Die Notation (NK) kennzeichnet einen nach dem Nacken-Kyropoulos-Verfahren hergestellten Kristall (s. Kap. 4.1), (V) steht für stark verfärbte Kristallproben. Alle Kristalle wurden geläppt und beidseitig poliert. Ausnahmen sind mit dem Zusatz (E - nur einseitig poliert) und (G - nur geläppt) versehen.

Wirtsmaterial und reinem  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  ( $\rho = 9,20 \text{ g/cm}^3$ ) angenommen [Mix99]. Für  $\text{LuScO}_3$  wurde als Dichte der Mittelwert aus  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  verwendet. Die Wärmekapazität von  $\text{LuScO}_3$  wurde zudem am Institut für Kristallzüchtung (IKZ) Berlin von A. Klimm im Bereich zwischen  $50^\circ\text{C}$  und  $1200^\circ\text{C}$  gemessen [Kli09]. Anhand dieser Daten konnte anschließend auf die Wärmekapazität bei Raumtemperatur extrapoliert werden. Es ergab sich dabei für  $\text{Yb:LuScO}_3$  ein Wert von  $c_p = (0,43 \pm 0,02) \text{ Jg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ .

Die Ergebnisse der Temperaturleitfähigkeitsmessungen sind zusammen mit den sich daraus ergebenden Wärmeleitfähigkeiten in Tab. 3.1 aufgeführt. Wie zu erwarten war, ergibt sich für  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  der geringste Abfall der Wärmeleitfähigkeit von etwa  $\lambda_{th} = 12,6 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$  im undotierten Fall auf  $\lambda_{th} = 11,2 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$  bei 10 at.% Yb-Dotierung. Der leicht geringere Wert für die  $\text{Yb}(0,96 \text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Probe kann durch eine geringfügig schlechtere Kristallqualität erklärt werden, da dieser Kristall der erste aller im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Sesquioxide war und noch nicht alle Zuchtparameter optimiert waren (vgl. Kap. 4.2). Zudem besaßen die Ausgangsmaterialien eine geringere Reinheit.

Für  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  wurde mit einem Wert von  $\lambda_{th} = 18,0 \text{ Wm}^{-1} \text{ K}^{-1}$  die höchste Wärmeleitfähigkeit unter allen untersuchten Kristallen ermittelt. Diese nimmt jedoch bereits bei 2,4 at.% Yb-

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

Dotierung auf etwa  $\lambda_{th} = 7,3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  ab. Eine ähnlich starke Abnahme der Wärmeleitfähigkeit wird für  $\text{Y}_2\text{O}_3$  beobachtet.

Die Wärmeleitfähigkeit von  $\text{LuScO}_3$  ist mit  $\lambda_{th} = 3,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  deutlich niedriger. Dies kann durch die im Falle eines Mischkristalls maximale Störung des Gitters erklärt werden. Die zusätzliche Dotierung mit Ytterbium führt dabei kaum zu einer Verschlechterung, was sich in sehr ähnlichen Werten der Wärmeleitfähigkeit für undotierte und dotierte Proben ausdrückt. Die ermittelten Werte können aufgrund der ähnlichen Masse von Ytterbium und Lutetium sowie der damit verbundenen, vermutlich sehr ähnlichen Streuung an diesen Punktdefekten in guter Näherung als unterer Grenzwert für die Wärmeleitfähigkeit von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  bei sehr hoher Yb-Dotierung angesehen werden.

Im Vergleich zu den in [Mix99] dokumentierten Werten der Wärmeleitfähigkeit für nach dem Bridgman-Verfahren hergestellte  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ -,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Kristalle ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Geringe systematische Abweichungen sind aus verschiedenen Gründen möglich. Zum einen wurden die [Mix99] zugrunde liegenden Messungen durch die verwendete Messtechnik der Laserpuls-Methode (engl. *laser-flash method*) [Lis98] in einem Temperaturbereich von  $50^\circ\text{C}$  bis  $100^\circ\text{C}$  durchgeführt und anschließend auf eine Temperatur von  $30^\circ\text{C}$  extrapoliert. Die in dieser Arbeit beschriebenen Messungen der Temperaturleitfähigkeit wurden hingegen bei etwa  $20^\circ\text{C}$  durchgeführt.

Um den Verlauf der Wärmeleitfähigkeit mit zunehmender Yb-Konzentration besser beschreiben zu können, wurde zudem reines  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  vermessen. Hierbei ergaben sich für zwei Proben aus unterschiedlichen Kristallen im Rahmen der Messgenauigkeit identische Werte von  $\lambda_{th} = 7,7 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  und  $\lambda_{th} = 8,0 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Weshalb die Wärmeleitfähigkeit von  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  so deutlich unter der von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und insbesondere  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  liegt, kann aus den vorliegenden Untersuchungen nicht geschlossen werden. Aufgrund der sehr ähnlichen Masse und Struktur, würde man eher Werte erwarten die  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  ähneln. Allerdings wurden in der Literatur für diese beiden Materialien deutlich unterschiedliche Verläufe der Wärmekapazitäten beobachtet [Kri99], sodass auch Unterschiede in der thermischen Leitfähigkeit denkbar wären.

#### 3.5.2 Verlauf der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration

Einen theoretischen Ansatz die beobachtete Abnahme der Wärmeleitfähigkeit mit steigender Dotierungskonzentration zu beschreiben, lieferte P. Klemens [Kle60]. Dabei geht man zunächst davon aus, dass die mittlere freie Weglänge der durch das Gitter propagierenden Phononen vorwiegend durch Streuung an Punktdefekten bestimmt wird, während Umklappprozesse nur eine geringe Rolle spielen. Wie bereits diskutiert, trifft dies bei Raumtemperatur in der Regel ab einer Dotierungskonzentration von einigen Zehntel Prozent zu [Geb58], sodass diese Näherung für die im Folgenden betrachteten Dotierungskonzentrationen zulässig ist. Weiterhin wird angenommen, dass die Kristalltemperatur nicht deutlich kleiner als die Debye-Temperatur des Materials ist. Dies trifft für  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  mit  $\Theta_D = 375 \text{ K}$  gut zu (vgl. Tab. 3.2). Rechnungen von Gaume et al. [Gau03] zeigten anhand von Yb:YAG ( $\Theta_D = 750 \text{ K}$ ) auch für höhere Debye-Temperaturen eine gute Übereinstimmung des Modells. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass auch  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  ( $\Theta_D = 653 \text{ K}$ ) und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  ( $\Theta_D = 503 \text{ K}$ ) hinreichend gut beschrieben werden können.

Die Wärmeleitfähigkeit des Kristallgitters kann danach durch

$$\lambda_{th} = \frac{1}{3} \int c_p(\omega) v^2 \tau(\omega) d\omega, \quad (3.4)$$

ausgedrückt werden, wobei  $c_p(\omega)d\omega$  die spezifische Wärmekapazität pro Volumeneinheit mit den Gittermoden  $\omega$  ist.  $v$  beschreibt dabei die Geschwindigkeit und  $\tau(\omega)$  die Relaxationszeit der Gitterschwingungen. Werden die Phononen durch verschiedene Prozesse gestreut, können die einzelnen Beiträge gemäß

$$\frac{1}{\tau} = \sum_i \frac{1}{\tau_i} \quad (3.5)$$

addiert werden. Die Streuung an Punktdefekten trägt zur inversen Relaxationszeit mit

$$\frac{1}{\tau_d} = A\omega^4 \quad (3.6)$$

bei und erhöht somit den thermischen Widerstand. Der Beitrag der Umklappprozesse zur Relaxationszeit kann analog mit

$$\frac{1}{\tau_u} = B\omega^2 \quad (3.7)$$

beschrieben werden, wobei  $B$  proportional zur Temperatur ist.

Die Stärke der Streuung an Punktdefekten kann dabei, wie bereits erwähnt, durch den Massenunterschied zwischen dem Defektion (Dotierion) und dem substituierten Ion beschrieben werden.

Die Relaxationszeit der Streuung an Punktdefekten kann nun gemäß Gl. 3.6 bestimmt werden, wobei

$$A = (a^3/4\pi v^3)\varepsilon \quad (3.8)$$

ist. Hierbei stellt  $a^3$  das atomare Volumen,  $v$  die Phononengeschwindigkeit und

$$\varepsilon = \sum_i c_i (M_i - M)^2 / M^2 \quad (3.9)$$

über die Massendifferenz ein Maß für die Stärke der Streuung an den Punktdefekten dar. Dabei ist

$$M = \sum_i c_i M_i \quad (3.10)$$

die mittlere Atommasse, mit  $c_i$  der Konzentration und  $M_i$  der Masse des Atomtyps  $i$ . Der Verlauf von  $\varepsilon$  ist in Abb. 3.3 in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration für unterschiedliche Massenverhältnisse von Dotierion ( $M_{dot}$ ) und substituierten Ion ( $M_0$ ) zwischen  $M_{dot} = 1,01 \cdot M_0$  und  $M_{dot} = 4 \cdot M_0$  aufgetragen. Der erste Fall spiegelt dabei in etwa die Verhältnisse in  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  bei Dotierung mit Yb wieder. Der Verlauf der Kurve ist dabei symmetrisch um eine Dotierungskonzentration von  $c_{dot} = 50\%$ . Mit zunehmendem Massenunterschied zwischen Dotierion und substituiertem Ion wird der Verlauf asymmetrischer. Dabei verschiebt sich das Maximum der Kurve in Richtung des leichteren Ions. In der Praxis führt dies zu unterschiedlich starken Auswirkungen auf die Wärmeleitfähigkeit eines Materials bei Dotierung. So wird im Falle eines deutlich schwereren Dotierions bereits bei kleinen Dotierkonzentrationen eine starke Abnahme

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

der Wärmeleitfähigkeit erwartet. Im umgekehrten Fall ist lediglich mit einem langsamen Abfall der Wärmeleitfähigkeit zu rechnen. (vgl. Abb. 3.3).

Für den allgemeinen Fall, bei dem Umklappprozesse und Streuung an Punktdefekten gemeinsam betrachtet werden, ergibt sich für die Relaxationszeit

$$\tau(\omega) = \tau_d \tau_u / (\tau_d + \tau_u). \quad (3.11)$$

Mit der spezifischen Wärme

$$c_p(\omega) = \frac{3k_B \omega^2}{2\pi^2 v^3} \quad (3.12)$$

sowie Gl. 3.11 ergibt sich aus Gl. 3.4

$$\lambda_{th} = \frac{k_B}{2\pi^2 v} \int_0^{\omega_D} \omega^2 \frac{\tau_d \tau_u}{(\tau_d + \tau_u)} d\omega, \quad (3.13)$$

und es folgt mit Gl. 3.6 und Gl. 3.7

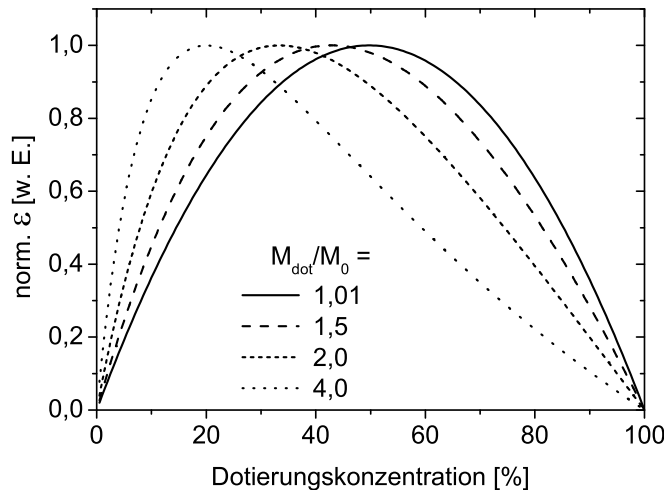
$$\lambda_{th} = \frac{k_B}{2\pi^2 v B} \int_0^{\omega_D} \frac{d\omega}{(1 + \omega^2 A/B)}. \quad (3.14)$$

Man kann nun eine Frequenz  $\omega_0$  definieren mit

$$\tau_u(\omega_0) = \tau_d(\omega_0), \quad (3.15)$$

sodass man für die Wärmeleitfähigkeit

$$\lambda_{th} = \frac{k_B}{2\pi^2 v} \left( \frac{\omega_0}{B} \right) \arctan \left( \frac{\omega_D}{\omega_0} \right) \quad (3.16)$$



**Abbildung 3.3:** Normierter Verlauf der Streustärke  $\epsilon$  (Gl. 3.9) für unterschiedliche Massenverhältnisse von Dotierung und substituiertem Ion in Abhängigkeit der Dotierionendichte.  $M_{\text{dol}}$  ist dabei die Masse des Dotieratoms und  $M_0$  die Masse des substituierten Atoms.



erhält. Ohne Streuung an Punktdefekten ( $A=0$ ) kann Gl. 3.14 für den ungestörten Fall zu

$$\lambda_{th,0} = \frac{k_B}{2\pi^2\nu} \frac{\omega_D}{B} \quad (3.17)$$

umgeschrieben werden. Damit lässt sich Gl. 3.16 vereinfachen zu

$$\lambda_{th} = \lambda_{th,0} \left( \frac{\omega_0}{\omega_D} \right) \arctan \left( \frac{\omega_D}{\omega_0} \right). \quad (3.18)$$

Aus den Gln. 3.6, 3.7 und 3.15 ergibt sich

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{B}{A}} \propto \sqrt{\frac{T}{\varepsilon}}. \quad (3.19)$$

Indem man alle Proportionalitätskonstanten in  $\omega_0$  unter  $\chi$  zusammenfasst, kann die Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration als

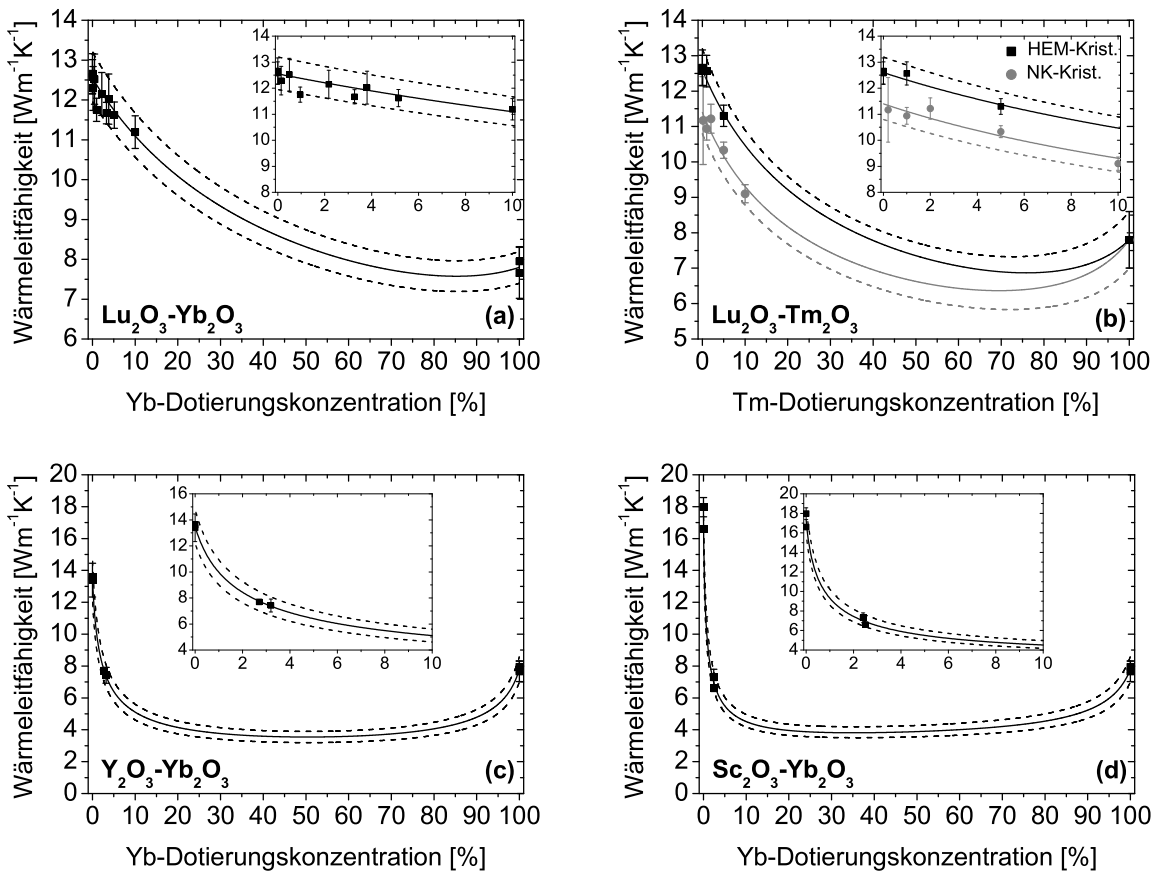
$$\lambda_{th}(c_{dot}) = \lambda_{th,0} \sqrt{\frac{\chi}{\varepsilon}} \cdot \arctan \sqrt{\frac{\varepsilon}{\chi}} \quad (3.20)$$

geschrieben werden. Dieser Ausdruck ist nur noch von der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda_{th,0}$  des ungestörten Gitters, welche experimentell bestimmt wird, sowie von  $\varepsilon$  als Ausdruck für die Streuung der Phononen an Punktdefekten aufgrund des Massenunterschieds abhängig. Dieses ist für jede Dotierungskonzentration bekannt (Gl. 3.9) wodurch lediglich  $\chi$  als freier Parameter übrig bleibt. Da Gl. 3.20 nur den Einfluss der Störung beschreibt, muss eine weitere Näherung eingeführt werden, um die unterschiedliche Wärmeleitfähigkeit von undotiertem und 100%-dotiertem Wirtsgitter zu berücksichtigen. Nach Marquardt et al. kann dafür näherungsweise das arithmetische Mittel der beiden Endzustände bei der jeweiligen Dotierkonzentration verwendet werden, da ein linearer Zusammenhang zwischen der Geschwindigkeit der Phononen und der Dotierungskonzentration besteht [Mar08c].

Unter Verwendung der im Abschnitt 3.5.1 bestimmten Wärmeleitfähigkeiten wurden für die unterschiedlichen Materialien jeweils Fits nach Gl. 3.20 durchgeführt. Die dabei erhaltenen Kurven sind in Abb. 3.4a-d zusammen mit den jeweils experimentell bestimmten Werten der Wärmeleitfähigkeit dargestellt. Der jeweilige Fit ist dabei als durchgezogene Linie eingezeichnet. Zum Abschätzen des Fehlers wurden zudem Kurven mit einer gewissen prozentualen Abweichung dargestellt. Aufgrund der größeren Anzahl von Messwerten bei Yb- und Tm-dotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  wurde hier eine Abweichung von 5 Prozent gewählt. Da für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nur wenige Messwerte zur Verfügung standen, wurde hier ein Fehler von 10 Prozent angenommen. Der Fehler der Einzelmessung der Temperaturleitfähigkeit ist dabei in der Regel deutlich geringer. Aufgrund der stark schwankenden Angaben zur Wärmekapazität in der Literatur ist der Gesamtfehler aber als relativ hoch einzustufen. Auch Schwankungen in der Kristallqualität, z. B. durch Verspannungen im Material, beeinflussen die Wärmeleitfähigkeit (vgl. Abb. 3.4b).

In Abb. 3.4a ist der Verlauf der Wärmeleitfähigkeit für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dargestellt. Im undotierten Fall liegt die Wärmeleitfähigkeit bei  $\lambda_{th} = 12,6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Mit zunehmender Dotierungskonzentration fällt  $\lambda_{th}$  nahezu linear bis auf einen Wert von etwa  $\lambda_{th} = 11,2 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  bei 10 at.% Yb-Dotierung. Aufgrund des relativ großen Unterschieds der Wärmeleitfähigkeiten von reinem

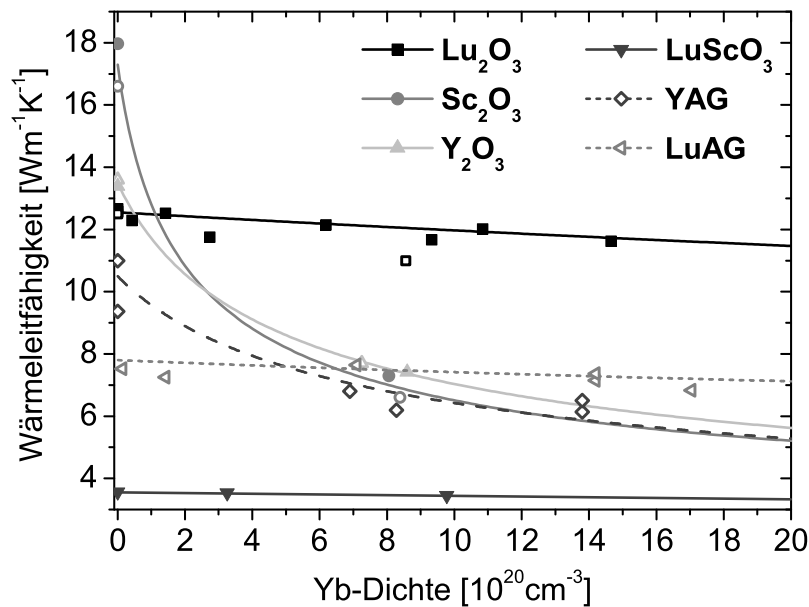
### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien



**Abbildung 3.4:** Wärmeleitfähigkeit verschiedener Kristalle in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration: (a)  $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Yb}_2\text{O}_3$ , (b)  $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Tm}_2\text{O}_3$  (Werte aus [Koo08]) - die Kreise stehen für NK-Kristalle, (c)  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-Yb}_2\text{O}_3$ , (d)  $\text{Sc}_2\text{O}_3\text{-Yb}_2\text{O}_3$ . Die durchgezogene Linie stellt dabei den Fit dar, die gestrichelten Kurven beschreiben den Verlauf der Kurven bei einer Abweichung von 5%. Für reines  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  wurde die Wärmeleitfähigkeit anhand eines Vergleichs mit  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  abgeschätzt und der angenommene Fehler auf 10% angehoben. Zur besseren Übersicht wurden nur die äußeren Fehlerkurven eingezeichnet. Bei  $\text{Yb}:\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Yb}:\text{Sc}_2\text{O}_3$  wurde die Abweichung aufgrund der wenigen und nur bei geringen Dotierungskonzentrationen vorhandenen Messwerte auf 10% erhöht und zusätzlich Literaturwerte aus [Mix99] berücksichtigt.

$\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Yb}_2\text{O}_3$ , wird der Kurvenverlauf mathematisch zum größten Teil durch das arithmetische Mittel der Wärmeleitfähigkeit der beiden Endzustände bestimmt. Durch Streuung an den Punktdefekten kommt es lediglich zu einer geringen Abweichung, was vor allem im Bereich zwischen 60 at.% und 100 at.% auffällt.

Um den Einfluss unterschiedlicher Massendifferenzen von Dotierion und substituiertem Ion auf die Wärmeleitfähigkeit eines Wirtsgitters zu veranschaulichen, wurden zudem Berechnungen zum System  $\text{Lu}_2\text{O}_3\text{-Tm}_2\text{O}_3$  durchgeführt. Die Werte für die Wärmeleitfähigkeit von Tm-dotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  wurden [Koo08] entnommen. Die Wärmekapazität von reinem  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  von  $c_p = 0,30 \text{ Jg}^{-1}\text{K}^{-1}$  stammt aus [Gme74]. Da keine reinen  $\text{Tm}_2\text{O}_3$ -Kristalle vorhanden waren und in der Literatur keine Daten für die Wärmeleitfähigkeit vorliegen, wurde die zuvor bestimmte Temperaturleitfähigkeit von  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  von  $\lambda_{rh} = 7,8 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  verwendet. Diese Annahme ist dahingehend als Näherung gerechtfertigt, da sich beide Materialien in ihrer Wärmeka-



**Abbildung 3.5:** Verlauf der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Yb-Ionendichte in  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  und  $\text{LuScO}_3$ . Die gefüllten Symbole stellen dabei die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Werte dar. Die leeren Symbole stehen für Daten aus [Mix99, For99a, Bei08]

azität [Kri99] sowie Ionenmasse stark ähneln. Es ergibt sich ähnlich wie bei Dotierung mit Ytterbium eine mit steigender Tm-Konzentration abnehmende Wärmeleitfähigkeit (Abb. 3.4b). Die Abnahme ist dabei im Vergleich zur Yb-Dotierung etwas größer. Dies ist auf den größeren Massenunterschied zwischen Thulium und Lutetium zurückzuführen, welcher etwa 3,5% beträgt. Auch der Einfluss des Herstellungsverfahrens kann anhand der Messung verdeutlicht werden. Während die nach dem HEM-Verfahren hergestellten Tm: $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Kristalle nur eine geringfügige Abweichung von weniger als 5% im Vergleich zu Yb-dotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  aufweisen, liegen die Werte für die NK-Kristalle etwa 10% - 15% darunter. Ursache sind vermutlich deutlich höhere Spannungen im Material aufgrund der während der Züchtung vorliegenden größeren Temperaturgradienten [Koo08].

Im Vergleich zu Yb: $\text{Lu}_2\text{O}_3$  zeigen Yb: $\text{Y}_2\text{O}_3$  und Yb: $\text{Sc}_2\text{O}_3$  leicht unterschiedliche Kurvenverläufe (Abb. 3.4c,d), wobei die Abnahme der Wärmeleitfähigkeit bereits bei kleineren Dotierungskonzentrationen deutlich stärker ausgeprägt ist, während die Wärmeleitfähigkeit bei mittleren Yb-Konzentrationen nahezu konstant ist. Dabei ist der Abfall umso stärker, je größer der Massenunterschied zwischen dem Dotierion und substituierten Ion ist. Im Fall von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  ist der Wert bereits bei 1 at.% Yb-Dotierung von im Mittel  $\lambda_{th} = 17,3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  auf  $\lambda_{th} = 9,3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  gefallen. Bei 5 at.% Yb-Dotierung liegt der Wert bei  $\lambda_{th} = 5,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ . Für den Fall des maximalen Gitterstörung (50% Sc / 50% Yb) ergibt sich ein Wert von etwa  $\lambda_{th} = 3,9 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ , welcher dem für  $\text{LuScO}_3$  bestimmten Wert von etwa  $3,6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  ähnelt. Dies ist wie eingangs beschrieben mit der großen Ähnlichkeit von Ytterbium und Lutetium zu erklären, sodass ein  $\text{LuScO}_3$ -Mischkristall näherungsweise  $\text{YbScO}_3$  entsprechen sollte.

Der Verlauf von Yb: $\text{LuScO}_3$  sollte daher dem von Yb: $\text{Sc}_2\text{O}_3$  im Bereich von 50% - 100%

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

Yb-Dotierung ähneln. Im Bereich kleiner Yb-Konzentrationen würde sich demnach ein relativ flacher Verlauf ergeben, was mit den zuvor für Yb:LuScO<sub>3</sub> gemessenen Werten gut übereinstimmt.

Zum besseren Vergleich wurden alle Kurven sowie die gemessenen Werte zusammen mit einigen aus der Literatur bekannten Wärmeleitfähigkeiten in Abb. 3.5 dargestellt. Aus den gewonnenen Daten ergibt sich eine Grenze von etwa  $1,1 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  (0,3 - 0,4 at.%), oberhalb welcher Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> unter allen betrachteten Yb-dotierten Materialien die beste Wärmeleitfähigkeit von etwa  $12 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  aufweist. Trotz der anfänglich starken Abnahme sind aber auch Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in ihrer Wärmeleitfähigkeit mit den betrachteten Granaten Yb:YAG und Yb:LuAG vergleichbar und sollten sich daher gut für den Laserbetrieb bei hohen Leistungen eignen. Der Mischkristall LuScO<sub>3</sub> zeigte unter allen untersuchten Sesquioxiden erwartungsgemäß die geringste Wärmeleitfähigkeit. Sich daraus ergebende Auswirkungen auf die Lasereigenschaften der unterschiedlichen Kristalle werden in Kap. 6 diskutiert.

Eine Zusammenfassung der wichtigsten Materialeigenschaften ist in Tabelle 3.2 gegeben.

## 3.6 Bisher mit den untersuchten Materialien erzielte Laserresultate

Mit Ausnahme von Yb:LuScO<sub>3</sub> wurde mit allen vorgestellten Materialien bereits Lasertätigkeit demonstriert. Es soll daher an dieser Stelle eine kurze Zusammenfassung der bisher mit den im weiteren Verlauf dieser Arbeit verwendeten Materialien realisierten Lasern gegeben werden.

### 3.6.1 NGW

Die ersten Laserexperimente mit NGW als Wirtsmaterial wurden bereits in den sechziger Jahren des vergangenen Jahrhunderts mit blitzlampengepumpten Nd<sup>3+</sup>:NGW bei kryogenen Temperaturen um 77 K durchgeführt [Pet64]. Der erste diodengepumpte Laser der tetragonalen Doppel-Wolframate bei Raumtemperatur war ebenfalls ein Nd<sup>3+</sup>:NGW [Fau96]. Auch Lasertätigkeit im Bereich um 1,9  $\mu\text{m}$  mit Tm<sup>3+</sup> als aktivem Ion konnte bereits gezeigt werden [Can06].

Der erste auf Yb<sup>3+</sup>-basierende Laser innerhalb dieser Materialklasse war 2004 ebenfalls NGW [Ric04, Joh04]. Kurz danach wurde Yb-Lasertätigkeit in mehreren dem NGW verwandten tetragonalen Doppel-Wolframat- und -Molybdaten wie NaLa(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>, NaLa(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> oder LiGd(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> demonstriert [Liu05, Ric06]. Der bisher höchste erzielte differentielle Wirkungsgrad von 77% wurde unter Ti:Saphir-Anregung erzielt [Cas06]. Die gleichen Autoren erreichten auch die bisher höchste Ausgangsleistung von Yb:NGW bei Raumtemperatur von 1,45 W.

Das große Interesse an dieser Materialklasse beruht, wie bereits erwähnt, auf der ungeordneten Struktur, wodurch sich stark inhomogen verbreiterte optische Übergänge ergeben. Als Konsequenz wurde Yb:NGW auch im modengekoppelten Betrieb eingehend untersucht. Die dabei bisher erreichten Pulse hatten eine minimale Pulsdauer von 75 fs bei einigen zehn Milliwatt mittlerer Ausgangsleistung [Riv05]. Die kürzesten Pulsdauern innerhalb der tetragonalen Doppel-Wolframate wurden mit dem Yb:NGW sehr ähnlichen Yb:NYW erzielt [Gar07]. Die dabei erreichte Pulsdauer von 53 fs zählt zu den kürzesten bisher mit Yb-dotierten Materialien publizierten Werten und veranschaulicht das große Potential dieser Materialien.

### 3.6.2 Sesquioxide

Erste Laserexperimente mit Seltenerd-dotierten Sesquioxiden wurden bereits 1964 mit blitzlampengepumptem Nd:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei kryogenen Temperaturen durchgeführt [Hos64]. Die Untersuchungen von Klein und Croft [Kle67] zu den thermischen Eigenschaften von Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> führten, wie bereits in Abschnitt 3.4 beschrieben, zu einem großen Interesse an diesen Materialien. Bereits 1978 konnte Lasertätigkeit bei Raumtemperatur im Dauerstrichbetrieb, ebenfalls mit Nd:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, demonstriert werden [Sto78]. Die ersten Sesquioxid-Laser auf Basis von Yb<sup>3+</sup> wurden Ende der 90er Jahre am Institut für Laser-Physik von L. Fornasiero et al. mit Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> demonstriert [For99c]. Der dabei erreichte differentielle Wirkungsgrad betrug weniger als 40%, was auf hohe kristallinterne Verluste zurückgeführt wurde. In den darauffolgenden Jahren konnte ebenfalls effizienter Laserbetrieb von Nd<sup>3+</sup> und Tm<sup>3+</sup> in den drei Sesquioxiden Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei Raumtemperatur demonstriert werden [For99a]. Dazu kamen ab 2001 die bereits in Abschnitt 3.2 beschriebenen Scheibenlaser auf Basis von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Während mit Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bereits ein hoher differentielles Wirkungsgrad von bis zu 73% erzielt werden konnte [For99b], lagen die zu Beginn dieser Arbeit mit kristallinem Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> erreichten differentielles Wirkungsgrade nicht über 60%.

Im modengekoppelten Betrieb ergeben sich aufgrund der im Vergleich zu Yb:YAG breiteren Emissionsbanden kürzere Pulsdauern. So erreichten passiv modegekoppelte Laser bei mittleren Ausgangsleistungen von einigen 100 mW im Fall von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eine Pulsdauer von 230 fs und im Fall von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> etwa 220 fs [Klo04, Gri04].

Als Alternative zur Kristallzüchtung aus der Schmelze wurde die Herstellung von transparenten Sesquioxid-Keramiken in den vergangenen Jahren verstärkt untersucht [Lu03, Shi03]. Mit Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Keramiken konnte dabei bisher ein maximaler differentielles Wirkungsgrad von mehr als 80% mit Ausgangsleistungen im Watt-Bereich erreicht werden [Kon03]. Im Gegensatz dazu ist die Qualität von keramischem Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bisher relativ niedrig, sodass nur ein differentielles Wirkungsgrad von 53% erreicht werden konnte [Tak05]. Auch mit Sesquioxid-Keramiken sind in der Literatur zahlreiche Laserexperimente im modengekoppelten Betrieb zu finden. Die bei passiver Modenkopplung mittels SESAM erreichten Pulsdauern sind dabei vergleichbar zu denen der kristallinen Materialien [Tok06, Tok07].

### 3 Die verwendeten Wirtsmaterialien

Wirtsmaterial	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	LuScO <sub>3</sub>	NaGd(WO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub>
Gittersymmetrie	kubisch	kubisch	kubisch	kubisch	kubisch	tetragonal	kubisch
Raumgruppe	Ia $\bar{3}$	Ia $\bar{3}$	Ia $\bar{3}$	Ia $\bar{3}$	Ia $\bar{3}$	I $\bar{4}$	Ia3d
Gitterkonstante (Å)	9,857	10,391	10,602	10,433	10,118	a = 5,24 c = 11,38	12,00
Kationendichte (10 <sup>20</sup> cm <sup>-3</sup> )	335,5 Sc <sup>3+</sup>	285,2 Lu <sup>3+</sup>	268,7 Y <sup>3+</sup>	281,3 Yb <sup>3+</sup>	310,4 Lu <sup>3+</sup> + Sc <sup>3+</sup>	64 Gd <sup>3+</sup>	138 Y <sup>3+</sup>
Yb-Koordinationszahl	6	6	6	6	6	8	8
Kationenradius (Å)	0,75	0,86	0,90	0,87	0,81	1,11	1,02
Platzsymmetrie	C <sub>2</sub> , C <sub>3i</sub>	C <sub>2</sub> , C <sub>3i</sub>	C <sub>2</sub> , C <sub>3i</sub>	C <sub>2</sub> , C <sub>3i</sub>	C <sub>2</sub> , C <sub>3i</sub>	S <sub>4</sub>	D <sub>2</sub>
Mohs-Härte	6 $\frac{1}{2}$	6-6 $\frac{1}{2}$	6 $\frac{1}{2}$	6 $\frac{1}{2}$	6 $\frac{1}{2}$	4 $\frac{1}{2}$	8 $\frac{1}{2}$
Dichte (g·cm <sup>-3</sup> )	3,85	9,42	5,03	9,20	6,63	7,13	4,56
Herstellungsverfahren	HEM	HEM	HEM	HEM	HEM	Cz	Cz
Schmelzpunkt (°C)	2430	2450	2430	2430	2370	1253	1940
Brechungsindex bei 1 µm	1,967	1,911	1,890		(1,939)	n <sub>o</sub> = 1,948 n <sub>e</sub> = 1,943	1,816
Transparenzbereich (µm)	0,22-8	0,23-8	0,23-8	0,26-	0,23-(8)	0,32-4,5	0,18-6
Debye-Temperatur (K)	653	375	503				750
Spezifische Wärme (Jg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	0,70	0,24	0,44	0,29	0,43	0,35	0,57-0,59
Temperaturleitfähigkeit (10 <sup>-6</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	6,7	5,6	5,9	2,9	1,3	0,42 [100] 0,48 [001]	3,7-4,3
Wärmeleitfähigkeit (Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	18,0	12,6	13,4	7,7	3,9	1,1 [100] 1,2 [001]	10,1-11,4
thermo-optischer Koeff. dn/dT (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	8,9	9,1	8,5		(9)	107 (n <sub>o</sub> ) 42 (n <sub>e</sub> )	9
Ausdehnungskoeff. dL/dT (10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	9,6	8,6	8,5		(9,1)	6,7 [100] 16,3 [001]	7,7-8,2
max. Phononen- energie (cm <sup>-1</sup> )	672	618	597	621		911	857

**Tabelle 3.2:** Relevante Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien. Die spezifische Wärme, die Temperaturleitfähigkeit sowie die Wärmeleitfähigkeit sind für 20°C angegeben. Alle verwendeten Quellen sind im Anhang in Tab. C.1 aufgelistet. Die Angaben in Klammern bei LuScO<sub>3</sub> sind Mittelwerte aus Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

## 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

Die Verwendung eines Kristalls als aktives Medium in einem Laser stellt, neben hohen Ansprüchen an die mechanische und thermische Stabilität, auch höchste Anforderungen an dessen optische Qualität. So führen schon geringe kristallinterne Verluste, wie z. B. Streuung an Gitterdefekten oder Transfer der Anregungsenergie zu Verunreinigungen wie  $\text{Fe}^{2+}$  oder  $\text{Ni}^{2+}$ , zu einer Verringerung der Lasereffizienz. Etwaige Verspannungen, die schon bei der Herstellung des Kristalls, aber auch durch thermische Effekte im Laserbetrieb entstehen können, können spannungsinduzierte Doppelbrechung verursachen, die ebenfalls zu zusätzlichen Resonatorverlusten führen kann. Die optische Qualität der Kristalle wird dabei neben den thermo-mechanischen Eigenschaften des Kristallgitters zu einem großen Teil durch den Prozess der Kristallzüchtung bestimmt.

Im folgenden Kapitel werden gängige Verfahren erläutert, die für die Züchtung oxidischer Laserkristalle geeignet sind. Besonderes Augenmerk soll dabei auf die Sesquioxide gelegt werden, die aufgrund ihrer außergewöhnlich hohen Schmelzpunkte enorme Anforderungen an die Züchtungsprozesse stellen. Neben einer kurzen Beschreibung der verschiedenen Herstellungsmethoden, wird deren Eignung für die Hochtemperaturzüchtung diskutiert. Anschließend werden das im Rahmen der vorliegenden Arbeit für die Züchtung der hochschmelzenden Sesquioxide verwendete Verfahren der *Heat-Exchanger-Method* sowie die damit erzielten Ergebnisse im Detail vorgestellt.

### 4.1 Züchtungsverfahren

Wegen ihres hohen Schmelzpunktes von über  $2400^\circ\text{C}$  ist die Züchtung der Sesquioxide  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  mit hohen technologischen Anforderungen verbunden. Neben der erforderlichen Heizleistung müssen vor allem das Tiegel- und Isolationsmaterial eine hohe thermische und chemische Stabilität aufweisen, um im Bereich dieser Schmelztemperaturen eingesetzt werden zu können.

Diese Probleme können teilweise durch die Anwendung von Züchtungsverfahren umgangen werden, welche die Arbeitstemperaturen reduzieren oder den direkten Kontakt von Teilen der Züchtungsanlage mit der Schmelze vermeiden. Sowohl die Züchtung aus der Lösung als auch tiegelfreie Züchtungsverfahren wurden in der Vergangenheit untersucht. Erstere besitzen jedoch den Nachteil einer langen Züchtungsdauer und die Notwendigkeit geeigneter Lösungsmittel [Cha90]. Bei tiegelfreien Züchtungsverfahren wie dem *Verneuil*-, dem *Floating-Zone*-, bei Verwendung eines Lasers auch *Laser-Heated-Pedestal-Growth* genannt, oder dem *Skull-Melting-Verfahren* sind die Kristallgrößen bei Sesquioxiden in der Regel beschränkt und die Proben besitzen aufgrund prozessbedingter Einschlüsse und starker Verspannungen eine unbe-

## 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

friedigende Qualität [Bar57, Lef62, Kit77, Hub88].

Durch die Verwendung von tiegelbasierten Züchtungsverfahren können bei gleichzeitiger Verbesserung der Qualität in vielen Fällen deutlich größere Kristalle als bei den tiegelfreien Verfahren hergestellt werden. Dies ist vor allem auf die bessere Kontrolle der Kristallisationsbedingungen zurückzuführen. Um diese Verfahren einsetzen zu können, müssen Tiegel- und Isolationsmaterial den hohen Temperaturen mehrere Tage lang standhalten. Dazu müssen zum einen deren Schmelzpunkte deutlich über dem Schmelzpunkt des zu schmelzenden Oxids liegen. Zum anderen dürfen alle miteinander in Kontakt stehenden Elemente im Bereich des Tiegels weder chemisch miteinander reagieren, noch sollten sie eutektische Mischungen eingehen, die einen tieferen Schmelzpunkt als die Einzelsubstanzen besitzen.

Werden diese Anforderungen erfüllt, kann man auf weitverbreitete und langerprobte Züchtungsverfahren zurückgreifen. Dazu gehören das *Czochralski-* (Cz) und das *Nacken-Kyropoulos-Verfahren* (NK), das *Micro-Pulling-Down-Verfahren* ( $\mu$ -PD) sowie die Gradientenverfahren nach *Bridgman* und die *Heat-Exchanger-Method* (HEM).

### 4.1.1 Das Czochralski-Verfahren

Das Czochralski-Verfahren ist eines der für die Züchtung hochwertiger Kristalle am häufigsten verwendeten Züchtungsverfahren und wird unter anderem für die Herstellung von einkristallinen Halbleitern und optischen Materialien verwendet. So ist es unter anderem möglich, Silizium-Kristalle mit einem Durchmesser von bis zu 450 mm und einem Gewicht von mehreren 100 Kilogramm herzustellen [Mül07]. Aufgrund des sehr hohen Anteils an verwendbarem Kristallmaterial bei gleichzeitig sehr hoher optischer Qualität hat sich dieses Verfahren auch in der kommerziellen Herstellung von Laserkristallen etabliert.

Beim Cz-Verfahren, welches zu Beginn des 20. Jahrhunderts entwickelt wurde [Czo18], werden die Ausgangsmaterialien gemischt und in einen Tiegel gefüllt. Je nach Kristall und Schmelzpunkt werden Materialien verwendet, die auch bei hohen Temperaturen von geringer chemischer Reaktivität sind. Dazu gehören vor allem die Edelmetalle Platin und Iridium, aber auch Rhenium. In Abwesenheit von Sauerstoff, ist auch Kohlenstoff als Material mit dem höchsten Schmelzpunkt als Tiegelmateriale geeignet. Der Tiegel samt Isolation befindet sich in einer gasdichten Kammer, welche mit der Züchtungsatmosphäre befüllt wird. Die häufig aus verschiedenen Keramiken bestehende Isolierung hält dabei zum einen den Tiegel, zum anderen gewährleistet sie das für das Wachstum des Kristalls optimale Temperaturprofil (Abb. 4.1). Über eine wassergekühlte Spule, in deren Inneren sich der Aufbau befindet, wird der Tiegel induktiv beheizt. Nachdem der Tiegelinhalt vollständig aufgeschmolzen ist, wird die Schmelze leicht unterkühlt. Beim Eintauchen eines Ziehdrahts kommt es zur Kristallisation an diesem. Alternativ kann auch ein Impfkristall als Kristallisationskeim verwendet werden. Dieser hat den Vorteil, dass die Wachstumsrichtung und Orientierung vorgegeben wird.

Der Kristall wächst nun zunächst so lange weiter, bis sich ein thermisches Gleichgewicht zwischen Ziehdraht und Schmelze eingestellt hat. Durch langsames Herausziehen - einige Zehntel Millimeter bis einige Millimeter pro Stunde - wächst der Kristall in die Länge. Über die Steuerung der Heizleistung wird dabei der Durchmesser des Kristalls kontrolliert. Um Inhomogenitäten im radialsymmetrischen Temperaturprofil zu minimieren, rotiert der Kristall beim Herausziehen. Wird nur ein Ziehdraht verwendet, so wird zunächst der Durchmesser des Kristalls reduziert und ein sogenannter Flaschenhals gezogen. Dadurch wird eine Keimauswahl ge-



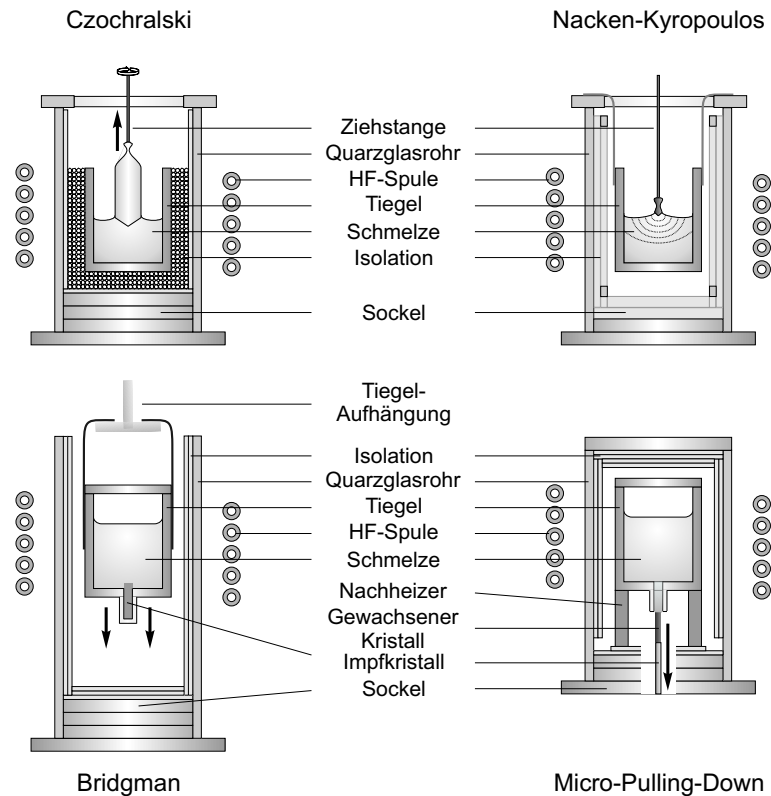


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung verschiedener tiegelbasierter Züchtungsverfahren.

treffen, um im Anschluss monokristallines Wachstum zu gewährleisten. Da bei diesem Verfahren kein Kontakt des Kristalls zu den Tiegelwänden besteht, weisen die Kristalle in der Regel kaum Verspannungen auf.

Versuche, die hochschmelzenden Sesquioxide mit Hilfe dieses Verfahrens aus Rheniumtiegeln herzustellen, wurden am Institut für Laser-Physik bereits zwischen 1996 und 1998 durchgeführt. Die resultierenden Dimensionen der kristallinen Proben betragen 5 - 15 mm im Durchmesser bei nur einigen Millimetern Länge [For99a]. Die Ursache für die geringe Größe der hergestellten Proben war in der Regel ein unkontrollierbares Wachstumsverhalten mit zunehmender Länge des Kristalls. Dies führte in den meisten Fällen ab einer Länge von etwa 5 mm zum Abschmelzen des Kristalls oder zum Ausbrechen der Wachstumsfront.

Anhand von Simulationen der thermischen Gradienten konnte dieses Verhalten qualitativ analysiert werden [For99a]. Das instabile Wachstumsverhalten der Sesquioxide während einer Czochralski-Züchtung ist demnach zum einen auf den bei sehr hohen Temperaturen vorwiegend durch Abstrahlung bestimmten Wärmetransport sowie der starken Absorption durch Farbzentren zurückzuführen. Bei gleichzeitig hoher Emissivität der Kristalle führt dies mit zunehmender Länge dieser zu einer abnehmenden Wärmeabfuhr von der Grenzfläche zwischen Kristall und Schmelze, während sich im Bereich der restlichen Schmelzoberfläche eine kühlere Zone bildet. Die dabei entstehende W-förmige Temperaturverteilung an der Schmelzoberfläche führt nach kurzer Zeit zum Ausbrechen der Wachstumsfront oder Abschmelzen des Kristalls. Versuche, das Ausbrechen der Wachstumsfront durch weitere Optimierung der Isolation zu verhindern, lieferten bisher keine befriedigenden Ergebnisse.

## 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

Das Züchtungsverfahren nach Czochralski ist daher nur bedingt für die Züchtung hochschmelzender Sesquioxide geeignet.

### 4.1.2 Das Nacken-Kyropoulos-Verfahren

Eine deutliche Verbesserung der erzielbaren Kristallgröße konnte durch Kristallzüchtung nach dem Nacken-Kyropoulos-Verfahren erreicht werden [Mix99]. Bei diesem Verfahren wird analog zur vorher beschriebenen Methode zunächst der Animpfprozess durchgeführt. Nachdem der Kristall einige Millimeter in die Länge gewachsen ist, wird der Hub und die Rotation gestoppt (s. Abb. 4.1). Während der Kristall weiterhin in Kontakt mit der Schmelze steht, wird die Heizleistung langsam reduziert. Der Kristall an der Schmelzoberfläche wirkt nun wie ein Wachstumskeim für die weitere Kristallisation der Schmelze. Durch Reduktion der Heizleistung kommt es anschließend zum langsamen Wachsen des Kristalls in die Schmelze hinein.

Ein Nachteil dieses Verfahrens ist, dass es aufgrund der starken Abstrahlung der Schmelzoberfläche zu parasitären Kristallisationen kommen kann. Dies erhöht die Wahrscheinlichkeit mehrerer Einkristalle im Volumen und reduziert somit die Größe der einkristallinen Bereiche. Auch eine vom Tiegelboden ausgehende Kristallisation kann nicht ausgeschlossen werden. Nachteilig können sich auch stark voneinander unterscheidende Ausdehnungskoeffizienten von Tiegel- und Kristallmaterial auswirken. Da es keine Ausweichmöglichkeit für die erstarrte Schmelze während des Abkühlens gibt, kommt es häufig zu Verspannungen und Rissen im Material.

Trotz dieser Einschränkungen, konnten mit diesem Verfahren in der Vergangenheit ähnlich große, aber qualitativ hochwertigere Sesquioxid-Kristalle als mit der zuvor beschriebenen Czochralski-Methode gezüchtet werden [Pet00].

Aufgrund der vorhandenen Kristallzüchtungsanlagen, der relativ geringen Herstellungsdauer sowie der geringeren Menge an benötigtem Rohmaterial durch Verwendung von 20 mm-Rheniumtiegeln wurden im Rahmen der Diplomarbeiten von Nies und Koopmann [Nie08, Koo08] mehrere Sesquioxid-Proben unterschiedlicher Dotierung nach diesem Verfahren hergestellt. Eine Beurteilung der Qualität der Kristalle wird anhand ihrer spektroskopischen Eigenschaften in den Abschnitten 4.2.6 und 5.2.2 am Beispiel eines  $\text{Yb}(5 \text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$ - sowie eines  $\text{Tm}(1 \text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Kristalls vorgenommen.

### 4.1.3 Das Bridgman-Verfahren

In der Ausgangskonfiguration ähnelt der Aufbau beim Bridgman-Verfahren dem Aufbau der beiden bisher beschriebenen Züchtungsmethoden. Im Gegensatz zu diesen wird die Bridgman-Züchtung jedoch im geschlossenen Tiegel durchgeführt (vgl. Abb. 4.1), wodurch der Wärmeverlust durch direkte Abstrahlung von der Schmelzoberfläche deutlich reduziert wird. Am Boden des Tiegels befindet sich ein Impfkristall. Nach Aufschmelzen des Rohmaterials wird der Tiegel über eine Aufhängevorrichtung langsam nach unten aus der HF-Spule herausbewegt, wodurch ein nach oben gerichteter Temperaturgradient entsteht. Zur vollständigen Kristallisation der Schmelze wird anschließend langsam die Heizleistung des Generators reduziert.

Mit Hilfe dieses Verfahrens konnten in der Vergangenheit Kristalle mit 18 mm Durchmesser und etwa 10 mm Höhe mit einkristallinen Bereichen von etwa einem halben Kubikzentimeter hergestellt werden [Pet02a]. Aufgrund der hohen Anfälligkeit für parasitäre Keimbildung am

Tiegelboden, dem Mangel einer Hubvorrichtung für den Tiegel sowie der besseren Züchtungsergebnisse nach dem HEM-Verfahren wurde diese Züchtungsmethode nicht weiter verwendet.

#### 4.1.4 Die Micro-Pulling-Down-Methode

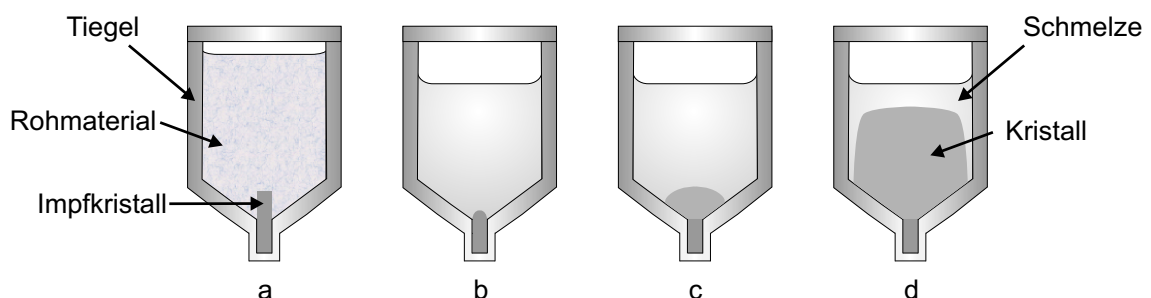
Ein weiteres, in den vergangenen Jahren zunehmend zur Herstellung von hochschmelzenden Oxiden verwendetes Züchtungsverfahren, ist die Micro-Pulling-Down-Methode. Bei diesem Verfahren wird ein Tiegel benutzt, welcher am Boden einen Fortsatz mit Öffnung besitzt (vgl. Abb. 4.1). Je nach Form und Viskosität des herzustellenden Materials können Öffnungen von typischerweise 0,5 bis zu einigen Millimetern verwendet werden. Bei Kontakt mit einem Impfkristall oder Impfdraht beginnt die durch die Oberflächenspannung gehaltene Schmelze an diesem auszukristallisieren. Durch Absenken des Impflings wächst der Kristall in die Länge [Yoo94].

Aufgrund der Geometrie des Tiegels, ist es bei diesem Verfahren möglich, kleine einkristalline Proben bei äußerst geringem Materialaufwand herzustellen. Durch die hohen Ziehgeschwindigkeiten von 0,01 - 1 mm/min werden zudem äußerst geringe Züchtungsdauern erreicht.

Mit Hilfe dieses Verfahrens konnten neben Materialien wie den Aluminaten, Silikaten und Fluoriden [Yoo94, Yos07] auch die hochschmelzenden Sesquioxide  $Y_2O_3$  und  $Sc_2O_3$  erfolgreich hergestellt werden [Mun07, Sim07]. Die Yb-dotierten Proben mit etwa 5 mm Durchmesser und 10 mm Länge zeigten dabei, bis auf eine geringfügig verkürzte Fluoreszenzlebensdauer, vergleichbare spektroskopische Eigenschaften wie die am Institut für Laser-Physik mittels NK- und HEM-Verfahren hergestellten Kristalle.

#### 4.1.5 Das HEM-Verfahren

Das HEM-Verfahren basiert, ähnlich dem Bridgman-Verfahren, auf einem am Tiegelboden befindlichen Impfkristall, welcher als Kristallisationskeim das Wachstum in die Schmelze vorgibt [Sch70b, Sch73]. Im Gegensatz zum Bridgman-Verfahren wird hier der Temperaturgradient jedoch nicht durch eine Translation des Tiegels aus der Spule, sondern durch Kühlen des Tiegelbodens mittels eines kontinuierlichen Gasstroms erreicht. Die punktuelle Wärmeabfuhr sorgt dabei für nahezu halbsphärische Isothermen in der Schmelze [Lu01].



**Abbildung 4.2:** Schematische Darstellung des Kristallisationsprozesses während einer HEM-Züchtung. a) Rohmaterial und Impfling befinden sich im Ausgangszustand; b) Aufschmelzen des Rohmaterials und partielles Abschmelzen des Impfkristalls; c) Erhöhen des Gasflusses. Ab diesem Zeitpunkt erfolgt die Kristallisation der Schmelze vom Impfling aus; d) bei Erreichen des maximalen Gasflusses nahezu komplett auskristallisierte Schmelze, an diesem Punkt wird die Generatorleistung langsam reduziert.

## 4 Kristallzucht hochschmelzender Oxide

Nachdem der Tiegelinhalt aufgeschmolzen ist, wird der Gasstrom bei konstanter Heizleistung langsam verstärkt. Durch den zunehmenden Temperaturgradienten wächst der Kristall in die Schmelze hinein. Ein Kontakt mit den heißen Tiegelwänden bleibt zunächst aus (vgl. Abb. 4.2). Nach dem Erreichen des maximalen Gasstroms wird die Generatorleistung verringert und eine vollständige Kristallisation der Schmelze erfolgt.

Im Gegensatz zum Bridgman-Verfahren kommt es durch den späten Kontakt mit den Tiegelwänden zu deutlich weniger Spannungen im Kristall. Bei bisher nach diesem Verfahren gezüchteten Sesquioxid-Kristallen konnten einkristalline Bereiche von einigen Kubikzentimetern hergestellt werden [Pet02b].

In der Industrie wird dieses Verfahren unter anderem für die Herstellung von qualitativ hochwertigen Saphir-Kristallen mit Durchmessern von bis zu 35 cm bei einem Gewicht von bis zu 65 kg verwendet [Kha01]. Eine weitere Anwendung stellt die Züchtung von polykristallinem Silizium dar. In industrieller Fertigung können so Si-Kristalle mit einer Masse von 200 kg in hoher Qualität innerhalb weniger Tage hergestellt werden [Sys08].

Aufgrund der erreichbaren Größe der Einkristalle und den relativ geringen Verspannungen, hat sich das HEM-Verfahren als die für die Herstellung von hochschmelzenden Sesquioxiden am besten geeignete Züchtungsmethode bewährt, und wurde daher im Rahmen der vorliegenden Arbeit fast ausschließlich verwendet.

### 4.1.6 Sesquioxid-Keramiken

Als Alternative zur Kristallzuchtung aus der Schmelze wurde die Herstellung von transparenten keramischen Lasermaterialien seit einigen Jahrzehnten untersucht. Neben der prinzipiellen Möglichkeit, Keramiken in jeder beliebigen Form und Größe herzustellen, liegen auch die Herstellungsdauer und -kosten in der Regel unter denen der konventionellen Züchtungsverfahren [Ike06].

Bereits 1964 gelang es Hatch et al. mit  $\text{Dy}^{2+}:\text{CaF}_2$  erstmals Lasertätigkeit eines keramischen Mediums zu zeigen [Hat64]. Einige Jahre später demonstrierten Gresovich et al. einen blitzlampengepumpten Laser basierend auf einer  $\text{Nd}:\text{Y}_2\text{O}_3$ -Keramik [Gre73]. Im Falle von Nd- und Yb-dotiertem YAG erreichen heutige Keramiken im Laserbetrieb ähnlich hohe Effizienzen im Vergleich zu den mit herkömmlichen Züchtungsverfahren hergestellten Kristallen [Ike95a, Ike95b, Lu02, Tak03].

Eines der momentan gängigsten Verfahren zur Herstellung dieser Laserkeramiken ist die sogenannte *vacuum sintering and nanocrystallin technology (VSN) method* [Yan98a, Yan98b, Yag04], welche unter anderem zur Herstellung von YAG eingesetzt wird. In dessen Fall werden zunächst wässrige Lösungen von Al-, Y- sowie Seltenerd-Chloriden mit einer wässrigen Lösung aus Ammoniumbicarbonat ( $\text{NH}_4\text{HCO}_3$ ) oder Ammoniumsulfat ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ) vermischt. Anschließend wird das Gemisch mehrfach filtriert und mit hochreinem Wasser gereinigt, bevor es zwei Tage lang bei etwa 200°C getrocknet wird. Der dadurch entstandene Rohling, welcher Partikel mit einer Größe von etwa 10 nm enthält, wird für einige Stunden auf 1000°C - 1200°C erhitzt, um pulverförmiges, oxidisches Rohmaterial mit einer Partikelgröße von etwa 200 nm zu erzeugen. Dieses wird anschließend zusammen mit Lösungs-, Binde- und Dispersionsmitteln 20 h lang gemahlen. Der entstandene Brei wird in eine Form gefüllt und einige Tage lang getrocknet. Nachdem alle organischen Bestandteile mittels Calcinieren entfernt wurden, wird das Material im Vakuum für 10 h - 20 h bei etwa 1750°C gesintert [Yag07]. Die Porosität des

transparenten Endprodukts liegt im ppm-Bereich, die Dicke der Korngrenzen beträgt weniger als 1 nm [Kam07].

Die Entwicklung spezieller Verfahren zur Herstellung von hochtransparenten Keramiken ermöglicht aber auch die Nutzung von Lasermaterialien, welche mit konventionellen Züchtungsverfahren gar nicht oder nur unter sehr großen Schwierigkeiten herzustellen sind. Insbesondere für die hochschmelzenden Sesquioxide ergeben sich dadurch Vorteile, da die Prozesstemperaturen für diese Materialien etwa 700°C unter dem Schmelzpunkt liegen [Kam07]. Probleme mit dem Tiegelmaterial oder der Isolation, welche bei herkömmlichen Züchtungsverfahren durch die hohen Schmelzpunkte der Sesquioxide verursacht werden, können so weitestgehend umgangen werden.

Einzig die bisher in Laserexperimenten erzielten Resultate verhindern momentan den breiten Einsatz von keramischen Sesquioxiden (vgl. Kap. 3.6). Mittelfristig werden sich jedoch vermutlich auch hochqualitative Sesquioxid-Keramiken herstellen lassen.

## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren

### 4.2.1 Beschreibung der Züchtungsanlage

Für die Kristallzüchtung nach dem HEM-Verfahren stand eine Züchtungsanlage der Firma Crystalox mit einem Hüttinger-HF-Generator zur Verfügung. Dieser erreichte bei einer Arbeitsfrequenz von 200 - 400 kHz eine Nennleistung von 36 kW. Die für die Hochtemperaturexperimente benutzte Spule hatte einen Innendurchmesser von 110 mm und 7 Windungen. Durch den nötigen Isolationsaufbau (Kap. 4.2.3) beträgt der maximal verwendbare Tiegeldurchmesser etwa 45 mm.

Die Verwendung größerer Tiegel bringt einige Vorteile in Bezug auf das Kristallwachstum mit sich. Durch das größere Volumen-zu-Oberflächen-Verhältnis wird eine geringere Leistung benötigt, um die nötige Zuchttemperatur zu erreichen. Zudem sind die Temperaturgradienten während der Züchtung homogener und die thermischen Spannungen im Kristall dadurch geringer. Durch das große Volumen steigt zudem die Wahrscheinlichkeit für größere einkristalline Bereiche. Nachteilig sind allerdings die höheren Kosten für die Rohmaterialien und den größeren Isolationsaufbau. Bei der verwendeten Kristallzüchtungsanlage handelt es sich um ein ursprünglich für das Czochralski-Verfahren ausgelegtes System, das um einen geschlossenen

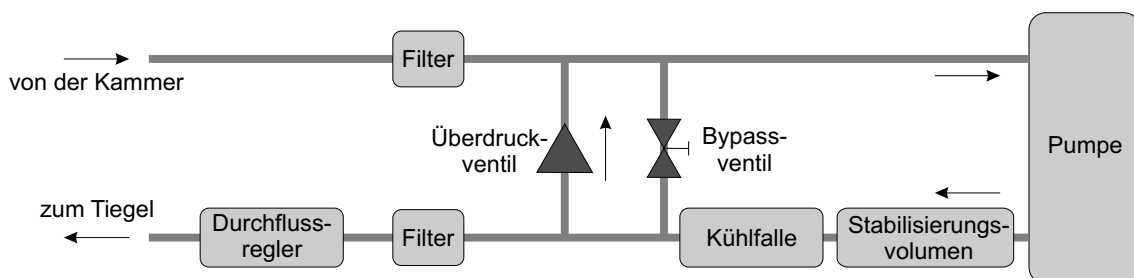


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Pumpenkreislaufs des HEM-Systems nach [Pet01].

#### 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

Pumpkreislauf erweitert wurde (Abb. 4.3). Mit diesem wird ein Teil des in der Kammer befindlichen Gasgemisches abgepumpt und dem System anschließend über eine Düse, welche am Boden des Tiegels anliegt, wieder zugeführt. Hierzu wurde eine ölfreie Membranpumpe des Typs N1200ANE der Marke KNF-Neuberger mit einem maximalen Durchfluss von 150 l/min bei einem maximalen Arbeitsdruck von 6 bar verwendet. Zwischen Pumpe und Durchflussregler befindet sich zusätzlich ein Ausgleichsbehälter, um den ungleichmäßigen Gasausstoß der Pumpe zu glätten. Da die verwendete Membranpumpe nicht gegen hohen Druck anlaufen kann, ist ein Bypass-Ventil vom Regler zurück in die Pumpe notwendig, welches nach Erreichen der Arbeitsgeschwindigkeit der Pumpe geschlossen wird. Überschüssiges Gas, das den Durchflussregler nicht passieren kann, wird über ein Überdruckventil zurück in den Pumpenkreislauf geführt. Um die Temperatur des während der Kompression in der Pumpe aufgeheizten Gasstroms zu verringern, wurde hinter dem Ausgleichsbehälter eine Kühlfalle integriert, in der das heiße Gas einen Teil seiner Wärme an wasserdurchflossene Kühlrippen abgibt. Zudem wurden Partikelfilter in den Kreislauf eingebracht, um Beschädigungen der Membranpumpe durch Staub aus z. B. den Isolationsmatten zu verhindern.

Die Kontrolle des Gasflusses erfolgte über einen Durchflussregler des Typs MFC D07-9E der Marke Sevenstar. Das für ein Gasgemisch aus 15% H<sub>2</sub> / 85% N<sub>2</sub> spezifizierte Gerät konnte in einem Bereich von 0 bis 50 l/min betrieben werden.

Die Messung des Sauerstoffpartialdrucks erfolgte mittels einer Sauerstoffsonde der Marke ZIROX (Typ: SS27.2VH11-80/88). Die auf einem potentiometrischen ZrO<sub>2</sub>-Sensor basierende Sonde arbeitet bei einer Sensortemperatur von 700°C. Der angegebene Dynamikbereich für die Messung des Sauerstoffpartialdrucks bei 1 bar Gesamtdruck beträgt laut Herstellerangaben  $10^{-38} \leq p(\text{O}_2) \leq 10^2$  mbar [Zir08]. Bei starkem Unterdruck kann es aufgrund der nicht dafür ausgelegten Dichtungen zum Eindringen von Umgebungsluft in die Keramik-Sonde kommen, sodass in diesen Fällen die Verlässlichkeit der Messwerte in Frage gestellt werden muss.

#### 4.2.2 Die verwendeten Tiegel

Aufgrund der hohen Schmelzpunkte der Sesquioxide kommen nur wenige Materialien für die Tiegelnutzung in Frage. Neben Rhenium mit einem Schmelzpunkt von  $T_m = 3186^\circ\text{C}$ , bieten nur Wolfram ( $T_m = 3422^\circ\text{C}$ ), Osmium ( $T_m = 3033^\circ\text{C}$ ), Tantal ( $T_m = 3020^\circ\text{C}$ ) und Kohlenstoff ( $T_{sbl} = 4000^\circ\text{C}$ ) ausreichend hohe Schmelzpunkte für die Hochtemperaturzüchtung [Kit89]. Die Verwendung des giftigen Osmiums sowie Tantal, welches eine zunehmende Reaktivität mit steigender Temperatur zeigt, ist dabei aus praktischen Gründen nahezu ausgeschlossen. Bei Versuchen im Rahmen verschiedener am ILP durchgeführter Arbeiten zeigte sich zudem, dass Tiegel aus Glaskohle stark von den oxidischen Schmelzen der Sesquioxide angegriffen werden und deshalb nicht für die Züchtung geeignet sind [Mix99, For99a]. Züchtungsversuche unter Verwendung von Wolframtiegeln resultierten in allen Fällen in einer irreversiblen, dunkelgrünen Verfärbung der Kristalle, welche auf eine hohe Löslichkeit des Wolframs in der Schmelze zurückzuführen ist.

Im Gegensatz dazu ist Rhenium, trotz der hohen Empfindlichkeit gegenüber einer oxidierenden Atmosphäre, der Schmelze gegenüber praktisch inert, d.h. es ist nahezu unlöslich in Schmelzen der Sesquioxide und wird auch nicht von diesen angegriffen. Zudem treten keine Reaktionen mit N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> sowie sämtlichen Edelgasen auf. Durch die Beständigkeit gegen Salz-

## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren

Tiegel	Herstellungsweise	Dichte [%]	∅-Innen	Wandstärke [mm]	Höhe	∅-Impfling	Konuswinkel [°]
1	pulvermetal.	95	41	2,0	50	10	0
2	galvanisch	100	42	2,5	49	8	25
3	pulvermetal.	77	46	2,0	42	8	32

**Tabelle 4.1:** Auflistung der verwendeten Rheniumtiegel. Die Höhe bezieht sich dabei auf den zylindrischen Anteil des Tiegels im Falle einer konischen Bodenform.

und Phosphorsäure können Re-Tiegel außerdem leicht im Säurebad von Schmelzenresten befreit werden.

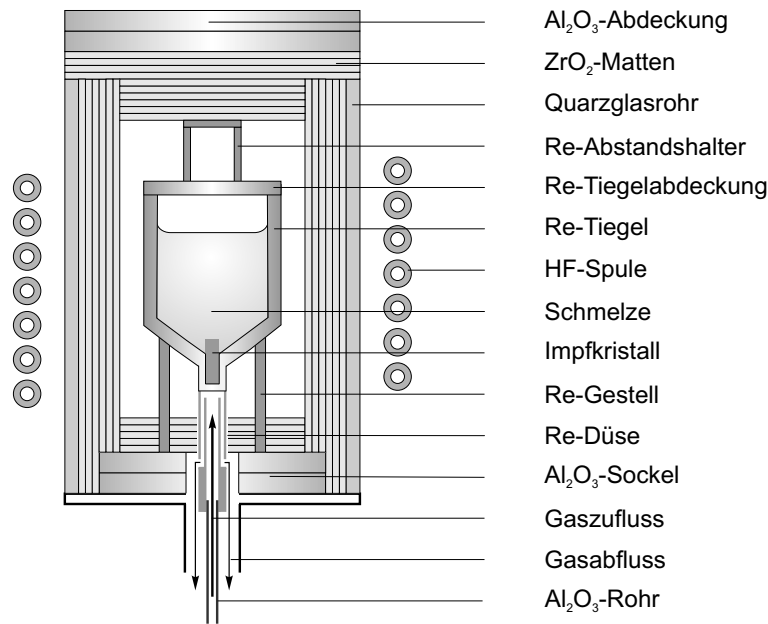
Rheniumtiegel werden seit einiger Zeit kommerziell in guter Qualität angeboten. Nachteilig ist vor allem die schwierige Bearbeitung aufgrund der hohen Härte des Edelmetalls. Das Trennen und Bohren großer Werkstücke kann nur durch Diamant-Trennscheiben bzw. Erodieren erfolgen. Schweißen ist wegen starker Oxidation ausschließlich unter Schutzgasatmosphäre möglich. Wegen der Schwierigkeiten bei der mechanischen Bearbeitung von Rhenium-Werkstücken erfolgt die Herstellung von Tiegeln aus diesem Material in der Regel ausschließlich auf pulvermetallurgischem oder galvanischem Wege.

Beim galvanischen Herstellungsprozess kann eine Tiegeldichte von nahezu 100% erreicht werden. Nachteilig kann sich vor allem der durch die Elektrolyte Kalium- und Cäsiumrhenat verursachte höhere Grad an Verunreinigungen auswirken, welcher laut Hersteller bei 1 - 10% liegt. Insbesondere Kalium wurde als effektives Quenchzentrum für  $\text{Yb}^{3+}$  identifiziert [Mar02]. Eine Verminderung dieser Verunreinigungen kann durch mehrere Reinigungszuchten bzw. Tempern des Tiegels erfolgen, wobei ein Teil des Kaliums verdampft und so langsam aus den Tiegeln entweicht. In Bereichen, in denen das Gas nicht sofort entweichen kann, kommt es dadurch zum Teil zu blasenförmigen Erhebungen der Oberfläche.

Bei der pulvermetallurgischen Herstellung wird pulverförmiges Rhenium unter hohem, isostatischem Druck in Rohlinge gepresst. Anschließend erfolgt ein Sinterprozess bei etwa 2500°C für mehrere Stunden [Lup97]. Die dabei erreichte Dichte beträgt in der Regel mehr als 90% der Dichte des eigentlichen Metalls und kann durch weitere Sinterschritte erhöht werden. Die Tiegelreinheit wird mit 5 N - 6 N angegeben [Her98]. Durch die höhere Anzahl von Korngrenzen sind pulvermetallurgisch hergestellte Tiegel im Vergleich zu galvanischen Tiegeln länger formstabil. Aufgrund der höheren Reinheit des Rohmaterials, verbunden mit einem größeren Herstellungsaufwand, liegen die Preise für nach dieser Herstellungsmethode gefertigte Tiegel in der Regel über denen der galvanischen.

Für die Züchtungsexperimente standen verschiedene Rheniumtiegel zur Verfügung (Tab. 4.1). Zunächst wurden alle Yb-dotierten Proben ausschließlich aus dem pulvermetallurgisch hergestellten 41 mm-Tiegel mit planem Boden und Wurmfortsatz gezüchtet, um Einflüsse durch Verunreinigungen auszuschließen. Anschließend wurden verschiedene undotierte und dotierte Proben mit dem galvanisch hergestellten Tiegel mit konischem Boden hergestellt. Die Qualität der Kristalle wurde mittels verschiedener spektroskopischer Verfahren sowie Laserexperimenten untersucht und mit den Züchtergebnissen aus dem pulvermetallurgischen Tiegel verglichen. Gleichzeitig konnte der Einfluss der unterschiedlichen Bodenformen auf das Wachstumsverhalten der Kristalle untersucht werden. Als weiterer Optimierungsschritt wurden Züchtungsversu-

## 4 Kristallzuchtung hochschmelzender Oxide



**Abbildung 4.4:** Schematische Darstellung des Aufbaus für die HEM-Züchtung mit konischem Tiegel.

che in einem pulvermetallurgischen Tiegel mit konischem Boden durchgeführt. Diese blieben jedoch erfolglos, da sich der Tiegel aufgrund einer zu geringen Dichte von nur 77% während der Züchtungsexperimente als stark porös erwies. In die Tiegelwände eindringende Schmelze führte letztendlich zum Abplatzen mehrerer millimetergroßer Schollen von den Außenseiten des Tiegels, sodass dieser nicht weiter eingesetzt werden konnte.

### 4.2.3 Der Isolationsaufbau

Um die Wärmeverluste durch Abstrahlung gering zu halten, erfordert die Züchtung der Sesquioxide eine effiziente thermische Isolation, die auch bei hohen Temperaturen den Anforderungen standhält.

Nach umfangreichen, systematischen Untersuchungen von Isolationsmaterialien im Rahmen der Doktorarbeit von L. Fornasiero [For99a] sowie erster HEM-Züchtungsexperimente von E. Mix und V. Peters [Mix99, Pet01] stand ein erprobter Isolationsaufbau für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Züchtungsversuche zur Verfügung. Dieser besteht neben einem zur Stabilisation verwendeten Quarzglasrohr hauptsächlich aus Yttrium-stabilisierten, 2,5 mm dicken, keramischen Zirkonoxid-Fasermatten (Typ ZF-100) der Firma Zircar Zirconia, sowie einigen 10 mm dicken Aluminiumoxid-Keramikscheiben (vgl. Abb. 4.4).

Die Faserstruktur der ZrO<sub>2</sub>-Matten ist nur bis etwa 2480°C stabil [Zir09]. Oberhalb dieser Temperatur kommt es zum Versintern und Anschmelzen der Matten und damit zu einer drastischen Verminderung der Isolationsfähigkeit. Der direkte Kontakt mit dem Tiegel muss demnach vermieden werden.

Der mit einem Deckel verschlossene Tiegel ist auf einem Ständer aus verschweißten Rheniumstäben gelagert. Auf dem Deckel befindet sich als Abstandshalter ein weiterer Rheniumständer, auf welchem 8 - 10 Lagen der Zirkonoxid-Matten sowie abschließend zwei keramische



## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren

Aluminiumoxid-Scheiben platziert sind. Die zur seitlichen Isolation notwendigen Matten werden unter leichtem Druck in insgesamt 6 Lagen in den Quarzglaszylinder eingebracht und, um das Schrumpfen während der Züchtung zu verringern, mit einigen Dehnungsschlitzern versehen. Der Abstand der inneren Matte zum Tiegel beträgt vor Beginn der Züchtung je nach Tiegeldurchmesser 5 - 10 mm.

Für die Bodenisolation werden 4 - 5 Matten auf zwei Aluminiumoxid-Scheiben platziert. Diese haben passgenaue Aussparungen für den Rheniumständer. Ebenfalls zeigt sich, dass die Fasermatten eng an der Düse anliegen sollten, da ansonsten ein Teil des Kühlgases an den Tiegelwänden entlang nach oben strömt. Dies führt zur Veränderung der thermischen Gradienten im Tiegel, wodurch vermehrt parasitäres Wachstum am Tiegelboden oder an der Schmelzoberfläche auftreten kann.

Mit dem beschriebenen Aufbau wird eine nahezu isotherme Temperaturverteilung im Tiegel erreicht. Ein weiterer Vorteil der komplett geschlossenen Isolation im Vergleich zum Czochralski- oder Bridgman-Aufbau ist die deutliche Reduktion der für das Erreichen der Schmelztemperatur benötigten Heizleistung um etwa 30% [Pet01].

Eine Kontrolle der Tiegeltemperatur während der Züchtung mittels eines Pyrometers erfolgte lediglich bei den ersten vier Züchtungen (1, 2, 3 und 5 at.% Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, siehe Tab. 4.3). Dazu wurden in alle auf dem Tiegeldeckel aufliegenden Matten ein etwa 12 mm großes Loch gestanzt. Ebenso besaß der verwendete Deckel ein durch Erodieren eingebrachtes Loch mit etwa 7 mm Durchmesser. Die pyrometrisch ermittelte Temperatur stimmte in der Regel recht gut mit der tatsächlich im Tiegel vorherrschenden Temperatur, welche anhand des Aufschmelzpunktes des Rohmaterials bestimmt wurde, überein. Ein Nachteil des nicht vollständig geschlossenen Tiegeldeckels war allerdings der Eintrag von Verunreinigungen, vor allem in Form von Staub aus den Zirkonoxid-Matten. In einigen Fällen wurde eine Keimbildung mit anschließend nach unten gerichtetem Wachstum direkt unter der Deckelöffnung festgestellt. Um die anfänglich hohe Reinheit der Rohmaterialien zu erhalten sowie die Temperaturverhältnisse an der Schmelzoberfläche zu homogenisieren, wurde in den darauffolgenden Züchtungen ausschließlich ein komplett geschlossener Aufbau verwendet.

Trotz des relativ großen Abstands zwischen Tiegelmantel und Isolierung, kam es in allen Fällen zu einer starken Kontraktion und zum Verkleben der seitlichen Matten miteinander. Bei Kontakt mit den Tiegelwänden folgte dabei, je nach Sauerstoffpartialdruck in der Kammer, eine unterschiedlich starke Oxidation des Rheniums, welche sich in einem Abtrag des Tiegelmaterials sowie in einer schwachen bis starken Graufärbung der Zirkonoxid-Matten äußerte. Eine zusätzliche Stabilisierung mit z. B. Zirkonoxid-Zylindern ist aufgrund einer starken Einkopplung der HF-Leistung in diese nicht möglich [Mix99]. Die für die seitliche Isolierung verwendeten Matten mussten daher für jede Züchtung neu hergestellt werden.

### 4.2.4 Die Züchtungsatmosphäre

Aufgrund der hohen Empfindlichkeit des Rheniums gegenüber Sauerstoff bei den in den Züchtungen auftretenden Temperaturen muss eine reduzierende Züchtungsatmosphäre verwendet werden. Hierfür hat sich in der Vergangenheit unter anderem die Kombination aus Edelgasen wie Argon oder Helium mit einem Anteil von 10% Wasserstoff bewährt. Dabei muss allerdings unter einem Druck von einigen bar gearbeitet werden, um elektrische Überschläge zwischen Spule und Tiegel zu vermeiden. Da dies jedoch mit der verwendeten Kristallzüchtungsanlage

#### 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

der Firma Crystalox nur bedingt möglich ist, hat sich ein Gasgemisch aus Stickstoff und einem 5 - 15 prozentigen Anteil Wasserstoff als besser geeignet erwiesen.

Der Wasserstoff bindet den aufgrund der unvollständigen Evakuierung und Abspaltung aus Isolierung und Schmelze in der Züchtungsatmosphäre vorhandenen Restsauerstoff.

Um im Fall von Unterdruck in der abgeschlossenen Kammer, welcher z. B. durch ein Leck im Pumpenkreislauf verursacht werden kann, das Eindringen von Sauerstoff in diese zu verhindern und damit den Tiegel vor Oxidation zu schützen, wurde das System mit einer Interlockschaltung gekoppelt, welche im Fall von Drücken kleiner 1 bar die HEM-Pumpe deaktiviert. Die Züchtungen wurden daher in allen Fällen mit einem leichten Überdruck von 1,2 bar - 1,3 bar durchgeführt. Aufgrund dessen war kein ständiger Durchfluss der Atmosphäre möglich, was in einer für jede Züchtung leicht unterschiedlichen Zusammensetzung des Gasgemischs resultierte. Um die Unsicherheit durch den beim Evakuieren nicht vollständig entfernten Sauerstoff weiter zu minimieren, wurde die Kammer vor Züchtungen, welche im späteren Verlauf dieser Arbeit durchgeführt wurden, einmal zusätzlich mit dem Gasgemisch gespült. Dies hatte eine deutlich verbesserte Reproduzierbarkeit der Ausgangsatmosphäre bei gleichzeitiger Reduktion des Sauerstoffpartialdrucks zur Folge.

Um den Einfluss der Züchtungsatmosphäre auf die Eigenschaften der hergestellten Kristalle abzuschätzen und mit den Experimenten zu vergleichen, wurden Berechnungen von Phasendiagrammen von D. Klimm vom Institut für Kristallzüchtung (IKZ) Berlin mit dem Simulationsprogramm FactSage durchgeführt [Kli08]. Als Ausgangsparameter der Rechnungen wurde dabei eine Atmosphäre bestehend aus 85% N<sub>2</sub> und 15% H<sub>2</sub> mit einer Sauerstoffkonzentration zwischen 0,1% und 0,0001% angenommen. Die Ergebnisse der Simulationen sollen am Beispiel von Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> schematisch erläutert werden (vgl. Abb. 4.5). Die Phasendiagramme von Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und ZrO<sub>2</sub> sind zur Vollständigkeit in Anhang A dargestellt.

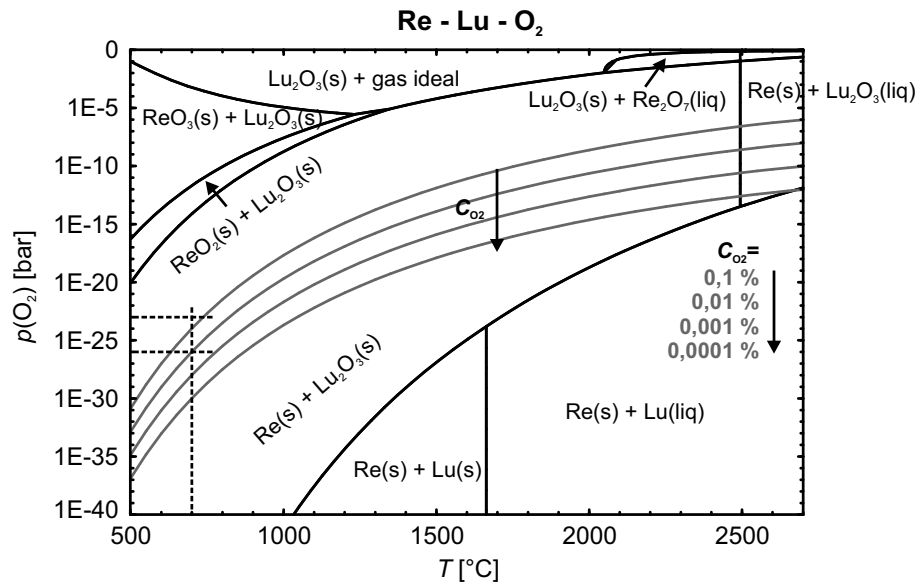
Aufgrund der hohen chemischen Affinität zwischen Sauerstoff und Wasserstoff wird bei kleinen Temperaturen ein Großteil des in der Kammer vorhandenen Sauerstoffs in Form von Wasserdampf gebunden. Bei dem verwendeten Gasgemisch ergeben sich so beispielsweise Sauerstoffpartialdrücke von unter 10<sup>-30</sup> bar bei 500°C. Mit steigender Temperatur dissoziiert der Wasserdampf zunehmend zu Wasserstoff und Sauerstoff und der Sauerstoffpartialdruck steigt an. Da sich hierbei jeweils leicht unterschiedliche Kurven für molekularen und atomaren Sauerstoff ergeben, sind zusätzlich die Kurven für atomaren Sauerstoff im Anhang A dargestellt.

Da der Anstieg des Sauerstoffpartialdrucks ungleich dem Anstieg aller anderen Phasengrenzen ist, kann es prinzipiell zu Annäherungen oder Überschneidungen kommen. Im Falle eines zu hohen Sauerstoffanteils in der Atmosphäre bilden sich in gewissen Temperaturbereichen die Rhenium-Oxide ReO<sub>2</sub>, ReO<sub>3</sub> oder Re<sub>2</sub>O<sub>7</sub>. Bei zu niedrigem Sauerstoffpartialdruck hingegen würde Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> zu metallischem Lutetium reduziert werden und eventuell mit dem Tiegelmaterial legieren.

Es existiert jedoch ein relativ großer Partialdruckbereich, in dem die Züchtung ohne starke Oxidation von Rhenium oder Dissoziation von Lutetiumoxid möglich ist. Zudem verlaufen die Kurven für den Sauerstoffpartialdruck nahezu parallel zu den Phasengrenzen, was die Anforderungen an die Züchtungsatmosphäre deutlich verringert.

Um einen Vergleich zwischen den durch die Sauerstoffsonde gemessenen und den aus den Phasendiagrammen berechneten Werten für den Sauerstoffpartialdruck durchzuführen, wurde dieser bei einer bekannten Atmosphäre gemessen. Dazu wurde der Kessel einige Stunden mit einem 10% H<sub>2</sub> / 90% N<sub>2</sub> Gasgemisch, dem zusätzlich 0,5% O<sub>2</sub> beigemischt wurde, gespült. Der

## 4.2 Kristallzucht von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.5:** Phasendiagramm von Re-Lu-O<sub>2</sub> bei einer Atmosphäre bestehend aus 85% N<sub>2</sub> / 15% H<sub>2</sub> sowie verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen. Die in den Zuchtversuchen gemessenen Sauerstoffpartialdrücke sind als gestrichelte Linien dargestellt. Der Verlauf des Sauerstoffpartialdrucks für unterschiedliche Ausgangsmengen Sauerstoff im Gasmisch ist in grau dargestellt. Die Berechnungen gelten für den Idealfall eines komplett im thermodynamischen Gleichgewicht stehenden Gasmisches. Da es in der Realität zu thermischen Gradienten zwischen dem heißen Tiegel und den wassergekühlten Kammerwänden kommt, ist bei hohen Temperaturen mit leichten Abweichungen zu rechnen.

nach der Stabilisierung der Atmosphäre mittels Sauerstoffsonde bestimmte Wert lag dabei bei etwa  $5 - 7 \cdot 10^{-21}$  mbar.

Der Vergleich mit den Graphen für molekularen Sauerstoff in Abb. 4.5 sowie Abb. 4.6a, in welchem der Sauerstoffpartialdruck (bei 700°C) in Abhängigkeit des dem Gasmisch zugesetzten Sauerstoffanteils für das ansonsten gleiche Gasmisch dargestellt ist, ergibt eine O<sub>2</sub>-Konzentration von etwa 0,45% - 0,5%. Dies steht damit in sehr guter Übereinstimmung mit dem tatsächlichen Sauerstoffanteil. Allerdings sei an dieser Stelle angemerkt, dass es bei hohen Temperaturen durch Bindung von Sauerstoff an Rhenium zu Abweichungen vom idealen Verlauf in Abb. 4.6a kommen kann. Zudem beschreibt die Kurve nur ein Gasvolumen, welches eine Temperatur von 700°C besitzt und im thermischen Gleichgewicht ist. In der Realität kommt es jedoch im Kammervolumen zu starken Temperaturgradienten zwischen dem heißen Tiegel und den wassergekühlten Kesselwänden. Die während der Zucht gemessenen O<sub>2</sub>-Partialdrücke können somit stark fehlerbehaftet sein. Es muss daher bei allen im Folgenden angegebenen prozentualen Sauerstoffkonzentrationen mit einem Fehler von bis zu einigen zehn Prozent gerechnet werden. Trotz der Unsicherheiten in der Bestimmung des absoluten Sauerstoffpartialdrucks mittels Sauerstoffsonde sowie in der Berechnung der Phasendiagramme, kann eine gute Übereinstimmung von Theorie und Praxis festgestellt werden.

Um die während der Züchtungen nach Nacken-Kyropoulos vorliegende Sauerstoffkonzentration abzuschätzen, wurde die Kammer einige Stunden mit einem 10% H<sub>2</sub> / 90% N<sub>2</sub> Gasmisch ohne Sauerstoffzugabe gespült. Der dabei gemessene Sauerstoffpartialdruck betrug nach Stabilisierung etwa  $1 \cdot 10^{-23}$  mbar und entspricht einem Sauerstoffanteil von etwa 0,02% O<sub>2</sub> in der Atmosphäre. Dies steht allerdings im Widerspruch zu der vom Hersteller angegebenen

#### 4 Kristallzucht hochschmelzender Oxide

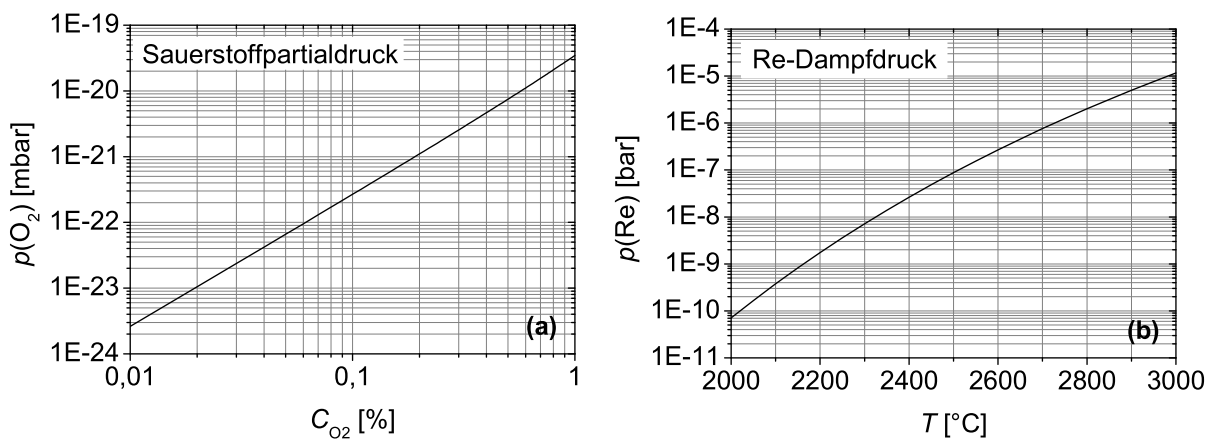
Reinheit des Gasgemisches, welche etwa eine Größenordnung besser sein sollte.

Für einen Ausgangswert von  $c(O_2) = 0,1\%$  ergibt sich bei der Schmelztemperatur von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  von  $2450^\circ\text{C}$  ein Sauerstoffpartialdruck von etwa  $p(O_2) = 1 \cdot 10^{-6}$  mbar. Da die Linien in den Phasendiagrammen keine scharfen Grenzen darstellen, sondern lediglich die Bereiche vorherrschender Phasen voneinander trennen, sind stets auch alle anderen Phasen vorhanden, wenn auch in sehr geringer Menge. Der jeweilige Anteil hängt dabei von den Gleichgewichtsbedingungen ab. Der bei z. B. bei  $2500^\circ\text{C}$  und einem Sauerstoffpartialdruck von  $p(O_2) = 1 \cdot 10^{-6}$  mbar vorherrschende Partialdruck von  $\text{Re}_2\text{O}_7$  ist mit etwa  $1 \cdot 10^{-20}$  bar äußerst gering und sollte kaum zur Bildung des Rhenats führen [Kli08]. Der Rhenium-Dampfdruck ist mit etwa  $9 \cdot 10^{-8}$  bar hingegen deutlich höher. Mit zunehmender Temperatur steigt dieser unabhängig vom Sauerstoffpartialdruck rapide an (Abb. 4.6b). Bei einer Temperatur von etwa  $2700^\circ\text{C}$ , welche pyrometrisch an den Tiegelwänden bestimmt wurde, beträgt  $p(\text{Re})$  bereits  $1 \cdot 10^{-6}$  bar.

Durch die thermischen Gradienten im Isolationsaufbau werden räumlich unterschiedliche Re-Dampfdruck-Zonen erzeugt. Dadurch ist durch Verdampfen ein Transport des Metalls von Bereichen hohen Re-Dampfdrucks in Bereiche mit geringerem Re-Dampfdruck möglich. Dies kann beispielsweise vom Tiegel in die Isolation oder in die Schmelze sein. Im letzten Fall ist mit einem Eintrag von metallischem Rhenium in den Kristall zu rechnen.

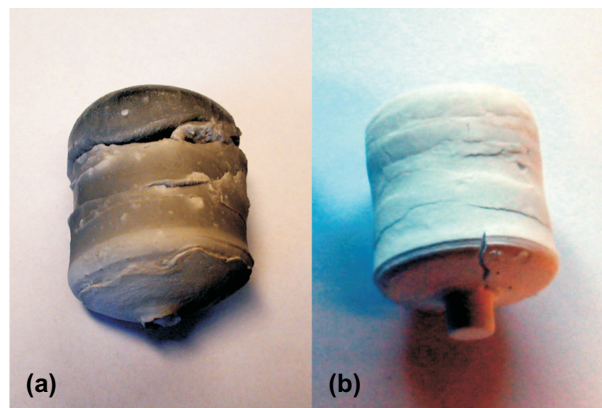
Ferner besteht die Möglichkeit der Existenz weiterer Rhenium-Oxide, die bei diesen extremen Temperaturen eventuell sogar stabiler sind als das in Abb. 4.5 aufgeführte  $\text{Re}_2\text{O}_7$ , welche zum Re-Transport beitragen könnten. Ein weiterer Einfluss ist durch die verwendeten Isolationsmaterialien, insbesondere die  $\text{ZrO}_2$ -Matten, zu erwarten. Diese können etwas leichter als die Sesquioxide zum Metall reduziert werden (vgl. Anhang A). Dadurch wird insbesondere an den Berührungspunkten zwischen den Matten und dem Tiegel Sauerstoff freigesetzt, welcher zur Oxidation des Rheniums führen kann.

Insgesamt kann also festgehalten werden, dass bei dem verwendeten Gasgemisch ein relativ breiter  $p(O_2)$ -Korridor existiert, in dem die Züchtung der Sesquioxide aus Rheniumtiegeln möglich sein sollte.



**Abbildung 4.6:** (a) Erwarteter Sauerstoffpartialdruck bei  $700^\circ\text{C}$  in Abhängigkeit von der im Gasgemisch vorliegenden Sauerstoffkonzentration. (b) Verlauf des Rhenium-Dampfdrucks in Abhängigkeit von der Temperatur im Bereich zwischen  $2000^\circ\text{C}$  und  $3000^\circ\text{C}$ . Beide Kurven gelten für ein Gasgemisch bestehend aus  $90\% \text{N}_2 / 10\% \text{H}_2$ .

## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.7:** Bilder des Tiegelinhalts nach dem Vorsmelzen von (a)  $Y_2O_3$  unter zu hohem Sauerstoffpartialdruck ( $> 10^{-19}$  mbar) mit Re-Eintrag, (b)  $Sc_2O_3$  unter geringerem Sauerstoffpartialdruck ( $< 10^{-20}$  mbar) ohne Re-Eintrag.

### 4.2.5 Der Züchtungsverlauf

Aufgrund der starken Volumenabnahme der pulverförmigen Ausgangsmaterialien während des Aufschmelzens waren typischerweise 3 - 4 Vorschmelzzyklen erforderlich, um den Tiegel zu 50% - 75% zu füllen.

Nach Einbau des Tiegels in die Isolation wurde die Kammer verschlossen und auf etwa 0,5 mbar - 1 mbar evakuiert. Anschließend erfolgte eine Befüllung der Kammer mit Wasserstoff auf 150 mbar sowie etwa 1,15 bar Stickstoff auf einen Gesamtsystemdruck von 1,3 bar. Dieser Vorgang wurde ein weiteres Mal zur Spülung der Kammer wiederholt.

Danach wurde zunächst der Durchfluss für das Kühlgas auf 3 l/min eingestellt, um ein Aufschmelzen des Impflings während des späteren Züchtungsverlaufs zu verhindern. Anschließend wurde die Steuerspannung des Generators innerhalb von 45 min auf 2,7 V ( $\approx 2300^\circ\text{C}$  -  $2400^\circ\text{C}$  Tiegeltemperatur) erhöht und für etwa 30 min gehalten.

Bei dieser Temperatur setzte bereits ein starkes Versintern des pulverförmigen Rohmaterials bis hin zum leichten Anschmelzen der Oberfläche ein (vgl. Abb. 4.7). Das noch nicht aufgeschmolzene Pulver bietet die Möglichkeit, die eingestellte Atmosphäre bezüglich ihres Sauerstoffgehalts anhand der Färbung des ursprünglich weißen Rohmaterials zu überprüfen. Während bei einem zu hohen Sauerstoffpartialdruck eine deutliche Graufärbung des gesinteren Materials zu erkennen ist (Abb. 4.7a), bleibt dieses bei optimaler Atmosphäre weiß (Abb. 4.7b). Das Herunterfahren des Generators erfolgte anschließend mit der gleichen Geschwindigkeit.

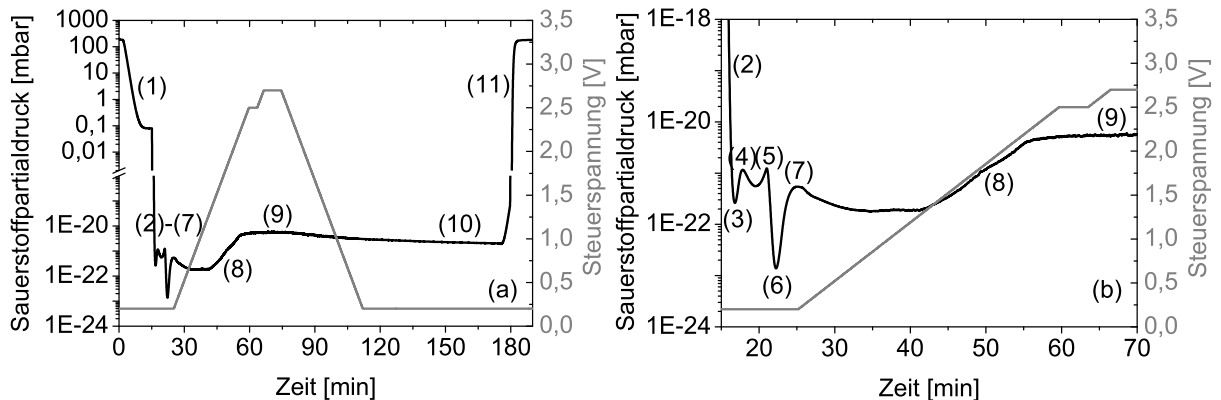
Für die eigentliche Züchtung wurde die Steuerspannung des Generators auf 3,05 V - 3,15 V erhöht ( $2650$  -  $2750^\circ\text{C}$ ). Diese Temperatur wurde für etwa 1 h zur Homogenisierung der Schmelze gehalten. Anschließend wurde der Kühlgasstrom mit einer Rampe von 1 l/min pro Stunde auf insgesamt 20 l/min erhöht. Nach Erreichen des maximalen Gasflusses wurde die Generatorleistung mit 0,06 V/h ( $\approx 50^\circ\text{C/h}$ ) heruntergefahren. Die gesamte Züchtungsdauer inkl. Vorsmelzen betrug in der Regel etwa eine Woche.

Der zeitliche Verlauf des mittels der Sauerstoffsonde gemessenen Sauerstoffpartialdrucks während eines Vorschmelzvorganges ist beispielhaft in Abb. 4.8 dargestellt. Hierbei wurden die einzelnen Arbeitsschritte nummeriert und den Positionen im Diagramm zeitlich zugeordnet:

#### 4 Kristallzucht hochschmelzender Oxide

1. Abpumpen der Kammer auf etwa 0,5 mbar Gesamtdruck (entsprechend 0,1 mbar O<sub>2</sub>-Partialdruck).
2. Durch die Zugabe von H<sub>2</sub> bis auf 150 mbar fällt der Sauerstoffpartialdruck sprunghaft um etwa 20 Größenordnungen.
3. Nach dem Einfüllen von N<sub>2</sub> auf etwa 1 bar steigt  $p(\text{O}_2)$  aufgrund des im Stickstoff geringfügig enthaltenen Sauerstoffs.
4. Innerhalb einiger Minuten stabilisiert sich der Sauerstoffpartialdruck und fällt leicht ab, da der größte Teil des Sauerstoffs vom Wasserstoff gebunden wird.
5. Die Kammer wird erneut auf etwa 1 mbar Gesamtdruck abgepumpt. Dabei steigt der gemessene Sauerstoffpartialdruck scheinbar. Dies ist jedoch lediglich auf einen Messfehler der Sauerstoffsonde zurückzuführen, bei der Umgebungsluft durch die porösen Dichtungen eindringt.
6. Durch erneutes Befüllen der Kammer auf 150 mbar mit H<sub>2</sub> wird  $p(\text{O}_2)$  um zwei Größenordnungen auf  $10^{-23}$  mbar reduziert.
7. Durch das Auffüllen der Kammer mit Stickstoff steigt der Partialdruck erneut an, bevor er sich bei  $2 \cdot 10^{-22}$  mbar stabilisiert.
8. Mit steigender Heizleistung für die Heizleistung nimmt die Temperatur im Tiegel und der Isolierung zu und es wird Sauerstoff aus beiden an die Kammeratmosphäre abgegeben. Zusätzlich steigt die mittlere Temperatur des Gasgemischs im Kessel, wodurch insgesamt etwas weniger Sauerstoff durch den Wasserstoff gebunden werden kann.
9. Nach einigen Minuten bei konstanter Heizleistung stabilisiert sich der Sauerstoffpartialdruck bei etwa  $5 \cdot 10^{-21}$  mbar. Die Menge des von der Isolierung und der Schmelze abgegebenen Sauerstoffs steht nun im Gleichgewicht mit dem in der Atmosphäre befindlichen Sauerstoffpartialdruck.
10. Nach dem Herunterfahren der Heizleistung sinkt  $p(\text{O}_2)$ . Hierbei wird ein Teil des Sauerstoffs wieder in der Isolierung und der Schmelze gebunden. Hinzu kommt, dass mit fallender mittlerer Temperatur des Gasgemischs die Bindungsfähigkeit des Wasserstoffs steigt. Der dabei erreichte Wert des O<sub>2</sub>-Partialdrucks von  $2 \cdot 10^{-21}$  mbar liegt etwa eine Größenordnung über dem Wert vor dem Schmelzversuch. Diese Differenz ist zum einen durch ein Ausheizen der ZrO<sub>2</sub>-Matten zu erklären, zum anderen besitzen die Kristalle nach dem relativ schnellen Abkühlen in der Regel starke Verfärbungen aufgrund von Farbzentren, welche durch Sauerstofffehlstellen verursacht werden.
11. Durch erneutes Abpumpen und anschließendes Belüften der Kammer wird wieder Normaldruck erreicht.

## 4.2 Kristallzuchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.8:** Gemessener Sauerstoffpartialdruck (schwarz) und Steuerspannung (grau) für einen Aufschmelzvorgang am Beispiel von undotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ . (a) Gesamtansicht, (b) Vergrößerung des Anfangsbereiches.

### 4.2.6 Züchtungsergebnisse

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde zunächst eine Konzentrationsreihe von Yb-dotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  aus einem hochreinen, pulvermetallurgischen 41 mm-Tiegel mit planem Boden hergestellt. Anschließend wurden weitere Züchtungsversuche aus einem galvanischen Tiegel mit 42 mm Durchmesser und konischem Boden unternommen. Züchtungen von Yb: $\text{Sc}_2\text{O}_3$  sowie zweier Yb: $\text{LuScO}_3$ -Mischkristalle komplettieren die für die anschließende spektroskopischen Untersuchungen und Laserexperimente hergestellte Kristallserie. Zudem wurden im Zeitraum der Arbeit weitere Züchtungen von verschiedenen dotierten Sesquioxiden in der Arbeitsgruppe durchgeführt [Hir08a, Küh08]. Anhand aller zur Verfügung stehender Daten ist eine umfassende Analyse der Herstellungsparameter möglich.

In Tabelle 4.3 sind die durchgeführten Züchtungen aufgelistet, zu denen eine vollständige Dokumentation der Züchtungsparameter vorliegt. Da alle Kristalle mit nahezu identischen Aufheiz- und Abkühlraten hergestellt wurden, ist eine vergleichende Analyse der Ausgangsparameter und Züchtungseinstellungen möglich.

Neben dem verwendeten Wirtsgitter beeinflussen bei unveränderter Züchtungsdauer hauptsächlich der im Gasgemisch vorherrschende Sauerstoffpartialdruck und die Tiegelform die Qualität der hergestellten Kristalle. Die einzelnen Punkte sollen im Folgenden diskutiert werden.

#### Tiegelform und -material

Im Verlauf der Züchtungsversuche zeigte sich eine starke Abhängigkeit der Größe der hergestellten Einkristalle von der Tiegelform. Im Falle eines planen Tiegelbodens kam es in der Regel zu einem parasitären Wachstum ausgehend von den Tiegelkanten. Dies begrenzte die Größe der herstellbaren Einkristalle auf einige  $\text{cm}^3$ .

Bei Verwendung eines Tiegels mit konischem Boden konnte eine deutliche Verbesserung der Kristallisation mit verringerter parasitärer Keimbildung erreicht werden. In einigen Fällen konnte ein vollständig einkristalliner Tiegelinhalt erzeugt werden. Das dabei maximal erreichte, einkristalline Volumen betrug mehr als  $30 \text{ cm}^3$ .

Ein Vergleich der Einflüsse der unterschiedlichen Tiegelherstellungsarten (galvanisch / pul-

#### 4 Kristallzuchtung hochschmelzender Oxide

vermetallurgisch) auf die spektroskopischen Eigenschaften der Kristalle wird in Kap. 5 vorgenommen.

##### **Spannungsinduzierte Doppelbrechung**

Wie in früheren Arbeiten beschrieben, wurde eine starke Abhängigkeit der Kristallqualität vom Wirtsgitter sowie dem verwendeten Herstellungsverfahren beobachtet [For99a, Mix99, Pet01]. Während nach dem HEM-Verfahren gezüchtete  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Kristalle eine relativ geringe Spannungsdoppelbrechung aufweisen (vgl. Abb. 4.9a), sind bei Proben, die nach dem Nacken-Kyropoulos-Verfahren aus 18 mm-Re-Tiegeln hergestellt wurden, vermehrt Spannungen im Kristall zu verzeichnen (Abb. 4.9b).

Scandiumoxid neigt vor allem bei Dotierung mit den deutlich größeren Seltenerd-Ionen (vgl. Tab. 3.2) zu Verspannungen. So besitzt es im Falle der 2,4 at.% Yb-dotierten Probe, im Vergleich zu Lutetiumoxid, deutlich stärker ausgeprägte Spannungsbereiche (Abb. 4.9c). Zudem ist hierbei, durch ein teils ausgeprägtes säulenartiges Wachstum, die Größe der einkristallinen Bereiche geringer.

Alle untersuchten Yttriumoxid-Proben sind selbst im undotierten Fall nicht spannungsfrei. Die in Abb. 4.9d dargestellte Doppelbrechung ist in ihrer Homogenität charakteristisch für das Material. Eine mögliche Ursache hierfür könnte die in Kap. 3 beschriebene Phasenumwandlung sein, welche beim Abkühlen zu Verspannungen im Gitter führt. Der Einfluss auf die Kristallqualität, sowie mögliche Wege diese zu verbessern, werden aktuell im Rahmen der Diplomarbeit von K. Schenk am Institut für Laser-Physik untersucht.

Abbildung 4.9e und f stellen in identischer Vergrößerung die Doppelbrechung der  $\text{LuScO}_3$ -Mischkristalle dar. Während die 1 at.%-dotierte Probe als Züchtungsvorversuch innerhalb von 40 h abgekühlt wurde, ist die Züchtungsdauer der 3 at.%-dotierten Probe auf 60 h erhöht worden. Das Ergebnis ist ein deutlich geringer verspannter Kristall, der einzig im Bereich der Korngrenzen Doppelbrechung aufweist. Die ausgeprägten lammellenartigen Spannungsbereiche der 1 at.%-dotierte Probe könnten auf Inhomogenitäten während des Wachstums hinweisen, vermutlich verursacht durch die stark unterschiedlichen Ionenradien von Lu und Sc. Ein Hinweis dafür findet sich auch in Abb. 4.14b. Hierbei sind bei der orts aufgelösten Mikrosonde lokale Extrema in der Lu- und Sc-Konzentration zu sehen, wobei auf ein Lu-Maximum stets ein Sc-Minimum trifft und umgekehrt. Derart sprunghafte Konzentrationsänderungen könnten aufgrund der Gitterverzerrung durch leicht unterschiedliche Gitterkonstanten zu Spannungen im Kristall führen.

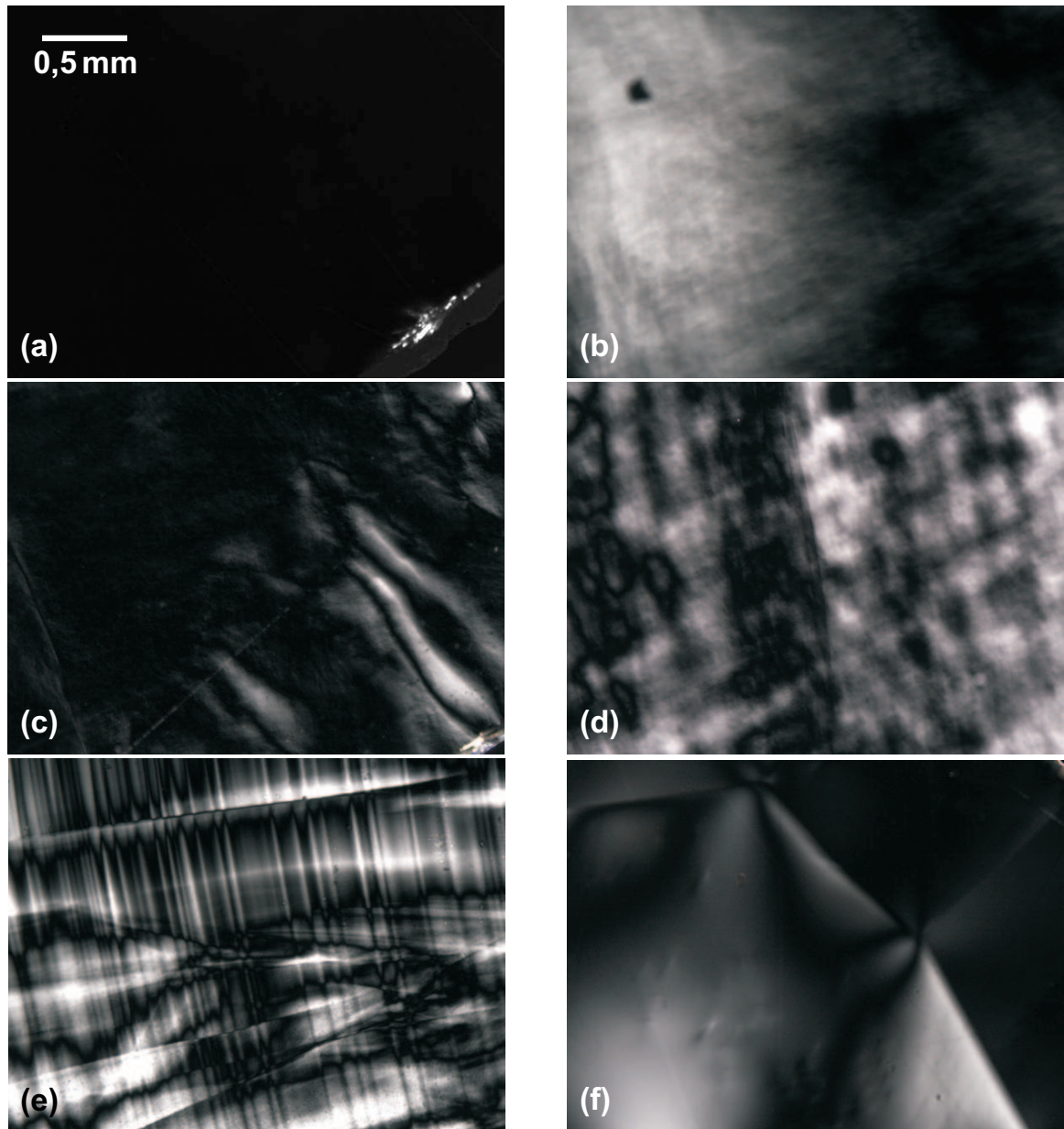
##### **Farbzentren**

Die für den Rheniumtiegel notwendige reduzierende Atmosphäre erzeugt in der Regel ein Sauerstoffdefizit in der Schmelze, welches im Kristall zu Sauerstofffehlstellen führt. Diese können durch Elektronen besetzt werden und dadurch optisch aktive Zentren bilden. Je nachdem, in welchem Spektralbereich das Farbzentrum absorbiert, kann dies mit Verlusten für den Laser verbunden sein.

Bei den durchgeführten Züchtungen ergeben sich je nach vorhandener Sauerstoffmenge in der Atmosphäre und verwendeter Abkühlrate unterschiedliche Eigenschaften. Während die Kristalle nach schnellem Abkühlen, wie im Falle des Vorschmelzens, stets komplett verfärbt



## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.9:** Mikroskopaufnahmen verschiedener Sesquioxid-Kristalle zwischen gekreuzten Polarisatoren: (a)  $\text{Yb}(5 \text{ at. \%})\text{:Lu}_2\text{O}_3$  (HEM), (b)  $\text{Tm}(1 \text{ at. \%})\text{:Lu}_2\text{O}_3$  (NK), (c)  $\text{Yb}(2,4 \text{ at. \%})\text{:Sc}_2\text{O}_3$  (HEM), (d)  $\text{Er}(0,3 \text{ at. \%})\text{:Y}_2\text{O}_3$  (HEM), (e)  $\text{Yb}(1 \text{ at. \%})\text{:LuScO}_3$  (HEM), (f)  $\text{Yb}(3 \text{ at. \%})\text{:LuScO}_3$  (HEM). Der dargestellte Bereich misst jeweils  $3,0 \times 2,2 \text{ mm}$ . Die Dicke aller Proben lag bei etwa  $0,5 \text{ mm}$ . Lediglich der  $\text{Tm:Lu}_2\text{O}_3$ -Kristall war mit etwa  $2,5 \text{ mm}$  deutlich dicker.

#### 4 Kristallzucht hochschmelzender Oxide

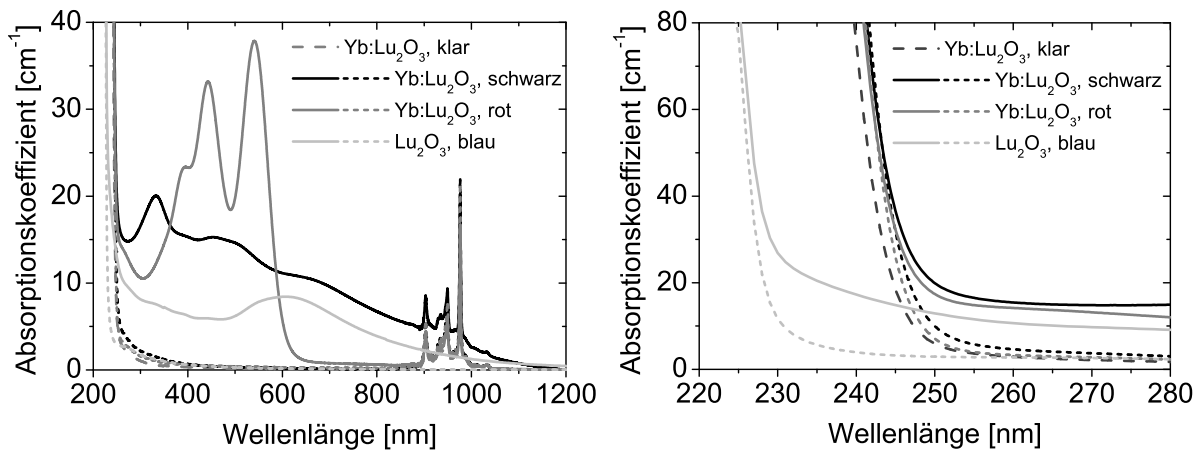
sind, sind nach der eigentlichen Züchtung je nach Material und Züchtungsbedingungen unterschiedliche Färbungen bis hin zum komplett farblosen Kristall möglich.

Einen Überblick über den Einfluss des in der verwendeten Züchtungsatmosphäre enthaltenen Sauerstoffs liefert Tab. 4.3. Der gemessene Sauerstoffpartialdruck (bei 700°C) lag in den dokumentierten Züchtungen zwischen  $1 \cdot 10^{-23}$  mbar und  $2 \cdot 10^{-20}$  mbar.

Die niedrigsten Sauerstoffpartialdrücke von  $1 \cdot 10^{-23}$  mbar (0,02%  $O_2$ ) konnten bei Züchtungsversuchen nach dem Nacken-Kyropoulos-Verfahren aus 18 mm-Tiegeln erreicht werden, da diese aufgrund der dafür verwendeten Anlage unter Durchfluss des Gasgemischs stattfanden und so ein ständiger Abtransport des aus der Schmelze und der Isolierung austretenden Sauerstoffs erfolgte. Die dabei hergestellten Kristalle wiesen trotz identischer Abkühlzeiten von etwa 48 h in allen Fällen starke Verfärbungen auf.

Da bei den HEM-Kristallen, wie in Abschnitt 4.2.4 beschrieben, kein Austausch des Gasgemischs während der Züchtung erfolgte, lag der Sauerstoffpartialdruck hier bei  $0,4 \cdot 10^{-21}$  mbar bis typischerweise einigen  $10^{-21}$  mbar (0,1% - 0,4%  $O_2$ ). Oberhalb von  $p(O_2) = 2 - 3 \cdot 10^{-21}$  mbar (0,3%  $O_2$ ) wiesen die Kristalle nach Züchtungsende keine Verfärbungen auf. Bei geringerem Sauerstoffpartialdruck war eine starke Verfärbung im unteren Bereich der Kristalle zu beobachten.

Die Farbe der Kristalle war je nach Wirtsmaterial und Sauerstoffpartialdruck unterschiedlich. Während die  $Y_2O_3$ - und  $Sc_2O_3$ -Proben in der Regel ausschließlich braune bis schwarze Verfärbungen aufwiesen, wurden in  $Lu_2O_3$  zusätzlich rote und blaue Bereiche beobachtet, welche zudem eine Korrelation zur Züchtungsdauer aufwiesen. So zeigte sich bei allen Vorschmelzdurchgängen von  $Lu_2O_3$  stets eine starke Rotfärbung. Blaue Verfärbungen, welche bisher nicht in der Literatur dokumentiert sind, wurden hingegen ausschließlich nach der Züchtungsdauer von einigen Tagen und relativ geringen Sauerstoffpartialdrücken, wie sie bei den Nacken-Kyropoulos-Züchtungen herrschen, erzeugt. Die jeweiligen Absorptionsspektren sind



**Abbildung 4.10:** Links: Absorptionsspektren Yb-dotierter und undotierter  $Lu_2O_3$ -Kristalle vor und nach dem Tempern. Die durchgezogenen Linien zeigen das Absorptionsspektrum vor, die gestrichelten Linien nach dem Tempern der Kristalle für einige Tage bei 1050°C. Rechts: Vergrößerung des Wellenlängenbereichs von 220 nm - 280 nm.

## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren

in Abb. 4.10 dargestellt.

Durch mehrtägiges Tempern an Luft oberhalb von 1000°C lassen sich die Verfärbungen in allen Kristallen entfernen. Dabei diffundiert Sauerstoff ins Kristallgitter und besetzt während der Züchtung entstandene Sauerstofffehlstellen [Ber68, Mil65]. Die leicht unterschiedliche UV-Grenze des Transparenzbereichs von Yb-dotiertem gegenüber undotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  (vgl. Abb. 4.10) ist auf eine zunehmende Absorption eines Charge-Transfer-Übergangs des Ytterbiums zurückzuführen [Nak79]. Weitere Versuche, die genaue Identität der Farbzentren zu klären, wurden nicht unternommen, da sich alle Verfärbungen komplett ausheilen ließen.

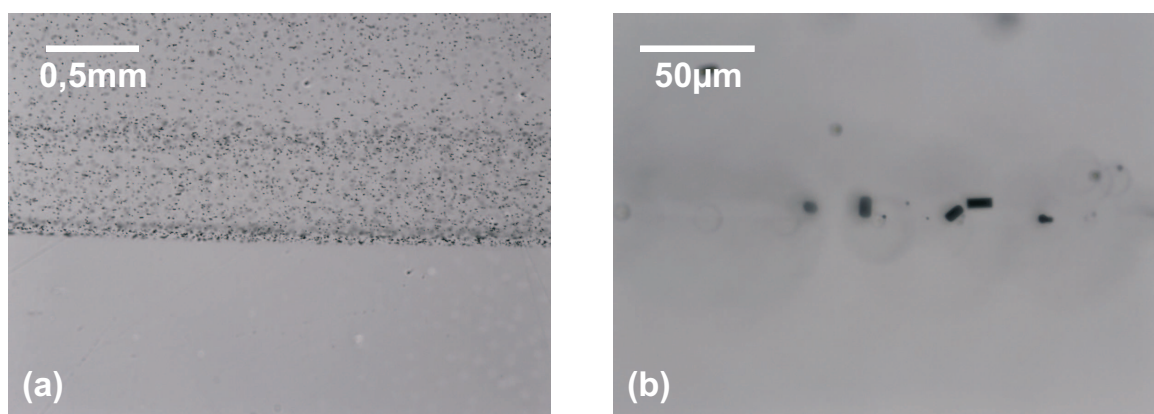
### Metallische Einschlüsse

Nach Züchtungsende befanden sich am Boden einiger Kristalle Bereiche mit schwarz- bis silberfarbenen, metallischen Einschlüssen. In Ausnahmefällen konnten diese auch einige Millimeter weit in den Kristall hineinreichen.

Die Menge der Partikel ist dabei zum Teil mit der während der Züchtung vorherrschenden Atmosphäre korreliert. Während bei einem Sauerstoffpartialdruck oberhalb von  $1 \cdot 10^{-19}$  mbar (1,5%  $\text{O}_2$ ) bereits vor dem Schmelzpunkt eine starke Graufärbung der Ausgangsmaterialien auftritt, bleibt das Rohmaterial unterhalb von  $1 \cdot 10^{-20}$  mbar (0,6%  $\text{O}_2$ ) farblos (Abb. 4.7). Unterhalb von  $1 \cdot 10^{-21}$  mbar (0,2%  $\text{O}_2$ ) treten kaum noch Re-Einschlüsse im Kristall auf.

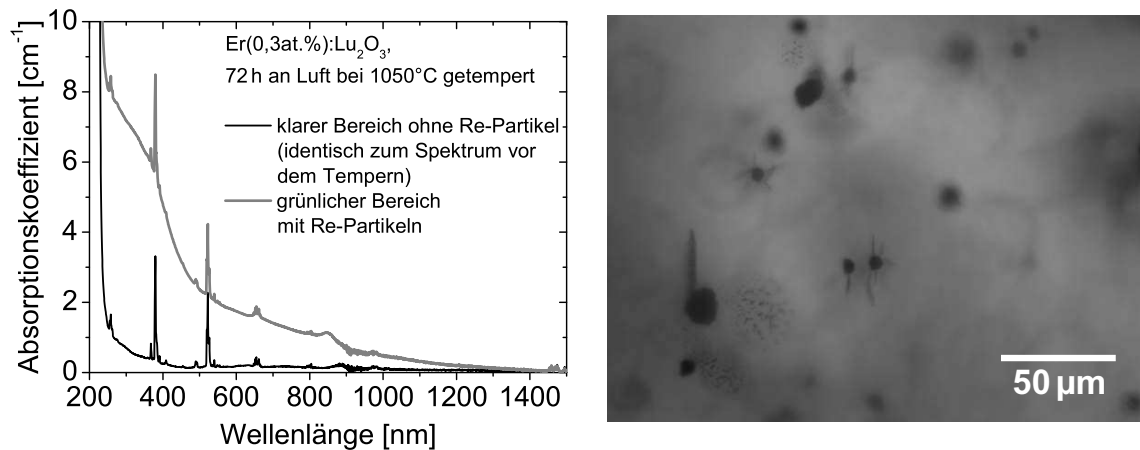
Die Partikel, welche aus Rhenium-Kristalliten mit einigen Mikrometern Ausdehnung bestehen, sinken aufgrund der höheren Dichte auf den Tiegelboden bzw. die Grenzfläche zwischen Kristall und Schmelze ab. Je nach Kristallisationsrate und Sauerstoffgehalt der Züchtungsatmosphäre können dabei für die Lasertätigkeit relevante Mengen an Rhenium eingebaut werden (Abb. 4.11).

Der für den Re-Transport während der Züchtung verantwortliche Mechanismus kann anhand der vorliegenden Daten nicht mit Sicherheit identifiziert werden. Es ist jedoch wahrscheinlich, dass durch den hohen Re-Dampfdruck bei hohen Temperaturen, insbesondere an den Tiegelwänden, ein Transport durch Verdampfen stattfindet. Dies wird durch die beobachtete Graufär-



**Abbildung 4.11:** Mikroskopaufnahme des Animpfbereichs eines  $\text{Yb}(5 \text{ at. } \%):\text{Lu}_2\text{O}_3$  (Ifd. Nr. 130). (a) Animpfbereich mit metallischen Einschlüssen oberhalb des Impfkristalls, (b) Vergrößerung des Übergangsbereiches zwischen Impfling und Kristall. Der Impfkristall (untere Hälfte) zeigt kaum Rhenium-Einschlüsse, während vor allem auf der Grenzfläche zwischen Impfling und Kristall eine große Anzahl von quaderförmigen Rheniumpartikeln beobachtet werden kann. Die Partikelgröße beträgt dabei einige Mikrometer.

#### 4 Kristallzuchtung hochschmelzender Oxide



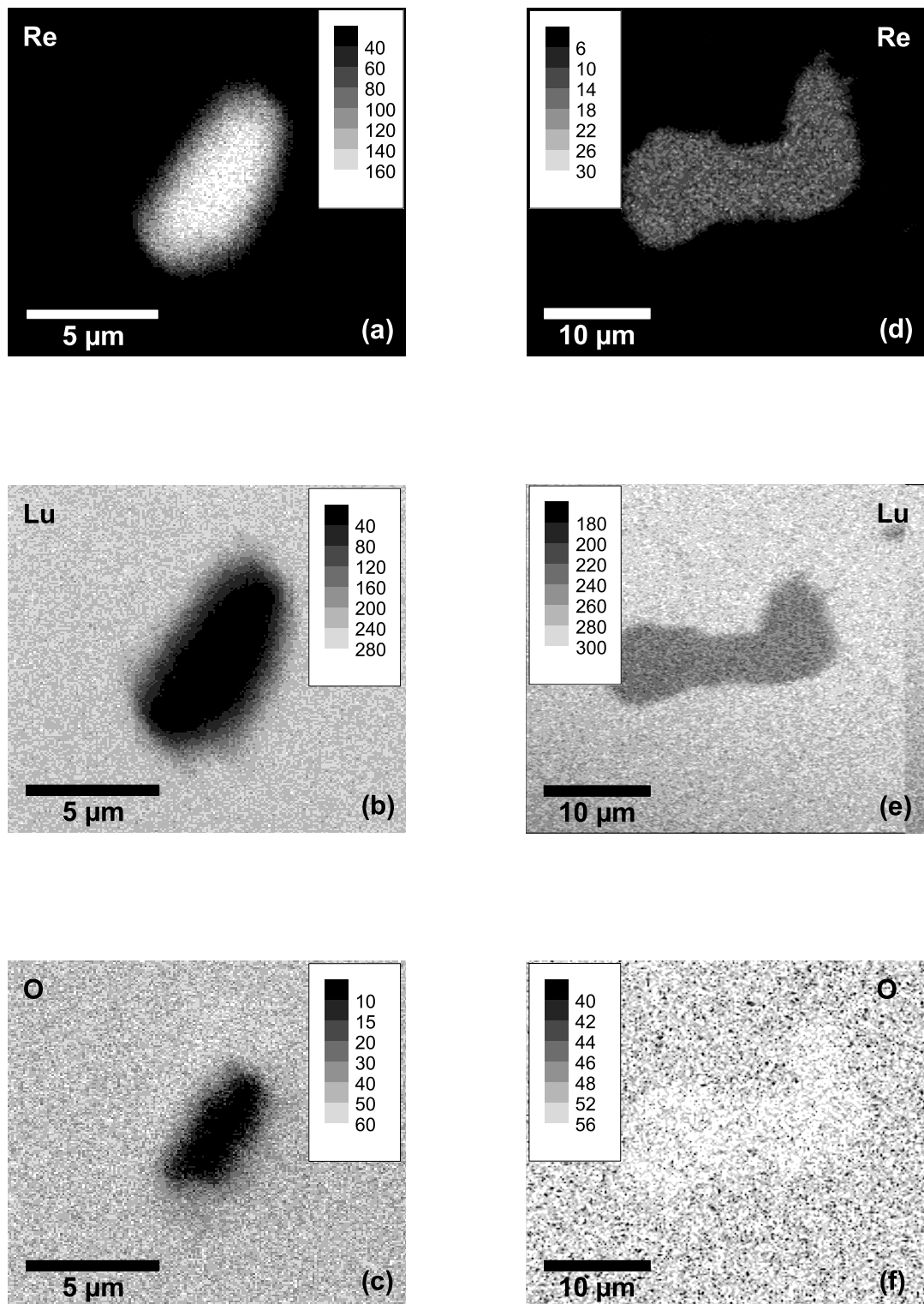
**Abbildung 4.12:** Absorptionsmessung und Mikroskopaufnahme einer  $\text{Er}(0,3 \text{ at. \%})\text{:Lu}_2\text{O}_3$  Probe (Ifd. Nr. 149) mit metallischen Einschlüssen nach Tempern an Luft. Links: Absorptionskoeffizient im Bereich mit Re-Einschlüssen (graue Kurve), Bereich ohne Re-Einschlüsse (schwarze Kurve). Rechts: Mikroskopaufnahme des grünlichen Bereichs. Hier sind im Gegensatz zum Ausgangszustand (vgl. Abb. 4.11) ausschließlich unregelmäßige Re-Partikelformen zu beobachten.

bung der  $\text{ZrO}_2$ -Isolation bekräftigt. Da diese im Vergleich zu den Tiegelwänden deutlich kälter ist, ist ein Rhenium-Transport in diese Richtung wahrscheinlich. Ein ähnlich ablaufender Eintrag in die Schmelze kann zumindest nicht ausgeschlossen werden. Aufgrund der Korrelation zwischen dem Sauerstoffpartialdruck und der Menge des in die Schmelze eingetragenen Rheniums scheint zudem ein durch ein Rhenium-Oxid-, vermutlich  $\text{Re}_2\text{O}_7$ , unterstützter Transport vom Tiegel in die Schmelze vorzuliegen. Mögliche Schritte, um den Rhenium-Eintrag in die Schmelze zu verringern, werden in Kap. 4.2.7 diskutiert.

Wurden Kristalle mit Rhenium-Einschlüssen an Luft oberhalb einer Temperatur von etwa  $1000^\circ\text{C}$  getempert, änderten sich die optischen Eigenschaften im Bereich der Partikel. Spektroskopische Untersuchungen der dabei auftretenden grünlichen Verfärbung ergaben Absorptionsbanden im Bereich von  $330 \text{ nm}$  sowie im infraroten Bereich (Abb. 4.12 li.). Zudem zeigten die Rhenium-Partikel eine Änderung von einer symmetrischen in eine unregelmäßige, ausgefranzte Form (Abb. 4.12 re.), wobei an den Partikeln Risse im Kristall entstehen. Die beobachtete grünliche Färbung tritt dabei hauptsächlich in den Bereichen um die veränderten Partikel herum auf (dunklere Bereiche in Abb. 4.12 re.).

Da diese Veränderung nicht beim Abkühlen unter den stark reduzierenden Bedingungen während der Kristallzuchtung auftritt, ist eine Oxidation des Rheniums als Ursache wahrscheinlich. Thermodynamische Rechnungen bestätigen diese Hypothese [Kli08]. Erst oberhalb von  $2800^\circ\text{C}$  beginnt Rhenium an Luft stabil zu werden. Unterhalb dieser Temperatur sind unterschiedliche Re-Oxide stabil. So ist zunächst bis etwa  $130^\circ\text{C}$   $\text{Re}_2\text{O}_7$ , gefolgt von  $\text{ReO}_3$  bis etwa  $300^\circ\text{C}$  in fester Phase stabil. Oberhalb von  $300^\circ\text{C}$  wird an Luft gasförmiges  $\text{Re}_2\text{O}_7$  gebildet. Eine Ausgasung von  $\text{Re}_2\text{O}_7$  könnte demnach für die zunehmende Zerstörung der umliegenden Bereiche verantwortlich sein. Der Kristall wird dabei durch den zunehmenden Druck starken Spannungen ausgesetzt, welche sich teilweise in Form von Rissen entladen. Innerhalb dieser verteilt sich anschließend  $\text{Re}_2\text{O}_7$ , welches beim Herunterkühlen über  $\text{ReO}_3$  wieder in den fes-

## 4.2 Kristallzuchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.13:** Mikrosondenanalyse der Rheniumpartikel. Links: ungetemperte Probe, rechts: nach Tempern bei 1050°C fur 48 h.

#### 4 Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide

ten Zustand übergeht. Eine mögliche Ursache für die grünliche Verfärbung könnte das Vorliegen von Rhenium in ionischer Form als  $\text{Re}^{5+}$  oder  $\text{Re}^{6+}$  sein [Gaz77], für welches in der Literatur eine Grünfärbung dokumentiert wurde [Rem59].

Um dies zu verifizieren wurden ortsaufgelöste Mikrosondenanalysen sowohl von getemperten als auch ungetemperten Kristallen mit Rheniumeinschlüssen am Institut für Geologie, Mineralogie und Geophysik der Ruhr-Universität Bochum von Dr. H.-J. Bernhardt durchgeführt [Ber08].

Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in Abb. 4.13 zu sehen. Dargestellt sind die gemessenen Häufigkeiten von Lutetium, Rhenium und Sauerstoff im Bereich zweier Re-Partikel. In Abb. 4.13a-c handelt es sich dabei um eine ungetemperte Probe; Abbildung 4.13d-f zeigt ein Re-Partikel aus einem getemperten Bereich des gleichen Kristalls.

Wie in Abb. 4.13a zu erkennen ist, konzentriert sich das Rhenium auf einen Bereich von etwa  $10 \times 5 \mu\text{m}^2$ . Außerhalb davon liegt kein Rhenium vor. Die Graphen 4.13b,c stellen für den gleichen Abschnitt die Lutetium- und Sauerstoffhäufigkeit dar. Diese ist im Bereich des Partikels etwa null, während im restlichen Teil der Aufnahme eine homogene Verteilung zu verzeichnen ist. Es handelt sich also mit großer Wahrscheinlichkeit um ein Re-Partikel in metallischer Form. Aufgrund des begrenzten Auflösungsvermögens des Messverfahrens, ist im Gegensatz zu den aufgenommenen Mikroskopiebildern (Abb. 4.11b), bei dem scharf definierte Kanten zu sehen sind, zudem ein Verschmieren des Übergangs vom Re-Partikel zum umgebenden Kristall zu beobachten.

Im Gegensatz dazu steht das in einer getemperten Probe beobachtete Bild. Auch hier ist der Bereich, in dem Rhenium detektiert wird, mit etwa  $20 \times 10 \mu\text{m}^2$  von vergleichbarer Größe (Abb. 4.13d). Es wird jedoch im Gebiet des Partikels eine geringe Menge Lutetium gemessen (Abb. 4.13e) sowie eine, im Vergleich zum umliegenden Material, leicht erhöhte Sauerstoffkonzentration (Abb. 4.13f). Neben den bereits beschriebenen  $\text{Re}_2\text{O}_7$ -,  $\text{ReO}_2$ - und  $\text{ReO}_3$ -Verbindungen müssen also auch bisher unbekannte Lu-Re-O-Verbindungen, ähnlich dem im Phasendiagramm von Y-Re-O (Abb. A.2) auftauchenden Yttriumrhenat  $\text{Y}(\text{ReO}_4)_3$  in Betracht gezogen werden.

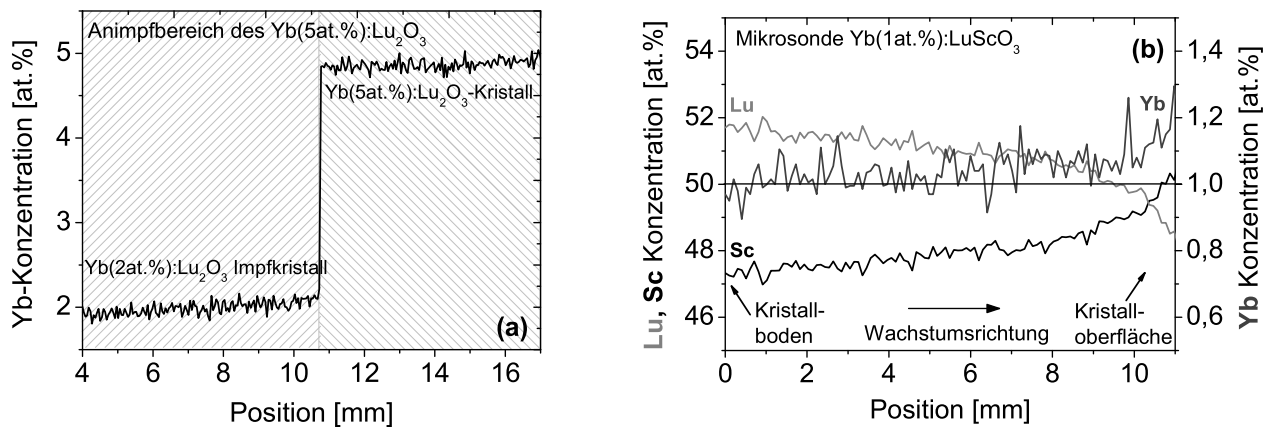
Um welche Verbindung es sich genau handelt, kann anhand der bisher durchgeführten Messungen nicht mit absoluter Sicherheit festgestellt werden, da die Intensitäten nicht normiert wurden. Zudem wird bei dem verwendeten Messverfahren stets ein endliches Volumen der Probe untersucht, sodass es prinzipiell zu Überlagerungen mit Bereichen außerhalb des Re-Partikels kommen kann. Diese können die absoluten Werte der Messungen, ähnlich dem an den Randbereichen der Partikel beobachteten Verwischen, verfälschen.

#### Bestimmung der Dotierungskonzentration

Für alle im Rahmen der vorliegenden Arbeit hergestellten Ytterbium-dotierten Kristalle wurden Mikrosondenanalysen durchgeführt, welche in Kap. 5 zur Berechnung der Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte verwendet werden. Die Untersuchungen wurden ebenfalls am Institut für Geologie, Mineralogie und Geophysik der Ruhr-Universität Bochum von Dr. H.-J. Bernhardt durchgeführt. Die aus diesen Untersuchungen resultierenden Einbaukoeffizienten sind in Tab. 4.3 aufgeführt.

Während der Einbaukoeffizient von Ytterbium in Lutetiumoxid mit Werten zwischen 0,96 und 1,09 in allen Fällen sehr nahe bei 1 liegt, weicht der Wert in Scandiumoxid mit etwa 0,7

## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren



**Abbildung 4.14:** Ortsabhängige Mikrosondenanalysen eines Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls (Ifd. Nr. 130) (a) sowie eines Yb(1 at. %):LuScO<sub>3</sub>-Kristalls (Ifd. Nr. 132) (b).

deutlich davon ab. Die Ursache hierfür liegt in den stark unterschiedlichen Ionenradien der in den Sesquioxiden eingebauten dreiwertigen Ionen. Während Ytterbium und Lutetium nur um etwa ein Prozent differieren, weist Scandium einen etwa 13% kleineren Ionenradius auf (vgl. Tab. 3.2).

Der ortsaufgelöste Verlauf der Dotierionenkonzentration um den Übergang vom Impfling zum gewachsenen Kristall herum ist in Abb. 4.14a anhand einer ortsaufgelösten Mikrosondenanalyse eines Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls (Ifd. Nr. 130) dargestellt. Innerhalb der durch die Schrittweite der Mikrosonde vorgegebenen Auflösung von 40 µm ist keine Diffusion von Ytterbium in den niedriger dotierten Impfkristall zu verzeichnen.

Auch der LuScO<sub>3</sub>-Mischkristall zeigt, bezogen auf die Gesamtzahl aller Kationenplätze, einen nahezu stöchiometrischen Einbaukoeffizienten (Abb. 4.14b, blaue Kurve). Bei genauerer Betrachtung mittels ortsaufgelöster Mikrosondenuntersuchung ergeben sich jedoch unterschiedliche Verteilungskoeffizienten für Lutetium und Scandium im Kristall. Während Lutetium mit anfänglich 52% atomarem Anteil bezogen auf die Kationenplätze einen Einbaukoeffizienten von 1,04 aufweist, liegt Scandium mit 0,95 etwas darunter.

### 4.2.7 Zusammenfassung der Ergebnisse und weitere Optimierung

Mittels der Heat-Exchanger-Methode wurde eine Reihe verschiedener Sesquioxide hergestellt. Die gezüchteten Kristalle wiesen dabei eine hohe optische Qualität auf. Während Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> zu säulenartigem Wachstum neigt, konnten mit Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bis zu 30 cm<sup>3</sup> große, einkristalline Bereiche hergestellt werden.

Je nach Sauerstoffgehalt der Züchtungsatmosphäre waren die Proben nach Ende des Herstellungsprozesses klar oder aufgrund von Farbzentren rot, blau bzw. schwarz verfärbt. Die Farbzentren konnten durch Tempern an Luft bei über 1000°C ausgeheilt werden. Bei zu hohem Sauerstoffanteil im Gasgemisch während der Züchtung kam es zur Einlagerung und Wachstum von Rhenium in Isolation und Schmelze. Das Tempern an Luft über 1000°C sorgte zudem für starke, irreversible Verspannungen und Defekte im Bereich der Re-Partikel, welche mit einer grünlichen Verfärbung der Kristalle einhergehen. Rheniumeinchlüsse müssen daher in jedem

#### 4 Kristallzucht hochschmelzender Oxide

Sauerstoffpartialdruck [mbar]	Sauerstoffkonzentration [%]	Farbe	Re-Eintrag		Tiegelabtrag bei Kontakt mit Matten
			Kristall	Isolation	
$> 1 \cdot 10^{-20}$	$> 0,6$	klar	++	++	++
$> 2 \cdot 10^{-21}$	$> 0,3$	klar	+	+	+
$< 1 \cdot 10^{-21}$	$< 0,2$	unten verfärbt	o	+	o
$1 \cdot 10^{-23}$	0,02	komplett verfärbt	-	o	o

**Tabelle 4.2:** Einfluss der Sauerstoffkonzentration auf den Re-Eintrag in den Kristall und die Isolation, sowie den Re-Abtrag am Tiegel bei Kontakt mit den  $ZrO_2$ -Matten. Die Notation ist dabei von ++ (viel) bis - (wenig).

Fall vermieden werden.

Als wohl wichtigster Züchtungsparameter ist demnach die verwendete Atmosphäre einzuschätzen (Tab. 4.2). Durch deren weitere Optimierung, um vor allem den Rhenium-Eintrag ins Material zu verringern, sollte sich die optische Qualität der Kristalle weiter verbessern, wodurch sich höhere Effizienzen im Laserbetrieb erzielen lassen. Zudem kann die Zerstörung des Kristalls durch verstärkte Absorption an diesen Defekten, insbesondere bei hohen Leistungen wie im gepulsten Betrieb, vermieden werden.

Für den Referenzpunkt bei  $700^\circ\text{C}$  (Arbeitstemperatur der Sauerstoffsonde) sollte ein Sauerstoffpartialdruck von  $1 \cdot 10^{-21}$  mbar, entsprechend 0,2%  $O_2$ , während der Züchtung nicht überschritten werden. Dies kann durch ein Gasgemisch bestehend aus 10%  $H_2$  und 90%  $N_2$  erreicht werden. Sauerstoff muss nicht separat hinzugefügt werden, da die aus der Schmelze und der Isolation austretende Menge  $O_2$  für einen ausreichend hohen Sauerstoffpartialdruck sorgt.

Um die Bedingungen während des gesamten Züchtungsverlaufs konstant zu halten, sollte die Atmosphäre unter Durchfluss stehen, wobei in diesem Fall eine Sauerstoffzugabe von 0,1% sinnvoll ist. Veränderungen des Sauerstoffpartialdrucks durch den aus der Isolation und der Schmelze austretenden Sauerstoff werden so nahezu ausgeschlossen. Ob durch eine weitere Verringerung des Sauerstoffanteils die Qualität der Kristalle verbessert werden kann, bleibt zu untersuchen. Der durch die Reduzierung des Sauerstoffgehalts verstärkten Bildung von Farbzentren kann durch eine Verringerung der Abkühlrate entgegengewirkt werden. Gleichzeitig werden auf diesem Wege im Kristall auftretende Verspannungen reduziert. Auch ein langsamerer Anstieg der Durchflussrate des Kühlgases sollte sich positiv auf die Homogenität der kristallinen Bereiche auswirken.

Eine Möglichkeit, den Re-Transport über Verdampfen zu verhindern, könnte die Zusetzung von weiteren Gasen, ähnlich dem Schutzgas in Halogenlampen, sein. Die Re-Dampfdruckkurve müsste dann dahingehend verändert werden, dass das Maximum des Re-Dampfdrucks bei Temperaturen kleiner  $2500^\circ\text{C}$  liegt. Dies würde dafür sorgen, dass das Rhenium stets an Orten mit höherer Temperatur, also den Tiegelwänden, angelagert wird. Eine Kontamination der Schmelze würde dadurch zum größten Teil ausgeschlossen. Problematisch hierbei ist allerdings die Wahl des Schutzgases, da es nicht in der Schmelze gelöst werden oder mit dieser reagieren darf.

Der Isolationsaufbau selbst kann durch eine Vergrößerung des Abstandes zwischen  $ZrO_2$ -Matten und Tiegel verbessert werden. Hierdurch würde sich die Temperatur an den Matten reduzieren, was die Tendenz zum Schrumpfen deutlich verringert. Dadurch würde der Kontakt der Matten zum Tiegel und dessen zunehmende Degradation durch Rhenium-Abtrag vermindert. Eine Mehrfachnutzung des Isolationsaufbaus wäre ebenfalls möglich.



## 4.2 Kristallzüchtung von Sesquioxiden nach dem HEM-Verfahren

Um die Vorteile der hohen Tiegelreinheit und die das einkristalline Wachstum begünstigende konische Tiegelform zu vereinen, ist die Verwendung von konischen, pulvermetallurgisch hergestellten Re-Tiegeln weiter zu untersuchen.

Die Frage, mit welcher Tiegelherstellungsweise sich die Anforderungen an die gezüchteten Laserkristalle optimal erfüllen lassen, soll am Ende von Kap. 6 aufgegriffen werden. Für die kommerzielle Produktion von hochschmelzenden Sesquioxiden in großen Abmessungen sind vermutlich galvanische Tiegel aufgrund ihrer einfacheren Skalierbarkeit und preisgünstigeren Produktion etwas besser geeignet. Allerdings werden in den meisten Fällen durch die geringere intrinsische Reinheit zunächst einige Reinigungszuchten erforderlich sein.

Lfd. Nr.	Wirtsmaterial	Dotierion	Einwaage [at.%]	Züchtungs- verfahren	Tiegelart	$p(\text{O}_2)$ [ $10^{-21}$ mbar]	Farbe	Rhenium-Eintrag	Konzentration SE-Ion [at.%]	Einbau- koeffizient
131		-		HEM	galv.	6 - 4	klar			
140				HEM		2 - 0,9	u. stark blau			
133			0,15	HEM		4 - 2	klar			
127			1	HEM		-	rot	am Boden	0,96	0,96
128			2	HEM		4 - 3	klar		2,17	1,09
129			3	HEM	pulv.	4 - 3	klar	am Boden	3,27	1,09
130		Yb	5	HEM		4,5 - 3	klar	am Boden	5,14	1,03
146	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		10	HEM		5 - 2,5	klar		10,0	1,00
			5	NK		0,01	schwarz/rot			
151			0,5	HEM		2 - 1,5	klar			
147			5	HEM	galv.	2 - 0,6	klar			
150			5	HEM		0,9 - 0,4	u. stark rot			
149		Er	0,3	HEM	galv.	(2 - 0,5)	rot/blau/klar	vorw. unten		
142		Tm	1	HEM	galv.	20 - 10	klar	viele Partikel		
154			1	NK	pulv.	0,01	schwarz/blau			
144	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb	3	HEM	pulv.	8 - 1,5	klar		2,4	0,7
152		Er/Yb	0,3/0,5	HEM	galv.	15 - 5	klar	vorw. unten		
132	LuScO <sub>3</sub>	Yb	1	HEM	pulv.	15 - 6	klar		1,05	1,05
143			3	HEM		6 - 1,5	klar		3,15	1,05
153		-		HEM	galv.	-	klar			
139				HEM		6 - 1,5	klar			
160	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb	3	HEM	galv.	.. - 1,5	u. stark grün		3,2	1,07
138		Er	0,3	HEM	galv.	.. - 1,5	klar	am Boden		

**Tabelle 4.3:** Liste der hergestellten Kristalle. Die Abkühlrate des Yb(1 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (lfd. Nr. 127) betrug statt 50°C/h etwa 70°C/h. Durch die reduzierte Abkühldauer konnten vermutlich weniger Sauerstofffehlstellen ausgeheilt werden, wodurch der Kristall eine leichte Rotfärbung behielt. Der angegebene Sauerstoffpartialdruck gibt die mittels Sauerstoffsonde ermittelten Werte während der Züchtungsdauer wieder. Bedeutung der Spalte Rhenium-Eintrag: -am Boden- Re-Partikel hauptsächlich am Boden des Kristalls; -vorw. unten- Re-Partikel bis einige mm in den Kristall hinein; -viele Partikel- Re-Eintrag im gesamten Kristall.

# 5 Spektroskopische Untersuchungen

Die Kenntnis der spektroskopischen Eigenschaften ist von fundamentaler Bedeutung für die Beurteilung von Lasermaterialien. Aus den Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitten sowie der Lebensdauer der angeregten Zustände lassen sich die zu erwartenden Lasereigenschaften des Materials abschätzen.

Im folgenden Kapitel werden zunächst die Messverfahren vorgestellt, die zur Bestimmung der spektroskopischen Eigenschaften eingesetzt wurden. Anschließend werden die experimentellen Ergebnisse der Untersuchungen diskutiert und mit Literaturdaten verglichen. Eine Zusammenfassung der erhaltenen Resultate und die vorläufige Beurteilung der Eignung der untersuchten Materialien für Hochleistungsanwendungen schließen das Kapitel ab.

## 5.1 Spektroskopische Messverfahren

### 5.1.1 Bestimmung der Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte

#### Absorptionswirkungsquerschnitte

Nach dem Lambert-Beer-Gesetz gilt für die transmittierte Intensität  $I(\lambda)$  bei der Wellenlänge  $\lambda$

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

wobei  $I_0$  die eingestrahlte Intensität und  $l$  die Kristalllänge ist. Der Absorptionskoeffizient  $\alpha(\lambda)$  ergibt sich zu

$$\alpha(\lambda) = \frac{1}{l} \cdot \ln \left( \frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)} \right). \quad (5.2)$$

Nach Korrektur der Fresnelverluste an den Probenoberflächen ergibt sich der Absorptionswirkungsquerschnitt  $\sigma_{abs}(\lambda)$  mit Kenntnis der Dotierungskonzentration pro Volumen  $N_{dot}$  zu

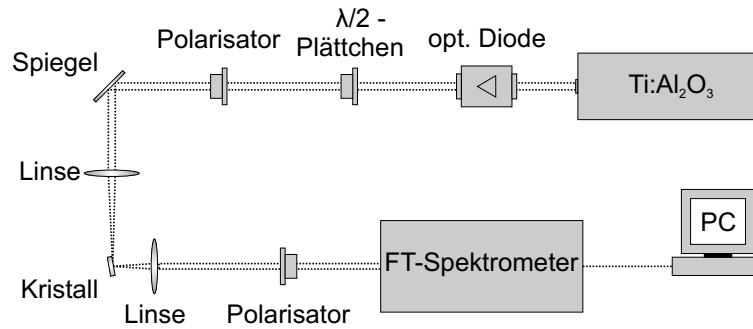
$$\sigma_{abs}(\lambda) = \frac{\alpha(\lambda)}{N_{dot}}. \quad (5.3)$$

Die Bestimmung der Raumtemperatur-Absorptionswirkungsquerschnitte der Materialien erfolgte über die Messung der Transmissionscharakteristik mit einem Cary 5000 UV-VIS NIR Zweistrahl-Spektrophotometer.

#### Emissionswirkungsquerschnitte

Die Anregung der untersuchten Kristalle erfolgte mit einem Titan:Saphir-Laser je nach Material bei unterschiedlichen Wellenlängen im Bereich zwischen 900 nm und 985 nm. Das von der

## 5 Spektroskopische Untersuchungen



**Abbildung 5.1:** Schematische Darstellung des Messaufbaus zur Bestimmung der spektralen Emissionscharakteristik.

Probe emittierte Licht wurde kollimiert und mittels eines Equinox 55 Fourier-Transformations-Spektrometers (FT-Spektrometer) der Marke Bruker analysiert (Abb. 5.1). Die dabei erreichte Auflösung betrug  $0,5 \text{ cm}^{-1}$ , welche für den Bereich um  $1 \mu\text{m}$  etwa  $0,05 \text{ nm}$  entspricht.

Die Berechnung der Emissionswirkungsquerschnitte kann anschließend über zwei verschiedene Verfahren erfolgen:

Bei der *Füchtbauer-Ladenburg-Methode* (FL-Methode) erfolgt die Berechnung auf Basis der gemessenen Fluoreszenzintensität  $I_{em}$  sowie der strahlenden Fluoreszenzlebensdauer  $\tau_i$ . Für isotrope Kristalle ergibt sich nach [Pay92]:

$$\sigma_{em}(\lambda) = \frac{\lambda^5 \beta I_{em}(\lambda)}{8\pi n^2 c \tau_i \int \lambda I_{em}(\lambda) d\lambda} \quad (5.4)$$

Hierbei ist  $n$  der Brechungsindex des Kristalls bei der betrachteten Wellenlänge und  $\beta$  das Verzweigungsverhältnis, welches im Falle von Ytterbium mit nur einem Zerfallskanal gleich Eins ist. Für uniaxiale Kristalle wie Yb:NGW muss Gl. 5.4 modifiziert werden. Es ergibt sich mit  $j = \pi, \sigma$  nach [Hub75, Mou86] für die jeweilige Polarisation:

$$\sigma_{em}^j(\lambda) = \frac{1}{8\pi n^2 c \tau_i} \cdot \frac{\lambda^5 I_{em}^j(\lambda)}{\frac{1}{3} \int \lambda I_{em}^\pi(\lambda) d\lambda + \frac{2}{3} \int \lambda I_{em}^\sigma(\lambda) d\lambda} \quad (5.5)$$

Bei der FL-Methode ergeben sich in der Regel zwei mögliche Fehlerquellen:

Die erste liegt in der ungenauen Kenntnis der strahlenden Lebensdauer  $\tau_i$  begründet, da diese durch Prozesse wie Konzentrationslöschung oder nichtstrahlende Relaxation über Gitterschwingungen verkürzt sein kann.

Die zweite Fehlerquelle beruht auf Reabsorption innerhalb der Probe. Da die untersuchten Kristalle ein endliches Volumen besitzen, kommt es bei der Messung in Spektralbereichen, in denen sich Emissions- und Absorptionsbanden überlagern, zu einer Verfälschung der gemessenen Emissionscharakteristik. Dies kann in diesen Bereichen zu einer deutlichen Verminderung der beobachteten Fluoreszenzintensität führen. Bei der Berechnung mittels der FL-Methode ergibt sich somit einerseits ein verfälschter Kurvenverlauf. Da dieser zudem im Integral zur Normierung verwendet wird (Gl. 5.4), ergeben sich andererseits für die Wirkungsquerschnitte in Bereichen ohne Reabsorption in der Folge zu hohe Werte. Dieser Effekt kann durch die Verwendung von sehr dünnen Proben sowie der Anregung des Kristalls unter streifendem Einfall der Pumpstrahlung auf der dem Detektor zugewandten Seite verringert werden.

Das zweite Verfahren zur Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte ist die sogenannte *Reziprozitätsmethode*. Bei dieser wird die Tatsache ausgenutzt, dass die atomaren Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitt für einen bestimmten Übergang zwischen zwei Niveaus identisch sind (Gl. 2.14) und auf Übergänge erweitert, bei denen Stark-Multipletts beteiligt sind. Die Unterschiede zwischen beiden Wirkungsquerschnitten ergeben sich in diesem Modell ausschließlich durch die unterschiedliche thermische Besetzung der einzelnen Stark-Niveaus. Über die Gewichtung mittels Boltzmannfaktoren erhält man nach [McC64]:

$$\sigma_{em}^j(\lambda) = \sigma_{abs}^j(\lambda) \cdot \frac{Z_u}{Z_o} \cdot \exp\left(\frac{E_{ZL} - \frac{hc}{\lambda}}{k_B \cdot T}\right). \quad (5.6)$$

Darin ist  $Z_u$  die Zustandsumme des unteren bzw.  $Z_o$  die des oberen Multipletts (vgl. Gl. 2.29),  $E_{ZL}$  die Energie der Nullphononlinie und  $T$  die Temperatur. Zur Berechnung der Zustandssummen wird die Stark-Aufspaltung der beteiligten  $^2F_{5/2}$ - und  $^2F_{7/2}$ -Multipletts benötigt.

Aufgrund der direkten Abhängigkeit zum Absorptionswirkungsquerschnitt ergibt sich das generelle Problem, dass die Reziprozitätsmethode nur in Bereichen angewendet werden kann, in denen eine signifikante Absorption vorliegt. Zudem wird im langwelligen Teil durch den zunehmenden energetischen Abstand zur Nullphononenlinie der Exponentialteil in Gl. 5.6 sehr groß, sodass es in diesem Bereich in der Regel zu einer zunehmenden Verschlechterung des Signal-zu-Rauschverhältnisses kommt.

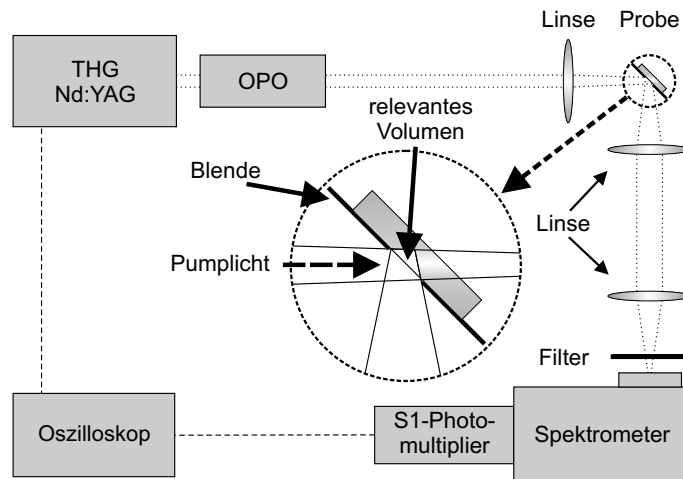
In der Vergangenheit hat sich daher eine Kombination aus Füchtbauer-Ladenburg- und Reziprozitätsmethode als geeignet erwiesen [Hau02]. Dabei werden zunächst die Wirkungsquerschnitte mittels Reziprozitätsmethode berechnet. Anschließend werden das geeichte Fluoreszenzspektrum gemäß der Füchtbauer-Ladenburg-Gleichung mit  $\lambda^5$  multipliziert. Die Normierung erfolgt über den Vergleich mit den Ergebnissen der Reziprozitätsmethode und ein Angleichen des FL-Spektrums an diese in Bereichen in denen beide Verfahren eine relativ gute Übereinstimmung zeigen. Anschließend wird der langwellige, rauscharme Teil des FL-Spektrums mit dem kurzwelligen Teil der Reziprozitätsmethode in einer Kurve kombiniert. Die so erhaltenen Emissionsspektren sind nur noch geringfügig durch Reabsorption verfälscht und durch die Reziprozitätsmethode auch in ihren absoluten Werten relativ genau.

### 5.1.2 Fluoreszenzdynamik

Die Fluoreszenzlebensdauer des oberen Laserniveaus hat, wie auch die Emissionswirkungsquerschnitte, großen Einfluss auf wichtige Laserparameter wie die Laserschwelle oder die im Lasermedium speicherbare Energie. Sie stellt zudem ein Maß für die Kristallqualität dar, da es mit steigender Anzahl von Verunreinigungen im Kristall zu einer Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer kommen kann. Die genaue Bestimmung dieser Größe ist allerdings im Allgemeinen schwierig. Insbesondere bei Yb-dotierten Lasermedien kommt es, aufgrund des relativ großen Überlapps der Absorptions- und Emissionsbanden zur Reabsorption innerhalb des aktiven Mediums. Dieser als *radiation-trapping* bezeichnete Effekt äußert sich experimentell in einer Zunahme der gemessenen Fluoreszenzlebensdauer. Die Stärke des Effektes ist dabei neben der Yb-Dichte und dem Wirtsmaterial auch von der Probengeometrie abhängig.

Um die Fluoreszenzlebensdauer ohne Beeinflussung durch radiation-trapping zu ermitteln, können verschiedene experimentelle Verfahren angewandt werden. Unter diesen haben sich ne-

## 5 Spektroskopische Untersuchungen



**Abbildung 5.2:** Schematische Darstellung des Messaufbaus zur Bestimmung der Fluoreszenzlebensdauer mittels der Pinhole-Methode.

ben anderen die *Pulver-Methode* (engl. *index matching fluid method*) und die *Pinhole-Methode* (engl. für Blende) als geeignet erwiesen.

Bei der sogenannten Pulver-Methode werden die Kristalle zu feinem Pulver mit einer Kristallitgröße von einigen zehn Mikrometern zermahlen [Kis04]. Die Kristallite werden anschließend in einer Flüssigkeit mit ähnlichem Brechungsindex suspendiert, wodurch die Totalreflexion an den Kristallitgrenzen verringert wird. Durch kontinuierliches Verdünnen der Lösung wird die effektive Ionendichte und somit die Wahrscheinlichkeit für Reabsorption verringert. Die gemessene Fluoreszenzlebensdauer nähert sich hierbei bei steigender Verdünnung einem konstanten Wert an. Fehler ergeben sich hierbei vor allem durch Schwankungen in der Kristallitgröße, da es mit abnehmendem Korndurchmesser vermehrt zu Oberflächeneffekten und Totalreflexion innerhalb der Partikel kommt. Ein weiterer Nachteil ist, dass bei diesem Verfahren die Proben zerstört werden.

Die sogenannte Pinhole-Methode basiert auf dem von Sumida und Fan [Sum94] beobachteten Effekt der reduzierten Reabsorption bei Vermessung dünner Yb:YAG-Scheiben. Durch Verwendung einer Blende, welche Bereiche ohne Primäranregung ausblendet, konnte eine weitere Reduzierung der Reabsorption erreicht werden.

Die in dieser Arbeit verwendete Pinhole-Methode stellt eine Weiterentwicklung dieses Verfahrens dar. Hierbei wird über die gemessenen Lebensdauern bei unterschiedlichen Blendendurchmessern  $d$  auf den Grenzfall  $\tau(d = 0)$  extrapoliert. In der Modellvorstellung ist dies gleichbedeutend mit einem reabsorptionsfrei emittierenden, infinitesimalen Volumen. Ein Vergleich mit der zuvor beschriebenen Pulver-Methode lieferte eine gute Übereinstimmung der Werte [Pet05]. Der experimentelle Aufbau zur Messung der Fluoreszenzlebensdauer mit der Pinhole-Methode ist in Abb. 5.2 dargestellt. Als Anregungsquelle wurde ein Optisch-Parametrischer-Oszillator (OPO) mit einer Pulsdauer von etwa 10 ns verwendet. Die Proben, welche idealerweise eine Dicke von einigen 100  $\mu\text{m}$  nicht überschreiten sollten, befinden sich unter einem Winkel von etwa  $45^\circ$  zum Anregungsstrahl hinter einer Blende, mit einem Durchmesser zwischen 0,5 mm und 2,5 mm. Das emittierte Licht wird kollimiert und auf den Eingangsspalt eines 0,5 m-SPEX-Monochromators abgebildet. Ferner wurde vor dem Eingangsspalt ein Filter eingefügt, um eine Beeinflussung des Messergebnisses durch gestreutes Anregungslicht zu verhin-

dern. Das Fluoreszenzlicht wurde anschließend mit Hilfe eines S1-Photomultipliers detektiert. Die optimale Detektionswellenlänge ergibt sich dabei aus der Emissionscharakteristik der Proben sowie der spektralen Empfindlichkeit des Detektors und lag bei allen Proben im Bereich zwischen 1020 nm und 1040 nm. Um das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu verbessern, wurde am Oszilloskop je nach Fluoreszenzintensität über einige 100 Pulse gemittelt. Die registrierte Fluoreszenzintensität  $I(t)$  folgt dabei einem exponentiellen Verlauf gemäß

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-t/\tau} \quad (5.7)$$

mit der gemessenen Lebensdauer  $\tau'$  und der Intensität  $I_0$  zur Zeit  $t = 0$ .

Eine erste theoretische Beschreibung des radiation-trapping wurde von Auzel et al. gegeben [Auz03]. Aufgrund der beobachteten Abhängigkeit der gemessenen Fluoreszenzlebensdauer vom Kristallvolumen wurde unter der Annahme einer hohen Transparenz des betrachteten Festkörpers die empirische Formel

$$\tau' = \tau_i(1 + \sigma_{reabs}N_{dot}l) \quad (5.8)$$

aufgestellt. Dabei ist  $\tau'$  die gemessene Lebensdauer unter Trapping-Bedingungen,  $\tau_i$  die intrinsische Lebensdauer,  $\sigma_{reabs}$  der Reabsorptionswirkungsquerschnitt,  $N_{dot}$  die Dichte der Dotierionen und  $l$  die mittlere Weglänge im Kristall. Gl. 5.8 beschreibt dabei recht gut den beobachteten linearen Zusammenhang zwischen  $\tau'$  und dem Blendendurchmesser.

Eine befriedigende theoretische Beschreibung der Beobachtungen wurde jedoch erst von H. Kühn et al. gegeben [Küh07]. Dabei wird die Differentialgleichung für einen exponentiellen Zerfall um einen zusätzlichen Term zur Beschreibung der Reabsorption ergänzt

$$\frac{dN(\vec{x}, t)}{dt} = -\frac{N(\vec{x}, t)}{\tau} + \sigma_{abs}N_{dot} \int_V \frac{N(\vec{x}', t)}{\tau} \frac{e^{-|\vec{x}-\vec{x}'|\sigma_{abs}N_{dot}}}{4\pi|\vec{x}-\vec{x}'|^2} dV'. \quad (5.9)$$

Hierbei steht  $N(\vec{x}, t)$  für die Dichte der angeregten Ionen,  $N_{dot}$  für die Dotierungskonzentration und  $V$  für ein endliches angeregtes Kristallvolumen.

Da sich diese Gleichung für ein beliebiges endliches Kristallvolumen nicht exakt lösen lässt, wird  $V$  zunächst durch ein unendliches, homogen angeregtes Kristallvolumen  $V_\infty$  ersetzt. Zusätzlich wird ein Dämpfungsterm  $\exp(-|\vec{x}-\vec{x}'|l^{-1})$  eingeführt, um das Entweichen der Photonen aus dem Kristall zu berücksichtigen. Darin stellt  $l$  die mittlere zurückgelegte Strecke eines emittierten Photons bis zum Verlassen des Kristalls dar. Gl. 5.9 lässt sich somit umschreiben zu

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\frac{N(t)}{\tau} + \sigma_{abs}N_{dot} \int_{V_\infty} \frac{N(t)}{\tau} \frac{e^{-|\vec{x}-\vec{x}'|(\sigma_{abs}N_{dot}+l^{-1})}}{4\pi|\vec{x}-\vec{x}'|^2} dV'. \quad (5.10)$$

Durch die Einführung von Kugelkoordinaten vereinfacht sich die Gleichung zu

$$\frac{dN(t)}{dt} = \frac{N(t)}{\tau(1 + \sigma_{abs}N_{dot}l)}. \quad (5.11)$$

Die Lösung dieser Gleichung lässt sich in analoger Form zu Gl. 5.7 darstellen als

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-\frac{t}{\tau'}} \quad \text{mit} \quad \tau' = \tau_i(1 + \sigma_{abs}N_{dot}l). \quad (5.12)$$

Wie leicht zu erkennen ist, ergibt sich der bereits in Gl. 5.8 empirisch ermittelte Zusammenhang zwischen gemessener Fluoreszenzlebensdauer und der im Kristall zurückgelegten Strecke  $l$ . Da die Absorptionslänge der untersuchten Kristalle in der Regel in der gleichen Größenordnung wie der angeregte Kristallbereich ist, kann davon ausgegangen werden, dass die Photonen im Mittel höchstens einmal reabsorbiert werden. Die mittlere im Kristall zurückgelegte Weglänge  $l$  ist damit direkt proportional zum Blendendurchmesser.

## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien

Zunächst werden die aus der Literatur bekannten Stark-Aufspaltungen der unterschiedlichen Materialien diskutiert. Anschließend werden die Ergebnisse der spektroskopischen Untersuchungen vorgestellt. Dabei wird zunächst auf die Resultate der Fluoreszenzlebensdauermessungen eingegangen. Anschließend werden die errechneten Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte diskutiert. Die Einführung der Verstärkungswirkungsquerschnitte ermöglicht schließlich eine erste Abschätzung der Lasereigenschaften.

### 5.2.1 Stark-Aufspaltung

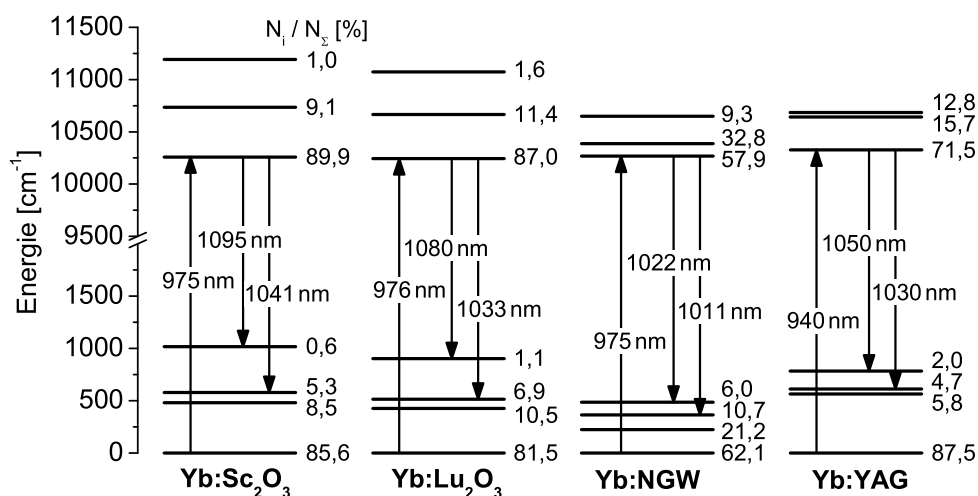
Durch den Einfluss des Kristallfelds kommt es zur Aufspaltung der beiden Energieniveaus des  $\text{Yb}^{3+}$ -Ions. Diese beträgt in der Regel einige  $100 \text{ cm}^{-1}$ . Das energetisch tiefer liegende  ${}^2F_{7/2}$ -Niveau bildet den Grundzustand und ist vierfach aufgespalten, während das energetisch höhere  ${}^2F_{5/2}$ -Multipllett dreifach aufgespalten ist. Bei Raumtemperatur kommt es zum einen durch die thermische Besetzung der höheren Stark-Niveaus zu Überlagerung der einzelnen Emissions- und Absorptionspeaks, zum anderen können auch Übergänge beobachtet werden, bei denen Gitterschwingungen erzeugt oder vernichtet werden. Hinzu kommen die in Kap. 2.2.1 angesprochenen inhomogenen Verbreiterungsmechanismen. Die Bestimmung der genauen Lage der Stark-Niveaus ist dadurch in der Regel überaus schwierig, aber für die Berechnung der Emissionswirkungsquerschnitte mittels der Reziprozitätsmethode unerlässlich.

Umfangreiche Untersuchung zur Bestimmung der Stark-Aufspaltung in Yb-dotierten Sesquioxiden wurden von Mix und Peters durchgeführt [Mix99, Pet01]. Zu den bereits beschriebenen Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Stark-Niveaus kommt im Falle der Sesquioxide noch das Auftreten zweier spektroskopisch unterschiedlicher Plätze. Die bereits in Kap. 3.4 beschriebenen  $C_2$ - und  $C_{3i}$ -Plätze unterscheiden sich dabei vor allem durch verschiedene Übergangswahrscheinlichkeiten und unterschiedliche spektrale Charakteristiken. Die Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte sind dabei bei den  $C_2$ -koordinierten Yb-Ionen etwa eine Größenordnung höher als in  $C_{3i}$ -Koordination [Pet01]. Zudem findet oberhalb von 50 K sowie bei Yb-Konzentrationen von mehr als 5 at.% ein Energietransfer von den  $C_{3i}$ - zu den  $C_2$ -Plätzen statt. Die spektroskopischen Eigenschaften bei Raumtemperatur sind dadurch nahezu ausschließlich durch die  $C_2$ -Plätze bestimmt.

Auch in  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  können die Yb-Ionen zwei leicht unterschiedliche Gitterplätze einnehmen (vgl. Kap. 3.3), deren elektronische Übergänge bis zu einigen Nanometern verschoben sind [Pet05, Cas06]. Bei Raumtemperatur ergeben sich dadurch zusammen mit der statistischen Variation des lokalen Kristallfelds relativ breite Banden. Die Stark-Aufspaltung aller unter-



## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien



**Abbildung 5.3:** Schematische Darstellung der Stark-Aufspaltung der untersuchten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG. Die Werte für Yb:NGW stammen aus [Pet05]; Yb:YAG [Bog76]; Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sind [Pet01] entnommen. Rechts neben den Niveaus ist die jeweilige thermische Besetzung bei 300 K angegeben.

suchten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG ist in Abb. 5.3 zusammen mit den jeweiligen thermischen Besetzungen bei 300 K schematisch dargestellt. Eine genaue Auflistung der Stark-Niveaus wird in Anhang D gegeben.

Betrachtet man die Besetzungsverhältnisse innerhalb der Multipletts, können erste Auswirkungen auf die Lasereigenschaften abgeschätzt werden. Während die Besetzung der untersten Stark-Niveaus beider Multipletts in den Yb-dotierten Sesquioxiden vergleichbar mit Yb:YAG ist, weicht Yb:NGW aufgrund einer insgesamt geringeren Stark-Aufspaltung zum Teil erheblich davon ab. Durch die größere thermische Besetzung der höher liegenden Stark-Niveaus kommt es in Yb:NGW vermehrt zu Reabsorption, wodurch sich die zum Erreichen der Transparenzschwelle nötige Pumpleistungsdichte erhöht. Zudem stammt durch die hohe Besetzung (etwa 33%) des zweiten Stark-Niveaus des oberen Multipletts ein beträchtlicher Teil der Fluoreszenz aus diesem Niveau. Durch den energetischen Unterschied zum untersten Stark-Niveau desselben Multipletts kommt es so zu einer Verbreiterung des Emissionsspektrums.

Für die Sesquioxide ergibt sich im Vergleich zu YAG eine etwas größere Stark-Aufspaltung, wodurch es sowohl in Absorption als auch in Emission zu insgesamt breiteren Spektren kommt. Die thermische Besetzung des Laserziel-niveaus ist dabei mit der von YAG vergleichbar.

### 5.2.2 Fluoreszenzdynamik

Bei höheren Dotierungskonzentrationen tritt in vielen Ytterbium-dotierten Materialien eine Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer auf. Diese hängt in der Regel von der Menge sowie vom Typ der im Kristall enthaltenen Verunreinigungen ab. Eine häufig auftretende Verunreinigung ist dabei Yb<sup>2+</sup>, das bereits für Yb:YAG als effizienter Quencher identifiziert wurde [Mül01]. Das zweiwertige Ytterbium kann in der Nähe einer Sauerstofffehlstelle oder einer Verunreinigung entstehen, welche für die erforderliche Ladungskompensation sorgt. Es kann jedoch bis auf

## 5 Spektroskopische Untersuchungen

wenige Ausnahmen in der Regel komplett durch Tempern der Kristalle zu  $\text{Yb}^{3+}$  umgewandelt werden. Auch  $\text{Fe}^{2+}$  und  $\text{Ni}^{2+}$  können zu einer deutlichen Reduzierung der Fluoreszenzlebensdauer führen [Mar02].

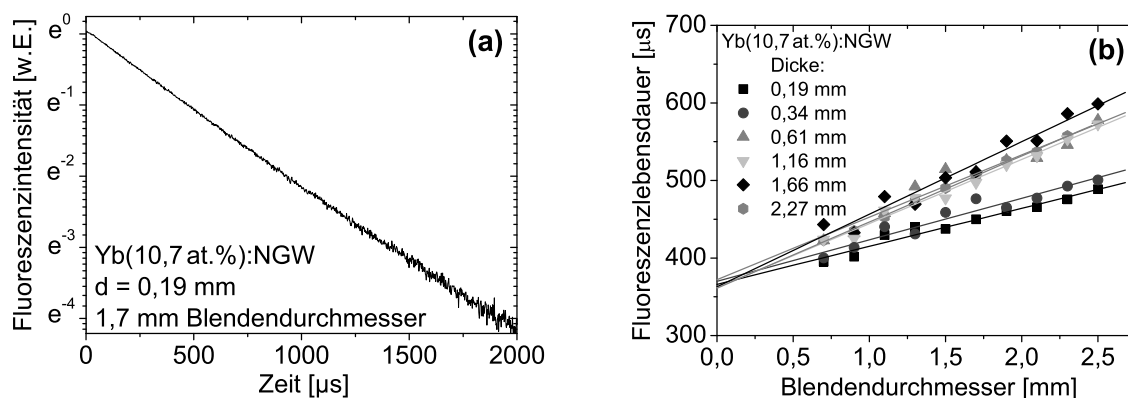
Verunreinigungen im Kristall können in den meisten Fällen nur durch Rohmaterialien mit einer hohen Reinheit von 5N, bzw. 6N vermieden werden. Untersuchungen von A. Bolz [Bol01] an  $\text{Yb}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ , welches mit geringen Mengen anderer Seltenerd-Ionen codotiert wurde, zeigten einen starken Effekt für Pr, Sm, Dy, Ho und Tm, während Nd, Eu, Tb und Er nur einen geringen Einfluss auf die Lebensdauer hatten. Auch Übergangsmetalle wie Chrom bewirkten eine starke Verkürzung der Fluoreszenzlebensdauer. Hinzu kommen Einflüsse durch die Reinheit der Tiegelmaterialien.

### $\text{Yb}:\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$

In Abb. 5.4a ist beispielhaft die Fluoreszenzabklingkurve eines  $\text{Yb}(10,7 \text{ at.}\%):\text{NGW}$ -Kristalls mit einer Dicke von 0,19 mm bei einem Blendendurchmesser von 1,7 mm gegeben. Durch die logarithmische Darstellung ergibt sich im Idealfall ein linearer Verlauf der Kurve.

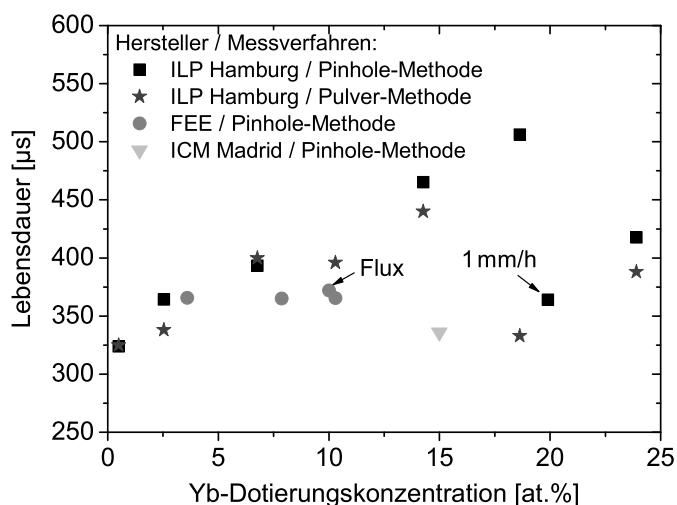
Die gemessenen Fluoreszenzlebensdauern in Abhängigkeit des Blendendurchmessers und der Kristalldicken sind am Beispiel des gleichen Kristalls in Abb. 5.4b dargestellt. Für diesen ergibt sich in guter Übereinstimmung zu Gl. 5.12 ein linearer Zusammenhang zwischen dem Pinhole-Durchmesser und der gemessenen Fluoreszenzlebensdauer. Die Extrapolation auf ein infinitesimales Kristallvolumen ergibt dabei im Rahmen des Fehlers für alle untersuchten Probendicken zwischen 0,19 mm und 2,27 mm eine ähnliche Fluoreszenzlebensdauer von etwa  $370 \mu\text{s}$ . Wie zu erwarten war, steigt dabei der Einfluss des radiation-trapping mit der Kristalldicke, was sich in einer zunehmenden Steigung der Ausgleichsgeraden äußert.

In Abb. 5.5 ist die Fluoreszenzlebensdauer von  $\text{Yb}:\text{NGW}$  in Abhängigkeit der Dotierkonzentration dargestellt. Je nach Hersteller und Yb-Konzentration ergeben sich unterschiedliche Werte. Die Lebensdauer steigt dabei von  $325 \mu\text{s}$  für 0,5 at.% Yb-Dotierung auf etwa  $510 \mu\text{s}$  bei einer Yb-Konzentration von 18,6 at.%. Neben der Möglichkeit, dass das radiation-trapping nicht vollständig durch das Messverfahren ausgeschlossen wird, könnte eine weitere Ursache



**Abbildung 5.4:** a) Beispiel einer Fluoreszenzabklingkurve für einen 0,19 mm dicken, 10,7 at.% Yb-dotierten NGW-Kristall bei einem Blendendurchmesser von 1,7 mm. b) Gemessene Fluoreszenzlebensdauern des gleichen Kristalls bei unterschiedlichen Blendendurchmessern und Kristalldicken.

## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien



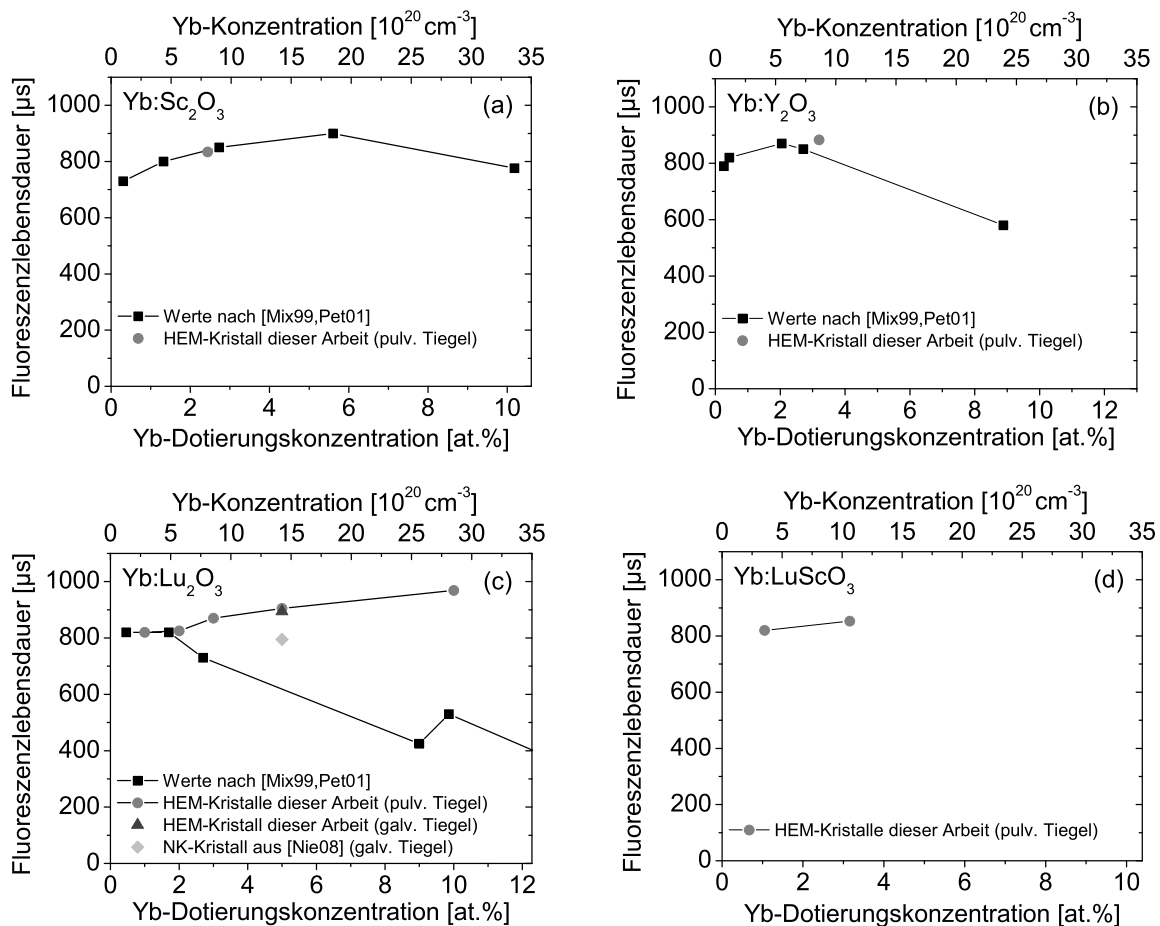
**Abbildung 5.5:** Dotierungsabhängige Fluoreszenzlebensdauer für Yb:NGW. Die Abkürzung ICM steht dabei für Proben aus [Zal06]. FEE steht für Proben aus [Ryt06]

für den Anstieg eine mit der Dotierungskonzentration zunehmende Änderung der Kristallstruktur sein [Cas06]. Für eine Yb-Konzentration von 23,9 at.% sinkt die Lebensdauer auf etwa 420  $\mu\text{s}$  ab. Zudem wird bei einigen Kristallen eine geringere Lebensdauer beobachtet. Diese tritt zum einen bei Proben mit geringeren Züchtungsgeschwindigkeiten (19,9 at.% Yb und ICM 15 at.% Yb [Zal06]) und zum anderen bei den von der Firma FEE hergestellten Proben auf. Letzteres kann durch eine geringere Reinheit der Ausgangsmaterialien erklärt werden, da das hierbei verwendete  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  lediglich eine Reinheit von 99,5% besaß. Die Korrelation zur Wachstumsgeschwindigkeit kann auf eine erhöhte Anzahl von Verunreinigungen hindeuten, da es in der Regel bei kleinen Wachstumsraten vermehrt zum Einbau dieser kommt. Auch die Möglichkeit einer leicht unterschiedlichen Kristallstruktur der einzelnen Proben kann nicht ausgeschlossen werden (vgl. Kap. 3.3), da diese ebenfalls von der Wachstumsgeschwindigkeit beeinflusst wird [Cas08].

### Yb-dotierte Sesquioxide

Systematische Untersuchungen der Fluoreszenzlebensdauer des  $\text{Yb}^{3+}$  in kubischen Sesquioxiden wurden von Mix und Peters durchgeführt [Mix99, Pet01]. Die Messung erfolgte dabei ähnlich dem von Sumida und Fan beschriebenen Verfahren [Sum94], wobei Proben mit einer Dicke zwischen 100  $\mu\text{m}$  und 200  $\mu\text{m}$  verwendet wurden. Bei niedrigen Dotierungskonzentrationen wurden für  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  ähnliche Fluoreszenzlebensdauern im Bereich zwischen 730  $\mu\text{s}$  und 820  $\mu\text{s}$  bestimmt. Mit steigender Dotierung nahmen diese in allen Fällen leicht zu. Als Ursache hierfür wurde von den Autoren radiation-trapping angeführt. Bei Konzentrationen von mehr als 2 at.% kam es im Falle von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  zu einer Abnahme der Fluoreszenzlebensdauer durch Konzentrationslöschung (vgl. Abb. 5.6), welche bei  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  am stärksten ausgeprägt war. Als Ursache wurden Ho-Verunreinigungen in den Ausgangsmaterialien vermutet [Mix99]. Lediglich Yb: $\text{Sc}_2\text{O}_3$  war nahezu frei von Konzentrationslöschung und zeigte erst

## 5 Spektroskopische Untersuchungen



**Abbildung 5.6:** Dotierungsabhängige Fluoreszenzlebensdauern verschiedener Sesquioxide im Vergleich zu früheren Werten aus [Mix99, Pet01, Nie08]. (a) Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (b) Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (c) Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (d) Yb:LuScO<sub>3</sub>

ab einer Yb-Konzentration von 6 at.% eine leichte Abnahme der Fluoreszenzlebensdauer.

Um die Kristallqualität der unterschiedlichen Proben miteinander zu vergleichen, wurden an allen hergestellten Kristallen Lebensdauermessungen durchgeführt. Die Ergebnisse der Fluoreszenzlebensdauermessungen sind in Abb. 5.6 im Vergleich zu Literaturwerten aufgeführt.

Für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, welches bereits in der Vergangenheit in relativ hoher Reinheit hergestellt werden konnte [Bol01], ergibt sich bei den aktuellen Untersuchungen für den 2,4 at.-%-dotierten Kristall eine Fluoreszenzlebensdauer von 834  $\mu\text{s}$  (Abb. 5.6a). Der Wert stimmt dabei recht gut mit der in [Mix99] dokumentierten Fluoreszenzlebensdauer überein.

Die Fluoreszenzlebensdauer von Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> liegt bei einer Dotierung von 3,2 at.% mit etwa 883  $\mu\text{s}$  leicht über den Werten von [Mix99] und stellt somit eine Verbesserung zu früheren Kristallen dar (Abb. 5.6b). Inwieweit sich dies auf die Lasereigenschaften des Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> auswirkt, wird momentan im Rahmen der Diplomarbeit von K. Schenk untersucht [Sch09].

Der auffälligste Unterschied zwischen den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und früheren Kristallen tritt jedoch bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> auf (Abb. 5.6c). Hier liegt die Lebensdauer bei 10 at.% Yb-Dotierung mit 969  $\mu\text{s}$  weit über dem in [Pet01] dokumentierten Wert von etwa 530  $\mu\text{s}$ . Es ist eine deutliche Verringerung der Konzentrationslöschung zu beobachten, was durch die ho-

he Reinheit (6N) des verwendeten  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -Rohmaterials zu erklären ist. Um den Einfluss der Reinheit des für die Kristallzüchtung verwendeten Tiegels zu untersuchen, wurde eine 5 at.-%-dotierte Probe einer vergleichbaren HEM-Züchtung aus einem galvanisch hergestellten Re-Tiegel vermessen. Diese zeigte mit  $894 \mu\text{s}$  im Rahmen der Messgenauigkeit keine Abweichung zur Fluoreszenzlebensdauer von  $905 \mu\text{s}$  der Probe aus dem pulvermetallurgischen Tiegel. Eine weitere Vergleichszüchtung wurde im Rahmen der Diplomarbeit von D. Nies mittels des NK-Verfahrens aus einem 20 mm-Tiegel galvanischer Herstellungsweise durchgeführt [Nie08]. Die dabei gemessene Fluoreszenzlebensdauer eines ebenfalls 5 at.-% Yb-dotierten  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  liegt mit  $795 \mu\text{s}$  etwa 12% unter dem Wert der HEM-Kristalle. Eine abschließende Aussage über die Eignung galvanisch hergestellter Rheniumtiegel kann an dieser Stelle nicht gegeben werden, da die Ergebnisse diesbezüglich nicht eindeutig sind. Die Beobachtung der unverkürzten Fluoreszenzlebensdauer eines HEM-Kristalls aus einem solchen Tiegel legt allerdings die Vermutung nahe, dass prinzipiell auch bei galvanischen Tiegeln hohe Reinheitsgrade erreicht werden können.

Die Messung der Lebensdauer für  $\text{Yb:LuScO}_3$  ergab für die 1 at.-%-dotierte Probe  $810 \mu\text{s}$  und für die 3 at.-%-dotierte Probe einen Wert von  $854 \mu\text{s}$  (Abb. 5.6d). Die Fluoreszenzlebensdauer liegt somit in einem ähnlichen Bereich wie die der anderen untersuchten Sesquioxide.

Die Frage, ob der beobachtete Anstieg der Fluoreszenzlebensdauer mit der Yb-Konzentration auf nicht vollständig unterdrücktes radiation-trapping oder auf eine zunehmende Änderung des lokalen Kristallfelds zurückzuführen ist, kann an dieser Stelle nicht geklärt werden. Die gute Übereinstimmung der gemessenen Werte für  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  und  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  in Dotierungsbereichen ohne Konzentrationslöschung spricht allerdings für eine hohe Reproduzierbarkeit bei Verwendung der Pinhole-Methode. Hinweise auf eine Änderung des auf das aktive Ion wirkenden Kristallfelds könnten weiterführende Untersuchungen der Absorptionswirkungsquerschnitte in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration geben, da deren Integral mit der Übergangswahrscheinlichkeit und damit der Fluoreszenzlebensdauer verknüpft ist.

### 5.2.3 Absorptions- und Emissionswirkungsquerschnitte

Die Absorptionswirkungsquerschnitte wurden aus den Transmissionsspektren der jeweiligen Proben gemäß Gl. 5.2 und Gl. 5.3 sowie den in Kap. 4.2.6 mittels Mikrosondenuntersuchungen bestimmten Dotierungskonzentrationen berechnet.

Alle untersuchten Materialien zeigen eine starke Absorption im Bereich um  $975 \text{ nm}$ . Diese als Nullphononenlinie bezeichnete Bande stellt den Übergang zwischen dem jeweils untersten Stark-Niveau der beiden Multipletts dar. Während die Nullphononenlinie im Fall von  $\text{Yb:NGW}$  aufgrund der ungeordneten Struktur stark inhomogen verbreitert ist, weisen die Sesquioxide eine relativ geringe Bandbreite auf.

#### Yb:NGW

Um die spektroskopischen Eigenschaften von uniaxialen Kristallen vollständig beschreiben zu können, ist die Messung der Absorption und Emission in Abhängigkeit der Polarisierung notwendig. Die dabei erhaltenen Spektren werden mit  $\sigma$  ( $\vec{E} \perp c$ ) und  $\pi$  ( $\vec{E} \parallel c$ ) bezeichnet, wobei  $c$  die optische Achse des Kristalls darstellt (vgl. Abb. 3.1).

Veröffentlichungen zu den spektroskopischen Eigenschaften von  $\text{Yb:NGW}$  sind seit einigen

5 Spektroskopische Untersuchungen

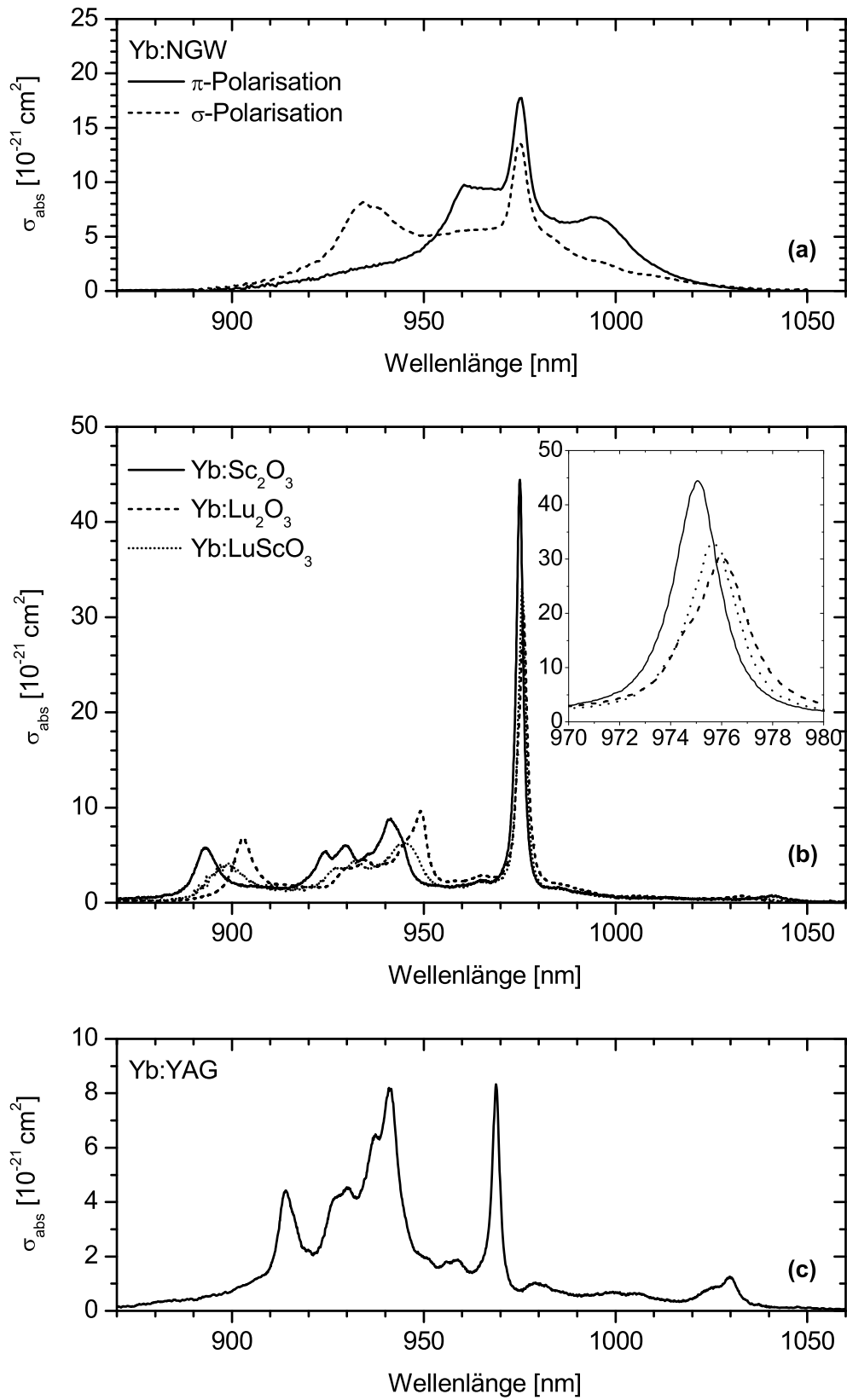
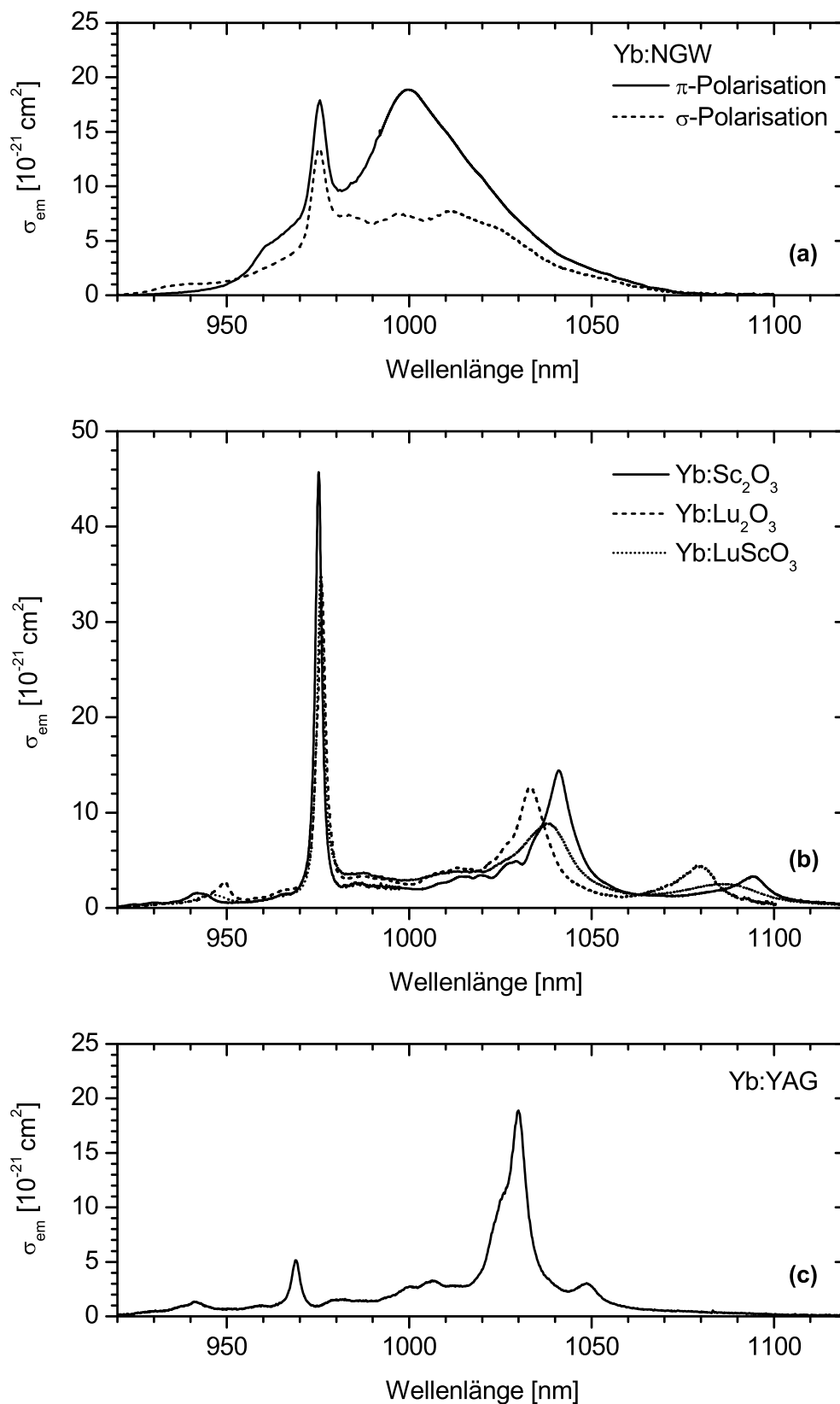


Abbildung 5.7: Absorptionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG.

## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien



**Abbildung 5.8:** Emissionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG.

## 5 Spektroskopische Untersuchungen

Jahren in der Literatur zu finden [Sub02, Vor03]. Die dabei gemachten Angaben für die Emissionswirkungsquerschnitte variieren jedoch um einige 10%, was vor allem auf den Einfluss der Reabsorption zurückzuführen ist. Zudem wurde von Lis et al. eine Abhängigkeit der gemessenen Emissionscharakteristik von der Yb-Dotierungskonzentration beschrieben [Lis04]. Dies wurde auf eine zunehmende Unordnung des Kristallgitters zurückgeführt, da ein großer Teil der  $Gd^{3+}$ -Ionen durch die deutlich kleineren Yb-Ionen substituiert wird. Diese Beobachtung stand allerdings in Widerspruch mit den von den gleichen Autoren veröffentlichten Strukturuntersuchungen [Zha03] sowie der bis dahin angenommenen Raumgruppe und lieferte dadurch keine befriedigende Erklärung für das Verhalten. Umfangreiche spektroskopische Untersuchungen, insbesondere zur Bestimmung der Stark-Niveaus, sind in [Pet05, Cas06] dokumentiert. Hierbei konnte erstmals die in Kap. 3.3 erwähnte Existenz zweier unterschiedlicher Platztypen belegt werden, die vom  $Yb^{3+}$  eingenommen werden können.

Die Ergebnisse der Raumtemperatur-Absorptionssmessungen sind in Abb. 5.7a dargestellt. Der maximale Wirkungsquerschnitt wird in beiden Polarisierungen bei etwa 975 nm gemessen. Der Absorptionswirkungsquerschnitt in  $\pi$ -Polarisation ist dabei mit  $\sigma_{abs} = 17,7 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  etwa 25% höher als in  $\sigma$ -Polarisation ( $\sigma_{abs} = 13,6 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ ). Die Halbwertsbreite (FWHM) der Banden beträgt etwa 8 nm - 9 nm und eignet sich damit hervorragend für das optische Pumpen mittels Laserdioden, welche typischerweise eine Emissionsbandbreite von 3 nm - 5 nm besitzen. Weiterhin gibt es in  $\pi$ -Polarisation ein breites Plateau im Bereich um 965 nm ( $9,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ ) sowie in  $\sigma$ -Polarisation eine Bande um 935 nm ( $7,9 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ ), die im Wellenlängenbereich von kommerziell erhältlichen Yb:YAG-Pumpquellen liegt.

Die mittels Reziprozitäts- und Füchtbauer-Ladenburg-Methode errechneten Emissionswirkungsquerschnitte sind in Abb. 5.8a dargestellt. Hier fallen insbesondere die breiten, relativ unstrukturierten Emissionsbanden auf, welche von etwa 950 nm bis 1070 nm reichen. Das Emissionsmaximum in  $\pi$ -Polarisation liegt mit  $\sigma_{em} = 18,9 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bei einer Wellenlänge von etwa 1000 nm, während in  $\sigma$ -Polarisation eine relativ flache Plateau von 980 nm - 1030 nm mit einem Emissionswirkungsquerschnitt von etwa  $\sigma_{em} = 7 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  beobachtet wird.

### Yb-dotierte Sesquioxide

Bei den Sesquioxiden werden sowohl die  $C_{3i}$ - als auch  $C_2$ -Plätze vom  $Yb^{3+}$  besetzt. Obwohl hauptsächlich Letztere die optischen Eigenschaften des Materials bei Raumtemperatur bestimmen, tragen auch die  $C_{3i}$ -koordinierten Ionen zur Absorption bei. Da die genaue Besetzungswahrscheinlichkeit der einzelnen Plätze nicht exakt bekannt ist und daher keine klare Trennung der spektroskopischen Eigenschaften erfolgen kann, wurde in allen Rechnungen stets die Gesamtdotierungskonzentration verwendet. Die dabei erhaltenen effektiven Wirkungsquerschnitte stellen dadurch eine untere Grenze der tatsächlichen Wirkungsquerschnitte der  $C_2$ -koordinierten Yb-Ionen dar.

Die berechneten Absorptionswirkungsquerschnitte der im weiteren Verlauf der Arbeit verwendeten Sesquioxide  $Sc_2O_3$ ,  $Lu_2O_3$  und  $LuScO_3$  sind in Abb. 5.7b im Vergleich zu Yb:YAG (Abb. 5.7c) dargestellt. Neben einer relativ breiten Absorptionsbande im Bereich um 940 nm - 950 nm fällt vor allem die stark ausgeprägte Nullphononenlinie um 975 nm auf. Während die Absorptionswirkungsquerschnitte im Bereich der kurzwelligeren Bande je nach Wirtsgitter mit etwa  $(5 - 10) \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  mit denen von Yb:YAG im korrespondierenden Bereich vergleichbar sind, sind die Absorptionswirkungsquerschnitte auf der Nullphononenlinie in den Sesquioxidi-



## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien

den deutlich größer als in Yb:YAG ( $\sigma_{abs} = 8,3 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ ). Den höchsten Wert weist dabei Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mit  $\sigma_{abs} = 44,3 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  auf, gefolgt von Yb:LuScO<sub>3</sub> mit  $\sigma_{abs} = 33,0 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  und Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mit  $\sigma_{abs} = 30,6 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ . Die Absorptionsbandbreite (FWHM) der Nullphononenlinie beträgt dabei etwa 2,1 nm für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 2,4 nm für Yb:LuScO<sub>3</sub> und 2,9 nm für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Das optische Pumpen in diesem Bereich bietet neben dem Vorteil eines geringeren Quantendefekts aufgrund der im Vergleich zu Yb:YAG deutlich höheren Wirkungsquerschnitte zudem die Möglichkeit geringere Kristalldicken im Scheibenlaser zu verwenden, woraus sich wiederum Vorteile im thermischen Management der Scheiben ergeben (vgl. Kap. 3.1). Von Nachteil ist allerdings die geringe Breite der Nullphononenlinie von 2 nm - 3 nm. Dadurch erhöhen sich im Vergleich zur Pumpbande um 940 nm die Anforderungen an die Emissionsbandbreite der verwendeten Pumpdioden. Auch sollte die Emissionswellenlänge der Pumpquelle relativ stabil sein, da sich geringe Schwankungen stärker auf die Absorptionseffizienz auswirken.

Die Ergebnisse der Bestimmung der Emissionswirkungsquerschnitte sind in Abb. 5.8b dargestellt. Hierbei werden zwei für den Laserbetrieb relevante Bereiche beobachtet (Abb. 5.8b). Die höheren Emissionswirkungsquerschnitte weist dabei die Bande im Bereich von 1034 - 1041 nm auf, wobei der Wert von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> mit  $\sigma_{em} = 14,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  etwa 15% höher ist als derjenige von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Im langwelligen Bereich liegt das Emissionsmaximum von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei 1095 nm mit einem Wirkungsquerschnitt von  $\sigma_{em} = 3,3 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ , während Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> etwa 15 nm kurzwelliger mit einem Emissionswirkungsquerschnitt von  $\sigma_{em} = 4,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bei 1080 nm liegt. Die Emissionswirkungsquerschnitte des Yb:LuScO<sub>3</sub>-Mischkristalls sind mit etwa  $8,9 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bei einer Wellenlänge von 1038 nm bzw.  $2,5 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bei 1086 nm geringfügig niedriger.

Eine Zusammenfassung der spektroskopischen Eigenschaften aller untersuchter Materialien ist in Tab. 5.1 gegeben.

### 5.2.4 Verstärkungswirkungsquerschnitte

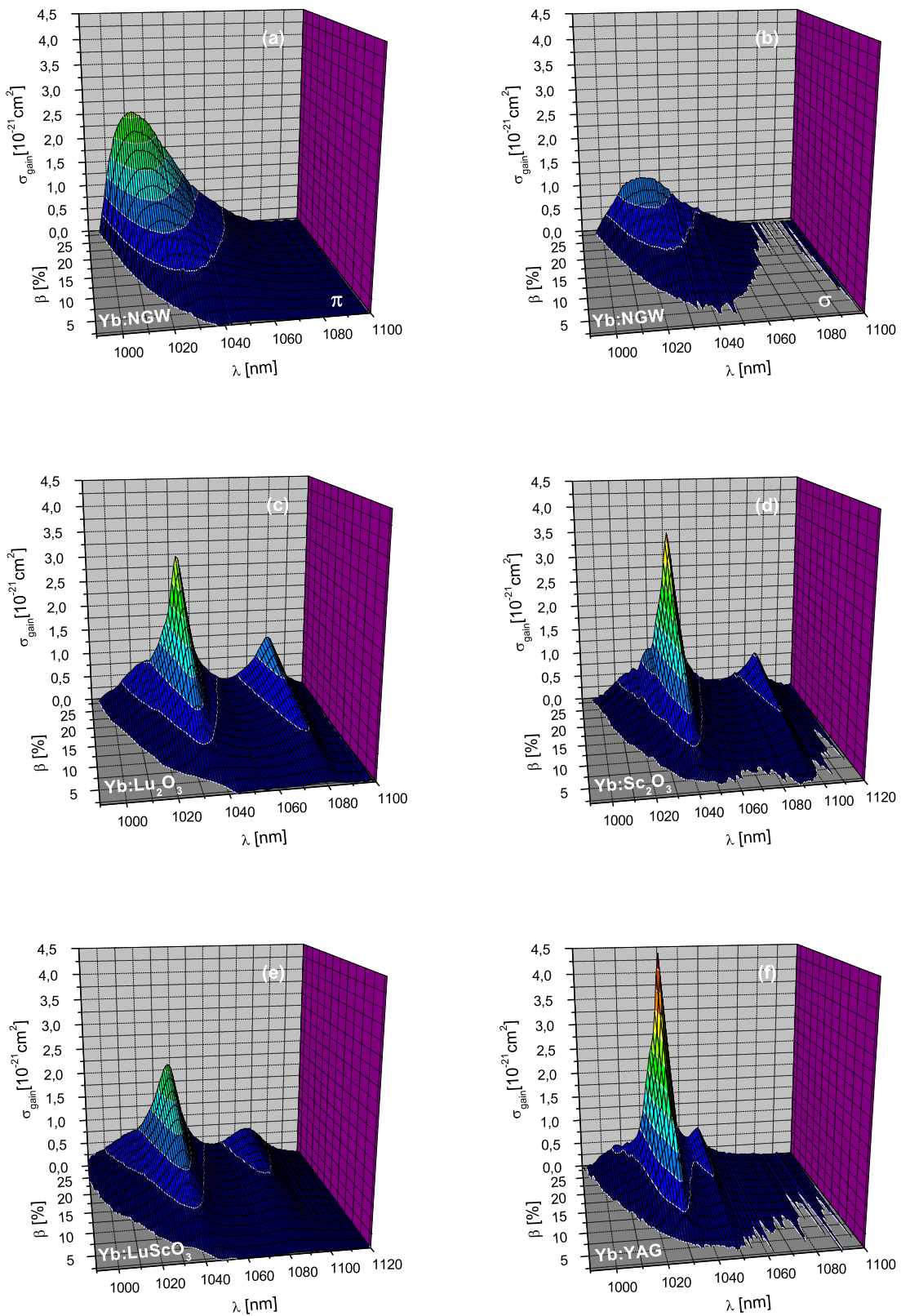
Für Drei- und Vier-Niveau-Laser ergeben sich die Verstärkung und die Laserwellenlänge bei konstanten Verlusten hauptsächlich aus den Emissionswirkungsquerschnitten und der Inversion. Für Grundzustandslaser muss zudem die Reabsorption auf der Laserwellenlänge berücksichtigt werden (vgl. Kap. 2.3.1). Dadurch verändert sich mit steigender Inversion nicht nur die Höhe, sondern in vielen Fällen auch die Wellenlänge der maximalen Verstärkung. Dies trifft aufgrund seiner relativ starken phononischen Kopplung insbesondere für Yb<sup>3+</sup> zu.

Es ist daher zweckmäßig, sogenannte Verstärkungswirkungsquerschnitte einzuführen, welche gemäß

$$\sigma_{gain}(\lambda) = \beta \cdot \sigma_{em}(\lambda) - (1 - \beta) \cdot \sigma_{abs}(\lambda) \quad (5.13)$$

errechnet werden. Die Größe  $\beta$  bezeichnet dabei den Anteil der Ionen im angeregten Niveau entsprechend  $\beta = N_2/N_{ges}$ . Anhand der Verstärkungswirkungsquerschnitte können Aussagen über mögliche Laserwellenlängen getroffen werden. Je nach Wirtsmaterial ergeben sich mit steigender Besetzung des oberen Laserniveaus schmale, stark akzentuierte Verstärkungsmaxima oder auch breite Banden, welche Laseroszillation in einem weiten spektralen Bereich erlauben. Der spektrale Verlauf der Verstärkungswirkungsquerschnitte soll im Folgenden für die untersuchten Lasermaterialien kurz diskutiert werden.

## 5 Spektroskopische Untersuchungen



**Abbildung 5.9:** Verstärkungswirkungsquerschnitte der untersuchten dotierten Materialien im Vergleich zu Yb:YAG. Yb:NGW in  $\pi$ - (a) und  $\sigma$ -Polarisation (b), Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (c), Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (d), Yb:LuScO<sub>3</sub> (e), Yb:YAG (f)

## 5.2 Spektroskopische Eigenschaften der untersuchten Materialien

Die berechneten Verstärkungswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien sind im Vergleich zu Yb:YAG in Abb. 5.9 dargestellt. Für Yb:NGW ergeben sich dabei wie erwartet breite, unstrukturierte Kurven (Abb. 5.9a,b). Verstärkung wird für die betrachteten Inversionen in einem Bereich zwischen etwa 1000 nm - 1070 nm erzielt. Aufgrund des mit abnehmender Wellenlänge ansteigenden Emissionswirkungsquerschnitts verschiebt sich das Maximum der Verstärkung und damit die zu erwartende Laserwellenlänge kontinuierlich von 1045 nm zu 1016 nm in  $\pi$ -, bzw. von 1040 nm zu 1020 nm in  $\sigma$ -Polarisation. Für ein identisches  $\beta$  beträgt der maximale Verstärkungswirkungsquerschnitt im Vergleich zu derjenigen von Yb:YAG in  $\pi$ -Polarisation etwa 50% und in  $\sigma$ -Polarisation etwa 25%.

Für die untersuchten Yb-dotierten Sesquioxide ergeben sich die in Abb. 5.9c-e dargestellten Verstärkungsspektren. Es wird dabei in allen Fällen oberhalb einer Inversion von einigen Prozent ein spektral sehr breiter Verstärkungsbereich beobachtet. Die Bandbreite möglicher Verstärkung bei den hier dargestellten Inversionen beläuft sich auf etwa 110 nm, sodass im durchstimmbaren Laserbetrieb mit Lasertätigkeit in einem Bereich zwischen etwa 990 nm und 1120 nm gerechnet werden kann. Einschränkungen ergeben sich hierbei durch die geringe Verstärkung im Bereich des Minimums um 1060 nm, wodurch bei hohen Auskoppelgraden nicht der gesamte Verstärkungsbereich ausgenutzt werden kann. Im Gegensatz zu Yb:NGW findet bei den Sesquioxiden keine kontinuierliche Verschiebung der Laserwellenlänge bei zunehmender Inversion statt, da die maximale Verstärkung stets in einer der beiden ausgeprägten Emissionsmaxima zu finden ist. Während für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bis zu einem  $\beta$  von 7,5% die Verstärkung bei 1080 nm größer ist als bei 1034 nm, wird aufgrund des größeren Verhältnisses zwischen den Wirkungsquerschnitten vom kurzwelligen und langwelligen Maximum bei Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bereits ab einem  $\beta$  von 5% eine höhere Verstärkung bei 1041 nm erreicht. Ähnlich verhält es sich auch beim Yb:LuScO<sub>3</sub>-Mischkristall, bei dem ebenfalls ab  $\beta = 5\%$  die kürzere Wellenlänge um 1038 nm die höhere Verstärkung aufweist. Als Folge dessen kann bei Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:LuScO<sub>3</sub> bereits bei kleineren Auskoppelgraden mit Lasertätigkeit auf dem kurzwelligen Emissionsmaximum gerechnet werden.

### 5.2.5 Zusammenfassung der spektroskopischen Eigenschaften

Yb:NGW stellt mit einer in beiden Polarisationsrichtungen mehr als 7 nm (FWHM) breiten Absorptionsbande um 975 nm relativ geringe Anforderungen an die Emissionsprofile der zum Pumpen verwendeten Laserdioden. Im Gegensatz dazu ist im Falle der Yb-dotierten Sesquioxide aufgrund der mit 2 nm - 3 nm relativ schmalbandigen Nullphononenlinie schon bei geringen Abweichungen der zentralen Wellenlänge oder einer großen Emissionsbandbreite der Pumpdiode mit einer Reduzierung der Absorptionseffizienz zu rechnen (vgl. Tab. 5.1). Von Vorteil sind hingegen die im Vergleich zu Yb:YAG deutlich höheren Absorptionswirkungsquerschnitte auf der Nullphononenlinie, wodurch bei einer geeigneten Emissionsbandbreite der Pumpquelle eine deutlich geringere Dicke des aktiven Mediums im Scheibenlaser gewählt werden kann.

Die Fluoreszenzlebensdauer beträgt in allen Sesquioxiden für eine im Scheibenlaser gängige Dotierungskonzentration von etwa 3 at.% Yb zwischen 850  $\mu$ s und 870  $\mu$ s und ist somit mit derjenigen in Yb:YAG vergleichbar. Aufgrund der für die Kristallzüchtung verwendeten hochreinen Rohmaterialien und Tiegel wird bei keinem der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Sesquioxide eine Konzentrationslöschung beobachtet. Im Fall von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lagen die gemessenen Lebensdauern bei hohen Yb-Konzentrationen deutlich über den in frühen Arbei-

## 5 Spektroskopische Untersuchungen

ten dokumentierten Werten [Pet01]. Im Vergleich zu den Sesquioxiden und Yb:YAG ist die Fluoreszenzlebensdauer von Yb<sup>3+</sup> in NGW mit 370  $\mu$ s für 10 at.% Yb-Dotierung deutlich geringer, wodurch zusammen mit den geringeren Verstärkungswirkungsquerschnitten tendenziell mit höheren Laserschwelen bei diesem Material zu rechnen ist. Wegen der geringeren Stark-Aufspaltung und der damit verbundenen starken thermischen Besetzung des unteren Laserniveaus ist bei Yb:NGW zudem von einer höheren Sensitivität auf die Kristalltemperatur auszugehen.

Die im letzten Abschnitt diskutierten Verstärkungswirkungsquerschnitte erlauben die Abschätzung der im Laserbetrieb auftretenden Emissionswellenlängen. Während Yb:YAG auch bei höheren Inversionen nur wenig Verstärkung in Bereichen über 1060 nm zeigt, ist bei den Yb-dotierten Sesquioxiden mit einem deutlich größeren Durchstimmbereich zu rechnen. Allerdings ist dieser in allen Fällen durch ein Minimum um 1060 nm ausgezeichnet. Im Gegensatz dazu besitzt Yb:NGW breite, unstrukturierte Verstärkungsspektren im Bereich von 1000 nm bis etwa 1070 nm. Die Verwendung von Yb:LuScO<sub>3</sub> als Wirtsmaterial stellt eine Möglichkeit dar, um größere Emissionsbandbreiten zu erhalten. Im Vergleich zu Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bzw. Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ergibt sich eine Zunahme der Breite der kurzwelligen Emissionsbande um 1038 nm von etwa 70% bzw. 90%. Dies sollte im modengekoppelten Betrieb zu einer Reduzierung der erreichbaren Pulslänge in etwa der gleichen Größenordnung führen (vgl. Kap. 2.3.3).

Material	Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb:LuScO <sub>3</sub>	Yb:NGW	Yb:YAG
$\Delta\lambda_{abs,max}$ [nm]	10,5 @ 941	8,6 @ 949	13 @ 945	7,5 ( $\sigma$ )	12 @ 941
	2,1 @ 975	2,9 @ 976	2,4 @ 975,6	9,5 ( $\pi$ )	2,5 @ 968,8
$\sigma_{abs}$ [ $10^{-21}$ cm <sup>2</sup> ]	8,7 @ 941	9,6 @ 949	6,3 @ 945	17,7 ( $\pi$ )	8,2 @ 941
	44,4 @ 975	30,6 @ 976	33,0 @ 975,6	13,6 ( $\sigma$ )	8,3 @ 969
$\sigma_{em}$ [ $10^{-21}$ cm <sup>2</sup> ]	14,4 @ 1041	12,6 @ 1033	8,9 @ 1038	4-15 ( $\pi$ )	18,9 @ 1030
	3,3 @ 1094	4,4 @ 1079	2,5 @ 1086	3-8 ( $\sigma$ )	3,0 @ 1050
$\sigma_{reabs}$ [ $10^{-21}$ cm <sup>2</sup> ]	0,7 @ 1041	0,7 @ 1033	0,7 @ 1038	0,15-1,5 ( $\pi$ )	1,2 @ 1030
	<0,1 @ 1094	<0,1 @ 1079	<0,1 @ 1086	0,15-1,1 ( $\sigma$ )	<0,2 @ 1050
$\tau_f$ [ $\mu$ s]	850	870	850	370	950

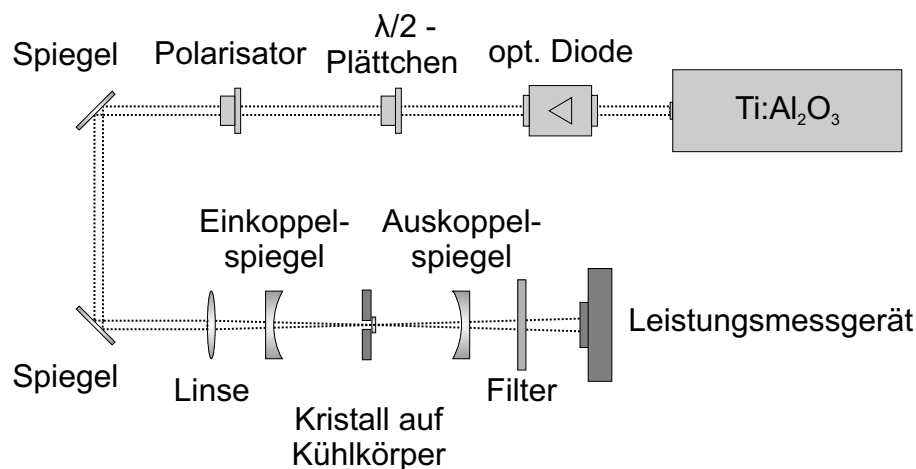
**Tabelle 5.1:** Spektroskopische Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb-dotierten Kristalle im Vergleich zu Yb:YAG. Die Lebensdauer bezieht sich dabei auf eine im Scheibenlaseraufbau verwendete Dotierungskonzentration. Im Falle der Sesquioxide liegt diese bei etwa 3 at.%, für Yb:NGW wurde eine Dotierung von 10 at.% gewählt. Die Fluoreszenzlebensdauer von Yb:YAG stammt aus [Küh07]. Der angegebene Emissionswirkungsquerschnitt von Yb:NGW gilt für den Bereich zwischen 1015 nm und 1040 nm, da die Laserwellenlänge je nach Auskoppelgrad in diesem Bereich variiert.

# 6 Lasereperimente im longitudinal gepumpten Resonator

Um Aussagen über die Kristallqualität der mittels des HEM-Verfahrens gezüchteten Kristalle treffen zu können, wurde Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator durchgeführt. Aus den Ergebnissen lassen sich Rückschlüsse ziehen, anhand derer über eine Weiterverarbeitung der Kristalle zu Scheibenlaserproben entschieden werden kann. In diesem Kapitel wird zunächst der für die Laserexperimente verwendete Aufbau vorgestellt. Im Anschluss werden die mit den verschiedenen Sesquioxid-Proben erzielten Ergebnisse besprochen. Eine Bewertung der vorgestellten Resultate schließt das Kapitel ab.

## 6.1 Aufbau

Der in den Laserexperimenten verwendete Aufbau ist in Abb. 6.1 schematisch dargestellt. Als Pumpquelle diente ein durchstimmbarer Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Laser mit einer maximalen Ausgangsleistung von 1,6 W im Bereich von 975 nm. Zur Vermeidung von Rückreflexen in den Pumplaser wurde eine optische Diode in den Strahlengang eingebracht. Die Pumpleistung wurde über eine Anordnung bestehend aus  $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisator variiert. Nach dem Umlenken mittels zweier Spiegel wurde der Pumpstrahl durch eine Linse mit einer Brennweite von 50 mm auf den Kristall fokussiert. Dieser befindet sich in einem nahezu konzentrischen Resonator bestehend aus zwei Spiegeln mit einem Krümmungsradius von 50 mm, welche einen Abstand von etwa 95 mm hatten. Der Kristall wurde mittels Silberleitlack auf einem wassergekühlten Kupferblock



**Abbildung 6.1:** Schematische Darstellung des Aufbaus der Laserexperimente unter Anregung eines Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Lasers.

befestigt. Der Pumpfleckdurchmesser im Kristall betrug etwa  $50\ \mu\text{m}$ . Der verwendete Einkoppelspiegel war hochtransmittierend für die Pumpwellenlänge ( $T > 97\%$ ) und hochreflektierend für den Bereich der möglichen Laserwellenlängen von  $1000\ \text{nm}$  bis  $1100\ \text{nm}$  ( $R > 99,9\%$ ). Die verwendeten Auskoppelspiegel waren in der Regel hochreflektierend für die Pumpwellenlänge ( $R > 90\%$ ) und besaßen für die jeweilige Laserwellenlänge Transmissionsgrade zwischen  $0,4\%$  und  $9,8\%$ .

Die Optimierung der Ausgangsleistung erfolgte durch die Justage des Lasers bei maximaler Pumpleistung. Anschließend wurde die Pumpleistung schrittweise reduziert und die Ausgangsleistung gemessen. Um die für die Berechnung der absorbierten Pumpleistung nötige Laserschwelle möglichst genau zu bestimmen, wurde die Laserschwelle in allen Fällen durch Justage optimiert. Zusätzlich wurde für jede Probe über die Transmission im Bereich der Schwelle der absorbierte Anteil  $A$  bestimmt und daraus anschließend die absorbierte Leistung gemäß

$$P_{abs} = P_oSA + P_oS(1 - A)(1 - S)A + P_oS(1 - A)S(1 - T_{oc})A \quad (6.1)$$

berechnet, wobei  $P_o$  die einfallende Leistung und  $R_f = 1 - S$  die Fresnelverluste an den Kristalloberflächen mit

$$S = \frac{4n}{(n + 1)^2} \quad (6.2)$$

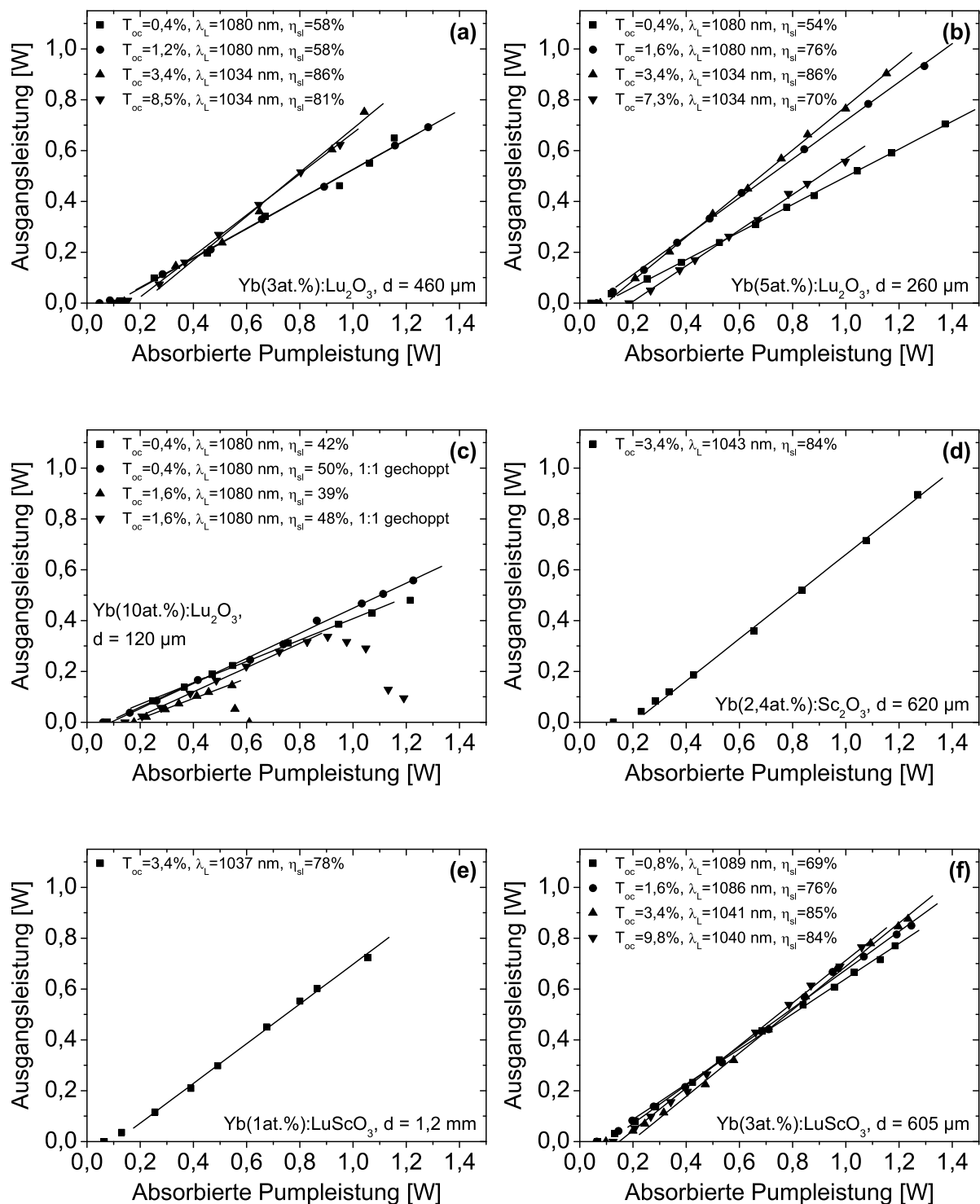
sind.

berechnet. Da die Auskoppelspiegel einen Großteil der nicht vom Kristall absorbierten Strahlung in diesen zurückreflektierten, wurde die Rechnung entsprechend erweitert. Fehler bei der Berechnung der absorbierten Pumpleistung ergeben sich vor allem durch die Bestimmung der Laserschwelle, da diese stark justageabhängig war und die einfallende Pumpleistung nicht beliebig genau variiert werden konnte. Insgesamt ist dadurch bei der Berechnung des differentiellen Wirkungsgrads mit einem relativen Fehler von einigen Prozent zu rechnen.

## 6.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse dieser Laserexperimente sind in Abb. 6.2 dargestellt. Dabei ist die Ausgangsleistung des Lasers gegen die errechnete absorbierte Pumpleistung für unterschiedliche Auskoppelgrade aufgetragen.

Die Abbildungen 6.2a-c zeigen die ermittelten Leistungskurven für  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  Kristalle unterschiedlicher Dotierungskonzentrationen. Für die Yb-Konzentrationen von  $3\ \text{at.}\%$  und  $5\ \text{at.}\%$  (Abb. 6.2a,b) zeigt sich mit zunehmendem Auskoppelgrad erwartungsgemäß ein Anstieg des differentiellen Wirkungsgrads sowie der Schwelle. Die maximale Ausgangsleistung von  $932\ \text{mW}$  bei einer absorbierten Pumpleistung von etwa  $1,3\ \text{W}$  wurde dabei mit einem  $0,26\ \text{mm}$  dicken  $\text{Yb}(5\ \text{at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$  Kristall bei einem Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 1,6\%$  erreicht. Bei diesem relativ niedrigen Auskoppelgrad lag die Laserwellenlänge bei  $1080\ \text{nm}$ , der gemessene differentielle Wirkungsgrad  $\eta_{sl}$  betrug  $76\%$ . Durch Verwendung eines Auskoppelspiegels mit einem geringfügig höheren Transmissionsgrad von  $T_{oc} = 3,4\%$  wurde Laseroszillation bei einer Laserwellenlänge von  $1034\ \text{nm}$  erzielt. Durch den damit verbundenen geringeren Quantendefekt sowie den steigenden Resonatorwirkungsgrad (vgl. Gl. 2.74), erhöhte sich der differentielle Wirkungsgrad auf  $\eta_{sl} = 86\%$ . Die maximale Ausgangsleistung mit diesem Spiegel lag bei  $903\ \text{mW}$ . Für eine Auskopplung von  $T_{oc} = 7,3\%$  ergibt sich eine stark erhöhte Schwellpumpleistung sowie

Abbildung 6.2: Lasercharakteristik aller untersuchten Sesquioxid-Kristalle unter  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$  Anregung.

## 6 Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator

ein Abfall des differentiellen Wirkungsgrads auf 70%. Diese Beobachtung wurde bei dem mit ansonsten sehr ähnlichen Lasereigenschaften aufweisenden 0,46 mm dicken Yb(3 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristall nicht gemacht. Hier ist auch bei einem ähnlich hohen Auskoppelgrad der differentielle Wirkungsgrad mit über 80% sehr hoch.

Um den Einfluss der Tiegelherstellungsart (vgl. Kap. 4.2.2) auf die Lasereigenschaften weiter zu untersuchen, wurden vergleichende Laserexperimente mit zwei Yb(5 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Proben durchgeführt. Eine Probe stammte dabei aus einer Züchtung mit einem pulvermetallurgisch hergestellten Tiegel (Tab. 4.3, lfd. Nr. 130). Die zweite Probe wurde in einem galvanisch hergestellten Tiegel gezüchtet (Tab. 4.3, lfd. Nr. 147). Die in den Experimenten bestimmten Laserschwel­len sowie die differentiellen Wirkungsgrade sind im Rahmen der Messgenauigkeit identisch (nicht dargestellt). Galvanisch hergestellte Tiegel sind also prinzipiell ebenso gut für die Herstellung hochreiner Sesquioxidkristalle geeignet. Zu untersuchen bleibt, ob dies auch für neue, unbenutzte Tiegel gilt oder ob zuvor einige Reinigungszüchtungen erforderlich sind.

Deutlich andere Lasereigenschaften wurden bei einer mit 10 at.% Ytterbium dotierten Probe mit einer Dicke von 120 µm festgestellt. Hierbei konnte nur mit Auskoppelspiegeln mit  $T_{oc} \leq 1,6\%$  Lasertätigkeit erzielt werden. Zudem ergeben sich deutlich geringere differentielle Wirkungsgrade als bei den anderen beiden untersuchten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Proben. Für  $T_{oc} = 1,6\%$  wurde oberhalb von 500 mW absorbiertes Pumplleistung ein Absinken der Ausgangsleistung beobachtet. Der differentielle Wirkungsgrad betrug bis zu diesem Punkt etwa 39%. Da thermische Probleme vermutet wurden, ist der Pumpstrahl mit einer Schwingblende in einem Tastverhältnis von 1:1 unterbrochen worden. Dadurch ließ sich für diesen Auskoppelgrad die Schwellpumpleistung von 177 mW auf 142 mW reduzieren. Gleichzeitig wurde ein erhöhter differentiel­ler Wirkungsgrad von 48% gemessen. Auch das Absinken der Ausgangsleistung trat erst oberhalb einer absorbierten Pumplleistung von 900 mW auf. Für einen noch niedrigeren Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  konnte bis zur maximalen Leistung von etwa 1,2 W gepumpt werden, ohne dass es zum Absinken der Laserleistung kam. Auch hier konnte durch periodisches Unterbrechen des Anregungsstrahls eine leichte Verbesserung des differentiellen Wirkungsgrads festgestellt werden.

Die verbesserten Leistungsparameter im gepulsten Betrieb deuten auf thermische Probleme der Scheibe hin. Durch die geringe Dicke von lediglich 120 µm ist zum einen die absorbierte Leistung auf einem sehr kleinen Volumen konzentriert. Zum anderen erfolgt die Kühlung des Kristalls lediglich in radialer Richtung über die Kontaktstellen von Silberleitlack und Kupferblock. Da der Abstand vom gepumpten Bereich zum Kühlkörper aufbaubedingt im Millimeterbereich liegt, erfolgt die Kühlung nur unzureichend. Bei dickeren Kristallen geringerer Dotierungskonzentration verteilt sich die Pumplleistung in einem größeren Kristallvolumen, wodurch die mittlere Temperatur im Pumpkanal vermutlich deutlich geringer ist. Diese Feststellungen erklären dennoch nicht die Tatsache, dass bei einer identischen Pumplleistung von etwa 1,2 W ein Absinken der Ausgangsleistung ausschließlich für den höheren Auskoppelgrad beobachtet wird. Theoretisch sollte die Kristalltemperatur bei einer höheren Schwelle sogar niedriger sein, da der Fluoreszenzschwerpunkt von etwa 1013 nm zu einem deutlich geringeren Quantendefekt als bei Lasertätigkeit bei 1080 nm führt. Eine mögliche Erklärung könnte ein zusätzlicher Verlustprozess sein, welcher aufgrund der höheren Inversion beim höheren Auskoppelgrad zur zusätzlichen Aufheizung des Kristalls führt. Eine ausführlichere Diskussion der Effekte anhand von mit diesem Kristall durchgeführten Scheibenlaserexperimenten erfolgt in Kap. 7.4.3.

Die Resultate der Laserexperimente mit einem 0,62 mm dicken Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristall



sind in Abb. 6.2d dargestellt. Für den bei den Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Proben ermittelten optimalen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 3,4\%$  wurde ein differentieller Wirkungsgrad von  $\eta_{sl} = 84\%$  bestimmt. Die maximale Ausgangsleistung bei einer Laserwellenlänge von 1043 nm betrug 896 mW für eine absorbierte Pumpleistung von 1,27 W.

In Abb. 6.2e,f sind die Resultate der Laserexperimente mit Yb:LuScO<sub>3</sub> dargestellt. Die maximale Ausgangsleistung von 876 mW bei einer absorbierten Pumpleistung von 1,23 W wurde mit dem 3 at.% Yb dotierten Kristall ebenfalls für den Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 3,4\%$  erzielt. Der dabei erreichte differentielle Wirkungsgrad betrug  $\eta_{sl} = 85\%$ . Für den identischen Auskoppelspiegel zeigte eine 1,2 mm dicke Yb(1 at.):LuScO<sub>3</sub> Probe mit  $\eta_{sl} = 78\%$  eine etwas geringere Effizienz. Ursache hierfür könnten höhere kristallinterne Verluste aufgrund der bereits für diesen Kristall beobachteten starken Verspannungen sein (vgl. Kap. 4.2.6).

## 6.3 Fazit

Mit nahezu allen nach dem HEM-Verfahren hergestellten Sesquioxid-Proben konnte ein außerordentlich effizienter Laserbetrieb demonstriert werden. Der dabei typischerweise erreichte differentielle Wirkungsgrad von etwa 85% belegt die hohe Qualität der Kristalle. Lediglich für eine Yb(1 at.):LuScO<sub>3</sub>-Scheibe lag der maximal erzielte differentielle Wirkungsgrad mit 78% geringfügig niedriger, vermutlich aufgrund einer etwas geringeren Kristallqualität. Eine Abweichung wurde auch für den mit 10 at.% am höchsten dotierten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristall beobachtet. Hierbei kommt, neben der durch die geringe Kristalldicke bedingten höheren Wärmelast pro Volumen, ein zusätzlicher Verlustprozess als Ursache in Frage, welcher bei steigender Inversion zunimmt.

Aufgrund der erzielten Ergebnisse wurden bis auf den Yb(1 at.):LuScO<sub>3</sub> aus allen Kristallen Proben für Scheibenlaserexperimente präpariert. Die Resultate dieser Experimente werden im folgenden Kapitel vorgestellt.

## *6 Laserexperimente im longitudinal gepumpten Resonator*

# 7 Scheibenlaserexperimente

Nachdem die prinzipielle Eignung der Lasermaterialien für den Einsatz im Scheibenlaser anhand von spektroskopischen Untersuchungen und ersten Laserexperimenten in den vorangegangenen Kapiteln gezeigt werden konnte, beschäftigt sich das folgende Kapitel mit der Vorbereitung und Durchführung der Scheibenlaserexperimente. Dazu wird zunächst die Präparation der Scheibenlaserkristalle skizziert sowie die verwendeten Pumpquellen vorgestellt. Anhand der spektroskopischen und thermo-mechanischen Eigenschaften werden anschließend einige Laserparameter wie z. B. die Scheibentemperatur oder die Absorptionseffizienz mit dem in Kapitel 2.4.3 eingeführten Modell abgeschätzt. Danach werden die Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente vorgestellt. Dieser Abschnitt unterteilt sich in Ergebnisse im Dauerstrichbetrieb bei fester oder mit Variation der Laserwellenlänge sowie die Ergebnisse zur Modenkopplung von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> im Scheibenlaser. Das Kapitel schließt mit einer Zusammenfassung und Bewertung der erzielten Resultate.

## 7.1 Präparation der Laserkristalle

Die in dieser Arbeit für Scheibenlaserexperimente verwendeten Yb:NGW Kristalle wurden am Forschungsinstitut für mineralische und metallische Werkstoffe Edelsteine/Edelmetalle GmbH (FEE) im Rahmen des Verbundprojekts: “Scheibenlaser höchster Brillanz” im Teilvorhaben: “Grundlegende Untersuchungen zur Kristallzüchtung und zu Kristallbearbeitungsverfahren von Ytterbium dotierten Wolframaten” (Förderkennzeichen 13N8384) hergestellt und dem Institut für Laser-Physik zur Verfügung gestellt.

### 7.1.1 Politur

Um die Kristalle im Scheibenlaser verwenden zu können, sind mehrere Präparationsschritte notwendig. Zunächst müssen die Rohlinge auf die erforderliche Dicke geläppt und anschließend mittels Laserfeinstpolitur von Oberflächendefekten befreit werden. Da mehrere Firmen Polituren anfertigten, können vergleichende Aussagen zur Politurqualität der Scheibenlaserkristalle getroffen werden.

In der Regel erfolgte die Politur mit einer Oberflächengenauigkeit von mindestens 250 nm ( $\lambda/4$ ) und einer Parallelität der beiden Endflächen von weniger als 30 Bogensekunden. Die am Forschungsinstitut für mineralische und metallische Werkstoffe Edelsteine/Edelmetalle GmbH (FEE) polierten Proben zeigten dabei in allen Fällen eine sehr gute Politur mit äußerst geringer Abweichung in der Parallelität der Endflächen und ausgezeichneter Planität.

Bei den Arbeiten der Firma Photon LaserOptik GmbH stellte sich vor allem die Parallelität der beiden Scheibenflächen mit einem Winkel von bis zu 0,05° als etwas schlechter heraus, was jedoch in den Laserexperimenten aufgrund der Entspiegelung der Kristalloberfläche in der

Regel keine Verluste nach sich zieht. In einigen Fällen blieben zudem leichte Kratzer auf der Oberfläche der Scheibe zurück, die vom Bearbeiter selbst auf einen fehlenden abschließenden Politurschritt zurückgeführt wurden. Die Auswirkungen auf die Lasertätigkeit werden in Kap. 7.4.1 diskutiert.

Stärkere Schwankungen in der Qualität der Politur traten bei der CrysTec GmbH in Berlin auf. Die von dieser Firma angewandte chemo-mechanische Politur wurde ursprünglich für die sehr günstige Herstellung von großen Mengen von Substraten für epitaktische Kristallzüchtungsverfahren konzipiert. Es wurden daher seitens des Herstellers bereits vorher mögliche Einschränkungen in der Parallelität der Endflächen eingeräumt. Allerdings gab es auch in Punkto Planität der Oberflächen einige Mängel, welche in der Folge zu hohen Verlusten im Laserbetrieb führten (vgl. Kap. 7.4.2).

### 7.1.2 Beschichtung

Nach der Politur wurden die Kristalle bei der JENOPTIK Laser, Optik, Systeme GmbH mittels dem APS-Verfahren (*advanced plasma sputtering*) beschichtet. Dabei wurde, wie in Kap. 2.4 bereits erwähnt, eine Seite mit einem hochreflektierenden Spiegel (HR), bestehend aus mehreren Paaren von  $\text{SiO}_2$ - und  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Schichten, versehen. Anschließend wurden eine Kupfer-, eine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -, sowie eine Nickel- und Goldschicht aufgebracht. Während das Kupfer dazu dient, die folgenden Schichten fest mit dem Bragg-Spiegel zu verbinden und nur unter großen Einfallswinkeln die Reflektivität des Systems merklich erhöht, ist das  $\text{Al}_2\text{O}_3$  als Diffusionssperre zwischen Nickelschicht und den dielektrischen Schichten eingebaut. Die für das Kontaktieren mittels Löten benötigte Benetzbarkeit der Scheibe wird durch die Nickelschicht gewährleistet. Die abschließende Goldschicht dient lediglich als Korrosionsschutz für das Nickel [Lar08a].

Die andere Seite der Scheiben wurde mit einer ebenfalls aus  $\text{SiO}_2$ - und  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  bestehenden Schichtfolge entspiegelt (AR). Eine genaue Auflistung der einzelnen Schichtkomponenten inklusive Schichtdicken ist in [Krä08] zu finden.

Da aus Kostengründen nicht für jedes Material ein eigener Beschichtungstyp entwickelt werden konnte, wurde eine bestehende Beschichtung verwendet, welche ursprünglich für Yb:YAG und dessen Brechungsindex ausgelegt worden ist. Als Folge dessen kann es bei großen Abweichungen im Brechungsindex des Wirtsmaterials zu Veränderungen in den Reflexionseigenschaften der Spiegelschichten kommen. Während der Brechungsindex des Kristalls aufgrund der großen Schichtzahl bei der HR-Beschichtung kaum zur Abnahme der Reflektivität dieser führt, kann es im Falle der AR-Beschichtung zu einer Erhöhung der Reflektivität auf einige Zehntel Prozent kommen [Krä08]. Dies kann zum einen zur Verringerung der Pumpeffizienz, zum anderen zu Verlusten im Laserbetrieb führen, falls die Scheiben nicht planparallel sind. Insbesondere bei  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  und NGW mit ihren hohen Brechungsindizes würde sich dies bemerkbar machen.

Ein weiteres Problem der verwendeten Yb:YAG-Beschichtung bestand in den nicht angepassten Ausdehnungskoeffizienten der Schichtsubstanzen auf das Kristallmaterial. Aufgrund der nicht zu vernachlässigenden Dicke der Beschichtungen von insgesamt einigen Mikrometern und den beim Beschichten notwendigen Temperaturen von einigen  $100^\circ\text{C}$  wirken beim Abkühlen starke Zug- und Scherkräfte auf die beschichteten Kristalle. Dies führt im Falle von YAG oder ähnlich stabilen, kubischen Materialien zu einer Vorkrümmung der Scheibe, so dass diese eine Linsenwirkung mit einer Brennweite in der Größenordnung von einem Meter aufweist,

welche im Laserresonator später problemlos durch die Wahl geeigneter Längen und Resonatorspiegel kompensiert werden kann. Für mechanisch weniger stabile oder anisotrope Materialien wie NGW kann es hingegen während des Beschichtungsprozesses auch zu Beschädigungen kommen. So kam es beim ersten Beschichtungszyklus von **a**-cut orientierten Proben mit einer starken Anisotropie in der Scheibenebene (vgl. Tab. 3.2) zu Sprüngen und Rissen senkrecht zur **c**-Achse. Als Folge waren alle Scheiben mit einer Dicke unter 400  $\mu\text{m}$  nicht mehr als Laserkristalle verwendbar. Dieses Problem ist laut Beschichter auch bei den monoklinen Wolframatmaterialien wie KYW beobachtet worden [Süß07]. Die Ursache ist dabei zum einen die große Anisotropie der Ausdehnungskoeffizienten von NGW in **a**- und **c**-Richtung ( $16,3 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  [001] und  $6,7 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  [100]). Zum anderen liegen die Ausdehnungskoeffizienten der verwendeten Schichtmaterialien mit  $0,5 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  für  $\text{SiO}_2$  und  $2,4 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$  für  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  deutlich darunter [Roy89, Coy05]. Dadurch kommt es beim Abkühlen von der Beschichtungstemperatur (etwa  $250^\circ\text{C}$ ) zu starken Spannungen im Material, wodurch sich die Scheiben entlang der **c**-Achse verbiegen. Bei zu großen Biegewinkeln entladen sich die Spannungen letztendlich in Form von Rissen. Für KYW wurden bereits besser geeignete Beschichtungsschritte entwickelt, wodurch die Bruchrate reduziert werden konnte [Süß07]. Da eine ähnliche Entwicklung aus Kostengründen für NGW nicht möglich war, wurden verschiedene Ansätze zur Reduzierung der Spannungen getestet. Zum einen wurde zunächst die deutliche dünnere und damit weniger Stress verursachende Antireflexbeschichtung und erst anschließend die dickere HR-Beschichtung aufgetragen. Auf diese Weise krümmen sich die Scheiben zunächst entlang der **c**-Achse leicht in Richtung der AR-Beschichtung und anschließend stärker in Richtung der HR-Beschichtung. Obwohl der resultierende Winkel im Endzustand dem mit umgedrehter Beschichtungsreihenfolge entspricht, ist bei dieser Vorgehensweise die maximal auf die Scheiben ausgeübte Krümmung kleiner. Dadurch konnte die Bruchrate bei diesem Beschichtungszyklus deutlich gesenkt werden. Eine weitere Verbesserung wurde durch die Verwendung von **c**-cut orientierten Scheiben erreicht. Durch den deutlich dichter an den Beschichtungssubstanzen liegenden Ausdehnungskoeffizienten in Richtung der **a**-Achse, der nun zudem homogen in der Scheibenebene liegt, wies keine der in einem weiteren Zyklus beschichteten **c**-cut Proben Risse oder Sprünge auf. Dennoch ist das beobachtete Verhalten ein erster Hinweis auf eine möglicherweise geringe Eignung dieses Materials für den Hochleistungsbetrieb im Scheibenlaser, da es dabei aufgrund großer Temperaturgradienten ebenfalls zu starken Spannungen im Material kommen kann.

### 7.1.3 Kontaktierung

Die Kontaktierung der beschichteten Scheiben auf der Wärmesenke erfolgte mittels Lötens. Als Lot kann dabei entweder ein Hartlot, wie z. B. Gold-Zinn, welches aufgrund seiner höheren mechanischen und thermischen Stabilität vor allem im Hochleistungssektor bei großem Pumpfleckdurchmesser benutzt wird, oder ein Weichlot wie Indium-Zinn, für Pumpfleckdurchmesser unter 3 mm verwendet werden [Con02]. Letzteres ist durch seinen im Vergleich zum AuSn-Lot ( $T_m(\text{Au } 80\% \text{ Sn } 20\%) = 280^\circ\text{C}$ ) geringeren Schmelzpunkt von  $T_m(\text{In } 50\% \text{ Sn } 50\%) = 118^\circ\text{C}$  [Lar08a] aus praktischen Erwägungen für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente besser geeignet, da die Verarbeitung deutlich einfacher ist und wegen der geringen Löttemperatur keine Anpassung des Ausdehnungskoeffizienten der Wärmesenke an den Kristall durchgeführt werden muss.

Zur Kontaktierung wird die Wärmesenke zunächst sorgfältig in einem Ultraschallbad mit

## 7 Scheibenlasereperimente

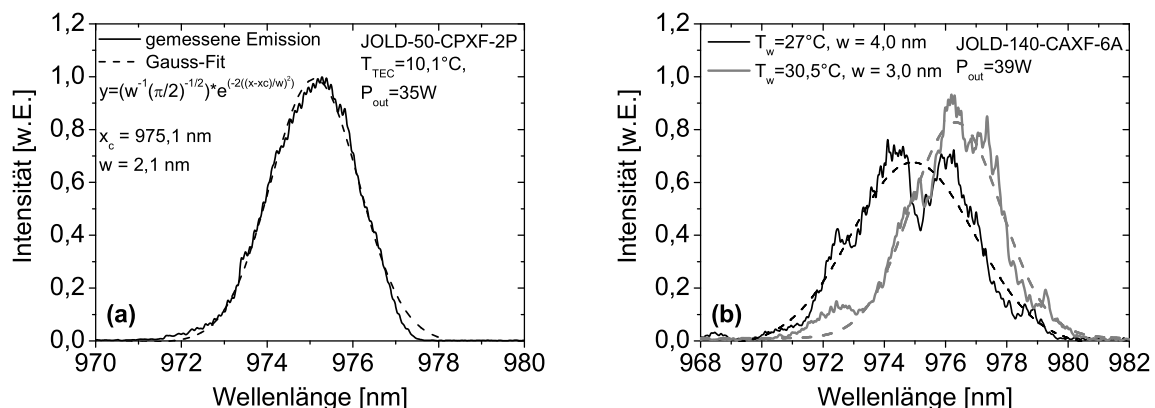
Aceton gereinigt. Anschließend wird sie, um die Oxidation des InSn-Lotes zu verhindern, unter Stickstoffatmosphäre, mittels einer Heizplatte auf 170°C erhitzt. Die Oberflächentemperatur der Wärmesenke liegt in diesem Fall erfahrungsgemäß knapp oberhalb des Schmelzpunktes des Lotes. Um die Wärmesenke benetzen zu können, wird sie mit einem Flussmittel angeätzt. Anschließend werden etwa 50 mg des InSn-Lotes auf die Wärmesenke gegeben und mit einem Glasstab über den für die Scheibe erforderlichen Bereich verteilt. Nach dem Abkühlen der Wärmesenke wird die Lotoberfläche mit einem Skalpell von Oxidresten befreit und erneut im Ultraschallbad gereinigt. Auf die gereinigte Lot-Schicht wird erneut Flussmittel aufgebracht und, um Schäden durch ein zu schnelles Aufheizen zu verhindern, die Scheibe auf das noch kalte Flussmittel gelegt. Anschließend wird alles auf der Heizplatte erhitzt und der Kristall nach dem Aufschmelzen des Lotes mit Hilfe einer Pinzette unter kreisenden Bewegungen und leichtem Druck in dieses eingerieben. Die Wärmesenke wird anschließend von der Heizplatte genommen, wobei der Anpressdruck erst nach Erstarren des Lotes gelöst werden sollte. Die kontaktierte Scheibe wird abschließend im Ultraschallbad von Flussmittelresten befreit.

Entgegen den Erwartungen, insbesondere wegen der in den Beschichtungen auftretenden Problemen mit NGW, ließen sich alle Kristalle problemlos mittels auf den Kupfer- und Kupfer-Wolfram-Wärmesenken (15% Wolfram) befestigen. Bei keinem der kontaktierten Kristalle kam es dabei zu neuen Rissen oder Sprüngen. Eine Auflistung aller der im Rahmen dieser Arbeit präparierten Scheibenlaserkristalle ist in Anhang E gegeben.

## 7.2 Verwendete Pumpquellen

Als Pumpquellen standen zwei unterschiedliche Laserdioden der Firma JENOPTIK Laserdiode GmbH zur Verfügung.

Wichtigste Pumpquelle war dabei eine fasergekoppelte InGaAs-Laserdiode des Typs JOLD-50-CPXF-2P (im Folgenden JOLD50 genannt) mit einer nominellen Ausgangsleistung von 50 W. Bei einer zentralen Wellenlänge im Bereich von 972 nm - 985 nm zeichnet sich diese



**Abbildung 7.1:** Gemessene Emissionsprofile (durchgezogene Linien) der verwendeten Pumpdioden und dazugehörige Gauß-Fits (gestrichelte Linien). (a) JOLD-50-CPXF-2P bei einer Ausgangsleistung von 35 W und einer Betriebstemperatur von 10,1°C. (b) JOLD-140-CAXF-6A bei einer Ausgangsleistung von 39 W und unterschiedlichen Kühlwassertemperaturen  $T_w$ .

### 7.3 Abschätzung der optimalen Betriebsparameter

	JOLD50	JOLD140
max. Ausgangsleistung [W]	55	170
zentrale Wellenlänge bei 25°C [nm]	980	975
typische spektrale Bandbreite (FWHM) [nm]	3	4
gemessene spektrale Bandbreite (FWHM) [nm]	2,1 - 2,5	3,2 - 4,6
Faserdurchmesser [ $\mu\text{m}$ ]	600	600
Numerische Apertur	NA = 0,22	NA = 0,22

**Tabelle 7.1:** Wichtige Spezifikationen der verwendeten Laserdioden.

durch eine relativ schmale Emissionsbandbreite von 2 nm - 2,5 nm aus (Abb. 7.1a) und ist damit sehr gut zum Pumpen der schmalbandigen Nullphononenlinien der Sesquioxide geeignet. Die Emissionswellenlänge wurde über die Diodentemperatur geregelt. Die Temperaturkontrolle erfolgte über zwei Geräte der Marke Thorlabs TED350. Leider verfügten diese nur über eine Nennleistung von insgesamt 70 W, statt der für die Laserdiode empfohlenen 300 W, sodass diese nicht temperaturstabil bei maximaler Leistung betrieben werden konnte.

Für Laserexperimente bei höheren Leistungen wurde eine Laserdiode des Typs JOLD-140-CAXF-6A (JOLD140) mit einer zentralen Wellenlänge zwischen 973 nm - 976 nm und einer nominellen Ausgangsleistung von 170 W verwendet. Im Gegensatz zur zuvor vorgestellten JOLD50 werden die Diodenbarren hier direkt über Mikrokanäle mit deionisiertem Wasser gekühlt. Eine Anpassung der Wellenlänge kann daher nur durch die Variation der Kühlwassertemperatur vorgenommen werden, welche jedoch nur mit einer Genauigkeit von ca. 1°C reguliert werden konnte, sodass es zu Wellenlängenschwankungen im Bereich eines halben Nanometers kam. Auch die Emissionscharakteristik weicht deutlich stärker von einer idealen Gauß-Verteilung ab (Abb. 7.1b), sodass es in den im weiteren Verlauf dieser Arbeit mit dieser Diode durchgeführten Messungen zu Einbußen in der Absorptionseffizienz bei den nullphononenliniengepumpten Sesquioxiden kam.

## 7.3 Abschätzung der optimalen Betriebsparameter

Anhand des in Kap. 2.4.3 vorgestellten analytischen Modells sowie der in Kap. 3 und 5 vorgestellten thermo-mechanischen und spektroskopischen Eigenschaften soll im Folgenden Abschnitt eine Abschätzung der Lasereigenschaften der untersuchten Lasermaterialien vorgenommen werden.

### 7.3.1 Randbedingungen

Alle weiteren für die Berechnungen relevanten Ausgangsparameter sind in Tab. 7.2 aufgelistet. Der Gesamtreflexionsgrad des Parabolspiegels wurde nach [Con02] mit 99% angesetzt. Zudem werden alle spektroskopischen und thermischen Eigenschaften der Laserkristalle als Temperaturunabhängig angenommen. Dies führt zwar im Vergleich zum realen System zu Abwei-

## 7 Scheibenlasereperimente

Parameter	Symbol	Standardwert
Anzahl Pumpstrahldurchgänge	$M_p$	24
Reflexionsgrad des Parabolspiegels [%]	$R_{Para}$	99
Pumpfleckdurchmesser [mm]	$D_{ps}$	1,2
Reflexionsgrad der HR-Beschichtung [%]	$R_{HR}$	>99,95
integrierter Wärmewiderstand aller Schichten [ $\text{Kmm}^2\text{W}^{-1}$ ]	$R_{th}$	13
Kühlwassertemperatur [ $^{\circ}\text{C}$ ]	$T_K$	15
Anzahl der Kristalldurchgänge pro Umlauf	$M_r$	2
Wärmeleitfähigkeit [ $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]	Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12,0
	Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6,4
	Yb:NGW	1,1
	Yb:YAG	6,5

**Tabelle 7.2:** Parametersatz für die Berechnung der Lasereigenschaften. Die Werte für den Reflexionsgrad des Parabolspiegels und der HR-Beschichtung sowie der integrierte Wärmewiderstand, welcher sich aus den HR- und Metallschichten sowie der Fluid-Grenzschicht zusammensetzt sind [Con02] entnommen. Die Wärmeleitfähigkeiten entsprechen jeweils Kristallen mit einer Yb-Dichte von etwa  $1 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  (entsprechend 7% in Yb:YAG).

chungen, erlaubt aber in Ermangelung dieser Größen zumindest eine qualitative Bewertung der unterschiedlichen Materialien.

### 7.3.2 Temperatur der Scheiben

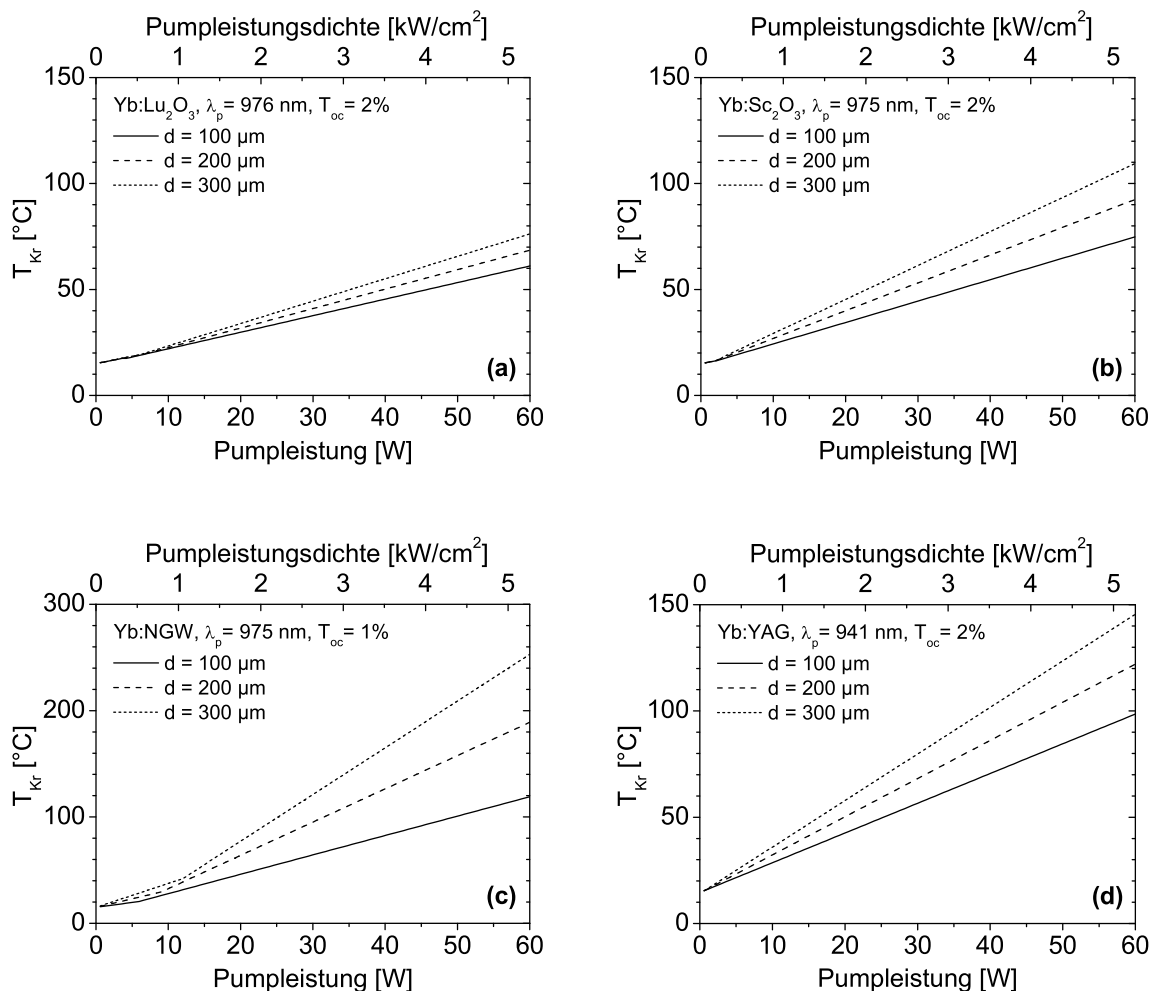
Die Berechnung der Kristalltemperatur nach Gl. 2.79 gibt die im realen System vorliegenden Bedingungen nur recht ungenau wieder. Abweichungen ergeben sich dabei durch radiale Temperaturgradienten, welche bei kleinen Pumpfleckdurchmessern zu einer deutlichen Verringerung der mittleren Kristalltemperatur führen [Con02]. Erst für große gepumpte Durchmesser ( $d > 6 \text{ mm}$ ) überwiegt der axiale Wärmefluss und es besteht ein annähernd linearer Zusammenhang zwischen der Kristalldicke und der maximalen Temperatur wie im analytischen Modell. Zu einer weiteren Abweichung kommt es, da der Temperaturverlauf in der Scheibe einen parabelförmigen Verlauf zeigt, sodass auf der Kristalloberfläche in der Regel deutlich höhere Temperaturen vorliegen. Auch wird von einem idealen Kristall mit einer Quanteneffizienz von eins ausgegangen, sodass die Wärme im Kristall ausschließlich durch den Quantendefekt zwischen Pump- und Laserstrahlung sowie dem Fluoreszenzschwerpunkt erzeugt wird. Auch hierbei kommt es in der Realität zu starken Abweichungen, sobald im Kristall nichtstrahlende Verluste auftreten, wie am Beispiel von hochdotiertem Yb:YAG gezeigt werden konnte [Lar08a]. Weitere Fehler ergeben sich durch Absorptionsverluste der resonatorinternen Leistung in der HR-Schicht [Lar08a] und die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des aktiven Mediums.

Trotz dieser Einschränkungen soll an dieser Stelle eine grobe Abschätzung der mittleren Kristalltemperatur erfolgen, da sich relative Aussagen treffen lassen, die einen qualitativen Vergleich der unterschiedlichen Materialien erlauben.



### 7.3 Abschätzung der optimalen Betriebsparameter

Abbildung 7.2 beschreibt den nach Gl. 2.79 berechneten Verlauf der mittleren Kristalltemperatur in Abhängigkeit der Pumpleistung. Der Pumpfleckdurchmesser liegt dabei wie in Tab. 7.2 angegeben bei 1,2 mm. Desweiteren wird zur Vereinfachung von einer Absorptionseffizienz von eins ausgegangen, wie sie sich durch die Anpassung der Dotierungskonzentration für die betrachteten Scheibendicken näherungsweise erreichen lässt. Die Pumpwellenlänge liegt für die Sesquioxide und NGW auf der jeweiligen Nullphononenlinie im Bereich um 975 nm, bei Yb:YAG mit 941 nm deutlich kurzwelliger. Alle weiteren Parameter sind Tab. 7.2 entnommen. Unter allen betrachteten Materialien ergibt sich, wie aufgrund der thermischen Eigenschaften zu erwarten war, für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> die geringste mittlere Kristalltemperatur (Abb. 7.2a). Für eine bei gängigen Yb:YAG-Dotierungen typische Scheibendicke von 0,2 mm liegt  $T_{Kr}$  bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> für eine Pumpleistungsdichte von 5 kW/cm<sup>2</sup> bei 65°C. Für eine Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe der gleichen Dicke ergeben sich etwa 88°C (Abb. 7.2b). Eine bei 941 nm gepumpte Yb:YAG Scheibe weist bei gleicher Dicke und Pumpleistungsdichte bereits eine Temperatur von 116°C auf (Abb.



**Abbildung 7.2:** Nach Gl. 2.79 berechnete mittlere Kristalltemperatur in Abhängigkeit der Pumpleistung für einen Pumpfleckdurchmesser von 1,2 mm für a) Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, b) Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, c) Yb:NGW und d) Yb:YAG. Man beachte die geänderte Skalierung der Ordinate für Yb:NGW.

## 7 Scheibenlasereperimente

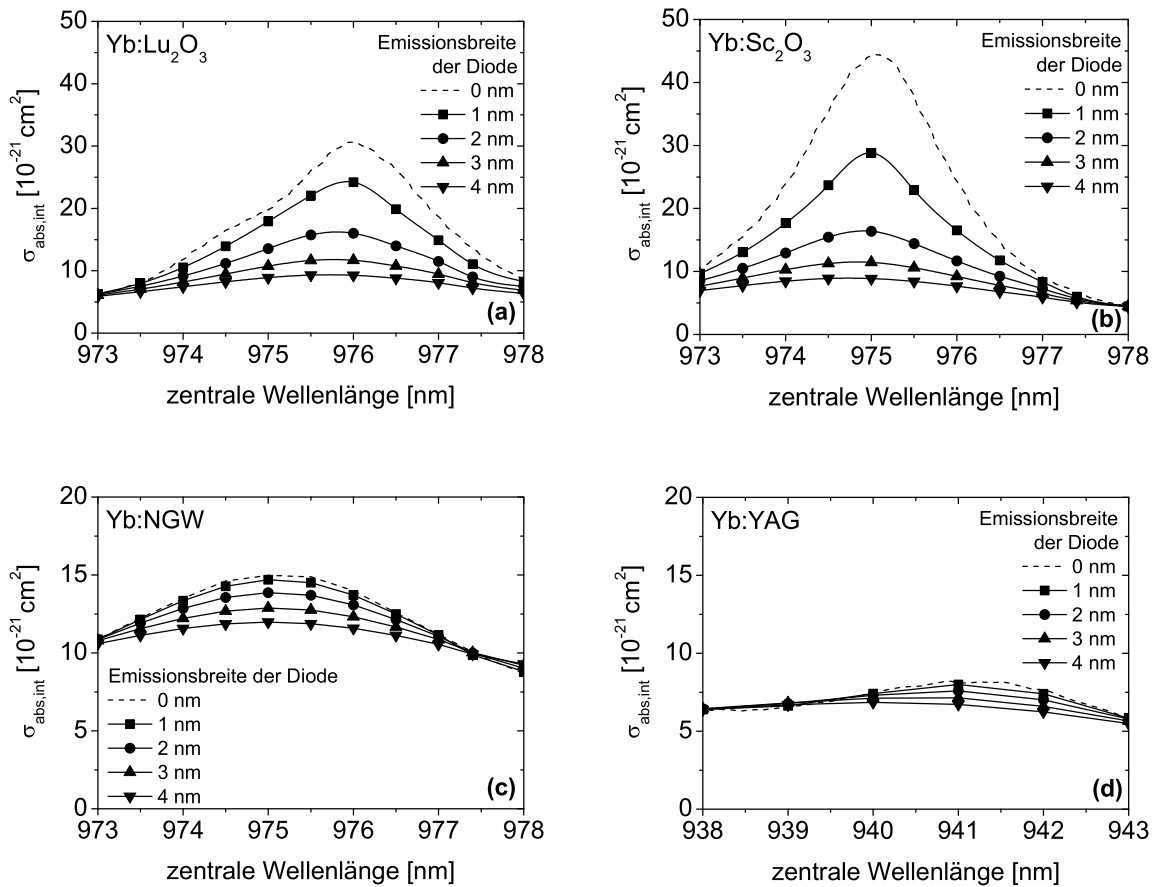
7.2d). Der Unterschied von 28°C zu Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, mit einer nahezu identischen Wärmeleitfähigkeit, kommt dabei ausschließlich durch den größeren Quantendefekt zustande. Vergleicht man die bei einer Scheibendicke von 0,2 mm nötige Pumpleistungsdichte um eine mittlere Temperatur von 100°C zu erreichen, so ergibt sich für Yb:YAG ein Wert von etwa 4,4 kW/cm<sup>2</sup>. Um die gleiche mittlere Scheibentemperatur in Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> zu erreichen, kann hingegen eine Pumpleistungsdichte von 8,4 kW/cm<sup>2</sup> beaufschlagt werden. Daraus ergeben sich unter anderem Vorteile für den Grundmodebetrieb, da dieser im Allgemeinen mit zunehmendem Modendurchmesser schwieriger zu realisieren ist [Con02]. Durch den größeren Abstand zur Schwelle erhöht sich zusätzlich die maximal erreichbare optisch-optische Effizienz.

Die höchsten Scheibentemperaturen unter allen betrachteten Materialien ergeben sich für Yb:NGW (Abb. 7.2c). Aufgrund der sehr niedrigen Wärmeleitfähigkeit sind für eine 0,2 mm dicke Scheibe bei 5 kW/cm<sup>2</sup> im Mittel bereits mehr als 175°C zu erwarten. Für eine Scheibendicke von 0,4 mm steigt die mittlere Kristalltemperatur für die identische Pumpleistungsdichte auf mehr als 300°C. Die Auswirkungen derart hoher Scheibentemperaturen werden in Kap. 7.4.1 deutlich. Der im Vergleich zu den anderen Materialien ausgeprägte Knick in den Kurven resultiert aus einem deutlich kurzwelligeren Fluoreszenzschwerpunkt, wodurch unterhalb der Laserschwelle nach Gl. 2.79 deutlich weniger Wärme erzeugt wird. Da die Schwellen in Yb:NGW aufgrund der starken Reabsorption zudem weit über denen der anderen dargestellten Materialien liegen, ist die geringere Steigung besser in den Graphen zu erkennen.

### 7.3.3 Absorptionseffizienz

Die Abschätzung der Absorptionseffizienz der unterschiedlichen Materialien in Abhängigkeit von der Kristalldicke sowie unter Berücksichtigung verschiedener Effekte wie dem Ausbleichen auf der Pumpwellenlänge, ist von entscheidender Bedeutung für die Wahl der Kristalldicke und Dotierung. Im einfachsten Fall kann als Grundlage für die Berechnung der maximale Absorptionswirkungsquerschnitt auf der jeweiligen Pumpwellenlänge gewählt werden. Da in der Realität jedoch sowohl die Pumpquellen als auch die Absorptionsbanden endliche spektrale Breiten aufweisen, kann es zu einer deutlichen Verringerung der Absorptionseffizienz kommen, insbesondere bei schmalen Absorptionsbanden wie bei den Nullphononenlinien der Sesquioxide. Eine einfache Möglichkeit dies zu berücksichtigen, ist die Einführung von integrierten Absorptionswirkungsquerschnitten  $\sigma_{abs,int}$ , welche sich aus der Faltung des Absorptionsspektrums des jeweiligen Materials mit dem Emissionsspektrum der Pumpquelle ergeben. Der Einfachheit halber werden die Emissionsfunktionen der Pumpdioden im Weiteren mit Gauß-Funktionen beschrieben. Dass diese Annahme zumindest für die JOLD50 näherungsweise zutrifft, ist in Abb. 7.1 zu sehen. Um zusätzlich den Einfluss der zentralen Pumpwellenlänge auf die Absorptionseffizienz abschätzen zu können, wurden die integrierten Absorptionswirkungsquerschnitte zudem in einem kleinen Bereich um die maximalen spektroskopischen Absorptionswirkungsquerschnitte berechnet. Dieser liegt im Falle der Sesquioxide und NGW bei 973 nm - 978 nm und für Yb:YAG bei 938 nm - 943 nm. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Abb. 7.3 für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:NGW im Vergleich zu Yb:YAG für Pumpdioden mit einer spektralen Bandbreite von 1 nm - 4 nm dargestellt. Im Falle des Yb:NGW wurde dabei über die unterschiedlichen Polarisationsrichtungen gemittelt, was aufgrund des großen Einfallswinkels der Pumpstrahlung sowie der häufigen Polarisationsdrehung durch die Mehrfachabbildung näherungsweise zutrifft.

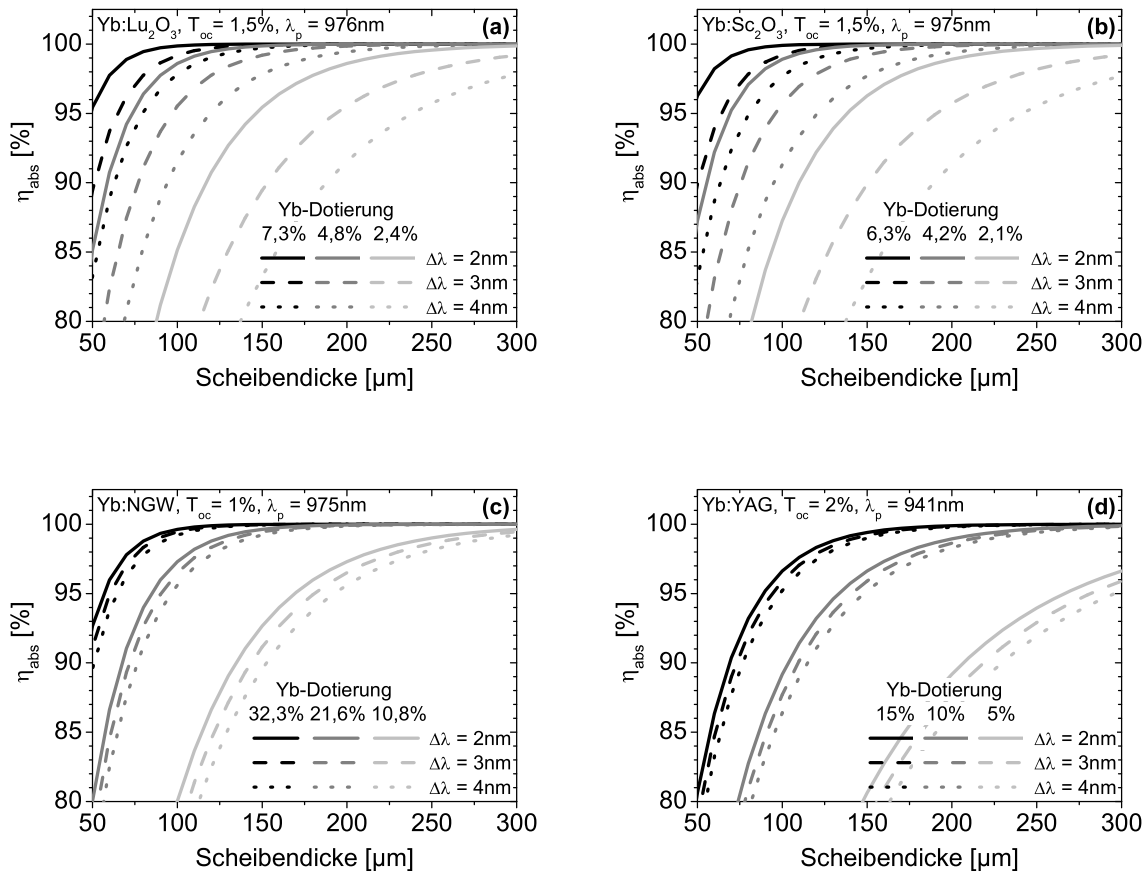
### 7.3 Abschätzung der optimalen Betriebsparameter



**Abbildung 7.3:** Durch Faltung mit dem Diodenspektrum berechnete integrierte Absorptionswirkungsquerschnitte von (a)  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$ , (b)  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$ , (c)  $\text{Yb:NGW}$  und (d)  $\text{Yb:YAG}$  in Abhängigkeit der Emissionsbandbreite und zentralen Emissionswellenlänge der Pumpdiode. Die Kurven für eine Diodenemissionsbandbreite von 0 nm entsprechen den spektroskopischen Absorptionswirkungsquerschnitten der Materialien.

Die höchsten integrierten Absorptionswirkungsquerschnitte werden für die beiden Sesquioxide  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  (Abb. 7.3a) und  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  (Abb. 7.3b) erreicht. Für Diodenbandbreiten größer 2 nm ist kein signifikanter Unterschied zwischen beiden Materialien in der Höhe der integrierten Wirkungsquerschnitte festzustellen. Erst bei einer Emissionsbandbreite der Pumpquelle von etwa 1 nm können die höheren Absorptionswirkungsquerschnitte von  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  ausgenutzt werden, sodass sich höhere integrierte Absorptionswirkungsquerschnitte ergeben. Die im Vergleich zu  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  etwa 30% schmalere Absorptionsbande wird ansonsten durch die höheren Wirkungsquerschnitte nahezu vollständig kompensiert. Auffallend ist ebenfalls der Einfluss der zentralen Pumpwellenlänge auf die Absorptionseigenschaften. Insbesondere bei geringer Emissionsbandbreite der Pumpquelle kann der integrierte Absorptionswirkungsquerschnitt bei geringer Verschiebung der Pumpwellenlänge im Vergleich zum Maximum stark abnehmen. So beträgt die Abnahme für  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  bei einer typischen Emissionsbandbreite von 2,5 nm und einer Abweichung von der optimalen Pumpwellenlänge von 2 nm fast 50 Prozent. Für diese Emissionsbandbreite, wie sie im Fall der JOLD50 gemessen wurde, ergibt sich bei optimaler Pumpwellenlänge für beide Materialien ein identischer Wert von  $\sigma_{abs,int} = 13,8 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ .

## 7 Scheibenlasereperimente



**Abbildung 7.4:** Berechnete Absorptionseffizienz der untersuchten Materialien und Yb:YAG in Abhängigkeit der Dicke, Dotierung und Emissionsbandbreite der Pumpquelle. Die Temperatur der Scheibe und damit die Schwellenversion wurden als konstant angenommen. Die gewählten Yb-Konzentrationen entsprechen 5 at.%, 10 at.% und 15 at.% Yb-Dotierung in YAG.

Im Gegensatz zu den schmalbandigen Sesquioxiden zeigt Yb:NGW, aufgrund der in beiden Polarisierungen mehr als 7 nm breiten Nullphononenlinie, einen deutlich geringeren Einfluss der spektralen Bandbreite der Pumpquelle auf die Absorptionseigenschaften. Auch eine Verschiebung der zentralen Pumpwellenlänge hat nur geringe Auswirkungen auf die Absorptionseffizienz. Für die optimale Pumpwellenlänge um 975 nm ergibt sich für 2,5 nm Bandbreite der Pumpdiode ein integrierter Absorptionswirkungsquerschnitt von  $\sigma_{abs,int} = 13,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ .

Ein noch geringerer Einfluss der Pumpwellenlänge und Breite der Emissionsbande der Pumpquelle wird für Yb:YAG beobachtet (Abb. 7.3d). Der integrierte Absorptionswirkungsquerschnitt liegt für dieses Material bei einer zentralen Wellenlänge von 941 nm und typischen Diodenemissionsbandbreiten von 3 nm - 4 nm bei etwa  $\sigma_{abs,int} = 8 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ , und ist damit deutlich geringer als bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> oder Yb:NGW. Bei vergleichbarer Dotierionendichte müssen dadurch dickere Scheiben verwendet werden um eine identische Absorption des Pumplichts zu erzielen. Von Vorteil hingegen ist die geringe Empfindlichkeit auf Veränderungen der zentralen Pumpwellenlänge, was die Anforderungen an die Pumpdioden stark verringert.

Mit Hilfe der integrierten Wirkungsquerschnitte sowie der in Kap. 2.4.3 vorgestellten Raten-

gleichungen (Gln. 2.62, 2.63 und 2.65), lässt sich die Absorptionseffizienz für einen gegebenen Auskoppelgrad in Abhängigkeit der Scheibendicke und der Yb-Dotierung abschätzen. Die Ergebnisse der Rechnungen für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:NGW im Vergleich zu Yb:YAG sind in Abb. 7.4 dargestellt. Dabei wurden die im folgenden Abschnitt berechneten optimalen Auskoppelgrade zugrunde gelegt. Diese betragen bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> etwa 1,5% und bei Yb:NGW etwa 1%. Für Yb:YAG wurde zum Vergleich ein Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 2\%$  gewählt. Unterschiede in der Scheibentemperatur mit zunehmender Dicke wurden nicht berücksichtigt, da keine Absorptions- und Emissionsspektren bei höheren Temperaturen vorlagen.

Für typische Yb-Dichten von  $7 - 21 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  (entsprechend 5 - 15 at.% Yb:YAG) ergeben sich wie anhand von Abb. 7.3 zu erwarten war relativ ähnliche Kurven für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Die Absorptionseffizienz steigt dabei mit zunehmender Scheibendicke und Dotierung an. Auch der Einfluss der Emissionsbandbreite ist hier deutlich zu erkennen. Im Gegensatz dazu wird bei Yb:NGW und Yb:YAG nur eine geringe Änderung von  $\eta_{abs}$  mit steigender Diodenbandbreite beobachtet. Für eine vergleichbare Ionendichte liegen Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:NGW bis auf die Abhängigkeit zur Emissionsbandbreite in einem ähnlichen Bereich, während die Absorption von Yb:YAG tendenziell etwas darunter liegt. Vorteile ergeben sich für die Sesquioxide vor allem durch die Verwendung äußerst schmalbandiger Pumpquellen, da in diesem Fall auch Scheiben geringerer Dicke hohe Absorptionseffizienzen aufweisen. Setzt man beispielsweise eine Emissionsbandbreite von 2,5 nm sowie eine Dotierung von 10 at.% in Yb:YAG entsprechend 4,8 at.% in Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> voraus, so ergibt sich für eine Absorptionseffizienz von 95% eine nötige Scheibendicke von lediglich 85  $\mu\text{m}$  für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, während bei Yb:YAG eine Dicke von etwa 138  $\mu\text{m}$  benötigt wird. Noch deutlicher wird der Unterschied für Pumpquellen mit einer Emissionsbandbreite von 1 nm. Die für die gleiche Absorptionseffizienz erforderliche Kristalldicke bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> beträgt in diesem Fall nur noch 53  $\mu\text{m}$ , während bei Yb:YAG nur eine Reduzierung der Dicke um wenige Prozent möglich ist.

Auswirkungen hat dies unter anderem auf die Scheibentemperatur, da diese bei identischen Absorptionseffizienzen linear mit der Kristalldicke steigt (vgl. Abb. 7.2).

#### 7.3.4 Auslegung der optimalen Parameter

Um für eine gegebene Pumpleistungsdichte die maximale Laserausgangsleistung zu erzielen, müssen verschiedene Parameter berücksichtigt werden. Dazu gehören neben der Kristalldicke und Dotierung auch der Auskoppelgrad sowie die internen Verluste. Gemeinsam beeinflussen sie in wechselseitiger Beziehung die Absorptionseffizienz, die Schwelle und den differentiellen Wirkungsgrad.

Zunächst wird dazu der optimale Auskoppelgrad abgeschätzt. Ist dieser zu gering und die internen Verluste hoch, ergibt sich ein niedriger Resonatorwirkungsgrad (Gl. 2.74). Aber auch bei einem zu hohen Auskoppelgrad sinkt die optisch-optische Effizienz, da die Schwelle mit diesem ansteigt. Die Abschätzung des optimalen Auskoppelgrades für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ist in Abhängigkeit der internen Verluste für eine angenommene Emissionsbandbreite der Pumpquelle von 2,5 nm in Abb. 7.5 dargestellt. Die optimale Auskopplung nimmt dabei mit steigenden internen Verlusten sowie eingestrahelter Leistung zu. Die Werte für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> liegen generell leicht über denen von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, da aufgrund der höheren Wirkungsquerschnitte im erstgenannten Material bei gleicher Schwelle ein größerer Resonatorwirkungsgrad und damit ein größerer differentieller Wirkungsgrad erreicht werden kann. Für eine in den folgenden Ex-

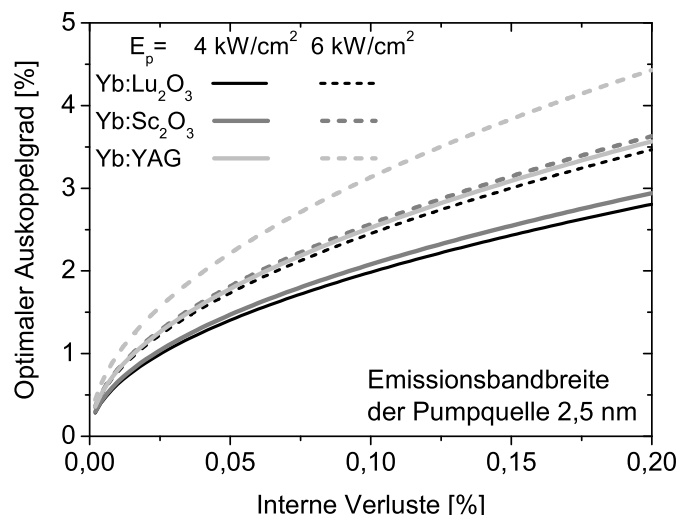
## 7 Scheibenlasereperimente

perimenten maximal verwendete Pumpleistungsdichte von  $4 \text{ kW/cm}^2$  ergeben sich für die empirisch bestimmten optimalen Auskoppelgrade von 1,5% - 2% (vgl. Kap. 7.4) interne Verluste zwischen 0,05% und 0,1%. Diese stehen in guter Übereinstimmung zu gängigen Werten für Yb:YAG Scheibenlaser [Con02, Lar08a] und ergeben sich sowohl aus kristallinternen Verlusten, sowie Verlusten an der HR- und AR-Beschichtung.

Die Abschätzung der erreichbaren optischen Effizienz erfolgte nach Gl. 2.72. Um realistische Resultate zu erhalten, muss eine weitere Annahme eingeführt werden, welche zumindest näherungsweise den Einfluss der Temperatur auf die Lasereigenschaften beschreibt. Dies ist insofern relevant, als dass der Absorptionsgrad mit steigender Temperatur abnimmt. Gleichzeitig steigt wegen der zunehmenden thermischen Besetzung des unteren Laserniveaus die tatsächliche Schwellpumpleistungsdichte  $E_{p,s}$  (vgl. Gl. 2.69). Man kann daher von einer "virtuellen" Laserschwelle sprechen, die mit der Pumpleistung zunimmt und damit den differentiellen Wirkungsgrad verringert.

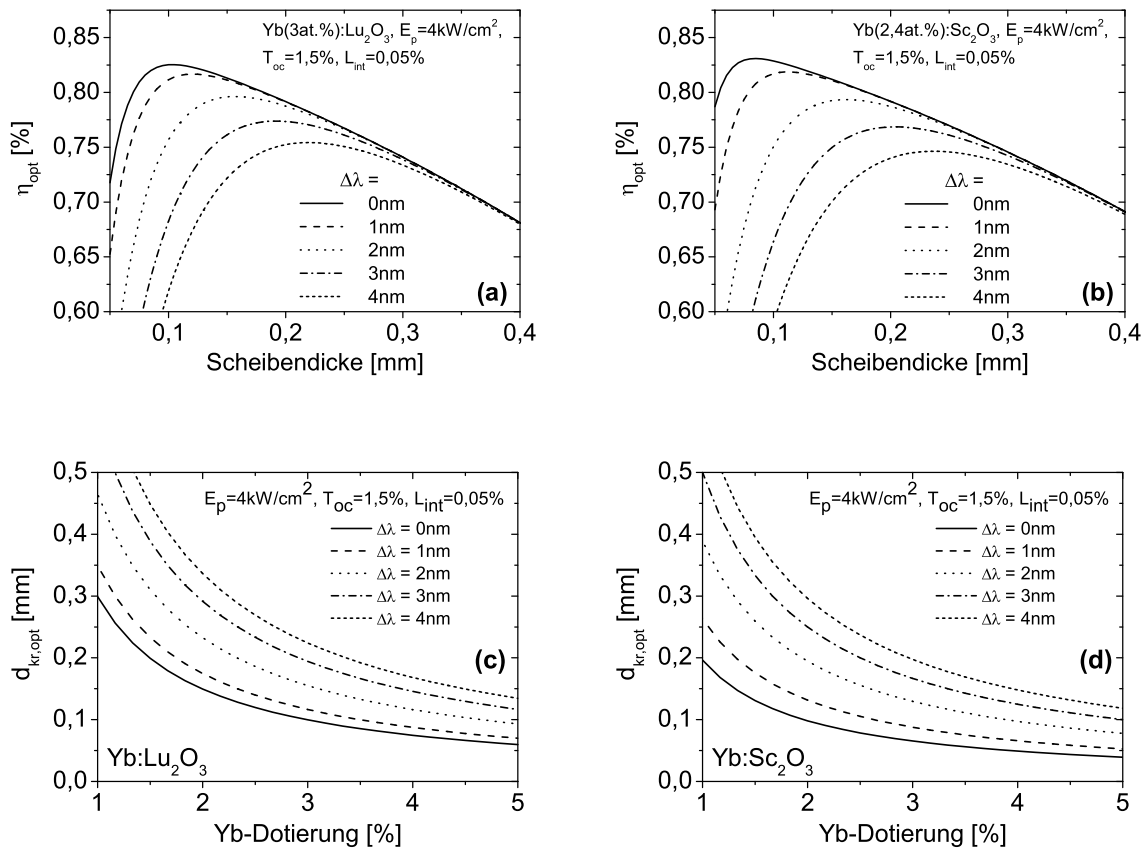
Numerische Berechnungen anhand von temperaturabhängigen Wirkungsquerschnitten für Yb:YAG zeigen einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen der Schwellpumpleistungsdichte und Pumpleistungsdichte [Con02]. Die Änderung der Absorptionseffizienz ist hingegen relativ klein und wird daher im Folgenden vernachlässigt. Da keine temperaturabhängigen Absorptions- und Emissionsspektren zur Verfügung standen, wurde die Steigung des angenommenen linearen Zusammenhangs zwischen Pumpleistung und virtueller Laserschwelle anhand der im weiteren Verlauf der Arbeit durchgeführten Laserexperimente empirisch bestimmt (vgl. Abb. 7.12 und Abb. 7.25).

Mit dem zuvor ermittelten optimalen Auskoppelgrad sowie angenommenen internen Verlusten von 0,05% kann nun die optische Effizienz abgeschätzt werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 7.6a und b für eine Pumpleistungsdichte von  $4 \text{ kW/cm}^2$  (entsprechend der maximal verwendeten Pumpleistungsdichte) in Abhängigkeit der Scheibendicke sowie der Emissionsbandbreite



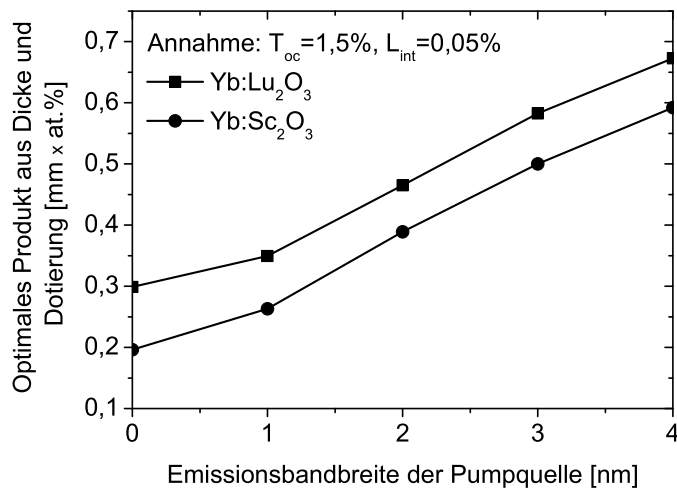
**Abbildung 7.5:** Berechneter optimaler Auskoppelgrad von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:YAG in Abhängigkeit der internen Verluste und Pumpleistungsdichte.

### 7.3 Abschätzung der optimalen Betriebsparameter



**Abbildung 7.6:** Berechnete optische Effizienz in Abhängigkeit der Scheibendicke sowie berechnete optimale Kristalldicke in Abhängigkeit der Dotierung und Emissionsbandbreite der Pumpquelle für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (a,c) und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (b,d). Die zugrunde gelegte Pumpleistungsdichte beträgt dabei 4 kW/cm<sup>2</sup>. Die internen Verluste wurden mit 0,05% und die Auskoppelrate mit 1,5% angenommen.

der Pumpquelle für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dargestellt. Als Yb-Dotierung wurden Werte für die in den Experimenten verwendeten Kristalle Yb(3 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gewählt. In den Graphen ist deutlich die Abhängigkeit des erzielbaren optischen Wirkungsgrads von der Kristalldicke erkennbar. Dabei ist zunächst ein starker Anstieg der Kurve zu verzeichnen. Nach Erreichen eines Maximums, dessen Lage durch den Zusammenhang zur Absorptionseffizienz von der Emissionsbandbreite der Pumpquelle beeinflusst wird, fällt  $\eta_{opt}$  überlinear ab. Während der Anstieg auf die zunehmende Absorptionseffizienz zurückzuführen ist, wird das anschließende Absinken der optisch-optischen Effizienz durch die mit der Kristalldicke steigende Transparenzschwelle (vgl. Gl. 2.69) verursacht. Für eine wie in den folgenden Experimenten verwendete Pumpdiode mit einer spektralen Bandbreite von 2,5 nm ergibt sich für Yb(3 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> eine optimale Scheibendicke von etwa 170  $\mu$ m. Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> liegt bei gleichen Randbedingungen bei etwa 180  $\mu$ m. Für beide Materialien ergibt sich dadurch eine theoretisch erreichbare optische Effizienz von ca. 78%. Zudem wird eine Zunahme der optischen Effizienz mit abnehmender spektraler Breite der Pumpdiode beobachtet. Diese resultiert aus den zunehmenden effektiven Wirkungsquerschnitten (vgl. Abb. 7.3) wodurch auch



**Abbildung 7.7:** Optimales Produkt aus Dicke und Dotierung in Abhängigkeit der Emissionsbandbreite der Pumpquelle. Hierbei wurde eine optimale Auskopplung von 1,5% gewählt, wie sie sich für 0,05% interne Verlusten ergibt.

dünnere Scheiben eine hohe Absorptionseffizienz erreichen. Gleichzeitig sinkt mit abnehmender Scheibendicke die hauptsächlich durch Reabsorption auf der Laserwellenlänge bestimmte Schwelppumpleistungsdichte (vgl. Gl. 2.69), wodurch der Unterschied zwischen differentiellem und optischem Wirkungsgrad verringert wird.

Die Abhängigkeit der optimalen Kristalldicke von der Yb-Dotierung ist in Abb. 7.6c,d für identische Randbedingungen dargestellt. Wie bereits erwähnt, sinkt die optimale Kristalldicke mit abnehmender spektraler Breite der Pumpquelle sowie mit zunehmender Yb-Dotierung. Das Produkt aus Scheibendicke und Dotierung ist dabei für eine gegebene spektrale Breite der Pumpquelle konstant. Trägt man dieses in Abhängigkeit der Emissionsbandbreite der Pumpquelle auf, ergibt sich unter Vernachlässigung der Scheibentemperatur der in Abb. 7.7 dargestellte Verlauf. Der Unterschied zwischen Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kommt dabei zum einen durch die höhere Kationendichte des Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Wirtsgitters und zum anderen durch die höheren Wirkungsquerschnitte von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> zustande. Für eine Pumpquelle mit  $\Delta\lambda = 2,5$  nm ergibt sich so ein optimales Produkt von 0,52 mm × at. % für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bzw. 0,45 mm × at. % für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

### 7.4 Dauerstrichbetrieb bei fester Laserwellenlänge

Nach der Präparation der Kristalle (Kap. 7.1) wurden Scheibenlasereperimente in einem Pumpmodul der TGSW Stuttgart mit insgesamt 24 Pumplichtdurchgängen durch die Scheibe durchgeführt. Die mitgelieferte Kollimationsoptik für die in Kap. 7.2 beschriebenen fasergekoppelten Pumpdioden bildete das Faserende mit einer 1:2 Abbildung auf die Scheibe ab. Für den verwendeten Faserdurchmesser von 600  $\mu$ m ergab sich so ein Pumpfleckdurchmesser von 1,2 mm.

Als Pumpquelle wurde zunächst für alle Materialien die JOLD50 - Laserdiode verwendet, da diese zum einen unter den vorhandenen Laserdioden die geringste Emissionsbandbreite aufwies und zum anderen durch die Peltier-geregelte Temperaturanpassung präziser auf die optimale



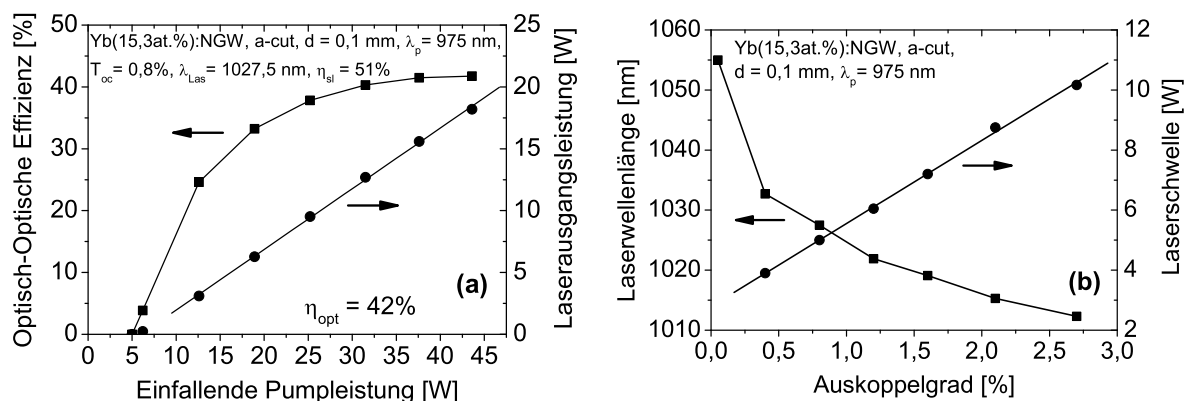
Pumpwellenlänge eingestellt werden konnte. Die typischerweise verwendete maximale Ausgangsleistung von 45 W ergibt eine Pumpleistungsdichte von etwa  $4 \text{ kW/cm}^2$ , was hinreichend nahe an typischen Werten im Hochleistungsbetrieb ist, um anhand der Experimente vergleichende Aussagen treffen zu können.

Da die Scheiben, wie im Abschnitt 7.1 beschrieben, am ILP mit einem nicht optimierten Verfahren kontaktiert wurden, sind Verspannungen in den Kristallen wahrscheinlich [Bei08]. Um die Einflüsse dieser auf die Lasereigenschaften zu minimieren, wurden alle Messungen mit Auskoppelspiegeln mit einem Krümmungsradius von 100 mm in einem linearen Resonator durchgeführt. Bei den verwendeten Resonatorlängen von etwa 60 mm - 100 mm ergeben sich dadurch auf der Scheibe Modendurchmesser von etwa  $100 \mu\text{m}$  bis  $200 \mu\text{m}$ . Der Laser oszilliert dadurch stets im Multimodebetrieb mit einer verringerten Stahlqualität, sodass sich typischerweise ein Wert für die Beugungsmaßzahl von  $M^2 = 15 - 25$  ergab. Von Vorteil sind hingegen die lediglich geringe Abnahme der Effizienz bei kleineren Defekten oder Inhomogenitäten der Scheibe sowie eine hohe Stabilität des Lasers, wodurch sich die unterschiedlichen Materialien trotz möglicherweise nicht optimaler Kontaktierung hinreichend gut vergleichen lassen.

### 7.4.1 Yb:NGW

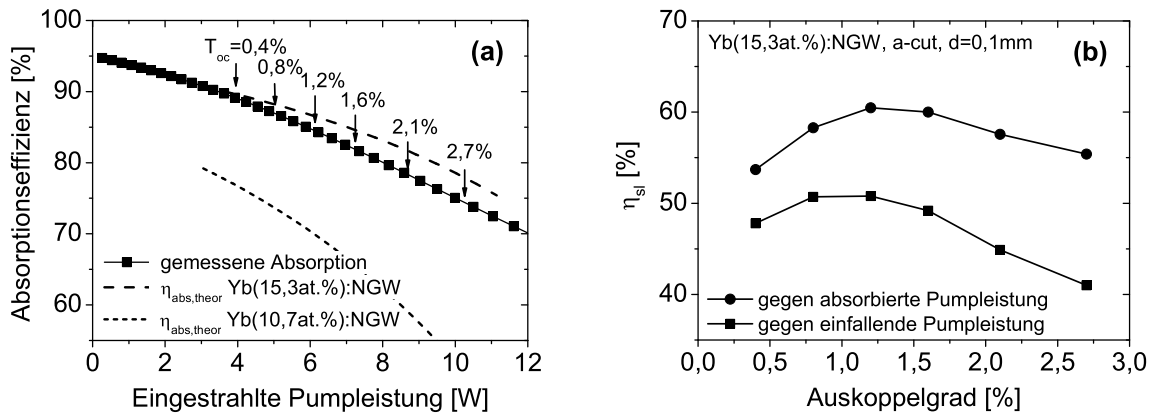
Aufgrund der relativ schlechten thermo-mechanischen Eigenschaften, insbesondere der geringen Wärmeleitfähigkeit wurden die meisten Experimente mit der dünnsten Probe, einer 0,1 mm dicken, Yb(15,3 at.):NGW Scheibe durchgeführt. Die Leistungscharakteristik dieser Probe ist in Abb. 7.8a dargestellt.

Die 0,1 mm dicke Scheibe erreichte für den optimalen Auskoppelgrad von 0,8% eine maximale Ausgangsleistung von 18,2 W bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 43,6 W. Der dabei erreichte differentielle Wirkungsgrad beträgt 51%, bei einem optisch-optischen Wirkungsgrad von etwa 42%. Abbildung 7.8b zeigt den Verlauf der Laserwellenlänge sowie die Laserschwelle für unterschiedliche Transmissionsgrade des Auskoppelspiegels. Während die Laserwellenlänge für einen hochreflektierenden Auskoppler im Mittel bei etwa 1055 nm liegt, fällt sie



**Abbildung 7.8:** a) Ausgangsleistung in Abhängigkeit von der einfallenden Pumpleistung (Kreise) sowie Verlauf des optisch-optischen Wirkungsgrads (Quadrate) eines 0,1 mm dicken Yb(15,3 at.):NGW bei einem Auskoppelgrad von 0,8%. b) Verlauf der Laserwellenlänge (Quadrate) und der Laserschwelle (Kreise) in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad für dieselbe Probe.

## 7 Scheibenlasereperimente

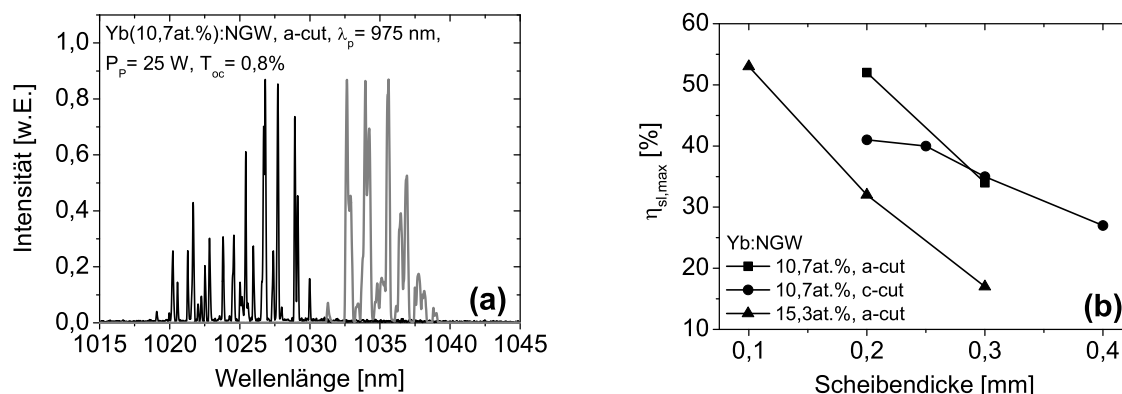


**Abbildung 7.9:** a) Berechnete Absorptionseffizienz eines 0,1 mm dicken Yb(15,3 at. %):NGW nach 24 Pumpdurchgängen in Abhängigkeit von der Schwellpumpleistung (gestrichelte Kurven) sowie gemessener Verlauf der Absorptionseffizienz im ungepumpten Zustand (Quadrate). Bei Annahme konstanter Inversion ist der Anteil absorbierte Pumpleistung im Laserbetrieb konstant. Die Pfeile markieren die Schwellpumpleistungen und für die jeweiligen Auskoppelgrade, sodass sich die Absorptionseffizienz ablesen lässt. b) Vergleich des Verlaufs des differentiellen Wirkungsgrads gegen die einfallende (Quadrate) und abgeschätzte absorbierte Pumpleistung (Kreise) in Abhängigkeit vom Auskoppelgrad.

mit steigendem Auskoppelgrad bis auf etwa 1012 nm für eine Spiegeltransmission von 2,7%. Die Schwelle verhält sich, trotz der sich verändernden Laserwellenlänge relativ linear mit der Auskopplung (vgl. Gl. 2.69) und beträgt bei 0,4% Auskopplung 3,9 W. Für den größten verwendeten Auskoppelgrad von 2,7% liegt sie bei etwa 10,2 W.

Um zu untersuchen, wie hoch die Absorptionseffizienz dieser Scheibe im Vergleich zu den zuvor abgeschätzten Werten ist, wurden Transmissionsmessungen im Doppeldurchgang durch diese Probe durchgeführt. Die daraus errechnete Absorption nach 24 Pumpdurchgängen ist in Abb. 7.9a (Quadrate) dargestellt. Hier zeigt sich, dass die Kleinsignalabsorption etwa 95% beträgt. Mit steigender Pumpleistung wird der Kristall durch die Besetzung des oberen Niveaus zunehmend ausgebleicht. Unter der Annahme einer konstanten Inversion oberhalb der Schwelle, also ohne Berücksichtigung der steigenden Temperatur, ergeben sich anhand der gemessenen Schwellen die mit Pfeilen und dem jeweiligen Auskoppelgrad gekennzeichneten Absorptionsgrade für die unterschiedlichen Auskoppelspiegel. Für eine Auskopplung von 2,7% hat die Absorption der Scheibe demnach bereits auf insgesamt etwa 75% abgenommen. Zum Vergleich wurde die theoretische Absorptionseffizienz für eine 0,1 mm dicke Probe unterschiedlicher Dotierungen dargestellt (gestrichelte Linien). Für die Yb-Dotierungskonzentration von 15,3 at.% ergibt sich eine gute Übereinstimmung.

In Abb. 7.9b (Quadrate) ist der differentielle Wirkungsgrad gegen die einfallende Pumpleistung in Abhängigkeit des Auskoppelgrades dargestellt. Bezogen auf die einfallende Leistung wird ein maximaler Wirkungsgrad für Auskoppelgrade zwischen 0,8% und 1,2% erreicht. Bei geringeren Auskoppelgraden fällt  $\eta_{sl}$  aufgrund des schlechter werdenden Resonatorwirkungsgrads ab. Die Abnahme mit steigendem Auskoppelgrad oberhalb von  $T_{oc} = 1,2\%$  kann durch die mit steigender Schwellpumpleistung abnehmende Absorptionseffizienz aufgrund des Ausbleichens erklärt werden (vgl. Abb. 7.9a). Berücksichtigt man die zuvor abgeschätzte effektive Absorption, so ergibt sich die in Abb. 7.9b mit Kreisen dargestellte Kurve. Danach beträgt der



**Abbildung 7.10:** a) Laserspektrum zweier Yb(15,3 at. %):NGW-Scheiben bei einer Pumpleistung von 25 W, einem Auskoppelgrad von 0,8% und einer Scheibendicke von 0,1 mm (schwarze Kurve) und 0,2 mm (graue Kurve). b) Maximaler erreichter differentieller Wirkungsgrad von Yb:NGW in Abhängigkeit der Dotierung, Orientierung und Scheibendicke (vgl. Tab. E.1).

maximale differentielle Wirkungsgrad, bezogen auf die absorbierte Leistung, etwas mehr als 60%.

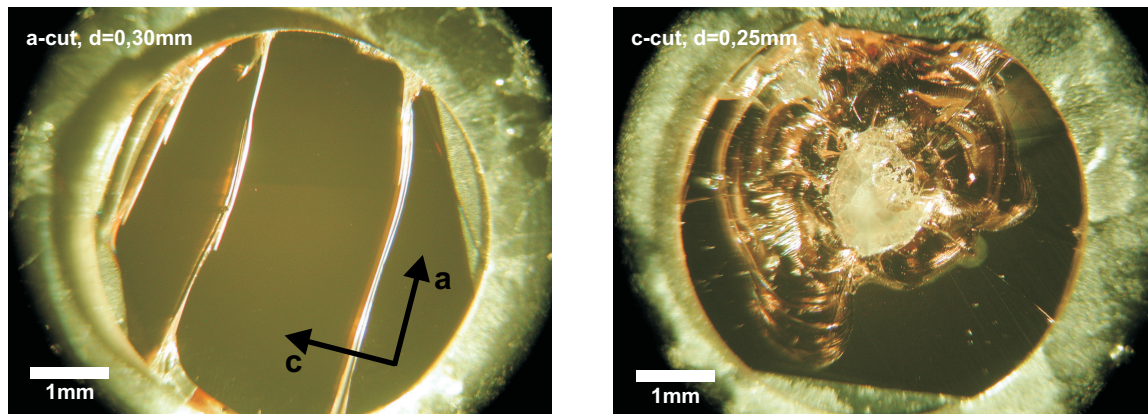
Typische Laseremissionsspektren sind am Beispiel der 0,1 mm sowie einer 0,2 mm dicken, 15,3%-dotierten Scheibe für einen Auskoppelgrad von 0,8% in Abb. 7.10a dargestellt. Die Breite der Emission erstreckt sich im Falle des 0,1 mm dicken Kristalls über mehr als 10 nm, was auf den flachen Verlauf der Verstärkung in diesem Bereich zurückzuführen ist (vgl. Abb. 5.9a). Bei doppelter Kristalldicke ist die Emission etwa 10 nm ins Langwellige verschoben. Dies kann durch die gestiegene Transparenzschwelle erklärt werden. Dazu kommt eine etwas höhere Temperatur der Scheibe, da diese ebenfalls mit der Kristalldicke steigt (vgl. Kap. 7.3). Die starke Modulation des Emissionsprofils wird durch ein durch die Endflächen der Scheibe gebildetes Etalon verursacht.

Neben einigen Scheiben größerer Dicke des Yb(15,3 at. %):NGW Kristalls wurden zudem Scheiben aus einem 10,7 at. % Yb-dotierten Boule in a-cut und c-cut Orientierung und einer Dicke zwischen 0,4 mm und 0,2 mm untersucht. Insbesondere a-cut Proben desselben Boules lieferten bei in der Vergangenheit durchgeführten Laserexperimenten im longitudinal gepumpten Resonator relativ hohe Wirkungsgrade [Pet05, Cas06].

Mit Ausnahme der mit 0,2 mm dünnsten Probe in a-cut Orientierung zeigten alle 10,7 at. % Yb-dotierten Scheiben relativ geringe Effizienzen mit differentiellen Wirkungsgraden zwischen 20% und 40% (vgl. Abb. 7.10b). Die emittierte Laserstrahlung war wie erwartet im Falle der a-cut Scheiben  $\pi$ - und bei den c-cut Scheiben unpolarisiert. In allen Fällen wurde dabei für den optimalen Auskoppelgrad von 0,8% mit abnehmender Scheibendicke eine Zunahme des differentiellen Wirkungsgrads beobachtet (Abb. 7.10b). Weiter wurde festgestellt, dass Kristalle in c-cut Orientierung in der Regel einen geringeren differentiellen Wirkungsgrad aufweisen als Proben in a-cut Orientierung. Dies ist hauptsächlich auf die bereits erwähnte unvollständigen Laserfeinstpolitur der Scheiben zurückzuführen, wodurch nahezu alle Kristalle dieser Orientierung Oberflächendefekte in Form von Kratzern aufwiesen (vgl. Tab. E.1).

Ab einer Dicke von 0,25 mm kam es in vielen Scheiben bei einer Pumpleistung zwischen 20 W und 30 W (entsprechend 1,7 - 2,6 kW/cm<sup>2</sup>) zu Beschädigungen (Abb. 7.11), im Extrem-

## 7 Scheibenlasereperimente



**Abbildung 7.11:** Bilder zweier bei etwa 25 W Pumpleistung beschädigter Yb(10,7 at. %):NGW-Scheiben. Links: 0,30 mm dicker Kristall in a-cut Orientierung. Rechts: 0,25 mm dicker Kristall in a-cut Orientierung.

fall sogar zur Ablösung der Scheibe von der rückseitigen Kupferschicht. Bei den untersuchten a-cut orientierten Scheiben traten in allen Fällen Risse senkrecht zur c-Achse auf. Die Ähnlichkeit zu den bei der Beschichtung auftretenden Defekten lässt dabei auf thermische Spannungen in den Scheiben im Laserbetrieb schließen. Der Vergleich mit den in Kap. 7.3 abgeschätzten Kristalltemperaturen unterstützt diese Vermutung, da bei einer Scheibendicke von 0,3 mm und 30 W Pumpleistung die mittlere Temperatur der Scheibe bereits 121°C beträgt. Bei c-cut orientierten Scheiben ähnlicher Dicke kam es in einigen Fällen zum Aufschmelzen des Kristalls im Pumpfleckbereich (Abb. 7.11 rechts). Ursache hierfür ist vermutlich eine starke thermische Belastung der Scheibe, die in der Folge zu Defekten an den Beschichtungen, dem Lot oder im Kristall führt. Dadurch kann die Wärme nicht mehr effizient an die Wärmesenke abgeführt werden, wodurch es zum starken Aufheizen des Kristalls kommt. Die Beobachtung erklärt auch die geringen differentiellen Wirkungsgrade der dickeren Proben.

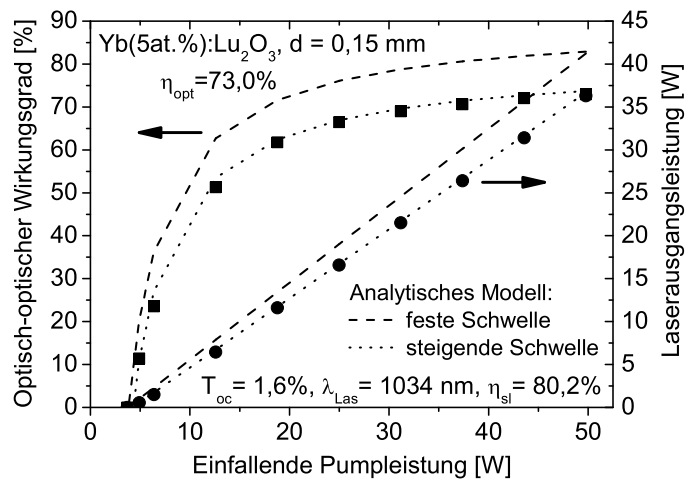
Die Ursache für die, bis auf die geringste Dicke von 0,1 mm, deutlich geringeren Effizienzen der 15,3 at. %-dotierten Proben, kann hingegen nicht endgültig geklärt werden. Mögliche Gründe hierfür könnten höhere interne Verluste aufgrund einer geringeren Kristallqualität sein.

### 7.4.2 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:LuScO<sub>3</sub>

In diesem Abschnitt werden die Leistungscharakteristiken der im Scheibenlaser verwendeten Yb-dotierten Sesquioxide vorgestellt. Neben typischen Leistungskurven, werden wie schon beim Yb:NGW, Vergleiche zwischen Scheiben unterschiedlicher Dotierungen und Dicken angestellt. Zudem wird der Einfluss der Pumpwellenlänge untersucht und mit den theoretischen Überlegungen verglichen.

#### Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Aufgrund seines unter allen vorgestellten Scheibenlasermaterialien größten Potentials für die Anwendung im Hochleistungsbereich (vgl. Abschnitt 7.3.2), wurden umfangreiche Untersuchungen an Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> durchgeführt. Dazu wurden Proben mit Dotierungen zwischen 1 at% und 10 at.% sowie Scheibendicken zwischen 80 µm und 450 µm aus den vorher hergestellten Kristallen (Kap. 4) präpariert. Eine Auflistung aller untersuchten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheiben ist im



**Abbildung 7.12:** Laserausgangsleistung (Kreise) sowie optisch-optischer Wirkungsgrad (Quadrate) eines 0,15 mm dicken Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung.

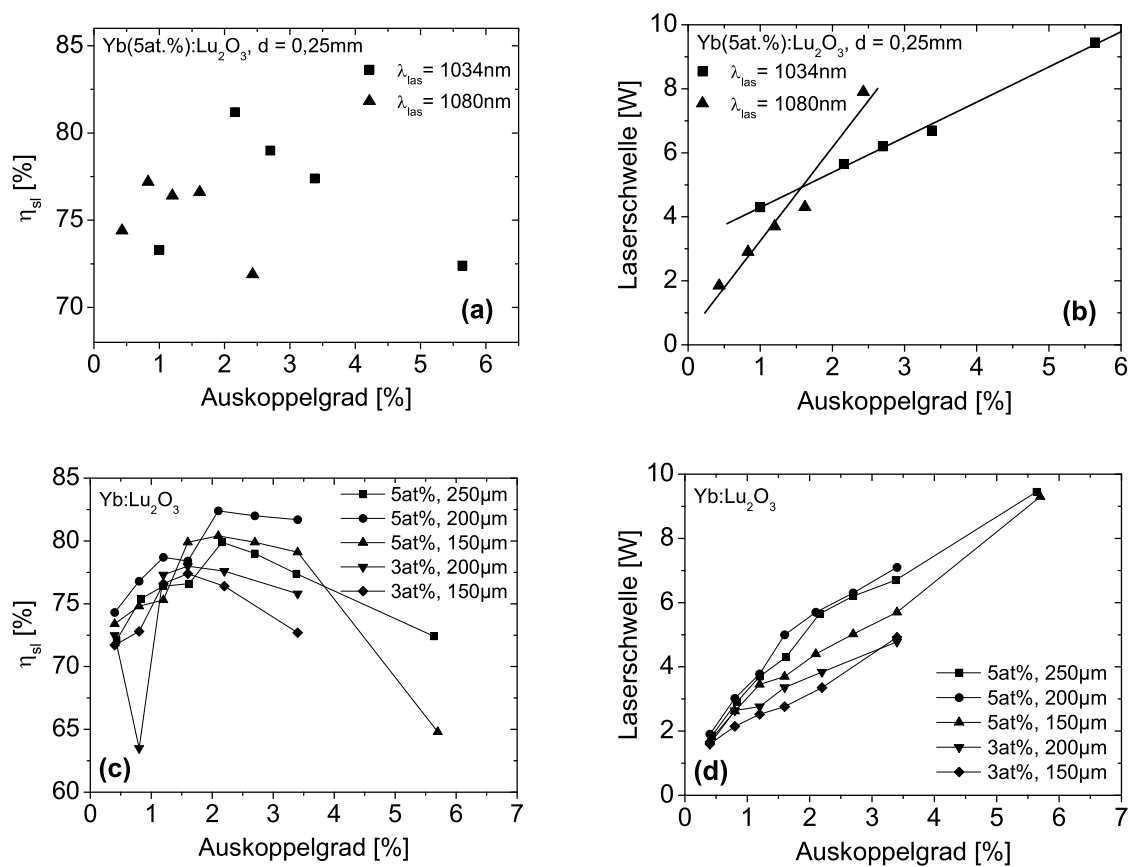
Anhang in Tab. E.2 zu finden.

Abbildung 7.12 zeigt die Leistungskurve eines 0,15 mm dicken Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls. Dieser erreichte bei einer Auskoppelung von 1,6% den unter allen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristallen höchsten optisch-optischen Wirkungsgrad von etwa 73%, bei einer Wellenlänge von 1034 nm. Die maximale Ausgangsleistung lag in diesem Fall bei 36,3 W bei einer einfallenden Pumpleistung von 49,8 W. Der differentielle Wirkungsgrad betrug etwa 80% und liegt damit deutlich über den für Yb:YAG typischen Werten von 70% - 75% [Lar08a, Bei08].

Wie aus den Verstärkungsspektren hervorgeht (Abb. 5.9), liegt die Laserwellenlänge je nach Auskoppelgrad beim Maximum um 1080 nm oder um 1034 nm. Je nach Dicke und Dotierung der Scheibe, ist der Auskoppelgrad, an welchem der Wechsel der Wellenlänge stattfindet, von Probe zu Probe verschieden. Da beim kurzwelligeren Emissionsmaximum aufgrund des geringeren Quantendefekts in der Regel höhere differentielle Wirkungsgrade erzielt werden, ist Laserbetrieb auf dieser Wellenlänge in den meisten Fällen von Vorteil. Zudem sinkt die Laserschwelle mit abnehmendem Produkt aus Dicke und Dotierung wodurch sich auch empirisch die optimalen Parameter für die optische Effizienz ermitteln lassen (vgl. Kap. 7.3). Eine Skizzierung der Abhängigkeit des differentiellen Wirkungsgrads sowie der Laserschwelle vom Auskoppelgrad ist am Beispiel eines 0,25 mm dicken Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls in Abb. 7.13a,b gegeben.

Da die Reflektivität der verwendeten Auskoppelspiegel im Bereich zwischen 990 nm und 1150 nm nahezu konstant verläuft, wird bei kleinen Auskoppelgraden bis 1,6% zunächst Lasertätigkeit bei einer Wellenlänge 1080 nm mit differentiellen Wirkungsgraden zwischen 74% und 77% beobachtet. Für  $T_{oc} = 2,1\%$  wechselt die Laserwellenlänge auf 1034 nm, was mit einer Zunahme des differentiellen Wirkungsgrads auf etwa 81% einhergeht. Dies kann neben dem nahezu halbierten Quantendefekt durch die leichte Erhöhung des Resonatorwirkungsgrads erklärt werden. Bei höheren Auskoppelraten nimmt der  $\eta_{sl}$  wieder leicht ab und erreicht bei  $T_{oc} = 5,7\%$  etwa 72%. Die zusätzlichen Auskoppelspiegel mit  $T_{oc} = 1,0\%$  bzw.  $T_{oc} = 2,4\%$  erlauben aufgrund ihrer spektralen Charakteristik nur Lasertätigkeit bei 1034 nm bzw. 1080 nm.

## 7 Scheibenlasereperimente

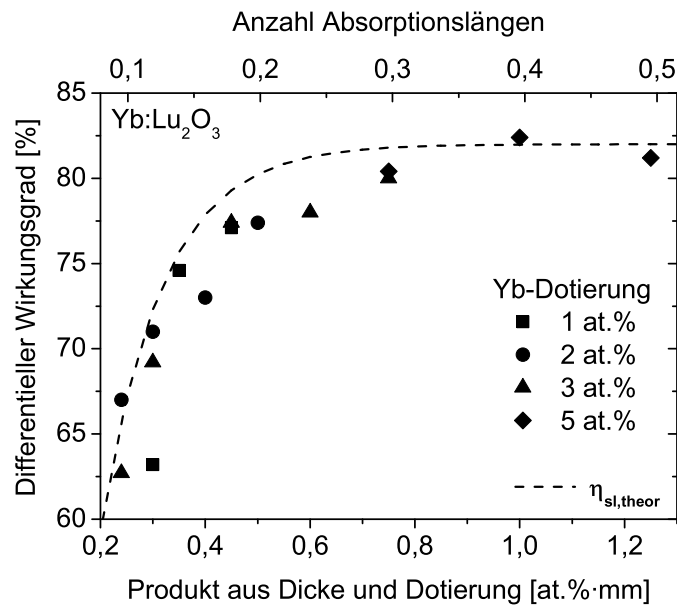


**Abbildung 7.13:** Differentieller Wirkungsgrad (a) und Laserschwelle (b) eines 0,25 mm dicken Yb(5 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls sowie weiterer Proben (c,d) in Abhängigkeit des Auskoppelgrades.

Die Schwellpumpleistung in Abhängigkeit des Auskoppelgrades ist in Abb. 7.13b dargestellt. Hierbei wird mit steigendem Auskoppelgrad eine lineare Zunahme der Laserschwelle beobachtet, wobei der Anstieg der Geraden für beide Laserwellenlängen unterschiedlich ist. Die bei einer Laserwellenlänge von 1080 nm für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  gemessene, minimale Schwelle betrug 1,85 W entsprechend  $0,16\text{ kW/cm}^2$ . Für den für diesen Kristall optimalen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 2,1\%$  und einer Laserwellenlänge von 1034 nm betrug die Schwelle 5,65 W ( $0,5\text{ kW/cm}^2$ ). Die gemessenen Schwellen stehen dabei in guter Übereinstimmung zu den in Kap. 7.3 vorgestellten Überlegungen.

Ein Vergleich des differentiellen Wirkungsgrads weiterer Kristalle ist in Abb. 7.13c zu finden. Der höchste erzielte differentielle Wirkungsgrad betrug 82,4% und wurde bei einer 5 at.%-dotierten, 0,2 mm dicken Probe für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 2,1\%$  gemessen. Der Wechsel der Laserwellenlänge von 1080 nm zu 1034 nm äußert sich in dieser Darstellung als Abknicken der Kurve. Mit zunehmender Dicke und Dotierung verschiebt sich dieser Wechsel zu höheren Auskoppelgraden.

In Abb. 7.13d sind die gemessenen Schwellpumpleistungen in Abhängigkeit der Auskoppelverluste für dieselben Kristalle dargestellt. Für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  besit-



**Abbildung 7.14:** Maximaler erreichter differentieller Wirkungsgrad von  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  in Abhängigkeit der Dicke und Dotierung bzw. der Anzahl der Absorptionslängen der Scheiben. Die Absorptionslängen beziehen sich dabei auf einen Einfachdurchgang durch die Scheibe bei einer Emissionsbandbreite der Pumpdiode von 2,5 nm. Unter der Annahme, dass der differentielle Wirkungsgrad hauptsächlich von der Absorption der jeweiligen Scheibe abhängt, ergibt sich die gestrichelte Kurve für einen angenommenen maximalen differentiellen Wirkungsgrad von 82%. Dabei wurde ebenfalls von einer Emissionsbandbreite der Pumpdiode von 2,5 nm, sowie einem optimalen Auskoppelgrad von 1,6% ausgegangen.

zen nahezu alle dargestellten Proben eine, im Rahmen der Messgenauigkeit, ähnliche Schwelle zwischen 1,6 W und 1,9 W. Mit steigendem Auskoppelgrad unterscheiden sich die Verläufe der Kurven zum Teil erheblich. So liegt die Schwelle bei  $T_{oc} = 2,1\%$  für den Kristall mit der größten Dicke von 0,25 mm und einer Yb-Dotierungskonzentration von 5 at.% bereits bei 5,65 W, während diese für einen 3 at.% Yb-dotierten, 0,15 mm dicken Kristall lediglich 3,35 W beträgt. Anhand von Kristallen unterschiedlicher Dotierung bei identischer Dicke kann damit der Einfluss der Transparenzschwelle veranschaulicht werden. Die Resonatorschwelle scheint wie vermutet für den kurzwelligen Übergang von vernachlässigbarer Größe zu sein, was auf eine gleichbleibende, sehr hohe optische Qualität der unterschiedlichen Proben schließen lässt.

Um die Qualität der in den unterschiedlichen Züchtungen hergestellten Kristalle weiter vergleichen zu können, ist es hilfreich, den maximal erzielten differentiellen Wirkungsgrad jeder Scheibe gegen das Produkt aus Dicke und Dotierung der jeweiligen Scheibe aufzutragen. In diesem Fall liegen Kristalle mit gleicher Absorption auf dem gleichen x-Wert. Das Ergebnis ist in Abb. 7.14 dargestellt. Hierbei ist eine Zunahme des differentiellen Wirkungsgrads mit steigendem Produkt aus Dotierung und Dicke festzustellen. Es liegt daher die Vermutung nahe, dass der ermittelte differentielle Wirkungsgrad hauptsächlich durch die Absorptionseffizienz der jeweiligen Scheibe bestimmt wird. Um dies zu überprüfen, wurde ein Laserexperiment mit einem Doppelpass des Pumplichts durch die Scheibe durchgeführt. Durch Messung der reflektierten Leistung konnte die Absorption der Probe direkt gemessen und die Ausgangsleistung gegen die tatsächlich absorbierte Leistung aufgenommen werden. Der für das Experiment verwendete

## 7 Scheibenlasereperimente

120  $\mu\text{m}$  dicke  $\text{Yb}(2 \text{ at. } \%)\text{:Lu}_2\text{O}_3$ -Kristall besitzt im Scheibenlaser mit 24 Pumplichtdurchgängen einen differentiellen Wirkungsgrad von 67%. Gegen absorbierte Leistung steigt dieser auf  $\eta_{sl} = 85\%$  und liegt damit sogar leicht über den höchsten Werten aus Abb. 7.14. Diese Differenz kann durch Verluste bei der Mehrfachabbildung des Pumplichtes innerhalb der Pumpkammer, insbesondere am Parabolspiegel und den Umlenkprismen verursacht werden.

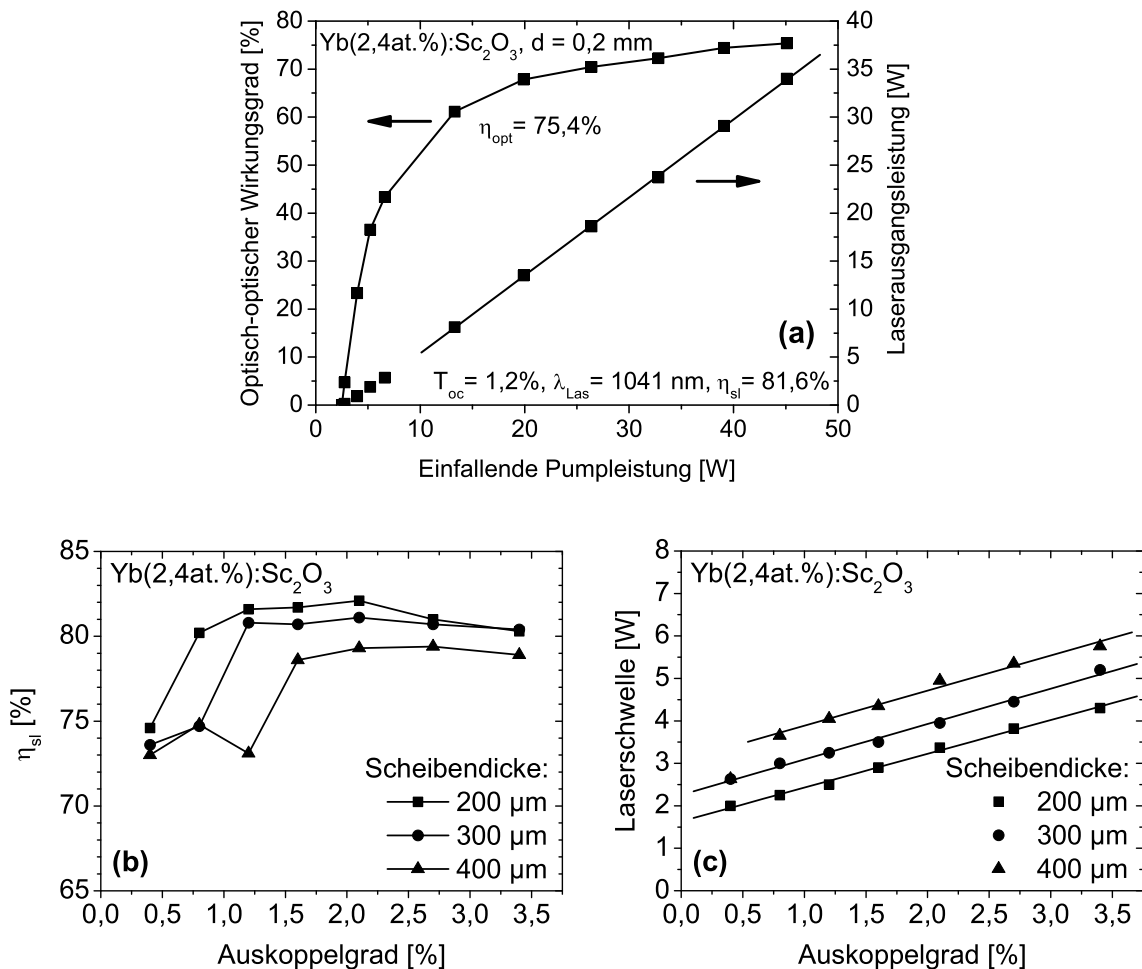
Da der optimale Auskoppelgrad in allen Fällen zwischen 1,6% und 2,1% lag, ergibt sich ein vergleichbarer Resonatorwirkungsgrad. Auch eine stark unterschiedliche Scheibentemperatur für unterschiedliche Dicken ist aufgrund der hohen Wärmeleitfähigkeit des Materials nicht zu erwarten (Abb. 7.2a). Auswirkungen dieser Effekte auf den differentiellen Wirkungsgrad der unterschiedlichen Scheiben können daher in erster Näherung vernachlässigt werden. In diesem Fall werden Unterschiede in den differentiellen Wirkungsgraden ausschließlich von der Absorptionseffizienz der unterschiedlichen Scheiben verursacht. Unter dieser Annahme wurde der theoretisch erreichbare differentielle Wirkungsgrad anhand der jeweiligen Absorptionseffizienz für diese Randbedingungen berechnet (Abb. 7.14, gestrichelte Kurve). Einziger freier Parameter war in diesem Fall die Obergrenze. Für diese ergibt sich eine gute Übereinstimmung der gemessenen Wirkungsgrade mit den Ergebnissen des analytischen Modells für einen Wert von  $\eta_{sl,max} = 82\%$ .

### **Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>**

Von  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  wurden Scheiben aus dem 2,4 at. %-dotierten Kristall (vgl. Kap. 4) mit Dicken zwischen 0,2 mm und 0,4 mm präpariert. Die Leistungskurve für die unter allen  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$ -Proben effizienteste Scheibe ist in Abb. 7.15a dargestellt. Der 0,2 mm dicke Kristall erreichte bei einem optimalen Auskoppelgrad von 2,1% bei einer Wellenlänge von 1041 nm einen maximalen differentiellen Wirkungsgrad von 82,1%. Die Ausgangsleistung betrug 34,0 W bei einer eingestrahelten Pumpleistung von 45,1 W. Der maximale optisch-optische Wirkungsgrad wurde für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 1,2\%$  erzielt und betrug 75,4%. Der im Vergleich zu  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  trotz des sehr ähnlichen differentiellen Wirkungsgrads etwas höhere optische Wirkungsgrad ist durch die etwas niedrigeren Laserschwellen zu erklären, welche aus den höheren Emissionswirkungsquerschnitten von  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  resultieren. Ein Vergleich der erzielten differentiellen Wirkungsgrade sowie Laserschwellen verschieden dicker Scheiben ist in Abb. 7.15b,c dargestellt. Für die unter allen untersuchten Proben beste Scheibendicke von  $d = 0,2 \text{ mm}$  liegt  $\eta_{sl}$  für Auskoppelgrade zwischen  $T_{oc} = 0,8\%$  und 3,4% bei mehr als 80%. Mit zunehmender Scheibendicke verschiebt sich der optimale Auskoppelgrad, analog zu  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$ , zu höheren Werten, da der Wechsel der Laserwellenlänge von der langwelligen Emissionsbande um 1095 nm zu der kurzwelligeren um 1041 nm aufgrund der steigenden Transparenzschwelle später erfolgt. Auch die Laserschwellen der unterschiedlichen Scheiben steigen im Rahmen der Messgenauigkeit linear mit der Auskoppelrate an.

Insgesamt kann festgehalten werden, dass sich  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  trotz der geringen Breite der Nullphononenlinie von  $\Delta\lambda = 2,1 \text{ nm}$  (vgl. Kap. 5.2.3) hervorragend mit der verwendeten Pumpdiode mit einer Emissionsbandbreite von etwa 2,5 nm anregen lässt. Aufgrund der durchgeführten Experimente sowie der in Kap. 7.3 durchgeführten Rechnungen, scheint für die verwendete Konzentration eine weitere Reduzierung der Scheibendicke durchaus sinnvoll, da sich damit vermutlich sowohl die Schwelle weiter verringern als auch der differentielle Wirkungsgrad leicht erhöhen ließe.





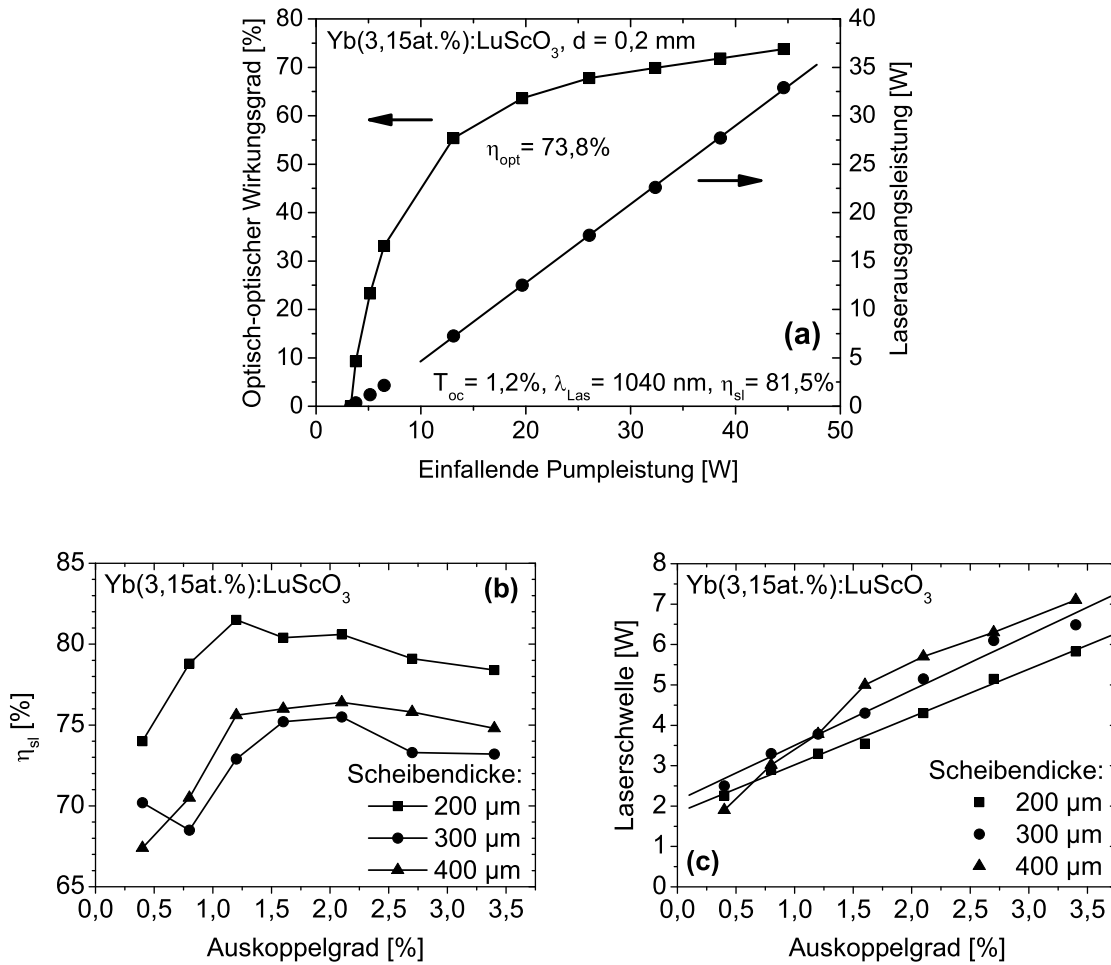
**Abbildung 7.15:** Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente mit Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. a) Ausgangsleistung und optisch-optische Effizienz in Abhängigkeit der eingestrahlichten Pumpleistung für eine 0,2 mm dicke Yb(2,4 at. %):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheibe. b) Differentieller Wirkungsgrad und c) Laserschwelle in Abhängigkeit des Auskoppelgrades verschieden dicker Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheiben.

### Yb:LuScO<sub>3</sub>

Um die Lasereigenschaften des Yb:LuScO<sub>3</sub>-Mischkristalls im Scheibenlaser zu erproben, wurden mehrere Scheiben des 3,15 at. % Yb-dotierten Kristalls mit Dicken zwischen 0,2 mm und 0,3 mm präpariert. Die in den Laserexperimenten maximale Ausgangsleistung von 32,9 W bei 44,6 W Pumpleistung wurde mit dem dünnsten Kristall von 0,2 mm Dicke erzielt (Abb. 7.16a). Der differentielle Wirkungsgrad betrug in diesem Fall 81,5% für einen Auskoppelgrad von 1,2% bei einer Wellenlänge von 1040 nm. Der daraus resultierende optisch-optische Wirkungsgrad des Lasers liegt mit 73,8% zwischen denjenigen von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Der Verlauf des differentiellen Wirkungsgrades und der Schwelle in Abhängigkeit der Scheibendicke und des Auskoppelgrades ist in Abb. 7.16 dargestellt. Im Vergleich zu Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ergibt sich bei größeren Scheibendicken eine stärkere Abnahme des differentiellen Wirkungsgrades auf maximal 76%. Mögliche Ursache hierfür ist die im Vergleich zu den rei-

## 7 Scheibenlaserexperimente

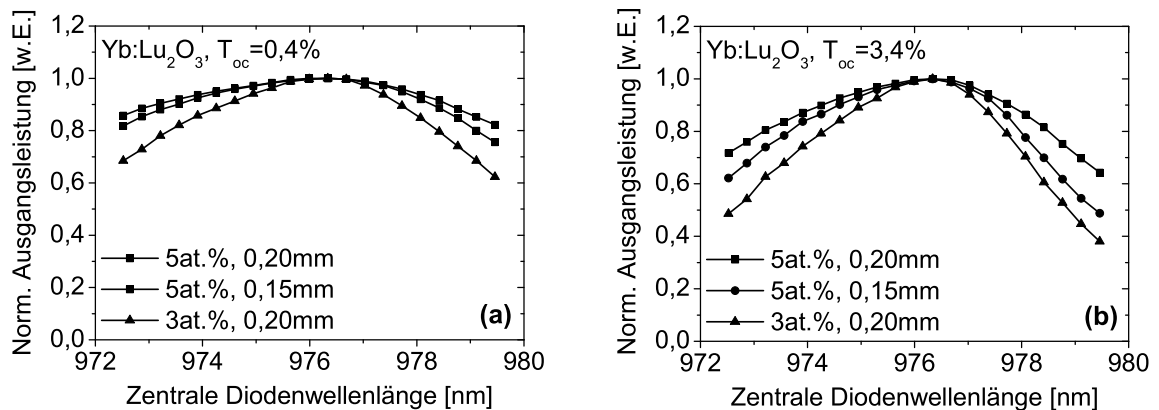


**Abbildung 7.16:** Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente an  $\text{Yb}:\text{LuScO}_3$ . a) Laserleistung in Abhängigkeit der eingestrahelten Pumpleistung einer  $0,2\text{ mm}$  dicken  $\text{Yb}(3,15\text{at.}\%):\text{LuScO}_3$  Scheibe. b) Differentialer Wirkungsgrad und c) Laserschwelle in Abhängigkeit des Auskoppelgrades verschieden dicker  $\text{Yb}:\text{LuScO}_3$  Scheiben.

nen Sesquioxiden mit  $3,4\text{ W/mK}$  deutlich niedrigere Wärmeleitfähigkeit, welche zur stärkeren Erwärmung des Kristalls und damit durch die höhere Besetzung des Laserzielniveaus zu einer höheren Schwelle führt. Ein weiterer Grund könnte das Vorhandensein von Korngrenzen im Bereich des Pumpflecks sein (s. Kap. 4.2.6), welche zu Streuverlusten führen können. Ungeachtet dessen können auch mit diesem Material äußert hohe Effizienzen erreicht werden, sodass bei einer geeigneten Wahl der Scheibendicke eine weitere Skalierung möglich sein sollte.

### Einfluss der Pumpwellenlänge

Um den Einfluss der Pumpwellenlänge auf die Effizienz des Lasers zu veranschaulichen, wurde die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge für unterschiedliche Scheibendicken und Dotierungen sowie in Abhängigkeit des Auskoppelgrades aufgenommen. Die Ergebnisse sollen am Beispiel von  $\text{Yb}:\text{Lu}_2\text{O}_3$  erläutert werden.



**Abbildung 7.17:** Einfluss der zentralen Pumpwellenlänge auf die Ausgangsleistung bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. a) Normierte Laserausgangsleistung für unterschiedliche Scheiben bei 0,4% Auskopplung in Abhängigkeit der zentralen Diodenwellenlänge. b) Normierte Laserausgangsleistung für unterschiedliche Scheiben bei 3,4% Auskopplung in Abhängigkeit der zentralen Diodenwellenlänge. Die eingestrahelte Pumpleistung betrug in allen Fällen 25 W.

In Abb. 7.17 ist die normierte Ausgangsleistung in Abhängigkeit der zentralen Wellenlänge der Pumpdiode für unterschiedliche Scheiben für  $T_{oc} = 0,4\%$  und  $T_{oc} = 3,4\%$  bei einer Pumpleistung von 25 W dargestellt. Dabei ist erwartungsgemäß zu beobachten, dass für Scheiben mit einem größeren Produkt aus Dicke und Dotierung der Abfall der Leistung bei Variation der zentralen Pumpwellenlänge geringer ist. Für höhere Auskoppelgrade nimmt die Auswirkung einer abweichenden Pumpwellenlänge weiter zu. Hier liegt die Ursache hauptsächlich in der größeren Schwelle, wodurch sich geringere differentielle Wirkungsgrade stärker in der optischen Effizienz bemerkbar machen. Zudem bleicht der Kristall bei höherer Schwelle stärker aus, wodurch zusätzlich die Absorptionseffizienz verringert wird.

Insgesamt kann für alle untersuchten Sesquioxid-Kristalle eine ähnliche Abnahme der Ausgangsleistung bei Abweichungen der Pumpwellenlänge festgestellt werden. So ergab sich für die in diesem Experiment verwendete eingestrahelte Pumpleistung von 25 W, sowie den optimalen Auskoppelgrad und die optimale Scheibendicke, eine Abnahme der Ausgangsleistung von 10% bei einer Abweichung der Pumpwellenlänge von etwa 1,5 nm.

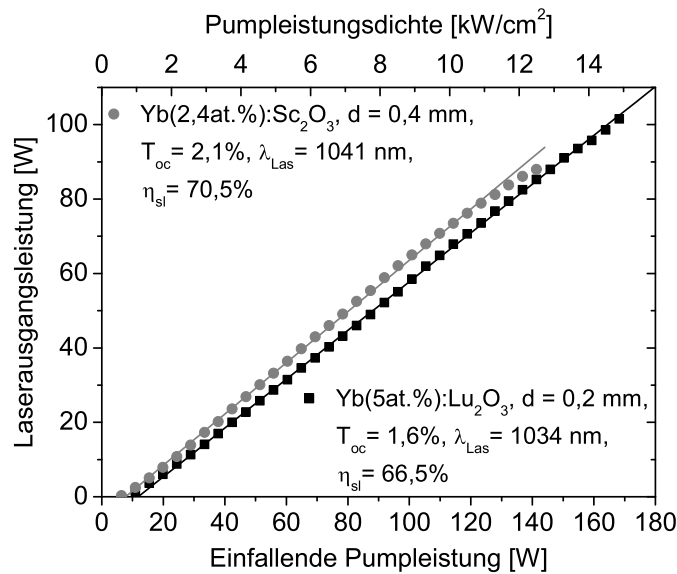
### Weitere Leistungsskalierung

Um die Eignung der untersuchten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Proben auch für höhere Pumpleistungen zu demonstrieren, wurden weitere Experimente mit der JOLD140-Laserdiode als Pumpquelle durchgeführt. Aufgrund ihrer im Vergleich zur JOLD50-Diode deutlich größeren Emissionsbandbreite zwischen 3 nm und 4 nm, ist bei Verwendung dieser Diode mit einer verringerten Absorption und damit einer geringeren Effizienz zu rechnen (vgl. Abschnitt 7.3.3).

Dennoch konnte in den Experimenten eine deutliche Steigerung der Ausgangsleistung gegenüber den mit der JOLD50 durchgeführten Experimenten erzielt werden.

Zunächst wurden an einigen Scheiben Laserexperimente bei Pumpleistungen von einigen 10 W durchgeführt, in denen die unter diesen Bedingungen mit der höchsten Effizienz laufenden Scheiben bestimmt wurden. Dabei handelte es sich im Falle von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> um den dicksten zur Verfügung stehenden Kristall, aber auch bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> erwies sich mit dem 0,2 mm dicken

## 7 Scheibenlaserexperimente



**Abbildung 7.18:** Ausgangsleistung in Abhängigkeit der einfallenden Pumpleistung der JOLD140-Laserdiode für einen 0,2 mm dicken Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Quadrate) und einen 0,4 mm dicken Yb(2,4 at. %):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Kreise)

5 at. %-dotierten Kristall eine Probe mit einem sehr hohen Produkt aus Dicke und Dotierung als am besten geeignet.

Die Ergebnisse dieser Laserexperimente sind in Abb. 7.18 dargestellt. Für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> wird bei einer Pumpleistung von 168 W eine Ausgangsleistung von 101,6 W bei einem differentiellen Wirkungsgrad von 66,5% erreicht. Bis zur maximalen Pumpleistung, welche einer Pumpleistungsdichte von etwa 15 kW/cm<sup>2</sup> entspricht, ist kein Absinken des differentiellen Wirkungsgrades festzustellen. Es ist daher nicht auszuschließen, dass aufgrund der sehr guten Wärmeleitfähigkeit von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in diesem Resonatordesign sogar noch höhere Pumpleistungsdichten appliziert werden können, ohne nennenswerte thermische Probleme in der Scheibe zu erzeugen.

Ein etwas anderes Bild ist für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> zu verzeichnen. Die Scheibe erzielt zwar einen leicht höheren differentiellen Wirkungsgrad von 70,5%, weicht aber ab einer Pumpleistung von etwa 120 W vom linearen Verlauf der Ausgangsleistung ab. Da nicht klar war, ob es sich dabei um eine unzureichende Stabilisierung der im Vergleich zu Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 1 nm kürzeren Pumpwellenlänge oder um ein thermisches Überrollen handelt, wurde die Pumpleistung auf etwa 140 W begrenzt. Die dabei erreichte maximale Ausgangsleistung betrug 88 W.

Im Vergleich zu den Laserexperimenten mit der JOLD50-Laserdiode als Pumpquelle ist eine deutliche Abnahme des differentiellen Wirkungsgrades zu beobachten. Diese beträgt bei der Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheibe etwa 18%, bei der Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Probe etwa 11%. Theoretisch ergibt sich jedoch für die verwendeten Proben und Auskoppelgrade eine Abnahme des differentiellen Wirkungsgrades aufgrund der etwas geringeren Absorptionseffizienz von weniger als 1%. Ein Indiz zur Klärung der Beobachtung liefern die in den Experimenten gemessenen Laserschwellen. Während unter Verwendung der JOLD50-Laserdiode mit dem gleichen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 1,6\%$  die Schwellpumpleistung bei der Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe bei  $P_{thr} = 5,0$  W lag, erhöhte sich diese für die JOLD140 auf etwa  $P_{thr} = 7,5$  W. Der Unterschied für die Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Probe

von  $P_{thr} = 6 \text{ W}$  für die JOLD140 bzw.  $P_{thr} = 4,9 \text{ W}$  für die JOLD50 fällt dabei etwas geringer aus. Ursache für die geringeren Wirkungsgrade und höheren Schwellen ist vermutlich die zum Teil stark von einem idealen Gauß-Profil abweichende Emissionscharakteristik der JOLD140 (vgl. Abb. 7.1b), sowie ein etwas schlechterer räumlicher Überlapp der Pump- und Lasermode. Letzteres wird auch durch die Beobachtung unterstützt, dass selbst bei optimaler Justage der Pumpoptik ein deutlich ausgeschmierterer Pumpfleck als mit der JOLD50 auf der Scheibe zu sehen war.

### 7.4.3 Lasereigenschaften von hochdotiertem Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Um die Wärmeabfuhr aus dem aktiven Medium weiter zu verbessern, sind geringere Scheibendicken wünschenswert. Bei konstanter Anzahl von Pumplichtdurchgängen muss für eine gleichbleibend hohe Absorptionseffizienz die Konzentration der aktiven Ionen im Medium erhöht werden. Dies führte bei Yb:YAG in der Vergangenheit oberhalb einer Yb-Konzentration von etwa 12 at.% zum Auftreten von zusätzlichen Verlustprozessen, welche zur starken Erwärmung der Kristalle führen [Lar08a]. Eine ähnliche Problematik wurde auch bei hochdotiertem Yb:KYW [Gri08, Lar08b] beobachtet. Die Ursache dieser Prozesse ist Gegenstand aktueller Forschung und wird im Rahmen der Doktorarbeit von S. T. Fredrich-Thornton am Institut für Laser-Physik untersucht [Fre09]. Um zu untersuchen, ob diese Verlustprozesse auch in Yb-dotierten Sesquioxiden auftreten, wurden mehrere Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheiben mit einer Dotierung von 10 at.% Yb (entsprechend 20,7 at.% in Yb:YAG) präpariert. Die Scheibendicke wurde mit  $d = 0,1 \text{ mm}$  für eine optimale Absorption ausgelegt. Die Ergebnisse der aufgenommenen Leistungskurven sind in Abb. 7.19 dargestellt.

Im ersten Fall wurde zunächst der für die meisten Scheiben optimale Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 1,6\%$  gewählt. Die typische Schwelle für Kristalle mit diesem Produkt aus Dicke und Dotierung lag in den zuvor durchgeführten Experimenten bei etwa 4-5 W (vgl. Abb. 7.13d). Überraschenderweise konnte mit dem 10 at.%-dotierten Kristall bis zur maximal eingestrahlenen Pumpleistung von 25 W keinerlei Lasertätigkeit erreicht werden. Es wurde daher ein geringerer Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  getestet. Mit diesem war Lasertätigkeit möglich, allerdings be-

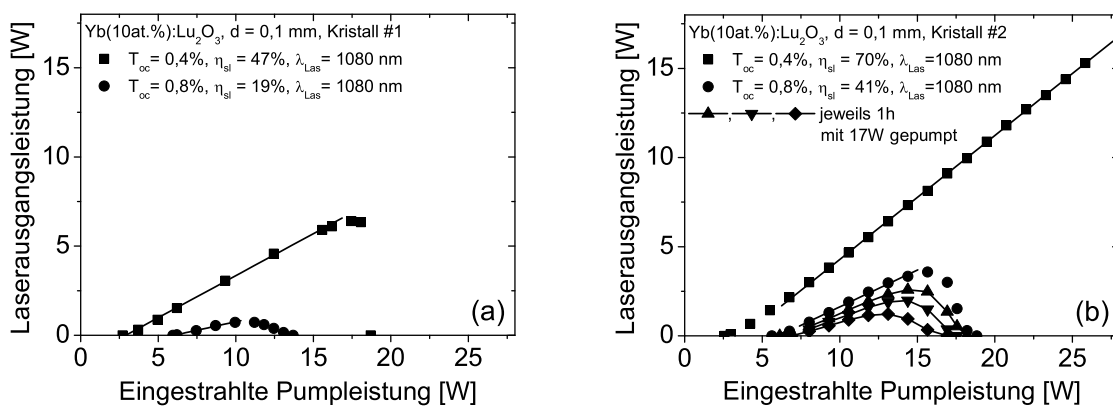
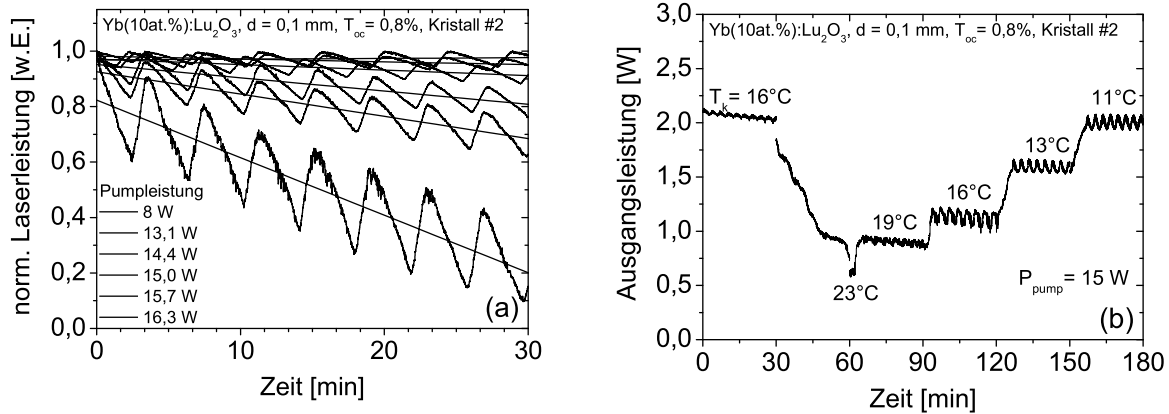


Abbildung 7.19: Leistungskurven verschiedener 0,1 mm dicker Yb(10 at.):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheiben.

## 7 Scheibenlasereperimente



**Abbildung 7.20:** a) Gemessene Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Zeit und Pumpleistung. b) Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Zeit und Kühlwassertemperatur.

trug der differentielle Wirkungsgrad nur 47% (Abb. 7.19a). Vergleichbare Scheiben geringerer Yb-Dotierungskonzentration erreichten hier typischerweise  $\eta_{sl} = 75\%$ . Ab einer Pumpleistung von etwa 17 W kam es zum thermischen Überrollen mit anschließendem Erlöschen der Lasertätigkeit. Die Erhöhung des Auskoppelgrades auf  $T_{oc} = 0,8\%$  sorgte für einen deutlichen Anstieg der Schwellpumpleistung sowie einen Abfall des differentiellen Wirkungsgrads auf  $\eta_{sl} = 19\%$ .

Im Gegensatz zur ersten Scheibe wurden die in Abb. 7.19b dargestellten Experimente der zweiten Scheibe zunächst mit einem niedrigen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  durchgeführt. Für diesen Auskoppelgrad konnte ein differentieller Wirkungsgrad von  $\eta_{sl} = 70\%$  erreicht werden (Abb. 7.19b), welcher damit vergleichbar zu Kristallen mit niedrigerer Yb-Konzentration ist. Die Erhöhung des Auskoppelgrades auf  $T_{oc} = 0,8\%$  resultierte, wie auch beim ersten Kristall in einer starken Zunahme der Schwelle und einem Absinken des differentiellen Wirkungsgrads mit thermischem Überrollen ab 16 W Pumpleistung. Wurde die Messung wiederholt, konnte eine zunehmende Verschlechterung der Leistungskurve mit ansteigender Schwelle und sinkendem differentiellen Wirkungsgrad beobachtet werden.

Um die beobachtete Degradation der Scheibe näher zu untersuchen, wurde die Ausgangsleistung des Lasers bei konstanter Pumpleistung zeitabhängig aufgenommen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 7.20 dargestellt. Abbildung 7.20a zeigt die normierte Ausgangsleistung einer Yb(10 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe in Abhängigkeit der Pumpleistung, jeweils über einen Zeitraum von 30 min. Dabei fällt zunächst eine Oszillation der Ausgangsleistung mit einer Periodendauer von etwa 4 min auf. Diese ist auf eine geringe Variation der Kühlwasser- und damit Scheibentemperatur zurückzuführen. Jede ansteigende Flanke fällt zeitlich mit dem Einschalten des im Kühler enthaltenen Kompressors zusammen. Die Kühlwassertemperatur von  $T_k \approx 16^\circ\text{C}$  sinkt danach relativ schnell um wenige Zehntel Grad ab. Nach Erreichen der unteren Temperaturgrenze schaltet sich das Kühlelement ab und die Wassertemperatur steigt aufgrund der Abwärme von Pumpdiode und Scheibe, welche im selben Kreislauf gekühlt werden, langsam wieder an. In diesem Fall sinkt die Ausgangsleistung des Scheibenlasers. Änderungen der Pumpwellenlänge können aufgrund der peltiergeregelten Temperaturstabilisierung der Pumpdioden nahezu ausgeschlossen werden. Da die Temperaturschwankung im Kühlmittel relativ gering ist, scheint der Laser stark sensitiv gegenüber derart geringen Temperaturänderungen zu

sein. Die relative Zunahme der Oszillation bei steigender Pumpleistung ist durch den gleichzeitig geringer werdenden Abstand zur Schwelle zu erklären, da die Ausgangsleistung ab etwa 14 W aufgrund des thermischen Überrollens wieder abfällt.

Mit dieser Erklärung nicht zu begründen ist allerdings die mit zunehmender Pumpleistung abnehmende mittlere Ausgangsleistung. Der Einfluss der Kühlwassertemperatur der Scheibe wird in Abb. 7.20b deutlich. Werden bei  $T_k = 16^\circ\text{C}$  und einer Pumpleistung von 15 W noch etwa 2 W Ausgangsleistung erreicht, nimmt die Laserleistung beim Erhöhen der Wassertemperatur auf  $23^\circ\text{C}$  deutlich ab und erreicht nur noch 0,5 W. Wird die Kühlwassertemperatur wieder gesenkt, kommt es zum leichten Anstieg der Ausgangsleistung, wobei für die ursprüngliche Kühlwassertemperatur von  $16^\circ\text{C}$  eine geringere Ausgangsleistung von etwa 1 W gemessen wird. Erst durch Reduzierung der Kühlwassertemperatur auf  $11^\circ\text{C}$  kann eine zum Beginn der Messreihe vergleichbare Ausgangsleistung erzielt werden. Da die beobachtete Abnahme der Ausgangsleistung sowohl von der Pumpleistung als auch von der Kühlwassertemperatur abhängt, ist es nicht möglich absolute Aussagen über die Geschwindigkeit der Degradation zu treffen. Eine reine Erwärmung des Kristalls mit zunehmender Pumpdauer kann dabei ausgeschlossen werden, da selbst nach mehreren Tagen ohne Laserbetrieb keine Regeneration der Scheiben beobachtet wurde. Es kann daher von permanenten Defekten ausgegangen werden.

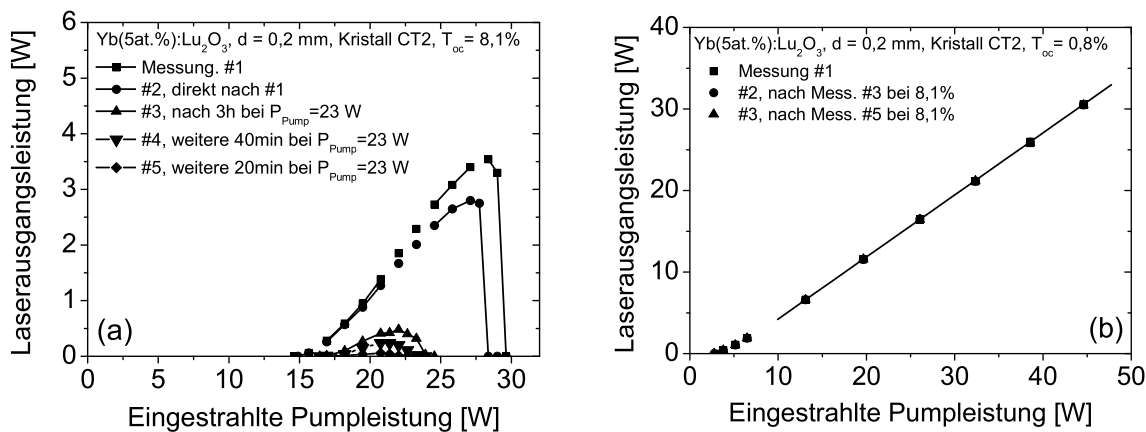
Da in allen bisher durchgeführten Experimenten, auch mit Pumpleistungsdichten von bis zu  $15\text{ kW/cm}^2$ , keinerlei Degradation der Beschichtung oder der Kontaktierung im Laserbetrieb festgestellt wurde, kann diese Ursache nahezu ausgeschlossen werden. Auch Kristalldefekte in Form von zerstörtem Material wurden bei den Sesquioxiden bisher nur in Ausnahmefällen beobachtet (siehe Kap. 7.5.2).

Eine derartige permanente Degradation konnte bisher in keinem anderen Scheibenlasermaterial beobachtet werden und ähnelt eher dem in Fasern beobachteten *Photodarkening* [Jet09]. Um auszuschließen, dass die beobachteten Effekte kristallspezifisch sind und nur bei Proben aus diesem Boule auftreten, wurden daher weitere Untersuchungen an einem 0,2 mm dicken  $\text{Yb}(5\text{ at.}\%):\text{Lu}_2\text{O}_3$  Kristall durchgeführt. Da die Erzeugung der zuvor beobachteten Verlustzentren sowohl von der Pumpleistungsdichte als auch von der im Medium vorherrschenden Inversionsdichte abhängig sein kann, wurden zudem höhere Auskoppelgrade von bis zu 8,1% verwendet, um die Schwellinversion in einem großen Bereich variieren zu können.

Während der Kristall für geringe Auskoppelgrade hohe Effizienzen mit differentiellen Wirkungsgraden um 80% erreicht, wird für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 8,1\%$  eine Änderung der Lasereigenschaften festgestellt (Abb. 7.21a). Wie zuvor beim 10%-dotierten Kristall, wird eine Verschlechterung der Lasereigenschaften mit zunehmender Pumpdauer oberhalb einer gewissen Pumpleistung beobachtet. Die Schwelle für das Einsetzen der Degradation liegt für diesen Auskoppelgrad bei etwa 20 W Pumpleistung. Nachdem der Kristall mehrere Stunden mit Leistungen um 23 W gepumpt wurde, beträgt die maximal erreichbare Ausgangsleistung mit diesem Auskoppelspiegel nur noch einige Milliwatt. Zur Erinnerung: Ein Kristall identischer Dicke und Dotierung desselben Boules wurde zuvor ohne eine Abnahme der Effizienz mit einer Pumpleistung von bis zu 170 W beaufschlagt (vgl. Kap. 7.4.2).

Völlig anders ist das Verhalten hingegen bei kleineren Auskoppelgraden. Bis zu einer Auskopplung von 3,4% ist keinerlei Änderung der Lasereigenschaften des Kristalls festzustellen. Zum Vergleich wurden die Leistungskurven bei 0,8% Auskopplung zu unterschiedlichen Zeitpunkten in Abb. 7.21b dargestellt. Wie gut zu erkennen ist, ist innerhalb der Messgenauigkeit keine Abweichung festzustellen. Da die absorbierte Pumpleistung für beide Auskoppelgrade

## 7 Scheibenlaserexperimente



**Abbildung 7.21:** Degradationsverhalten eines 0,2 mm dicken Yb(5 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls. a) Leistungskurven nach unterschiedlicher Pumpdauer für eine Auskopplung von 8,1%. b) Leistungskurven des selben Kristalls für unterschiedliche Zeitpunkte bei einem Auskoppelgrad von 0,8%. In diesem Fall ist keine Verschlechterung der Lasereigenschaften festzustellen.

näherungsweise identisch ist, kann geschlossen werden, dass es sich bei dem beobachteten Phänomen um einen inversionsabhängigen Prozess handeln muss. Mit zunehmender Inversion in der Scheibe ergeben sich demnach steigende Verluste.

Da die Bestimmung der Art dieser Verluste nicht Gegenstand der vorliegenden Arbeit und Thema in aktuellen sowie in zukünftigen Untersuchungen ist [Fre09], soll an dieser Stelle nur der vermutete Zusammenhang zur ebenfalls beobachteten Photoleitung in diesem Material erwähnt werden [Hir08b, Fre08]. Weiter soll anhand der Messungen eine Untergrenze der Inversionsdichte abgeschätzt werden, ab welcher das beschriebene Phänomen beobachtet wird. Daraus lassen sich für gegebene Dotierungen und Kristalldicken die Auskoppelgrade errechnen, oberhalb welcher die Verluste vermutlich auftreten.

Mit Hilfe der in Kap. 2.4.3 vorgestellten Gleichungen 2.65 und 2.69 lässt sich bei bekannter Dotierung, Scheibendicke, Pumpfleckgröße, Auskoppelgrad sowie den Wirkungsquerschnitten auf Laser- und Pumpwellenlänge die Schwellpumpleistung berechnen. Ein Vergleich dieser mit den gemessenen Schwellen erlaubt es dann, Rückschlüsse auf die im Laserbetrieb nach Einsetzen der Degradation vorliegenden Inversionsdichten zu ziehen. Sowohl im Falle der 0,1 mm dicken 10 at.% Yb-dotierten als auch der 0,2 mm dicken 5 at.% Yb-dotierten Probe ergibt sich anhand dieser Abschätzung eine Schwellinversionsdichte von etwa  $3 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Da aufgrund der vorhandenen Spiegel keine kontinuierliche Änderung des Auskoppelgrades durchgeführt werden kann, ist diese Zahl nicht zwangsweise die untere Grenze, ab welcher die Verlustprozesse auftreten. Experimentell bestätigt wurden bisher maximale Inversionsdichten von etwa  $1,5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  (entsprechend 3,4% Auskopplung bei einem 0,2 mm dicken Yb(5 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), bis zu welchen keinerlei Beeinflussung der Lasereigenschaften auftritt, obwohl bei hohen Auskoppelgraden die Lasertätigkeit schon gänzlich verhindert wird (vgl. Abb. 7.21).



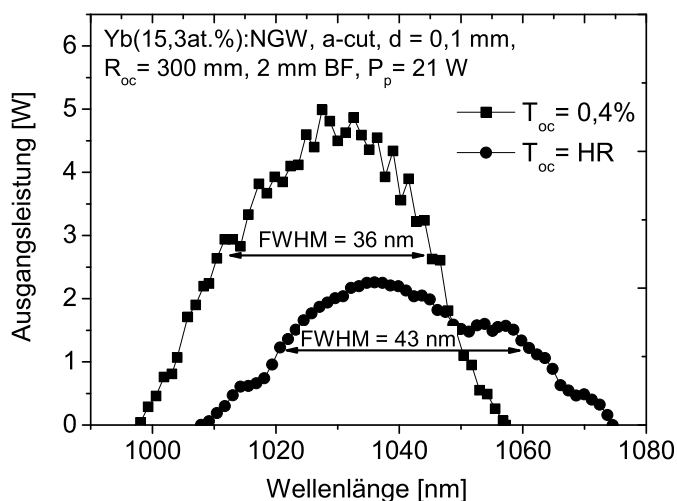
## 7.5 Dauerstrichbetrieb mit Variation der Laserwellenlänge

Durch die geometrische Entkopplung von Pump- und Laserstrahlung im Scheibenlaser lassen sich relativ einfach Laserwellenlängen realisieren, die sehr nahe bei der Pumpwellenlänge liegen. In longitudinal gepumpten Lasern ist dies hingegen schwierig, da zumindest ein Resonatorspiegel dafür in einem engen spektralen Bereich eine steile Flanke von hochtransmittierend zu hochreflektierend aufweisen muss. Derartige spektrale Verläufe der Reflektivität sind in der Praxis nur begrenzt realisierbar.

Durch Verwendung eines doppelbrechenden Filters, welcher im Brewster-Winkel als wellenlängenselektives Element in den Resonator eingebracht wurde, wurden sowohl mit Yb:NGW als auch mit allen untersuchten Sesquioxiden Laserexperimente zur spektralen Durchstimmbarkeit durchgeführt. Um den Filter im Resonator zu platzieren, wurde die Resonatorlänge auf 135 mm erhöht und ein Auskoppelspiegel mit einem Krümmungsradius von 300 mm verwendet. In der Regel kam es zur zusätzlichen Auskopplung von Laserleistung an beiden Seiten des Filters. Diese wurde an einer Seite mit einem weiteren Leistungsmessgerät aufgenommen und später zur Leistung, welche am Auskoppelspiegel gemessen wurde entsprechend addiert. Der am doppelbrechenden Filter bei optimaler Justage ermittelte Auskoppelgrad wurde anhand des Verhältnis der ausgekoppelten Leistung an Filter und Auskoppelspiegel bestimmt und lag ab einem Auskoppelgrad von 0,4% zwischen  $T_{oc,BF} = 0,02\%$  und 0,05%.

### 7.5.1 Yb:NGW

Da in den zuvor mit Yb:NGW durchgeführten Laserexperimenten festgestellt wurde, dass bei Unterbrechung des Resonators bei Pumpleistungen von mehr als etwa 20 W die Gefahr der Zerstörung des Kristalls zunimmt, wurde die im Folgenden vorgestellten Experimente bei einer



**Abbildung 7.22:** Ergebnisse der Durchstimmexperimente mit Yb:NGW. Dargestellt ist die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Wellenlänge für unterschiedliche Auskoppelgrade bei Verwendung einer 0,1 mm dicken, Yb(15,3 at.):NGW-Scheibe bei einer Pumpleistung von 21 W.

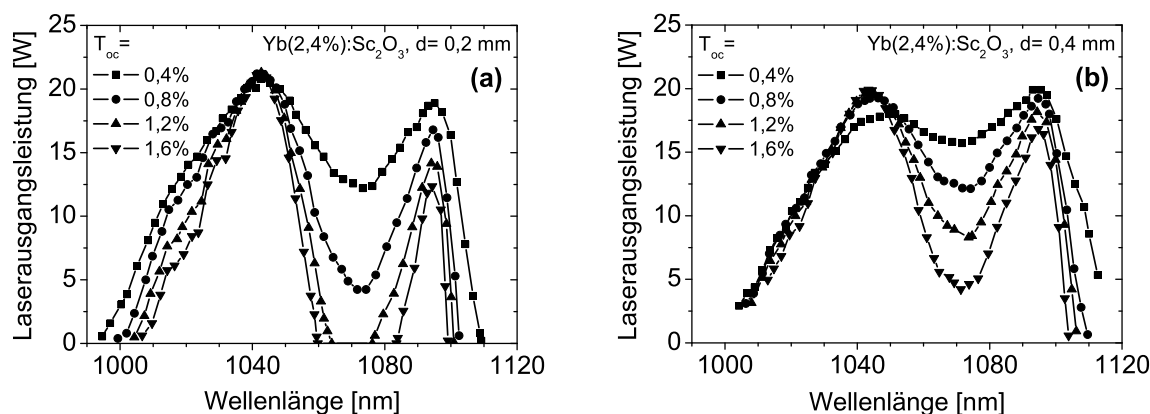
Pumpleistung von 21 W durchgeführt. Zudem wurde einer der dünnsten Kristalle, ein 0,1 mm dicker Yb:(15,3 at.%):NGW verwendet, da dieser zuvor die besten Lasereigenschaften unter allen untersuchten Yb:NGW-Proben gezeigt hatte. Die Ergebnisse dieser Messungen für einen Auskoppelgrad von 0,4% und einen hochreflektierenden Auskoppelspiegel sind in Abb. 7.22 dargestellt. Unter Verwendung eines 2 mm dicken doppelbrechenden Filters konnte bei einer Auskopplung von  $T_{oc} = 0,4\%$  eine maximale Ausgangsleistung von etwa 5 W erzielt werden, im Vergleich zu etwa 7,3 W ohne den Filter. Der gesamte Durchstimmbereich betrug 998 nm bis 1057 nm bei einer Halbwertsbreite (FWHM) von 36 nm. Die Nutzung des hochreflektierenden Spiegels erlaubte zwar die Vergrößerung des Durchstimmbereichs auf 67 nm von 1008 nm bis 1075 nm, reduzierte aber gleichzeitig aufgrund des geringeren Resonatorwirkungsgrads die maximal erzielbare Ausgangsleistung auf 2,3 W bei etwa 1036 nm.

### 7.5.2 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:LuScO<sub>3</sub>

Deutlich bessere Leistungscharakteristiken wiesen die untersuchten Sesquioxide auf. Diese erreichten in der Regel im Bereich der größten Verstärkung nahezu die gleiche Ausgangsleistung wie im zuvor verwendeten Resonator ohne doppelbrechenden Filter. Die Abnahme der Ausgangsleistung lag in diesen Bereichen in der Regel bei weniger als 10%.

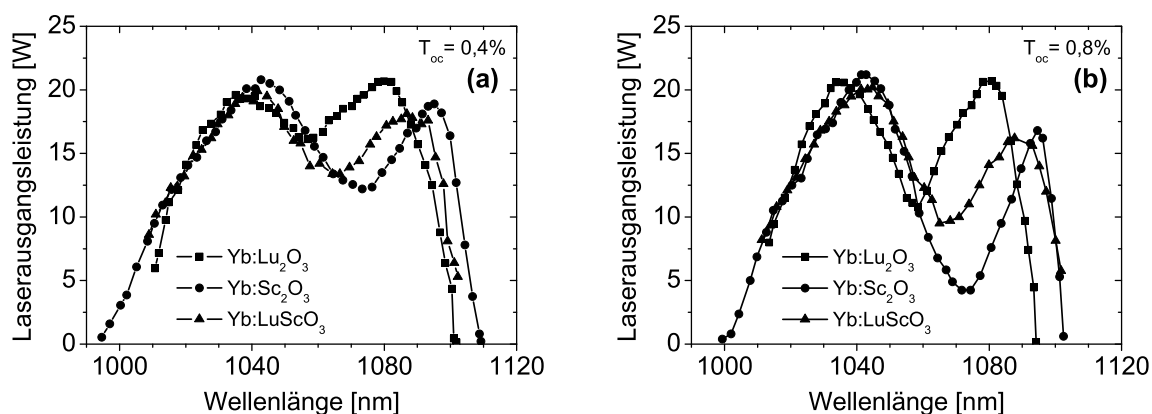
Die relativ große Stark-Aufspaltung der Laserniveaus von Yb<sup>3+</sup> in den untersuchten Sesquioxiden erlaubt kontinuierlich verstimmbaren Laserbetrieb bis über 1100 nm hinaus. Im spektralen Bereich zwischen den beiden Emissionsbanden konnte aufgrund der geringen Verstärkung bei hohen Auskoppelgraden mit den verwendeten Pumpleistungen keine Lasertätigkeit mehr erzielt werden. Dieses Verhalten soll am Beispiel von Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> näher erläutert werden.

Abbildung 7.23 zeigt die Ausgangsleistung des Lasers in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge sowie der Auskopplung für zwei unterschiedlich dicke Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheiben. Für die mit 0,2 mm dünnere der beiden Proben ergibt sich für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  ein maximaler Durchstimmbereich von 117 nm zwischen 994 nm und 1109 nm (Abb. 7.23a). Die maximale Ausgangsleistung bei 1041 nm ist dabei für alle verwendeten Auskoppelgrade nahezu



**Abbildung 7.23:** Resultate der Durchstimmexperimente unterschiedlicher Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheiben. Dargestellt ist die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der eingestellten Laserwellenlänge von a) einer 0,2 mm dicken und b) einer 0,4 mm dicken Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Scheibe.

## 7.5 Dauerstrichbetrieb mit Variation der Laserwellenlänge

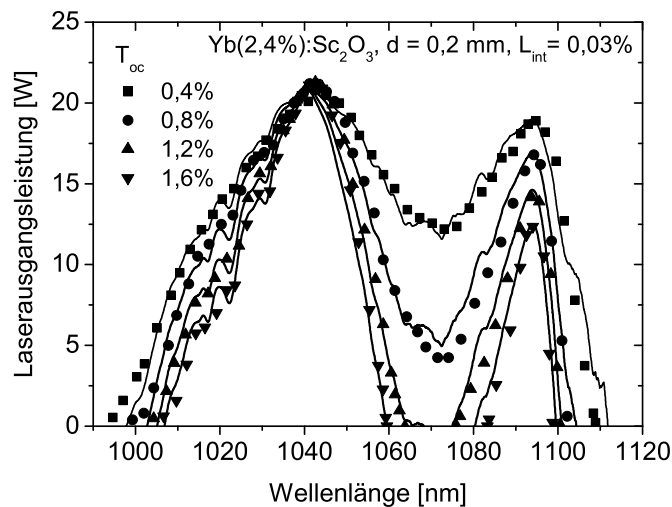


**Abbildung 7.24:** Resultate der Durchstimmexperimente unterschiedlicher Sesquioxid-Kristalle. Dargestellt ist die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der eingestellten Laserwellenlänge von 0,2 mm dicken Scheiben (Yb(5 at.%):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb(2,4 at.%):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb(3,15 at.%):LuScO<sub>3</sub>) mit einem Auskoppelgrad von a) 0,4% und b) 0,8% dargestellt. Die Pumpleistung beträgt in allen Fällen 32 W. Der doppelbrechende Filter hatte eine Dicke von 1 mm.

identisch und beträgt etwa 21,3 W, korrespondierend zu einem optisch-optischen Wirkungsgrad von etwa 67%. Aufgrund des geringeren Emissionswirkungsquerschnitts bei 1095 nm ist bei dieser Wellenlänge hingegen eine Abnahme der Ausgangsleistung mit steigender Auskoppelung zu beobachten. Während für  $T_{oc} = 0,4\%$  eine Leistung von 18,9 W gemessen wird, reduziert sich diese für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 1,6\%$  auf etwa 12,3 W. Mit zunehmendem spektralen Abstand zu den Maxima der beiden Emissionsbanden, wird durch die geringer werdende Verstärkung der Einfluss der Auskoppelverluste schnell größer. Für den Bereich um 1070 nm zwischen den Emissionsmaxima wird die Schwelle bereits ab einem Auskoppelgrad von 1,2% nicht mehr überschritten. Das Gleiche gilt für den Abfall im langwelligen Bereich oberhalb von 1095 nm. Im kurzwelligen Teil unterhalb von 1040 nm treten zudem zunehmend Reabsorptionsverluste auf, wodurch bei fester Pumpleistung die maximale Ausgangsleistung mit der Wellenlänge abnimmt.

Bei Verwendung eines Kristalls der doppelten Dicke ergeben sich die in Abb. 7.23b dargestellten Leistungskurven. Da sich die Verstärkungslänge verdoppelt, liegen in Bereichen mit wenig Reabsorption, also oberhalb von etwa 1060 nm, alle Kurven ungefähr auf der entsprechenden Kurve des 0,2 mm dicken Kristalls bei halbiertem Auskoppelgrad. Neben einem geringeren Einbruch der Leistung im Bereich um 1070 nm können zudem etwas größere Laserwellenlängen von bis zu 1113 nm erreicht werden. Nachteilig wirkt sich die größere Dicke auf den kurzwelligen Bereich aus, da sich die Reabsorption ebenfalls verdoppelt. So ist für einen Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 0,4\%$  im Gegensatz zum dünneren Kristall eine geringere Ausgangsleistung bei 1041 nm zu beobachten. Zudem ist die minimal erreichbare Wellenlänge auf etwa 1004 nm angestiegen. Je nach gewünschtem realisierbaren Wellenlängenbereich sind somit unterschiedliche Kristalldicken und Auskoppelgrade optimal. Für Lasertätigkeit im kurzwelligen Bereich eignen sich dünnere Kristalle aufgrund des geringeren Grads an Reabsorption besser, während im langwelligen Spektralteil die höhere Verstärkung in dickeren Scheiben von Vorteil ist.

Ein Vergleich verschiedener 0,2 mm dicker Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:LuScO<sub>3</sub> Proben



**Abbildung 7.25:** Berechnete (durchgezogene Linien) und gemessene (Quadrate) Durchstimmkurven eines Yb(2,4 at.):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls bei 32 W Pumpleistung für unterschiedliche Auskoppelgrade. Die errechneten Kurven wurden zur besseren Darstellung stark geglättet.

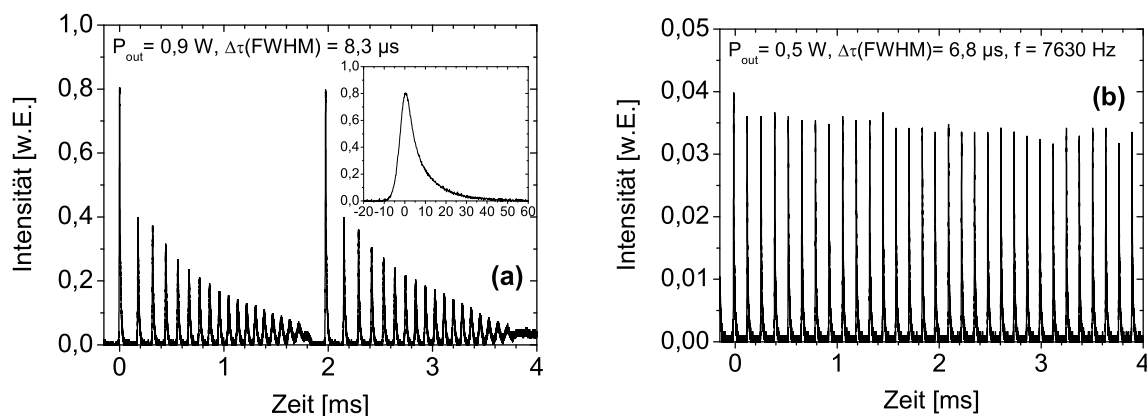
für unterschiedliche Auskoppelgrade ist in Abb. 7.24 dargestellt. Dabei nimmt Yb:LuScO<sub>3</sub> entsprechend seiner spektroskopischen Eigenschaften (vgl. Kap. 5.2.4) in Bezug auf die Wellenlänge maximaler Ausgangsleistung eine intermediäre Rolle ein. Der maximale Durchstimmbereich bei Yb:LuScO<sub>3</sub> von 1009 nm bis 1102 nm wurde dabei mit einem Auskoppelgrad von 0,4% erreicht.

Anhand der in Kap. 2.4.3 und Kap. 7.3 vorgestellten Überlegungen ist es möglich, für gegebene Randbedingungen wie Pumpleistung, Auskoppelgrad und resonatorinterne Verluste die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Wellenlänge abzuschätzen. Durch den Vergleich mit den gemessenen Durchstimmkurven lassen sich zudem Aussagen über die pumpleistungsabhängige Schwelle der untersuchten Materialien treffen.

Als Beispiel wurde die Ausgangsleistung in Abhängigkeit der Wellenlänge für einen 0,2 mm dicken Yb(2,4 at.):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristall für unterschiedliche Auskoppelgrade berechnet (Abb. 7.25). Eine ausgezeichnete Übereinstimmung ergibt sich unter der Annahme resonatorinterner Verluste von  $L_{int} = 0,03\%$  sowie einem Anstieg der Schwellpumpleistungsdichte auf das Doppelte für die verwendete Pumpleistung von  $P_p = 30$  W. Ein derartiger Anstieg der Schwellpumpleistung konnte anhand von numerischen Simulationen bereits für Yb:YAG nachgewiesen werden [Con02]. Sowohl die maximale Ausgangsleistung, als auch der Verlauf der jeweiligen Kurve werden für alle verwendeten Auskoppelgrade zwischen 0,4% und 1,6% sehr gut wiedergegeben.

Bei Wellenlängen oberhalb von 1110 nm kam es allen Fällen zu starken Schwankungen in der Ausgangsleistung. Gleichzeitig wurde ein vom Auskoppelspiegel und dem doppelbrechenden Filter ausgehender Piepton wahrgenommen. In einigen Fällen kam es zu einer punktuellen Zerstörung auf Kristall, Auskoppelspiegel sowie dem doppelbrechenden Filter. Da die Vermutung bestand, dass die Defekte durch gepulsten Betrieb des Lasers entstehen, wurde das Kurz-

## 7.5 Dauerstrichbetrieb mit Variation der Laserwellenlänge



**Abbildung 7.26:** Zeitlicher Verlauf der Leistung eines 0,4 mm dicken Yb(2,4 at.):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristalls im gepulsten Betrieb bei einer Laserwellenlänge von 1115 nm. a) Ungleichmäßiger Verlauf der Pulse mit abnehmender Pulsintensität und Übergang in Relaxationsoszillationen mit anschließendem Dauerstrichbetrieb. b) Gleichmäßiger gepulster Betrieb mit einer Pulswiederholfrequenz von etwa 7600 Hz bei einer Pulslänge von 6,8 µs. Die Pumpleistung betrug in beiden Fällen etwa 20 W.

zeitverhalten mittels einer Si-Photodiode untersucht. In Abb. 7.26 ist das zeitliche Verhalten der gemessenen Ausgangsleistung des Lasers für zwei unterschiedliche Fälle aufgetragen. Der 0,4 mm dicke Yb(2,4 at.):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristall wurde mit etwa 20 W Pumpleistung angeregt. Der Auskoppelgrad betrug 0,4%. Im ersten Fall (Abb. 7.26a), nimmt die Pulsintensität innerhalb weniger Millisekunden stark ab und es kommt entweder zum Erlöschen des Lasers mit anschließendem Neubeginn des gepulsten Betriebes oder zum kontinuierlichen Betrieb. Die Pulswiederholfrequenz beträgt in diesem Beispiel zu Beginn etwa 5,6 kHz und nimmt bis auf etwa 11,5 kHz zu. Mit einer anfänglichen Pulsbreite (FWHM) von etwa 8 µs und einer mittleren Ausgangsleistung von 0,9 W ergibt sich eine Pulsenergie und Pulsspitzenleistung von 80 - 160 µJ bzw. 10 - 20 W. Im zweiten Beispiel ist eine relativ regelmäßige Pulsfolge mit einer Wiederholfrequenz von etwa 7,6 kHz bei einer mittleren Ausgangsleistung von 0,5 W zu sehen.

Da keine aktiven oder passiven Güteschalter als solches in den Resonator eingefügt wurden, muss ein anderes Element für das Verhalten verantwortlich sein. Da sowohl für die Spiegelschichten als auch für den doppelbrechenden Filter keine sättigbaren Verluste bekannt sind, kommt als Quelle vermutlich nur die Scheibe selbst in Frage. Variierende Verluste durch z. B. Reabsorption sollten aber hauptsächlich im kurzwelligen Bereich auftreten. Eine endgültige Erklärung des Phänomens kann daher an dieser Stelle nicht gegeben werden.

### 7.5.3 Resonator mit mehreren Verstärkungsmedien

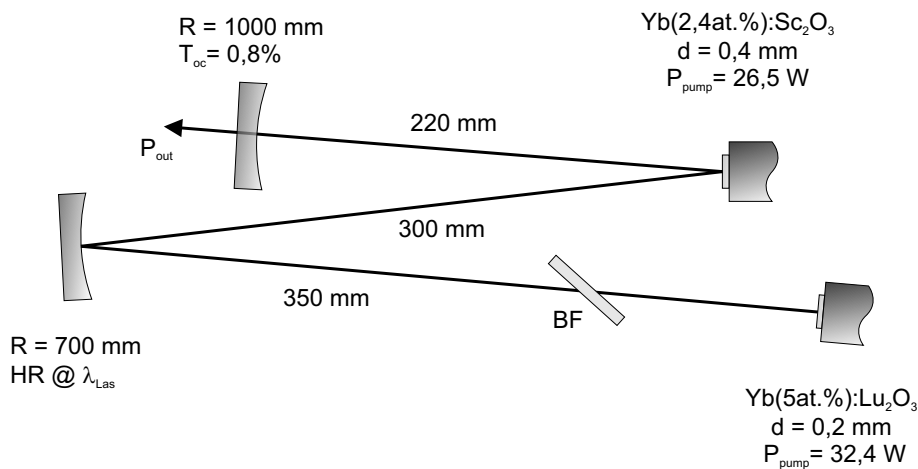
Die Zunahme der spektralen Bandbreite der Emission beim LuScO<sub>3</sub> aufgrund von inhomogener Linienverbreiterung, sollte im Vergleich zu den ungemischten Sesquioxiden deutlich kürzere Pulsauern im modengekoppelten Betrieb ermöglichen. Ein Nachteil dieses Materials ist allerdings die im Vergleich zu Yb:Sc<sub>3</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> geringere Wärmeleitfähigkeit (vgl. Kap. 3). Eine Möglichkeit eine größere Verstärkungsbandbreite zu erschließen und dabei die ausgezeichneten thermischen Eigenschaften zu konservieren, ist die Kombination unterschiedlicher

## 7 Scheibenlasereperimente

aktiver Medien in einem Resonator [Han02]. Im Falle des Scheibenlasers kann dies auf relativ einfache Weise durch die Verwendung weiterer Pumpmodule erfolgen.

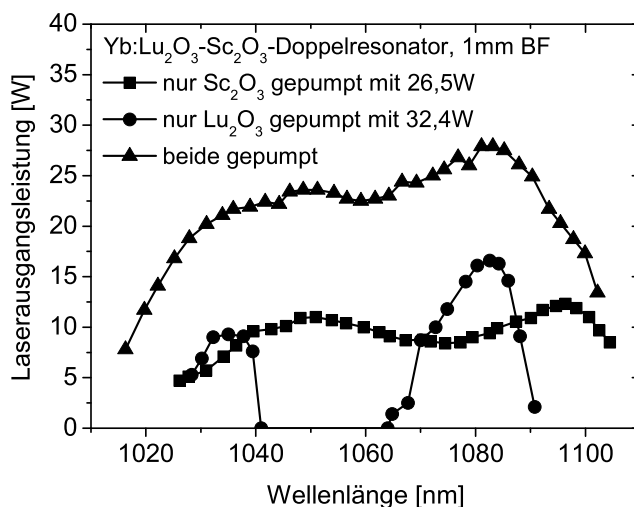
Erste Versuche dazu wurden unter Verwendung von  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  mit zwei Pumpmodulen desselben Typs in einem Z-förmig gefalteten Resonator durchgeführt. Der schematische Aufbau ist in Abb. 7.27 dargestellt. Die Gesamtlänge des Resonators beträgt etwa 870 mm. Ein Endspiegel des Resonators wird von einem 0,2 mm dicken,  $\text{Yb}(5 \text{ at. \%})\text{:Lu}_2\text{O}_3$ -Scheibenlaserkristall gebildet. Dieser wurde von der JOLD50 mit etwa 32,4 W Pumpleistung beaufschlagt. Der sich im zweiten Pumpmodul befindende 0,4 mm dicke  $\text{Yb}(2,4 \text{ at. \%})\text{:Sc}_2\text{O}_3$ -Kristall dient gleichzeitig als Umlenkspiegel. Dieser Kristall wurde mittels der JOLD140 Laserdiode mit etwa 26,5 W gepumpt. Aufgrund des vergleichbaren Produkts aus Scheibendicke und Dotierung weisen beide Kristalle in etwa dieselbe Verstärkung auf. Da der  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  aber aufgrund seiner Funktion als Umlenkspiegel während eines Resonatorumlaufs viermal durchlaufen wird und die Pumpleistungen für beide Kristalle vergleichbar sind, ist der Einfluss vom  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  in diesem Resonator etwa doppelt so groß wie derjenige des  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  Kristalls. Die Kavität ist in ihren Abmessungen so ausgelegt, dass der Strahlradius auf beiden Scheiben etwa  $300 \mu\text{m}$  beträgt. Aufgrund der höheren Anzahl an Durchläufen durch die aktiven Medien ergibt sich eine geringerer effektiver Auskoppelgrad, welche im Vergleich zu den zuvor vorgestellten Durchstimmexperimenten ein Drittel beträgt. Für den verwendeten Auskoppelspiegel mit  $T_{oc} = 0,8\%$  ergibt sich so ein effektiver Auskoppelgrad von etwa  $0,27\%$ .

Die Ergebnisse des Experiments sind in Abb. 7.28 dargestellt. Zunächst wurde untersucht wie sich die zusätzlichen Scheiben als passives Verlustelement im Resonator bemerkbar machen. Dazu wurde jeweils nur ein Kristall gepumpt und anschließend die Durchstimmkurve aufgenommen. Wie erwartet ergeben sich aufgrund der Absorption der jeweils anderen Scheibe im Vergleich zu den zuvor durchgeführten Durchstimmexperimenten (vgl. Kap. 7.5.2) veränderte Kurven. Während der  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$ -Kristall aufgrund des Vierfachdurchgangs und der damit einhergehenden höheren Verstärkung ein durchgängiges Verstimmen der Laserwellenlänge zuließ, war mit dem gepumpten  $\text{Yb:Lu}_2\text{O}_3$  und dem passiv im Resonator verbleibenden  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  im Bereich zwischen  $1040 \text{ nm}$  und  $1060 \text{ nm}$  keine Lasertätigkeit zu erzielen. Die maximale Ausgangsleistung in diesem Fall wurde im Bereich um  $1080 \text{ nm}$  erreicht und betrug  $16,6 \text{ W}$ , was



**Abbildung 7.27:** Schematische Darstellung des Aufbaus mit zwei Pumpkammern. BF steht hierbei für den doppelbrechenden Filter mit einer Dicke von 1 mm.

## 7.5 Dauerstrichbetrieb mit Variation der Laserwellenlänge



**Abbildung 7.28:** Ergebnisse der Durchstimmexperimente unter Verwendung mehrerer Pumpkammern. Als aktive Medien wurden hierbei ein 0,4 mm dicker Yb(2,4 at. %):Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Kristall sowie ein 0,2 mm dicker Yb(5 at. %):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristall verwendet. Die Gesamtpumpleistung betrug 58,9 W, der Auskoppelgrad 0,8%.

etwa 20% unter der im linearen Resonator erzielten Leistung liegt. Im Vergleich dazu ist die Ausgangsleistung im Bereich um 1034 nm mit nur 9,3 W mehr als halbiert, was auf die deutlich höheren Absorptionsverluste in diesem Spektralbereich durch die Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe zurückzuführen ist.

Wurden beide Scheiben gleichzeitig mit einer Gesamtleistung von 58,9 W gepumpt, so konnten Ausgangsleistungen von maximal 27,9 W erzielt werden. Der gesamte Durchstimmbereich ist dabei äußerst homogen, auch aufgrund des relativ niedrigen Auskoppelgrads, wobei die Laserleistung zwischen 1031 nm und 1096 nm mehr als 20 W beträgt. Die im Vergleich zum linearen Resonator etwas geringere Effizienz ist vermutlich auf ein in diesem Versuch nicht optimiertes Resonatordesign sowie den geringen Auskoppelgrad zurückzuführen. Hinweise hierfür liefern die im nachfolgenden Abschnitt (Kap. 7.6) vorgestellten Experimente, bei denen mit einem deutlich komplizierteren Resonatordesign teilweise höhere Effizienzen erreicht wurden.

Die Übertragung des vorgestellten Konzepts auf den modengekoppelten Betrieb könnte bei geeigneter Auslegung des Resonators im Vergleich zum Yb:LuScO<sub>3</sub> einige Vorteile mit sich bringen. Neben den bereits angesprochenen besseren thermischen Eigenschaften der aktiven Materialien, wodurch sich prinzipiell eine bessere Skalierbarkeit ergibt, kann die Gesamtpumpleistung bei gleicher Pumpfleckgröße verdoppelt werden. Zudem lässt sich in gewissen Grenzen der spektrale Verlauf der Verstärkung über die jeweilige Pumpleistung der Scheiben variieren.

Mögliche Probleme bei der Umsetzung ergeben sich unter anderem aus den unterschiedlichen thermischen Linsen der verschiedenen Scheiben, was die Auslegung eines geeigneten Resonators für den Grundmodenbetrieb erschwert. Hier wäre auch eine Schichtfolge der unterschiedlichen Materialien in einem Pumpmodul, verbunden durch z. B. Diffusionsbonden, zur Vereinfachung denkbar.

## 7.6 Modengekoppelter Betrieb im Scheibenlaser

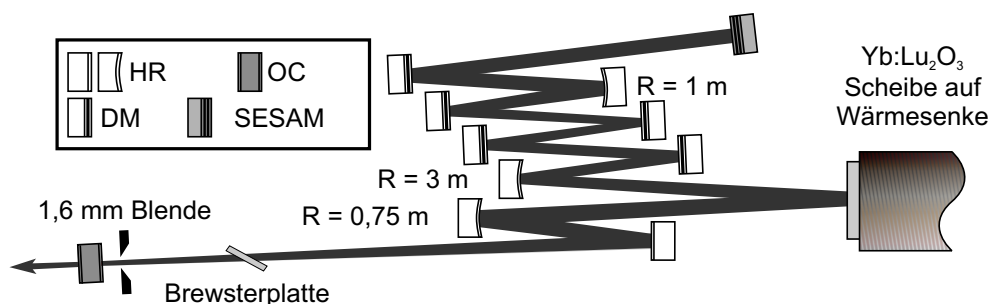
Die Experimente zur Modenkopplung eines Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers wurden in Kooperation mit der Gruppe von U. Keller am Institut für Quantenelektronik der ETH Zürich durchgeführt. Als Pumpquelle wurde die bereits in den Dauerstrichexperimenten verwendete JOLD50 eingesetzt. Alle weiteren Pumpparameter wie Pumpfleckgröße und Pumpmodul sind zu denen der cw-Experimente identisch.

### 7.6.1 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Der schematische Aufbau des verwendeten Resonators ist in Abb. 7.29 dargestellt. Dabei wurde die 0,25 mm dicke Yb(2 at.):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe als Faltspiegel innerhalb eines Single-Mode-Resonators eingesetzt. Passive Modenkopplung wurde durch den Einsatz eines SESAMs (vgl. Abschnitt 2.3.3) als Endspiegel erreicht. Dabei wurden zwei verschiedene SESAMs eingesetzt um die kürzeste Pulsdauer bzw. die höchste Ausgangsleistung zu erzielen. Die SESAMs bestanden jeweils aus einem Bragg-Spiegel mit 30 GaAs/AlAs Paaren, unterschieden sich jedoch in der Anzahl der InGaAs Quantum Well Absorber Schichten, welche in  $\lambda/2$  GaAs Deckschichten eingebettet sind [Kel96].

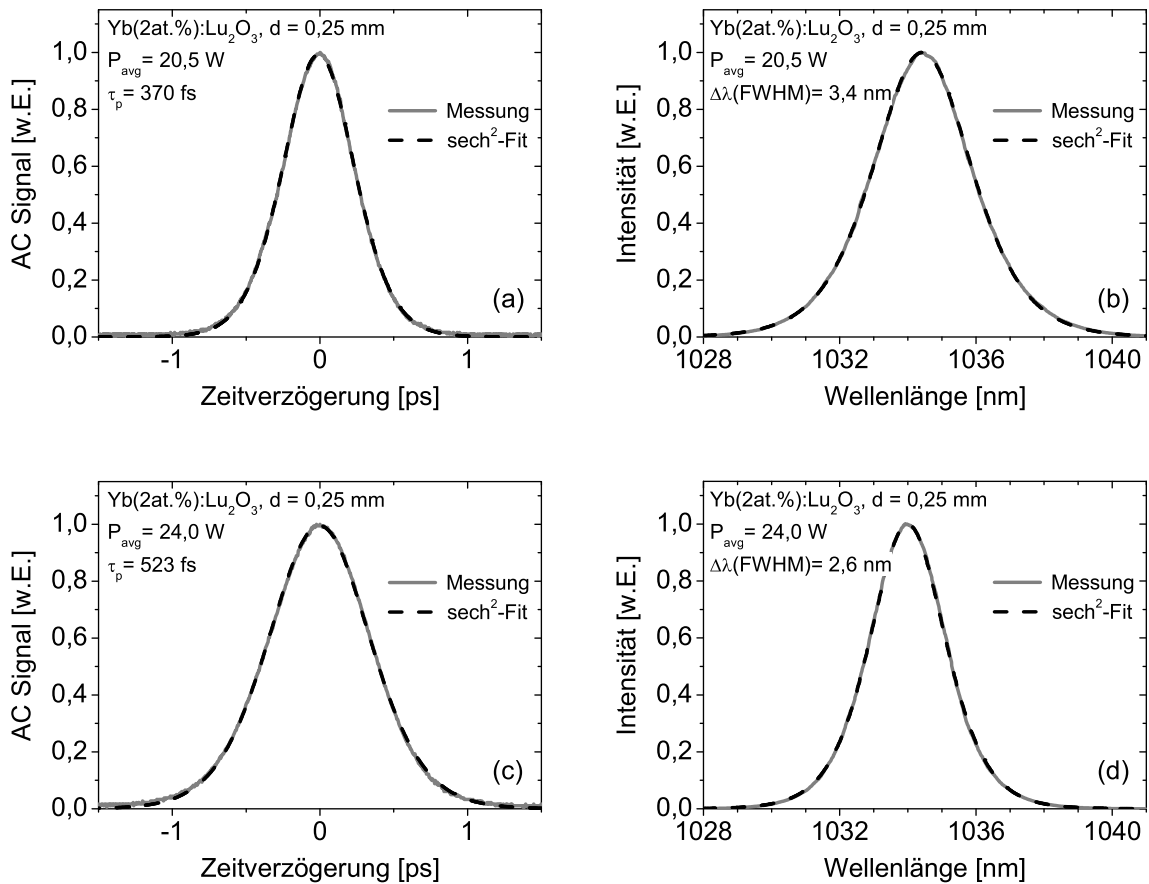
Weiter beinhaltet der Resonator einen Satz aus 5 dispersiven Spiegeln, die eine negative Gruppenlaufzeitverzögerung von insgesamt etwa  $-5500 \text{ fs}^2$  erzeugen. Ein 3 mm dickes Quartzglasplättchen im Brewster-Winkel sorgte zum einen für eine lineare Polarisation des Lasers und induzierte gleichzeitig eine Selbstphasenmodulation. Durch Verschieben des Plättchens in einem divergenten Strahlbereich des Auskoppelarms, kann die eingefügte Nichtlinearität dergestalt variiert werden, dass im Zusammenspiel mit den dispersiven Spiegeln die Voraussetzungen für Solitonen-Propagation im Resonator geschaffen werden [Kär95]. In einem gewissen Rahmen lässt sich auf diese Weise die Dispersion kompensieren, sodass sich der Puls zeitlich an die durch die Bandbreite vorgegebene minimale Pulslänge annähert. Die optimale Ausgangsleistung wurde mit einem Auskoppelgrad von  $T_{oc} = 5,2\%$  erzielt.

Unter Verwendung eines SESAMs mit einer Modulationstiefe von 2%, nicht sättigbaren Verlusten von 0,1% sowie einer Sättigungsfluenz von  $F_{sat} = 19 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  konnte die minimale



**Abbildung 7.29:** Schematische Darstellung des Resonatoraufbaus für die Modenkopplungsexperimente eines Yb(2 at.):Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers. Die Dicke der Scheibe betrug 0,25 mm. Fünf dispersive Spiegel (DM) fügen insgesamt eine Gesamtgruppenlaufzeitverzögerung (GDD) von  $\approx -5500 \text{ fs}^2$  pro Umlauf ein. Die Dicke der Brewsterplatte betrug 3 mm. Der Durchmesser der Blende vor dem Auskoppelspiegel lag bei 1,6 mm, die Auskoppelrate  $T_{oc} = 5,2\%$ . Weitere Abkürzungen: HR - hochreflektierender Spiegel, DM - dispersiver Spiegel, OC - Auskoppelspiegel, SESAM - sättigbarer Halbleiterspiegel.

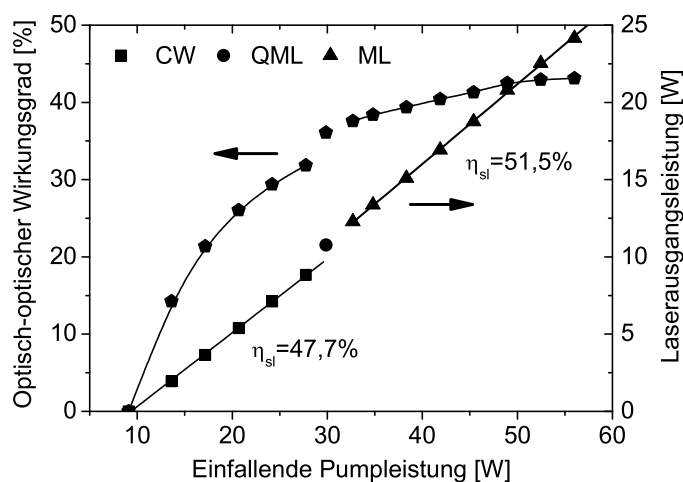




**Abbildung 7.30:** Autokorrelations- (AC) und optisches Spektrum des modenkoppelten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers für eine Modulationstiefe des SESAMs von 2% bei einer Pulslänge von 370 fs und  $P_{\text{avg}} = 20,5$  W (a,b) sowie für eine Modulationstiefe des SESAMs von 0,9% bei einer Pulslänge von 523 fs und  $P_{\text{avg}} = 24$  W (b,c).

Pulsdauer von 370 fs bei einer mittleren Ausgangsleistung von 20,5 W bei 1034 nm für eine eingestrahelte Pumpleistung von 56 W erreicht werden (Abb. 7.30a). Die sich daraus ergebende optische Effizienz beträgt 36,6%. Die  $\text{sech}^2$ -Pulse waren mit einem Zeit-Bandbreiten-Produkt von 0,35 (ideal: 0,315) bei einer spektralen Bandbreite von 3,4 nm (FWHM) nahezu transformationsbegrenzt (Abb. 7.30b). Die Pulswiederholrate betrug 65 MHz, wodurch sich eine Pulsenergie von 0,32  $\mu\text{J}$  sowie eine Pulsspitzenleistung von 0,75 MW ergeben. Die Strahlqualität war mit  $M^2 < 1,1$  nahezu beugungsbegrenzt.

Durch den Einsatz eines SESAMs mit einer geringeren Modulationstiefe von 0,9% bei einer Sättigungsfluenz von  $F_{\text{sat}} = 22 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  und nichtsättigbaren Verlusten von 0,1% konnte die Ausgangsleistung auf 24 W gesteigert werden (Abb. 7.30c,d). Die Pulsdauer betrug in diesem Fall 523 fs bei einer spektralen Bandbreite von 2,6 nm. Das Zeit-Bandbreiten-Produkt liegt damit bei 0,38. Bei identischer Repetitionsrate von 65 MHz ergibt sich dadurch eine etwas höhere Pulsenergie von 0,37  $\mu\text{J}$  bei einer geringeren Pulsspitzenleistung von 0,62 MW. Die etwas längere Pulsdauer resultiert aus der geringeren Modulationstiefe des SESAMs, da die für den Laser tolerierbare Verstärkung des cw-Untergrunds für dieses geringer ist [Pas01]. Dies limitiert die für den stabilen Betrieb erreichbare Bandbreite der Pulse und damit die Pulsdauer.



**Abbildung 7.31:** Ausgangsleistung und optische Effizienz des modengekoppelten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers in Abhängigkeit der eingestrahltten Pumpleistung für ein SESAM mit einer Modulationstiefe von 0,9%. Stabile Modenkopplung (Dreiecke) wurde für Pumpleistungen > 30 W erzielt. CW: Dauerstrichbetrieb (Quadrate), QML: Gütegeschaltete Modenkopplung (Kreise), ML: Bereich stabiler Modenkopplung (Dreiecke).

Für die maximale Ausgangsleistung von 24 W ergibt sich eine optische Effizienz von 43% (Abb. 7.31). Die Ausgangsleistung war in diesem Fall rein pumpleistungsbegrenzt. Im Bereich des stabilen modengekoppelten Betriebs beträgt der differentielle Wirkungsgrad 51,5%, während unterhalb der Schwelle für Modenkopplung ein differentieller Wirkungsgrad von 47,7% gemessen wurde.

Im stabilen Pulsbetrieb wurde auch über mehrere Stunden hinweg keinerlei Degradation der im Resonator befindlichen Elemente beobachtet, sodass eine Skalierung der Ausgangsleistung prinzipiell möglich sein sollte. Eine detaillierte Diskussion der Experimente findet sich in [Mar08a].

## 7.7 Fazit der Lasereperimente

Mit allen untersuchten Lasermaterialien konnte effizienter Betrieb im Scheibenlaser demonstriert werden. Die besten Lasereigenschaften wiesen dabei die Yb-dotierten Sesquioxide auf. Im Vergleich zu früheren Arbeiten [Pet01, Lar01] konnte die Effizienz bei Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> deutlich verbessert werden (vgl. Tab. 7.3). Die dabei erreichten differentiellen Wirkungsgrade von mehr als 80% und optische Wirkungsgrade von bis zu 75% liegen deutlich über den für Yb:YAG erzielten Werten [Gie07b] und stellen insgesamt die höchsten bisher im Scheibenlaser erreichten Effizienzen dar [Lar01, Krä07]. Auch das erstmals im Scheibenlaser eingesetzte Yb:LuScO<sub>3</sub> zeigt hocheffizienten Laserbetrieb mit optischen Wirkungsgraden um 74%. Der mit diesen Materialien zugängliche Wellenlängenbereich von etwa 990 nm - 1120 nm übertrifft den mit Yb:YAG realisierten deutlich [Bra95, Sai02]. Nachteilig wirkt sich die geringe Verstärkung zwischen den beiden Emissionsbanden im Bereich um 1060 nm aus, wodurch es bei hohen Verlusten zu einer deutlichen Verringerung der erreichbaren Ausgangsleistung in die-

Material	Ergebnisse dieser Arbeit				Bisher erzielte Resultate			Quelle
	$P_{out,max}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	$\eta_{opt,max}$ (%)	$\tau_p$ (fs)	$P_{out,max}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	$\eta_{opt,max}$ (%)	
Yb:Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	34,0	82	75	cw	18,3	61	50	[Lar01]
	88,0	71	63		124,5	58	49	[Pet01]
Yb:Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	36,3	82	73	cw	22,5	57	42	
	101,6	67	61					
	20,5		37	370				
	24,0	52	43	523				
Yb:LuScO <sub>3</sub>	32,9	82	74	cw				
Yb:NGW	18,3	53	42					

**Tabelle 7.3:** Ergebnisse der Scheibenlaserexperimente im Vergleich zu bisher erzielten Resultaten.

sem Bereich kommt. Die praktische Umsetzung des großen Durchstimmbereichs wird dadurch erschwert.

Als Konsequenz der breiten Emissionsbande um 1034 nm ergeben sich für den modengekoppelten Scheibenlaserbetrieb von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> geringere Pulsdauern im Vergleich zu Yb:YAG [Mar08b]. Die dabei erzielten Resultate zeigen das große Potential von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> für die Erzeugung ultrakurzer Pulse bei hohen Ausgangsleistungen.

Aufgrund der geringen Wärmeleitfähigkeit sowie der Anisotropie in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten gestaltet sich die Leistungsskalierung mit Yb:NGW schwieriger. Unter Verwendung dieses Materials kam es bei Kristalldicken oberhalb von 0,2 mm bereits bei mittleren Leistungsdichten zu Beschädigungen an den Kristallen aufgrund thermischer Probleme. Um das Potential der breiten Emissionsbanden dennoch für die Erzeugung ultrakurzer Pulse im Scheibenlaser auch bei höheren Pumpleistungen ausnutzen zu können, sind folglich Scheibendicken von 0,1 mm oder weniger nötig. Eine gleichzeitige Erhöhung der Yb-Konzentration wäre in diesem Fall für den Erhalt der Absorptionseffizienz erforderlich. Die erzielbaren optischen Wirkungsgrade liegen jedoch vermutlich auch nach Optimierung der Kristallparameter deutlich unter denen bereits etablierter Systeme ähnlicher Emissionsbandbreite wie Yb:KYW [Bru02] oder Yb:LSB [Krä07, Riv07]. Nichtsdestotrotz konnte gezeigt werden, dass sich das Scheibenlaserdesign auch für die Leistungsskalierung von Materialien mit weniger guten thermo-mechanischen Eigenschaften eignet. So übertrifft die mit einer 0,1 mm dicken Yb(15,3 at.%):NGW-Scheibe erreichte Ausgangsleistung von 18,3 W die bisher in der Literatur veröffentlichten Werte für diese Materialklasse um ein Vielfaches [Liu07, Cas06].

## 7 Scheibenlaserexperimente

# 8 Resümee

## 8.1 Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit ist die Charakterisierung Yb-dotierter Sesquioxide sowie des Wolframats  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  (NGW) hinsichtlich ihrer Eignung als aktive Materialien im Scheibenlaser. Ein weiterer Schwerpunkt liegt in der Weiterentwicklung und Optimierung des für die Hochtemperatur-Kristallzuchtung der Sesquioxide eingesetzten Kristallzuchtungsverfahrens.

Anhand der theoretischen Grundlagen, die zur Beschreibung der im Laser stattfindenden Prozesse erforderlich sind, wurde ein einfaches analytisches Modell des Scheibenlasers vorgestellt. Mit Hilfe dieses Modells wurden die für das Scheibenlaserdesign spezifischen Anforderungen an das Lasermaterial formuliert und die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Materialien unter diesen Gesichtspunkten beurteilt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ -,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ -,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - und  $\text{LuScO}_3$ -Kristalle unterschiedlicher Dotierungskonzentrationen nach dem HEM-Verfahren hergestellt. Dabei wurde der Einfluss der Zuchtungsatmosphäre untersucht und ein qualitativer Zusammenhang zwischen der Menge der in den Kristall eingelagerten metallischen Rhenium-Verunreinigungen und dem Sauerstoffanteil der Atmosphäre aufgezeigt. Durch Überlegungen anhand von Phasendiagrammen und den Vergleich mit den experimentellen Zuchtungsresultaten wurde der Rhenium-Transport in die Schmelze erklärt und eine geeignete Kammeratmosphäre von etwa 90% Stickstoff, 10% Wasserstoff sowie einer Sauerstoffkonzentration von maximal 0,2% ermittelt. Mit dieser Atmosphäre war es möglich, Kristalle ohne nennenswerte Re-Einschlüsse herzustellen. Auch die Auswirkungen unterschiedlicher Tiegelformen und Tiegelherstellungsarten auf die gezüchteten Kristalle wurden untersucht. Die besten Ergebnisse wurden unter Verwendung eines Tiegels mit konischem Boden erzielt. So konnten im Fall von undotiertem  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  einkristalline Bereiche mit einem Volumen von bis zu  $30\text{ cm}^3$  hergestellt werden.

Da die thermischen Eigenschaften des aktiven Materials im Hochleistungsbereich begrenzende Faktoren im Hinblick auf Effizienz und Strahlqualität des Lasers darstellen, wurde die Wärmeleitfähigkeit der hergestellten Sesquioxide ausführlich untersucht. Dabei ergaben sich gute Übereinstimmungen zu früheren Arbeiten von Mix [Mix99] und Peters [Pet02a]. Anhand eines Modells zur Beschreibung der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit der Dotierungskonzentration [Kle60] wurden die unterschiedlichen Sesquioxide für Yb-Konzentrationen, wie sie typischerweise im Scheibenlaser eingesetzt werden, mit Yb:YAG verglichen. Dabei wies Yb: $\text{Lu}_2\text{O}_3$  mit etwa  $12\text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  unter allen betrachteten Materialien die beste Wärmeleitfähigkeit auf. Auch  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  besitzen im relevanten Yb-Konzentrationsbereich mit einer Wärmeleitfähigkeit von  $6 - 8\text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  noch vergleichbare Eigenschaften wie das bisher gängigste Scheibenlasermaterial Yb:YAG. Die Wärmeleitfähigkeit des erstmals hergestellten Yb: $\text{LuScO}_3$  wurde zu etwa  $3,4\text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  bestimmt.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit war die spektroskopische Charakterisierung der untersuchten Materialien im Hinblick auf ihre Eignung als optisch gepumpte Lasermedien. Dabei

wurde zunächst die Fluoreszenzlebensdauer der verschiedenen Kristalle mit Hilfe der Pinhole-Methode für unterschiedliche Dotierungskonzentrationen bestimmt. Im Falle der Yb-dotierten Sesquioxide konnte im Gegensatz zu früheren Veröffentlichungen in allen untersuchten Proben eine deutliche Verminderung der Konzentrationslöschung beobachtet werden. Anschließend wurden die Absorptionswirkungsquerschnitte der untersuchten Materialien bei Raumtemperatur ermittelt. So ergibt sich auf der Nullphononenlinie im Bereich um 975 nm für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ein Absorptionswirkungsquerschnitt von  $44,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bzw. für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei 976 nm ein Wert von  $30,6 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ . Der Wert für den Mischkristall Yb:LuScO<sub>3</sub> liegt mit  $33,0 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  zwischen den beiden zuvor genannten Materialien. Bei Verwendung schmalbandiger Pumpquellen lassen sich aufgrund dieser Werte im Vergleich zu Yb:YAG deutlich dünnere Kristalle im Scheibenlaser einsetzen. Auch Yb:NGW ermöglicht mit einem über alle Polarisationen gemittelten Absorptionswirkungsquerschnitt von  $14,8 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  bei zugleich deutlich breiteren Absorptionsbanden als bei den Sesquioxiden eine effiziente Absorption der Pumpstrahlung im Scheibenlaser. Desweiteren wurden die Raumtemperaturemissionswirkungsquerschnitte der verwendeten Materialien bestimmt. Die maximalen Wirkungsquerschnitte der Emissionsbande um 1035 nm sind mit  $12,6 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  für Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bzw.  $14,4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$  für Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> niedriger als in Yb:YAG ( $18,9 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$ ). Die Emissionsbandbreite (FWHM) hingegen, ist mit etwa 10 nm für Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und 13 nm für Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> deutlich größer als in Yb:YAG (8,5 nm), wodurch sich Vorteile für den durchstimmbaren und modengekoppelten Laserbetrieb ergeben. Noch größere Emissionsbandbreiten werden bei Yb:LuScO<sub>3</sub> (22 nm) beobachtet. Das größte Potential in dieser Hinsicht weist Yb:NGW auf, für welches eine Emissionsbandbreite von 30 nm ermittelt wurde.

In den Laserexperimenten wurden zunächst die Eigenschaften der zuvor hergestellten Yb-dotierten Sesquioxide in einem longitudinal gepumpten Resonator unter Anregung mit einem Ti:Saphir-Laser untersucht. Mit allen Proben konnte bis zu einer Yb-Konzentration von 5 at.% effizienter Laserbetrieb gezeigt werden. Der differentielle Wirkungsgrad betrug dabei mit allen Materialien bis zu etwa 85%. Dies gilt auch für Yb:LuScO<sub>3</sub>, für welches erstmals Laserbetrieb demonstriert werden konnte. Für einen Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristall mit einer Yb-Konzentration von 10 at.% lag der maximal erreichbare differentielle Wirkungsgrad im Dauerstrichbetrieb nur noch bei etwa 40%. Zudem wurde bereits bei geringen Leistungen ein thermisches Überrollen des Lasers beobachtet.

Die im longitudinal gepumpten Resonator erreichten sehr hohen Wirkungsgrade der Sesquioxide konnten nahezu vollständig auf den Scheibenlaser übertragen werden. Hierbei wurde mit allen untersuchten Materialien bis zu einer Dotierungskonzentration von etwa 5 at.% Yb hocheffizienter Laserbetrieb mit differentiellen Wirkungsgraden von mehr als 80% erreicht. Der höchste optische Wirkungsgrad von mehr als 75% wurde für Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> erzielt. Die maximal erzielten optischen Wirkungsgrade von Yb:LuScO<sub>3</sub> und Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> lagen mit Werten von  $\eta_{opt} = 74\%$  bzw.  $\eta_{opt} = 73\%$  geringfügig darunter. Die höchste gemessene Ausgangsleistung von etwa 102 W wurde mit Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> erzielt. Bei diesem Experiment konnte bis zur maximal eingestrahlten Pumpleistung von 168 W, entsprechend einer Pumpleistungsdichte von etwa  $15 \text{ kW/cm}^2$ , keine Abnahme des differentiellen Wirkungsgrads beobachtet werden, was die ausgezeichneten thermischen Eigenschaften von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bestätigt. Die erzielten Effizienzen belegen eindrucksvoll die sehr hohe Qualität der mittels HEM-Verfahren hergestellten Kristalle.

Abweichende Lasereigenschaften wurden für den 10 at.% dotierten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Kristall beobachtet. Dieser zeigte im Scheibenlaseraufbau bereits bei niedrigen Auskoppelgraden deutlich

geringere differentielle Wirkungsgrade von weniger als 50%. Zudem war mit zunehmender Betriebsdauer eine Reduzierung der Ausgangsleistung zu beobachten. Die Degradation war dabei mit der in der Scheibe vorliegenden Dichte der angeregten Yb-Ionen korreliert, wie anhand eines vergleichenden Experiments mit einem 5 at.-%-dotierten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gezeigt werden konnte. Bei diesem trat für sehr hohe Auskoppelgrade ein ähnliches Verhalten auf. Für geringere Auskoppelgrade hingegen wurde keinerlei Veränderung der Lasereigenschaften dieses Kristalls beobachtet. Als Erklärung hierfür kommen Prozesse in Frage, welche bei hoher Dichte der angeregten Yb-Ionen Verluste erzeugen. Phänomenologisch wurde eine Untergrenze für die Inversionsdichte von  $1,5 - 3 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  bestimmt, ab welcher es im Laserbetrieb zu Beeinträchtigungen kommt. Die für den effizienten Dauerstrichbetrieb im Scheibenlaser geeignete Yb-Dotierungskonzentration wird dadurch für übliche Auskoppelgrad von einigen Prozent auf etwa 5 at.-% begrenzt.

Die mit Yb:NGW im Scheibenlaser erzielten Resultate bleiben deutlich hinter denen der Sesquioxide zurück. So kam es aufgrund der stark anisotropen thermischen Ausdehnungskoeffizienten des Materials bereits bei der Beschichtung der Scheibenlaserkristalle zu Rissen in den dünneren Proben. Aufgrund der niedrigen Wärmeleitfähigkeit kam es im Laserbetrieb für Kristalldicken von mehr als 0,2 mm bereits bei Pumpleistungsdichten von etwa  $2 \text{ kW/cm}^2$  zur Beschädigung der Scheiben. Lediglich mit einer Scheibe mit einer Dicke von 0,1 mm konnte die Ausgangsleistung auf den für dieses Material bisher höchsten dokumentierten Wert von 18,3 W erhöht werden. Der differentielle Wirkungsgrad betrug dabei 51% bei einem optischen Wirkungsgrad von 42%. Sowohl die Ausgangsleistung als auch der Wirkungsgrad lassen sich vermutlich durch die Verwendung dünnerer Scheiben bei gleichzeitig höherer Yb-Konzentration noch geringfügig erhöhen. Jedoch stehen diesem die großen Probleme bei der Politur und Beschichtung solch dünner Proben sowie ab einer Dotierungskonzentration von etwa 20 at.-% die in Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und auch in Yb:YAG beobachteten Einbussen in der Effizienz im Laserbetrieb für hochdotierte Proben entgegen.

Der verwendete Scheibenlaseraufbau hat sich als äußerst geeignet erwiesen, um breitbandig durchstimmbaren Laserbetrieb zu realisieren. Bei einer eingestrahlt Pumpleistung von etwa 32 W ergab sich für die Yb-dotierten Sesquioxide ein typischer Durchstimmbereich von 1000 nm bis 1110 nm, wobei die Ausgangsleistung in einem Wellenlängenbereich von 95 nm bei mehr als 10 W lag. Die Auswirkungen unterschiedlicher Auskoppelgrade sowie Dotierungen und Kristalldicken auf das Durchstimmverhalten wurden experimentell untersucht und mit den Berechnungen des analytischen Modells verglichen. Nachteilig wirkt sich im durchstimmbaren Laserbetrieb bei den Yb-dotierten Sesquioxiden vor allem das durch die große Starkaufspaltung entstehende Minimum der Verstärkung im Bereich um 1060 nm aus, welches in der Regel zum deutlichen Absinken der Ausgangsleistung in diesem Spektralbereich führt.

Für Yb:NGW ergaben sich weniger strukturierte Durchstimmkurven mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von 36 nm im Falle eines Auskoppelgrades von  $T_{oc} = 0,4\%$ . Allerdings war die maximale Ausgangsleistung in diesem Fall mit maximal etwa 5 W bei einer eingestrahlt Pumpleistung von 21 W relativ gering.

In Kooperation mit der Arbeitsgruppe von U. Keller wurden am Institut für Quantenelektronik der ETH Zürich erstmals Experimente zur SESAM-Modenkopplung eines Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlasers durchgeführt. Bei einer mittleren Ausgangsleistung von mehr als 20 W wurde eine minimale Pulsdauer von 370 fs erzielt. Der höchste optische Wirkungsgrad von 43% bei einer Ausgangsleistung von 24 W wurde in einem leicht modifizierten Aufbau mit einer Puls-

länge von 523 fs erreicht. Im Vergleich zu modengekoppelten Yb:YAG-Scheibenlasern konnte mit Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> die Pulsdauer bei gleichzeitig höherer Effizienz des Lasers auf etwa die Hälfte reduziert werden. Die Ausgangsleistung in diesen Experimenten war lediglich durch die zur Verfügung stehende Pumpleistung begrenzt, so dass davon ausgegangen werden kann, dass die Ausgangsleistung von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> im modengekoppelten Betrieb im Scheibenlaser in Zukunft noch deutlich gesteigert werden kann.

Als Fazit der Laserexperimente lässt sich festhalten, dass mittels des HEM-Verfahrens hergestelltes hochqualitatives Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> aufgrund seiner im Vergleich zu Yb:YAG deutlich besseren Wärmeleitfähigkeit und den hohen Absorptionswirkungsquerschnitten auf der Nullphononenlinie bei Verwendung geeigneter Pumpquellen diesem in nahezu allen relevanten Eigenschaften wie Effizienz, Skalierungspotential, Durchstimmbereich oder im modengekoppelten Betrieb der Pulsdauer überlegen ist. Allerdings stellt die deutlich geringere Breite der Absorptionsbande von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> um 976 nm wesentlich höhere Anforderung an die Pumpdioden als dies bei der mehr als 12 nm breiten Absorptionsbande von Yb:YAG um 940 nm der Fall ist.

## 8.2 Ausblick

Zukünftige Arbeiten auf diesem Gebiet sollten sich zunächst auf die Weiterentwicklung des HEM-Verfahrens für die Züchtung qualitativ hochwertiger Sesquioxid-Kristalle konzentrieren. Eine theoretische Modellierung der Schmelzdynamik während des Züchtungsprozesses anhand numerischer Simulationen könnte weitere Verbesserungsmöglichkeiten, insbesondere im Hinblick auf optimale Kühlgasraten, den Isolationsaufbau oder die Tiegelform bei Skalierung der Anlagengröße ergeben. Eine industrielle Herstellung der Sesquioxide erfordert zudem eine zuverlässige, industrielle Fertigung von Rheniumtiegeln ausreichender Reinheit. Als Alternative zu konventionellen Kristallzüchtungsverfahren sind keramische Sesquioxide von großem Interesse [Ike06]. Detaillierte spektroskopische Untersuchungen sowie vergleichende Laserexperimente könnten Aufschluss über die Ursachen der bisher mit diesen Materialien erreichten geringeren Wirkungsgrade geben.

Ein weiterer Fokus sollte auf der Untersuchung der thermischen Verhältnisse im Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> im Laserbetrieb, anhand von experimentellen Untersuchungen sowie numerischen Simulationen, liegen. Um die Lasereigenschaften bei sehr hohen Leistungen besser abschätzen zu können, sind zudem alle relevanten spektroskopischen Eigenschaften, insbesondere die Wirkungsquerschnitte temperaturabhängig zu bestimmen. Auch der Einfluss hoher Inversionsdichten sollte weiter untersucht werden, da sich dadurch in der Praxis, insbesondere im gütegeschalteten Laserbetrieb, Limitierungen für die verwendbaren Kristallparameter ergeben.

Der Einsatz gitterstabilisierter Laserdioden als Pumpquelle für die nullphononenliniengepumpten Sesquioxide stellt eine weitere Verbesserungsmöglichkeit dieser Systeme dar, da aufgrund der höheren Absorptionseffizienz die Scheibendicke reduziert werden kann. Erste Experimente unter Einsatz einer solchen Diode mit einer Emissionsbandbreite von etwa 0,6 nm wurden in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von U. Keller am Institut für Quantenelektronik der ETH Zürich vor kurzem durchgeführt. Dabei konnte mit einer Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibe mit 300 W die bisher höchste Ausgangsleistung eines Yb-dotierten Sesquioxids bei einem differentiellen Wirkungsgrad von 82% und einer optischen Effizienz von mehr als 75% erzielt werden [Krä09a]. Auch im modengekoppelten Scheibenlaserbetrieb stellt die weitere Leistungsskalie-



rung von Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ein interessantes Arbeitsfeld dar.

Die Verwendung von Yb:LuScO<sub>3</sub> verspricht eine weitere Verringerung der erzielbaren Pulslänge. So wurden kürzlich in Zusammenarbeit mit dem Max-Born-Institut in Berlin im konventionell longitudinal gepumpten Resonator die bisher kürzesten Pulse eines SESAM-modengekoppelten Sesquioxids mit einer Pulsdauer von 111 fs realisiert [Sch09]. Zeitgleich konnten mit Yb:LuScO<sub>3</sub> an der ETH Zürich die kürzesten bisher mit einem Scheibenlaser erreichten Pulsdauern von 227 fs demonstriert werden [Krä09b].

Durch Kombination mehrerer unterschiedlicher Lasermedien in einem Resonator könnte die erreichbare Verstärkungsbandbreite, bei gleichzeitigem Erhalt der Skalierungseigenschaften der einzelnen Laserkristalle weiter erhöht werden. Insbesondere im Scheibenlaserdesign ist dies durch die Verwendung mehrerer Pumpmodule auf relativ einfache Weise möglich.



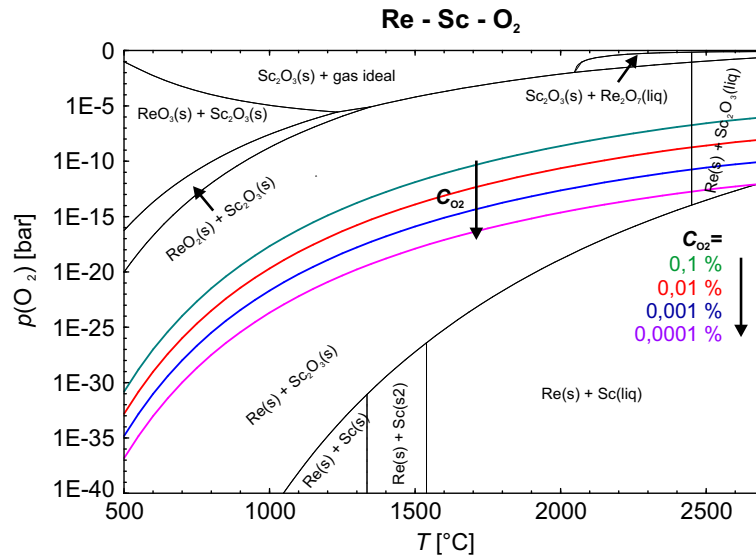
# A Phasendiagramme für $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , $\text{Y}_2\text{O}_3$ und $\text{ZrO}_2$

Im folgenden Abschnitt sind zur Ergänzung der in Kap. 4.2 vorgestellten Kristallzüchtung die Phasendiagramme von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  sowie des für die Isolation des Tiegels verwendeten  $\text{ZrO}_2$  dargestellt. Die Berechnungen wurden freundlicherweise von D. Klimm vom Institut für Kristallzüchtung (IKZ) Berlin mit dem Simulationsprogramm FactSage durchgeführt [Kli08]. Als Ausgangsparameter wurde dabei eine Atmosphäre bestehend aus 85%  $\text{N}_2$  und 15%  $\text{H}_2$  mit einer Sauerstoffkonzentration zwischen 0,1% und 0,0001% angenommen. Die Berechnung erfolgte in einem für die Züchtung der Sesquioxide relevanten Temperaturbereich 500 °C bis 2700 °C. Die farbigen Linien indizieren den Verlauf des Sauerstoffpartialdrucks für unterschiedliche Ausgangskonzentrationen von Sauerstoff in der Atmosphäre. Da im verwendeten Simulationsprogramm die Schmelzpunkte von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  und  $\text{Y}_2\text{O}_3$  nicht enthalten waren, wurden zur besseren Darstellung die aus der Literatur bekannten Schmelzpunkte in Form von senkrechten Linien ergänzt [For99a].

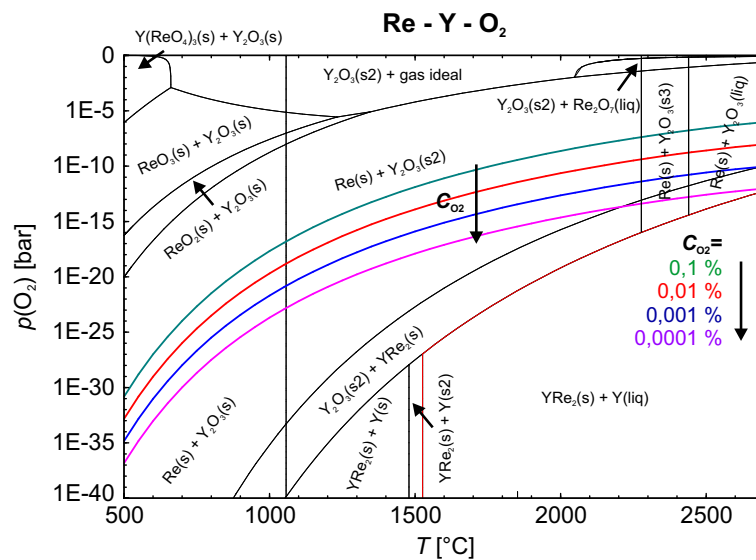
Während sich die Phasendiagramme von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  nur geringfügig unterscheiden (vgl. Abb. 4.5 und Abb. A.1) ist bei  $\text{Y}_2\text{O}_3$  eine deutliche Abweichung zu beobachten. So entsteht in Bereichen mit hohem Sauerstoffpartialdruck bis zu einer Temperatur von etwa 650 °C das Rhenat  $\text{Y}(\text{ReO}_4)_3$ . Für sehr geringe Sauerstoffkonzentrationen von unter 0,001% kommt es bei hohen Temperaturen teilweise zur Reduzierung des  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und zur Bildung einer  $\text{YRe}_2$ -Legierung. Zudem wird ein weiterer Phasenübergang bei etwa 1050 °C beobachtet. Der Phasenübergang bei 2280 °C wurde [Tsu88] entnommen und zusätzlich eingetragen.

Das Phasendiagramm von  $\text{ZrO}_2$  ist in Abb. A.3 dargestellt. Die Kurvenverläufe unterscheiden sich dabei kaum von denjenigen von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ . Es werden lediglich zwei weitere Phasenübergänge bei 1210 °C und 2360 °C beobachtet. Wie auch bei  $\text{Y}_2\text{O}_3$  liegt die Phasengrenze zum reinen Metall etwa zwei Größenordnungen über der entsprechenden Phasengrenze von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  und  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ . Es kann daher von einer stärkeren Tendenz zur Abspaltung von Sauerstoff ausgegangen werden.

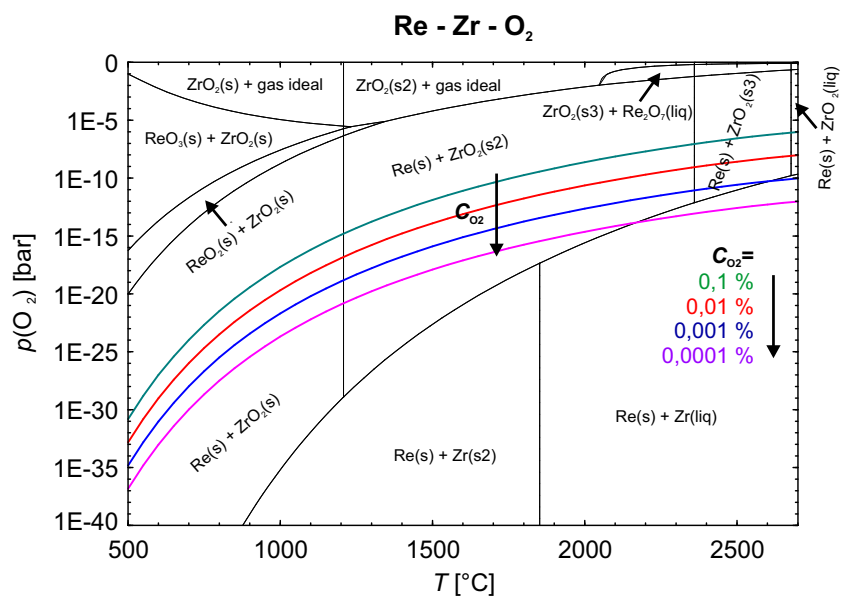
A Phasendiagramme von  $Sc_2O_3$ ,  $Y_2O_3$  und  $ZrO_2$



**Abbildung A.1:** Phasendiagramm von  $Re-Sc-O_2$  zwischen  $500\text{ }^\circ\text{C}$  und  $2700\text{ }^\circ\text{C}$  bei einer  $85\%N_2/15\%H_2$ -Atmosphäre. Die farbigen Linien stellen dabei den Verlauf des Sauerstoffpartialdrucks für unterschiedliche Ausgangsmengen  $O_2$  zwischen  $0,0001\%$  und  $1\%$  dar.



**Abbildung A.2:** Phasendiagramm von  $Re-Y-O_2$  zwischen  $500\text{ }^\circ\text{C}$  und  $2700\text{ }^\circ\text{C}$  bei einer  $85\%N_2/15\%H_2$ -Atmosphäre. Die farbigen Linien stellen dabei den Verlauf des Sauerstoffpartialdrucks für unterschiedliche Ausgangsmengen  $O_2$  zwischen  $0,0001\%$  und  $0,1\%$  dar. Der Schmelzpunkt bei  $2430\text{ }^\circ\text{C}$  ist [For99a] entnommen. Der Phasenübergang bei  $2280\text{ }^\circ\text{C}$  stammt aus [Tsu88].



**Abbildung A.3:** Phasendiagramm von Re-Zr-O<sub>2</sub> zwischen 500 °C und 2700 °C bei einer 85%N<sub>2</sub>/15%H<sub>2</sub>-Atmosphäre. Die farbigen Linien stellen dabei den Verlauf des Sauerstoffpartialdrucks für unterschiedliche Ausgangsmengen O<sub>2</sub> zwischen 0,0001% und 0,1% dar.

*A Phasendiagramme von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{ZrO}_2$*

## B Brechzahlen und Sellmeier-Gleichungen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und NGW

Material	Brechzahlformel
Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	$n^2 = 3,62004 + \frac{0,0412526}{\lambda^2 - 0,0239454} - 0,0086344 \cdot \lambda^2$
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	$n^2 = 3,83252 + \frac{0,0492688}{\lambda^2 - 0,0237987} - 0,014094 \cdot \lambda^2$
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	$n^2 = 3,5387 + \frac{0,0421725}{\lambda^2 - 0,0243226} - 0,00914896 \cdot \lambda^2$
NGW	$n_o^2 = 2,026 + \frac{1,704 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - 0,175^2}$
	$n_e^2 = 2,260 + \frac{1,479 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - 0,187^2}$

**Tabelle B.1:** Sellmeier-Gleichungen für die undotierten Sesquioxide nach [Mix99] sowie für NGW nach [Cas06].  
 $\lambda$  in  $\mu\text{m}$ .

B Brechzahlen und Sellmeier-Gleichungen von  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und NGW

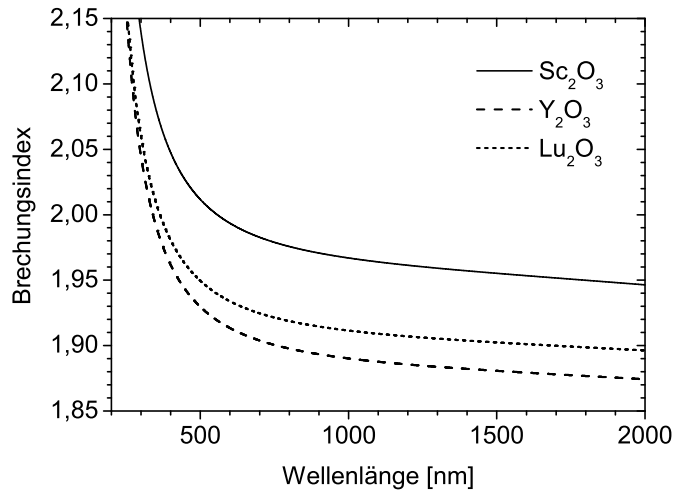


Abbildung B.1: Brechzahlen von  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  und  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ .

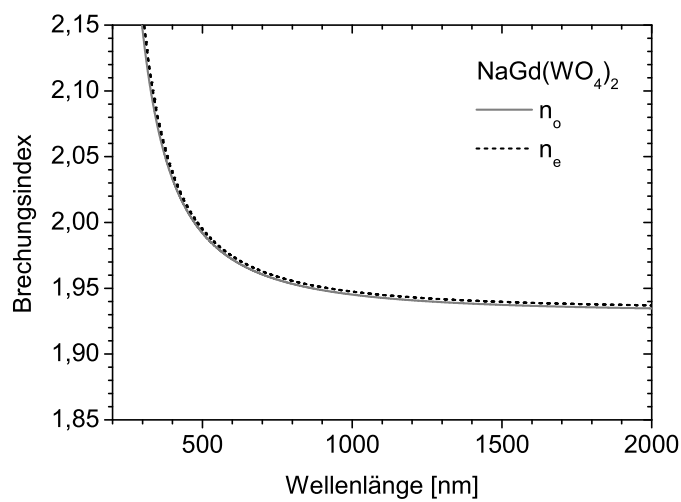


Abbildung B.2: Brechzahlen von NGW.



## C Quellenangaben für Tabelle 3.2

Wirtsmaterial	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	LuScO <sub>3</sub>	NGW	YAG
Gittersymmetrie	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]	[Hee07]	[Vor03]	[Yod50]
Raumgruppe	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]	[Hee07]	[Cas06]	[Yod50]
Gitterkonstanten	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	MW	[Cas06]	[Dob04]
Kationendichte	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	MW	[Vor03]	[Cze02]
Yb-Koordination	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]		[Cas06]	[Kam90]
Kationenradius	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]		[Kam90]	[Kam90]
Yb-Ionenradius	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	[Kam90]	MW	[Kam90]	[Kam90]
Platzsymmetrie	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]	[Pau30]		[Cas06]	[Kam90]
Mohs-Härte	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	d.A.	[Pet05]	[Kam90]
Dichte	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]	MW	[Rod71]	[Sat06]
Herstellungsart	[Pet01]	[Pet01]	[Pet01]	[Pet01]		[Pet05]	[Kam90]
Schmelzpunkt	[For99a]	[For99a]	[For99a]	[For99a]	[Hee07]	[Rod71]	[Cas80]
Brechungsindex	[For99a]	[For99a]	[For99a]			[Cas06]	[Zel98]
Transparenzbereich	[Mix99]	[Mix99] [Tol09]	[Mix99]	[Mix99]	d.A.	[Cas06]	[Pet01]
Debye-Temperatur	[Mix99]	[Mix99]	[Mix99]			[Sla71]	[Pet01]
Spezifische Wärme	[Lis98]	[Lis98]	[Lis98]	[Gme74]	[Kli09]	[Fan06]	[Che07] [Zha04]
Temperaturleitfähigkeit	d.A.	d.A.	d.A.	d.A.	d.A.	[Fan06]	[Che07] [Bei08] [Zha04]
Wärmeleitfähigkeit	d.A.	d.A.	d.A.	d.A.	d.A.	[Fan06]	[Che07] [Bei08] [Zha04]
thermoopt. Koeff.	[Per08]	[Per08]	[Per08]		MW	[Per07]	[Wyn99]
Ausdehnungskoeff.	[Gme74]	[Gme74]	[Gme74]		MW	[Fan06]	[Wyn99]
max. Phononenenergie	[Mix99]	[Mix99]	[Mix99]	[Mix99]		[Cas06]	[Hur68]

**Tabelle C.1:** Quellenangaben für Tab. 3.2. Die Abkürzung d.A. steht dabei für im Rahmen dieser Arbeit ermittelte Werte. Bei LuScO<sub>3</sub> wurde in einigen Fällen der Mittelwert aus Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gebildet (MW).

*C Quellenangaben für Tabelle 3.2*

## D Starkniveaus von $\text{Yb}^{3+}$ in $\text{Lu}_2\text{O}_3$ , $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , $\text{Y}_2\text{O}_3$ , NGW und YAG

Wirt	Grundzustand	$Z_u/2$	angeregter Zustand	$Z_o/2$	$Z_u/Z_o$	Quelle
$\text{Sc}_2\text{O}_3$	0, 481, 579, 1017	1,168	10260, 10736, 11094	1,113	1,049	
$\text{Lu}_2\text{O}_3$	0, 427, 514, 903	1,226	10244, 10666, 11073	1,150	1,066	[Pet01]
$\text{Y}_2\text{O}_3$	0, 414, 498, 874	1,244	10243, 10651, 11045	1,163	1,070	
NGW	2d: 0, 239, 371, 482	1,585	10266, 10411, 10648	1,659	0,956	[Pet05]
	2b: 0, 209, 360, 492	1,639	10272, 10366, 10652	1,798	0,911	
YAG	0, 565, 612, 785	1,143	10327, 10624, 10679	1,399	0,817	[Bog76]

**Tabelle D.1:** Starkaufspaltung und Zustandssummen von  $\text{Yb}^{3+}$  in den untersuchten Sesquioxiden sowie in NGW und YAG. Die Angaben sind in  $\text{cm}^{-1}$ .

*D Starkniveaus von  $\text{Yb}^{3+}$  in  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , NGW und YAG*

## E Auflistung der untersuchten Scheibenlaserkristalle

Dotierung (at.%)	Orientierung	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Nummer	Durchmesser (mm)	$P_{out,max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	Bemerkung	
10,7	a-cut	300	1	5				defekt	
			2	5	2,3	18,0	26	defekt	
			3	5	3,9	22,4	31	defekt	
			4	5				defekt	
		200	1	5	7,3	22,0	52		
			2	5	6,6	21,0	50	defekt	
		400	1	5	3,5	25,0	28	Kratzer	
			2	5				Kratzer,defekt	
	3		5	3,0	22,0	26	Kratzer		
	c-cut	300	1	5	5,1	26,4	32	Kratzer	
			2	5	5,6	26,4	35	Kratzer	
			3	5	5,8	26,4	36	Kratzer	
			L874	5	4,82	25,3	34	InSn-Lot, defekt	
			L870	5	4,2	25,3	36	AuSn-Lot, defekt	
			250	1	5	6,8	26,4	37	Kratzer,defekt
		200	2	5	5,5	26,4	33	Kratzer	
			3	5	7,2	26,4	40	Kratzer	
			1	5	6,5	26,4	38	Kratzer	
		15,3	a-cut	300	1	5	0,86	17,0	17
	2				5				defekt
	200			1	5	2,0	15,0	31	defekt
1				5	4,8	17,0	53		
100	2			5	18,2	43,6	51		

**Tabelle E.1:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:NGW-Scheibenlaserkristalle.

## E Auflistung der untersuchten Scheibenlaserkristalle

Dotierung (at.%)	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Nummer	Durchmesser (mm)	$P_{out,max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	Bemerkung	
1	450	1	5	31,0	45,3	75,8		
		2		31,9	45,3	77,1		
		3		28,6	44,6	74,4		
	350	1	5	31,7	45,3	74,6		
		2		30,6	45,3	73,2		
	300	1	5	26,4	45,3	63,2		
	250	1	5				defekt	
	2	250	1	5	32,0	45,3	77,3	
			2		32,1	45,3	77,3	
3			31,7		46,1	75,5		
200		1	5	22,5	44,6	56,0	Re-Partikel	
		2		7,1	45,3	32,0	Re-Partikel	
		1, Keil		30,0	45,3	73,0	Kratzer	
		2, Keil		22,0	45,3	53,6	Re-Partikel	
150		1	5	30,4	45,3	71,0		
120		1	5	27,4	45,3	67,0		
3		250	1	5	32,6	45,3	80,0	
			2		32,0	45,3	78,8	
		200	1	5	31,9	45,3	78,0	
	2		23,4		45,3	58,0		
	1		5		32,0	45,3	77,4	
	2				27,4	45,3	68,4	
	1, Keil	30,0		45,3	72,7			
	2, Keil	31,3	45,3	74,8				
	100	1	5	28,8	45,3	69,2	AR-Coating defekt	
	80	1	5	27,0	45,3	62,7		
5	200	1	6,4	31,2	43,6	81,2		
		1		30,8	43,6	80,7		
		FEE1		31,1	44,6	82,4	140 W-Diode	
		CT1		101,6	168,3	66,5		
		CT2		14,8	44,6	48,3		
	30,9	44,6	82,1					
150	1	6,4	36,3	49,8	80,4			
10	100	1	6,4	6,4	17,45	47,0	s. Kap. 7.4.3	
		2		15,3	25,8	69,5		

**Tabelle E.2:** Auflistung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlaserkristalle.

Dotierung (at.%)	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Nummer	Durchmesser (mm)	$P_{out,max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	Bemerkung
3	400	1	6,4	30,7	45,1	79,4	140 W-Diode
		1	6,4	88,0	141,3	70,5	
	300	1, Keil	6,4	32,7	45,1	80,3	
		2, Keil		32,5	45,1	79,1	
	200	1	6,4	34,0	45,1	82,1	

**Tabelle E.3:** Aufstufung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlaserkristalle.

Dotierung (at.%)	Dicke ( $\mu\text{m}$ )	Nummer	Durchmesser (mm)	$P_{out,max}$ (W)	$P_{in}$ (W)	$\eta_{sl,max}$ (%)	Bemerkung
3	300	1	6,4	29,9	44,6	76,4	defekt
		1, Keil	6,4	29,3	44,6	75,5	
	2, Keil	26,8		44,6	68,0		
	200	1	6,4	29,5	44,6	76,4	defekt
		2		32,9	44,6	81,5	

**Tabelle E.4:** Aufstufung der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Yb:LuScO<sub>3</sub>-Scheibenlaserkristalle.

*E Auflistung der untersuchten Scheibenlaserkristalle*



# Literaturverzeichnis

- [Auz03] F. Auzel, G. Baldacchini, L. Laversene und G. Boulon. *Radiation trapping and self-quenching analysis in  $\text{Yb}^{3+}$ ,  $\text{Er}^{3+}$ , and  $\text{Ho}^{3+}$  doped  $\text{Y}_2\text{O}_3$* . *Optical Materials* **24**, 103 (2003).
- [Bar57] C. Barta und F. Petru und B. Hajek. *Über die Darstellung des Einkristalls von Scandiumoxyd*. *Die Naturwissenschaften* **45** (2), 36 (1957).
- [Bei08] K. Beil. *Yb-dotiertes  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  als Scheibenlasermaterial*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2008).
- [Ber68] M. F. Berard, C. D. Wirkus und D. R. Wylder. *Diffusion of Oxygen in Selected Monocrystalline Rare Earth Oxides*. *Journal of American Ceramic Society* **51** (11), 643 (1968).
- [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).
- [Ber08] H.-J. Bernhardt. *Mikrosondenanalysen am Institut für Geologie, Mineralogie und Geophysik der Ruhr-Universität Bochum* (2008).
- [Bog76] G. A. Bogomolova, D. H. Vylegzhanin und A. A. Kaminskii. *Spectral and lasing investigations of garnets with  $\text{Yb}^{3+}$  ions*. *Sov. Phys. JETP* **42**, 440 (1976).
- [Bol01] A. Bolz. *Energietransfer in Ytterbium-dotierten Sesquioxiden*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2001).
- [Bor68] S. V. Borisov und R. F. Kletsova. *Crystal structure of  $\text{KY}(\text{WO}_4)_2$* . *Soviet Physics-Crystallography* **13**, 517 (1968).
- [Bou03] G. Boulon.  *$\text{Yb}^{3+}$ -doped oxide crystals for diode-pumped solid state lasers: crystal growth, optical spectroscopy, new criteria of evaluation and combinatorial approach*. *Optical Materials* **22**, 85 (2003).
- [Bra93] U. Brauch, A. Giesen, A. Voß und K. Wittig. *United States Patent 5553088*, (1993).
- [Bra94] U. Brauch, A. Giesen, A. Voß und K. Wittig. *Europäische Patentanmeldung 0632551A1* (1994).
- [Bra95] U. Brauch, A. Giesen, M. Karszewski, C. Stewen und A. Voss. *Multiwatt diode-pumped Yb:YAG thin disk laser continuously tunable between 1018 and 1053 nm*. *Optics Letters* **20** (77), 713 (1995).

## Literaturverzeichnis

- [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).
- [Can06] J. Cano-Torres, M. Serrano, C. Zaldo, M. Rico, X. Mateos, J. Liu, U. Griebner, V. Petrov, F. Valle, M. Galán und G. Viera. *Broadly tunable laser operation near 2 micrometer of Tm<sup>3+</sup> in locally disordered crystal of NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Journal of the Optical Society of America B **23**, 2494 (2006).
- [Cas80] J. L. Caslavsky und Dennis J. Viechnicki. *Melting behaviour and metastability of yttrium aluminum garnet (YAG) and YAlO<sub>3</sub> determined by optical differential thermal analysis*. Journal of Materials Science **15**, 1709 (1980).
- [Cas06] C. Cascales, M. D. Serrano, F. Esteban-Betegón, C. Zaldo, R. Peters K. Petermann, G. Huber, L. Ackermann, D. Rytz, C. Dupré, M. Rico, J. Liu, U. Griebner und V. Petrov. *Structural, spectroscopic, and tunable laser properties of Yb<sup>3+</sup>-doped NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Physical Review B **74**, 174114 (2006).
- [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).
- [Cha90] C. Changkang, B. M. Wanklyn und P. Ramasamy. *The flux growth of scandium oxide crystals*. Journal of Crystal Growth **104** (3), 672 (1990).
- [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).
- [Coy05] D. Coyne. *Beamsplitter Coating Strain Induced Radius of Curvature (Advanced LIGO), LIGO-T050057-00-D*. Internal working note of the LIGO Project (2005).
- [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).
- [Dex53] D. L. Dexter. *A Theory of Sensitized Luminescence in Solids*. Journal of Chemical Physics **21**, 836 (1953).

- [Die98] A. Diening, 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).
- [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).
- [Ein16] A. Einstein. *Strahlungs-Emission und Absorption nach der Quantentheorie*. *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft* **18**, 318 (1916).
- [Fan06] J. Fan, H. Zhang, J. Wang, Z. Ling, H. Xia, X. Chen, Y. Yu, Q. Lu und M. Jiang. *Growth, structure and thermal properties of Yb<sup>3+</sup>-doped NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> crystal*. *Journal of Physics D Applied Physics* **39**, 1034 (2006).
- [Fau96] N. Faure, C. Borel, M. Couchaud, G. Basset, R. Templier und C. Wyon. *Optical properties and laser performance of neodymium doped scheelites CaWO<sub>4</sub> and NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. *Appl. Phys. B* **63** (6), 593 (1996).
- [For99a] L. Fornasiero. *Nd<sup>3+</sup>- und Tm<sup>3+</sup>-dotierte Sesquioxide*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1999).
- [For99b] L. Fornasiero, E. Mix, V. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Efficient room temperature continuous-wave operation of an Yb<sup>3+</sup>:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> crystal laser at 1041.6 and 1094.6 nm*. *Physica Status Solidi (A)* **202** (3), R19 (1999).
- [For99c] L. Fornasiero, E. Mix, V. Peters, K. Petermann und G. Huber. *New Oxide Crystals for Solid State Lasers*. *Crystal Research and Technology* **34** (2), 255 (1999).
- [För48] T. Förster. *Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz*. *Analen der Physik* **437** (1-2), 55 (1948).
- [Fre08] S. T. Fredrich-Thornton. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Fre09] S. T. Fredrich-Thornton. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2009).
- [Gar07] A. García-Cortés, J. M. Cano-Torres, M. D. Serrano, C. Cascales, C. Zaldo, S. Rivier, X. Mateos, U. Griebner und V. Petrov. *Spectroscopy and Lasing of Yb-Doped NaY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>: Tunable and Femtosecond Mode-Locked Laser Operation*. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **43** (9), 758 (2007).
- [Gau03] R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, J. P. Roger und D. Fournier. *A simple model for the prediction of thermal conductivity in pure and doped insulating crystals*. *Applied Physics Letters* **83** (7), 1355 (2003).
- [Gaz77] R. Gazzinelli, O. F. Schirmer und V. Wittwer. *ESR and optical absorption of rhenium in MoO<sub>3</sub>*. *Journal of Physics C: Solid State Physics* **10**, 889 (1977).

## Literaturverzeichnis

- [Geb58] T. H. Geballe und G. W. Hull. *Isotopic and Other Types of Thermal Resistance in Germanium*. Physical Review **110**, 773 (1958).
- [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).
- [Gme74] Gmelin. *Handbuch der Anorganischen Chemie, Seltenerdelemente, Teil C1* (Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 1974).
- [Gre73] C. Greskovich und J. P. Chernoch. *Polycrystalline Ceramic Lasers*. Journal of Applied Physics **44** (410), 4599 (1973).
- [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).
- [Gri08] U. Griebner. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Han02] S. Han, W. Lu, B. Y. Sheh, L. Yan, M. Wraback, H. Shen, J. Pamulapati und P. G. Newman. *Generation of sub-40 fs pulses from a mode-locked dual-gain-media Nd:glass laser*. Applied Physics B **74**, S177 (2002).
- [Hat64] S. E. Hatch, W. F. Parsons und R. J. Weagley. *Hot-Pressed Polycrystalline CaF<sub>2</sub>:Dy<sup>2+</sup> Laser*. Applied Physics Letters **5** (8), 153 (1964).
- [Hau75] H. A. Haus. *Theory of modelocking with fast saturable absorber*. Journal of Applied Physics **46**, 3049 (1975).
- [Hau02] P.-H. Haumesser, R. Gaumé, B. Vianna und D. Vivien. *Determination of laser parameters of ytterbium-doped oxide crystalline materials*. Journal of the Optical Society of America B **19** (10), 2365 (2002).
- [Hee07] T. Heeg. *Epitaktische Seltenerd-Scandatschichten für die Mikroelektronik*. Dissertation, Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät, Universität Köln (2007).
- [Hei73] W. Heitmann. *Reactively Evaporated Films of Scandia and Yttria*. Applied Optics **12**, 394 (1973).

- [Hen89] B. Henderson und G. Imbusch. *Optical Spectroscopy of Inorganic Solids* (Clarendon Press, Oxford, 1989).
- [Her98] Fa. Heraeus. *Angabe des Herstellers, Mitteilung an K. Petermann* (1998).
- [Hir08a] C. Hirt. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Hir08b] C. Hirt, S. T. Fredrich-Thornton, K. Petermann und G. Huber. *Photoconductivity Measurements Indicating a Nonlinear Loss Mechanism in Highly Yb-Doped Oxides*. Conference on Advanced Solid-State Photonics 2008, Washington DC, USA, Technical Digest (paper MF1) (2008).
- [Hoe66] H. R. Hoekstra. *Phase Relationships in the Rare Earth Sesquioxides at High Pressure*. *Inorganic Chemistry* **5**, 754 (1966).
- [Hos64] R. H. Hoskins und B. H. Soffer. *Stimulated emission from  $Y_2O_3:Nd^{3+}$* . *Applied Physics Letters* **4** (1), 22 (1964).
- [Hub75] G. Huber, W. W. Krühler, W. Bludau und H. G. Danielmeyer. *Anisotropy in the laser performance of  $NdP_5O_{14}$* . *Journal of Applied Physics* **46** (8), 3580 (1975).
- [Hub88] G. Huber, S. A. Payne, L. L. Chase und W. F. Krupke. *Optical spectroscopy of  $Cr^{3+}$  in  $ScF_3$  and  $Sc_2O_3$* . *Journal of Luminescence* **39** (5), 259 (1988).
- [Hur68] J. P. Hurrell, S. P. S. Porto, I. F. Chang, S. S. Mitra und R. P. Bauman. *Optical Phonons of Yttrium Aluminum Garnet*. *Physical Review* **173**, 851 (1968).
- [Ike95a] A. Ikesue, I. Furusato und K. Kamata. *Fabrication of Polycrystalline, Transparent YAG Ceramics by a Solid-State Reaction Method*. *Journal of the American Ceramic Society* **78** (1), 225 (1995).
- [Ike95b] A. Ikesue, T. Kinoshita, K. Kamata und K. Yoshida. *Fabrication and Optical Properties of High- Performance Polycrystalline Nd:YAG Ceramics for Solid-State Lasers*. *Journal of the American Ceramic Society* **78**, 1033 (1995).
- [Ike06] A. Ikesue, Y. L. Aung, T. Taira, T. Kamimura, K. Yoshida und G. L. Messing. *Progress in Ceramic Lasers*. *Annual Review of Materials Science* **36**, 397 (2006).
- [Jet09] S. Jetschke und U. Röpke. *Power-law dependence of the photodarkening rate constant on the inversion in Yb doped fibers*. *Optics Letters* **34** (1), 109 (2009).
- [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).
- [Kam90] A. A. Kaminskii. *Laser Crystals – Their Physics and Properties* (Springer-Verlag, 1990), 2. Auflage.
- [Kam07] A. A. Kaminskii. *Laser crystals and ceramics: recent advances*. *Laser and Photonics Review* **1** (2), 93 (2007).

## Literaturverzeichnis

- [Kel92] U. Keller, D. A. B. Miller, G. D. Boyd, T. H. Chiu, J. F. Ferguson und M. T. Asom. *Solid-state low-loss intracavity saturable absorber for Nd:YLF lasers: an antiresonant semiconductor Fabry-Perot saturable absorber*. Optics Letters **17**, 505 (1992).
- [Kel96] U. Keller, K. J. Weingarten, F. X. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I. D. Jung, R. Fluck, C. Hönninger, 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).
- [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. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Kha01] C. P. Khattak und F. Schmid. *Growth of the world's largest sapphire crystal*. Journal of Crystal Growth **225**, 572 (2001).
- [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, V. G. Shcherbitsky und N. V. Kuleshov. *Luminescence lifetime measurements in Yb<sup>3+</sup>-doped KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> and KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Conference on Advanced Solid-State Photonics 2004, Santa Fe, USA, Technical Digest (paper WB7) (2004).
- [Kit77] K. Kitazawa, K. Nagashima, T. Mizutani, K. Fueki und T. Mukaibo. *A new thermal imaging system utilizing a Xe arc lamp and an ellipsoidal mirror for crystallization of refractory oxides*. Journal of Crystal Growth **39** (2), 211 (1977).
- [Kit89] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik* (R. Oldenburg Verlag, München, Wien, 1989), 8. Auflage.
- [Kle60] P. G. Klemens. *Thermal Resistance due to Point Defects at High Temperatures*. Physical Review **119** (2), 507 (1960).
- [Kle67] P. H. Klein und W. J. Croft. *Thermal Conductivity and Diffusivity and Expansion of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>, and LaF<sub>3</sub> in the Range 77K-300K*. Journal of Applied Physics **38**, 1603 (1967).
- [Kli08] D. Klimm. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Kli09] D. Klimm. *Persönliche Mitteilung* (2009).
- [Klo04] P. Klopp, V. Petrov, U. Griebner, K. Petermann, V. Peters und G. Erbert. *Highly efficient mode-locked Yb:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser*. Optics Letters **29** (4), 391 (2004).
- [Koe99] W. Koechner. *Solid-State Laser Engineering* (Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 1999), 5. Auflage.

- [Kon03] J. Kong, D. Y. Tang, C. C. Chan, J. Lu, K. Ueda, H. Yagi und T. Yanagitani. *High-efficiency 1040 and 1078 nm laser emission of a Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser with 976 nm diode pumping*. Optics Letters **32**, 247 (2003).
- [Koo08] P. Koopmann. *Effizienter Laserbetrieb von Tm:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei 2 µm Wellenlänge*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2008).
- [Kär95] F. X. Kärtner und U. Keller. *Stablization of soliton-like pulses with a slow saturable absorber*. Optics Letters **20**, 16 (1995).
- [Krä07] C. Kränkel, J. Johannsen, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Continuous-wave high power laser operation and tunability of Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> in thin disk configuration*. Applied Physics B **87**, 217 (2007).
- [Krä08] C. Kränkel. *Ytterbium-dotierte Borate und Vanadate mit großer Verstärkungsbandbreite als aktive Materialien im Scheibenlaser*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2008).
- [Krä09a] C. Kränkel. *Persönliche Mitteilung* (2009).
- [Krä09b] C. Kränkel, C. R. E. Baer, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, R. Peters, K. Petermann, G. Huber und U. Keller. *227fs pulses from a mode locked Yb:LuScO<sub>3</sub> thin disk laser*. submitted to European Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe-EQEC), München, Deutschland (2009).
- [Kri99] A. I. Kriklya. *High-Temperature Heat Capacity of Sesquioxides of Rare-Earth Metals*. Powder Metallurgy and Metal Ceramics **38** (5-6), 274 (1999).
- [Kul97] N. V. Kuleshov, A. A. Lagatsky, V. G. Shcherbitsky, V. P. Mikhailov, E. Heumann, T. Jensen, A. Diening und G. Huber. *CW laser performance of Yb and Er, Yb doped tungstates*. Applied Physics B **64**, 409 (1997).
- [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).
- [Lar08a] M. Larionov. *Kontaktierung und Charakterisierung von Kristallen für Scheibenlaser*. Dissertation, Institut für Strahlwerkzeuge, Universität Stuttgart (2008).
- [Lar08b] M. Larionov. *Persönliche Mitteilung* (2008).
- [Lef62] R. A. Lefever. *Flame Fusion Growth of C-Type Rare-Earth Oxides*. Review of Scientific Instruments **33** (12), 1470 (1962).

## Literaturverzeichnis

- [Lis98] K. Lisak und W. Hohenauer. *Thermophysikalische Charakterisierung von  $Y_2O_3$ ,  $Sc_2O_3$ ,  $Lu_2O_3$ ,  $Yb(3\%):Lu_2O_3$  und  $Nd(0,5\%):Lu_2O_3$ ; Ergebnisbericht zu Auftrag 81-98*. Seibersdorf, Austrian Research Centers (1998).
- [Lis04] D. Lis, E. Zharikov, D. Mendeleyev, K. Subbotin, Y. Voron'ko, A. Sobol und S. Ushakov. *Growth and spectroscopic study of  $Yb^{3+}:NaGd(WO_4)_2$  as potential laser material*. Conference on Advanced Solid-State Photonics 2004, Santa Fe, USA, Proceedings (paper TuB9-1) 183–185 (2004).
- [Liu05] J. Liu, J. M. Cano-Torres, C. Cascales, F. Esteban-Betegón, M. D. Serrano, V. Volkov, C. Zaldo, M. Rico, U. Griebner und V. Petrov. *Growth and continuous-wave laser operation of disordered crystals of  $Yb^{3+}:NaLa(WO_4)_2$  and  $Yb^{3+}:NaLa(MoO_4)_2$* . *Physica Status Solidi A* **202** (4), 29 (2005).
- [Liu07] J. Liu, H. Zhang, J. Wang und V. Petrov. *Continuous-wave and Q-switched laser operation of  $Yb:NaY(WO_4)_2$  crystal*. *Optics Express* **15** (20), 12900 (2007).
- [Lün07] K. Lünstedt, N. Pavel, K. Petermann und G. Huber. *Continuous-wave simultaneous dual-wavelength operation at 912 nm and 1063 nm in  $Nd:GdVO_4$* . *Applied Physics B* **86**, 65 (2007).
- [Lu01] C. W. Lu und J. C. Chen. *Numerical computation of sapphire crystal growth using heat exchanger method*. *Journal of Crystal Growth* **225**, 274 (2001).
- [Lu02] J. Lu, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Akiyama und A. A. Kaminskii. *Neodymium Doped Yttrium Aluminum Garnet ( $Y_3Al_5O_{12}$ ) Nanocrystalline Ceramics - a New Generation of Solid State Laser and Optical Materials*. *Journal of Alloys and Compounds* **341**, 220 (2002).
- [Lu03] J. Lu, J. F. Bisson, K. Takaichi, T. Uematsu, A. Shirakawa, M. Musha, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii.  *$Yb^{3+}:Sc_2O_3$  ceramic laser*. *Applied Physics Letters* **83** (6), 1101 (2003).
- [Lup97] D. F. Lupton, J. Schielke, M. Weigelt, K. Petermann, L. Fornasiero und E. Mix. *Re-Tiegel zur Einkristallzüchtung, Verfahren zu seiner Herstellung und Verwendung*. Patent in Europa, USA, Japan (1997).
- [Mar02] N. Martynyuk. *Quenching Behavior and Laser Operation of highly doped  $Yb:YAG$  Crystals*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2002).
- [Mar08a] S. V. Marchese. *Towards High Field Physics with High Power Thin Disk Laser Oscillators*. Dissertation, Institute of Quantum Electronics, ETH Zürich (2008).
- [Mar08b] 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).
- [Mar08c] H. Marquardt, S. Ganschow und F. R. Schilling. *Thermal diffusivity of natural and synthetic garnet solid solution series*. *Physics and Chemistry of Minerals DOI 10.1007/s00269-008-0261-3* (2008).



- [McC64] D. E. McCumber. *Einstein Relations Connecting Broadband Emission and Absorption Spectra*. Physical Review **136** (4A), A954 (1964).
- [Mil65] A. E. Miller und A. H. Daane. *Preparation of a New Type of Nonstoichiometric Rare-Earth Oxide*. Journal of Inorganic Nuclear Chemistry **27**, 1955 (1965).
- [Mix99] E. Mix. *Kristallzüchtung, Spektroskopie und Lasereigenschaften Yb-dotierter Sesquioxide*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (1999).
- [Mül01] V. Müller. *Charakterisierung und Optimierung von hochdotierten Yb:YAG Laserkristallen*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2001).
- [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).
- [Mun07] J. H. Mun, A. Jouini, A. Novoselov, Y. Guyot, A. Yoshikawa, H. Ohta, H. Shibata, Y. Waseda, G. Boulon und T. Fukuda. *Growth and characterization of Tm-doped Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystals*. Optical Materials **29**, 1390 (2007).
- [Nak79] E. Nakazawa. *Charge Transfer Type Luminescence of Yb<sup>3+</sup> Ions in RPO<sub>4</sub> and R<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S (R=Y, La, and Lu)*. Journal of Luminescence **18/19**, 272 (1979).
- [Neu08] J. Neuhaus, J. Kleinbauer, A. Killi, S. Weiler, D. Sutter und T. Dekorsky. *Subpicosecond thin-disk laser oscillator with pulse energies of up to 25.9 microjoules by use of an active multipass geometry*. Optics Express **16**, 20530 (2008).
- [New74] G. H. C. New. *Pulse evolution in mode-locked quasi-continuous lasers*. IEEE Journal of Quantum Electronics **10**, 115 (1974).
- [Nie08] D. Nies. *Besetzungsdynamik und Laserexperimente mit Erbium-dotierten Sesquioxiden*. Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2008).
- [Nig68] Y. Nigara. *Measurement of the Optical Constants of Yttrium Oxide*. Japanese Journal of Applied Physics **7**, 404 (1968).
- [Oli66] D. W. Oliver und G. A. Slack. *Ultrasonic Attenuation in Insulators at Room Temperature*. Journal of Applied Physics **37** (4), 1542 (1966).
- [Pas01] R. Paschotta und U. Keller. *Passive mode locking with slow saturable absorbers*. Applied Physics B **73**, 653 (2001).

## Literaturverzeichnis

- [Pau30] L. Pauling und M. D. Shappel. *The Crystal Structure of Bixbyite and the C-Modification of the Sesquioxides*. Zeitschrift für Kristallographie **75**, 128 (1930).
- [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).
- [Pay92] S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway und W. F. Krupke. *Infrared Cross-Section Measurements for Crystals Doped with  $Er^{3+}$ ,  $Tm^{3+}$  and  $Ho^{3+}$* . IEEE Journal of Quantum Electronics. **28** (11), 2619 (1992).
- [Per07] S. Perets, M. Tseitlin, R. Z. Shneck und Z. Burshtein. *Refractive index dispersion and anisotropy in  $NaGd(WO_4)_2$  single crystal*. Optical Materials, **30** (8), 1251 (2007).
- [Per08] D. Perlov. *Messung bei Coherent Advanced Crystal Group (ACG), Persönliche Mitteilung an K. Petermann* (2008).
- [Pet64] G. E. Peterson und P. M. Bridenbaugh. *Laser oscillation at  $1.06\mu m$  in the series  $Na_{0.5}Gd_{0.5-x}Nd_xWO_4$* . Applied Physics Letters **4**, 219 (1964).
- [Pet00] K. Petermann, G. Huber, L. Fornasiero, S. Kuch, E. Mix, V. Peters und S. A. Basun. *Rare-earth-doped sesquioxides*. Journal of Luminescence **87-89**, 973 (2000).
- [Pet01] V. Peters. *Growth and Spectroscopy of Ytterbium-Doped Sesquioxides*. Dissertation, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2001).
- [Pet02a] K. Petermann, L. Fornasiero, E. Mix und V. Peters. *High melting sesquioxides: crystal growth, spectroscopy and laser experiments*. Optical Materials **19**, 67 (2002).
- [Pet02b] V. Peters, A. Bolz, K. Petermann und G. Huber. *Growth of high-melting sesquioxides by the heat exchanger method*. Journal of Crystal Growth **237-239**, 879 (2002).
- [Pet05] R. Peters. *Charakterisierung des neuen Scheibenlasermaterials  $Yb^{3+}:NaGd(WO_4)_2$* . Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2005).
- [Pet07] V. Petrov, M. C. Pujol, X. Mateos, Ó. Silvestre, S. Rivier, M. Aguiló, R. M. Solé, J. Liu, U. Griebner und Francesc Díaz. *Growth and properties of  $KLu(WO_4)_2$ , and novel ytterbium and thulium lasers based on this monoclinic crystalline host*. Laser and Photonics Review **1** (2), 179 (2007).
- [Puj01] M. C. Pujol, R. Solé, J. Massons, J. Gavaldà, X. Solans, C. Zaldo, F. Díaz und M. Aguiló. *Structural study of monoclinic  $KGd(WO_4)_2$  and effects of lanthanide substitution*. Journal of Applied Crystallography **34**, 1 (2001).
- [Rem59] H. Remy. *Lehrbuch der anorganischen Chemie* (1959).
- [Ric04] M. Rico, J. Liu, U. Griebner, V. Petrov, M. D. Serrano, F. Esteban-Betegón, C. Cascales und C. Zaldo. *Tunable laser operation of ytterbium in disordered single crystals of  $Yb:NaGd(WO_4)_2$* . Optics Express **12** (22), 5362 (2004).

- [Ric06] M. Rico, U. Griebner, V. Petrov, P. Ortega, X. Han, C. Cascales und C. Zaldo. *Growth, spectroscopy, and tunable laser operation of the disordered crystal  $\text{LiGd}(\text{MoO}_4)_2$  doped with ytterbium*. Journal of the Optical Society of America B **23** (6), 1083 (2006).
- [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  $\text{Yb}:\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$  laser*. In: *Proceedings of Conference on Lasers and Electro-Optics 2005* (2005).
- [Riv07] 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  $\text{Yb}:\text{LaSc}_3(\text{BO}_3)_4$  mode-locked oscillator*. Optics Express **15** (23), 15539 (2007).
- [Rod71] E. Y. Rode, V. N. Karpov und M. M. Ivanova. *Influence of the Rare-earth Ion on the Phases Formed in  $\text{Na}_2\text{WO}_4\text{-R}_2(\text{WO}_4)_3$  Systems (Where R is a Rare-earth Element)*. Russian Journal of Inorganic Chemistry **16** (6), 905 (1971).
- [Rot60] R. S. Roth und S. J. Schneider. *Phase Equilibria in Systems Involving the Rare-Earth Oxides. Part I. Polymorphism of the Oxides of the Trivalent Rare-Earth Ions*. Journal of Research NBS **64A**, 309 (1960).
- [Roy89] R. Roy, D. K. Agrawal und H. A. McKinstry. *Very Low Thermal Expansion Coefficient Materials*. Annual Review of Materials Science **19**, 59 (1989).
- [Ryt06] D. Rytz. *Die verwendeten Proben wurden vom Forschungsinstitut für mineralische und metallische Werkstoffe Edelsteine/Edelmetalle GmbH (FEE) im Rahmen des BMBF-Projektes 13N8377 - "Scheibenlaser höchster Brillanz" zur Verfügung gestellt*. (2006).
- [Sü07] U. Süß. *Persönliche Mitteilung*. (2007).
- [Sai02] J. Saikawa, S. Kurimura, I. Shoji und T. Taira. *Tunable frequency-doubled  $\text{Yb}:\text{YAG}$  microchip lasers*. Optical Materials **19**, 169 (2002).
- [Sat06] Y. Sato und T. Taira. *The studies of thermal conductivity in  $\text{GdVO}_4$ ,  $\text{YVO}_4$ , and  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  measured by quasi-one-dimensional flash method*. Optics Express **14** (22), 10528 (2006).
- [Sch70a] G. Schaack und J. A. Königstein. *Phonon and Electronic Raman Spectra of Cubic Rare-Earth Oxides and Isomorphous Yttrium Oxide*. Journal of Optical Society of America **60**, 1110 (1970).
- [Sch70b] F. Schmid und D. Viechnicki. *Growth of Sapphire Disks from the Melt by a Gradient Furnace Technique*. Journal of American Ceramic Society **53** (9), 528 (1970).
- [Sch73] F. Schmid. Solid State Technology **16**, 45 (1973).
- [Sch02] Franz Schwabl. *Quantenmechanik* (Springer Verlag, 2002), 6. Auflage.

## Literaturverzeichnis

- [Sch06] M. Schellhorn. *Performance of a Ho:YAG thin-disc laser pumped by a diode-pumped 1.9  $\mu\text{m}$  thulium laser*. Applied Physics B **85** (4), 549 (2006).
- [Sch09] K. Schenk. *Arbeitstitel: Untersuchung der Streuverluste von  $\text{Y}_2\text{O}_3$* . Diplomarbeit, Institut für Laser-Physik, Universität Hamburg (2009).
- [Shi03] A. Shirakawa, K. Takaichi, H. Yagi, J. Bisson, J. Lu, M. Musha, K. Ueda, T. Yanagitani, T. Petrov und A. Kaminskii. *Diode-pumped mode-locked  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$  ceramic lasers*. Optics Express **11**, 2911 (2003).
- [Sim07] R. Simura, A. Jouini, J.H. Mun, A. Brenier, A. Yoshikawa, G. Boulon und T. Fukuda. *Growth and spectroscopic properties of  $\text{Yb}^{3+}$ -doped  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  crystals grown by the micro-pulling-down method*. Optical Materials **30**, 18 (2007).
- [Sla62] G. A. Slack. *Thermal Conductivity of  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Crystals from 3 to 300 K*. Physical Review **126** (2), 427 (1962).
- [Sla71] G. A. Slack und D. W. Oliver. *Thermal Conductivity of Garnets and Phonon Scattering by Rare-Earth Ions*. Physical Review B **4**, 592 (1971).
- [Spe91] D. E. Spence, P. N. Kean und W. Sibbet. *60-fs pulse generation from self-mode-locked Ti:sapphire laser*. Optics Letters **16**, 42 (1991).
- [Sto78] J. Stone und C. A. Burrus. *Nd:Y $_2$ O $_3$  single crystal fiber laser: Room temperature cw operation at 1.07- and 1.35  $\mu\text{m}$  wavelength*. Journal of Applied Physics **49** (4), 2281 (1978).
- [Sub02] K. A. Subbotin, E. V. Zharikov und V. A. Smirnov. *Yb- and Er-doped single crystals of double tungstates  $\text{NaGd}(\text{WO}_4)_2$ ,  $\text{NaLa}(\text{WO}_4)_2$ , and  $\text{NaBi}(\text{WO}_4)_2$  as active media for lasers operating in the 1.0 and 1.5  $\mu\text{m}$  ranges*. Optics and Spectroscopy **92** (4), 601 (2002).
- [Sum94] D. S. Sumida und T. Y. Fan. *Effect of radiation trapping on fluorescence lifetime and emission cross section measurements in solid-state laser media*. Optics Letters **19** (17), 1343 (1994).
- [Sve89] O. Svelto. *Principles of Lasers, Third Edition* (Plenum Press, New York and London, 1989).
- [Sys08] Crystal Systems. *Auszug aus der Webseite [www.crystalsystems.com](http://www.crystalsystems.com) vom 04.09.2008* (2008).
- [Tak03] K. Takaichi, H. Yagi, J. Lu, A. Shirakawa, K. Ueda, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii.  *$\text{Yb}^{3+}$ -Doped  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  Ceramics - a New Solid-State Laser Material*. Physica Status Solidi (a) **200** (1), R5 (2003).
- [Tak05] K. Takaichi, H. Yagi, A. Shirakawa, K. Ueda, S. Hosokawa, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii.  *$\text{Lu}_2\text{O}_3:\text{Yb}^{3+}$  ceramics a novel gain material for high-power solid-state lasers*. Physica Status Solidi (A) **202**, R1 (2005).

- [Tok06] M. Tokurakawa, K. Takaichi, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, S. Hosokawa, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii. *Diode-pumped mode-locked Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser*. Optics Express **14** (26), 12832 (2006).
- [Tok07] M. Tokurakawa, K. Takaichi, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, S. Hosokawa, T. Yanagitani und A. A. Kaminskii. *Diode-pumped 188 fs mode-locked Yb<sup>3+</sup>:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramic laser*. Applied Physics Letters **90**, 071101 (2007).
- [Tol09] E.v.d. Tolk. *Persönliche Mitteilung* (2009).
- [Tru04] *Zwischenbericht zu Nr. 8.1, Projekt: Scheibenlaser höchster Brillanz - Teilprojekt: Yb:Wolframat-Scheibenlaser höchster Leistung, 1.1.2004 – 31.12.2004* (2004). TRUMPF Laser GmbH + Co. KG.
- [Tru09] *www.trumpf-laser.com*. Auszug aus der Webseite der TRUMPF Laser GmbH + Co. KG, Zugriffsdatum 23.02.2009 (2009).
- [Tsu88] Y. Tsukuda. Jpn. Ceram. Soc. Bull. **23**, 456 (1988).
- [Vor03] Y. K. Voron'ko, E. V. Zharikov, D. A. Lis, A. A. Sobol, K. A. Subbotin, S. N. Ushakov, V. E. Shukshin und S. Dröge. *Growth and Luminescent Properties of Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> Crystals*. Inorganic Materials **39** (12), 1308 (2003).
- [Vos02] A. Voss. *Der Scheibenlaser: Theoretische Grundlagen des Dauerstrichbetriebs und erste experimentelle Ergebnisse anhand von Yb:YAG*. Dissertation, Universität Stuttgart, Institut für Strahlwerkzeuge (2002).
- [Wyn99] R. Wynne, J. L. Daneu und T. Y. Fan. *Thermal coefficients of the expansion and refractive index in YAG*. Applied Optics **38** (15), 3282 (1999).
- [Yag04] H. Yagi und T. Yanagitani. *US Patent 6825144* (2004).
- [Yag07] H. Yagi. *Development of Polycrystalline Laser Ceramics*. Dissertation, Institute for Laser Science, University of Electro-Communications (2007).
- [Yan98a] T. Yanagitani, H. Yagi und M. Ichikawa. *Japanese Patent 10-101333* (1998).
- [Yan98b] T. Yanagitani, H. Yagi und Y. Yamasaki. *Japanese Patent 10-101411* (1998).
- [Yod50] H. S. Yoder und M. L. Keith. *Complete Substitution of Aluminum for Silicon: The System (MnO)<sub>3</sub>Al<sub>12</sub>O<sub>3</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)<sub>3</sub>(Al<sub>12</sub>O<sub>3</sub>)<sub>5</sub>*. Geological Society of America, Bulletin **61**, 1516 (1950).
- [Yoo94] D. H. Yoon, I. Yonenaga, T. Fukuda und N. Ohnishi. *Crystal growth of dislocation-free LiNbO<sub>3</sub> single crystals by micro pulling down method*. Journal of Crystal Growth **142**, 339 (1994).
- [Yos07] A. Yoshikawa, M. Nikl, G. Boulon und T. Fukuda. *Challenge and study for developing novel single crystalline optical materials using micro-pulling-down method*. Optical Materials **30**, 6 (2007).

## Literaturverzeichnis

- [Zal06] C. Zaldo. *Die verwendeten Proben wurden vom Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid zur Verfügung gestellt.* (2006).
- [Zel98] D. E. Zelmon, D. L. Small und R Page. *Refractive-index measurements of undoped yttrium aluminum garnet from 0.4 to 5  $\mu\text{m}$ .* Applied Optics **37**, 4933 (1998).
- [Zha03] E. V. Zharikov, G. M. Kuz'micheva, D. A. Lis, Y. M. Papin, V. B. Rybakov, B. A. Smirnov und K. A. Subbotin. *X-ray Diffraction Study of the Structure and Defect System of Yb-Activated ( $\text{Na}_{0.5}\text{Gd}_{0.5}\text{WO}_4$ ) Crystals.* Inorganic Materials **39** (2), 151 (2003).
- [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<sub>4</sub>.* Optical Materials **26**, 319 (2004).
- [Zhu68] V. P. Zhuse, O. N. Novruzov, A. A. Popova und A. I. Shelyk. Inorganic Materials [USSR], zitiert in [Gme74] **4**, 1304 (1968).
- [Zir08] Fa. Zirox. *Angabe des Herstellers, Persönliche Mitteilung an R. Peters* (2008).
- [Zir09] [www.zircarzirconia.com](http://www.zircarzirconia.com). Auszug aus der Webseite der Zircar Zirconia Inc. vom 13.02.2009 (2009).

# Veröffentlichungen

## Veröffentlichungen in wissenschaftlichen Zeitschriften

1. C. Cascales, M. D. Serrano, F. Esteban-Betegón, C. Zaldo, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, L. Ackermann, D. Rytz, C. Dupré, M. Rico, J. Liu, U. Griebner und V. Petrov. *Structural, spectroscopic, and tunable laser properties of Yb<sup>3+</sup>-doped NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Phys. Rev. B, Vol. **74**, No. 17, 174114 (2006)
2. G. Stryganyuk, S. Zazubovich, A. Voloshinovskii, N. Pidzyrailo, G. Zimmerer, R. Peters und K. Petermann. *Charge transfer Luminescence of Yb<sup>3+</sup> ions in LiY<sub>1-x</sub>Yb<sub>x</sub>P<sub>4</sub>O<sub>12</sub> phosphates*. J. Phys.: Condens. Matter **19**, 036202 (2007)
3. C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Continuous-wave high power laser operation and tunability of Yb:LaSc<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> in thin disk configuration*. Appl. Phys. B **87**, 217-220 (2007)
4. 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*. Opt. Express **15** (11), 7075-7082 (2007)
5. 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)
6. 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*. Opt. Express **15** (23), 15539-15544 (2007)
7. 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)
8. 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<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin disk laser*. Opt. Express **15** (25), 16966-16971 (2007)
9. 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>*. J. Cryst. Growth **310** (7-9) 1934-1938 (2008)
10. R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Power scaling potential of Yb:NGW in thin disk laser configuration*. Appl. Phys. B **91** (1), 25-28 (2008)

## Veröffentlichungen

11. 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)
12. C. R. E. Baer, C. Kränkel, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, and Ursula Keller. *227-fs Pulses from a Mode-Locked Yb:LuScO<sub>3</sub> Thin Disk Laser*. Opt. Express **17**, 10725-10730 (2009)
13. C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann, Pascal Loiseau, Gerard Aka und G. Huber. *Efficient continuous-wave thin disk laser operation of Yb:Ca<sub>4</sub>YO(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> in E||Z and E||X orientations with 26 W output power*. J. Opt. Soc. Am. B **26**, 1310-1314 (2009)
14. T. Südmeyer, C. Kränkel, C. R. E. Baer, O. H. Heckl, C. J. Saraceno, M. Golling, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, and Ursula Keller. *High-power ultrafast thin disk laser oscillators and their potential for sub-100-femtosecond pulse generation*. Appl. Phys. B., im Druck (2009)
15. C. R. E. Baer, C. Kränkel, C. J. Saraceno, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, and Ursula Keller. *63 W Average Power from a Femtosecond Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Disk Laser*. Opt. Lett., im Druck (2009)

## Buchkapitel

1. R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Growth Technology and Laser Properties of Yb-doped Sesquioxides*. Crystal Growth Technology, im Druck (2009)

## Weitere schriftliche Veröffentlichungen

1. R. Peters. *Charakterisierung des neuen Scheibenlasermaterials Yb<sup>3+</sup>:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Universität Hamburg, Diplomarbeit (2005)

## Beiträge zu internationalen Konferenzen

### Vorträge - Invited

1. 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, Beitrag THoA.1 (2008)
2. R. Peters, C. Kränkel, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Petermann und G. Huber. *High Power Yb-doped Thin-disc Lasers*. IEEE PhotonicsGlobal@Singapore 2008, Singapore, Beitrag D1-1-01 (2008)
3. M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, A.A. Kaminskii, R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, K. Petermann und G. Huber. *Femtosecond Diode-Pumped Yb-Doped Crystal and Ceramic Lasers with High Average Power*. 18th International Laser Physics Workshop LPHYS '09, Barcelona, Spanien (2009)



4. T. Südmeyer, C. Kränkel, C. R. E. Baer, O. H. Heckl, C. J. Saraceno, M. Golling, R. Peters, K. Petermann, G. Huber und U. Keller. *Shorter pulses from femtosecond thin disk lasers*. 18th International Laser Physics Workshop LPHYS '09, Barcelona, Spanien (2009)
5. R. Peters und K. Petermann. *Laser materials based on sesquioxides: Growth, spectroscopy and laser properties*. 5th International Symposium on Laser and Nonlinear Optical Materials (ISLNOM-5), Pisa, Italien, (2009)

### Vorträge - Regulär

1. R. Peters, M. Mond, J. Johannsen, K. Petermann und G. Huber. *Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> : spectroscopic characterisation and laser demonstration*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe-EQEC), München, Beitrag CA9-4-TUE (2005)
2. R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Spectroscopic Characterisation of the Promising Thin-Disk Laser Material Yb<sup>3+</sup>:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. 10th Europhysical Conference on Defects in Insulating Materials, 10.-14. Juli, Mailand, Italien, Beitrag OWeA2 (2006)
3. 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 (2006)
4. 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>*. 15th International Laser Physics Workshop LPHYS '06, Lausanne, Schweiz, Beitrag 4.4.5 (2006)
5. 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 (2006)
6. 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 (2006)
7. S. T. Friedrich-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 (2006)
8. 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 MA3 (2007)
9. 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 MA4 (2007)

## Veröffentlichungen

10. 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 (2007)
11. 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 (2007)
12. 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 (2007)
13. 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 (2008)
14. 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 (2008)
15. 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 (2008)
16. 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 (2008)
17. 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 (2008)
18. K. Petermann, R. Peters und G. Huber. *Growth technology and laser properties of Yb-doped sesquioxides*. 4th International Workshop on Crystal Growth Technology, May 18-25, 2008 Beatenberg, Switzerland, (2008)
19. 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 (2008)
20. M. Fechner, R. Peters, A. Kahn, K. Petermann, E. Heumann und G. Huber. *Efficient in-band-pumped Er:Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-laser at 1.58 μm*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag CTuAA3 (2008)

21. 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 (2008)
22. R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Petermann und G. Huber. *Thin-disc lasers on the basis of highly Yb-doped garnets and sesquioxides*. 17th International Laser Physics Workshop (LPHYS'08), Trondheim, Norwegen, Beitrag 4.2.3 (2008)
23. M. Tokurakawa, A. Shirakawa, K. Ueda, R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, K. Petermann, G. Huber, H. Yagi, T. Yanagitani und A.A. Kaminskii. *Diode-pumped ultra-short-pulsed Yb<sup>3+</sup>-ion doped crystal- and ceramic-lasers with high average power*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag MC3 (2009)
24. R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *A New Mixed Sesquioxide Yb:LuScO<sub>3</sub>: Spectroscopic Properties and Highly Efficient Thin-Disk Laser Operation*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag MC4 (2009)
25. C. Kränkel, C. R. E. Baer, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, U. Keller, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Shortest Pulse Duration of Mode-Locked Thin Disk lasers: Ultrafast Yb:LuScO<sub>3</sub> Laser Generates 227-fs Pulses*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2009), Baltimore, USA, Beitrag CMBB3 (2009)
26. A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, J.H. Yim, W.B. Cho, S. Lee und F. Rotermund. *Single-Walled Carbon Nanotube Saturable Absorber Mode-Locked Yb:LuScO<sub>3</sub> Laser*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2009), Baltimore, USA, Beitrag CFO4 (2009)
27. R. Peters, K. Beil, C. Kränkel, K. Schenk, K. Petermann und G. Huber. *Ytterbium-doped Sesquioxides for High-Power Solid-State Lasers: Recent Progress in Crystal Growth and Laser Operation*. European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference 2009, München, Germany, Beitrag CA9.1 (2009)
28. P. Koopmann, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Highly efficient Tm:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Laser at 2 μm*. European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference 2009, München, Germany, Beitrag CA10.3 (2009)
29. C. R. E. Baer, C. Kränkel, C. J. Saraceno, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, R. Peters, K. Petermann, G. Huber und U. Keller. *63-W Average Power from Femtosecond Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Disk Laser*. European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference 2009, München, Germany, Beitrag CA2.3 (2009)
30. C. Kränkel, C. R. E. Baer, O. H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, R. Peters, K. Petermann, G. Huber und U. Keller. *227-fs pulses from a mode-locked Yb:LuScO<sub>3</sub> thin disk laser*. European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference 2009, München, Germany, Beitrag CA2.1 (2009)

## Veröffentlichungen

31. F. Moglia, E. Heumann, R. Peters und G. Huber. *Advances in semiconductor-laser-pumped high-power upconversion lasers*. 5th International Symposium on Laser and Nonlinear Optical Materials (ISLNOM-5), Pisa, Italien, (2009)
32. A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, W. B. Cho, F. Rotermund, C. Fiebig, K. Paschke, G. Erbert. *74fs Kerr-lens mode-locked Yb:LuScO<sub>3</sub> single crystal laser*. EOS Topical Meetings at Capri 2009, 1st EOS Topical Meeting on Lasers, Capri, Italien, Beitrag 2178, (2009)
33. K. Petermann, R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, U. Wolters, C. Hirt und G. Huber. *HEM-Growth and Laser Properties of Highly Yb-doped Sesquioxides*. 17th American Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ACCGE-17), Lake Geneva, USA (2009)

## Poster

1. 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:TVO<sub>4</sub> (T=Y, Gd, 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 (2006)
2. 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 (2008)
3. 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- $\mu$ m Directly into the Emitting Level*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag JTua1 (2008)
4. C. Kränkel, H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Determination of Fluorescence Lifetimes of Yb<sup>3+</sup> in different Borate and Vanadate Hosts using the Pinhole Method*. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2008), San Jose, USA, Beitrag JTua4 (2008)
5. 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, Beitrag WE-P-084 (2008)
6. 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, Beitrag MO-P-036 (2008)

7. C. R. E. Baer, C. Kränkel, O. H. Heckl, A. G. Engqvist, M. Golling, T. Südmeyer, U. Keller, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *275-fs pulses from the first mode-locked Yb:LuScO<sub>3</sub> thin disk laser*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag TuB17 (2009)
8. S. T. Fredrich-Thornton, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Degradation of Laser Performance in Yb-Doped Oxide Thin-Disk Lasers at High Inversion Densities*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag TuB18 (2009)
9. A. Schmidt, X. Mateos, V. Petrov, U. Griebner, R. Peters, K. Petermann, G. Huber, A. Klehr und G. Erbert. *Passively mode-locked Yb:LuScO<sub>3</sub> oscillator*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag MB12 (2009)
10. K. Beil, S. T. Fredrich-Thornton, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Yb-Doped Thin-Disk Laser Materials: A Comparison between Yb:LuAG and Yb:YAG*. Advanced Solid-State Photonics Conference 2009, Denver, USA, Beitrag WB28 (2009)
11. K. Schenk, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Investigation of the Scattering Properties of Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and its Effect on Laser Parameters*. European Conference on Lasers and Electro-Optics and the XIth European Quantum Electronics Conference 2009, München, Germany, Beitrag CA.P.20 (2009)

## Beiträge zu nationalen Konferenzen

### Vorträge

1. R. Peters, C. Kränkel, S. T. Fredrich, K. Petermann und G. Huber. *Migration als Schlüsselparameter für Ytterbium-dotierte Scheibenlasermaterialien*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Frankfurt, Vortrag Q11.4 (2006)
2. R. Peters, K. Petermann, G. Huber und D. Rytz. *Charakterisierung des neuen Scheibenlasermaterials Yb<sup>3+</sup>:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Frankfurt, Vortrag Q11.8 (2006)
3. C. Paulmann, R. Peters, K. Petermann und U. Bismayer. *Studies of disorder-induced diffuse scattering in NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>:Yb<sup>3+</sup> crystals*. 14. Jahrestagung der Deutschen Gesellschaft für Kristallographie, 3.-6. April, Freiburg (2006)
4. C. Paulmann, T. Malcherek, R. Peters, K. Petermann und U. Bismayer. *Disorder-induced diffuse scattering in mixed-cation scheelite-type compounds*. Deutsche Tagung für Forschung mit Synchrotronstrahlung, Neutronen und Ionenstrahlen an Großgeräten 2006, 04.-06. Oktober, Beitrag D-P395, Hamburg (2006)
5. R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Hocheffizienter Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Scheibenlaser*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Darmstadt, Beitrag Q11.4 (2008)

## Veröffentlichungen

6. 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*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Darmstadt, Beitrag Q11.5 (2008)
7. P. Koopmann, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Hocheffizienter Laserbetrieb von Tm:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bei einer Wellenlänge von 2 μm*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg, Beitrag Q8.4 (2009)
8. K. Beil, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Yb:LuAG als Scheibenlasermaterial im hohen Leistungsbereich*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg, Beitrag Q4.2 (2009)
9. K. Schenk, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Kristallzüchtung und Charakterisierung von Yb:Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> als aktives Medium im Scheibenlaser*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg, Beitrag Q4.1 (2009)
10. C. Kränkel, C. R. E. Baer, O.H. Heckl, M. Golling, T. Südmeyer, U. Keller, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *227-fs-Pulse aus einem SESAM-modengekoppelten Yb:LuScO<sub>3</sub>-Scheibenlaser*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg, Beitrag Q15.6 (2009)
11. A. Schmidt, G. Steinmeyer, V. Petrov, U. Griebner, J. H. Yim, W. B. Cho, S. Lee, F. Rotermund, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Single crystal Yb:LuScO<sub>3</sub> laser mode-locked by a single-walled carbon nanotube saturable absorber*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg, Beitrag Q15.7 (2009)

## Poster

1. C. Kränkel, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, R. Peters und G. Huber. *Starkaufspaltung und Wirkungsquerschnitte des neuen Lasermaterials Yb<sup>3+</sup>:YVO<sub>4</sub>*. Norddeutscher Lasertag 2004, Hamburg (2004)
2. C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Leistungskalierung und Durchstimmexperimente mit Yb-dotierten Vanadaten und Boraten im Scheibenlaseraufbau*. Norddeutscher Lasertag 2006, Hannover (2006)
3. R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Untersuchung von Ytterbium-dotierten Natrium-Gadolinium-Wolframat-Scheibenlasern*. Norddeutscher Lasertag 2006, Hannover (2006)
4. R. Peters, C. Kränkel, C. Hirt, N.-O. Hansen, K. Petermann und G. Huber. *Kristallzucht, Spektroskopie und Lasereigenschaften von hochreinem Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2007, Düsseldorf, Beitrag Q28.5 (2007)
5. C. Kränkel, R. Peters, N.-O. Hansen, C. Hirt, K. Petermann und G. Huber. *Ytterbium-dotierte Vanadate als aktive Materialien im Scheibenlaseraufbau*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2007, Düsseldorf, Beitrag Q28.6 (2007)

6. C. Paulmann, R. Peters, K. Petermann und U. Bismayer. *Studies of disorder-induced diffuse scattering in scheelite-type compounds*. 15. Jahrestagung DGK/DGKK 2007, 05.-09. März, Bremen, Beitrag 049-02 (2007)
7. K. Schenk, R. Peters, C. Kränkel, K. Petermann und G. Huber. *Yb-dotierte Sesquioxide als hocheffiziente Wirtsmaterialien für den Scheibenlaser*. Norddeutscher Lasertag 2008, Hannover (2008)
8. K. Beil, S. T. Fredrich-Thornton, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Yb:LuAG - a potential material for high power thin-disk lasers*. Norddeutscher Lasertag 2008, Hannover (2008)
9. P. Koopmann, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Hocheffiziente Tm:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Laser bei 2 μm Wellenlänge*. Norddeutscher Lasertag 2008, Hannover (2008)
10. H. Kühn, S. T. Fredrich-Thornton, C. Kränkel, R. Peters, K. Petermann und G. Huber. *Measurement of reabsorption-free fluorescence lifetimes*. Norddeutscher Lasertag 2008, Hannover (2008)

### **Vorträge im Rahmen von Seminaren, Arbeitskreistagungen etc.**

1. K. Petermann, J. Johannsen, C. Kränkel, M. Mond und R. Peters. *Novel thin-disc laser materials with special crystal structures*. Vortrag im Rahmen des Graduiertenkollegs der Universität Pisa, Italien, 28.04.2005
2. R. Peters, C. Kränkel und K. Petermann. *Yb:NGW und Yb:LSB: Zwei neue Lasermaterialien für Hochleistungs-Scheibenlaser*. Arbeitskreistagung Kristalle für Laser und NLO der Deutschen Gesellschaft für Kristallwachstum und Kristallzüchtung (DGKK), Idar-Oberstein (2005)
3. R. Peters. *Charakterisierung des neuen Scheibenlasermaterials Yb<sup>3+</sup>:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Seminar über Festkörperlaser, Universität Hamburg (2005)
4. R. Peters und K. Petermann. *Spektroskopische und strukturelle Untersuchungen, Energiemigration und Laserbetrieb des neuen Scheibenlasermaterials Yb:NaGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>*. Arbeitskreistagung Kristalle für Laser und NLO der Deutschen Gesellschaft für Kristallwachstum und Kristallzüchtung (DGKK), Hamburg (2006)
5. R. Peters, C. Kränkel, C. Hirt, S. T. Fredrich-Thornton, K. Petermann und G. Huber. *Yb<sup>3+</sup>:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Hochleistungslaser, Züchtung und Lasereigenschaften*. Arbeitskreistagung Kristalle für Laser und NLO der Deutschen Gesellschaft für Kristallwachstum und Kristallzüchtung (DGKK), Berlin (2007)
6. C. Kränkel, R. Peters, S. T. Fredrich-Thornton, C. Hirt, K. Petermann und G. Huber. *New Yb-doped oxide materials for thin-disk laser applications*. Gruppenseminar der Gruppe Kurzzeit-Laser Physik, ETH Zürich, Schweiz (2007)

7. R. Peters. *Ytterbium-doped Sesquioxides for High-Power Solid-State Lasers: Recent Progress in Crystal Growth and Laser Operation*. Gruppenseminar am Laboratory for Attosecond and High-Field Physics, Ludwig-Maximilians-Universität München / Max-Planck-Institut für Quantenoptik (2009)



# Danksagung

Diese Arbeit entstand in den Jahren 2006 bis 2009 im Arbeitsbereich Festkörperlaser des Instituts für Laser-Physik der Universität Hamburg.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. Günter Huber, sowohl für die Möglichkeit als Doktorand auf dem spannenden Gebiet der Scheibenlaser arbeiten zu dürfen, als auch für seine Unterstützung während der gesamten Zeit.

Herrn Prof. Dr. Klaus Sengstock sowie Prof. Dr. Markus Pollnau danke ich für die Übernahme des Zweit- bzw. Drittgutachtens.

Herrn Dr. Klaus Petermann danke ich für unzählige Ratschläge und die vielen Diskussionen zum Thema Kristallzüchtung und Materialien sowie für seine Unterstützung in jeglicher Hinsicht.

Allen Gruppenmitgliedern, aktuellen und inzwischen ehemaligen, danke ich für die ausgezeichnete Arbeitsatmosphäre, die vielen physikalischen und nicht-physikalischen Gespräche und zahlreichen Tipps und Anregungen.

Mein besonderer Dank gilt hier meinem langjährigen Tischnachbarn Christian (ck) Kränkel, welcher mir nicht nur immer wieder spannende Augenblicke an Sicherheitskontrollen bescherte (Don't touch my b...), sondern mit dem ich auch eine äußerst produktive und großartige Zeit am ILP erleben durfte. Ich danke ihm auch für die - wie immer - sehr sorgfältige Korrektur meiner Arbeit.

Matthias (Red IGEL) Fechner, meinem jetzigen Zimmergenossen, danke ich für die vielen Gespräche rund ums Thema Fußball, die Einführung in die Kunst des Cappuccinokochens, das wirklich tolle Büroklima sowie für das Korrekturlesen meiner Arbeit.

Ganz besonders möchte ich mich bei Jörg Siebenmorgen bedanken, mit dem mich seit dem ersten Tag des Studiums eine enge Freundschaft verbindet. In Diskussionen mit ihm, häufig zu später Stunde in der Bahn, kamen so manche bahnbrechende Ideen ans Tageslicht, von denen es einige fast bis zur Patentreife gebracht hätten.

Auch bei Susanne T. Fredrich-Thornton, unserem sozialen Mittelpunkt der Gruppe-F, möchte ich mich für die unzähligen fachnahen und fachfremden Gespräche bedanken.

Mein Dank gilt:

- André Richter für viele wertvolle Diskussionen und das Korrekturlesen meiner Arbeit
- Henning Kühn, für seine Unterstützung in allerlei theoretischen Belangen
- Yury Kuzminykh und Teoman Gün für die Einführung in die HEM-Kristallzucht
- Friedjof Tellkamp für die Erstellung unzähliger Werkstattzeichnungen, die Programmierung unserer Datenerfassungsprogramme sowie für seine versierte Unterstützung in allen

## *Danksagung*

(elektro-)technischen Fragen

- René Hartke für die Einführung in die Frequenzverdopplung, die tolle Zeit in Pisa und Vancouver sowie für das Korrekturlesen des Kristallzuchtkapitels

Ein Großteil der vorliegenden Arbeit wäre ohne Kooperationen nicht möglich gewesen. So möchte ich mich bei Dr. Detlef Klimm vom Institut für Kristallzüchtung (IKZ) Berlin für die vielen hilfreichen Diskussionen zum Thema Züchtungsatmosphären sowie für die Bereitstellung der Phasendiagramme und Messungen zur spezifischen Wärme bedanken. Dr. H.-J. Bernhardt vom Institut für Geologie, Mineralogie und Geophysik der Ruhr-Universität Bochum danke ich für unzählige Mikrosondenanalysen. Dr. Carsten Paulmann danke ich für die Durchführung der Strukturanalysen und zahlreiche diesbezügliche Gespräche.

Für die großartige Zusammenarbeit auf dem Gebiet der modengekoppelten Scheibenlaser möchte ich mich bei Cyrill R. E. Bär, Dr. Sergio V. Marchese, Oliver H. Heckl, Clara J. Saraceno und Dr. Thomas Südmeyer bedanken sowie bei Prof. Ursula Keller, in deren Gruppe die Experimente an der ETH Zürich durchgeführt wurden.

Ein herzlicher Dank geht auch an Frau Silke Frömmig für ihre Hilfe in organisatorischen Dingen sowie an Robert Fischer und Stefan Garbers für ihren Einsatz bei technischen Problemen aller Art.

Meinen Eltern Karin und Uwe Peters sowie meiner (kleinen) Schwester Julia möchte ich für ihre Unterstützung während meines gesamten Studiums danken.

Mein größter Dank gilt aber meiner Frau Sandra und meinen Söhnen Jannes und Tetje. Ohne sie wäre ich nicht so weit gekommen.