Erzeugung von Nanostrukturen

\mathbf{mit}

laserpräparierten thermischen Atomstrahlen

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

 der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

 der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Mario Mützel

aus

 Bonn

Bonn 2004

Angefertigt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

1. Referent: Prof. Dr. Dieter Meschede

2. Referent: Prof. Dr. Karsten Buse

Tag der Promotion: 8. Juli 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	1
2	Hol	ografisch erzeugte Lichtmasken	3
	2.1	Dipolkraft-Lichtmasken	5
		2.1.1 Die optische Dipolkraft	5
		2.1.2 Atomoptische Eigenschaften einer Dipolkraft-Lichtmaske	6
	2.2	Die holografisch generierte Lichtmaske	$\overline{7}$
		2.2.1 Holografie	8
		2.2.2 Holografische Speicherung im Lithiumniobat-Kristall	10
	2.3	Der experimentelle Aufbau	17
		2.3.1 Die Vakuumapparatur	18
		2.3.2 Die Lithografie-Einheit	21
		2.3.3 Die Laser	22
		2.3.4 Die Präparation der Lichtmaske	23
	2.4	Erzeugung von Nanostrukturen	24
		2.4.1 Durchführung	25
		2.4.2 Ergebnisse	26
	2.5	Diskussion	29
3	Ger	oulste Lichtmasken	31
	3.1	Beschreibung gepulster Lichtmasken	32
		3.1.1 Optische Dipolkraft in gepulsten Lichtfeldern	32
		3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske	37
	3.2	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske	37 39
	3.2	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	37 39 39
	3.2	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	37 39 39 41
	3.2	3.1.2Eigenschaften der gepulsten LichtmaskeDer experimentelle Aufbau3.2.1Die Laser3.2.2Der Pulslaser3.2.3Die Präparation der Lichtmaske	37 39 39 41 43
	3.2 3.3	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44
	3.2 3.3	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44 45
	3.2 3.3	3.1.2Eigenschaften der gepulsten LichtmaskeDer experimentelle Aufbau3.2.1Die Laser3.2.2Der Pulslaser3.2.3Die Präparation der LichtmaskeSteperimentelle Untersuchungen3.3.1Analyse der atomaren Winkelverteilung3.3.2Erzeugung von Nanostrukturen mit gepulsten Lichtmaske	 37 39 39 41 43 44 45 47
	3.23.33.4	3.1.2Eigenschaften der gepulsten LichtmaskeDer experimentelle Aufbau3.2.1Die Laser3.2.2Der Pulslaser3.2.3Die Präparation der LichtmaskeSteperimentelle Untersuchungen3.3.1Analyse der atomaren Winkelverteilung3.3.2Erzeugung von Nanostrukturen mit gepulsten LichtmaskeDiskussion	37 39 41 43 44 45 47 50
4	3.2 3.3 3.4 Kor	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44 45 47 50 51
4	 3.2 3.3 3.4 Kor 4.1 	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44 45 47 50 51 52
4	3.2 3.3 3.4 Kor 4.1	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44 45 47 50 51 52 52
4	 3.2 3.3 3.4 Kor 4.1 	3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske Der experimentelle Aufbau	 37 39 39 41 43 44 45 47 50 51 52 52 53

	4.2	Lichtmasken durch Multiplexen gepulster Lichtfelder	55
		4.2.1 Überlagerung gepulster Lichtfelder mit versetzter Pulsfolge	55
		4.2.2 Erzeugung komplexer Lichtmasken	56
	4.3	Gestaltung von Dipolkraft-Lichtmasken	58
		4.3.1 Lichtmasken-Potenzial und atomare Flussdichte	58
		4.3.2 Berechnung von Lichtmasken zu gegebener atomaren Flussdichte	60
	4.4	Diskussion	60
5	Ato	montik mit ehenem magnetischen Quadrupol	61
Ű	5.1	Der ehene magnetische Quadrupol	62
	0.1	5.1.1 Magnetische Quadrupole aus Permanentmagneten	62
		5.1.1 Magnetische Guaurupole aus Fermanentmägneten	63
	5.9	Atomostische Eigenschaften eines ebenen Quadrupols	67
	0.2	5.2.1 Weeheelwirkung gwigehen Atom und Megnetfeld	07 67
		5.2.1 Wechselwirkung zwischen Atom und Magnetield	07
		5.2.2 Atomtrajektorie durch dunnen Quadrupol	70
	5.3	Atomare (Fluss-)Dichte hinter einem Quadrupol	71
		5.3.1 Analytisches Modell der (Fluss-)Dichteverteilung	71
		5.3.2 Simulation der (Fluss-)Dichteverteilung	75
	5.4	Diskussion	78
6	Seri	elles Schreiben mit Atomen	79
	6.1	Einordnung in den technischen Kontext	80
		6.1.1 Begrenzung eines thermischen Atomstrahls mit Blenden	80
		6.1.2 Bündelung eines Atomstrahls mit magnetischen Multipolen	81
		6.1.3 Konzent des Atometifts	83
	6.2	Der experimentalle Aufbau	84
	0.2	6.2.1 Die Veluumennemetur	04 04
		6.2.2 Die Vakuumapparatur	04 07
		0.2.2 Die Entriograme-Entriet	01
	<u> </u>	0.2.3 Die Laser	89
	6.3	Experimentelle Untersuchungen	90
		6.3.1 Messung der Dichteerhöhung im Atomstrahl	90
		6.3.2 Schreiben von beliebigen Strukturen	95
	6.4	Diskussion	98
7	Zus	ammenfassung und Ausblick	103
٨	Boo	hnungen und Boweise	105
A		Eingeheltfunktion einer en dlichen ehenen Quedmungle	105
	A.I	The service has a second	100
	A.2	I nermischer Atomstrant ninter Quadrupol	107
В	Ato	mlithografie mit Cäsium	111
	B.1	Die Cäsium D ₂ -Linie	111
	B.2	Resist-Technik mit Nonanthiol-Monolage auf Gold	112
С	PC-	Programme	115
\sim	C_{1}	Das Programm Atomontik"	115
	C.2	Das Programm "Lichtmaske"	117
. .			110
$\mathbf{L}\mathbf{I}$	ierat	urverzeichnis	118

Kapitel 1 Einleitung

Die Erzeugung von Nanostrukturen mit Atomstrahlen ist eine vergleichsweise junge Technik, da die notwendige präzise Präparation der Atomstrahlen lange Zeit an den unzureichenden atomoptischen Komponenten scheiterte. Die Anfänge der Atomoptik liegen zwar schon in den 20er und 30er Jahren des vergangenen Jahrhunderts, als mit den berühmten Experimenten von Stern [110] und Gerlach [42] die Richtungsquantelung des atomaren Drehimpulses atomoptisch nachgewiesen wurde, und Frisch der experimentelle Nachweis der Ablenkung von Atomstrahlen durch Lichtdruck [39] gelang. Doch erst mit der Entwicklung der Laserkühlung in den 70er und 80er Jahren konnte die Brillanz von Atomstrahlen entscheidend erhöht werden [6, 53, 66, 83, 120, 121]. Nun eröffneten sich vielfältige Möglichkeiten zur präzisen Kontrolle derart brillanter Atomstrahlen mit relativ schwachen Lichtkräften und magnetischen Kräften. Atomoptische Komponenten wie Linsen [56], Spiegel [11, 70] und immaterielle Masken [114] wurden hervorgebracht.

Erst durch diesen technischen Fortschritt konnten verschiedene parallele und serielle Techniken zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheidung von Atomstrahlen entwickelt werden [81]. Ein sehr erfolgreiches Verfahren zur parallelen Erzeugung von Nanostrukturen besteht in der durch Dipolkraft-Lichtmasken kontrollierten Abscheidung von Atomstrahlen. Hier werden Atome in einem nahresonanten Lichtfeld abhängig von der Lichtintensität transversal beschleunigt, wodurch lokale Flussdichteänderungen im Atomstrahl hervorgerufen werden. Die Struktur der Lichtmaske wird durch Abscheidung der Atome auf ein direkt hinter der Lichtmaske positioniertes Substrat übertragen. Atomlithografie mit Lichtmasken wurde erstmals 1992 von Timp et al. demonstriert [114]. Die Methode ist geeignet, zweidimensionale Strukturierung mit Schichtwachstum zu verbinden [108], und eröffnet somit Perspektiven für eine dreidimensionale Strukturierung von Kristallen.

Eingeschränkt wurde die Anwendung dieser Methode zur Nanostrukturierung bislang vor allem durch die vergleichsweise schwierige Präparation geeigneter Lichtmasken. Neue Ansätze zur Erzeugung von Lichtmasken werden in den folgenden Kapiteln 2-4 dieser Arbeit beschrieben: Kapitel 2 stellt die Erzeugung von Lichtmasken durch Rekonstruktion von multiplex gespeicherten Hologrammen vor. Diese Methode erlaubt die Erzeugung sehr komplexer Lichtmasken ohne technisch aufwändige Spiegelanordnungen. In Kapitel 3 wird der Einsatz gepulster Lichtmasken theoretisch untersucht und experimentell demonstriert. Das theoretische Kapitel 4 behandelt Möglichkeiten zur Erzeugung beliebig gestalteter Lichtmasken. Neben parallelen Methoden zur Erzeugung von Nanostrukturen gibt es Anstrengungen, Nanostrukturen durch Abscheidung von Atomen in einem seriellen Prozess zu erzeugen. So begrenzen Lüthi et al. [71] einen thermischen Atomstrahl durch Blenden auf einen Durchmesser von 50-250 nm und scheiden diesen auf einem Substrat ab. Durch Verschieben des Substrats während des Schreibprozesses relativ zur Blende können beliebige Strukturen erzeugt werden. Der Nachteil dieser Methode liegt vor allem in der langen Schreibzeit für eine Struktur, resultierend aus der geringen Flussdichte in thermischen Atomstrahlen. Hierzu wird in dieser Arbeit der Ansatz vorgestellt, die Flussdichte thermischer Atomstrahlen durch einen starken, aus Permanentmagneten aufgebauten, ebenen Quadrupol zu erhöhen (Kap. 5). Mit dieser Methode kann die Schreibzeit des in Kapitel 6 vorgestellten Experiments zur Erzeugung von Nanostrukturen in einem seriellen Prozess deutlich reduziert werden.

In allen vorgestellten Experimenten wird ein thermischer Cs-Atomstrahl eingesetzt, der technisch vergleichsweise einfach mit Laserstrahlen präpariert werden kann. Zur Erzeugung von permanenten Nanostrukturen mit diesem hochreaktiven Alkalimetall wird eine auf selbstanordnenden Monolagen basierende Resist-Technik angewandt. Prinzipiell können mit den entwickelten Techniken Nanostrukturen auch direkt durch Abscheidung geeigneter atomarer Spezies erzeugt werden.

Kapitel 2 Holografisch erzeugte Lichtmasken

Zur Erzeugung von Nanostrukturen durch parallele Abscheidung von Atomen bedarf es geeigneter Masken, welche einen Atomstrahl entsprechend dem gewünschten Muster strukturieren. Eine einfach und präzise herzustellende, immaterielle Maske mit einer Nanometer-Auflösung ist ein Lichtfeld, dessen Struktur durch die Interferenz von Laserstrahlen gebildet wird (Abb. 2.1). Abhängig von der Intensität in dieser so genannten *Lichtmaske* werden atomare Freiheitsgrade verändert, wodurch dem Atomstrahl die Struktur der Maske aufgeprägt wird. Durch Abscheidung der Atome auf ein direkt hinter der Lichtmaske befindliches Substrat wird die Struktur des Atomstrahls (bzw. der Lichtmaske) übertragen.



Abbildung 2.1: Eine optische Stehwelle dient als immaterielle Lichtmaske für den Atomstrahl. Der Atomstrahl überträgt das Muster der Stehwelle auf ein dahinter befindliches Substrat.

Ablenkung von Atomen in Dipolkraft-Lichtmasken Ein wichtiges Verfahren zur Strukturierung von Atomstrahlen mit Lichtmasken ist die Ablenkung der Atome in nahresonanten Laserfeldern. In diesen wirkt die so genannte *optische Dipolkraft*, die proportional zum Gradienten der lokalen Laserintensität ist. Intensitätsgradienten senkrecht zum Atomstrahl erzeugen daher lokale Flussdichteschwankungen im Atomstrahl, die eine Abbildung der Intensitätsverteilung dieser Dipolkraft-Lichtmaske sind. Die Flussdichteverteilung im Atomstrahl erzeugt eine entsprechende Atom-Flächendichte auf der Oberfläche eines Substrats, die sich z. B. in einem Höhenprofil einer abgeschiedenen Struktur widerspiegelt.

Erste Resultate mit Dipolkraft-Lichtmasken wurden 1992 von G. Timp et al. an einem Natrium-Atomstrahl erzielt [114]. Hier wurde Natrium mit einer Resonanz-Wellenlänge von $\lambda = 589$ nm in Linien mit einer Periode von $\lambda/2 = 294$ nm auf einem Substrat abgeschieden. Während diese ersten Strukturen auf Grund der hohen Reaktivität des Alkalimetalls an der Atmosphäre nicht stabil waren, wurden bald darauf dauerhafte Strukturen durch

Deposition von Chrom [32, 74] bzw. Aluminium [76] erzeugt. Die Minimale, mit Lichtmasken erzeugte Strukturbreite von 20 nm wurde ebenfalls an einem Chrom-Atomstrahl erreicht [3]. Durch die Entwicklung einer auf <u>Selbstanordnenden Monolagen</u> (SAM) aus organischen Thiolen basierenden Resist-Technik [9, 10, 61, 94] konnten auch permanente Strukturen mit optisch einfach zu präparierenden Cäsium-Atomstrahlen erzeugt werden. Die minimalen Strukturbreiten betrugen hier 120 nm [68].

Die Strukturierung von Atomstrahlen mit Dipolkraft-Lichtmasken ist die älteste und zugleich erfolgreichste Methode zur Erzeugung von Nanostrukturen mit Lichtmasken. Auch in dieser Arbeit wird ein in einer nahresonanten Stehwelle fokussierter Cäsium-Atomstrahl zur Erzeugung von Nanostrukturen verwendet. Es gibt jedoch auch andere, interessante Verfahren zur Strukturierung von Atomstrahlen mit Lichtmasken. So können Polarisationsgradienten-Lichtmasken zur Erzeugung von Strukturen mit Periodizitäten bis hinab zu einer Periodizität von $\lambda/8$ erzeugt werden [15, 49]. Auch innere Freiheitsgrade eines Atoms können, abhängig von der lokalen Intensität in der Lichtmaske, manipuliert werden. So kann die innere Energie metastabiler Edelgasatome in (nah-)resonanten Stehwellen lokal verändert und mit einer Resist-Technik auf eine Oberfläche projiziert werden [34]. Ein anderer Ansatz nutzt dissipative Lichtmasken, um Atome lokal zu bündeln und zugleich transversal zu kühlen [111].

Erzeugung der Lichtmasken Die einfachste Konfiguration einer Lichtmaske besteht aus zwei entgegengesetzt propagierenden Laserstrahlen, deren Interferenz eine optische Stehwelle mit einer Periodizität von $\lambda/2$ erzeugt (Abb. 2.1). Die generierten Strukturen bestehen entsprechend aus einem parallelen Linienmuster. Durch Überlagerung mehrerer Laserstrahlen durch eine geeignete Anordnung von Spiegeln wurden 2-dimensionale Strukturen mit orthogonaler [48] bzw. hexagonaler [33] Symmetrie erzeugt. Eine wachsende Komplexität der Lichtmasken erfordert jedoch die Interferenz einer steigenden Zahl von Laserstrahlen, wodurch rasch die experimentelle Realisierbarkeit mit herkömmlichen Spiegeln an geometrische Grenzen stößt.

Hier setzt die in dieser Arbeit vorgestellte holografische Rekonstruktion von Laserstrahlen zur Erzeugung von Lichtmasken für die Atomlithografie an (Abb. 2.2). Die Information über Phase, Richtung und Intensität der die Lichtmaske generierenden Laserstrahlen werden als multiplex gespeicherte Hologramme in einen LiNbO₃-Kristall geschrieben. Zur Erzeugung der Lichtmaske werden diese Laserstrahlen holografisch rekonstruiert, indem die



Abbildung 2.2: Laserstrahlen werden durch Auslesen multiplex gespeicherter Hologramme mit gemeinsamem Referenzstrahl rekonstruiert. Das durch Interferenz der beteiligten Laserstrahlen entstehende Lichtfeld dient als Lichtmaske für den Atomstrahl.

multiplex gespeicherten Hologramme mit ihrem gemeinsamen Referenzlaser ausgelesen werden. Das Experiment wurde in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Prof. Karsten Buse (Universität Osnabrück) entwickelt, welche den LiNbO₃-Kristall mit den Hologrammen präparierte.

2.1 Dipolkraft-Lichtmasken

2.1.1 Die optische Dipolkraft

Auf ein Atom in einem nahresonanten¹ Laserfeld mit der Intensitätsverteilung $I(\vec{r})$ wirkt die so genannte optische Dipolkraft. Die optische Dipolkraft entsteht durch kohärente Umverteilung von Photonen zwischen Lichtfeldern infolge stimulierter Prozesse. Der Name "Dipolkraft" zeugt dabei von dem klassischen Modell, wonach das elektrische Wechselfeld des Lasers (Frequenz ω_L) ein Dipolmoment im Atom erzeugt, welches seinerseits mit dem elektromagnetischen Strahlungsfeld wechselwirkt. Der atomare harmonische Oszillator (Resonanzfrequenz ω_0) schwingt dabei für $\Delta_L = \omega_L - \omega_0 \ll 0$ ("rotverstimmtes" Lichtfeld) in Phase mit dem Laserfeld, für $\Delta_L \gg 0$ ("blauverstimmtes" Lichtfeld) in Gegenphase. Im blauverstimmten (rotverstimmten) Laserfeld hat der atomare Dipol deshalb erhöhte (erniedrigte) potenzielle Energie, weshalb blauverstimmte (rotverstimmte) Lichtfelder ein repulsives (attraktives) Potenzial für Atome darstellen.

Eine quantitative Berechnung liefert für die optische Dipolkraft F_D bzw. für das optische Dipolpotenzial U_D [29, 47]

$$F_D(\vec{r}) = -\nabla U_D(\vec{r}) \tag{2.1}$$

$$U_D(\vec{r}) = \frac{\hbar \Delta_L}{2} \ln \left(1 + \frac{\Omega_R^2(\vec{r})/2}{\Delta_L^2 + \Gamma^2/4} \right) .$$
 (2.2)

Hierbei ist Γ die Linienbreite des atomaren Übergangs (Γ^{-1} = Lebensdauer des angeregten Zustandes). Die Rabifrequenz

$$\Omega_R(\vec{r}) = \Gamma \sqrt{\frac{I(\vec{r})}{2I_{\text{sat}}}}$$
(2.3)

beschreibt die Kopplung des Lichtfeldes mit der Intensität I an das Atom mit der Sättigungsintensität I_{sat} . Das Potenzial U_D lässt sich für $\Delta_L \gg \Gamma$ nähern zu

$$U_D(\vec{r}) = \frac{\hbar\Gamma^2}{8\Delta_L} \frac{I(\vec{r})}{I_{\text{sat}}} .$$
(2.4)

Die Dipolkraft ist also für $\Delta_L \gg \Gamma$ proportional zum Gradienten der Intensität eines Laserfeldes, weshalb sie in Lichtfeldern mit hohen Gradienten, wie z. B. in Lichtmasken, besonders groß wird. Atome werden in blauverstimmten (rotverstimmten) Lichtfeldern in Richtung lokaler Minima (Maxima) der Laserintensität beschleunigt.

 $\Gamma \ll |\Delta_L| \ll \omega_0$

¹Nahresonant bedeutet, dass die Verstimmung Δ_L des Laserfeldes gegenüber der atomaren Resonanz groß ist gegen die Linienbreite Γ , und zugleich klein ist gegen die Resonanzfrequenz ω_0 :

2.1.2 Atomoptische Eigenschaften einer Dipolkraft-Lichtmaske

Lichtmasken sind ebene Lichtfelder mit der Intensitätsverteilung $I_{\perp}(x, y)$ senkrecht zum Atomstrahl und der Einhüllenden-Funktion h(z) in Atomstrahlrichtung. Es gilt

$$I(\vec{r}) = I_{\perp}(x, y) \cdot h(z) \tag{2.5}$$

Durchquert ein Atomstrahl eine Dipolkraft-Lichtmaske, so werden dessen Atome durch die optische Dipolkraft (2.1) beschleunigt, wodurch lokale Veränderungen in der atomaren Flussdichteverteilung induziert werden. Insbesondere ist das Lichtmasken-Potenzial (2.2) in der Umgebung lokaler Minima (Maxima) einer (rot-)blauverstimmten Lichtmaske harmonisch, so dass Atome dort fokussiert werden (Abb. 2.3).



Abbildung 2.3: Ein Atomstrahl passiert eine blauverstimmte Dipolkraft-Lichtmaske. Durch die optische Dipolkraft werden die Atome in die Intensitätsminima der optischen Stehwelle fokussiert. Das eingebettete Diagramm zeigt den Verlauf simulierter Atomtrajektorien.

Im quasi-eindimensionalen Fall, in dem die Lichtmaske durch Interferenz zweier entgegenlaufender Laserstrahlen gebildet wird, ist der Verlauf der atomaren Trajektorie und die resultierende Dichteänderung im Atomstrahl gut verstanden [75, 88, 91]: In der Umgebung von Intensitätsminima (-maxima) der (rot-) blauverstimmten Lichtmaske werden Atome gleichsam durch Zylinderlinsen fokussiert (Abb. 2.4). Auf einem in geeignetem Abstand angebrachten Substrat werden die Atome daher innerhalb eines schmalen Bereichs ($\approx \lambda/10$) abgeschieden. In der Umgebung lokaler Intensitätsmaxima (-minima) der Lichtmaske wird der Atomstrahl dagegen defokussiert. Atome, welche diese zerstreuenden Bereiche passieren, bilden auf dem Substrat einen nahezu gleichförmigen Untergrund. Eine quasi-eindimensionale Lichtmaske kann daher als Folge von fokussierenden und defokussierenden Bereichen modelliert werden, wie in Abbildung 2.4 dargestellt. Alle wesentlichen Abbildungseigenschaften der Lichtmaske werden mit diesem Modell beschrieben, wobei Abweichungen vor allem als sphärische und chromatische Aberrationen der Linsen interpretiert werden können.



Abbildung 2.4: Eine eindimensionale Lichtmaske kann als periodische Anordnung von Sammellinsen und Zerstreuungslinsen beschrieben werden.

Auch zweidimensionale Lichtmasken können als Anordnung von fokussierenden und defokussierenden Elementen beschrieben werden. Da die Atome im Fall von (rot-) blauverstimmten Lichtmasken in lokalen Intensitätsminima (-maxima) fokussiert werden, wird die atomare Flussdichte hinter Bereichen mit lokal geringer (hoher) Lichtintensität erhöht. Entsprechend der im Allgemeinen sehr unterschiedlichen Ausprägung lokaler Intensitätsmaxima und -minima in einer 2-dimensionalen Lichtmaske haben die einzelnen "Linsen" jedoch sehr verschiedene Brennweiten. Zudem können die Maxima bzw. Minima sehr stark in eine Richtung gestreckt sein, was als starken Astigmatismus² durch Asymmetrie der Linse interpretiert werden kann. Im Extremfall von sehr langgestreckten Maxima bzw. Minima, wie bei der im Experiment erzeugten Lichtmaske, bietet sich sogar eine Beschreibung der 2-dimensionalen Lichtmaske durch Zylinderlinsensegmente an, in denen die Atome nur in einer Raumrichtung fokussiert werden.

Durch diese Effekte ändert sich i. A. die Verteilung der atomaren Flussdichte mit dem Abstand von der 2-dimensionalen Lichtmaske. Dies kann z. B. ausgenutzt werden, um durch eine geeignete Position des Substrats bestimmte Charakteristika in der abgeschiedenen Struktur hervorzuheben. Die genaue Flussdichteverteilung $\psi(x, y, z)$ eines thermischen Atomstrahls in und hinter einer Lichtmaske wird in dieser Arbeit durch rechnergestützte Simulation atomarer Trajektorien berechnet.

2.2 Die holografisch generierte Lichtmaske

Die Lichtmaske wird durch Interferenz mehrerer Laserstrahlen gebildet, die holografisch³ erzeugt werden. Im Folgenden werden, ausgehend von einer kurzen Einleitung über Holografie, Speicherung und Rekonstruktion von Hologrammen in einem eisendotierten LiNbO₃ Kristall sowie die Eigenschaften der resultierenden Lichtmaske behandelt.

²Als Astigmatismus werden Abbildungsfehler von Linsen bezeichnet, bei denen die effektive Brennweite eines Strahls, der am Ort (r, ϕ) in eine Linse eintritt, vom Winkel ϕ abhängt. Allgemein entsteht Astigmatismus durch Asymmetrien im Abbildungssystem, z. B. durch schiefen Einfall in eine Linse oder durch eine zylindrische Asymmetrie der Linse selber.

³Das Wort "Hologramm" leitet sich vom griech. $o\lambda o\sigma = \text{ganz}$, $\gamma \rho \alpha \phi \epsilon \iota \nu = \text{schreiben ab. Damit wird}$ bereits im Namen angedeutet, dass die gesamte Information einer Wellenfront, also Amplitude und Phase, im Hologramm aufgezeichnet wird. Damit unterscheidet sich die holografische Aufzeichnung eines Lichtfeldes von herkömmlichen Aufzeichnungsmethoden wie z. B. Photografie oder CCD-Kamera, bei denen lediglich die Amplitudeninformation des Lichtfeldes aufgezeichnet wird.

2.2.1 Holografie

Das Prinzip der holografischen Wiedergabe besteht in der Rekonstruktion einer Lichtwellenfront, deren Intensitäts- und Phaseninformation zuvor im Hologramm gespeichert wurde. Eine faszinierende Anwendung der Holografie besteht in der vollständigen, 3-dimensionalen Wiedergabe eines vorher aufgezeichneten Objekts. Die holografische Aufzeichnung wurde Mitte des letzten Jahrhunderts von D. Garbor eingeführt [40], und in den folgenden drei Jahrzehnten von verschiedenen Forschergruppen durch verbesserte Abbildungstechniken [30, 64] und den Einsatz von Lasern als kohärente Lichtquelle [65] weiterentwickelt. Hier soll nur eine kurze Einführung in die holografische Aufzeichnung und Rekonstruktion von Wellenfronten gegeben werden, für Details sei auf die entsprechende Fachliteratur verwiesen (z. B. [54]).

Holografische Aufzeichnung In der Holografie werden Intensitäts- und Phaseninformation einer Wellenfront interferometrisch aufgezeichnet, indem diese so genannte Signalwelle mit einer in fester Phasenbeziehung stehenden Referenzwelle überlagert wird (Abb. 2.5). Entsprechend der Lichtintensität-Verteilung in der Interferenzzone wird das holografische Muster in Form einer Transmissions- (Amplitudenhologramm) oder Brechungsindexmodulation (Phasenhologramm) in das photosensitive Material eingeschrieben.



Abbildung 2.5: Schema der holografischen Aufnahme: Die (vom Objekt ausgehende) Signalwelle interferiert mit dem Referenzstrahl. Abhängig von der lokalen Intensität ändern sich Transmission bzw. Phase des photosensitiven Materials, aus dem das Hologramm besteht.

Die folgenden Rechnungen beschreiben die Aufzeichnung von Phasenhologrammen. Das holografische Medium wird zunächst als dünne Ebene mit den Koordinaten (x, y) angenommen, deren Dicke d klein gegen die Periodizität Λ des Interferenzgitters ist. Die Signalwelle habe in dieser Ebene das elektrische Feld $E_S(x, y) = \mathcal{R}e\left\{\mathcal{E}_S(x, y)e^{-i\omega_L t}\right\}$, die Referenzwelle sei $E_R(x, y) = \mathcal{R}e\left\{\mathcal{E}_R(x, y)e^{-i\omega_L t}\right\}$. \mathcal{E}_S und \mathcal{E}_R bezeichnen die komplexen Amplituden der elektromagnetischen Wellen. Der Brechungsindex n des photosensitiven Materials ändert sich in 1. Ordnung durch die Intensität $I_{RS}(x, y)$ der interferierenden Wellen gemäß

$$\Delta n(x,y) = \alpha \cdot I_{RS}(x,y) = \alpha \frac{c\varepsilon_0}{2} |E_R + E_S|^2$$
(2.6)

$$= \alpha \frac{c\varepsilon_0}{2} (|\mathcal{E}_R|^2 + |\mathcal{E}_S|^2 + \mathcal{E}_R \mathcal{E}_S^* + \mathcal{E}_S \mathcal{E}_R^*)$$
(2.7)

Holografische Rekonstruktion Zur holografischen Rekonstruktion der aufgezeichneten Signalwelle E_S wird das Hologramm mit der Referenzwelle E_R beleuchtet (Abb. 2.6). Die

rekonstruierte Wellenfront $E_{\rm rek}$ hinter dem Hologramm der Dicke $d\ll\Lambda$ hat eine lokale Phase von

$$E_{\rm rek}(x,y) = e^{i\frac{\omega_L}{c}d\Delta n(x,y)} \cdot \mathcal{E}_R(x,y)e^{-i\omega_L t} .$$
(2.8)

Für kleine Phasenänderungen $\Delta n \ll 1$ gilt

$$E_{\rm rek}(x,y) = \left(1 + i\frac{\omega_L}{c}d\Delta n(x,y)\right) \cdot \mathcal{E}_R(x,y) \cdot e^{-i\omega_L t} .$$
(2.9)

Durch Einsetzten von Gleichung (2.7) folgt:

$$E_{\rm rek}(x,y) = \left[1 + \underbrace{i\omega_L \alpha \, d\frac{\varepsilon_0}{2}}_{\beta} \left(|\mathcal{E}_R|^2 + |\mathcal{E}_S|^2 + \mathcal{E}_R \mathcal{E}_S^* + \mathcal{E}_S \mathcal{E}_R^* \right) \right] \cdot \mathcal{E}_R(x,y) e^{-i\omega_L t} \tag{2.10}$$

$$= \underbrace{\left[1 + \beta \left(|\mathcal{E}_R|^2 + |\mathcal{E}_S|^2\right)\right] E_R}_{1.} + \underbrace{\beta \mathcal{E}_R^2 \mathcal{E}_S^* e^{-i\omega_L t}}_{2.} + \underbrace{\beta |\mathcal{E}_R|^2 E_S}_{3.}$$
(2.11)

Die einzelnen Terme bedeuten:

- 1. Phasenverschobene Referenzwelle.
- 2. Phasenkonjugierte Welle; Bei kollimiertem Referenzstrahl wird ein reelles Bild eines zuvor aufgezeichneten Gegenstandes erzeugt (Abb. 2.6).
- 3. Rekonstruierte Signalwelle.



Abbildung 2.6: Schema der holografischen Rekonstruktion: Das Hologramm wird mit der Referenzwelle beleuchtet. Durch Beugung wird die aufgezeichnete Signalwelle rekonstruiert, sowie die konjugierte Welle, die ein reelles Bild des aufgezeichneten Gegenstandes erzeugen kann.

Volumenhologramme Ist die Dicke d eines holografischen Mediums (in Richtung des Auslesestrahls) groß gegen die Periodizität Λ des Interferenzgitters von Signal- und Referenzwelle, so spricht man von einem Volumenhologramm. Ein Volumenhologramm kann als 3-dimensionale, periodische Anordnung von einzelnen dünnen Hologramm-Schichten mit Abständen Λ angesehen werden. Beim Auslesen des Hologramms wird der Referenzstrahl an jeder Schicht gebeugt, jedoch interferieren die entstehenden Wellen nur dann konstruktiv, wenn die so genannte Bragg-Bedingung erfüllt ist, die vor allem aus Experimenten zur Beugung von Röntgenstrahlen bekannt ist [13, 14, 122]:

$$2\Lambda\sin\Theta = m\lambda \ . \tag{2.12}$$

Hier ist Θ der Winkel des Auslesestrahls zur Hologramm-Schicht, und λ dessen Wellenlänge im holografischen Medium (Brechungsindex n!). Die Effizienz der Beugung hängt damit stark von Einfallswinkel und Wellenlänge des Auslesestrahls ab. Dies kann z. B. zur Herstellung von Interferenzfiltern mit Bandbreiten besser als 0,005 nm ausgenutzt werden [67, 86]. Auch eignen sich Volumenhologramme hervorragend zum Multiplexen von Hologrammen (s. u.). Detaillierte Untersuchungen zu Volumenhologrammen sind in [104, 109] dargestellt.

Multiplexen von Hologrammen Aufgrund der großen Winkel- und Wellenlängensensitivität eines Volumenhologramms können in einem dicken holografischen Medium mehrere Hologramme multiplex aufgezeichnet werden. Dazu werden die Hologramme üblicherweise nacheinander in das Medium eingeschrieben, wobei sich die jeweiligen holografischen Gitter überlagern. Wenn Winkel oder Wellenlänge der Referenzstrahlen der einzelnen Hologramme ausreichend⁴ verschieden sind, so kann jedes gespeicherte Hologramme durch Winkel oder Wellenlängenanpassung des Auslesestrahls selektiert und separat ausgelesen werden. Dies findet z. B. in der holografischen Datenspeicherung Anwendung [22, 84, 101]. Werden dagegen in einem holografischen Medium mehrere, verschiedene Hologramme mit gemeinsamem Referenzlaser multiplex gespeichert, so werden alle Hologramme beim Auslesen gleichzeitig rekonstruiert. Dies wird in diesem Experiment zur holografischen Erzeugung komplexer Lichtmasken ausgenutzt.

Solange das holografische Medium im linearen Bereich ist, beugen multiplex aufgezeichnete Volumen-Phasenhologramme den Auslesestrahl jeweils mit der gleichen Effizienz wie bei singulärer Aufzeichnung [1, 24, 59]. Wenn Hologramme jedoch im Sättigungsbereich des holografischen Mediums aufgezeichnet werden, so sinken die Beugungseffizienzen der einzelnen Hologramme. Daher muss im Allgemeinen bei multiplex aufgezeichneten Hologrammen von einer Verringerung der Beugungseffizienz der einzelnen Hologramme ausgegangen werden.

2.2.2 Holografische Speicherung im Lithiumniobat-Kristall

Im vorgestellten Experiment wird ein eisendotierter Lithiumniobat-Kristall mit mehreren, multiplex eingeschriebenen Volumenhologrammen zur Erzeugung der Lichtmaske eingesetzt. Er wurde in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. K. Buse ⁵ im Fachbereich Physik der Universität Osnabrück hergestellt [91]. Im Folgenden werden Erzeugung und Eigenschaften der Hologramme kurz erläutert. Für Details sei auf die jeweils angegebene Literatur verwiesen.

2.2.2.1 Volumenhologramme in Lithiumniobat-Kristallen

Seit Ende der sechziger Jahre werden photorefraktive [4] eisendotierte Lithiumniobat-Kristalle (Fe:LiNbO₃) zur holografischen Speicherung genutzt [25]. Die Hologramme werden üblicherweise als Volumen-Phasenhologramme gespeichert. Lithiumniobat findet weit verbreiteten Einsatz, z. B. zur reversiblen holografischen Datenaufnahme [79, 84, 101], Wellenlängentrennung [16] und -Bündelung [93], sowie zur der Herstellung von schmalbandigen Interferenzfiltern [67, 86].

⁴Das Kriterium hierfür liefert die Bragg-Bedingung (2.12).

⁵ jetzige Adresse: Prof. Dr. Karsten Buse, Physikalisches Institut, Universität Bonn, Wegelerstr. 8, D-53115 Bonn.

Der photorefraktive Effekt wird durch eine optische Anregung der Dotier-Atome initiiert, die in den Oxidationsstufen Fe^{2+} und Fe^{3+} vorliegen [63]. Inhomogene Beleuchtung, wie sie während der Aufnahme eines Hologramms in der Interferenzzone von Signalwelle und Referenzstrahl auftritt, regt Elektronen der Fe^{2+} -Dotieratome in das Leitungsband des Kristalls an [60]. Durch Drift, Diffusion und volumenphotovoltaischen Effekt [44] bewegen sich die Elektronen durch den Kristall, bis sie schließlich an Orten mit geringer Intensität des anregenden Lichts von Fe^{3+} Dotieratomen eingefangen werden. Durch diese Umverteilung der Elektronen bilden sich Raumladungen im Kristall, die elektrische Felder bis zu 100 kV/cm erzeugen. Diese Felder wiederum modulieren durch den elektrooptischen Effekt den Brechungsindex des Kristalls. Die räumliche Variation des Brechungsindexes bildet das holografische Gitter.

Thermisches Fixieren Diese lichtinduzierten Brechungsindex-Variationen im Kristall verblassen nach einigen Stunden bis Wochen wieder, da die Raumladungen durch thermische Anregung von Ladungsträgern neutralisiert werden. Daher verwendet man die Technik des so genannten thermischen Fixierens zur Herstellung nicht flüchtiger Hologramme [2, 21]. Der eisendotierte Lithiumniobat-Kristall wird dazu während der Aufnahme der Hologramme auf etwa 180° C erhitzt. Bei dieser Temperatur erlangen Kristalldefekte wie Fehlstellen und Fremdatome, hier vor allem H⁺-Ionen, erhöhte Beweglichkeit, so dass die oben beschriebenen Raumladungen teilweise neutralisiert werden. Nach der Abkühlung des Kristalls sind die H⁺-Ionen wieder unbeweglich, folglich resultiert anstelle des flüchtigen Raumladungs-Gitters ein permanentes Gitter der H⁺-Ionendichte mit einer Lebensdauer > 20 Jahre.

Durch homogene Beleuchtung (Entwicklung) z. B. mit Weißlicht wird eine homogene Verteilung der elektronischen Ladungsträger erreicht (homogene Fe^{2+}/Fe^{3+} -Verteilung), so dass Raumladungen durch das Ionengitter entstehen. Die resultierenden elektrischen Felder erzeugen durch den elektro-optischen Effekt das gewünschte Brechungsindex-Gitter. Dieses Raumladungsgitter hat eine Lebensdauer von einigen Stunden bis Wochen, bis es durch Elektronendrift bzw. -Diffusion neutralisiert wird, und eine erneute Entwicklung des Hologramms mit Weißlicht erforderlich ist.

2.2.2.2 Aufnahme der Hologramme

Der im Experiment eingesetzte Lithiumniobat-Kristall [91] hat eine Eisenkonzentration von $18 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bei einem Verhältnis Fe²⁺: Fe³⁺ von 1:10. Der an Ein- und Austrittsseite der Laserstrahlen mit einer Anti-Reflex-Schicht bedampfte Kristall hat eine Ausdehnung von $(5 \times 5 \times 5) \text{ mm}^3$. Zur Erzeugung der Hologramme wird der Kristall mit 3 s-polarisierten Laserstrahlen ($\emptyset \approx 4 \text{ mm}$) eines Ti:Saphir-Lasers (852 nm) bestrahlt, die über eine Spiegelund Strahlteileranordnung geleitet werden. Referenzstrahl I (6,2 W/cm²) dringt senkrecht durch die Vorderseite, Strahl II (5,9 W/cm²) und Strahl III (7,4 W/cm²) dringen symmetrisch durch die Rückseite des Kristalls, jeweils mit einem Winkel von $\Theta = 1^{\circ}$ zwischen Oberflächennormalen und Strahlachse (Abb. 2.7a). Die Laserstrahlen interferieren im Kristall und erzeugen bei der Temperatur T = 180° C das Ionengitter. Der bei 852 nm nur schwach ausgeprägte photorefraktive Effekt in Fe:LiNbO₃ erfordert eine Belichtungszeit von 2 Stunden⁶. Um die Stabilität des Interferenzgitter über diesen Zeitraum zu gewähr-

 $^{{}^{6}}$ Fe:LiNbO₃ absorbiert grünes Licht am stärksten, weshalb dort der photorefraktive Effekt stärker ist. Die Belichtungszeiten sind bei grünem Laserlicht gleicher Intensität um einen Faktor 100 kürzer [97].



Abbildung 2.7: (a) Aufnahme des Hologramms durch Überlagerung dreier Laserstrahlen im LiNbO₃-Kristall bei einer Temperatur von 180° C. (b) Nach dem Abkühlen ist das Hologramm fixiert. (c) Durch Einstrahlung des Referenzstrahls werden die Strahlen II und III rekonstruiert. Durch Interferenz aller drei Laserstrahlen wird vor dem Kristall die Lichtmaske gebildet.

leisten, ist eine aktive Stabilisierung zur Kompensation von mechanischen Vibrationen nötig [17, 41, 105].

Da das Hologramm bei einer hohen Kristalltemperatur aufgenommen wird, jedoch bei nahezu Raumtemperatur ausgelesen wird, ändert sich die Periodizität des holografischen Gitters auf Grund der Kontraktion des Kristalls nach der Abkühlung. Daher werden die Hologramme, um sie mit der Wellenlänge der Cäsium D₂-Linie ($\lambda = 852,11$ nm) auslesen zu können, mit einer um $\Delta \lambda = 0,58$ nm größeren Wellenlänge aufgezeichnet. So wird die Volumenkontraktion des holografischen Gitters nach dem Abkühlen kompensiert und die Bragg-Bedingung bei der gewünschten Wellenlänge erfüllt. (Kleine Abweichungen können durch geringfügiges Heizen bzw. Kühlen des Kristalls während des Auslesens korrigiert werden.)

Homogene Beleuchtung des Hologramms nach dem Abkühlen entwickelt das Hologramm: die entstandenen Raumladungen erzeugen durch den elektrooptischen Effekt das Brechungsindexgitter (Abb. 2.7b). Durch Einstrahlung des Referenzstrahls I werden nun die Strahlen II und III rekonstruiert (c). Das Interferenzfeld vor dem Kristall bildet die Lichtmaske für den Atomstrahl.

2.2.2.3 Eigenschaften der Hologramme

Der in der Arbeitsgruppe von Prof. K. Buse präparierte Lithiumniobat-Kristall mit den multiplex eingeschriebenen Hologrammen wurde im Rahmen dieser Arbeit eingehend untersucht. Der Referenzstrahl I wird, wie erwartet, in die Strahlen II und III gebeugt, die jeweils einen Winkel von 1° mit dem Referenzstrahl einschließen (Abb. 2.8). Neben den beiden starken Strahlen II und III tritt ein weiterer, schwacher Strahl (IV) auf. Dieser Strahl resultiert aus einem weiteren, parasitären holografischen Gitter, welches während des Aufnahmevorgangs aus der Interferenz des Referenzstrahls mit seinem eigenen, schwachen Reflex von der Rückseite des Kristalls⁷ hervorgegangen ist. Da Stahl IV bei symmetrischer Anordnung der Strahlen I, II und III einen Winkel von 0.25° mit dem Referenzstrahl einschließt, ist davon auszugehen, dass der Kristall während der Aufnahme um $\frac{0.25^{\circ}}{2} = 0.125^{\circ}$ gegen den Referenzstrahl verdreht war.



Abbildung 2.8: Strahlgeometrie der rekonstruierten Laserstrahlen: Der Referenzstrahl I wird in die starken Strahlen II und III gebeugt, die jeweils einen Winkel von 1° mit dem Referenzstrahl einschließen. Ein zusätzlicher schwacher Laserstrahl tritt unter einen Winkel von 0.25° zum Referenzstrahl auf. In Klammern sind typische Beugungseffizienzen $\eta = I_B/I_R$ bei einer Kristalltemperatur von 35° C angegeben.

Beugungseffizienzen Die Beugungseffizienzen $\eta = I_B/I_R$ (I_B : Intensität des gebeugten Strahls, I_R Intensität des Referenzstrahls) der Strahlen II und III hängen stark von der Temperatur des Kristalls ab (Abb. 2.9a). Die Bragg-Bedingung ist offensichtlich bei einer Temperatur von etwa 35° C am besten erfüllt, wie das Maximum der Beugungseffizienz bei dieser Temperatur anzeigt. Daher wird der Kristall im Experiment auf eine Temperatur von ca. 35° C geheizt.



Abbildung 2.9: (a) Temperaturabhängigkeit der Beugungseffizienzen für Strahl II und III. (b) Abhängigkeit der Beugungseffizienzen von der Polarisation des Referenzstrahls (0°: Polarisation senkrecht zur von den Strahlen I, II und III aufgespannten Ebene.

⁷Trotz Antireflex-Beschichtung tritt eine schwache Reflexion an den Kristalloberflächen auf.

Auch die Polarisation des Referenzlasers hat einen Einfluss auf die Beugungseffizienz. Bei falscher Polarisation sinkt die Beugungseffizienz der Strahlen II und III auf unter 25 % des Maximalwertes ab (Abb. 2.9b). Die Ursache hierfür besteht wahrscheinlich darin, dass der Referenzstrahl I nicht parallel zur optischen Achse des doppelbrechenden Kristalls verläuft. Die Beugungseffizienz hängt damit von der Polarisation des Auslesestrahls ab, weil zum einen der elektrooptische Effekt bei außerordentlicher Polarisation größer ist als bei ordentlicher Polarisation [22]. Zum anderen unterscheiden sich die Brechungsindizes von Lithiumniobat bei ordentlicher bzw. außerordentlicher Polarisation, so dass die Bragg-Bedingung (2.12) bei unterschiedlichen Wellenlängen des Referenzstrahls erfüllt ist [113].

Ferner haben kleine Anderungen in der Strahlgeometrie, wie z. B. Variationen vom Einfallswinkel des Referenzstrahls, Auswirkung auf die Beugungseffizienz η . Auch weisen die Beugungseffizienzen der Hologramme lokale Unterschiede auf, d. h. je nach Auftreffpunkt des Referenzlasers auf den Kristall ändert sich die Leistung der gebeugten Strahlen. Bei optimaler Einstellung aller genannten Freiheitsgrade können jedoch regelmäßig die in Tabelle 2.1 zusammengefassten Beugungseffizienzen reproduziert werden.

Strahl	Beugungseffizien z η	Winkel zu Strahl I
II	18 %	-1°
III	20 %	1°
IV	< 3 %	$0,25^{\circ}$

Tabelle 2.1: Eigenschaften der rekonstruierten Laserstrahlen.

2.2.2.4 Intensitätsverteilung in der Lichtmaske

Die Interferenz der drei Laserstrahlen I, II und III ergibt in der x, y-Ebene (senkrecht zum Atomstrahl) ein Linienmuster mit zwei verschieden Periodenlängen (Abb. 2.10a): Senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Referenzstrahls I (x-Achse) entstehen parallele Linien mit Periodizitäten von 426 nm ($\approx \lambda/2$) durch Interferenz des Referenzstrahls I mit den beiden gebeugten Strahlen II und III. Durch Interferenz von Strahl II mit Strahl III werden diese Linien in regelmäßigen Abständen von 24,4 μ m unterbrochen. Zudem sind die unterbrochenen Linien um einen halben Linienabstand versetzt.

Aus konstruktiver bzw. destruktiver Interferenz zwischen Referenzstrahl I und den Strahlen II und III mit Intensitäten von 18 % und 20 % des Referenzstrahls folgt rechnerisch für die maximalen bzw. minimalen Intensitäten I in der Lichtmaske

$$I_{\max} = \frac{c\varepsilon_0}{2} \mathcal{E}_{\max}^2 = \frac{c\varepsilon_0}{2} \left(\mathcal{E}_{\mathrm{I}} + \mathcal{E}_{\mathrm{II}} + \mathcal{E}_{\mathrm{III}}\right)^2 = \left(\sqrt{I_{\mathrm{I}}} + \sqrt{I_{\mathrm{II}}} + \sqrt{I_{\mathrm{III}}}\right)^2 \tag{2.13}$$

$$= 3,50 \cdot I_{\mathrm{I}} \tag{2.14}$$

$$I_{\min} = \frac{\alpha_0}{2} \mathcal{E}_{\min}^2 = \frac{\alpha_0}{2} (\mathcal{E}_{\rm I} - \mathcal{E}_{\rm II} - \mathcal{E}_{\rm III})^2 = \left(\sqrt{I_{\rm I}} - \sqrt{I_{\rm II}} - \sqrt{I_{\rm III}}\right)^2$$
(2.15)
= 0,0165 \cdot I_{\rm I} . (2.16)

 $= 0,0165 \cdot I_{\rm I}$

Der Kontrast $\kappa = \frac{I_{\text{max}} - I_{\text{min}}}{I_{\text{max}} + I_{\text{min}}}$ der Lichtmaske übersteigt damit 99 %⁸.

⁸Anmerkung: Weil nach Gleichung (2.4) die optische Dipolkraft für ausreichend verstimmte Lichtmasken proportional zum *Gradienten* der Lichtmaskit ist, können auch mit schlechterem Kontrast der Lichtmaske genauso gute lithografische Ergebnisse erzielt werden.



Abbildung 2.10: (a) Simulation der durch Interferenz der Strahlen I, II und III vor dem Kristall gebildeten Lichtmaske . (b) Schwache Variation der Lichtmaske durch Strahl IV. Die Graustufenskala der Lichtintensität ist auf die Intensität $I_{\rm I}$ des Referenzlasers genormt. Die Laserstrahlen verlaufen wie in Abbildung 2.8. Die unterschiedliche Skalierung der Bildachsen ist zu beachten (1:10).

Durch den zusätzlichen, schwachen Laserstrahl IV wird die Lichtmaske nur leicht modifiziert (Abb. 2.10b). Der zuvor konstante Abstand der Linienunterbrechungen von 24,4 μ m ist nun um ±2,5 μ m (Standardabweichung) moduliert. Zudem sind die Linien teilweise nicht vollständig unterbrochen, sondern beschreiben stattdessen eine schwach ausgeprägte "S"-Kurve. Auch wenn einzelne Intensitätsmaxima schwächer ausgeprägt sind, ändert sich der Kontrast in der Lichtmaske nur geringfügig.

In Ausbreitungsrichtung des Atomstrahls (z-Achse) ändert sich das Muster der Lichtmaske nicht, da alle beteiligten Laserstrahlen in der x, y-Ebene senkrecht zum Atomstrahl liegen. Der Intensitätsverlauf der Lichtmaske in z-Richtung entspricht dem gemeinsamen Strahlquerschnitt aller beteiligten Laser in gleicher Richtung. Im Experiment werden die multiplex aufgezeichneten Hologramme durch einem gaußförmigen Laserstrahl⁹ mit einer Strahltaille von $2w_z \approx 170 \ \mu m$ in Richtung des Atomstrahls ausgelesen. (Die Strahltaille $2w_y$ senkrecht zum Atomstrahl beträgt $\approx 1,6 \ mm$.) Daher hat die Lichtmaske in Atomstrahlrichtung ebenfalls einen gaußförmigen Verlauf mit einer Breite $2w_z = 170 \ \mu m$.

2.2.2.5 Flussdichteverteilung im Atomstrahl

Zur Berechnung der atomaren Flussdichteverteilung in und nach der Dipolkraft-Lichtmaske werden 10⁷ atomare Trajektorien simuliert, welche die Orts- und Geschwindigkeitsverteilung des thermischen Atomstrahl repräsentieren. Die Trajektorien werden durch numerische Integration des Impulsübertrags $\Delta p = F_D \cdot \Delta t$ auf die Atome während ihres Flugs durch die Lichtmaske berechnet.

Abbildung 2.11 zeigt das Ergebnis einer Simulation mit typischen Parametern für Intensität ($I_{\text{sat}} = 16.8 \text{ W/cm}^2$) und Verstimmung ($\Delta_L = 2\pi \cdot 600 \text{ MHz}$) des Ausleselasers. Die simulierte Lichtmaske hat wie im Experiment in Ausbreitungsrichtung des Atomstrahls

⁹Ein gaußförmiger Laserstrahl hat im Querschnitt den Intensitätsverlauf $I(z) = I_{\text{max}} \cdot \exp\left(-2\frac{z^2}{w^2}\right)$



Abbildung 2.11: (a) Simulation der Intensitätsverteilung (genormt auf die Intensität des Ausleselasers $I_{\rm I}$ von 16,8 W/cm²) in der blauverstimmten Lichtmaske ($\Delta_L = 2\pi \cdot 600$ MHz). (b) Simulation der atomaren Flussdichteverteilung (x, y-Ebene) bei $z = 50 \ \mu$ m (genormt auf die Flussdichte ψ_0 vor der Lichtmaske). (c,d) Simulation der atomaren Flussdichteverteilung in Atomstrahlrichtung (z -Achse). (e) Ausdehnung der Stehwelle in z-Richtung (gaußförmige Laserstrahlen). (f,g) Simulation der Laserintensität (gepunktete Linie) bzw. der atomaren Flussdichte bei $z = 50 \ \mu$ m (durchgezogene Linie).

(z-Achse) einen gaußförmigen Intensitätsverlauf. Die Intensitätsverteilung senkrecht zum Atomstrahl zeigt Abbildung 2.11a. Die berechnete optische Dipolkraft fokussiert die Atome in die Minima des Lichtfeldes (Abb. 2.11c,f). In den Bereichen hoher Lichtintensität wird die atomare Flussdichte dagegen verringert. Entsprechend der unterschiedlichen Kontraste innerhalb der Lichtmaske ändert sich die Lage der Fokuslinie für die thermischen Atome: Große Kontraste (z. B. bei $y \approx 18 \ \mu\text{m}$, Abb. 2.11b,f) erzeugen ein Maximum der Flussdichte in der Mitte der Stehwelle bei $z = 0 \ \mu\text{m}$. Durch geringere Kontraste in der Lichtmaske (z. B. bei $y \approx 28 \ \mu\text{m}$) verschiebt sich das Maximum der Flussdichte zu $z \approx 50 \ \mu\text{m}$. Die Flussdichteverteilung variiert also mit dem Abstand z vom Zentrum der Stehwelle (siehe auch Kap. 2.1.2). Dies kann ausgenutzt werden, um gewünschte Details zu erzeugen. So bildet die atomare Flussdichte im Abstand von $z \approx 50 \ \mu\text{m}$ vom Zentrum der Stehwelle ein Linienmuster mit einem Kontrast > 90 % über die gesamte Länge der Linien (Abb. 2.11b,d,g), obwohl der Kontrast in der Lichtmaske über die Länge einer Linie stark variiert (Abb. 2.11g, gestrichelte Linie). Dementsprechend ist in diesem Abstand im Lithografieexperiment die Erzeugung eines scharfen Linienmusters zu erwarten.

2.3 Der experimentelle Aufbau

Die holografisch erzeugte Lichtmaske wird mit einem thermischen Cäsium-Atomstrahl auf ein Substrat projiziert. Der Atomstrahl wird durch Verdampfung von metallischem Cäsium in einem elektrisch geheizten Ofen erzeugt (Abb. 2.12). Der hinter der Ofenöffnung stark



Abbildung 2.12: Schema des Experiments: Der thermische Atomstrahl wird durch Blenden im Durchmesser begrenzt und in einer 2-dimensionalen optischen Melasse kollimiert. Die Lichtmaske wird durch Mehrstrahlinterferenz des Auslesestrahls und der gebeugten Laserstrahlen gebildet. Beim Durchgang durch die blauverstimmte Lichtmaske wird der Atomstrahl durch die optische Dipolkraft strukturiert. Durch Abscheidung auf das direkt hinter der Stehwelle befindliche Substrat wird die Struktur der Lichtmaske auf das Substrat übertragen.

divergente Atomstrahl wird durch Blenden ($\emptyset = 1 \text{ mm}$) im Durchmesser begrenzt und in einer 2-dimensionalen optischen Melasse kollimiert. Durch Einstrahlung des Referenzstrahls in den Lithiumniobat-Kristall werden die eingeschriebenen Hologramme ausgelesen, d. h. die Strahlen II, III und IV werden jeweils durch Beugung am zugehörigen holografischen Gitter erzeugt. Das Interferenzfeld der beteiligten Laserstrahlen bildet die Lichtmaske für den Atomstrahl. Beim Passieren der gegenüber der Cäsium - D₂-Linie blau verstimmte Lichtmaske wird der Atomstrahl durch die optische Dipolkraft strukturiert. Durch Abscheidung der Atome auf das direkt hinter dem Lichtfeld befindliche Substrat wird die Struktur der Maske übertragen.

2.3.1 Die Vakuumapparatur

Die für Experimente mit Lichtmasken geplante und gebaute Vakuumapparatur ist in mehrere Abschnitte unterteilt (Abb. 2.13). In der Ofenkammer wird der Atomstrahl durch Evaporation erzeugt. In der optischen Melasse wird er optisch kollimiert, bevor er in die Experimentierkammer eintritt. Das Driftrohr mit abschließenden Beobachtungsfenstern dient zur Diagnose des Atomstrahls.

Ofenkammer Durch Erhitzen des in der Ofenkammer befindlichen Cäsium-Ofens wird metallisches Cäsium verdampft. Eine elektrisch zugeführte Heizleistung von ca. 3,6 W führt zu einer Ofentemperatur von 150° C. Der entstehende Cäsiumdampf entweicht der 1 mm Ofenöffnung in die Ofenkammer und bildet so den Atomstrahl. Durch eine erste Blende wird der Atomstrahldurchmesser vor dem Eintritt in die optische Melasse auf 1 mm begrenzt. Die Blende trennt zugleich während des Betriebes das vergleichsweise schlechte Vakuum der Ofenkammer¹⁰ vom guten Vakuum in den folgenden Sektionen. Die Kammer wird durch eine Turbomolekularpumpe mit 60 l/s Saugleistung für N₂ evakuiert. Die Pumpe ist um 90° von der Vakuumkammer abgewinkelt, damit Cäsiumdampf nicht direkt von der Ofenöffnung in die Pumpenöffnung gelangt. Die resultierende Reduktion von Cäsium-Ablagerungen erhöht die Lebensdauer der Pumpe.

Der Ofen sitzt auf einem Halter, der von außen mit einem Stellmechanismus in jede Raumrichtung verschiebbar ist. Der Ofenhalter ist an einem Vakuumflansch befestigt, so dass zur Befüllung des Ofens mit Cäsium der Halter bzw. Ofen mitsamt dem Flansch abgeschraubt werden können, und das Cäsium außerhalb des Vakuums eingefüllt werden kann¹¹. Nach jeder Befüllung des Ofens wird die Ofenöffnung mit Hilfe des Stellmechanismus auf die durch Blenden (s. u.) fixierte Atomstrahl-Achse ausgerichtet.

optische Melasse Die an die Ofenkammer anschließende Sektion der Vakuumapparatur enthält die optische Melasse zur transversalen Kühlung der Atome. Die dazu benötigten Laser werden durch Fenster senkrecht zum Atomstrahl eingestrahlt. Die Kammer kann durch 2 Schiebeventile sowohl von der Ofenkammer als auch von der anschließenden Experimentierkammer getrennt werden. Da die Sektion keine eigene Vakuumpumpe hat, wird sie bei

 $^{^{10}}$ Der Druck hier ist nicht bekannt, da in der Ofenkammer keine Vakuum-Messröhre eingebaut ist. Auf Grund der hohen Temperatur des Cäsium-Ofens und des hohen Cäsium-Partialdrucks wird der Druck in der Größenordnung 10^{-6} mbar liegen.

¹¹Zur Befüllung werden Ofen und das einzufüllende Cäsium mit flüssigem Stickstoff auf Temperaturen von ca. 90 K abgekühlt. Damit wird die Reaktivität des Cäsiums stark reduziert, so dass keine Oxidation des Metalls mit Luftsauerstoff stattfindet.



Abbildung 2.13: Zeichnung der Vakuumapparatur im Maßstab 1:10.

geöffnetem Ventil zur Experimentierkammer von der dort vorhandenen Turbomolekular-Pumpe evakuiert.

Experimentierkammer Die Experimentierkammer enthält die Lithografie-Einheit, die aus Substrathalter und Kristallhalter besteht. Die Lithografie-Einheit ist auf ein mit der Vakuumkammer verbundenes Gestell geschraubt. Durch ein Schiebeventil besteht bequemer mechanischer Zugang zur Experimentierkammer zum Einlegen und Entfernen des Substrats sowie zur Ausrichtung des Kristalls. Ein großes Vakuumfenster an der Vorderseite der Apparatur ermöglicht eine visuelle Kontrolle der experimentellen Abläufe. Die erforderlichen elektrischen Anschlüsse werden über Vakuum-Stromdurchführungen bereitgestellt. Die Experimentierkammer wird durch eine Turbomolekularpumpe mit 250 l/s Saugleistung für N₂ evakuiert. Nach einer Belüftung der Kammer mit reinem Stickstoff wird dadurch nach 24 Stunden wieder ein Druck von ca. $1 \cdot 10^{-7}$ mbar erreicht. Die Druckmessung erfolgt mit einer BA-Vakuummessröhre.

Driftstrecke An die Experimentierkammer schließt sich eine insgesamt 1,15 m lange Driftstrecke an, welche von mehreren Sichtfenstern abgeschlossen wird. Hier erfolgt eine Atomstrahl-Diagnose mit CCD-Kamera, wozu ein resonanter Lichtteppich orthogonal zum Atomstrahl eingestrahlt wird. Auf Grund der langen Driftstrecke liefern die aufgenommenen Querschnitte des Atomstrahls Informationen über dessen transversale Geschwindigkeitsverteilung. Diese Diagnose wird sowohl zur Optimierung der optischen Melasse eingesetzt, als auch zur Kontrolle der Wechselwirkung der Atome mit der Lichtmaske [88, 89]. Eine 100 μ m Schlitzblende sowie ein Permanentmagnet können mit Lineardurchführungen in bzw. an den Atomstrahl gefahren werden. Das Driftrohr besitzt keine eigene Vakuumpumpe und wird ebenfalls durch die Pumpe der Experimentierkammer evakuiert.

Abbildung 2.14 zeigt eine Fotografie der ca. 2 m hohen Apparatur. Die Ofenkammer, die Experimentierkammer und die Driftstrecke sind zu erkennen.



Abbildung 2.14: Fotografie der Vakuumapparatur

2.3.2 Die Lithografie-Einheit

Die Lithografie-Einheit (Abb. 2.15) enthält eine Fassung für den Lithiumniobat-Kristall und eine Verschiebeeinheit für das zu beschreibende Substrat. Diese sind auf eine Bodenplatte geschraubt, die über ein extern verstellbares Festkörpergelenk verkippt werden kann. Die gesamte Lithografie-Einheit ist über eine Montageplatte fest mit der Vakuumapparatur verschraubt. Sie wurde speziell für Experimente mit Lichtmasken konzipiert und angefertigt. Bei Bedarf kann die Lithografie-Einheit als Ganzes oder in Einzelteilen zur Bearbeitung aus der Apparatur entfernt werden.



Abbildung 2.15: Zeichnung der Lithografie-Einheit im Maßstab 1:3.

Kristallfassung Der Lithiumniobat-Kristall mit den eingeschriebenen Hologrammen ist in eine Kristallfassung eingeklebt. In die Kristallfassung ist ein elektrischer Heizdraht eingearbeitet, mit dem die Temperatur des Kristalls auf etwa 35° C erhöht wird; Hier ist die Beugungseffizienz der Hologramme bei der verwendeten Wellenlänge des Auslesestrahls von 852,1 nm maximal (Kap. 2.2.2.3). Die Vorderseite von Kristall und Kristallfassung bilden eine Ebene, an der das anliegende Substrat vorbeigleiten kann (s. u.).

Die Kristallfassung ist an einem kommerziellen Spiegelhalter befestigt. Über die Stellschrauben wird sie so ausgerichtet, dass die Lichtmaske parallel zur Oberfläche des auf der Auflagefläche liegenden Substrats liegt, gleichbedeutend mit einem rechten Winkel zwischen Auflagefläche und Kristalloberfläche. Der Spiegelhalter wird auf die Bodenplatte aufgeschraubt, wobei zwischen Kristall und Substrat-Auflagefläche ein ca. 3 mm breiter Spalt bleibt, durch den der Atomstrahl propagiert.

Verschiebeeinheit Die Verschiebeeinheit für das zu beschreibende Substrat wurde entwickelt, um mehrere Nanostrukturen auf einem einzelnen Substrat ohne Öffnung der Vakuumapparatur zu erzeugen. Zudem ist eine Untersuchung des Atomstrahls trotz eingelegtem Substrat möglich. Die Verschiebeeinheit besteht aus der Auflagefläche für das Substrat, einer an einen kleinen Elektromotor angeschlossenen Gewindestange und dem damit angetriebenen Schieber für das Substrat. Zum Vortrieb wird das eingelegte Substrat durch den Schieber in Pfeilrichtung gedrückt. Die mit einem Winkel von 30° zur Substratkante geschnittene Schubfläche drückt das Substrat zugleich gegen die Kristallfassung, damit das Substrat jederzeit bündig anliegt. Der 3 mm breite Spalt (s. o.) zwischen Auflagefläche und Kristallfassung verhindert eine mechanische Beschädigung von mit Cäsium bedampften Bereichen der Substratoberfläche während des Vortriebs.

Vor dem LiNbO₃-Kristall befindet sich in der Substrat-Auflagefläche eine Vertiefung, in welcher der Ausleselaserstrahl I sowie die gebeugten Laserstrahlen II und III direkt unterhalb des Substrats die Lichtmaske bilden. Die Verschiebeeinheit ist mit der Bodenplatte der Lithografie-Einheit verschraubt.

Festkörpergelenk Die Bodenplatte mit Spiegelhalter und Verschiebeeinheit kann über ein Festkörpergelenk verkippt werden, um die Lichtmaske senkrecht zur Atomstrahlachse bzw. parallel zum Substrat auszurichten. Das Festkörpergelenk wird über zwei PiezoMike[®] eingestellt, einer Kombination aus Mikrometerschraube und Piezoaktuator der Firma Physikalische Instrumente (Art. Nr. P-853). Mit den extern bedienbaren Piezoaktuatoren wird die notwendige Präzision des Winkels von 0,1 mrad erreicht. Das Festkörpergelenk ist über eine Montageplatte mit der Vakuumapparatur verschraubt.

2.3.3 Die Laser

Zum Betreiben des Experiments werden mehrere Diodenlaser mit unterschiedlichen Leistungen und Wellenlängen benötigt: Kühl- und Rückpumplaser für die optische Melasse, ein Laser für die Lichtmaske, und ein Laser für den Fluoreszenz-Nachweis der Atome über resonante Anregung. Alle Laserstrahlen werden auf einem schwingungsgedämpften optischen Tisch erzeugt und stabilisiert. Der Transport zum Experiment erfolgt per Einmoden-Glasfaser (Abb. 2.16). Alle benötigten Wellenlängen liegen im Bereich der Cäsium D₂-Linie mit einer Wellenlänge von 852,1 nm. Tabelle 2.2 gibt eine Übersicht über die am Experiment erforderlichen Laser an.

Laser	Übergang	Verstimmung	Leistung
Kühllaser (Melasse)	$F = 4 \rightarrow F' = 5$	-1015 MHz	22 mW
Rückpumper (Melasse)	$F = 3 \rightarrow F' = 4$		$890 \ \mu W$
Lichtmasken-Laser	$F = 4 \rightarrow F' = 5$	+ 0,51 GHz	16 mW
Nachweislaser	$F = 4 \rightarrow F' = 5$		2,5 mW

Tabelle 2.2: Liste der im Experiment benötigten Laser. Alle Laser emittieren nahe der Cäsium D_2 -Linie bei 852,1 nm. Angegeben sind typische Leistungen der Laserstrahlen im Experiment.

Die Laserstrahlen werden mit gitterstabilisierten Diodenlasern in Littrow-Anordnung erzeugt. Als Wellenlängenreferenz dienen im Experiment Dopplerverbreiterung-freie Sättigungsspektroskopien bzw. Polarisationsspektroskopien in Cs-Dampfzellen [107, 118]. Jede Spektroskopie liefert ein Regelsignal für eine elektronische Rückkopplung auf den entsprechenden Laser zur Wellenlängenstabilisierung [119]. Einzig der Lichtmasken-Laser wird manuell auf die gewünschte Verstimmung eingestellt¹².

Der Kühllaser und der Rückpumper der optischen Melasse werden über einen teildurchlässigen Spiegel in eine gemeinsame Glasfaser eingekoppelt. Der mit einer präzisen Polarisationsspektroskopie auf den $|F = 4\rangle \Rightarrow |F = 5\rangle$ stabilisierte Referenzlaser wird zur Feststellung der Verstimmung des Kühllasers und des Lichtmasken-Lasers verwendet. Dazu wird ein schwacher Strahl des jeweiligen Lasers zusammen mit dem Referenzlaser auf einer schnellen Fotodiode überlagert. Die messbare Frequenz der entstehenden Schwebung entspricht der Frequenzdifferenz der beiden Laser.



Abbildung 2.16: Schema: Erzeugung und Stabilisierung der verschiedenen zum Betrieb des Experiments benötigten Laser.

2.3.4 Die Präparation der Lichtmaske

Die Lichtmaske wird durch Auslesen der im Lithiumniobat-Kristall multiplex gespeicherten Hologramme erzeugt. Der dafür nötige Auslese-Laserstrahl wird auf einem optischen Tisch erzeugt (s. o.) und per Glasfaser zum Experiment geleitet (Abb. 2.17). Die Linse des zugehörigen Glasfaser-Auskopplers ist so eingestellt, dass der Fokus des gaußschen Laserstrahls auf dem LiNbO₃-Kristall liegt (Strahltaille $2w_y$ im Fokus $\approx 1,6$ mm). In z-Richtung wird der Durchmesser des Laserstrahls durch eine Zylinderlinse mit der Brennweite f = 25 cm auf eine Strahltaille von $2w_z = 85 \ \mu$ m reduziert, um eine hohe Laserintensität in der Licht-

 $^{^{12}}$ Die hiermit erreichte Genauigkeit von 25 MHz ist bei einer Verstimmung von >0,5 GHz ausreichend.

maske zu erreichen. Der Abstand der Zylinderlinse vom Kristall wurde dabei so berechnet, dass der Fokus in z-Richtung ebenfalls auf dem Kristall liegt.



Abbildung 2.17: Präparation des Auslese-Laserstrahls I zur Erzeugung der Lichtmaske.

Der gesamte Atomstrahl, der mittig vor dem Kristall propagiert, wird durch den Auslesestrahl überstrichen. Der Einfallswinkel des Lasers auf den Kristall wird so eingestellt, dass die gebeugten Strahlen II und III in einer Ebene mit dem Auslesestrahl I liegen, und zudem symmetrisch um I angeordnet sind. Die Lichtmaske entsteht durch Interferenz der beteiligten Laserstrahlen. In den Strahlengang des Ausleselasers ist eine dicke Planplatte mit Antireflex-Beschichtung eingebaut. Durch Verkippung kann die Strahllage des Ausleselasers in z-Richtung verschoben werden, ohne den Winkel oder die x-Lage des Laserstrahls zu verändern. Zur Maximierung der Beugungseffizienz der Hologramme wird die Polarisation des Laserstrahls durch eine $\lambda/2$ -Phasenplatte gedreht (Kap. 2.2.2.3).

2.4 Erzeugung von Nanostrukturen

Die holografisch generierte Dipolkraft-Lichtmaske erzeugt, wie in Kap. 2.1.2 erläutert, eine Flussdichtevariation im Cäsium-Atomstrahl der Versuchsapparatur. Wird ein Substrat dicht hinter der Lichtmaske angebracht, so wird die atomare Flussdichteverteilung durch Abscheidung von Cäsium auf das Substrat übertragen. Da das abgeschiedene hochreaktive Alkali-Metall durch Luftsauerstoff oxidiert wird, wird eine Resist-Technik angewendet, um permanente Strukturen zu erzeugen.

Als Resist dient eine selbstanordnende Nonanthiol-Monolage, die eine 30 nm dicke, auf einen Silizium-Wafer aufgedampfte Goldschicht bedeckt. Durch Abscheidung von hochreaktivem Cäsium wird der Resist lokal beschädigt. In einem anschließendem Näßätzprozess wird das Gold unterhalb der geschädigten Stellen entfernt, während die intakten Bereiche der Resistschicht das unten liegende Gold schützen. Nach dem Ätzprozess bleibt eine permanente Goldstruktur, deren Form invers zu den bedampften Bereichen ist. Detaillierter ist das Resistverfahren im Anhang B.2 beschrieben.

2.4.1 Durchführung

Zum Einlegen des Substrats wird die Experimentierkammer der Vakuumapparatur mit Stickstoff geflutet und das Schiebeventil geöffnet (Abb. 2.13). Das präparierte Substrat (ca. $10 \times 30 \times 1 \text{ mm}^3$) wird mit der Goldseite nach unten bei zurückgefahrenem Schieber so auf die Auflagefläche gelegt, dass der Atomstrahl durch das Substrat nicht blockiert wird. (Abb. 2.15). Dabei muss das Substrat mit einer langen Seite an der Kristallfassung anliegen, damit der Schiebemechanismus einwandfrei funktioniert, ohne die zu beschreibende Oberfläche zu beschädigen. Die Apparatur wird anschließend mindestens 3 Stunden evakuiert, um einen ausreichend niedrigen Druck von $2 \cdot 10^{-6}$ mbar zu erzeugen¹³. Anschließend wird die Kollimation des Atomstrahls überprüft, indem am Ende der Driftstrecke der Atomstrahl-Querschnitt mit einer CCD-Kamera durch Fluoreszenz-Detektion aufgenommen wird. Zur Erzeugung von Nanostrukturen wird der Schieber (bei geblocktem Atomstrahl) elektrisch vorgefahren, bis sich das Substrat an der Position des Atomstrahls befindet.

Abstand der Lichtmaske Der Abstand z der Lichtmaske zum Substrat kann durch Winkeländerung der dicken Planplatte im Strahlengang des Ausleselasers (Kap. 2.3.4) eingestellt werden. Als Nullpunkt für den Abstand z wird die Lage festgesetzt, bei der das Substrat die gaußförmige Lichtmaske hälftig entlang des Intensitätsmaximums teilt. Experimentell ist diese Lage z = 0 dadurch feststellbar, dass hier die Intensitäten der gebeugten Strahlen II und III aufgrund der halben Abdeckung durch das Substrat auf die Hälfte des Wertes ohne Substrat absinken. Ausgehend von diesem experimentell bestimmten Nullpunkt kann z aus dem Winkel der Planplatte zum Auslesestrahl berechnet werden.

Dosis Die Dosis des abgeschiedenen Cäsiums sollte so gewählt werden, dass die Schwellendosis für die Zerstörung des Resists ($D_S \approx 5 \cdot 10^{14}$ Atome/cm² (Anh. B.2) in den Zonen hoher atomarer Flussdichte (d. h. in den Intensitätsminima der Stehwelle) deutlich überschritten wird. Umgekehrt sollte D_S in den Zonen geringer Flussdichte deutlich unterschritten werden, damit der Kontrast der im Ätzprozess erzeugten Struktur gut wird. Daher wird die Schreibzeit t_S so angesetzt, dass in den Bereichen maximaler atomarer Flussdichte ψ_{max} die Dosis $D_{\text{max}} = t_S \cdot \psi_{\text{max}}$ die Schwellendosis 3-fach überschreitet, und somit an diesen Stellen der Resist ausreichend geschädigt wird. Wie aus Simulationen über die Flussdichteverteilung in bzw. hinter der Lichtmaske bekannt ist (Kap. 2.2.2.5), beträgt die Flussdichte ψ_{max} in der Stehwelle ihrerseits das 3-fache der atomaren Flussdichte ψ_0 vor der Lichtmaske. Damit folgt für die Schreibzeit

$$t_S = \frac{D_S}{\psi_0} \ . \tag{2.17}$$

Bei dieser Schreibzeit beträgt die Dosis in den Zonen geringer atomarer Flussdichte weniger als 3/10 der Schwellendosis D_S , so dass hier der Resist intakt bleibt.

Bei einer Ofentemperatur von 150° C wird die atomare Flussdichte des optisch gekühlten Cäsium-Atomstrahls vor der Lichtmaske durch Absorptionsmessung zu $\psi_0 = (5 \pm 2) \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ bestimmt. Die Schreibzeit errechnet sich damit zu

 $t_S \approx 100s \tag{2.18}$

¹³Ionisierende Vakuum-Messröhren dürfen bei eingelegtem Substrat allenfalls kurz eingeschaltet werden, um eine Schädigung der Resist-Schicht durch freigesetzte Elektronen und Ionen zu verhindern.

Abscheidung von Cäsium Auf einem einzelnen Substrat können nacheinander mehrere Nanostrukturen erzeugt werden. Dazu wird bei geblocktem Atomstrahl das Substrat nach jeder Abscheidung von Cäsium mit dem Schieber vorgeschoben. Bei jeder Abscheidung können Parameter wie Leistung und Verstimmung der Stehwelle, Abstand der Stehwelle oder Schreibzeit neu festgelegt werden.

Zum Abscheiden von Cäsium auf dem Substrat wird der Atomstrahl freigegeben, indem das Ventil zur optischen Melasse geöffnet wird. Nach der Schreibzeit t_S wird das Ventil wieder geschlossen, um den Atomstrahl wieder zu blockieren. Nach den etwa 12 - 15 Abscheidungen, die auf ein Substrat passen, wird die Apparatur mit Stickstoff geflutet, das Substrat entnommen¹⁴ und sofort in der vorbereiteten Ätzlösung entwickelt.

2.4.2 Ergebnisse

Abbildung 2.18b zeigt einen mit optischem Mikroskop aufgenommenen 35 μ m×22 μ m Ausschnitt einer Goldstruktur, die atomlithografisch mit der holografisch generierten Lichtmaske erzeugt wurde. Die Leistung des Lichtmasken-Lasers betrug 14,6 mW bei einer Verstimmung von $\Delta = 2\pi \cdot 600$ MHz. Der Abstand z des Substrats zur Maskenmitte betrug $\approx 80 \ \mu$ m.



Abbildung 2.18: (a) Berechnete Intensitätsverteilung der Lichtmaske in Einheiten der Intensität $I_{\rm I}$ des Referenzlasers. (b) Aufnahme der entwickelten Goldstruktur (helle Bereiche) mit optischem Mikroskop. Die dunklen Flecken sind Staubpartikel.

In den dunklen Regionen des mit optischem Hochapertur-Mikroskop aufgenommenen Bildes wurde die Goldschicht durch den Ätzprozess entfernt, nachdem der Resist durch das

¹⁴Spezielle Schutzvorkehrungen sind nicht nötig, da der Resist mitsamt seiner eingeschriebenen Struktur an der Atmosphäre sehr stabil ist [61, 68].

Cäsium zerstört wurde. In hellen Regionen dagegen wurde das Gold durch den intakten Resist vor der Ätzlösung geschützt. Die erkennbare Linienstruktur (Abb. 2.18b) entspricht der berechneten Intensitätsverteilung in der Lichtmaske (Abb. 2.18a). Die 2-dimensionale Struktur weist zwei Charakteristika auf, die sich direkt mit den Eigenschaften der Lichtmaske erklären lassen:

- 1. Die horizontalen Linien mit Abständen von 426 nm resultieren aus der Interferenz des Ausleselasers I mit den beiden gebeugten Strahlen II und III.
- 2. Die erkennbaren vertikalen Bänder entstehen durch Unterbrechungen der Linien in Abständen. Sie wiederholen sich in Abständen von ca. 24 μ m. Die Unterbrechungen entstehen an Stellen mit destruktiver Interferenz von Laser II und Laser III.

Eine Vergrößerung der in Abbildung 2.18b dargestellten Nanostruktur zeigt die Atomkraftmikroskop-Abbildung 2.19c. Helle Regionen des 3,6 μ m × 3,6 μ m großen Ausschnitts kennzeichnen die nach dem Ätzprozess verbliebene Goldstruktur. Hier wird deutlich, dass Unterbrechungen der Linien mit einer vertikalen Versetzung der Linien um $\lambda/4 = 213$ nm verknüpft sind. Dies entspricht der berechneten Intensitätsverteilung in der Lichtmaske (Abb. 2.19a), in der diese Versetzungen ebenfalls auftreten. Die erzeugte Goldstruktur ist wie erwartet ein Negativ der simulierten atomaren Flussdichteverteilung (Abb. 2.19b), da im Ätzprozess das Gold an mit Cäsium bedampften Stellen durch Oxidation entfernt wird. Die experimentellen Ergebnisse bestätigen also in vollem Maße die Erwartungen.



Abbildung 2.19: (a) Berechnete Intensitätsverteilung in Einheiten der Intensität $I_{\rm I}$ des Referenzlasers in einem 3,6 μ m × 3,6 μ m Ausschnitt der Lichtmaske. (b) Numerische Simulation der Flussdichteverteilung in der Ebene des Substrats in Einheiten der Flussdichte ψ_0 vor der Lichtmaske. (c) Atomkraftmikroskop-Aufnahme der erzeugten Goldstruktur.

Interferenz von 4 Laserstrahlen Der beobachtete, schwache Laserstrahl IV induziert bei maximalen Beugungseffizienzen der Strahlen II und III nur eine leichte Variation des Abstandes zwischen den Unterbrechungen der Linien von $\pm 2,5 \ \mu m$ (Vgl. Kap. 2.2.2.3). Dieser Effekt kann jedoch verstärkt werden, indem die Beugungseffizienzen für Strahl II und III gegenüber Strahl IV herabgesetzt werden, z. B. durch Änderung der Temperatur des LiNbO₃-Kristalls. Die in Abb. 2.20 gezeigte Struktur wurde bei einer Kristalltemperatur von 20° C erzeugt, bei der die Beugungseffizienzen für Strahl II und III lediglich 7% bzw. 5% betrugen, die von Strahl IV aber noch 3%. Die Abstände zwischen den Linienunterbrechungen variieren nun über das gesamte Substrat deutlich.



Abbildung 2.20: Substrat mit entwickelter Goldstruktur (helle Bereiche), aufgenommen mit optischem Mikroskop. Die Strahlen II und III der Lichtmaske wurden abgeschwächt, wodurch der nun vergleichsweise starke Strahl IV deutliche Variationen des Abstandes zwischen den Linienunterbrechungen induziert.

Ein anderer interessanter durch diese 4-Strahl-Interferenz bewirkter Effekt besteht darin, dass die Goldlinien an einigen Stellen des Substrats verbogen werden (Abb. 2.21c). Dies ist ebenfalls in hervorragender Übereinstimmung mit den berechneten Intensitäten in der Lichtmaske (a) und der daraus resultierenden atomaren Flussdichte in der Substratebene (b). Die durch diese 4-Strahl-Interferenz erzeugten Strukturen sind nicht mehr periodisch, sondern zeigen über das gesamte Substrat verteilt eine große Variabilität in Abstand und Ausprägung der Unterbrechungen bzw. Verbiegungen der horizontalen Linien.



Abbildung 2.21: 4-Strahl-Interferenz: (a) Berechnete Intensitätsverteilung in Einheiten der Intensität $I_{\rm I}$ des Ausleselasers in einem 7,5 μ m × 7,5 μ m Ausschnitt der Lichtmaske. (b) Numerische Simulation der Flussdichteverteilung in der Ebene des Substrats in Einheiten der Flussdichte ψ_0 vor der Lichtmaske. (c) Atomkraftmikroskop-Aufnahme der erzeugten Goldstruktur.

2.5 Diskussion

Wie die vorgestellten Experimente zeigen, ist Atomlithografie mit Lichtmasken eine einfache und robuste Methode zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheiden von Atomen. Die Intensitätsgradienten in dem nahresonanten Laserfeld erzeugen dabei Flussdichteänderungen im Atomstrahl, mit denen Nanostrukturen erzeugt werden können. Eine entscheidende Aufgabe der Forschung an dieser Methode zur Nanostrukturierung ist die Generierung komplexer Lichtmasken durch Interferenz vieler Laserstrahlen.

Die in dieser Arbeit vorgestellte holografische Erzeugung von Lichtmasken ist eine elegante und bequeme Methode zur Formung komplexer Lichtmasken. Eine Vielzahl an Laserstrahlen mit definierter Intensität und Richtung wird durch Beugung eines einzelnen Ausleselasers an multiplex aufgezeichneten Hologrammen rekonstruiert. Die Interferenz dieser Laserstrahlen bildet die gewünschte Intensitätsverteilung der Lichtmaske. Hier wurde der Einfachheit halber die Zahl der interferierenden Laserstrahlen zunächst auf 3 starke Laserstrahlen beschränkt, wodurch eine zweidimensionale Lichtmaske mit periodischem Muster erzeugt wurde. Durch Temperaturänderung des Kristalls konnte ein zunächst parasitärer, vierter Laserstrahl soweit aufgewertet werden, dass die nun durch 4-Strahl-Interferenz erzeugte Lichtmaske deutlich an Komplexität gewann. Beide Masken wurden erfolgreich zur Erzeugung von Nanostrukturen eingesetzt. Sie übertrugen ihre Intensitätsverteilung wie erwartet auf das Substrat.

Da bereits gezeigt wurde [84], dass bis zu 5000 Hologramme in LiNbO₃ multiplex gespeichert werden können, können mit dieser Methode enorm komplexe Lichtmasken erzeugt werden. Die Beschränkung der gebeugten Strahlen auf einen Winkelbereich von 180° bei ebenen Kristallen kann überwunden werden, indem z. B. zwei gegenüberstehende (oder mehrere) LiNbO₃-Kristalle die Lichtmaske bilden. Die Referenzstrahlen der Hologramme müssen dabei keineswegs notwendigerweise zur Bildung der Lichtmaske beitragen (Abb. 2.22).



Abbildung 2.22: Mögliche Anordnung zweier LiNbO₃-Kristalle zur Abdeckung des gesamten Winkelbereichs durch die gebeugten Strahlen. Die in den Kristallen multiplex eingeschriebenen Hologramme werden von unten ausgelesen, damit die Auslesestrahlen nicht zur Lichtmaske beitragen.

Die Wellenlängen- und Winkelselektivitäten der eingesetzten Volumenhologramme bezüglich ihres Referenzlasers eröffnen weitere interessante Möglichkeiten bei der Erzeugung von komplexen Lichtmasken.

- 1. Durch Multiplexen von Hologrammen mit verschiedenen Referenzlaser-Einfallswinkeln können verschiedene Lichtmasken (gleicher Wellenlänge) in einem Kristall gespeichert werden. Die gewünschte Lichtmaske kann durch Rekonstruktion mit dem zugehörigen Ausleselaser erzeugt werden.
- 2. Multiplexes Speichern von Hologrammen mit unterschiedlicher Wellenlänge der Referenzlaser ermöglicht die gleichzeitige Rekonstruktion von Lichtmasken mit verschiede-

nen Wellenlängen und Mustern. Dadurch können mehrere atomare Spezies gleichzeitig mit unterschiedlichen Dichteverteilungen auf einem Substrat abgeschieden werden.

3. In Kombination von Punkt 1 und 2 ist es möglich, durch Abscheidung von mehreren atomaren Spezies einen Festkörper mit gewünschter 3-dimensionaler Dichteverteilung auf Nanometer-Skala zu erzeugen. Dazu wird jede Atomsorte mit ihrer entsprechenden Lichtmaske 2-dimensional strukturiert. Die Strukturierung in der dritten Dimension erfolgt durch Änderung der atomaren Flussdichten und der Lichtmasken während des Wachstumsprozesses.

Atomlithografie mit holografisch erzeugten Lichtmasken bietet daher einzigartige und aussichtsreiche Perspektiven zur Strukturierung von Oberflächen und Volumina durch kontrolliertes Abscheiden von Atomen. Eine vielversprechende Anwendung könnte z.B. die Herstellung von photonischen Kristallen [106] darstellen.

Kapitel 3

Gepulste Lichtmasken

Im vorangegangen Kapitel über Atomlithografie mit Cäsium-Atomen wurde das große Potenzial der Atomlithografie mit Lichtmasken deutlich. Die Übertragung der vorgestellten Technik auf andere, für die Anwendung interessantere Elemente ist jedoch untrennbar verknüpft mit der Bereitstellung von Lasern mit Wellenlängen bei den jeweiligen atomaren Resonanzen. Während z. B. die schweren Alkalimetalle Cäsium und Rubidium Linien im nahen Infrarot haben, die mit vergleichsweise günstigen Diodenlasern erreicht werden können, haben die meisten technisch interessanten Elemente Linien im blauen oder nahultravioletten Wellenlängenbereich [81]. Im Allgemeinen sind diese Wellenlängen jedoch nicht mit kommerziell erhältlichen Lasern zugänglich¹, so dass üblicherweise auf Methoden der Frequenz-Vervielfachung zurückgegriffen wird. Technisch sehr einfach ist die Frequenz-Vervielfachung von gepulsten Lasern. Die hohe Spitzenintensität der Laserpulse ermöglicht nämlich schon bei einfachem Durchgang des Pulslasers durch ein nichtlineares Medium eine effiziente Frequenz-Vervielfachung.

Ein weiterer, interessanter Aspekt der gepulsten Lichtmasken besteht in der kurzen Wechselwirkungszeit zwischen Atom und Lichtmaske. Zwischen den einzelnen Pulsen besteht daher die Möglichkeit, das Atom weiteren Wechselwirkungen zu unterziehen. Vor dem Einsatz von Pulslasern in atomlithografischen Experimenten sind jedoch das theoretische Verständnis und die Untersuchung der praktischen Anwendbarkeit von gepulsten Lichtmasken unabdingbar.

¹Eine Ausnahme bildet u. a. der Frequenzbereich von 405 - 430 nm, der mit Diodenlasern abgedeckt werden kann [92].

3.1 Beschreibung gepulster Lichtmasken

3.1.1 Optische Dipolkraft in gepulsten Lichtfeldern

Analog zur optischen Dipolkraft in Dauerstrich-Laserfeldern resultiert die optische Dipolkraft in gepulsten optischen Lichtfeldern aus der Wechselwirkung des durch das Lichtfeld induzierten atomaren Dipols mit dem elektromagnetischen Wechselfeld. Bei den verwendeten Pikosekunden-Pulsen ist die Pulslänge ($\tau_P = 30..80$ ps) erheblich kürzer als die Lebensdauer des angeregten Zustandes von Cäsium (30,5 ns). Daher kann im Unterschied zu den Experimenten mit Dauerstrich-Laserfeldern nicht die Gleichgewichtslösung (Gl. 2.2) angewendet werden. In den folgenden Kapiteln wird mit Hilfe des *Dressed Atom* - Modells eine Lösung für die optische Dipolkraft in gepulsten Lichtfeldern hergeleitet.

3.1.1.1 Das Dressed Atom - Modell

Im Dressed Atom - Modell wird ein 2-Niveau Atom in einem (nah-)resonanten Laserfeld beschrieben². Sowohl das Atom als auch das Lichtfeld werden dabei quantenmechanisch aufgefasst. An dieser Stelle soll nur eine kurze Einführung in das Modell gegeben werden. Für eine detaillierte Herleitung sei auf die entsprechende Literatur verwiesen [26, 27]. Bei der Beschreibung des Systems Atom-Laserfeld wird die spontane Emission zunächst außer Betracht gelassen. Damit setzt sich der Hamiltonoperator \mathbf{H}_{AL} des Systems aus den Hamiltonoperatoren \mathbf{H}_A des Atoms und \mathbf{H}_L des Laserfeldes, sowie der Kopplung \mathbf{V}_{AL} von Atom und Laserfeld zusammen.

$$\mathbf{H}_{AL} = \mathbf{H}_A + \mathbf{H}_L + \mathbf{V}_{AL} \tag{3.1}$$

Ungekoppelte Zustände von Atom und Laserfeld Zunächst werde die Kopplung von Atom und Laserfeld vernachlässigt ($\mathbf{V}_{AL} = \mathbf{0}$). Der Hamiltonoperator eines 2-Niveau-Atoms mit Grundzustand $|g\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ lautet

$$\mathbf{H}_{A} = \hbar\omega_{0} \left| e \right\rangle \left\langle e \right| \quad , \tag{3.2}$$

wobei ω_0 die Resonanzfrequenz des Übergangs ist. Der Hamiltonoperator des Laserfeldes mit der Laserfrequenz ω_L lautet

$$\mathbf{H}_{L} = \hbar\omega_{L} \left(\mathbf{a}^{\dagger} \mathbf{a} + \frac{1}{2} \right) \tag{3.3}$$

mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \mathbf{a}^{\dagger} und \mathbf{a} . Die Eigenzustände des Operators $\mathbf{H}_A + \mathbf{H}_L$ werden durch zwei Quantenzahlen charakterisiert, nämlich die Zahl Nder Laserphotonen und den atomaren Zustand e oder g. Die Energien der Eigenzustände $|g, N + 1\rangle$ und $|e, N\rangle$ liegen jeweils paarweise dicht beieinander und unterscheiden sich nur um $\hbar\Delta_L = \hbar(\omega_L - \omega_0)$. Benachbarte Zustandspaare sind um die Energie eines Laserphotons $\hbar\omega_L$ verschoben (Abb. 3.1).

 $^{^{2}}$ Der Name "Dressed Atom" geht aus der Vorstellung eines Atoms, welches von Laserphotonen umgeben bzw. damit bekleidet ist (engl. *dressed*), hervor.


Abbildung 3.1: Eigenzustände des ungekoppelten Systems Atom-Laserfeld nach dem Dressed Atom - Modell. Die Bezeichnung sind gültig für ein blauverstimmtes Laserfeld ($\Delta_L = \omega_L - \omega_0 > 0$).

Kopplung von Atom und Laserfeld Der Kopplungsoperator zwischen Atom und Laserfeld lautet in der Dipolnäherung

$$\mathbf{V}_{AL} = -\vec{\mathbf{d}} \cdot \vec{\mathbf{E}} , \qquad (3.4)$$

wobei der Dipoloperator als

$$\vec{\mathbf{d}} = \vec{d}_{eg} \left(\left| e \right\rangle \left\langle g \right| + \left| g \right\rangle \left\langle e \right| \right)$$
(3.5)

mit reellem \vec{d}_{eg} angenommenen wird. Für den elektrische Feldstärke - Operator gilt

$$\vec{\mathbf{E}} = \vec{\varepsilon} \sqrt{\frac{\hbar\omega_L}{2\epsilon_0 V}} \left(\mathbf{a} + \mathbf{a}^{\dagger} \right) , \qquad (3.6)$$

mit der Polarisation $\vec{\varepsilon}$ des Lasers, dem Volumen V der (homogenen) Lasermode und der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 . Damit gilt für den Kopplungsoperator schließlich

$$\mathbf{V}_{AL} = \chi \left(|e\rangle \langle g| + |g\rangle \langle e| \right) \left(\mathbf{a} + \mathbf{a}^{\dagger} \right)$$
(3.7)

$$= \underbrace{\chi\left(\left|e\right\rangle\left\langle g\right|\mathbf{a}+\left|g\right\rangle\left\langle e\right|\mathbf{a}^{\dagger}\right)}_{\mathbf{V}_{\mathrm{res}}} + \underbrace{\chi\left(\left|e\right\rangle\left\langle g\right|\mathbf{a}^{\dagger}+\left|g\right\rangle\left\langle e\right|\mathbf{a}\right)}_{\mathbf{V}_{\mathrm{nres}}}$$
(3.8)

mit der Kopplungskonstante $\chi = -\vec{d}_{eg}\vec{\epsilon}\sqrt{\frac{\hbar\omega_L}{2\epsilon_0 V}}$. Bei optischen Frequenzen dominiert bei weitem die resonante Kopplung durch \mathbf{V}_{res} , welche Zustandspaare $|g, N+1\rangle$ und $|e, N\rangle$ koppelt. Das entsprechende Matrixelement lautet mit $N \gg 1$:

$$\langle e, N | V_{\text{res}} | g, N+1 \rangle = \chi \sqrt{N+1} \cong \chi \sqrt{N}$$

$$(3.9)$$

Die nichtresonante Kopplung \mathbf{V}_{nres} mit einer Energieseparation von $\pm 2\hbar\omega_L$ kann hier vernachlässigt werden (sog. rotating wave approximation [27]). **Dressed States** Durch die resonante Kopplung \mathbf{V}_{res} von Atom und Laserfeld erhält das System die neuen, gestörten Eigenzustände $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$, welche *Dressed States* genannt werden (Abb. 3.2). Die Zustände $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$ sind Mischzustände der ungestörten Zustände $|g, N + 1\rangle$ und $|e, N\rangle$. Man kann zeigen, dass sie symmetrisch um die ungestörten Zustände angeordnet sind, und durch den *Light Shift*

$$\hbar \sqrt{\Delta_L^2 + \Omega_R^2} \tag{3.10}$$

separiert sind [27]. Für die Rabi-Frequenz Ω_R gilt:

$$\Omega_R = \chi \sqrt{N} \tag{3.11}$$

Die Rabi-Frequenz kann zu $\Omega_R = \Gamma \sqrt{\frac{I}{2I_{\text{sat}}}}$ umgerechnet werden [80], wobei Γ die spektrale Breite des atomaren Übergangs, I_{sat} die Sättigungsintensität des Atoms, und I die Intensität des Lasers ist.



Abbildung 3.2: Durch Kopplung des Atoms an das Laserfeld (Intensität > 0) erhält das System die neuen, gestörten Eigenzustände $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$, die so genannten *Dressed States*. Die Bezeichnung sind gültig für ein blauverstimmtes Laserfeld ($\Delta_L = \omega_L - \omega_0 > 0$).

3.1.1.2 Atom im gepulsten Laserfeld

In einem gepulsten Laserfeld ändert sich zeitlich periodisch die Laserintensität $I(\vec{r},t)$ und damit auch die Rabifrequenz $\Omega_R(\vec{r},t)$. Nach dem *Dressed Atom* - Modell geht eine Änderung von Ω_R einher mit einer Niveauverschiebung der *Dressed States* $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$, wie in Abbildung 3.3 dargestellt. Bei der Beschreibung der atomaren Dynamik während eines Pulses kann die spontane Emission vernachlässigt werden, solange die Lebensdauer des angeregten Zustandes klein gegen die Pulslänge ist.

Adiabatische Bedingung Im Folgenden werden nahresonante Laserfelder mit $\Delta_L = \omega_L - \omega_0 \neq 0$ betrachtet, bei denen die Energien der *Dressed States* $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$ immer verschieden sind. Bei einem blauverstimmten Pulslaser entspricht der energiereichere *Dressed State* $|1(N)\rangle$ zwischen den Pulsen ($\Omega_R(t) = 0$) dem atomaren Grundzustand $|g, N + 1\rangle$ mit der Energie U_0 (Abb. 3.3). Bei Rotverstimmung dagegen entspricht der energetisch niedrigere Zustand $|2(N)\rangle$ dem atomaren Grundzustand. Der jeweils andere *Dressed*



Abbildung 3.3: Die Dressed States $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$ ändern sich im blauverstimmten, gepulsten Laserfeld $(\Delta_L > 0)$ zeitlich periodisch (durchgezogene Linien). Zwischen den Pulsen $(\Omega_R(t) = 0)$ entspricht der energiereichere Dressed State $|1(N)\rangle$ dem atomaren Grundzustand $|g, N + 1\rangle$ mit der Energie U_0 , und $|2(N)\rangle$ entspricht $|e, N\rangle$. Die effektive potenzielle Energie U_{eff} des Atoms (gestrichelte Linie) resultiert aus einer zeitlichen Mittelung des gepulsten Potenzials $|1(N)\rangle$.

State entspricht zwischen den Pulsen dem angeregten Zustand des Atoms $|e, N\rangle$. Befindet sich das Atom vor Beginn eines blauverstimmten Pulszuges in seinem Grundzustand $|1(N)\rangle$ (rotverstimmt: $|2(N)\rangle$), so wird es auch während und nach einem Puls in diesem Zustand verbleiben, solange die adiabatische Bedingung [88, 89]

$$\left|\frac{\dot{\Omega}_R}{\Omega_R}\right| \ll \Delta_L \tag{3.12}$$

erfüllt ist³. Die adiabatische Bedingung verknüpft die Verstimmung Δ_L des Laserfeldes mit der zeitlichen Änderung der Rabifrequenz Ω_R und somit der Intensität des Laserstrahls. Da $|\dot{\Omega}_R/\Omega_R|$ eng mit der spektralen Breite des Pulslasers zusammen hängt, kann die adiabatische Bedingung so interpretiert werden, dass die Verstimmung des Pulslasers von der Resonanzfrequenz ω_0 ausreichend groß sein muss, um spektralen Überlapp zwischen Pulslaser und atomarer Resonanz bzw. damit verbundene dissipative Prozesse zu verhindern. Für den hier eingesetzten Pulslaser der Pulsform $I(t) = I_{\text{max}} \operatorname{sech}^2(1, 76 t/\tau_P)$, mit der vollen Halbwertsbreite τ_P , kann die Änderung der Rabi-Frequenz zu $|\dot{\Omega}_R/\Omega_R| \leq 1, 76/\tau_P$ abgeschätzt werden. Dadurch lautet die adiabatische Bedingung in unserem Experiment

$$|\tau_P \Delta_L| \gg 1,76 \tag{3.13}$$

Kraft auf das Atom Die Energie $U(\vec{r},t)$ des Systems wird während eines Pulses je nach Verstimmung des Lasers um die Energie $U'(\vec{r},t)$ angehoben ($\Delta_L > 0$) bzw. abgesenkt ($\Delta_L < 0$):

$$U'(\vec{r},t) = U(\vec{r},t) - U_0 = \frac{\Delta_L}{|\Delta_L|} \frac{\hbar}{2} \left(\sqrt{\Delta_L^2 + \Omega_R^2(\vec{r},t)} - \Delta_L \right)$$
(3.14)

³Ist die adiabatische Bedingung verletzt, so kommt es zu komplizierten Umbesetzungen der Zustände $|1(N)\rangle$ und $|2(N)\rangle$, die sich einer einfachen Analyse entziehen [88]. Folglich befindet sich das Atom in diesem Fall vor Beginn des nächsten Pulses nicht zwingend in seinem Grundzustand, so dass die Besetzungsverteilung des Atoms auch von den vorangegangenen Pulsen abhängt.

Diese innere Energie des Systems kann als potenzielle Energie des Atoms im einem nahresonanten, gepulsten Laserfeld aufgefasst werden, welches die adiabatischen Bedingung (3.12)erfüllt. Folglich wirkt auf das Atom eine gepulste Kraft

$$\vec{F}(\vec{r},t) = -\vec{\nabla}U'(\vec{r},t) = -\frac{\Delta_L}{|\Delta_L|} \frac{\hbar}{4} \frac{\vec{\nabla}\Omega_R^2(\vec{r},t)}{\sqrt{\Delta_L^2 + \Omega_R^2(\vec{r},t)}} .$$
(3.15)

Durch jeden Laserpuls wird schließlich auf das Atom der Impuls

$$\Delta p(\vec{r}) = \int_{T_P} F(\vec{r}, t) dt \tag{3.16}$$

übertragen, wobei T_P die Dauer eines Pulszyklus ist.

Zeitliche Mittelung Die Berechnung einer atomaren Trajektorie durch ein gepulstes Laserfeld wird deutlich vereinfacht, wenn anstelle der gepulsten Kraft $F(\vec{r}, t)$ die über einen Pulszyklus gemittelte Kraft

$$\overline{\vec{F}}(\vec{r}) = \frac{\Delta p(\vec{r})}{T_P} \tag{3.17}$$

verwendet wird. Diese Vereinfachung ist gerechtfertigt, solange sich die Kraft $\vec{F}(\vec{r})$ bei aufeinander folgenden Pulsen nur geringfügig ändert, was bei der Repetitionsrate $1/T_P$ des eingesetzten Pulslasers von 1/12,5 ns = 80 MHz sehr gut erfüllt ist. Die gemittelte Kraft $\vec{F}(\vec{r})$ kann aus dem effektiven Dipol-Potenzial U_{eff} abgeleitet werden:

$$\vec{F}(\vec{r}) = -\vec{\nabla}U_{\text{eff}}(\vec{r}) \tag{3.18}$$

mit
$$U_{\text{eff}}(\vec{r}) = \frac{\Delta_L}{|\Delta_L|} \frac{\hbar}{2T_P} \int_{\tilde{T}_P} \left(\sqrt{\Delta_L^2 + \Omega_R(\vec{r}, t)^2} - \Delta_L \right) dt .$$
 (3.19)

Abbildung 3.4 zeigt die Abhängigkeit des effektiven Potenzials U_{eff} von \bar{I}/Δ_L für verschiedene Verstimmungen Δ_L bei einer Pulslänge $\tau_P = 80$ ps. Im Grenzfall $\Omega_R \ll \Delta_L$, äquivalent zu $I_{\text{max}}(\vec{r}) \ll I_{\text{sat}} 2(\Delta_L/\Gamma)^2$, wird Gleichung (3.19) in 1. Ordnung Taylor genähert zu

$$U_{\rm eff}(\vec{r}) \approx \frac{\hbar\Gamma^2}{8\Delta_L} \frac{\bar{I}(\vec{r})}{I_{\rm sat}}$$
(3.20)

mit der mittleren Intensität⁴ $\bar{I}(\vec{r}) = T_P^{-1} \int_{\tilde{T}_P} I(\vec{r},t) dt$. Dieser Grenzfall (Abb. 3.4, durchgezogene Linie) stimmt mit dem Potenzial (2.2) für Dauerstrich-Lichtfelder überein. Infolgedessen übt ein gepulstes Laserfeld nahezu die gleiche Kraft auf ein Atom aus wie ein Dauerstrich-Laserfeld mit gleicher mittlerer Intensität \bar{I} und Verstimmung Δ_L . Daher können die Erkenntnisse über die atomoptischen Eigenschaften von Dauerstrich-Lichtmasken (Kap. 2.1.2) auf gepulste Lichtmasken übertragen werden.

$$I_{\rm max} = 0,881 \frac{T_P}{\tau_P} \bar{I} \; .$$

⁴ Der Zusammenhang zwischen Spitzenintensität I_{\max} und mittlerer Intensität \overline{I} lautet bei sech²-Pulsen mit der vollen Halbwertsbreite τ_P



Abbildung 3.4: Effektives Dipol-Potenzial U_{eff} eines gepulsten Lichtfeldes für verschiedene Verstimmungen Δ_L . Zum Vergleich: Die Größe des Potenzials (linke Skala) entspricht der kinetischen Energie eines Cäsium-Atoms mit der Geschwindigkeit v (rechte Skala).

3.1.2 Eigenschaften der gepulsten Lichtmaske

3.1.2.1 Intensitätsverteilung der Lichtmaske

Die im Experiment verwendete Lichtmaske wird durch Rückreflexion eines gepulsten Laserstrahls an einem hochreflektierenden Spiegel erzeugt. Die Interferenz zwischen einfallendem Laserstrahl und reflektiertem Strahl bewirkt eine \sin^2 -förmig modulierte Intensitätsverteilung der Lichtmaske in *x*-Richtung. Die Ausdehnung dieses modulierten Bereichs ist durch die räumliche Länge eines Laserpulses begrenzt.

Im Folgenden wird die Intensitätsverteilung der Lichtmaske detailliert berechnet. Mit der komplexen Amplitude \mathcal{E} gilt für die elektrischen Feldstärken E^+ und E^- der beiden gegenläufigen, gepulsten Laserstrahlen (Spiegel bei x = 0, Wellenzahl $k = \omega_L/c$, sech²-Pulse mit der Halbwertsbreite τ_P)

$$E^{\pm}(\vec{r},t) = \pm \mathcal{E} \cdot e^{-\frac{z^2}{\omega_z^2} - \frac{y^2}{\omega_y^2}} \cdot e^{i(\pm kx - \omega_L t)} \cdot \operatorname{sech}\left(\frac{\pm x/c - t}{0,567\tau_P}\right) .$$
(3.21)

Hier ist die Begrenzung der gaußförmigen Laserstrahlen durch die Strahltaillen $2\omega_z \approx 85 \ \mu \text{m}$ und $2\omega_y \approx 0.8 \text{ mm}$ berücksichtigt. Mit $I_{\text{max}} = \frac{c\varepsilon}{2} |\mathcal{E}|^2$ resultiert die Intensität der beiden interferierenden Wellen aus

$$I(\vec{r},t) = \frac{c\varepsilon}{2} \Big(E^+(\vec{r},t) + E^-(\vec{r},t) \Big) \Big(E^+(\vec{r},t) + E^-(\vec{r},t) \Big)^*$$

$$= I_{\max} \cdot e^{-2\frac{z^2}{\omega_z^2} - 2\frac{y^2}{\omega_y^2}} \Big(\operatorname{sech}^2(\frac{x/c-t}{0.567\tau_P}) + \operatorname{sech}^2(\frac{-x/c-t}{0.567\tau_P}) \\ -2\operatorname{sech}(\frac{x/c-t}{0.567\tau_P}) \cdot \operatorname{sech}(\frac{-x/c-t}{0.567\tau_P}) \cos(2kx) \Big) .$$
(3.22)

In der wichtigen Näherung (3.20) ist das Potenzial der Lichtmaske proportional zur über

einen Pulszyklus gemittelten Intensität $\bar{I}(\vec{r}) = T_P^{-1} \int_{\tilde{T}_P} I(\vec{r},t) dt$, für welche gilt:

$$\bar{I}(\vec{r}) = 2 \,\bar{I}_0 \cdot e^{-2\frac{x^2}{\omega_z^2} - 2\frac{y^2}{\omega_y^2}} \left(1 - \mathcal{A}(x)\cos(2kx) \right) \qquad \text{mit } \mathcal{A}(x) = \frac{4\frac{1.76\,x}{c\,\tau_P}}{e^{\frac{21.76\,x}{c\,\tau_P}} - e^{-2\frac{1.76\,x}{c\,\tau_P}}} \,. \tag{3.24}$$

Hier ist \bar{I}_0 die mittlere Intensität im Zentrum des gepulsten Laserstrahls. Die gemittelte Intensität der Lichtmaske wird demnach mit der in Abbildung 3.5 dargestellten Amplitude $\mathcal{A}(x)$ sin-förmig moduliert. ($\mathcal{A}(x)$ gibt zugleich den Kontrast der Lichtmaske an.) Am Ort des Spiegels (x = 0) gilt $\mathcal{A}(0) = 1$, d. h. der Kontrast der Lichtmaske beträgt 100 %. Mit wachsender Entfernung vom Spiegel (x > 0) sinkt die Amplitude $\mathcal{A}(x)$ bzw. der Kontrast der Lichtmaske. Dies resultiert aus dem zeitlichen Versatz zwischen ankommendem und gespiegeltem Puls. Am Ort des Atomstrahls ($x \approx 1$ mm) und bei den eingesetzten 30-80 ps - Pulsen ist die Amplitude $\mathcal{A}(1 \text{ mm}) \geq 0.98$. Diese geringe Absenkung des Kontrastes der Lichtmaske ist im Experiment vernachlässigbar.



Abbildung 3.5: Darstellung der Modulationsamplitude $\mathcal{A}(x)$ der Lichtmaske.

3.1.2.2 Atomoptische Eigenschaften der Lichtmaske

Thermisch verteilte Cäsium-Atome mit einer mittleren Geschwindigkeit von 260 m/s wechselwirken mit ca. 65 Laserpulsen der beschriebenen Lichtmaske, so dass die auf das Atom wirkende Kraft gemittelt werden kann. Die adiabatische Bedingung (3.12) vorausgesetzt, können die atomoptischen Eigenschaften der Lichtmaske daher mit dem effektiven Lichtmasken-Potenzial (3.19) berechnet werden. Dieses ist in der Umgebung lokaler Minima der Laserintensität in 1. Ordnung Taylor immer harmonisch. Dadurch werden Atome, analog zu Dauerstrich-Lichtmasken, durch eine blauverstimmte, gepulste Lichtmaske in lokalen Minima der Lichtmaske fokussiert. Die in parallelen Linien mit einer Periode von $\lambda/2$ angeordneten Intensitätsminima der Lichtmaske nach Gl. (3.23) führen dahinter zu einer entsprechenden periodischen Linienstruktur in der atomaren Flussdichteverteilung.

Abbildung 3.6 zeigt mit dem Potenzial (3.19) berechnete atomare Trajektorien in einer Periode der gepulsten optischen Stehwelle. Zum Vergleich sind simulierte atomare Trajektorien in einer Dauerstrich-Stehwelle mit gleicher mittlerer Leistung und Verstimmung eingezeichnet. Die Atome werden in beiden Fällen in das Wellental bei x = 0 beschleunigt. Der Fokus derjenigen Atomtrajektorien, welche die Lichtmaske nahe des Intensitätsminimums passieren, liegt mit den gewählten Parametern jeweils bei z = 0, da das mittlere Puls-Potenzial (3.20) im Grenzfall niedriger Laserintensität identisch mit dem Dauerstrich-Potenzial (2.4) ist. Achsferne Atomtrajektorien werden dagegen bei z > 0 fokussiert, was als sphärische Abberation einer Stehwellen-Linse interpretiert werden kann [75, 81]. Es fällt auf, dass die sphärische Abberation der gepulsten Lichtmaske größer ist als im Dauerstrich-Fall. Dies resultiert aus der Abflachung von U_{eff} bei hohen Pulsintensitäten (Abb. 3.4).



Abbildung 3.6: Durchgezogene Linie: Simulation atomarer Trajektorien ($v_z = 260 \text{ m/s}$) in einer Periode der gepulsten Lichtmaske (Schattierung) mit $\tau_P = 80 \text{ ps}$, $\bar{P} = 350 \text{ mW}$ und $\Delta_L = 20 \text{ GHz}$. Gestrichelte Linie: Simulierte atomare Trajektorien in einer Dauerstrich-Lichtmaske mit gleicher mittlerer Leistung und Verstimmung.

3.2 Der experimentelle Aufbau

Die Experimente mit der gepulsten Stehwelle wurden an der selben Cäsium-Atomstrahlapparatur durchgeführt wie die Experimente zur holografischen Erzeugung von Lichtmasken (Kap. 2). Für eine detaillierte Beschreibung der Vakuumapparatur sei daher auf Kapitel 2.3.1 verwiesen. Die gepulste Lichtmaske wird durch Reflexion des Pulslasers an einem hochreflektierenden Spiegel erzeugt, der anstelle des Lithiumniobat-Kristalls in die Lithografie-Einheit (Kap. 2.3.2) integriert wurde.

3.2.1 Die Laser

Zur Durchführung des Experiments werden mehrere Laser mit unterschiedlichen Leistungen und Wellenlängen benötigt. Neben den Diodenlasern für die optische Melasse und für den Fluoreszenz-Nachweis der Atome werden zwei weitere Diodenlaser zum optischen Pumpen der Cäsiumatome in den $|F = 4, m_F = 4\rangle$ -Zustand eingesetzt (Spinpolarisation). Da die Übergangswahrscheinlichkeit des Überganges $|F = 4, m_F = 4\rangle \leftarrow |F' = 5, m'_F = 5\rangle$ innerhalb der Cäsium D₂-Linie am größten ist, wird die Wechselwirkung zwischen einem derart präparierten Atom und einer σ^+ -polarisierten Lichtmaske maximiert (Anh. B.1). Die gepulste Lichtmaske wird mit einem 1,5 W Titan-Saphir Pulslaser erzeugt, der in Kapitel 3.2.2

Laser	Übergang	Verstimmung	Leistung	
Kühllaser (Melasse)	$F = 4 \rightarrow F' = 5$	-1015 MHz	22 mW	
Rückpumper (Melasse)	$F = 3 \rightarrow F' = 4$		$450 \ \mu W$	
Pumplaser (Spinpolarisation)	$F = 4 \rightarrow F' = 4$		$31 \ \mu W$	
Rückpumper (Spinpolarisation)	$F = 3 \rightarrow F' = 4$		$380 \ \mu W$	
Nachweislaser	$F = 4 \rightarrow F' = 5$		2,5 mW	
gepulster Lichtmasken-Laser	$F = 4 \rightarrow F' = 5$	0200 GHz	0460 mW	

Tabelle 3.1: Liste der im Experiment benötigten Laser. Alle Laser emittieren nahe der Cäsium D_2 Linie bei 852,1 nm. Angegeben sind typische Leistungen der Laserstrahlen am Experiment.

detaillierter beschrieben ist. Die Wellenlängen aller Laser liegen im Bereich der Cäsium D_2 -Linie mit einer Wellenlänge von 852,1 nm. Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht über die am Experiment erforderlichen Laser an.

Die Laser befinden sich auf einem schwingungsgedämpften optischen Tisch. Der Transport zum Experiment erfolgt per Einmoden-Glasfaser. Alle Laserstrahlen bis auf den Pulslaser werden mit gitterstabilisierten Diodenlasern in Littrow-Anordnung erzeugt (Abb. 3.7). Als Wellenlängenreferenzen dienen im Experiment Dopplerverbreiterung-freie Sättigungsbzw. Polarisationsspektroskopien in Cs-Dampfzellen [107, 118]. Sie liefern Regelsignale für elektronische Rückkopplungen auf die entsprechenden Laser zur Wellenlängenstabilisierung [119].

Die Rückpumper für Melasse und Spinpolarisation werden über einen Strahlteiler vom



Abbildung 3.7: Erzeugung und Stabilisierung der verschiedenen zum Betrieb des Experiments benötigten Diodenlaser.

gleichen Diodenlaser geliefert. Der Kühllaser und der Rückpumper der optischen Melasse werden über einen teildurchlässigen Spiegel in eine gemeinsame Glasfaser eingekoppelt, ebenso wie der Pumplaser und der Rückpumper für die Spinpolarisation. Der mit einer präzisen Polarisationsspektroskopie auf den $|F = 4\rangle \Rightarrow |F = 5\rangle$ stabilisierte Referenzlaser wird zur Feststellung der Verstimmung des Kühllasers und des Lichtmasken-Lasers verwendet. Dazu wird ein schwacher Strahl des jeweiligen Lasers zusammen mit dem Referenzlaser auf einer schnellen Fotodiode überlagert. Die Frequenz der entstehenden Schwebung entspricht der Frequenzdifferenz der beiden Laser.

3.2.2 Der Pulslaser

Der im Experiment eingesetzte Pulslaser (Abb. 3.8) ist ein modengekoppelter Titan-Saphir (Ti:Al₂O₃) Laser (Modell *Tsunami* der Firma *Spectra-Physics*), der Pulse mit Pulslängen ab 30 ps bei einer maximalen Ausgangsleistung von 1,5 W (bei 852 nm) erzeugt. Die Puls-Repetitionsrate beträgt 80 MHz. Der Laser wird von einem diodengepumpten, frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser mit einer maximalen Ausgangsleistung von 10,5 W optisch gepumpt (Modell *Millenia X* der Firma *Spectra-Physics*). Ti:Al₂O₃-Laser zeichnen sich durch eine sehr große Verstärkungsbandbreite aus, die im Prinzip eine Lasertätigkeit im Bereich von 700 nm - 1100 nm ermöglicht. Praktisch wird die Wellenlängenbandbreite jedoch durch den verwendeten Spiegelsatz eingeschränkt. Mit dem hier verwendeten Spiegelsatz ist die Mittenfrequenz des Pulslaser durch ein Lyot-Filter im Bereich von 780 nm bis 900 nm kontinuierlich durchstimmbar.



Abbildung 3.8: Erzeugung des gepulsten Laserstrahls. Das Fabry-Perot-Interferometer sowie der Autokorrelator dienen der Messung von Verstimmung bzw. Pulslänge.

Dispersion in den verschiedenen optischen Komponenten im Resonator bewirkt ein "Auseinanderlaufen" des Pulses nach mehreren Umläufen, so dass die Pulslänge durch Dispersion nach unten limitiert wird. Die normale Dispersion $(\frac{\partial n}{\partial \lambda} < 0)$ der vorhandenen optischen Komponenten im Resonator wird daher durch ein Gires-Tournois-Interferometer (GTI) [43] mit anormaler Dispersion $(\frac{\partial n}{\partial \lambda} > 0)$ kompensiert. Das GTI ist verstellbar und ermöglicht damit eine Änderung der Pulslänge.

Messung der Pulslänge Die ps-Pulse variieren zeitlich so schnell, dass die zeitliche Änderung der Intensität nicht direkt, z. B. mit einer Photodiode, gemessen werden kann. Daher bedient man sich eines Tricks, nämlich der Abtastung eines Pulses mit sich selber, einer so genannten Autokorrelation. In dem eingesetzten Autokorrelator FR-103XL der Firma *Femtochrome* wird der gepulste Laserstrahl⁵ an einem halbdurchlässigen Spiegel zunächst geteilt. Die Teilstrahlen passieren nun optische Wege der Länge L_1 und L_2 , bevor sie in einem nichtlinearen Kristall zur Frequenzverdopplung überlagert werden. Die Leistung des erzeugten frequenzverdoppelten Lichtes hängt vom Grad der Überlagerung der beiden Pulse ab, die vom zeitlichen Versatz $\Delta t = \frac{\Delta L}{c} = \frac{|L_1 - L_2|}{c}$ der beiden Pulse, von der Pulsform, sowie von der Pulslänge τ_P abhängt.

Die Weglänge L_1 eines Teilstrahls wird mechanisch auf einer ms-Zeitskala periodisch variiert (Sägezahn). Dadurch kann das Messsignal (die Leistung des frequenzverdoppelten Lichts) direkt auf ein Oszilloskop gegeben werden (Abb. 3.9). Nach Eichung der Zeitskala kann die Pulslänge direkt vom Oszilloskop abgelesen werden.



Abbildung 3.9: Das Autokorrelator-Signal auf dem Oszilloskop. Durch Eichung kann die ms-Zeitskala des Oszilloskops auf die ps-Skala der Pulse transformiert werden.

Messung der Verstimmung Das Modenspektrum des Pulslasers wird mit einem Fabry-Perot-Interferometer (FPI) gemessen (Abbildung 3.8). Die Resonatorlänge dieses FPI wird durch einen Piezo-Kristall variiert, der mit einer Sägezahnspannung U_{Piezo} von 0 bis maximal 380 V betrieben wird. Die transmittierte Laserleistung wird von einer Photodiode aufgenommen und auf ein Oszilloskop gegeben. Der freie Spektralbereich des FPI von über 40 GHz ermöglicht die Aufnahme des gesamten Puls-Modenspektrum des Lasers, welches sich für 30 ps-Pulse über etwa 30 GHz erstreckt. Die hohe Finesse $F_{eff} \geq 1300$ erlaubt zudem, die einzelnen Lasermoden, welche Abständen von 80 MHz haben, aufzulösen. Bei Durchgang des Pulslasers durch eine Cs-Dampfzelle werden Lasermoden mit Frequenzen im Bereich der dopplerverbreiterten Hyperfeinübergänge der Cs-D₂-Linie absorbiert. Im FPI-Modenspektrum erscheinen die Übergänge aus den beiden Hyperfeingrundzuständen $|F = 3\rangle$ und $|F = 4\rangle$ daher als Minima (Abb. 3.10).

Die konstanten Modenabstände des Pulslaser von 80 MHz ermöglichen eine Eichung der Piezospannung U_{Piezo} auf Frequenzabstände $\delta \omega (U_{\text{Piezo}})$. Durch Messung der Piezospannungen U_{Piezo}^L bei der Mittenfrequenz des Puls-Modenspektrums und U_{Piezo}^0 am Absorptions-

 $^{^5 {\}rm Zur}$ Messung der Pulslänge werden ca. 4% der Ausgangsleistung des Pulslasers mit einem Glasplättchen abgezweigt und in den Autokorrelator eingekoppelt.



Abbildung 3.10: Das Modenspektrum des Pulslasers auf Resonanz. Man sieht die dopplerverbreiterten Absorptionsprofile der Übergänge aus den Hyperfeinzuständen $|F = 3\rangle$ und $|F = 4\rangle$. Der Modenabstand beträgt 80 MHz.

minimum des $|F = 4\rangle \rightarrow |F' = 5\rangle$ -Übergangs der Cäsium D₂-Linie kann die Verstimmung Δ_L zwischen Mittenfrequenz ω_L des Pulslaser und der atomaren Resonanz ω_0 berechnet werden:

$$\Delta_L = \delta\omega \left(U_{\text{Piezo}}^L \right) - \delta\omega \left(U_{\text{Piezo}}^0 \right) \tag{3.25}$$

Das Messverfahren ermöglicht die Bestimmung von Δ_L im verwendeten Frequenzbereich von 0..200 GHz mit einer Genauigkeit von etwa 5%.

3.2.3 Die Präparation der Lichtmaske

Die gepulste Lichtmaske wird durch Rückreflexion des Laserstrahls an einem im Vakuum befindlichen, hochreflektierenden Spiegel erzeugt. Der Pulslaser wird außerhalb der Vakuumapparatur optisch präpariert und gelangt durch ein Fenster in der Vakuumapparatur zum Spiegel (Abb. 3.11). Der Pulslaser wird per polarisationserhaltende Glasfaser zum Experiment geleitet. Experimentell konnte keine Änderung der Pulsbreite oder Pulsform durch die Glasfaser festgestellt werden. Die Linse des Faser-Auskopplers ist so eingestellt, dass der Fokus des gaußschen Laserstrahls auf dem Spiegel liegt (Strahltaille $2w_y$ im Fokus $\approx 1,6$ mm). In z-Richtung wird der Durchmesser des Laserstrahls durch eine Zylinderlinse mit der Brennweite f = 25 cm reduziert, um eine hohe Laserintensität in der Lichtmaske zu erreichen. Der Abstand der Zylinderlinse vom Kristall wurde so berechnet, dass der Fokus in z-Richtung ebenfalls auf dem Kristall liegt (Strahltaille $2w_z = 85 \ \mu m$).

Die Ausdehnung der Lichtmaske ist in *y*-Richtung durch die Strahltaille des Laserstrahls von $2w_y \approx 1.6$ mm begrenzt. Die Ausdehnung der Lichtmaske in *x*-Richtung ist durch die halbe räumliche Ausdehnung eines Laserpulses von $c \cdot \tau_P/2$ bestimmt, welche mindestens $c \cdot 30/2$ ps = 4.5 mm beträgt. Die Dicke der Lichtmaske entspricht der Strahltaille in *z*-Richtung von $2w_z$.

Der Pulslaser wird so geleitet, dass der gesamte Atomstrahl ($\emptyset = 1 \text{ mm}$) von der gepulsten Lichtmaske abgedeckt wird, der in etwa 1 mm Abstand vom Spiegel in z-Richtung



Abbildung 3.11: Optische Präparation der gepulsten Lichtmaske.

propagiert. Weiter wird der Einfallswinkel des Lasers auf den im Vakuum befindlichen Spiegel so eingestellt, dass der Laserstrahl genau in sich zurück fällt, um optimalen Kontrast in der Lichtmaske zu erzeugen. In den Strahlengang des Pulslaser ist eine dicke Planplatte mit Antireflex-Beschichtung eingebaut. Durch Verkippung kann die Strahllage in z-Richtung verschoben werden, ohne Winkel oder x-Lage des Laserstrahls zu verändern. Zur Maximierung der Wechselwirkung zwischen Atomen und Lichtmaske wird der Pulslaser σ^+ polarisiert.

3.3 Experimentelle Untersuchungen

Die Wirkung der optischen Dipolkraft in einer gepulsten Lichtmaske wird mit zwei unterschiedlichen Methoden untersucht. Bei der ersten Methode gibt die Untersuchung der Winkelverteilung eines Atomstrahl nach dem Durchgang durch die gepulste Lichtmaske Aufschluss über die Lichtkräfte, die auf die Atome wirken. Diese Methode gibt zwar nur indirekte Informationen über die atomaren Flussdichteänderungen auf Nanometer-Skala, dafür erlaubt sie eine sehr schnelle experimentelle Untersuchung der Einflüsse von Pulslänge, Verstimmung und Intensität der Lichtmaske auf ihre atomoptischen Eigenschaften. Bei der zweiten Methode wird ein direkter Nachweis der Flussdichteänderung des Atomstrahls geführt, indem die atomare Flussdichteverteilung mittels eines hochauflösenden lithografischen Verfahrens auf ein Substrat übertragen wird.

In beiden Fällen wird der thermische Cäsium-Atomstrahl (mittlere Geschwindigkeit $\bar{v} \approx 260 \text{ m/s}$ bei T = 400 K) vor Eintritt in die Stehwelle durch optische subdoppler Kühlmethoden (Polarisationsgradienten-Kühlung in lin⊥lin-Konfiguration [83, 100]) transversal gekühlt (Abb. 3.12). Die Divergenz des mit Blenden auf 1 mm begrenzten Atomstrahls sinkt dadurch auf unter 1 mrad. Weiter wird der Atomstrahl optisch mit den beiden, σ^+ -polarisierten Spinpolarisationslasern in den $|F = 4, m_F = 4\rangle$ -Grundzustand gepumpt. Das verwendete Pumpschema [5] vermeidet unnötiges transversales Aufheizen des Atomstrahls, da der $|F = 4, m_F = 4\rangle$ -Grundzustand von den beiden Lasern nicht angeregt wird (Dunkelzustand), und die Zahl der Absorption- Emissionszyklen somit auf ein Minimum beschränkt ist. Die derart präparierten Cäsiumatome wechselwirken nun mit der σ^+ -polarisierten Lichtmaske über den starken Übergang $|F = 4, m_F = 4\rangle \rightarrow |F' = 5, m_F = 5\rangle$ der D_2 -Linie, wo-durch die optische Dipolkraft maximiert wird (Anh. B.1).

3.3.1 Analyse der atomaren Winkelverteilung

Aufgrund der transversalen Beschleunigung der Atome im Potenzial der gepulsten Lichtmaske (Gl. 3.19) divergiert der Atomstrahl dahinter stark in x-Richtung (Abb. 3.12). Folglich ist in einigem Abstand von der Stehwelle im Profil des Atomstrahls eine deutliche Aufweitung feststellbar. Die dem zugrunde liegende charakteristische atomare Winkelverteilung hinter der Stehwelle ermöglicht Aussagen über die Wechselwirkung der Atome in der gepulsten Lichtmaske.



Abbildung 3.12: Schematische Darstellung des Experiments zur Messung des atomaren Winkelverteilung hinter der gepulsten Lichtmaske. Die Lichtmaske entsteht durch Reflexion des Pulslasers (Leistung P = 0...460 mW, Verstimmung $\Delta_L = 0...2\pi \cdot 200$ GHz, Pulslänge $\tau_P = 30...80$ ps) am Spiegel. Der Spiegel ist um $\beta = 1$ mrad gegen die Atomstrahlachse geneigt, um aussagekräftige Winkelverteilungen zu erhalten.

Es zeigt sich, dass die Aussagekraft der atomaren Winkelverteilung wesentlich verbessert wird, wenn die Lichtmaske um einen kleinen Winkel $\beta = 1$ mrad gegenüber dem Atomstrahl verkippt ist⁶. In diesem Fall variiert die Verteilung nämlich sehr stark mit der Höhe des Stehwellen-Potenzials, während bei einer exakt senkrechten Lichtmaske sehr früh eine Sättigung der Atomstrahl-Aufweitung durch Oszillation der Atome innerhalb einer $\lambda/2$ -Periode eintreten würde. In der atomaren Winkelverteilung erscheint bei schiefer Lichtmaske ein charakteristisches zweites Maximum bei einem Winkel von $\approx -\beta$, da viele Atome quasi an den Potenzialwänden des Lichtmasken-Potenzials reflektiert werden (Abb. 3.13).

Zur experimentellen Bestimmung der Winkelverteilung wird der Atomstrahl durch eine zusätzliche Schlitzblende in x-Richtung auf 0,1 mm begrenzt. In diesem Fall spiegelt die räumliche Verteilung der Atome in der Beobachtungszone (1,24 m Abstand von der Lichtmaske) direkt die atomare Winkelverteilung wieder, weil die Breite des Atomstrahls am Ort der Lichtmaske gegenüber der Aufweitung im weiteren Strahlverlauf vernachlässigt werden

⁶Der durch den kleinen Winkel β verursachte Dopplereffekt ist gegenüber der großen Verstimmung Δ_L des Lasers von der atomaren Resonanz vernachlässigbar.



Abbildung 3.13: (a) Simulierte atomare Trajektorien durch gepulste Lichtmaske (P = 400 mW, $\Delta_L = 2\pi \cdot 30 \text{ GHz}$, $\tau_P = 80 \text{ ps}$). Die Lichtmaske ist hier zur Verdeutlichung um den großen Winkel $\beta = 2,5 \text{ mrad}$ gegen den Atomstrahl verkippt. Einige Atomtrajektorien werden durch die Potenzialwälle der Lichtmaske umgebogen, so dass ein zweites Maximum in der Winkelverteilung (b) des Atomstrahls 1,24 m hinter der Lichtmaske auftritt. Zur besseren Darstellung ist der Atomstrahl hier monochromatisch ($\bar{v} = 250 \text{ m/s}$) und erstreckt sich nur über 4 Perioden der Stehwelle.

kann. Die Atome durchfliegen in der Beobachtungszone einen resonanten Lichtteppich. Das entstehende Fluoreszenzlicht wird mit einer CCD-Kamera von oben detektiert.

Abbildung 3.14 zeigt ausgewählte, gemessene atomare Winkelverteilungen (ausgefüllte Flächen) nach Durchgang des Atomstrahls durch eine Lichtmaske mit der Verstimmung $\Delta_L = 2\pi \cdot 30$. Für einen Vergleich der gemessenen Verteilungen mit den theoretischen Erwartungen wird der Durchgang des thermischen Atomstrahls durch eine Lichtmaske mit den Parametern des Experiments simuliert. Dazu werden jeweils 100.000 Atomtrajektorien, die den thermischen Atomstrahl repräsentieren, durch Integration der Bewegungsgleichungen nach (3.18) berechnet. Abbildung 3.14a zeigt eine ausgezeichnete Übereinstimmung von gemessenen und simulierten (gestrichelte Linie) atomaren Winkelverteilungen bei einer Pulslänge von $\tau_P = 80$ ps und allen verfügbaren Leistungen des Pulslasers. Dies bestätigt das entwickelte Modell über die gepulste Dipolkraft im untersuchten Parameterraum.

Bei kurzen Pulslängen τ_P und hohen Laserleistungen zeigt sich jedoch eine signifikante Abweichung der gemessenen atomaren Winkelverteilungen von den simulierten (Abb. 3.14b, P = 406 mW). Die adiabatische Bedingung (3.13) ist auch hier erfüllt, so dass der Grund in einem Versagen des Modells in einem gewissen Parameterraum liegt. Die Experimente zeigen, dass bei

- sinkender Pulslänge τ_P ,
- steigender Laserleistung P und
- sinkender Verstimmung Δ_L

die Wahrscheinlichkeit einer Abweichung des Experiments vom Modell (3.19) steigt [88]. Die Winkelverteilung ändert sich an den Grenzen dieses Parameterraums sprunghaft, was auf das Vorhandensein einer Schwelle schließen lässt.



Abbildung 3.14: gemessene (ausgefüllte Flächen) und simulierte Winkelverteilungen (gestrichelte Linien) 1,24 m hinter der Lichtmaske bei unterschiedlichen Pulslaserleistungen P und einer Verstimmung von Δ_L $= 2\pi \cdot 30$ GHz. Die Verteilungen spiegeln die Divergenz des Atomstrahls nach Durchqueren der Lichtmaske wieder. (a) Bei einer Pulslänge von $\tau_P = 80$ ps stimmen gemessene und simulierte Winkelverteilungen des Atomstrahls überein. (b) Bei einer Pulslänge von $\tau_P = 50$ ps zeigt sich bei hoher Pulslaserleistung eine deutliche Abweichung der Simulationen von den Messungen.

Eine mögliche Erklärung für die Abweichung besteht darin, dass das vorgestellte Modell von einem 2-Niveau-Atom ausgeht. Tatsächlich handelt es sich bei Cäsium um ein mehr-Niveau-Atom (Ahn. B.1). Auf Grund der hohen, im Puls auftretenden Rabi-Frequenzen (die resonante Rabifrequenz beträgt während eines kurzen Pulses ($\tau_P = 30$ ps) bis zu 500 GHz) kann es zu Überschneidungen von Niveaus kommen (sog. *crossing* bzw. *anticrossing*). Damit verbunden sind komplizierte adiabatische und diabatische Umbesetzungsprozesse im Atom [116]. Tatsächlich werden im Experiment Umbesetzungsprozesse genau dann festgestellt, wenn die atomare Winkelverteilung von den Simulationen abweicht. Dies ist ein deutliches Indiz, dass das vorgestellte 2-Niveau-Modell bei bestimmten Parametern nicht ausreicht.

3.3.2 Erzeugung von Nanostrukturen mit gepulsten Lichtmasken

Die Resultate des vorangegangenen Kapitels lassen vermuten, dass der Atomstrahl innerhalb der optischen Stehwelle über einen großen Parameterraum entsprechend des Potenzials (3.19) periodisch fokussiert wird. Ein überzeugender Nachweis hierfür liefert die lithografische Abbildung der atomaren Flussdichteverteilung.

Abbildung 3.15a zeigt eine Simulation atomarer Trajektorien (v = 300 m/s) in einer blauverstimmten optischen Stehwelle, die als Lichtmaske dient. Durch die Beschleunigung der Atome im Lichtmasken-Potenzial wird der Atomstrahl periodisch in die Intensitätsminima des Lichtfeldes fokussiert. Bei gegebener Wahl der Stehwellenparameter liegt der Fokus genau im Zentrum der Stehwelle (z = 0).

Eine Simulation der resultierenden atomaren Flussdichteverteilung eines thermischen



Abbildung 3.15: (a) Simulierte atomare Trajektorien (v = 300 m/s) in 3 Perioden der gepulsten Stehwelle (P = 440 mW, $\Delta_L = 2\pi \cdot 20 \text{ GHz}$, $\tau_P = 80 \text{ ps}$). Die dunklen Bereiche deuten die Intensitätsverteilung der optischen Stehwelle an. (b) Simulierte atomare Flussdichteverteilung des thermischen Atomstrahls in der Umgebung der gepulsten Stehwelle. Die Flussdichte ist genormt auf die atomare Flussdichte ψ_0 vor der Stehwelle. (c) Atomare Flussdichte in der Substratebene bei z = 0. Gepunktete Linie: Flussdichte vor der Stehwelle. Die Substratebene ist in (a) und (b) als gestrichelte Linie eingezeichnet.

Atomstrahls zeigt Abbildung 3.15b. Die durch Berechnung von 500000 atomaren Trajektorien mit Geschwindigkeitsverteilung wie im Experiment erstellte Grauskala-Abbildung zeigt deutlich die Flussdichteerhöhung im Bereich der Minima der optischen Stehwelle. Da der Kontrast der Flussdichteverteilung im Zentrum der Stehwelle (z = 0) maximal ist, befindet sich hier offensichtlich die günstigste Position für das Substrat. Das in Abbildung 3.15c dargestellte Profil der Flussdichteverteilung bei z = 0 zeigt einen Kontrast der Flussdichteverteilung > 90%.

Zur Abbildung der atomaren Flussdichte im Cäsium-Atomstrahl wird wieder eine hochauflösende Resist-Technik verwendet, mit der nach der Abscheidung von Cäsium-Atomen permanente Gold-Strukturen erzeugt werden. Die auf einer selbstanordnenden Monolage Nonanthiols auf einer Goldoberfläche basierende Resist-Technik mit Auflösungen < 10 nm ist detailliert in Anhang B.2 beschrieben.

Eine schematische Darstellung des Experiments zeigt Abbildung 3.16. Der transversal gekühlte Atomstrahl (Divergenz < 1 mrad) mit einem Durchmesser von 1 mm wird vor Eintritt in die gepulste Lichtmaske (Stehwelle) optisch in den $|F = 4, m_F = 4\rangle$ -Grundzustand gepumpt. Der Atomstrahl passiert den Spiegel im Abstand von 1 mm und wird vollständig von der gepulsten Lichtmaske bedeckt. Die Parameter der Stehwelle während der Erzeu-



Abbildung 3.16: Schematische Darstellung des Experiments zur Erzeugung von Nanostrukturen mit der gepulsten Lichtmaske. Das mit einem Resist bedeckte Substrat wird innerhalb der Lichtmaske positioniert.

gung der Nanostrukturen lauten: Leistung P = 440 mW, $\Delta_L = 20 \text{ GHz}$ und Pulslänge $\tau_P = 80 \text{ ps}$. Das präparierte Substrat wird so in der Lichtmaske positioniert, dass diese zur Hälfte durch das Substrat verdeckt wird. Die reflektierte Laserleistung dient dabei als Messsignal für die Lage des Substrats relativ zur Stehwelle.

Abbildung 3.17 zeigt eine Atomkraftmikroskop-Aufnahme eines entwickelten Substrats. In den tiefer liegenden, dunkel dargestellten Bereichen der Aufnahme wurde das Gold im Ätzprozess entfernt, nachdem der Resist durch Abscheidung von Cäsium geschädigt wurde. An den höhergelegenen, hell dargestellten Bereichen dagegen wurde die Goldschicht durch den intakten Resist geschützt. Wie erwartet, wurde bei dem atomlithografischen Experiment eine regelmäßige, parallele Linienstruktur mit einer Periodizität von $\lambda/2 = 426$ nm erzeugt.



Abbildung 3.17: Atomkraftmikroskop-Aufnahme eines entwickelten Substrats. Die parallelen Linien mit Abständen von $\lambda/2 = 426$ nm sind eine Abbildung der durch die gepulste Lichtmaske verursachten atomaren Flussdichteverteilung in der Substratebene. Die Parameter der Lichtmaske: P = 350 mW, $\Delta_L = 2\pi \cdot 30$ GHZ, $\tau_P = 80$ ps.

Die Struktur beweist daher, dass die gepulste Lichtmaske durch den Atomstrahl auf das Substrat projiziert wurde. Die sichtbaren, kleinen Unregelmäßigkeiten der Linien werden durch den Resist-Prozess erzeugt und treten auch bei Dauerstrich-Masken auf.

3.4 Diskussion

In diesem Kapitel wurde theoretisch und experimentell die Eignung von gepulsten Lichtfeldern als Lichtmaske für atomlithografische Experimente untersucht. Das mit Hilfe des Dressed State-Modells für 2-Niveau Atome entwickelte Modell sagt eine gepulste, fokussierend wirkende Dipolkraft auf Atome in nahresonanten, gepulsten Lichtmasken voraus, solange die adiabatische Bedingung 3.13 erfüllt ist. Im Grenzfall $\omega_R \ll \Delta_L$ ist diese gepulste Kraft im zeitlichen Mittel identisch mit der Dipolkraft in Dauerstrich-Lichtmasken im Grenzfall $s \ll 1$ und $\Delta_L \gg \Gamma$.

Experimentell wurde dieses Modell durch Untersuchung der atomaren Winkelverteilung nach Durchgang durch die optische Stehwelle für einen großen Parameterbereich getestet. Durch Vergleich der gemessenen Winkelverteilungen mit Simulationen konnte für lange Pulse (80 ps) eine hervorragende Übereinstimmung von Messungen und Simulationen festgestellt werden. Für kurze Pulse ($\tau_P \leq 50$ ps), hohe Intensitäten und kleine Verstimmungen wurden dagegen signifikante Abweichungen zwischen gemessenen Winkelverteilungen und Simulationen festgestellt, obwohl in allen Fällen die adiabatische Bedingung erfüllt war. Für diese Parameter ist offensichtlich das vorgestellte, vereinfachende 2-Niveau-Modell nicht ausreichend.

Im vorgestellten lithografischen Experiment konnte die räumliche Intensitätsverteilung einer nahresonanten, blauverstimmten optischen Stehwelle auf die Flussdichteverteilung eines thermischen Atomstrahls übertragen werden. Mit Hilfe einer Resist-Technik wurden durch Abscheiden des Cäsium-Atomstrahls auf einem präpariertes Substrat permanente Nanostrukturen erzeugt. Damit konnte der Nachweis erbracht werden, dass gepulste Lichtmasken zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheiden von Atomen geeignet sind.

Der Einsatz gepulster Lichtmasken bietet sich z. B. bei der Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheidung technisch interessanter Elemente an. Diese Elemente haben meist blaue oder ultraviolette Resonanzen [81], zu denen es keine Laser mit geeigneter Wellenlänge gibt. Daher ist man bei den entsprechenden Lichtmasken auf Methoden zur Frequenzvervielfachung von langwelligen Lasern angewiesen, was mit gepulsten Lasern technisch einfach realisierbar ist.

Des Weiteren kann ein Atom in der Zeit zwischen den Laserpulsen weiteren Wechselwirkungen unterzogen werden. Insbesondere die Überlagerung von mehreren gepulsten Lichtfeldern mit versetzten Pulsfolgen eröffnet neue Perspektiven zur Erzeugung von Lichtmasken. Dieses Thema wird in Kapitel 4.2 ausführlich behandelt.

Kapitel 4 Komplexe Dipolkraft-Lichtmasken

Atomlithografie mit Dipolkraft-Lichtmasken ist eine einfache und robuste Methode zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheidung von Atomen, wie zahlreiche Experimente unter Beweis stellen konnten, darunter die in den beiden vorangegangen Kapiteln vorgestellten. Mit der in Kapitel 2 vorgestellten holografischen Rekonstruktion von Lichtmasken gibt es ein viel versprechendes Verfahren zur Erzeugung sehr komplexer Lichtmasken. Dies wirft die Frage nach Möglichkeiten bzw. Einschränkungen bei der Erzeugung gewünschter Lichtmasken-Formen auf.



Abbildung 4.1: Ein Atomstrahl wird durch eine Dipolkraft-Lichtmaske strukturiert.

In diesem Kapitel werden zunächst Möglichkeiten und Grenzen bei der Formgebung von ebenen Laserfeldern theoretisch behandelt. Weiter wird ein neues Konzept zur Erzeugung von Lichtmasken vorgestellt, bei dem mehrere gepulste Lichtfelder durch Multiplexen zu einer gemeinsamen Maske überlagert werden. Mit dieser Methode können die Grenzen, welche die Gestaltung eines einzelnen Lichtfeldes aufweist, überwunden werden, und somit annähernd beliebige Lichtmasken-Potenzialformen erzeugt werden. Schließlich wird ein Ansatz vorgestellt, mit dem, ausgehend von einer gewünschten atomaren Flussdichteverteilung, die dazu benötigte Lichtmaske berechnet werden kann.

4.1 Ebene monochromatische Lichtfelder als Lichtmasken

4.1.1 Beschreibung monochromatischer Lichtfelder

Die elektrische Feldstärke eines monochromatischen Lichtfeldes der Frequenz ω_L wird beschrieben durch

$$\vec{E}(\vec{r},t) = \mathcal{R}e\left\{\vec{\mathcal{E}}(\vec{r})e^{-i\omega_L t}\right\}$$
(4.1)

mit der komplexen Amplitude $\vec{\mathcal{E}}(\vec{r})$. Diese erfüllt die direkt aus den Maxwell-Gleichungen folgende Helmholtz-Gleichung für monochromatische Wellen,

$$\left(\vec{\nabla}^2 + \frac{\omega_L^2}{c^2}\right)\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) = 0 , \qquad (4.2)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist. Die Richtung des elektrischen Feldes wird zudem beschränkt durch die 1. Maxwell-Gleichung für Vakuum (elektrische Ladungsdichte = 0),

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) = 0 \ . \tag{4.3}$$

Sehr hilfreich für das Verständnis monochromatischer Lichtfelder ist die Fourierdarstellung von $\vec{\mathcal{E}}(\vec{r})$. Gleichung (4.2) wird nämlich von ebenen Wellen $\vec{\varepsilon}(\vec{k})e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ nur unter der Einschränkung $|\vec{k}| = \omega_L/c$ erfüllt, so dass jedes monochromatische Lichtfeld durch

$$\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) = \int_{|\vec{k}| = \frac{\omega_L}{c}} \vec{\varepsilon}(\vec{k}) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} d^3k$$
(4.4)

beschrieben wird. Die (komplexe) Amplitude $\vec{\varepsilon}(\vec{k})$ jeder ebenen Welle unterliegt dabei nach (4.3) der Einschränkung $\vec{k} \cdot \vec{\varepsilon}(\vec{k}) = 0$, gleichbedeutend mit transversaler Polarisation von Lichtwellen.

Lichtmasken Zur Erzeugung von Lichtmasken werden ebene Wellen mit Wellenvektoren $(k_x, k_y, 0)$ senkrecht zum Atomstrahl (z-Achse) eingesetzt. Dies garantiert die Gleichförmigkeit des Lichtfeldes in Ausbreitungsrichtung des Atomstrahls. Zudem werden Abschattungen und Reflexionen von Wellen am Substrat vermieden. In der Praxis haben diese ebenen Wellen in Atomstrahlrichtung (z-Achse) eine Einhüllenden-Funktion $\sqrt{h(z)}^{-1}$. Mit $\vec{k} = \omega_L/c \cdot (\cos \phi, \sin \phi, 0)$ folgt für die Darstellung des elektrischen Feldes eines ebenen Lichtfeldes

$$\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) = \vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x,y) \cdot \sqrt{h(z)}$$
(4.5)

mit
$$\vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x,y) = \int_{0}^{2\pi} [\vec{e}_{z}\varepsilon_{z}(\phi) + \vec{e}_{\perp}\varepsilon_{\perp}(\phi)] e^{\frac{i\omega_{L}}{c}(x\cos\phi + y\sin\phi)} d\phi$$
. (4.6)

Die Einheitsvektoren \vec{e}_z (Atomstrahlachse) und $\vec{e}_{\perp} = \vec{e}_z \times \vec{k}/|\vec{k}|$ zeigen die beiden möglichen Polarisationsrichtungen der ebenen Wellen an.

¹Genau genommen erfüllen endlich ausgedehnte ebene Wellen $\sqrt{h(z)} \cdot e^{i(k_x x + k_y y)}$ nicht die Helmholtz-Gleichung (4.2). Lokal (z. B. innerhalb der Rayleigh-Zone eines gaußförmigen Laserstrahls) entsprechen diese endlichen ebenen Wellen jedoch in sehr guter Näherung Lösungen der Helmholtz-Gleichung.

Für die atomoptischen Eigenschaften einer Lichtmaske ist die Intensitätsverteilung $I(\vec{r})$ des Lichtfeldes maßgeblich, für welche gilt:

$$I(\vec{r}) = \frac{c\epsilon_0}{2} \left| \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) \right|^2 = I_{\perp}(x, y) \cdot h(z)$$

$$(4.7)$$

mit
$$I_{\perp}(x,y) = \frac{c\epsilon_0}{2} \left| \vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x,y) \right|^2$$
 (4.8)

wobei ϵ_0 die Influenzkonstante ist. In Richtung des Atomstrahls wird die Lichtmaske durch die Einhüllenden-Funktion h(z) begrenzt. Die Struktur $I_{\perp}(x, y)$ des Lichtfeldes kann nach (4.6) durch $\varepsilon_z(\phi)$ und $\varepsilon_{\perp}(\phi)$ beschrieben werden. Damit ist neben $\vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x, y)$ auch $I_{\perp}(x, y)$ Einschränkungen durch die Helmholtz-Gleichung (4.2) unterworfen.

4.1.2 Lichtmasken durch Interferenz einzelner Laserstrahlen

Bei der holografischen Erzeugung von Lichtmasken werden N holografisch rekonstruierte Laserstrahlen überlagert. Die resultierende Interferenz der Laserstrahlen, die alle in der Ebene senkrecht zum Atomstrahl liegen, erzeugt die Intensitätsverteilung $I_{\perp}(x, y)$ der Lichtmaske. Zur Vereinfachung der Rechnungen seinen alle Laserstrahlen in z-Richtung polarisiert. Für die Wellenvektoren der Laserstrahlen gilt $\vec{k}_j = (k_{xj}, k_{yj}, 0)$ mit $|\vec{k}| = \omega_L/c$ (s. o.). Sie werden im Folgenden durch die 2-dimensionalen Vektoren $\vec{\kappa}_j = (k_{xj}, k_{yj})$ repräsentiert. Mit $\vec{\varrho} = (x, y)$ folgt für die komplexe Amplitude $\vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x, y)$ der elektrischen Feldstärke des ebenen Lichtfeldes

$$\vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x,y) = \vec{e}_z \sum_{j=1}^N \varepsilon_j e^{i\vec{\kappa}_j \cdot \vec{\varrho}} , \qquad (4.9)$$

wobei ε_j die komplexe Amplitude der elektrischen Feldstärke des *j*-ten Laserstrahls ist. Für die Intensitätsverteilung folgt damit nach (4.8)

$$I_{\perp}(x,y) = \frac{c\epsilon_0}{2}\vec{\mathcal{E}}_{\perp}(x,y)\cdot\vec{\mathcal{E}}_{\perp}^*(x,y) = \frac{c\epsilon_0}{2}\sum_{j=1}^N\sum_{l=1}^N\varepsilon_j\varepsilon_l^*e^{i(\vec{\kappa}_j-\vec{\kappa}_l)\cdot\vec{\varrho}}.$$
(4.10)

Mit dem Differenz-Wellenvektor $\vec{\kappa}_{j,l} := \vec{\kappa}_j - \vec{\kappa}_l \text{ kann } (4.10)$ umgeformt werden zu

$$I_{\perp}(x,y) = \frac{c\epsilon_0}{2} \left[\sum_{j=1}^{N} |\varepsilon_j|^2 + \sum_{j=1}^{N} \sum_{l=1}^{j-1} 2\mathcal{R}e\left(\varepsilon_j\varepsilon_l^*\right)\cos(\vec{\kappa}_{j,l}\cdot\vec{\varrho}) + 2\mathcal{I}m\left(\varepsilon_j\varepsilon_l^*\right)\sin(\vec{\kappa}_{j,l}\cdot\vec{\varrho}) \right].$$
(4.11)

Gleichung (4.11) entspricht einer Fourierdarstellung von I_{\perp} . Bei geeigneter Wahl zweier Wellenvektoren $\vec{\kappa}_j$, $\vec{\kappa}_l$ mit $|\vec{\kappa}_j| = |\vec{\kappa}_l| = 2\pi/\lambda$ von einfallenden ebenen Wellen kann jeder Differenz-Wellenvektor $\vec{\kappa}_{j,l}$ mit $|\vec{\kappa}_{j,l}| \leq 4\pi/\lambda$ erzeugt werden (Abb. 4.2). Eine Erzeugung beliebiger Strukturen erfordert an dieser Stelle die freie Wahl der komplexen Koeffizienten $\varepsilon_j \varepsilon_l^*$ der zugehörigen Wellenvektoren $\vec{\kappa}_{i,j}$. Tatsächlich jedoch werden durch N interferierende Laserstrahlen bis zu $N^2 - N + 1$ verschiedene Wellenvektoren $\vec{\kappa}_{j,l}$ in (4.11) erzeugt. Für die entsprechende Anzahl der Koeffizienten $\varepsilon_j \varepsilon_l^*$ gibt es jedoch nur N unabhängige (komplexe) Parameter ε_j . Damit ist die Erzeugung beliebiger Strukturen durch die Überdefiniertheit der Parameter ε_j beschränkt.



Abbildung 4.2: Zwei monochromatische Laserstrahlen mit Wellenvektoren $\vec{\kappa}_j, \vec{\kappa}_l$ interferieren. Das resultierende wellenförmige Interferenzmuster wird durch den Wellenvektor $\vec{\kappa}_{j,l} := \vec{\kappa}_j - \vec{\kappa}_l$ beschrieben.

Erzeugung periodischer Lichtmasken Von besonderem Interesse ist die Erzeugung von Lichtmasken mit periodischer Struktur, da solche Lichtmasken z. B. bei der Herstellung von photonischen Kristallen [106] nützlich sind. Die Fouriertransformierte jeder periodischen Struktur ist ein Gitter im reziproken Raum. Eine durch Interferenz von ebenen Wellen erzeugte Intensitätsverteilung (4.11) ist also genau dann periodisch, wenn alle Differenz-Wellenvektoren $\vec{\kappa}_{j,l}$ für i, l = (1..N) in einer gemeinsamen Gitterstruktur liegen (Abb. 4.3). Dies ist i. A. eine große Einschränkung für die Wahl der Wellenvektoren $\vec{\kappa}_{j}$.

Insbesondere bei quadratischer Symmetrie des Lichtfeldes gibt es jedoch eine große Anzahl an ebenen Wellen, deren Interferenz periodische Strukturen erzeugt. So liegen alle Differenz-Wellenvektoren der in Abbildung 4.3 eingezeichneten N = 8 Wellenvektoren innerhalb einer Gitterstruktur im reziproken Raum, so dass eine periodische Lichtmasken-Struktur gebildet wird. Lichtfeld-Konfigurationen wie in Abbildung 4.3 eignen sich daher in besonderem Maße zur Herstellung komplexer periodischer Lichtmasken.



Abbildung 4.3: Periodische Intensitätsverteilung im Reziproken Raum. Die N = 8 Wellenvektoren $\vec{\kappa}_j$ (durchgezogene Vektoren) der ebenen Wellen liegen auf Zwischengitterplätzen (graue Punkte) der Gitterstruktur. Dadurch liegen alle Differenz-Wellenvektoren $\vec{\kappa}_{j,l}$ (gestrichelte Vektoren) auf Gitterplätzen (schwarze Punkte). Es sind nur wenige Differenz-Wellenvektoren exemplarisch eingezeichnet.

4.1.3 Approximierte Intensitätsverteilungen

Eine gewünschte Intensitätsverteilung $I_{\perp}(x, y)$ kann durch eine geeignete Wahl der Wellenvektoren $\vec{\kappa}_j$ und Koeffizienten ε_j in Gleichung (4.11) approximiert werden. Dazu wurde in der Arbeitsgruppe von A. Kunoth am Institut für Angewandte Mathematik ein Programm entwickelt, welches eine vorgegebene ebene Intensitätsverteilung mit N ebenen Wellen approximiert. Das Approximationsverfahren basiert auf einer so genannten "least squares"-Näherung und ist in [20, 91] detailliert beschrieben.

Abbildung 4.4a zeigt eine vorgegebene Intensitätsverteilung (links), eine periodische Anordnung des Buchstabens "F". Ausgehend von einer Lichtfeldkonfiguration wie in Abbildung 4.3 wurden die zugehörigen Amplituden der ebenen Wellen so berechnet, dass die vorgegebene Intensitätsverteilung approximiert wird. Das berechnete, approximierte Lichtfeld (rechts) zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem vorgegebenen Muster.



Abbildung 4.4: Approximation von periodischen Strukturen: (a) Das berechnete approximierte Lichtfeld (rechts) zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem vorgegebenen Muster (links). (b) Die approximierte Lichtmaske (rechts) weicht deutlich vom vorgegebenen Muster (links) ab. Mit freundlicher Erlaubnis von C. Burstedde.

Die Approximation von Strukturen durch ebene Lichtfelder ist durch die überdefinierten Amplituden der beteiligten ebenen Wellen limitiert (s. o.). So wird das in Abbildung 4.4b vorgegeben Muster nur bedingt durch die approximierte Intensitätsverteilung wiedergegeben. Eine Methode zur Überwindung dieser Grenze beschreibt der folgenden Abschnitt.

4.2 Lichtmasken durch Multiplexen gepulster Lichtfelder

4.2.1 Überlagerung gepulster Lichtfelder mit versetzter Pulsfolge

Die Wechselwirkung zwischen einem nahresonanten, gepulsten Lichtfeld und einem darin befindlichen Atom findet nur während der kurzen Zeitintervalle der Lichtpulse statt (Kap. 3.1.1.2). Während der langen Zeitspannen zwischen den Pulsen sind daher Wechselwirkungen mit anderen, gepulsten Lichtfeldern möglich. Wenn alle N beteiligten Lichtfelder die adiabatische Bedingung (3.12) erfüllen, und die einzelnen Pulse der Lichtfelder zeitlich getrennt sind, dann verbleibt das Atom zwischen den Pulsen in sehr guter Näherung im Grundzustand. Dadurch bleibt die Wechselwirkung zwischen n-tem Laserpuls (n = 1...N) und Atom, und damit der Impulsüberträg Δp_n auf das Atom, unbeeinflusst von den vorhergegangenen Pulsen. Die über einen Pulszyklus T_P gemittelte Kraft \vec{F}^N der N Pulse auf das Atom lautet damit

$$\overline{\vec{F}^{N}}(\vec{r}) = \frac{1}{T_{P}} \sum_{n=1}^{N} \Delta p_{n} = \sum_{n=1}^{N} \overline{\vec{F}^{n}}(\vec{r}) , \qquad (4.12)$$

wobei $\overline{\vec{F}^n}(\vec{r})$ die gemittelte Kraft des *n*-ten Lichtfeldes nach Gleichung (3.17) ist. Analog zu Gleichung (3.18) kann die gemittelte Kraft $\overline{\vec{F}^N}$ von einem effektiven Lichtmasken-Potenzial U_{eff}^N abgeleitet werden

$$\vec{F}(\vec{r}) = -\vec{\nabla} U_{\text{eff}}^N(\vec{r}) \tag{4.13}$$

$$U_{\rm eff}^N(\vec{r}) = \sum_{n=1}^N U_{\rm eff}^n(\vec{r}) , \qquad (4.14)$$

wobei U_{eff}^n das effektive Potenzial des *n*-ten Lichtfeldes nach Gleichung (3.19) ist. Im Grenzfall $\Omega_R \ll \Delta_L$ (Bezeichnungen s. Kap. 3.1.1.2) sind die effektiven Potenziale U_{eff}^n proportional zu den mittleren Intensitäten \bar{I}^n der entsprechenden Lichtfelder (Gl. 3.20). Damit folgt in diesem Limit für das effektive Lichtmasken-Potenzial:

$$U_{\text{eff}}^{N}(\vec{r}) = \frac{\hbar\Gamma^2}{8\Delta_L} \frac{1}{I_{\text{sat}}} \sum_{n=1}^{N} \bar{I}^n(\vec{r})$$

$$(4.15)$$

Das Dipol
potenzial von überlagerten, zeitlich versetzt pulsenden Lichtfeldern ist dem
nach für $\Omega_R \ll \Delta_L$ proportional zur Summe der Intensitäten de
rN Lichtfelder.

4.2.2 Erzeugung komplexer Lichtmasken

Das im vorangegangenen Abschnitt vorgestellte Überlagerung von gepulsten Lichtfeldern mit zeitlich getrennten Pulsfolgen eröffnet neue Möglichkeiten zur Erzeugung von Dipolkraft-Lichtmasken, da das Lichtmasken-Potenzial U_{eff}^N nach Gleichung (4.15) aus der Superposition der Intensitäten \bar{I}^n der N gepulsten Lichtfelder hervorgeht. (Bei Dauerstrich-Lichtmasken gilt das Superpositionsprinzip nur für die elektrische Feldstärke, nicht jedoch für Intensitäten.) Die neue Methode besteht darin, mehrere gepulste, ebene Lichtfelder in einer Lichtmaske zu multiplexen. Mit der Zahl der multiplexten Lichtfelder steigt entsprechend die Anzahl der Freiheitsgrade zur Gestaltung der Lichtmasken. Ein einfacher Ansatz zur Verwirklichung des Konzeptes ist in Abbildung 4.5 dargestellt: Zwei verschiedene Lichtfelder entstehen jeweils durch Rückreflexion eines gepulsten Laserstrahls an einem Spiegel und bilden durch Multiplexen die Lichtmaske. Die unterschiedlich langen optischen Wege der beiden Laserstrahlen erzeugen den erforderlichen zeitlichen Versatz der Laserpulse.

Im Allgemeinen seien N gepulste ebene Lichtfelder in einer Lichtmaske multiplex überlagert. Die Intensitätsverteilung des n-ten Laserfeldes sei (Vgl. Gl. 4.7)

$$\bar{I}^{n}(\vec{r}) = I^{n}_{\perp}(x,y) \cdot h(z) .$$
(4.16)

Für das effektive Potenzial der multiplexten Lichtfelder gilt damit nach (4.15) für $\Omega_R \ll \Delta_L$

$$U_{\text{eff}}^{N}(\vec{r}) = \frac{\hbar\Gamma^{2}}{8\Delta_{L}} \frac{h(z)}{I_{\text{sat}}} \sum_{n=1}^{N} \bar{I}_{\perp}^{n}(x, y) , \qquad (4.17)$$

wobe
i \bar{I}^n_{\perp} die zeitlich gemittelte Intensität des
 n-ten Lichtfeldes ist.

mit



Abbildung 4.5: Beispiel einer Überlagerung zweier gepulster Lichtfelder mit zeitlich versetzter Pulsfolge. Die Ausbreitungsrichtung des Atomstrahl ist senkrecht zur Bildebene.

Approximation gewünschter Lichtmasken-Potenzialformen Die Intensität $\bar{I}_{\perp}^{n}(x, y)$ jedes einzelnen, gepulsten Lichtfeldes kann insbesondere durch Interferenz zweier gleichstarker ebener Wellen mit Wellenvektoren $\vec{k}_{1}^{n} = (k_{x1}^{n}, k_{y1}^{n}, 0)$ bzw. $\vec{k}_{2}^{n} = (k_{x2}^{n}, k_{y2}^{n}, 0)$ gebildet werden $(|\vec{k}_{1}^{n}| = |\vec{k}_{2}^{n}| = 2\pi/\lambda)$. Wieder werden diese Wellenvektoren im Folgenden durch die 2-dimensionalen Vektoren $\vec{k}_{1}^{n} = (k_{x1}^{n}, k_{y1}^{n})$ bzw. $\vec{k}_{2}^{n} = (k_{x2}^{n}, k_{y2}^{n})$ repräsentiert. Mit den frei wählbaren Phasen α_{1} bzw. α_{2} und der Intensität $I_{0}^{n} > 0$ erhält man für $\vec{\varrho} = (x, y)$ eine Intensitätsverteilung

$$I_{\perp}^{n}(x,y) = I_{0}^{n} \left| \left(e^{i(\vec{\kappa}_{1}^{n}\vec{\varrho} + \alpha_{1}^{n})} + e^{i(\vec{\kappa}_{2}^{n}\vec{\varrho} + \alpha_{2}^{n})} \right|^{2} \right|^{2}$$
(4.18)

Mit $\vec{\kappa}^n = \vec{\kappa}_1^n - \vec{\kappa}_2^n$ und $\alpha^n = \alpha_1^n - \alpha_2^n$ folgt

$$I_{\perp}^{n}(x,y) = 2I_{0}^{n} \left[1 + \cos(\vec{\kappa}^{n}\vec{\varrho} + \alpha^{n})\right] .$$
(4.19)

Diese Intensitätsverteilung entspricht (bis auf das konstante Glied) einer ebene Welle im \mathbb{R}^2 . Solche ebene Wellen existieren für jeden Wellenvektor $\vec{\kappa}^n$ mit $|\vec{\kappa}^n| \leq 4\pi/\lambda$.

Durch das Multiplexen von gepulsten Lichtfeldern mit Intensitätsverteilungen nach Gleichung (4.19) nimmt das Lichtmasken-Potenzial (4.17) die Struktur einer Fourier-Reihenentwicklung an. Da die Parameter $I_0^n > 0$ und α^n wählbar sind, können (mit Ausnahme des konstanten Terms²) alle Komponenten (mit Wellenvektor $|\vec{\kappa}| \leq 4\pi/\lambda$) der Fourier-Reihenentwicklung einer gewünschten Potenzialform rekonstruiert werden. Damit besteht prinzipiell die Möglichkeit, durch Multiplexen von gepulsten Lichtfeldern nahezu beliebige Lichtmasken-Potenzialformen mit minimalen Strukturabständen von $\lambda/2$ zu erzeugen³.

Abbildung 4.6 zeigt simulierte Beispiele für die Approximation von Vorlagen durch das Multiplexen gepulster Lichtfelder. Jede dargestellte Lichtmaske besteht aus 24 multiplexten Lichtfeldern mit Intensitätsverteilungen nach (4.19). Dadurch werden die notwendigen Fourier-Komponenten der jeweiligen Vorlage erzeugt. Die zeitlich gemittelte Intensitätsverteilung jeder gezeigten Lichtmaske stellt eine sehr gute Approximation ihrer Vorlage dar. Auch die simulierte atomare Flussdichte nach Passieren einer Lichtmaske zeigt eine enge Übereinstimmung mit der Maske bzw. der Vorlage.

 $^{^2 {\}rm Die}$ atomoptischen Eigenschaften der Lichtmaske hängen vom Gradienten des Dipol
potenzials ab, daher ist der konstante Term irrelevant.

³Dieser Strukturabstand des Lichtmasken-Potenzials entspricht der maximalen Länge eines Wellenvektors von $|\vec{\kappa}| = 4\pi/\lambda$. Aufgrund der Fokussierung von Atomen in Lichtmasken können atomlithografisch Strukturbreiten von $\approx \lambda/10$ erzeugt werden.



Abbildung 4.6: Gestaltung von Lichtmasken durch Multiplexen gepulster Lichtfelder. Die Vorlagen (links) werden durch Lichtmasken (Mitte) approximiert, die jeweils aus 24 multiplexten, gepulsten Lichtfeldern bestehen. Die simulierte atomare Flussdichte (rechts) nach dem Passieren der rotverstimmten Lichtmaske spiegelt die jeweilige Lichtmaske bzw. Vorlage wieder.

Praktisch wird Zahl N der überlagerten gepulsten Lichtfelder, und damit die Erzeugung beliebiger Strukturen, durch die Forderung der zeitlichen Trennung der Pulse begrenzt. Maximal können daher $N_{\text{max}} = T_P/\tau_P$ gepulste Lichtfelder in einer Lichtmaske überlagert werden (T_P : Pulszyklus, τ_P : Pulslänge). Die Anzahl der rekonstruierten Fourierreihen-Komponenten einer beliebigen Struktur kann jedoch deutlich erhöht werden, wenn die einzelnen Lichtfelder anstelle der einfachen Intensitätsverteilungen nach (4.19) bereits komplexe Intensitätsverteilungen durch Mehrstrahl-Interferenz besitzen (Kap. 4.1).

Um komplizierte Spiegelanordnung zur Erzeugung der N multiplexten Lichtfelder zu vermeiden, bietet sich die holografische Erzeugung der einzelnen gepulsten Lichtfelder an (Kap. 2). Die Informationen für die verschiedenen Lichtfelder werden dabei multiplex in einem holografischen Medium gespeichert. Die Auswahl eines einzelnen Lichtfeldes erfolgt über den Einfallswinkel des Referenzstrahls. Mit dieser Methode können über tausend verschiedene Lichtfelder mit einem einzigen Lithiumniobat-Kristall rekonstruiert werden [84].

4.3 Gestaltung von Dipolkraft-Lichtmasken

Die in den vorangehenden Abschnitten vorgestellten Verfahren eröffnen neue Möglichkeiten zur Erzeugung komplexer Dipolkraft-Lichtmasken. Damit rückt eine neue Herausforderung in Reichweite, nämlich die Gestaltung einer Lichtmasken-Potenzialform zur Erzeugung einer gewünschten Flussdichteverteilung im Atomstrahl. Dazu wird in diesem Abschnitt ein Ansatz vorgestellt, der die Potenzialform mathematisch mit der erzeugten atomaren Flussdichte verknüpft.

4.3.1 Lichtmasken-Potenzial und atomare Flussdichte

Untersucht wird die Änderung der atomaren Flussdichte eines Atomstrahls nach Passieren einer Lichtmaske mit dem Dipol-Potenzial $U(\vec{r}) = U_{\perp}(x, y) \cdot h(z)$. Die folgenden Rechnungen gelten sowohl für den Dauerstrich-Fall $(U = U_D)$, als auch für gepulste Lichtmasken (U = U_{eff}^N). Zur Vereinfachung wird die Lichtmaske als "dünn" angenommen, d. h. die Brennweite f der einzelnen "Linsen" der Lichtmaske (Kap. 2.1.2) sei weit größer als die Dicke d_z der Lichtmaske in Atomstrahlrichtung. Des Weiteren propagiere der kollimierte Atomstrahl mit der Geschwindigkeit v_z in Richtung der z-Achse. Die Lichtmaske bei z = 0 liegt senkrecht zum Atomstrahl (Abb. 4.7).



Abbildung 4.7: Abbildung von Atomen aus dem Volumen dV_0 in das Volumen dV_z hinter der Lichtmaske mit dem Potenzial U.

Durch die optische Dipolkraft $\vec{F}_D = -\vec{\nabla}U$ werden die Atome beim Passieren der Lichtmaske abgelenkt. Dadurch erhalten die Atome eine transversale Geschwindigkeit (v_x, v_y) mit

$$v_x = \frac{F_x}{m} \frac{d_z}{v_z} = -\frac{d_z}{mv_z} \cdot \frac{dU_\perp}{dx}$$
(4.20)

$$v_y = \frac{F_x}{m} \frac{d_z}{v_z} = -\frac{d_z}{mv_z} \cdot \frac{dU_\perp}{dy} .$$

$$(4.21)$$

Atome aus dem infinitesimal kleinen Volumen $dV_0 = dx \, dy \, dz$ am Ort $(x_0, y_0, 0)$ in der Lichtmaske werden im Abstand z dahinter auf das Volumen $dV_z = dx_z \, dy_z, dz_z$ am Ort (x_z, y_z, z) abgebildet (Abb. 4.7). Mit $x_z = x_0 + v_x \frac{z}{v_z}$ folgt für x_z bzw. dx_z (entsprechend für y_z):

$$x_z = x_0 - \frac{zd_z}{mv_z^2} \left. \frac{dU_\perp}{dx} \right|_{x_0, y_0} \quad \Rightarrow \quad dx_z = \left(1 - \frac{zd_z}{mv_z^2} \left. \frac{d^2U_\perp}{dx^2} \right|_{x_0, y_0} \right) dx_0 \tag{4.22}$$

$$y_{z} = x_{0} - \frac{zd_{z}}{mv_{z}^{2}} \left. \frac{dU_{\perp}}{dy} \right|_{x_{0}, y_{0}} \quad \Rightarrow \quad dy_{z} = \left(1 - \frac{zd_{z}}{mv_{z}^{2}} \left. \frac{d^{2}U_{\perp}}{dy^{2}} \right|_{x_{0}, y_{0}} \right) dy_{0} \tag{4.23}$$

Da sich die longitudinale Geschwindigkeit der Atome in sehr guter Näherung nicht ändert, gilt $dz_z = dz_0$.

Das Verhältnis der atomaren Flussdichte $\psi_z(x_z, y_z, z)$ hinter der Lichtmaske zur Flussdichte ψ_0 vor der Lichtmaske ist antiproportional zum Verhältnis der Volumina dV_z zu dV_0 :

$$\frac{\psi_z(x_z, y_z, z)}{\psi_0} = \frac{dV_0}{dV_z} = \frac{dx_0 \, dy_0 \, dz_0}{dx_z \, dy_z \, dz_z} = \left[\left(1 - \frac{zd_z}{mv_z^2} \frac{d^2 U_\perp}{dx^2} \Big|_{x_0, y_0} \right) \left(1 - \frac{zd_z}{mv_z^2} \frac{d^2 U_\perp}{dy^2} \Big|_{x_0, y_0} \right) \right]^{-1} (4.24)$$

Für kleine Abstände $z \gtrapprox 0$ hinter der dünnen Stehwelle kann genähert werden zu

$$\frac{\psi_z(x,y,z)}{\psi_0} \approx \left[1 - \frac{zd_z}{mv_z^2} \cdot \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2}\right)U_\perp\right]^{-1}$$
(4.25)

$$\approx 1 + \frac{zd_z}{mv_z^2} \cdot \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2}\right) U_\perp \tag{4.26}$$

Für die relative Dichteänderung $(\psi_z - \psi_0)/\psi_0$ folgt damit:

$$\frac{\psi_z(x,y,z) - \psi_0}{\psi_0} \approx \frac{zd_z}{mv_z^2} \cdot \left(\frac{d^2}{dx^2} + \frac{d^2}{dy^2}\right) U_\perp \tag{4.27}$$

4.3.2 Berechnung von Lichtmasken zu gegebener atomaren Flussdichte

Gleichung (4.27) gibt einen mathematischen Zusammenhang zwischen der Flussdichteänderung in geringem Abstand hinter einer dünnen Lichtmaske und dem Potenzial der Lichtmaske. Die Struktur der partiellen Differenzialgleichung entspricht einer 2-dimensionalen Poisson-Gleichung mit der bekannten Lösung [8]

$$U_{\perp}(x,y) = \frac{1}{2\pi} \frac{mv_z^2}{zd_z} \int \int \frac{\psi_z(x,y,z) - \psi_0}{\psi_0} \ln\left(\left[(x-x')^2 + (y-y')^2\right]^{-\frac{1}{2}}\right) dx \, dy \,. \tag{4.28}$$

Da Gleichung (4.27) nur im Nahbereich der Lichtmaske gültig ist $(z \ge 0)$, gilt auch nur dort die Lösung (4.28). Dennoch bietet (4.28) einen sinnvollen Ausgangspunkt zur Berechnung von Lichtmasken-Potenzialformen, ausgehend von einer gewünschten atomaren Flussdichteverteilung hinter der Lichtmaske.

4.4 Diskussion

Dipolkraft-Lichtmasken werden durch Interferenz monochromatischer Lichtwellen gebildet. Die Komplexität der Lichtfelder steigt allgemein mit der Anzahl der interferierenden Wellen. Die Struktur jedes Lichtfeldes ist jedoch stets durch die Helmholtz-Gleichung eingeschränkt, der Wellengleichung für monochromatische Lichtwellen. Beliebige Strukturen können indessen durch Lichtfelder approximiert werden, was in vielen Fällen zufriedenstellende Ergebnisse liefert.

Das Multiplexen von gepulsten Lichtfeldern eröffnet sogar die Perspektive, Lichtmasken mit nahezu beliebiger Potenzialform zu erzeugen. Zwar bleibt jedes einzelne Lichtfeld immer den Einschränkungen durch die Helmholtz-Gleichung unterworfen. Durch die vorgeschlagene Überlagerung verschiedener gepulster Lichtfelder mit zeitlich versetzter Pulsfolge werden jedoch neue Freiheitsgrade zur Gestaltung der Lichtmaske gewonnen. Eine experimentelle Realisierung dieser Methode steht noch aus, doch insbesondere in Kombination mit der in Kapitel 2 vorgestellten holografischen Erzeugung von Lichtfeldern sind vielversprechende Ergebnisse zu erwarten.

Des Weiteren wurde ein mathematischer Ansatz zur Berechnung einer Lichtmasken-Potenzialform aus einer gewünschten atomaren Flussdichteverteilung vorgestellt. Damit existiert eine Kette von mathematischen Methoden, die von einer gewünschten Nanostruktur bzw. atomaren Flussdichteverteilung über eine berechnete Lichtmasken-Potenzialform zu der dafür benötigten Laserstrahl-Konfiguration führt.

Kapitel 5

Atomoptik mit ebenem magnetischen Quadrupol

Atome mit permanentem magnetischen Dipolmoment koppeln an lokale Magnetfelder, woraus eine Kraft proportional zum Gradienten des Magnetfeldes resultiert. Diese Kraft verändert die atomare Trajektorie, so dass Magnete als atomoptische Komponente für Atomstrahlen dienen können. Schon in den Experimenten von Stern [110] und Gerlach [42] wurden magnetische Gradientenfelder eingesetzt, um die Richtungsquantelung des atomaren Drehimpuls atomoptisch nachzuweisen. In modernen Experimenten werden vor allem ebene magnetische Multipole eingesetzt, deren radialsymmetrische Magnetfelder atomoptische Komponenten analog zu Linsen oder Axikons in der Lichtoptik bilden [58]. Hier hat sich insbesondere der Einsatz von aus starken Seltenerd-Permanentmagneten aufgebauten Multipolen [50, 51] bewährt.

Ebene magnetische Quadrupole nehmen unter allen ebenen Multipolen eine herausragende Stellung ein, da deren magnetischer Feldgradient in der Umgebung der Symmetrieachse besonders groß ist. Magnetische Quadrupole werden daher v. A. in atomoptischen Experimenten eingesetzt, in denen eine besonders starke Ablenkung von Atomen erwünscht ist, z. B. zur Richtungsänderung und Führung von Atomstrahlen [45, 58]. In dieser Arbeit wird in Kapitel 6 ein neues Atomlithografie-Experiment vorgestellt, in dem ein thermischer Cäsium-Atomstrahl zur Flussdichteerhöhung mit einem starken permanentmagnetischen Quadrupol gebündelt wird.

In diesem Kapitel wird der Aufbau eines ebenen Quadrupols aus Seltenerd-Permanentmagneten erläutert und seine magnetischen Eigenschaften vorgestellt. Modelle und Simulationen zu den daraus resultierenden atomoptischen Eigenschaften werden vorgestellt. Dabei wird insbesondere die Änderung der atomaren Flussdichte durch einen Quadrupol untersucht. Die angegebenen Beispiele nehmen Bezug auf das in Kapitel 6 vorgestellte Experiment.

5.1 Der ebene magnetische Quadrupol

5.1.1 Magnetische Quadrupole aus Permanentmagneten

Um den Einsatz von magnetischen Quadrupolen in der Atomoptik einfach und robust zu gestalten, bietet es sich an, Quadrupole aus Permanentmagneten aufzubauen. Permanentmagnete sind im Unterschied zu Elektromagneten ständig einsatzbereit und völlig wartungsfrei, benötigen keine Stromquellen oder Kühlung, und liefern rauschfreie Magnetfelder. Die Größe von Permanentmagneten kann zudem (im Unterschied zu Elektromagneten) beliebig skaliert werden, ohne eine Änderung der maximalen Feldstärke zu verursachen [50]. Insbesondere können dadurch sehr kleine, starke Permanentmagnete hergestellt werden.

5.1.1.1 Magnetfelderzeugung mit Seltenerd-Permanentmagneten

Insbesondere mit den seit Anfang der 70er Jahre kommerziell erhältlichen Seltenerd-Permanentmagneten können Feldstärken erreichen werden, die vergleichbar oder sogar größer sind als Felder, die mit konventionellen Elektromagneten erzielt werden können. So haben kommerziell erhältliche Permanentmagnete mit Legierungen aus Neodym-Eisen-Bor (NdFeB) bei Zimmertemperatur Remanenzfeldstärken B_R bis zu 1,47 T [123]. Zudem sind diese Seltenerd-Magnete magnetisch sehr hart, d.h. sie haben sehr große Koerzitivfeldstärken $_MH_C$, bei denen die Magnetisierung M des Materials im äußeren Magnetfeld H aufgehoben wird (Abb. 5.1). Bei vielen Seltenerd-Magneten ist $_MH_C$ größer als die Koerzitivfeldstärke $_{B}H_{C}$, bei der sich das äußere Magnetfeld und das durch die Magnetisierung erzeugte Magnetfeld gerade aufheben. Deshalb wird ein solcher Permanentmagnet im Feld eines anderen Permanentmagneten aus gleichem Material nicht ummagnetisiert. Diese extrem hartmagnetischen Materialien haben sehr einfache magnetische Eigenschaften, da die Wechselwirkung der Magnetisierung mit Magnetfeldern vernachlässigbar und dadurch das Superpositionsprinzip anwendbar ist. Der Nachteil von Permanentmagneten aus Seltenerd-Materialien besteht im Preis des Rohmaterials sowie in der aufwändigen Verarbeitung des sehr harten und spröden Materials durch Drahterosion und Schleifen.



Abbildung 5.1: Typische Hysteresekurve der Magnetisierung M(H) bzw. der magnetischen Flussdiche B(H) eines Hartmagneten. Angegeben sind die magnetischen Kenngrößen Remanenz B_R und Koerzitivfeldstärke $_MH_C$ bzw. $_BH_C$.

Umfangreiche Untersuchungen zu Herstellung und magnetischen Eigenschaften von ebenen permanentmagnetischen Quadrupolen aus Seltenerd-Materialien wurden Anfang der 80er Jahre von K. Halbach am Berkeley Laboratory durchgeführt [50, 51, 52]. Permanentmagnetische Multipole wurden dort hinsichtlich ihrer Verwendbarkeit in der Beschleunigerphysik untersucht. W. G. Kaenders erweiterte diese Überlegungen hinsichtlich der atomoptischen Eigenschaften von Quadrupolen und Hexapolen [58]. An diesem Kapitel wird insbesondere die Eignung von permanentmagnetischen Quadrupolen zur Flussdichteerhöhung von thermischen Atomstrahlen analysiert.

5.1.1.2 Aufbau eines Quadrupols aus Permanentmagneten

Seltenerd-Magnete sind magnetisch stark anisotrop [58], d. h. die Magnetisierung weist eine Vorzugsrichtung auf. Während des Herstellungsprozesses wird ein Werkstück aus Seltenerd-Magnetmaterial homogen in dieser Vorzugsrichtung magnetisiert. Daher ist es notwendig, komplexe Magnetisierungen, wie z. B. ebene Quadrupole, aus homogen magnetisierten Einzelsegmenten aufzubauen.

Der im vorgestellten Experiment (Kap. 6) eingesetzte Quadrupol ist aus 8 NdFeB-Permanentmagneten aufgebaut, deren Form, Lage und Magnetisierungsrichtung in Abbildung 5.2 eingezeichnet ist. Die Einzelsegmente haben eine Remanenz $B_R = 1,12$ T, und eine Koerzitivfeldstärke $_MH_C = 1650$ kA/m, wodurch ausgeschlossen ist, dass die Segmente sich im Feld eines anderen Segments ummagnetisieren können ($_MH_C \gg _BH_C = 830$ kA/m). Weiter können die Magnete ohne Schädigung auf bis zu 150° C erhitzt werden. Der zusammengesetzte Quadrupol hat eine Länge L = 20 mm, einen Innenradius $\rho_i = 5$ mm und einen Außenradius $\rho_a = 25$ mm.



Abbildung 5.2: Der im Experiment (Kap. 6) verwendete permanentmagnetische Quadrupol besteht aus 8 Einzelsegmenten mit jeweils homogener Magnetisierung (Die Richtung der Magnetisierung ist eingezeichnet). Alle Segmente sind Seltenerd-Magnete auf der Basis von NdFeB mit einer Remanenz $B_R = 1,12$ T.

5.1.2 Magnetische Eigenschaften eines ebenen Quadrupols

5.1.2.1 Magnetisches Potenzial eines idealen Quadrupols

Mit der beliebigen Magnetisierung \vec{M} lauten die Maxwell-Gleichungen der Magnetostatik für das Magnetfeld $\vec{H} = \vec{B}/\mu_0 - \vec{M}$:

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = 0 \tag{5.1}$$

$$\nabla \cdot H = -\nabla \cdot M \tag{5.2}$$

Wegen (5.1) existient ein Potenzial Φ_M mit

$$H = -\vec{\nabla}\Phi_M \ . \tag{5.3}$$

Mit (5.2) folgt die Poisson-Gleichung

$$\Delta \Phi_M = \vec{\nabla} \cdot \vec{M} \tag{5.4}$$

mit der bekannten Lösung [18]

$$\Phi_M(\vec{r}) = -\frac{1}{4\pi} \int_V \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r'}|} \vec{\nabla} \cdot \vec{M}(\vec{r'}) \, d^3r' \,.$$
(5.5)

Da die Magnetisierung an der Oberfläche des magnetisierten Materials unstetig übergeht, ist eine Aufteilung dieser allgemeinen Lösung in den Beitrag der Oberfläche δV und den Betrag des offenen Volumens \tilde{V} (ohne Oberfläche) des magnetisierten Materials sinnvoll. Nach dem Gauß'schen Satz folgt

$$\Phi_M(\vec{r}) = -\frac{1}{4\pi} \int_{\tilde{V}} \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r'}|} \vec{\nabla} \cdot \vec{M}(\vec{r'}) \, d^3r' + \frac{1}{4\pi} \int_{\delta V} \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r'}|} \vec{n'} \cdot \vec{M}(\vec{r'}) ds' \,, \tag{5.6}$$

wobei \vec{n} der Normalenvektor auf der Oberfläche δV ist. Insbesondere bei homogener Magnetisierung ($\vec{M} = \text{konstant}$) verschwindet die Divergenz der Magnetisierung. Zum Potenzial Φ_M tragen somit nur noch die Oberflächen bei, die auch als "Stromblätter" bezeichnet werden.

Betrachtet wird zunächst die Magnetisierung eines unendlich langen, idealen Quadrupols aus permanentmagnetischem Material mit Innenradius ρ_i , Außenradius ρ_a und Remanenz $B_R = \mu_0 M_0$. Sie lässt sich in Zylinderkoordinaten (ρ, ϕ, z) beschreiben als

$$\vec{M}(\rho,\phi,z) = \left\{ \begin{array}{ll} M_0 \left[\cos(2\phi)\vec{e}_{\rho} + \sin(2\phi)\vec{e}_{\phi} \right] & \text{für } \rho_i \le \rho \le \rho_a \\ 0 & \text{sonst} \end{array} \right\} .$$
(5.7)

Nach Integration von (5.6) folgt für das magnetische Potenzial Φ_M des Quadrupols außerhalb des magnetischen Materials [58]:

$$\Phi_M(\rho,\phi) = \left\{ \begin{array}{ll} M_0 \left(1 - \frac{\rho_a}{\rho_i}\right) \frac{\rho^2}{\rho_i} \cos(2\phi) & \text{für } \rho < \rho_i \\ 0 & \text{für } \rho > \rho_a \end{array} \right\}$$
(5.8)

Interessanterweise verschwindet das magnetische Potenzial und damit das Magnetfeld außerhalb des Quadrupols ($\rho > \rho_a$). Damit ist das gesamte magnetische Feld im inneren Zylinder ($\rho < \rho_i$) eingeschlossen¹.

5.1.2.2 Magnetisches Potenzial eines realen Quadrupols

Reale Multipole aus Seltenerd-Permanentmagneten bestehen im Unterschied zum oben betrachteten idealen Quadrupol aus homogen magnetisierten Einzelsegmenten. Zudem haben reale Multipole eine endliche Länge. Das resultierende magnetische Potenzial ist durch Integration von Gleichung (5.6) berechenbar. In diesem Abschnitt werden die relevanten Resultate dieser aufwändigen Berechnungen angegeben, für die Herleitung sei auf die entsprechende Literatur [50, 51, 58] verwiesen.



Abbildung 5.3: Häufig eingesetzte Bauformen der Quadrupolsegmente: (a) zylinderförmiges Segment; (b) trapezförmiges Segment.

Segmentierung eines Quadrupols Der Aufbau eines Quadrupols aus homogen magnetisierten Segmenten (Abb. 5.2) führt, verglichen mit einer idealen Magnetisierung nach Gleichung (5.7), zu einer Abschwächung des magnetischen Quadrupols. Nach Halbach [50] kann die Abschwächung des Magnetfeldes B bzw. des Potenzials Φ_M durch einen Faktor G_{QP}^S beschrieben werden, der für den Fall der idealen Magnetisierung auf 1 normiert ist. Die Größe von G_{QP}^S hängt insbesondere von der Geometrie der Segmente ab. Dabei wird das Feld des Quadrupols maximal, wenn das von Innen- bzw. Außenradius begrenzte Volumen vollständig von magnetischem Material mit geeigneter Magnetisierungsrichtung ausgefüllt ist. Diese Forderung wird durch die beim beschriebenen Quadrupol (Kap. 5.1.1.2) verwendeten Zylindersegmente (Abb. 5.3a) erfüllt, für welche

$$G_{QP}^{S} = \frac{\sin(3\pi/S)}{3\pi/S}$$
(5.9)

gilt, wobei die SegmentierungszahlS die Anzahl der Einzelsegmente angibt. Für einfacher herzustellende, trapezförmige Einzelsegmente gilt

$$G_{QP}^{S} = \cos^{2}(\pi/S) \frac{\sin(2\pi/S)}{2\pi/S} .$$
(5.10)

In Tabelle 5.1 sind die Werte von G_{QP}^S für typische Segmentierungszahlen angegeben. Bereits bei einer Segmentierungszahl S = 8 hat der Quadrupol 78 % der Stärke eines Quadrupols mit idealer Magnetisierung.

	S = 4	S = 8	S = 12	S = 16	S = 20	S = 24
G_{QP}^{S} für Zylindersegmente	0,300	0,784	0,900	0,943	0,964	0,974
G_{QP}^{S} für Trapezsegmente	0,318	0,769	0,891	0,937	0,960	0,972

Tabelle 5.1: Segmentierungsfaktoren G_{QP}^S für zylinderförmige bzw. trapezförmige Segmentierung eines Quadrupols.

Durch die Segmentierung werden unerwünschte zusätzliche Multipole der Ordnung $2 + m \cdot S$ mit m = 1, 2,... erzeugt [51]. So werden beim beschriebenen Quadrupol mit 8-facher Segmentierung der 10-Pol und der 18-Pol als nächste höhere Harmonische eingeführt. Diese haben jedoch eine relative Amplitude von weniger als 10 % und können für die Beschreibung der Bündelung von Atomstrahlen vernachlässigt werden.

¹Betrachtet man statt der "inneren" Magnetisierung (5.7) eine "äußere" Magnetisierung der Form $\vec{M} = M_0 \left(\cos(2\phi) \vec{e}_{\rho} - \sin(2\phi) \vec{e}_{\phi} \right)$, so erzeugt der verfügbare magnetische Fluss einen "äußeren" Quadrupol, während das Feld im Innenraum verschwindet [58].

Endliche Länge eines Quadrupols An den Rändern eines ebenen magnetischen Quadrupols mit der Länge L verändert sich offensichtlich das magnetische Potenzial Φ_M^L in Abhängigkeit der Position z auf der Symmetrieachse. Eine Integration von Gleichung (5.6) zeigt, dass die Veränderung des Potenzials für $\rho \ll \rho_i$ in guter Näherung durch eine von ρ und ϕ unabhängige Einschaltfunktion $K_{QP}^L(z)$ beschrieben werden kann. Definition und Herleitung von $K_{QP}^L(z)$ sind in Anhang A.1 ausgeführt. Für das magnetische Potenzial eines Quadrupols mit der Länge L gilt

$$\Phi_M^L(\rho,\phi,z) = \Phi_M(\rho,\phi,z) \cdot K_{QP}^L(z) + O(\rho^4) .$$
(5.11)

Wichtig für das Verständnis der atomoptischen Eigenschaften des Quadrupols ist der allein aus Symmetriebetrachtungen und dem Superpositionsprinzip folgende Zusammenhang [51]:

$$\int_{-\infty}^{\infty} K_{QP}^L(z) dz = L$$
(5.12)

Damit ist die so genannte "optische Wirklänge" jeder magnetischen Feldgröße ebenfalls L [51]. Abbildung 5.4a zeigt den Verlauf von K_{QP}^{L} für den im Experiment verwendeten Quadrupol. Man sieht, dass die Ränder des Magneten Auswirkungen bis weit ins Innere des Magneten haben.



Abbildung 5.4: (a) Verlauf der Einschaltfunktion K_{QP}^L für den beschriebenen Quadrupol (L = 20 mm, $\rho_i = 5$ mm, $\rho_a = 25$ mm). Die Ausdehnung des Quadrupols ist durch die graue Farbgebung angedeutet. (b) Berechneter Betrag der magnetischen Flussdichte $B = |\vec{B}(\rho, z)|$. Graue Flächen: Begrenzungsflächen des Magneten in z-Richtung.

Realer Quadrupol Zusammenfassend gilt für das magnetische Potenzial eines Quadrupols mit Innenradius ρ_i , Außenradius ρ_a , Länge L, Zahl der Segmente S und Magnetisierung M_0 :

$$\Phi_M^L(\rho,\phi,z) = M_0 \left(1 - \frac{\rho_a}{\rho_i}\right) G_{QP}^S \cdot K_{QP}^L(z) \frac{\rho^2}{\rho_i} \cos(2\phi) + O(\rho^4) .$$
(5.13)

Hier bezeichnet $O(\rho^4)$ die nächsten Taylor-Ordnungen, die mit 4. und höherer Potenz von ρ eingehen. Diese können für den interessierenden Fall $\rho \ll \rho_i$ vernachlässigt werden.

5.1.2.3 Magnetische Flussdichte eines permanentmagnetischen Quadrupols

Für die magnetische Flussdichte $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M})$ außerhalb des Magnetmaterials $(\vec{M} = \vec{0})$ gilt nach (5.3)

$$\vec{B} = -\mu_0 \vec{\nabla} \Phi_M. \tag{5.14}$$

Mit $B_r := \mu_0 M_0$ folgt in Zylinderkoordinaten für die niedrigste Ordnung von \vec{B} (in ρ)

$$\begin{pmatrix} B_{\rho} \\ B_{\phi} \\ B_{z} \end{pmatrix} = -\mu_{0} \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial \rho} \\ \frac{\partial}{\rho \partial \phi} \\ \frac{\partial}{\partial z} \end{pmatrix} \Phi_{M}^{L} = B_{r} \left(1 - \frac{\rho_{i}}{\rho_{a}}\right) G_{QP}^{S} \begin{pmatrix} -2K_{QP}^{L}(z)\frac{\rho}{\rho_{i}}\cos(2\phi) \\ 2K_{QP}^{L}(z)\frac{\rho}{\rho_{i}}\sin(2\phi) \\ -\frac{\partial}{\partial z}K_{QP}^{L}(z)\frac{\rho^{2}}{\rho_{i}}\cos(2\phi) \end{pmatrix} + \vec{O}(\rho^{3})$$

Die höheren Taylor-Ordnungen $\vec{O}(\rho^3)$, die ab der 3. Potenz von ρ eingehen, sind für $\rho \ll \rho_i$ vernachlässigbar.

Für die atomoptischen Eigenschaften des Quadrupols ist vor allem der Betrag $B = |\vec{B}|$ der magnetische Flussdichte von Interesse. Es gilt

$$B = 2B_R \left(1 - \frac{\rho_i}{\rho_a} \right) G^S \cdot K_{QP}^L(z) \frac{\rho}{\rho_i} + O(\rho^3) .$$
 (5.15)

Für $\rho \ll \rho_i$ gilt unabhängig von der Geometrie des Quadrupols $B \sim \rho$. Für den im Experiment eingesetzten Permanentmagneten aus NdFeB mit einer Remanenz $B_R = 1,12$ T und einem Verhältnis $\rho_a/\rho_i = 5$ führt dies zu B = 2,81 T/cm $\cdot K_{QP}^L(z) \cdot \rho$. Abbildung 5.4b zeigt den mit (5.15) berechneten Betrag der magnetischen Flussdichte B.

5.2 Atomoptische Eigenschaften eines ebenen Quadrupols

Die magnetische Flussdichte eines ebenen Quadrupols koppelt an das magnetische Moment von (neutralen) Atomen. Die aus dieser Kopplung resultierende Kraft verändert die atomare Trajektorie. Daher stellt ein ebener Quadrupol für einen Atomstrahl eine atomoptische Komponente dar.

5.2.1 Wechselwirkung zwischen Atom und Magnetfeld

5.2.1.1 Aufspaltung der atomare magnetischen Unterzustände

Aus der Kopplung zwischen einem Atom mit permanentem magnetischen Moment $\vec{\mu}$ und der lokalen magnetischen Flussdichte \vec{B} resultiert eine energetische Aufspaltung der atomaren magnetischen Unterzustände. Je nach Orientierung von $\vec{\mu}$ zu \vec{B} werden die Zustände im Magnetfeld energetisch angehoben oder abgesenkt. Diese Veränderung der inneren Energie eines Atoms geht einher mit einer entsprechenden Änderung der kinetischen Energie, und kann daher als potenzielle Energie V aufgefasst werden. Es gilt

$$V = \mu_{\text{eff}} \cdot B , \qquad (5.16)$$

wobei $\mu_{\text{eff}} = \frac{\partial E}{\partial B}$ der effektive Kopplungsparameter zwischen Atom und magnetischer Flussdichte ist. Der Kopplungsparameter ist im Allgemeinen von *B* abhängig, und kann für den Cäsium-Grundzustand 6 ${}^{2}S_{1/2}$ durch die *Breit-Rabi*-Formel [12] berechnet werden (Abb. 5.5). Positives Vorzeichen von μ_{eff} bedeutet nach Gleichung (5.16) ein Anwachsen der potenziellen Energie V eines Atoms im Magnetfeld. Dementsprechend wird das Atom von Magnetfeldern abgestoßen, so dass es als Schwachfeldsucher bezeichnet wird. Im Fall $\mu_{\text{eff}} < 0$ sinkt die potenzielle Energie im Magnetfeld ab, so dass ein Atom zum Starkfeldsucher wird.



Abbildung 5.5: Nach der *Breit-Rabi*-Formel berechneter effektiver Kopplungsparameter μ_{eff} für den Cäsium-Grundzustand 6 ${}^{2}S_{1/2}$ als Funktion des Magnetfeldes *B* in Einheiten des Bohrschen Magnetons $\mu_{B} = 9,27 \cdot 10^{-24} \text{ J/T}$. In Klammern sind die Quantenzahlen für die Zeeman-Kopplung (*F*, *m_F*) angegeben, m_{J} gibt die magnetische Quantenzahl des Hüllenspins für den Fall der Paschen-Back-Kopplung an.

Inhomogene Magnetfelder Entlang der Trajektorie eines Atoms durch den Quadrupol ändern sich im Allgemeinen die Richtung und der Betrag der magnetischen Flussdichte \vec{B} . Die Dynamik eines atomaren Drehimpulses F in solchen inhomogenen Magnetfeldern berechnete Majorana [73] zur theoretischen Beschreibung der Experimente von Stern [110] und Gerlach [42]. Danach hängt die Entwicklung des atomaren Drehimpulses entscheidend von der Änderungsrate $\chi = |\vec{B} \times \frac{\partial}{\partial t}\vec{B}|/B^2$ der Richtung der magnetischen Flussdichte \vec{B} ab, verglichen mit der Kopplungs-Zeitskala zwischen Atom und Magnetfeld, welche durch die Larmor-Frequenz $\Omega_L = \mu_{\text{eff}} B/\hbar$ bestimmt ist. Ist $\chi \geq \Omega_L$, so können zwischen den atomaren magnetischen Unterzuständen m_F diabatische Übergänge induziert werden. Insbesondere kann es beim Durchlaufen einer vollständigen Magnetfeld-Umkehr zu einem so genannten "Spin-Flip" oder auch "Majorana-Übergang" kommen, bei dem ein Atom vom magnetischen Unterzustand m_F in den Zustand $-m_F$ wechselt. Damit würde sich auch das Vorzeichen der potenziellen Energie (5.16) des Atoms umkehren.

Bei thermischen Atomstrahlen ist jedoch die Änderungsrate von \vec{B} sehr klein gegenüber der internen Zeitskala ($\chi \ll \Omega_L$) [58]. Hier finden nur **adiabatische** Zustandsänderungen statt, bei denen die Projektion m_F des atomaren Drehimpulses auf die lokale Feldrichtung erhalten bleibt. Ein Atom verbleibt also entlang seiner Trajektorie durch den Quadrupol in einem konstanten magnetischen Unterzustand. Insbesondere gilt für einen Cäsium-Atomstrahl, der vor dem Quadrupol in den Zustand $|F = 4, m_F = 4\rangle$ gepumpt wurde (vgl. Kap. 6), beim Passieren eines Quadrupols fortwährend

$$\mu_{\rm eff} = \mu_B = 9,27 \cdot 10^{-24} \,\mathrm{Am}^2 \,. \tag{5.17}$$
5.2.1.2 Kraft auf das Atom

Die potenzielle Energie von Atomen im Magnetfeld eines Quadrupols beträgt nach Gleichung (5.15) und (5.16) für $\rho \ll \rho_i$

$$V(\rho,\phi,z) = \mu_{\text{eff}}B(\rho,\phi,z) = 2\mu_{\text{eff}}B_R\left(1-\frac{\rho_i}{\rho_a}\right)G^S \cdot K_{QP}^L(z)\frac{\rho}{\rho_i}$$
(5.18)

Für die Kraft $\vec{F} = -\vec{\nabla}V$ auf ein Atom folgt:

$$\begin{pmatrix} F_{\rho} \\ F_{\phi} \\ F_{z} \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial \rho} \\ \frac{\partial}{\rho \partial \phi} \\ \frac{\partial}{\partial z} \end{pmatrix} V = -2\mu_{\text{eff}} B_{R} \Big(\frac{1}{\rho_{i}} - \frac{1}{\rho_{a}} \Big) G^{S} \begin{pmatrix} K_{QP}^{L}(z) \\ 0 \\ \rho \frac{\partial}{\partial z} K_{QP}^{L}(z) \end{pmatrix}$$
(5.19)

Die Beschleunigung $\vec{a} = \vec{F}/m_{\text{Atom}}$ lautet dementsprechend

$$\begin{pmatrix} a_{\rho} \\ a_{\phi} \\ a_{z} \end{pmatrix} = a_{0} \begin{pmatrix} -K_{QP}^{L}(z) \\ 0 \\ -\rho \frac{\partial}{\partial z} K_{QP}^{L}(z) \end{pmatrix} .$$
(5.20)

 mit

$$a_0 = 2 \frac{\mu_{\text{eff}}}{m_{\text{Atom}}} B_R \left(\frac{1}{\rho_i} - \frac{1}{\rho_a}\right) G^S .$$

$$(5.21)$$

Für einen Cäsium-Atomstrahl im Zustand $|F = 4, m_F = 4\rangle$ (mit $\mu_{\text{eff}} = \mu_B$) und den in Kapitel 5.1.1.2 beschriebenen Quadrupol (Remanenz $B_r = 1,12$ T, $\rho_i = 5$ mm, $\rho_a = 25$ mm, 8-fache Segmentierung) besitzt a_0 den Wert

$$a_0 = 11.8 \cdot 10^3 \frac{\mathrm{m}}{\mathrm{s}^2} \ . \tag{5.22}$$

Bündelung von Atomstrahlen Die radiale Komponente der Beschleunigung \vec{a} lenkt schwachfeldsuchende Atome ($\mu_{\text{eff}} > 0$) in Richtung Symmetrieachse und bewirkt so die Bündelung eines in z-Richtung propagierenden Atomstrahls auf eine Brennlinie (Abb. 5.6). Die Beschleunigung a_z in Richtung der Atomstrahlachse kann bei der Betrachtung von thermischen Atomstrahlen vernachlässigt werden, da die longitudinale Geschwindigkeitsänderung Δv_z sehr klein gegen die Geschwindigkeit v_z des Atomstrahls ist.



Abbildung 5.6: Simuliert ist der Durchgang von Cäsium-Atomen im Zustand $|F = 4, m_F = 4\rangle$ durch den in Kapitel 5.1.1.2 beschriebenen Quadrupol. Die Atome werden auf eine Brennlinie gebündelt.

5.2.2 Atomtrajektorie durch dünnen Quadrupol

Ein Atom mit der Geschwindigkeit $\vec{v} = (v_x, v_y, v_z)$ passiere am Ort $\vec{r}_0 = (x_0, y_0, 0)$ einen dünnen² magnetischen Quadrupol (Abb. 5.7). Mit (5.12) und (5.20) gilt für die Geschwindigkeit \vec{v}' hinter dem Quadrupol

$$\vec{v}' = \vec{v} + \int \vec{a}(t) dt = \vec{v} + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\vec{a}(z)}{v_z} dz$$
 (5.23)

$$= \vec{v} - \frac{\vec{r_0}}{|\vec{r_0}|} \frac{a_0 L}{v_z}$$
(5.24)

wobei L die (infinitesimale) Länge des Quadrupols ist. Bei dem in Kapitel 5.1.1.2 beschriebenen Quadrupol ergeben sich für Cäsium-Atome im Zustand $|F = 4, m_F = 4\rangle$ mit der Geschwindigkeit $v_z \approx 260$ m/s typische radiale Geschwindigkeitsänderungen von $a_0 L/v_z \approx 0.9$ m/s. Im Abstand z > 0 hinter dem Quadrupol hat das Atom die Ortskoordinate

$$\vec{r}_{z} = \vec{r}_{0} + \vec{v}' t = \vec{r}_{0} + \vec{v}' \frac{z}{v_{z}}$$
(5.25)

$$= \frac{\vec{r}_0}{|\vec{r}_0|} \left(|\vec{r}_0| - z \frac{a_0 L}{v_z^2} \right) + \vec{v} \frac{z}{v_z} .$$
(5.26)



Abbildung 5.7: Ein Atom durchfliegt einen dünnen Quadrupol.

Mit der Einführung von zylindrischen Koordinaten $(\hat{\rho}, \hat{\phi}, z)$ zur Bezugsachse \vec{v} (Abb. 5.7) wird das Problem vereinfacht³. Mit $\hat{\rho}_z := |\vec{r}_z - \vec{v} \cdot z/v_z|$ gilt nämlich

$$\hat{\rho}_z = \left| \rho_0 - z \frac{a_0 L}{v_z^2} \right| \tag{5.27}$$

$$\hat{\phi}_{z} = \begin{cases} \phi_{0} & \text{für } \rho_{0} > z \frac{a_{0}L}{v_{z}^{2}} \\ \phi_{0} + \pi & \text{für } \rho_{0} < z \frac{a_{0}L}{v_{z}^{2}} \end{cases} \end{cases}$$
(5.28)

Im Fall $\rho_0 < z \frac{a_0 L}{v_z^2}$ hat die Atomtrajektorie die Bezugsachse \vec{v} gekreuzt.

², Dünn" bedeutet hier, dass die Ausdehnung des Quadrupolpotenzials in z-Richtung vernachlässigt wird, d. h. die Wechselwirkungszone zwischen Atom und Quadrupol ist auf die Ebene z = 0 reduziert.

³Die zylindrischen Koordinaten mit der z-Achse als Bezugsachse werden mit (ρ, ϕ, z) bezeichnet. Bei z = 0 sind $(\hat{\rho}, \hat{\phi}, z)$ identisch mit (ρ, ϕ, z) .

Umgekehrt folgt bei gegebenem $(\hat{\rho}_z, \hat{\phi}_z, z)$ für den Eintrittsort $(\rho_0, \phi_0, 0)$ in den Quadrupol (Abb. 5.8):

$$\rho_0^{\pm} = z \frac{a_0 L}{v_z^2} \pm \hat{\rho}_z \tag{5.29}$$

$$\phi_0^{\pm} = \hat{\phi}_z + \frac{\pi}{2} \pm \frac{\pi}{2} \tag{5.30}$$

Die Lösung $(\rho_0^-, \phi_0^-, 0)$ ist nur physikalisch, wenn $\hat{\rho}_z < z \frac{a_0 L}{v_z^2}$ gilt. Sie entspricht Atomen, die den Ort $(\hat{\rho}_z, \hat{\phi}_z, z)$ durch Kreuzung der Symmetrieachse erreichen.

5.3 Atomare (Fluss-)Dichte hinter einem Quadrupol

Die aus der Bündelung eines Atomstrahls durch einen ebenen magnetischen Quadrupol resultierende atomare Dichte- bzw. Flussdichteverteilung wird zunächst mit einem vereinfachenden analytischen Modell behandelt, welches die Konsequenzen für das Experiment in Kapitel 6 verdeutlicht. Des Weiteren werden Ergebnisse von Simulationen vorgestellt.

5.3.1 Analytisches Modell der (Fluss-)Dichteverteilung

5.3.1.1 Berechnung der (Fluss-)Dichteverteilung eines Atomstrahls

In diesem Abschnitt wird zunächst die (Fluss-)Dichte eines idealisierten, monochromatischen Atomstrahls nach Durchgang durch einen dünnen Quadrupol untersucht. Davon ausgehend wird die (Fluss-)dichteverteilung für einem realen Atomstrahl hergeleitet.

Idealer Atomstrahl Die Dichte $\vartheta(\vec{r}_z)$ eines monochromatischen Atomstrahls mit der einheitlichen Atomgeschwindigkeit \vec{v} wird auf die als bekannt vorausgesetzte Dichte $\vartheta(\vec{r}_0)$ vor Eintritt in den Quadrupol zurückgeführt. Dazu wird berechnet, aus welchem Volumen dV_0 am Ort $\vec{r}_0 = (\rho_0, \phi_0, 0)$ die Atome in einem Volumen dV_z am Ort $\vec{r}_z = (\hat{\rho}, \hat{\phi}, z)$ hinter dem Quadrupol stammen. So werden Atome eines Volumens $dV_0^+ = \rho_0^+ d\rho \, d\phi \, dz$ bei \vec{r}_0^+ nach Gleichung (5.29) auf das Volumen $dV_z = \hat{\rho}d\hat{\rho}\,d\hat{\phi}\,dz$ am Ort \vec{r}_z abgebildet (Abb. 5.8). Wenn



Abbildung 5.8: Die im Volumen dV_0^+ befindlichen Atome werden durch den Quadrupol auf das Volumen dV_z abgebildet. Wenn z ausreichend groß ist, können auch Atome aus dem Volumen dV_0^- durch Kreuzung der Symmetrieachse nach dV_z gelangen.

 $\hat{\rho}_z < z \frac{a_0 L}{v_z^2}$ gilt, dann gelangen auch Atome aus dem Volumen $dV_0^- = \rho_0^- d\rho \, d\phi \, dz$ bei $\vec{r_0}$ durch Kreuzung der Symmetrieachse in das Volumen dV_z . Damit gilt

$$\vartheta(\vec{r}_z) \, dV_z = \vartheta(\vec{r}_0^+) \, dV_0^+ + \Theta(\rho^-) \cdot \vartheta(\vec{r}_0^-) \, dV_0^- \tag{5.31}$$

mit der Heavysidefunktion

$$\Theta(x) = \left\{ \begin{array}{c} 1 \text{ für } x > 0\\ 0 \text{ sonst} \end{array} \right\} .$$
(5.32)

Es folgt sofort die Lösung für die Dichte $\vartheta(\vec{r})$ bzw. Flussdichte $\psi(\vec{r}) = v_z \vartheta(\vec{r})$ eines monochromatischen Atomstrahls (Atomgeschwindigkeit \vec{v}) hinter einem Quadrupol:

$$\vartheta(\vec{r}_z) = \frac{1}{\hat{\rho}_z} \left[\rho_0^+ \vartheta(\vec{r}_0^+) + \Theta(\rho_0^-) \cdot \rho_0^- \vartheta(\vec{r}_0^-) \right]$$
(5.33)

$$\psi(\vec{r}_{z}) = \frac{v_{z}}{\hat{\rho}_{z}} \left[\rho_{0}^{+} \vartheta(\vec{r}_{0}^{+}) + \Theta(\rho_{0}^{-}) \cdot \rho_{0}^{-} \vartheta(\vec{r}_{0}^{-}) \right],$$
(5.34)

wobei $\rho_0^{\pm} = z \frac{a_0 L}{v_z^2} \pm \hat{\rho}_z$ und $\hat{\rho}_z = |\vec{r}_z - \vec{v} \cdot z/v_z|$ gilt.

Allgemeine Lösung Die Atome eines realen Atomstrahls besitzen eine Geschwindigkeitsverteilung $\sigma(\vec{r}, \vec{v})$. Nach dem Durchgang eines solchen Atomstrahls durch einen Quadrupol resultiert die Dichte ϑ bzw. Flussdichte ψ daher aus der Faltung

$$\vartheta(\vec{r}_{z}) = \int \int \int \frac{1}{\hat{\rho}_{z}} \left[\rho_{0}^{+} \sigma(\vec{r}_{0}^{+}, \vec{v}) \vartheta(\vec{r}_{0}^{+}) + \Theta(\rho_{0}^{-}) \rho_{0}^{-} \sigma(\vec{r}_{0}^{-}, \vec{v}) \vartheta(\vec{r}_{0}^{-}) \right] dv_{x} dv_{y} dv_{z}$$
(5.35)

$$\psi(\vec{r}_z) = \int \int \int \frac{v_z}{\hat{\rho}_z} \left[\rho_0^+ \sigma(\vec{r}_0^+, \vec{v}) \vartheta(\vec{r}_0^+) + \Theta(\rho_0^-) \rho_0^- \sigma(\vec{r}_0^-, \vec{v}) \vartheta(\vec{r}_0^-) \right] \, dv_x \, dv_y \, dv_z \tag{5.36}$$

5.3.1.2 Eigenschaften der (Fluss-)Dichte hinter einem Quadrupol

Häufig sind Atomstrahlen radialsymmetrisch, wie auch im Experiment in Kapitel 6. Bei senkrechtem Einfall in einen ebenen magnetischen Quadrupol bleibt auf Grund der radialsymmetrischen Kraft die Radialsymmetrie des Atomstrahls erhalten. In Zylinderkoordinaten (ρ, ϕ, z) gilt:

$$\vartheta(\rho, \phi, z) = \vartheta(\rho, 0, z) =: \vartheta_z(\rho) \tag{5.37}$$

$$\psi(\rho, \phi, z) = \psi(\rho, 0, z) =: \psi_z(\rho) \tag{5.38}$$

Alle folgenden Rechnungen sind auf radialsymmetrische Atomstrahlen beschränkt.

kollimierter Atomstrahl In der Atomoptik werden üblicherweise kollimierte Atomstrahlen eingesetzt, deren transversale Geschwindigkeitsverteilung σ durch Blenden oder optische Melassen eingeschränkt wird. Insbesondere ist die Geschwindigkeitsverteilung in sehr guter Näherung radialsymmetrisch und homogen über dem Atomstrahl, und die transversale Geschwindigkeitsverteilung σ_{\perp} ist weitestgehend unabhängig von v_z . Damit gilt

$$\sigma(\vec{r},\vec{v}) \cong \sigma_{\perp}(v_{\perp})\sigma_z(v_z) \tag{5.39}$$

mit $v_{\perp} = \sqrt{v_x^2 + v_y^2}$ und der longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung σ_z . Zudem sei die transversale Geschwindigkeitsverteilung σ_{\perp} eines kollimierten Atomstrahlen schmal gegenüber der durch den Quadrupol induzierten Geschwindigkeitsänderung, d. h. mit $v_{\perp}^{\max} \ll \frac{a_0 L}{v_z}$ gilt

$$\sigma_{\perp}(v_{\perp}) \cong 0 \qquad \text{für } v_{\perp} > v_{\perp}^{\max} \tag{5.40}$$

Bei radialsymmetrischen, kollimierten Atomstrahlen mit senkrechtem Einfall in einen Quadrupol vereinfachen sich (5.35) und (5.36) zu

$$\vartheta_z(\rho_z) = \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_\perp(v_\perp)}{\hat{\rho}_z} \left[\rho_0^+\vartheta_0(\rho_0^+) + \Theta(\rho_0^-) \cdot \rho_0^-\vartheta_0(\rho_0^-)\right] dv_x dv_y dv_z \qquad (5.41)$$

$$\psi_z(\rho_z) = \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_\perp(v_\perp)}{\hat{\rho}_z} \left[\rho_0^+\vartheta_0(\rho_0^+) + \Theta(\rho_0^-) \cdot \rho_0^-\vartheta_0(\rho_0^-)\right] dv_x dv_y dv_z$$
(5.42)

(Fluss-)Dichte nahe der Symmetrieachse Im Symmetrieachsen-nahen Fall, d. h. für $\hat{\rho} \ll z \frac{a_0 L}{v_z^2}$, kann (5.29) genähert werden zu $\rho_0^{\pm} \approx z \frac{a_0 L}{v_z^2}$. Dadurch vereinfacht sich die (Fluss-) Dichte (5.41) und (5.42) zu

$$\vartheta_z(\rho_z) = 2a_0 L z \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_\perp(v_\perp)}{v_z^2 \hat{\rho}_z} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) \, dv_x \, dv_y \, dv_z \tag{5.43}$$

$$\psi_z(\rho_z) = 2a_0 L z \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_\perp(v_\perp)}{v_z \hat{\rho}_z} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) \, dv_x \, dv_y \, dv_z \tag{5.44}$$

Insbesondere gilt für $z \frac{v_{\perp}}{v_z} < z \frac{v_{\perp}^{\max}}{v_z} \ll \rho_z$ die Näherung $\hat{\rho}_z := |\vec{r}_z - \vec{v} \cdot z/v_z| \approx \sqrt{x^2 + y^2} = \rho_z$. Damit kann Gleichung (5.43) bzw. (5.44) sofort über dv_x und dv_y integriert werden:

$$\vartheta_z(\rho_z) = 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int \frac{\sigma_z(v_z)}{v_z^2} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) dv_z$$
(5.45)

$$\psi_z(\rho_z) = 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int \frac{\sigma_z(v_z)}{v_z} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) dv_z$$
(5.46)

In diesem Bereich von ρ_z sind Dichte und Flussdichte demnach unabhängig von σ_{\perp} , und zeigen bei beliebigem σ_z und ϑ_0 einen charakteristischen $1/\rho_z$ -Verlauf⁴.

(Fluss-)Dichte auf der Symmetrieachse Wenn $\sigma_{\perp}(0) \geq \sigma_{\perp}(v_{\perp})$ gilt, d. h. wenn die transversale Geschwindigkeitsverteilung bei $v_{\perp} = 0$ maximal ist, dann liegt das Maximum der (Fluss-)Dichte auf der Symmetrieachse des Quadrupols. Hier gilt $\hat{\rho}_z = z \frac{v_{\perp}}{v_z}$, und es folgt

$$\vartheta_z(0) = 2a_0 L \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_\perp(v_\perp)}{v_z v_\perp} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) \, dv_x \, dv_y \, dv_z \tag{5.47}$$

$$\psi_z(0) = 2a_0 L \int \int \int \frac{\sigma_z(v_z)\sigma_{\perp}(v_{\perp})}{v_{\perp}} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2}z\right) \, dv_x \, dv_y \, dv_z \tag{5.48}$$

⁴Dieser charakteristische $1/\rho_z$ -Verlauf tritt auch bei der Licht-Intensitätsverteilung hinter einem Axikon auf, dem lichtoptischen Analogon zum ebenen magnetischen Quadrupol [77, 78].

5.3.1.3 (Fluss-)Dichteverteilung eines thermischen Atomstrahls

Die longitudinale Geschwindigkeit der Atome eines thermischen Atomstrahls ist entsprechend der Maxwell-Boltzmann-Geschwindigkeitsverteilung⁵

$$\sigma_z(v_z) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v_z^2}{v_M^3} e^{-\frac{v_z^2}{v_M^3}}$$
(5.49)

verteilt, wobei $v_M = (2k_BT/m_{Atom})^{1/2}$ die wahrscheinlichste Geschwindigkeit ist. Die mittlere atomare Longitudinalgeschwindigkeit beträgt $\bar{v}_z = 2/\sqrt{\pi} \cdot v_M$. Der im Experiment (Kap. 6) bei $T \approx 150$ °C erzeugte Cäsium-Atomstrahl ($v_M \approx 230$ m/s) hat damit eine mittlere Geschwindigkeit von $\bar{v}_z \approx 260$ m/s.

Die Transversalgeschwindigkeit von Atomen in optisch gekühlten Atomstrahlen ist in guter Näherung Gauß-verteilt. Hier gilt

$$\sigma_{\perp}(v_{\perp}) = \frac{1}{2\pi v_G^2} e^{-\frac{v_{\perp}^2}{2v_G^2}}$$
(5.50)

(Im vorgestellten Experiment beträgt $v_G \approx 6 \text{ cm/s.}$) Der Atomstrahl sei zudem kreisförmig mit dem Durchmesser $2\rho_b$ (Experiment: $2\rho_b = 1 \text{ mm}$). Die Dichteverteilung laute vor dem Quadrupol

$$\vartheta_0(\rho) = \vartheta_b \cdot \Theta(\rho_b - \rho) \tag{5.51}$$

Lösung auf der Symmetrieachse Die maximale Dichte bzw. Fluss liegt auf der Symmetrieachse des Quadrupols. Aus der Integration von (5.47) bzw. (5.48) folgt für den beschriebenen Atomstrahl (Beweis Anh. A.2)

$$\frac{\vartheta_z(0)}{\vartheta_b} = 4\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{a_0 L}{v_G \bar{v}_z} e^{-\frac{z}{\zeta}}$$
(5.52)

$$\frac{\psi_z(0)}{\psi_b} = \sqrt{2\pi} \frac{a_0 L}{v_G \bar{v}_z} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{z}{\zeta}}\right) + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{z}{\zeta}} e^{-\frac{z}{\zeta}} \right),$$
(5.53)

wobei $\frac{1}{\zeta} = \frac{4}{\pi} \frac{a_0 L}{\bar{v}_z^2} \cdot \frac{1}{\rho_b}$. Da die Erhöhung der Dichte bzw. Flussdichte ist proportional zu $1/v_G$. Daher ist eine Reduktion von v_G durch transversales Kühlen des Atomstrahls enorm wichtig, um große Flussdichten hinter dem Quadrupol zu erreichen.

Abbildung 5.9 zeigt die berechnete Erhöhung der Dichte (a) und Flussdichte (b) des beschriebenen Atomstrahls hinter einem dünnen Quadrupol. Der Parameter a_0L des Quadrupols entspricht im Falle der durchgezogenen Linie dem im Experiment (Kap. 6) verwendeten Magneten; Bei der gestrichelten Linie ist er doppelt, bei der gepunkteten Linie halb so groß. Die Erhöhung von Dichte bzw. Flussdichte ist direkt hinter dem dünnen Quadrupol maximal, und fällt mit wachsendem Abstand vom Magneten asymptotisch auf Null ab. Je stärker der Quadrupol, desto so größer ist die Erhöhung von Dichte und Flussdichte direkt hinter dem Magneten, und desto so kürzer ist die Brennlinie.

$$\sigma_z^*(v_z) = 2\frac{v_z^3}{v_M^4}e^{-v_z^2/v_M^2}$$

⁵Dies ist die Geschwindigkeitsverteilung der Atome, die sich zu einem Zeitpunkt im *Volumen* eines Atomstrahls befinden. Sie ist zu unterscheiden von der häufig verwendeten Geschwindigkeitsverteilung $\sigma_z^*(v_z)$ von Atomen, die einen *Querschnitt* des Atomstrahls passieren. Sie lautet



Abbildung 5.9: Dargestellt ist das berechnete Maximum ($\rho_z = 0$) der (a) Dichte bzw. (b) Flussdichte für den beschriebenen thermischen Atomstrahl bei verschiedenen Parametern a_0L des dünnen Quadrupols.

5.3.2 Simulation der (Fluss-)Dichteverteilung

Die vorgestellten mathematischen Modelle beschreiben in idealisierter Form die Entwicklung der Dichte bzw. Flussdichte eines Atomstrahls nach Durchgang durch einen dünnen Quadrupol. Im vorgestellten Experiment (Kap. 6) weicht die Geometrie $\vartheta_0(r)$ und die Geschwindigkeitsverteilung $\sigma_{\perp}(v_x, v_y)$ des Atomstrahls (vor dem Quadrupol) jedoch von den vereinfachten, idealisierten Annahmen (Kap. 5.3.1.3) ab. Zudem hat das Quadrupol-Magnetfeld eine Ausdehnung von mehreren Zentimetern, wodurch im Experiment Abweichungen vom "dünner Quadrupol" - Limit der theoretischen Beschreibung auftreten sollten.

Für eine detailliertere Berechnung der (Fluss-)Dichten wurde eine PC-Simulation erstellt. Das Programm "Atomoptik" (Anhang C.1) berechnet jeweils 10^8 atomare Trajektorien durch numerische Integration der klassischen Bewegungsgleichungen. Dazu wird nach Gleichung (5.20) die atomare Beschleunigung in einem dicken Quadrupol berechnet. Die Orts- und Geschwindigkeitsverteilung der Trajektorien zu Beginn einer Simulation repräsentiert den Atomstrahl.

Abbildung 5.10 zeigt die simulierte Dichte eines thermischen, kreisförmigen Atomstrahls, der einen 2 cm dicken Quadrupol mit den in Kapitel 5.1.1.2 beschriebenen Parametern durchfliegt. Vor Eintritt in den Magneten besitzt die atomare Dichte ϑ über den gesamten Querschnitt des Atomstrahls den konstanten Wert ϑ_b . Durch den Quadrupol steigt die Dichte schnell auf ein Maximum ($\vartheta_z/\vartheta_b \approx 50$) an, welches direkt am Ausgang des Magneten auf der z-Achse liegt. Im weiteren Verlauf des Atomstrahls wird das Maximum der Dichte kleiner, während dessen Breite senkrecht zur Flugrichtung zunimmt.

(Fluss-) Dichteerhöhung durch Quadrupol Abbildung 5.11 zeigt den Zusammenhang zwischen atomarer (Fluss-)Dichte auf der Symmetrieachse (z-Achse) und dem Abstand z von der Mitte des Quadrupols. Der simulierte Flug eines thermischen Atomstrahls mit gaußverteilter Transversalgeschwindigkeit (Kreuze) durch einen ausgedehnten, "dicken" Quadrupol stimmt sehr gut mit der theoretisch hergeleiteten (Fluss-) Dichteerhöhung (5.52)



Abbildung 5.10: Simulation der Dichte-Erhöhung eines thermischen Atomstrahls durch einen "dicken" Quadrupol mit den Parametern des im Experiment verwendeten Magneten. Position und Ausdehnung des Quadrupols [-10 mm, 10 mm] sind durch Balken angedeutet. Die 3D-Darstellung zeigt die Dichte in der x, z-Ebene des Atomstrahls, der von vorne links nach hinten rechts propagiert. Die Dichte ist in Einheiten der Atomstrahldichte ϑ_a vor Eintritt in den Quadrupol angegeben. Die obere Ebene zeigt eine farbige 2D-Projektion der Dichte.

bzw. (5.53) durch einen dünnen Quadrupol überein (Linie). Abweichungen gibt es, wie erwartet, nur im Nahbereich des Magneten. Bemerkenswerterweise ist die simulierte (Fluss-) Dichte im Nahbereich des "dicken" Quadrupols signifikant größer als die berechnete (Fluss-) Dichte im "dünner Quadrupol" - Limit. Dies resultiert aus Oszillationen von Atomen im Nahbereich der Symmetrieachse des ausgedehnten Magnetfeldes. Derart "kanalisierte" Atome erhöhen die Dichte bzw. Flussdichte im Nahbereich eines "dicken" Quadrupols im Vergleich zum "dünnen" Quadrupol.

Im Experiment (Kap. 6) weicht die Verteilung der Transversalgeschwindigkeit des Atomstrahls signifikant von einer Gaußverteilung ab. Außerdem ändert sich die Atomstrahlgeometrie durch Aufweitung entlang einer 1,4 m langen Driftstrecke zwischen Melasse und Quadrupol⁶. Die Resultate der Simulation mit diesen Experiment-nahen Annahmen für Form und Geschwindigkeitsverteilung des Atomstrahls (Kreise) weichen wie erwartet von der Simulation mit den idealisierten Annahmen aus Kapitel 5.3.1.3 ab (Kreuze).

Breite der Maxima Abbildung 5.12 zeigt die den Simulationen entnommenen vollen Halbwertsbreiten (senkrecht zum Atomstrahl) des Dichte- bzw. Flussdichtemaximums als Funktion des Abstandes z von der Mitte des Quadrupols. Die Streuung der Werte resultiert wieder aus statistischen Schwankungen auf Grund der endlichen Zahl an simulierten Atomtrajektorien. Es wird deutlich, dass die vollen Halbwertsbreiten nahezu linear mit

⁶Die Aufweitung des Atomstrahls entlang der Driftstrecke von 1,4 m bewirkt eine Abnahme der Dichte im Atomstrahl um zwei Drittel.



Abbildung 5.11: Simulierte Erhöhung von (a) Dichte bzw. (b) Flussdichte eines thermischen Atomstrahls auf der z-Achse hinter einem dicken Quadrupol. Ausdehnung und Position des Magneten sind durch ein graues Rechteck angedeutet. Die Kreuze sind das Ergebnis einer Simulation eines Atomstrahls mit gaußverteilter Transversalgeschwindigkeit ($v_G = 6 \text{ cm/s}$). Zum Vergleich ist die nach (5.52) bzw. (5.53) berechnete (Fluss-) Dichte im "dünner Quadrupol"-Limit angegeben (Linie). Die Kreise resultieren aus einer Simulation eines Atomstrahls mit Geometrie und Geschwindigkeitsverteilung wie im Experiment. (Die Streuung resultiert aus statistischen Schwankungen auf Grund der endlichen Zahl an simulierten Atomtrajektorien.)

dem Abstand z vom Magneten ansteigen. Dies kann in einem einfachen Modell durch die Divergenz des Atomstrahls erklärt werden, aufgrund derer die Atome nicht auf eine Brennlinie gebündelt werden. Stattdessen erfolgt eine Bündelung in einen Kegel, dessen Spitze im Zentrum des Magneten liegt und dessen Öffnungswinkel der Divergenz des Atomstrahls vor dem Magneten entspricht. Die Breite dieses Kegels, und damit die Breite des Maximums, steigt linear mit dem Abstand z vom Quadrupol an.



Abbildung 5.12: Halbwertsbreite $\Delta x_{1/2}$ (senkrecht zum Atomstrahl) des (a) Dichtemaximums und (b) Flussdichtemaximums in Abhängigkeit von z. Symbole wie in Abbildung 5.11

5.4 Diskussion

Der Betrag der magnetischen Flussdichte, und damit die potenzielle Energie von schwachfeldsuchenden Atomen, steigt in einem ebenen magnetischen Quadrupol linear mit dem Abstand zur Symmetrieachse. Daher werden schwachfeldsuchende Atome beim Durchfliegen eines Quadrupols radial in Richtung der Symmetrieachse des Magneten beschleunigt. Ein solcher Atomstrahl wird unabhängig von seiner longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung auf eine Brennlinie gebündelt, nachdem er einen Quadrupol durchquert hat. In weiten Bereichen ist die atomare Flussdichte hinter dem Quadrupol antiproportional zum Abstand zur Brennlinie. Ein ebener magnetischer Quadrupol ist eine atomoptische Komponente analog zu einem Axikon in der Lichtoptik.

Die starke Bündelung von schwachfeldsuchenden Atomen prädestiniert einen Quadrupol für eine (Fluss-)Dichteerhöhung von thermischen Atomstrahlen, bei denen eine Fokussierung auf einen Brennpunkt, z. B. mit einem ebenen magnetischen Hexapol [58], auf Grund der breiten longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung nicht möglich ist. Neben der Größe des Magnetfeld-Gradienten im Quadrupol trägt vor allem eine schmale transversale Geschwindigkeitsverteilung zu einer großen atomaren Flussdichte auf der Brennlinie bei, da die Höhe des Flussdichtemaximums antiproportional zur Breite der transversalen Geschwindigkeitsverteilung ist. Für einen Einsatz von ebenen magnetischen Quadrupolen zur Flussdichteerhöhung in Atomstrahlen empfiehlt sich daher der Einsatz von optischen Kühlmethoden zur Reduzierung der atomaren Transversalgeschwindigkeiten.

Im folgenden Kapitel 6 wird ein Atomlithografie-Experiment beschrieben, in dem die die atomare Flussdichte mit einem permanentmagnetischen Quadrupol erhöht wird. Die hier berechneten und simulierten atomaren (Fluss-) Dichten geben eine präzise Vorhersage der experimentellen atomoptischen Abläufe.

Kapitel 6

Serielles Schreiben mit Atomen

Serielle Schreibtechniken zur Nanostrukturierung arbeiten nach einem einfachen Grundprinzip: Ein Schreibstrahl (Photonen, geladene Teilchen oder neutrale Atome) wird durch Fokussierung und/oder Blenden räumlich begrenzt. Das zu beschreibende Substrat und der Schreibstrahl werden relativ zueinander verschoben, um beliebige Muster auf dem Substrat zu bilden. Die Strukturen werden entweder direkt durch Ablagerung von Ionen oder Atomen, oder indirekt durch Anwendung von Resist-Techniken erzeugt.

Serielle Schreibtechniken haben gegenüber gängigen parallelen Methoden den bedeutenden Vorteil, keine teuren, vorgefertigten Masken zur Erzeugung der Nanostrukturen zu benötigen. Deshalb werden serielle Methoden routinemäßig vor allem zur Erzeugung von Nanostrukturen in geringen Stückzahlen eingesetzt. Auch die Präzisionsmasken für die Herstellung von hochintegrierten Schaltkreisen (Computerchips) werden mit serieller Elektronenstrahl-Lithografie erzeugt, so dass der Massenfertigung mit parallelen Lithografieverfahren immer ein serieller Prozess zur Erzeugung der Masken voraus geht. Die minimale Strukturbreite ist bei seriellen Schreibtechniken begrenzt durch den Durchmesser des verwendeten Schreibstrahls. So werden mit serieller Elektronenstrahl-Lithografie kleinste Strukturbreiten von 15 nm erzeugt, während heutige kommerzielle parallele Prozesse lediglich minimale Strukturbreiten von 90 nm ermöglichen.

Der Nachteil aller seriellen Schreibtechniken gegenüber parallelen Methoden ist die geringe Schreibgeschwindigkeit. In der heutigen Computerchip-Fertigung werden mit parallelen Lithografieverfahren Milliarden von Transistoren und Leiterbahnen innerhalb weniger Minuten erzeugt. Serielle Methoden arbeiten dem gegenüber um Größenordnungen langsamer, da die Struktur punktweise erzeugt wird. Aufgrund der längeren Schreibzeit ist der Durchsatz geringer, wodurch serielle Herstellungsverfahren teuer sind. Im Allgemeinen gilt bei seriellen Methoden für die Schreibzeit t_S eines Punktes

$$t_S \sim \frac{\text{benötigte Dosis}\left[\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2}\right]}{\text{Flussdichte}\left[\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^2s}\right]}$$
(6.1)

Ein wichtiges Ziel in der Entwicklung serieller Schreibmethoden ist demnach, möglichst große Flussdichten im Schreibstrahl zu erzeugen.

Serielles Schreiben mit Atomen Während sich z. B. die Elektronenstrahl-Lithografie längst etabliert hat und kommerziell eingesetzt wird, sind serielle Schreibtechniken mit Atomstrahlen Gegenstand aktueller Forschung. Dabei liegen deren Vorteile auf der Hand: Die gewünschten Materialien können direkt aufgetragen werden, d. h. der Umweg über aufwändige Resist-Techniken kann entfallen. Gezielte Auftragung verschiedener Materialien ermöglicht sogar 3D-Strukturierung. Zudem zeichnen sich Atomstrahlen dadurch aus, dass auf Grund der Neutralität der Atome hohe Dichten ϑ im Atomstrahl möglich sind. Dadurch können bereits bei thermischen Geschwindigkeiten v große Flussdichten $\phi = \vartheta \cdot v$ erreicht werden. Die dementsprechend niedrige kinetische Energie beugt Schäden in der Kristallstruktur der zu beschreibenden Substrate vor, welche durch das Auftreffen von Teilchen mit hoher kinetischer Energie (z. B. bei Ionenstrahlen: E_{kin} im keV-Bereich) entstehen können.

In diesem Kapitel wird eine Methode vorgestellt, mit der beliebige Mikro- bzw. Nanostrukturen seriell durch Abscheidung von Cäsiumatomen auf einem Substrat erzeugt werden. Dazu wird ein thermischer Atomstrahl in einer optischen Melasse transversal gekühlt, und anschließend durch einen ebenen permanentmagnetischen Quadrupol auf eine Blende gebündelt, die den Querschnitt des Schreibstrahls auf den gewünschten Durchmesser begrenzt. Die Erzeugung permanenter Strukturen auf dem direkt hinter der Blende positionierten, verschiebbaren Substrat erfolgt mit einer Resist-Technik. Der Name "Atomstift" für diese Technik rührt von der vereinfachenden Vorstellung, wonach Atome mit dieser Apparatur auf ein Substrat "gemalt" werden.

6.1 Einordnung in den technischen Kontext

Die Vorzüge eines seriellen Schreibprozesses mit Atomstrahlen führten in den letzten Jahren zu verschiedenen Bemühungen, Atome zur Erzeugung von Nanostrukturen einzusetzen. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über relevante technische Entwicklungen gegeben.

6.1.1 Begrenzung eines thermischen Atomstrahls mit Blenden

Ein Experiment zur Erzeugung von Strukturen durch serielle Abscheidung von Atomen wurde im IBM Research Laboratory im schweizerischen Rüschlikon realisiert [71]. Der dort entwickelte Aufbau basiert auf einem thermischen Atomstrahl, der durch mehrere Kollimationsblenden begrenzt wird (Abb. 6.1). Der Strahl trifft anschließend auf einen Atomkraftmikroskop-Cantilever, auf dem eine oder mehrere Blenden eingearbeitet sind. Das Substrat befindet sich direkt hinter dem Cantilever, und kann durch Piezoaktuatoren relativ zum Cantilever bewegt werden. Der Abstand zwischen Substrat und Cantilever wird durch Messung der Auflagekraft des Cantilevers geregelt. Die erzeugten Strukturen haben eine minimale Breite von 80 nm bei Verwendung von Blenden mit 50 nm Durchmesser. Die Depositionsraten betragen 0,1 bis 2 nm/min. Durch Verwendung mehrerer, nebeneinander angeordneter Blenden können gleichzeitig mehrere identische Strukturen auf dem Substrat erzeugt werden.

Die von Lüthi et al. entwickelte Methode ist ein einfaches, preiswertes und robustes Verfahren, um Atome gezielt auf einem Substrat abzuscheiden. Es zeichnet sich zudem dadurch aus, dass nahezu alle Stoffe, die bei praktikablen Temperaturen einen ausreichenden Dampfdruck aufweisen, auf diese Art mit Nanometer-Präzision aufgetragen werden können. Bei diesen Konzept wird jedoch keine Technik angewandt, um die Flussdichte des Atomstrahls am Ort des Substrats durch fokussierende Elemente o. ä. zu erhöhen. Stattdessen ist man hier bemüht, das Substrat dicht hinter dem Ofen zu positionieren, was auf Grund des geringen Abstands zwischen Ofen und Substrat einen Hitzeschild erfordert. Demzufolge



Abbildung 6.1: Schema des experimentellen Aufbaus von Lüthi et al. [71]. Vom Ofen verdampfendes Material wird durch eine Serie von Blenden auf ein Substrat aufgetragen, welches durch Piezoaktuatoren verschoben werden kann.

kann die atomare Flussdichte am Ort des Substrates nur gesteigert werden, indem die Ofentemperatur erhöht, oder das Substrat noch näher an die Ofenöffnung herangeführt wird. Beide Optionen stoßen rasch an technische Grenzen, so dass eine entscheidende Flussdichteerhöhung nicht möglich ist. Demnach erweisen sich bei diesem Verfahren insbesondere die langen Schreibzeiten als problematisch.

6.1.2 Bündelung eines Atomstrahls mit magnetischen Multipolen

Atome mit permanentem magnetischem Dipolmoment $\vec{\mu}$ besitzen in Magnetfeldern potenzielle Energie (Kap. 5.2.1.1). Durch eine geschickte Anordnung von Permanentmagneten oder magnetischen Spulen können Magnetfelder erzeugt werden, die zu einer atomaren Flussdichteerhöhung durch Bündelung eines spinpolarisierten Atomstrahls führen. Insbesondere erzeugen ebene magnetische Multipole niedriger Ordnung (Quadrupol, Hexapol) radialsymmetrische Magnetfelder, die sich hervorragend für eine Bündelung eignen [58] (Abb. 6.2).

Fokussierung mit ebenem Hexapol Die potenzielle Energie V von Atomen im Inneren eines ebenen magnetischen Hexapols hängt quadratisch vom Abstand ρ von der Symmetrieachse ab:

$$V \sim \rho^2 \tag{6.2}$$

Damit ist ein Hexapol das atomoptische Analogon zu einer Linse in der Lichtoptik [58]. Trajektorien von Atomen mit gleicher Eintrittsgeschwindigkeit v kreuzen sich in einem Fokus. Bereits Mitte des vergangenen Jahrhunderts wurden von Friedburg et al. Versuche zur Fokussierung von thermischen Atomstrahlen mit Hexapolen unternommen [37, 38]. Sie erreichten eine Erhöhung der atomaren Flussdichte um einen Faktor 3 gegenüber dem ungebündelten Atomstrahl.

Die Lage des Brennpunktes einer Hexapol-Atomlinse hängt quadratisch von der Geschwindigkeit der Atome ab [58], woraus ein großer chromatischer Fehler der Atomlinse resultiert. Ein Atomstrahl mit thermischer Geschwindigkeitsverteilung wird daher nicht auf einen Brennpunkt fokussiert, sondern entlang einer Brennlinie gebündelt. Aus diesem Grund können mit einem Hexapol nur geringe Flussdichteerhöhungen in einem thermischen Atomstrahl erzeugt werden.



Abbildung 6.2: Der Atomstrahl wird beim Passieren eines ebenen permanentmagnetischen Multipols gebündelt.

Anfang der 80er Jahre wurden laserbasierte Methoden zum Abbremsen von Atomstrahlen entwickelt [35, 98]. Mit derart abgebremsten und monochromatisierten Atomstrahlen führten Metcalf et al. Experimente zur Fokussierung mit ebenen magnetischen Hexapolen durch [82]. Darin wurde ein Natrium-Atomstrahl mit Hilfe von so genanntem Zeeman-Bremsen [69, 83, 98] auf eine Longitudinalgeschwindigkeit von wenigen m/s abgebremst und anschließend mit einem Hexapol fokussiert. Aufgrund der schmalen longitudinalen Geschwindigkeitsverteilung konnte, im Vergleich zum unfokussierten Strahl, eine Flussdichteerhöhung um einen Faktor 5 - 10 erzielt werden. Neuere Experimente in unserer Arbeitsgruppe erzielten an einem gebremsten, fokussierten Cäsium-Atomstrahl eine Flussdichteerhöhung um einen Faktor 800 [56]. Hier wurde ein thermischer Cäsium-Atomstrahl mit einer mittleren thermischen Geschwindigkeit von 270 m/s longitudinal durch Verstimmungskühlen [35, 83, 117] auf 110 m/s abgebremst und anschließend mit einem magnetischen Hexapol aus Seltenerd-Permanentmagneten fokussiert. Die Komplexität der Experimente sowie die kleinen absoluten Flussdichten in gebremsten Atomstrahlen sprechen jedoch gegen einen Einsatz von longitudinal gekühlten Atomstrahlen bei der Erzeugung von Nanostrukturen mit Atomen.

Flussdichteerhöhung durch ebenen Quadrupol Die potentielle Energie V von Atomen im Inneren eines ebenen magnetischen Quadrupol ist proportional zum Abstand ρ des Atoms zur Symmetrieachse (Kap. 5.2.1.1):

$$V \sim \rho \ . \tag{6.3}$$

Dieses Potenzial klassifiziert einen ebenen magnetischen Quadrupol als atomoptisches Analogon zu einem Axikon in der Lichtoptik [78]. Entsprechend wird ein Atomstrahl nach Durchgang durch einen ebenen Quadrupol auf eine Brennlinie gebündelt.

Der Gradient der potenziellen Energie V in der Umgebung der Symmetrieachse eines ebenen magnetischen Quadrupols ist größer als bei jedem anderen ebenen magnetischen Multipol¹. Also werden Atome in einem ebenen magnetischen Quadrupol besonders stark in Richtung der Symmetrieachse beschleunigt. Folglich ist die Brennlinie eines thermischen Atomstrahls nach Durchgang durch einen Quadrupol erheblich kürzer als bei jedem anderem Multipol. Demnach ist ein magnetischer Quadrupol unter allen ebenen magnetischen

¹Allgemein gilt für die potenzielle Energie in ebenen Multipolen $V \sim \rho^{n-1}$, wobei *n* die Ordnung des Multipols ist [58].

Multipolen das geeignetste atomoptische Element zur Flussdichteerhöhung von Atomstrahlen mit thermischer verteilter Longitudinalgeschwindigkeit.

6.1.3 Konzept des Atomstifts

Bei dem in dieser Arbeit entwickelten Atomstift wird die Flussdichte eines thermischen Atomstrahls mit einem ebenen magnetischen Quadrupol erhöht, um mit akzeptablem Zeitaufwand in einem seriellen Schreibprozess beliebige Strukturen zu erzeugen (Abb. 6.3). Da der thermische Atomstrahl durch einen Quadrupol nicht auf einen scharf umrandeten Fokus, sondern auf eine Brennlinie gebündelt wird, ist zur Begrenzung auf den gewünschten Durchmesser eine Blende erforderlich. Diese Schreibblende, welche in die Brennlinie des Quadrupols eingebracht wird, definiert die minimale Breite der Struktur, die auf einem dicht hinter der Blende positionierten Substrat abgeschieden wird. Beliebige Strukturen werden durch Verschieben der Blende gegenüber dem Substrat erzeugt.



Abbildung 6.3: Schema des Atomstifts: Der thermische Atomstrahl wird durch Blenden begrenzt, in einer 2-dimensionalen optischen Melasse kollimiert und mit einem zirkular polarisierten Laser spinpolarisiert. Durch einen permanentmagnetischen Quadrupol wird der Atomstrahl gebündelt, um eine Flussdichteerhöhung hinter dem Quadrupol zu erzielen. Im Maximum der Flussdichte ist die gegenüber dem Substrat verschiebbare Schreibblende angebracht, welche den Atomstrahl auf den gewünschten Durchmesser begrenzt.

Wie in Kapitel 5 gezeigt wurde, wird die Flussdichteerhöhung nach Durchgang eines Atomstrahls durch einen ebenen Quadrupol vor allem durch die Transversalgeschwindigkeit der Atome limitiert. Daher ist die Minimierung der Transversalgeschwindigkeit der Atome wünschenswert. Dies wird beim Atomstift mit einer optischen Melasse erreicht [83], in welcher der transversale Impuls der Atome unter Ausnutzung des Dopplereffektes an Photonen abgegeben wird, ohne dabei den atomaren Fluss zu verkleinern. Optische Melassen sind bereits für viele atomare Spezies realisiert worden und mit vertretbarem technischen Aufwand realisierbar.

6.2 Der experimentelle Aufbau

6.2.1 Die Vakuumapparatur

Das Experiment besteht aus einer dreigeteilten Vakuumapparatur (Abb. 6.4): der Ofenkammer, dem Strahlrohr und der Experimentierkammer. Die drei Bereiche werden jeweils durch eine Turbo-Molekularpumpe evakuiert. Durch Schiebeventile können die Kammern voneinander vakuumdicht getrennt werden, was den großen Vorteil mit sich bringt, dass die Kammern einzeln geflutet und geöffnet werden können. An Ofen- und Experimentierkammer, welche beide häufiger geöffnet werden müssen, gibt es Vorrichtungen zum Fluten mit reinem Stickstoff, womit das Eindringen von feuchter Luft beim Belüften und Öffnen der Kammern minimiert werden kann. Durch diese Maßnahmen wird die Zeit zwischen Schließen bzw. Evakuierung der Apparatur und dem Erreichen eines ausreichend guten Vakuums auf ein Minimum reduziert. In der Experimentierkammer herrscht bereits wenige Stunden nach dem Öffnen der Kammer ein ausreichend niedriger Druck von ca. 10^{-7} mbar.

Ofenkammer Die Ofenkammer wurde unverändert aus den vorangegangenen Experimenten zur Erzeugung von Nanostrukturen mittels Fokussierung von Atomen durch optische Stehwellen übernommen und ist in Kap. 2.3.1 detailliert beschrieben.

Strahlrohr Die zweite Zone, das Strahlrohr, folgt direkt im Anschluss an die Ofenkammer. Evakuiert wird die Kammer durch eine Turbomolekularpumpe mit 68 l/s Saugleistung (N₂). Der mit einer Bayard-Alpert-Vakuummessröhre gemessene Druck beträgt ca. 10^{-8} mbar.

Der Atomstrahl passiert im Strahlrohr zunächst die optische Melasse. Die dazu benötigten Laserstrahlen können durch die 4 Fenster aus orthogonalen Richtungen senkrecht zum Atomstrahl eingestrahlt werden. Die optische Melasse wurde ebenfalls von den vorangegangenen Experimenten übernommen (Kap. 2 und Kap. 3). Im Anschluss an die Melasse befindet sich die Zone zur Spinpolarisation der Atome. Der dazu benötigte, zirkular polarisierte Laserstrahl wird durch ein Vakuumfenster senkrecht auf den Atomstrahl eingestrahlt. Zur Festlegung der Magnetfeld-Richtung parallel zum Laserstrahl wird mit einem Helmholtz-Spulenpaar ein definiertes, schwaches Magnetfeld erzeugt. Äußere Magnetfelder werden dabei durch einen 3-lagigen μ -Metallzylinder abgeschirmt. Bei 30-facher Spulenwicklung und einem Spulendurchmesser von 15 mm wird bei dem eingestellten Strom von 83 mA am Ort der Atome ein Magnetfeld von 2,08 G erzeugt, welches sich im als Optimum für die Effizienz des optischen Pumpens erwiesen hat.

Hinter der Zone für das optische Pumpen sind zwei Lineardurchführungen in die Vakuumapparatur eingebaut, mit denen zur Atomstrahls-Diagnose optional eine 100 μ m Schlitzblende in, bzw. ein Permanentmagnet dicht an den Strahl herangeführt werden kann. Daran schließt sich ein 80 cm langes Driftrohr an, welches den Abstand zwischen Blenden und den



Abbildung 6.4: Detailzeichnung der Vakuumapparatur im Maßstab 1:10. Links: Vorderansicht. Rechts: rechte Seitenansicht. Erläuterungen sind der Zeichnung zu entnehmen.

folgenden Strahlquerschnitt-Detektionsorten vergrößert, um genauere Informationen über die Verteilung der Transversalgeschwindigkeit im Atomstrahl zu liefern. Eine Möglichkeit zur Detektion schließt sich direkt an das Driftrohr an. Durch die Fenster eines Würfels kann ein resonanter Nachweislaser senkrecht zum Atomstrahl eingestrahlt werden. Die Detektion erfolgt senkrecht zu Atomstrahl und Nachweislaser mit einer CCD-Kamera. Hier können bei eingebauter Lithografie-Einheit die Effizienz der optischen Melasse und des optischen Pumpens gemessen werden. An den Würfel schließt sich ein Wellbalg an, der das Strahlrohr von der sich oben anschließenden Experimentierkammer statisch entkoppelt. Das Strahlrohr wird von der Experimentierkammer durch ein Schiebeventil getrennt.

Experimentierkammer Die Experimentierkammer enthält die Lithografie-Einheit, bestehend aus Quadrupol, beweglicher Schreibblende und Halter für das Substrat. Die Lithografie-Einheit ist mit einer Dreipunkt-Repositionierplatte fixiert (s. u.), so dass einfache Herausnahme und anschließender Wiedereinbau in gleicher Position möglich sind. Ein bequemer mechanischer Zugang zur Experimentierkammer besteht in einem Schiebeventil (\emptyset 15 cm). Ein resonanter Nachweislaser kann durch ein großes Fenster (\emptyset 15 cm) in verschiedener Höhe senkrecht zum Atomstrahl eingestrahlt werden. Detektion von Fluoreszenzlicht erfolgt bevorzugt durch ein abgesenktes Vakuumfenster von oben. Die Absenkung des Fensters in die Vakuumapparatur hat den Vorteil, dass die CCD-Kamera zur Erhöhung der Auflösung sehr nahe an die Lithografie-Einheit gebracht werden kann. Die elektrische Ansteuerung der Lithografie-Einheit erfolgt über Vakuum-Stromdurchführungen.

Die Experimentierkammer wird durch eine Turbomolekularpumpe mit 250 l/s Saugleistung N₂ evakuiert. Nach einer Belüftung der Kammer mit reinem Stickstoff wird nach 24 Stunden wieder ein Druck von $3 \cdot 10^{-7}$ mbar erreicht. Die Druckmessung erfolgt mit einer UHV-Ionisationsmessröhre.



Abbildung 6.5: Fotografie der Atomstift-Vakuumapparatur.

Abbildung 6.5 zeigt ein Foto der ca. 2,5 m hohen Apparatur. Die drei Abschnitte Ofenkammer, Strahlrohr und Experimentierkammer sind zu erkennen.

6.2.2 Die Lithografie-Einheit

Die Lithografie-Einheit (Abb. 6.6) besteht aus dem permanentmagnetischen Quadrupol mitsamt Halter und Justierelementen, der verschiebbaren Schreibblende und dem Halter für das Substrat. Die Einheit wurde speziell für das Atomstift-Experiment konzipiert und kann zur Bearbeitung komplett oder in Einzelteilen aus der Apparatur entnommen werden.



Abbildung 6.6: Zeichnung der Lithografie-Einheit im Maßstab 1 : 3, bestehend aus Quadrupol, beweglicher Schreibblende und Substrathalter.

Quadrupolhalter Die 8 homogen magnetisierten, permanentmagnetischen Einzelsegmente des Quadrupols werden von einem Aluminiumgestell zusammengehalten². Der Quadrupolhalter liegt über 3 Feingewindeschrauben auf einer Repositionierplatte auf. Zwei Feingewindeschrauben können mit kleinen Elektromotoren bewegt werden, die eine Verkippung des Quadrupolhalters gegenüber dem Atomstrahl im Vakuum ermöglichen. Der Winkel des Quadrupols gegenüber der Repositionierplatte wird durch Zählen der Umdrehungen der Feingewindeschrauben mit Hilfe von Lichtschranken ermittelt. Zu diesem Zweck sind angeschlossene Zahnräder mit Lochmasken versehen (Abb. 6.7). Der Quadrupolhalter kann von der Repositionierplatte einfach abgehoben werden.

Die Repositionierplatte liegt auf zwei orthogonalen Linear-Verschiebetischen auf, die ein 2D-Verschieben des Quadrupols transversal zum Atomstrahl ermöglichen. Die Linear-Verschiebetische können ebenfalls mit Elektromotoren bewegt werden. Die Bestimmung

²Die magnetischen Kräfte führen zu einer starken, gegenseitigen Abstoßung der Einzelsegmente.

der Position erfolgt wiederum durch Zählen der Umdrehungen der Stellschraube mit Hilfe von Lichtschranken und als Lochmasken ausgelegten Zahnrädern. Die Verschiebetische sind ihrerseits mit der oberen Platte eines Repositionierplattenpaares verschraubt, so dass die Verschiebeeinheit problemlos aus der Apparatur gehoben werden kann. Die untere Platte des Repositionierplattenpaares ist über einen Sockel mit der Experimentierkammer verbunden.

Im Zentrum der gesamten Justiereinheit befinden sich ausreichend große Löcher in den Metallplatten, welche den Weg des Atomstrahls zum Quadrupol freigeben. Die Ausrichtung des Quadrupols zum Atomstrahl, d. h. das Verfahren der Verschiebetische und die Kippung des Quadrupolhalters, erfolgt mit einem unter LabviewTM erstellten Programm. Das Programm übernimmt die Motorsteuerung, zählt die Lichtschrankensignale und rechnet diese in Positions- bzw. Winkeländerungen um.



Abbildung 6.7: Fotografie der Lithografie-Einheit, bestehend aus Quadrupol, beweglicher Schreibblende und Substrathalter. Zum Vergleich: der Durchmesser des Quadrupols beträgt 5 cm.

Verschiebbare Schreibblende Die in diesem Experiment verwendete Schreibblende hat einen Durchmesser von 10 μ m. Sie ist ein kommerziell erhältliches Nadelloch in 13 μ m dickem Stahlblech. Das Stahlblech mit Blende wird flach auf einen Aluminiumbalken geklebt (Abb. 6.7), der unterhalb der Schreibblende ein Loch für den Atomstrahl besitzt. Der Aluminiumbalken ist an zwei Festkörpergelenken befestigt, die jeweils über eine Kombination aus Mikrometerschraube und Piezoaktuatoren (PiezoMike, Art. Nr. P-853 der Firma Physikalische Instrumente) betrieben werden: Die mit einem Elektromotor angetriebene Mikrometerschraube positioniert die Blende auf 1 μ m genau, die Niedervolt-Piezoaktuatoren erreichen eine Positionsänderung mit einer Präzision besser als 1 nm.

Das Festkörpergelenk ist über einen Sockel mit dem Quadrupolhalter verschraubt. Die Höhe des Sockels legt den Abstand zwischen Schreibblende und der Mitte des Quadrupols auf 75 mm fest. Durch die Verschraubung mit dem Quadrupolhalter ist bereits eine grobe Justierung (1 mm Genauigkeit) der Blende relativ zum Atomstrahl möglich. Die Feinpositionierung der Blende auf das Flussdichtemaximum sowie die Verschiebung der Blende zum Schreiben beliebiger Strukturen erfolgt über die oben beschriebene Verschiebemechanik.

Substrathalter Der Substrathalter besteht aus einer Gabel aus Stahlblech, welche das Substrat über der Blende hält (Abb. 6.6). Die Höhe des Substrats über der Schreibblende wird durch zwei Schrauben variiert, welche die Gabel entsprechend biegen. Der Substrathalter ist direkt auf die Verschiebeeinheit der Schreibblende aufgeschraubt, wodurch der Abstand zwischen Schreibblende und Substrathalter mechanisch sehr stabil gehalten wird.

Abbildung 6.7 zeigt Fotos der Lithografie-Einheit, auf denen der Quadrupol mit seiner Halterung, die bewegliche Schreibblende und der Substrathalter erkennbar sind. Die elektrischen Leitungen zur Stromversorgung der Motoren und Lichtschranken bestehen aus vakuumtauglichem Spulendraht. Über Stecker werden die Kabel mit den Vakuum-Stromdurchführungen der Experimentierkammer verbunden. Die gesamte Lithografie-Einheit wurde durch Entfetten sowie Aufbohren von schlecht evakuierbaren Hohlkammern vakuumtauglich präpariert. Trotz der vielen nicht explizit auf Vakuumtauglichkeit ausgelegten Bauteile wie den Elektromotoren mit Getrieben, den Lichtschranken und den Lineartischen wird bei eingebauter Lithografie-Einheit in der Vakuumkammer ein Druck < 10^{-7} mbar erreicht.

6.2.3 Die Laser

Zum Betreiben des Atomstifts werden mehrere Diodenlaser mit unterschiedlichen Leistungen und Wellenlängen benötigt: Kühl- und Rückpumplaser für die optische Melasse, zwei Laser für das optische Pumpen, und ein Laser zum Fluoreszenz-Nachweis der Atome über resonante Anregung. Alle benötigten Wellenlängen liegen nahe Hyperfeinübergängen, die zur Cäsium D₂-Linie mit einer Wellenlänge von 852,1 nm gehören (Anhang B.1). Tabelle 6.1 gibt eine Übersicht über die am Experiment erforderlichen Laser. Alle Laserstrahlen werden

Laser	Übergang	Verstimmung	Leistung
Kühllaser (Melasse)	$F = 4 \rightarrow F' = 5$	-1015 MHz	24 mW
Rückpumper (Melasse)	$F = 3 \rightarrow F' = 4$		$890 \ \mu W$
Pumplaser (Spinpolarisation)	$F = 4 \rightarrow F' = 4$		$125~\mu {\rm W}$
Rückpumper (Spinpolarisation)	$F = 3 \rightarrow F' = 4$		$3 \mathrm{mW}$
Nachweislaser	$F = 4 \rightarrow F' = 5$		$2,5 \mathrm{mW}$

Tabelle 6.1: Liste der im Experiment benötigten Laser. Alle Laser emittieren nahe der Cäsium D_2 Linie bei 852,1 nm. Angegeben sind typische Leistungen der Laserstrahlen am Experiment an.

auf einem schwingungsgedämpften optischen Tisch erzeugt und stabilisiert. Der Transport zum Experiment erfolgt per Einmoden-Glasfaser (Abb. 6.8). Die Laserstrahlen werden mit gitterstabilisierten Diodenlasern in Littrow-Anordnung erzeugt. Als Wellenlängenreferenzen dienen Dopplerverbreiterung-freie Sättigungs- bzw. Polarisationsspektroskopien in Cäsium-Dampfzellen [107, 118]. Jede Spektroskopie liefert ein Regelsignal für eine elektronische Rückkopplung zur Wellenlängenstabilisierung des entsprechenden Lasers [119].

Die Rückpumper für Melasse und Spinpolarisation werden über einen Strahlteiler vom gleichen Diodenlaser geliefert. Kühllaser und Rückpumper der optischen Melasse werden über einen teildurchlässigen Spiegel in eine gemeinsame Glasfaser eingekoppelt (Abb. 6.8), ebenso wie Pumplaser und Rückpumper für die Spinpolarisation. Der mit einer präzisen Polarisationsspektroskopie stabilisierte Nachweislaser wird auch als Referenzlaser zur Bestimmung der Verstimmung des Melassen-Kühllasers verwendet. Dazu werden jeweils schwache Strahlen der beiden Laser abgezweigt und auf einer schnellen Fotodiode überlagert. Die zu messende Frequenz des entstehenden Schwebungssignals entspricht der Frequenzdifferenz der beiden Laser.



Abbildung 6.8: Erzeugung und Stabilisierung der verschiedenen zum Betrieb des Atomstifts benötigten Laser.

6.3 Experimentelle Untersuchungen

6.3.1 Messung der Dichteerhöhung im Atomstrahl

Die Dichteerhöhung im Atomstrahl durch den Quadrupol wird mit zwei unterschiedlichen Methoden gemessen. Zum einen wird die Dichteverteilung eines Atomstrahlquerschnitts durch Fluoreszenz-Detektion mit einer CCD-Kamera aufgenommen (Abb. 6.9). Zum anderen wird die Dichteverteilung des Atomstrahls gemessen, indem die transversal verschiebbare Schreibblende den Querschnitt des Atomstrahls abtastet. Die Dichte am Ort der Blende wird durch Fluoreszenz-Detektion derjenigen Atome gemessen, welche die Blende passiert haben (Abb. 6.12).

Die erste Methode hat den Vorteil, dass die Dichteverteilung im Querschnitt des Atomstrahls sehr schnell und mit geringem experimentellen Aufwand erfasst werden kann. Des Weiteren können Querschnitte in verschiedenen Abständen zum Quadrupol erfasst werden. Der Nachteil besteht in der Auflösung der Messmethode, die durch mangelnde Auflösung und Tiefenschärfe des verwendeten Linsensystems beschränkt ist. Der Vorteil der zweiten Methode besteht darin, die Dichte mit der Präzision des verwendeten Blendendurchmessers (10 μ m) bestimmen zu können. Die Methode ist jedoch vergleichsweise zeitaufwändig, da die einzelnen Messpunkte seriell durch eine punktweise Abtastung des Atomstrahls aufgenommen werden müssen. Des Weiteren kann das Profil mit dieser Methode nur im fixierten Abstand der Schreibblende vom Quadrupol bestimmt werden. Leider kann bei der zweiten, präziseren Methode keine Referenzmessung des Atomstrahlquerschnitts ohne Quadrupol gemacht werden, da der Quadrupol nicht separat von der Schreibblende aus der Apparatur genommen werden kann. Daher wird zur Bestimmung der Dichteerhöhung des Atomstrahls durch den Quadrupol eine Kombination aus beiden Methoden angewandt (Kap. 6.3.1.2).

6.3.1.1 Aufnahme des Atomstrahl-Querschnitts mit CCD-Kamera

Abbildung 6.9 zeigt das Versuchsschema zur Aufnahme der Dichteverteilung im Atomstrahlquerschnitt. Ein resonanter Lichtteppich wird transversal auf den durch den Quadrupol gebündelten, thermischen Atomstrahl eingestrahlt. Der Abstand des Lichtteppichs zum Quadrupol kann von 0 bis 8,5 cm variiert werden. Das entstehende Fluoreszenzlicht wird durch ein Fenster in der Vakuumapparatur mit einer CCD-Kamera aufgenommen. Die CCD-Kamerabilder werden über einen PC ausgelesen und visualisiert. Das mit der Kamera aufgenommene Bild entspricht der Intensitätsverteilung des Fluoreszenzlichtes, welche wiederum proportional zur Dichteverteilung des beleuchteten Atomstrahl-Querschnitts ist.



Abbildung 6.9: Aufnahme des Atomstrahl-Querschnitts mit einer CCD-Kamera zur Bestimmung der Dichteerhöhung durch den Quadrupol.

Ausrichtung des Quadrupols Die Kamerabilder sind ein ausgezeichnetes Hilfsmittel zur Ausrichtung des Quadrupols relativ zum Atomstrahl. Sowohl eine Verkippung als auch eine Verschiebung des Quadrupols gegenüber dem Atomstrahl zeigen sofort Auswirkungen auf die Intensitätsverteilung des Fluoreszenzlichtes. Die mit der CCD-Kamera aufgenommenen Atomstrahl-Querschnitte in Abb. 6.10a zeigen, dass der Atomstrahl-Querschnitt nach einer Verschiebung der Quadrupol-Achse gegenüber der Atomstrahl-Achse unsymmetrisch wird. In den entsprechenden Atomstrahlprofilen in Abbildung 6.10b wird zudem deutlich, dass die maximale Fluoreszenzintensität und damit die Dichteerhöhung im Atomstrahl bei zunehmendem Abstand zwischen Quadrupol- und Atomstrahlachse abnimmt. Zur Ausrichtung wird der Quadrupol systematisch verschoben und verkippt, bis der Atomstrahl-Querschnitt symmetrisch und die Intensität maximal wird.



Abbildung 6.10: Einfluss einer Verschiebung des Quadrupols transversal zum Atomstrahl. (a) Mit CCD-Kamera aufgenommene Fluoreszenzbilder der Atomstrahl-Querschnitte 5 cm hinter dem Quadrupol. Die Verschiebestrecke ist über den Bildern angegeben. (b) Entsprechende Atomstrahl-Profile in Verschieberichtung.

Erhöhung der Atomstrahldichte durch Quadrupol Um eine Information über die Erhöhung der Dichte im Atomstrahl aufgrund der Bündelung der Atome durch den Quadrupol zu erhalten, ist eine Aufnahme des Atomstrahlquerschnitts sowohl mit, als auch ohne Quadrupol nötig. Dazu wird zunächst eine Aufnahme des durch den Quadrupol gebündelten Atomstrahls erstellt. Anschließend wird der Quadrupol aus der Apparatur entfernt, und der Querschnitt des nicht gebündelten Atomstrahls aufgenommen. Nach einer Normierung der beiden Aufnahmen auf gleiche Gesamtintensität im Querschnitt³ liefern die Aufnahmen eine Information über die Änderung der Atomstrahl-Dichte durch den Quadrupol.

³Da zur Entfernung des Quadrupols aus dem Atomstrahl die Vakuumapparatur geöffnet werden muss, liegen mehrere Stunden zwischen den beiden Aufnahmen. Die resultierende Drift von für die Fluoreszenzintensität wichtigen Parametern verbietet es, die Intensitäten der beiden Aufnahmen direkt miteinander zu vergleichen.



Abbildung 6.11: Dargestellt ist die Erhöhung der Atomstrahl-Dichte durch den Quadrupol. (a) Die mit CCD-Kamera aufgenommenen Atomstrahl-Querschnitte 6 cm hinter dem Quadrupol zeigen, wie der ursprünglich breite Atomstrahl (1) gebündelt wird (2). (b) Profil durch die Maxima der Atomstrahlquerschnitte mit bzw. ohne Quadrupol (gestrichelte Linie). Angegeben sind die vollen Halbwertsbreiten der Maxima.

Abbildung 6.11 zeigt die Bündelung des thermischen Atomstrahls mit einer Halbwertsbreite von 930 μ m auf einen Querschnitt von etwa 130 μ m durch den Quadrupol. Die Dichte steigt gemäß den Kamerabildern um einen Faktor 11. Da die Auflösung des Kamerabildes jedoch beschränkt ist, wird zur Bestimmung der Atomdichte hinter dem Quadrupol eine genauere Methode angewandt.

6.3.1.2 Rastern des Atomstrahl-Querschnitts mit der Schreibblende

Zur präzisen Bestimmung der Dichteverteilung im Atomstrahl hinter dem Quadrupol wird der Atomstrahl mit der 10 μ m Schreibblende abgetastet. Dazu wird die transversal verschiebbare Schreibblende (Der Abstand zum Quadrupol ist auf 65 mm fixiert) auf die gewünschte Position im Atomstrahl gefahren. Durch resonante Anregung mit dem Nachweislaser hinter der Blende emittieren diejenigen Atome Fluoreszenzlicht, welche die Blende passiert haben (Abb. 6.12). Die Intensität des mit der CCD-Kamera detektierten Fluoreszenzlichts ist proportional zur Dichte des Atomstrahls am Ort der Blende. Durch Verschieben der Schreibblende in x, y kann der gesamte Atomstrahlquerschnitt abgetastet werden.



Abbildung 6.12: Rastern des Atomstrahlquerschnitts mit der transversal verschiebbaren Schreibblende zur Bestimmung der Dichteerhöhung aufgrund des Quadrupols.

Das Ergebnis der Rasterung zeigt Abbildung 6.13. Die Messwerte wurden so normiert, dass die durch Abtastung gewonnen Messwerte mit den durch die CCD-Kamera aufgenommenen Querschnitten im gleichen Abstand vom Quadrupol übereinstimmen. Dabei wird berücksichtigt, dass die Auflösung der CCD-Kamerabilder erheblich schlechter ist, wodurch das Maximum schwächer ausgeprägt ist (Abb. 6.13a). Dementsprechend werden zur Normierung nur Messwerte mit einem Abstand > 200 μ m vom Maximum herangezogen. Der kleine Gradient der Dichte jenseits dieses Abstandes lässt keine Verfälschung durch die Auflösung erwarten. Auf Grund der geringen Dichte in diesem Außenbereich sinkt jedoch das Verhältnis von Signal zu Untergrund, so dass die Normierung mit einem Fehler von etwa 10 % behaftet ist. Nach den Messwerten erhöht sich die Atomstrahldichte durch den Quadrupol um den Faktor 37 ± 4. Sowohl die Erhöhung der Atomstrahldichte als auch die Breite des Maximums stimmen mit den Ergebnissen einer Simulation mit Parametern wie im Experiment hervorragend überein (Abb. 6.13a, gestrichelte Linie).

Eine 3D-Darstellung des durch den Quadrupol gebündelten Atomstrahls zeigt Abbildung 6.13b. Die mit der 10 μ m-Schreibblende gemessenen Werte sind als einzelne Punkte eingetragen. Die farbige Oberfläche ist ein aus den diskreten Messwerten durch Näherungsverfahren gewonnenes Modell des Atomstrahls. Der Querschnitt des Atomstrahls ist leicht oval mit einer Halbwertsbreite von $(42 \pm 2) \mu m$ in x-Richtung und einer Halbwertsbreite von $(29 \pm 2) \mu m$ in y-Richtung. Dies deutet auf eine leichte Verkippung des Quadrupols in x-Richtung oder eine Schiefstellung der Kamera hin.



Abbildung 6.13: Ergebnisse der Rasterung der Dichte im Atomstrahlquerschnitt mit der 10 μ m-Schreibblende. (a) Profil der Atomstrahldichte ϑ in x-Richtung in Einheiten der maximalen Dichte ϑ_b des Atomstrahls ohne Quadrupol. Die eingezeichneten Messpunkte sind die mit der Schreibblende gemessenen Werte. Die durchgezogenen Linie stellt das mit der CCD-Kamera gemessene Atomstrahlprofil dar. Die gestrichelte Linie ist das Ergebnis eines simulierten Profils mit Parametern wie im Experiment. (b) 3D-Darstellung des Atomstrahlquerschnitts. Die Messpunkte entsprechen den mit der Schreibblende gemessenen Werten. Die farbige Flächendarstellung ist ein mit Näherungsmethoden aus den diskreten Messwerten erzeugtes Modell der Dichte im Atomstrahlquerschnitt. Jede Farbschicht hat eine Breite von 5 Einheiten.

6.3.2 Schreiben von beliebigen Strukturen

Mit dem Atomstift werden beliebige Strukturen durch gezieltes serielles Abscheiden von Atomen erzeugt. Die Struktur entsteht dabei durch Verschieben der Schreibblende während des Prozesses. Da das aus dem Cäsium-Atomstrahl abgeschiedene, hochreaktive Alkali-Metall an Atmosphäre durch Sauerstoff und Feuchtigkeit oxidiert wird, wird eine Resist-Technik angewandt, um permanente Strukturen zu erzeugen. Als Resist dient eine selbstanordnende Nonanthiol-Monolage, die eine 30 nm dicke, auf einen Silizium-Wafer aufgedampfte Goldschicht bedeckt. Durch Abscheidung des hochreaktiven Cäsium wird der Resist lokal beschädigt. In einem anschließendem Nassätzprozess wird das Gold unterhalb der geschädigten Stellen entfernt, während die intakten Bereiche der Resistschicht das unterliegende Gold schützen. Nach dem Ätzprozess bleibt eine permanente Goldstruktur, deren Form ein Negativbild zu den mit Cäsium bedampften Bereichen ist. Detaillierter ist das Resistverfahren im Anhang B.2 beschrieben.

6.3.2.1 Durchführung

Beliebige Strukturen werden mit der verwendeten 10 μ m - Blende erzeugt, indem die Blende an die gewünschte Position unter dem Substrat gefahren wird und der Atomstrahl für die gewünschte Schreibzeit t_S angeschaltet wird. Dadurch werden Atome an der gewünschten Stelle auf dem Substrat abgeschieden. Das Schalten des Atomstrahls erfolgt durch Verstimmung der optischen Melasse; zum transversalen Kühlen der Atome wird die Melasse 10 - 15 MHz rotverstimmt; eine blauverstimmte Melasse dagegen lenkt die Atome derart ab, dass keine Atome mehr vor der Schreibblende nachweisbar sind. Durch serielles Schreiben mehrerer solcher Punkte wird die gewünschte Struktur erzeugt. Die Position der Schreibblende wird dabei mit der CCD-Kamera kontrolliert.

Dosis Zur Erzeugung eines Struktur-Punktes wird die Dosis $D_B = 1, 4 \cdot 10^{15}$ Atome/cm² angesetzt. Sie beträgt das 3-fache der Resist-Schwellendosis $D_S = 5 \cdot 10^{14}$ Atome/cm² (Anh. B.2), so dass ausreichende Reserven garantiert sind.

Die Flussdichte im Maximum des optisch gekühlten Cäsium-Atomstrahls vor dem Quadrupol wird bei der Ofentemperatur 143° C durch Absorptionsmessung zu $\psi_0 = (2 \pm 0, 5) \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ bestimmt. Diese Flussdichte wird durch den Quadrupol am Ort der Blende um den Faktor Q(x, y) erhöht, welcher je nach Ort (x, y) der Blende von 0 bis 30 variiert (Abb. 6.13b). Für die Schreibzeit t_S eines zu schreibenden Punktes gilt damit:

$$t_{S} = \frac{D_{B}}{Q(x,y) \cdot \psi_{0}} = \frac{700s}{Q(x,y)}$$
(6.4)

Die Verschiebestrecke der Schreibblende zum Schreiben von Strukturen beträgt annähernd 100 μ m. Da die Halbwertsbreite des Atomstrahls am Ort der Blende jedoch nur etwa 40 μ m beträgt (Kap. 6.3.1.2), ändert sich beim Verschieben der Atomfluss $Q(x, y) \cdot \psi_0$ durch die Blende signifikant. Daher muss die Schreibzeit t_S für jeden zu schreibenden Punkt (x, y)nach Gleichung (6.4) angepasst werden.

Positionierung des Substrats Direkt vor dem Einlegen des Substrats wird die Position der Schreibblende relativ zur Brennlinie bestimmt (Kap. 6.3.1.2). Zum Einlegen des Substrats wird die Experimentierkammer mit Stickstoff geflutet und über das Schiebeventil geöffnet. Um das Eindringen von feuchter Luft in die Apparatur zu verhindern, wird die Experimentierkammer konstant mit Stickstoff gespült. Das Substrat wird auf den dafür vorgesehenen Substrathalter gelegt (Abb. 6.6).

Die Atomstrahl-Divergenz α hinter dem Quadrupol von 8 mrad führt zu einer Verbreiterung des Atomstrahls hinter der Schreibblende. Zur Erzeugung von Strukturbreiten in der Größenordnung des Blendendurchmessers d gilt für den Abstand l des Substrats zur Schreibblende die Voraussetzung

$$l \ll \frac{d}{\alpha} = 1,25 \text{ mm}$$
(6.5)

Ein gewisser Abstand zwischen Schreibblende und Substrat ist nötig, damit die Blende ohne Störung unter dem Substrat verschoben werden kann. Daher wird der Abstand zwischen Substrat und Blende mit den Stellschrauben auf grob 0,2 mm eingestellt.

6.3.2.2 Ergebnisse

Die erste mit dem Atomstift erzeugte Struktur stellt den griechischen Buchstaben " Λ " dar (Abb. 6.14a). Die Figur hebt sich in der optischen Mikroskopaufnahme des Substrats durch dunkle Kreise hervor. An diesen Stellen wurde die Goldschicht im Ätzprozess entfernt, so dass die dunklere Silizium-Oberfläche zum Vorschein kommt.

Die Kreise sind Projektionen der Schreibblende auf dem Substrat, welche seriell durch Verschiebung der Blende erzeugt wurden. Sie haben Durchmesser zwischen 11,5 μ m und



Abbildung 6.14: (a) Aufnahme eines entwickelten Substrats mit einem optischem Mikroskop. Die erzeugte Struktur (" Λ ") hebt sich durch die dunklen Stellen hervor, an denen das Gold im Ätzprozess entfernt wurde. (b) Atomkraftmikroskop-Aufnahme des gestrichelt umrandeten Bereiches in (a). An den tiefer liegenden Stellen (dunkle Farbgebung) wurde das Gold weggeätzt.

12,3 μ m und sind damit signifikant größer als der Blendendurchmesser von $(10 \pm 1) \mu$ m, was eine Folge der Aufweitung des Atomstrahls hinter der Blende auf Grund der Divergenz von ca. 8 mrad ist. Die leicht unterschiedlichen Durchmesser der Kreise resultieren aus unterschiedlichen Dosen an Cäsium-Atomen pro Struktur-Punkt; Bei höheren Dosen wird die Zerstörschwelle des Resists bereits in den Außenbereichen des divergenten Atomstrahls hinter der Blende überschritten, und so der Durchmesser des erzeugten Kreises vergrößert.

An den einzelnen Kreisen ist jeweils oben, leicht nach rechts von der Mitte versetzt, eine Einbuchtung sichtbar. Auch in der Atomkraftmikroskop-Aufnahme in Abbildung 6.14b ist diese Einbuchtung zu erkennen. Diese ist vermutlich der Schattenwurf einer kleinen Verunreinigung im Loch der Schreibblende, die den kreisförmigen Blendenquerschnitt modifiziert. Dieser (ursprünglich nicht beabsichtigte) Effekt zeigt eindrucksvoll, dass die Auflösung dieser Technik weit höher ist als die durch den Blendendurchmesser begrenzten 10 μ m.

Abbildung 6.15 zeigt das mit dem Atomstift geschriebene Kürzel "ANF". Es steht für "<u>A</u>tomic <u>N</u>anofabrication" [81], also für die Erzeugung von Nanostrukturen mit Atomen, dem dieser Arbeit übergeordneten Thema. Die einzelnen Punkte, aus denen die Struktur besteht, liegen hier dichter aneinander als bei der in Abbildung 6.14 vorgestellten Figur. Da die Ausdehnung dieser Struktur beim jetzigen Entwicklungsstadium der Lithografie-Einheit aus technischen Gründen nicht wesentlich größer als 100 μ m werden kann, werden die Buchstaben nur durch wenige Punkte dargestellt, was die Erkennbarkeit herabsetzt. Deutlich sind aber das "A" und das "F" zu erkennen. Die Querstriche über dem "F" stammen von einem Kratzer auf dem Substrat und haben keinen Zusammenhang mit dem Lithografieverfahren.



 $100 \ \mu m$

Abbildung 6.15: Aufnahme eines entwickelten Substrats mit einem optischem Mikroskop. Die erzeugte Struktur "ANF" hebt sich durch die dunklen Stellen hervor, an denen das Gold weggeätzt wurde.

6.4 Diskussion

In diesem Kapitel wurde mit dem "Atomstift" ein neues Konzept zur Erzeugung beliebiger Strukturen durch serielles Abscheiden von neutralen Atomen vorgestellt. Zur Demonstration der Realisierbarkeit wurde eine Apparatur aufgebaut, in welchem beliebige Strukturen durch Abscheidung von Cäsium-Atomen erzeugt werden. Die Auflösung der Strukturen ist dabei durch den Durchmesser der verwendeten Schreibblende von 10 μ m gegeben. Weiter bestätigen Messungen zur atomaren Dichte hinter dem Quadrupol die in Kapitel 5 vorgestellten mathematischen Modelle und Simulationen. In den Experimenten konnte ferner die von Lüthi et al. [71] festgestellte Beobachtung bestätigt werden, wonach die Schreibblende nicht durch Abscheidung von Atomen verstopft wird. Dieser für die Anwendung des Atomstifts zur Erzeugung von Nanostrukturen enorm wichtige Aspekt bedarf jedoch weiterer Untersuchungen zur Anlagerung und Migration der Atome auf dem die Schreibblende formenden Material.

Perspektiven des "Atomstifts"

Die hier vorgestellte Technik befindet sich in einem sehr frühen Entwicklungsstadium, in dem keinesfalls die Bedingungen für einen professionellen Einsatz erfüllt sind. Aus den gewonnenen experimentellen Erkenntnissen lassen sich jedoch Schlüsse für weitere Ausbaustufen der Apparatur ziehen. Auch sind nun zuverlässigere Prognosen über Eignung und mögliche Einsatzgebiete dieser Technik bei der Herstellung von Nanostrukturen möglich. Langfristiges Ziel des Konzepts ist die Anwendung des Atomstifts bei der industriellen Herstellung von Nanostrukturen durch gezieltes, serielles Abscheiden von Atomen. Voraussetzung dafür sind die folgenden Bedingungen:

• Kleine Strukturbreite für hohe Schreibdichten

- Hohe Flussdichte für kurze Schreibzeiten
- Weites Einsatzgebiet und Vielseitigkeit
- Einfache Bedienbarkeit und Zuverlässigkeit
- Niedrige Anschaffungs- und Unterhaltskosten

Im Folgenden werden die Perspektiven des Atomstifts hinsichtlich jeder dieser Bedingungen behandelt.

Strukturbreite Die minimale Breite der mit dem Atomstift erzeugten Strukturen wird in erster Linie durch den Durchmesser der verwendeten Schreibblende begrenzt. In den hier vorgestellten Experimenten wurde eine kreisrunde Schreibblende mit einem Durchmesser von $d = 10 \ \mu$ m verwendet. In neueren Experimenten an der gleichen Apparatur mit einem Schreibblenden-Durchmesser von $d = 1 \ \mu$ m konnten Strukturbreiten von ca. 1 μ m erzeugt werden [87]. Blenden mit Durchmessern d = 50 - 150 nm werden im Rahmen eines europäischen Forschungsnetzwerks von E. Oesterschulze aus Kassel zur Verfügung gestellt [95, 96]. Experimente mit diesen Blenden sind in Kürze geplant⁴. Insofern wird die Technik des Atomstifts bereits in naher Zukunft die Auflösung gängiger Lithografieverfahren nicht nur erreichen, sondern sogar übertreffen. (Die atomare Flussdichte am Ort der Blende, und damit die Schreibzeit, ändern sich durch eine Änderung des Blendendurchmessers nicht.)

Flussdichte Die Flussdichte ψ_0 im Atomstrahl am Ort der Schreibblende, und damit die Schreibzeit $t_S = D_S/\psi_o$ (D_S : Schwellendosis), sind Schlüsselzahlen für die Einsetzbarkeit des Atomstifts zur Produktion von Nanostrukturen. Je länger die Schreibzeit, desto geringer der Durchsatz einer solchen Apparatur, desto höher die Stückkosten der produzierten Nanostruktur. Bei Schreibzeiten von mehreren Sekunden pro geschriebenem Punkt benötigt die hier vorgestellte Apparatur mehrere Minuten bis Stunden zur Erzeugung selbst einfacher Strukturen. Damit ist die Apparatur noch weit von einem Serieneinsatz entfernt. Doch gibt es vielfältige Möglichkeiten zur Steigerung der Flussdichte, die keine grundsätzlich neuen Konzepte und Komponenten benötigen, sondern lediglich auf Optimierung bzw. Vervielfachung bekannter Komponenten beruhen.

1. Sehr wirkungsvoll ist ein verbreiterter Atomstrahl in Verbindung mit einem zusätzlichen Quadrupol und einer anschließenden zweiten Melasse⁵ (Abb. 6.16). Der breite Atomstrahl (Durchmesser z. B. 10 mm) wird nach dem Durchgang durch den ersten Quadrupol gebündelt, ist jedoch sehr divergent. Darum wird er in einer zweiten Melasse wieder kollimiert. Anschließend passiert der Atomstrahl den zweiten Quadrupol, der den Atomstrahl auf die Schreibblende bündelt. Simulationen zeigen, dass die Dichte im Atomstrahl durch diese Maßnahme um einen zusätzlichen Faktor 100 erhöht werden kann. Ein solcher mehrstufiger Atomstift verlangt zusätzliche Laserleistung.

⁴Bei der Erzeugung von solch kleinen Strukturbreiten ist eine elektronische Regelung des Abstandes zwischen Substrat und Schreibblende auf wenige μ m erforderlich, um eine Verbreiterung der erzeugten Strukturen durch die Divergenz des Atomstrahls zu vermeiden (Kap. 6.3.2.1).

⁵Eine Verbreiterung des kollimierten Atomstrahls durch Vergrößerung der beteiligten Blenden (Ofenblende und Kollimationsblende) ohne zusätzliche Maßnahmen ist wirkungslos, da zwar der Gesamtfluss mit dem Atomstrahldurchmesser vergrößert wird, nicht jedoch die Flussdichte.



Abbildung 6.16: Schema einer möglichen Erweiterung des Atomstifts zur Erhöhung der atomaren Flussdichte: Der thermische Atomstrahl wird in einem Hochfluss-Ofen erzeugt. In der ersten optischen Melasse wird er kollimiert und anschließend durch den ersten permanentmagnetischen Quadrupol gebündelt. Im Maximum der Flussdichte hinter dem ersten Quadrupol befindet sich eine zweite optische Melasse, durch die der gebündelte Atomstrahl wiederum kollimiert wird. Der Atomstrahl wird anschließend durch den zweiten Quadrupol auf die Schreibblende gebündelt, hinter der sich das zu beschreibende Substrat befindet.

- 2. Eine Verwendung verkippter Melassenspiegel vergrößert den Einfangwinkel⁶ Θ_E einer optischen Melasse [55]. Damit kann ein größerer Anteil des stark divergenten Atomstrahls hinter der Ofenöffnung kollimiert werden. Die atomare Flussdichte steigt damit linear mit dem Einfang-Raumwinkel $\pi \Theta_E^2$ der Melasse hinter der Ofenöffnung. Eine experimentelle Realisierung erfordert eine verlängerte Kühlstrecke sowie eine höhere Kühllaserleistung.
- 3. Die atomare Flussdichte wird durch eine Erhöhung der Ofentemperatur gesteigert. Da der Cäsium-Dampfdruck über weite Strecken exponentiell mit der Temperatur ansteigt [31], erhöht sich die Flussdichte bei einer Erhöhung der Ofentemperatur um 50 °C etwa um einen Faktor 10. Durch den Einsatz von so genannten Reflux-Öfen [102, 112] wird der Atomstrahl bereits im Ofen durch Blenden kollimiert. An den Blenden abgeschiedenes Material wird durch Verwendung spezieller Materialien und Temperaturgradienten wieder zurückgeführt. Somit kann trotz des großen Flusses ein Druckanstieg in der Vakuumapparatur durch einen hohen, ungerichteten Atomfluss verhindert werden.

⁶Unter Einfangwinkel ist der maximale Winkel zur Atomstrahlachse zu verstehen, unter dem die Atome in die Melasse eindringen können und zugleich noch effizient gekühlt werden. In der Regel ist dies der Winkel, bei dem der Kühllaser im Ruhesystem der Atome durch Dopplereffekt um 2Γ blauverschoben wird, wobei Γ die Breite des Kühlübergangs ist [81]. Es gilt $\Theta_E = \frac{2\Gamma}{\bar{v}_l}$, wobei \bar{v}_l die mittlere longitudinale Atomgeschwindigkeit ist.

4. Durch verbesserte Bündelung des Atomstrahls wird die Flussdichte am Ort der Schreibblende gesteigert. Dies wird nach Gleichung (5.53) sowohl durch eine größere Länge des Quadrupols vor der Schreibblende, als auch durch eine Erhöhung des Feldgradienten im Quadrupol erreicht. Letzteres wird insbesondere durch eine Verkleinerung des Quadrupol-Innendurchmessers (Gl. 5.15) erreicht.

Auch der Einsatz eines Quadrupols mit konisch verjüngentem Innenradius (Abb. 6.17) erhöht die atomare Flussdichte am Ort der Schreibblende. Der Vorteil besteht darin, dass der Quadrupol mit seiner großen Eintrittsöffnung den gesamten Atomstrahl aufnehmen kann, während am Ausgang durch den kleinen Innenradius höchste Feldgradienten erzeugt werden. Durch Verwendung von Polschuhen aus Weicheisen kann der Innenradius unter Umgehung der schwierigen Bearbeitung der Hartmagneten auf unter 1 mm reduziert werden. Dazu muss der Weicheisenkern entlang magnetischer Äquipotenzialflächen zugeschnitten werden [50, 51]. Simulationen zeigen, dass die Flussdichte am Ort der Schreibblende durch die Verwendung eines optimierten Quadrupols etwa um einen Faktor 10 erhöht wird.



Abbildung 6.17: Quadrupol mit konisch verjüngtem Innenradius. Aus fertigungstechnischen Gründen ist bei kleinen Innenradien das Einsetzten eines Weicheisen-Polschuhs sinnvoll.

Alleine durch diese in Tabelle 6.2 zusammengefassten Maßnahmen wird die Flussdichte am Ort der Blende um 5 Größenordnungen auf etwa $10^{19} \text{ cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ erhöht⁷. Die Schreibzeit sinkt damit auf weniger als 100 μ s je abgeschiedener Monolage. Damit werden selbst komplexe Strukturen mit mehreren 10.000 Einzelpunkten in wenigen Sekunden abgeschieden.

Maßnahme	Faktor
1. 10 mm Atomstrahlquerschnitt, 2. Quadrupol und 2. Melasse	≈ 100
2. Vergrößerung des Einfangwinkels Θ_E der optischen Melasse	≈ 10
3. Erhöhung der Ofentemperatur um 50 °C	≈ 10
4. Verwendung eines optimierten Quadrupols	≈ 10
gesamt	≈ 100.000

Tabelle 6.2: Maßnahmen zur Erhöhung der atomaren Flussdichte.

⁷Diese Flussdichte entspricht einer Atom
dichte von $\approx 4 \cdot 10^{14}$ Moleküle/cm³ (Dichte der Atmosphäre
: $\approx 2 \cdot 10^{19}$ Atome/cm³). Die damit korrespondierende mittlere freie Weglänge der Cäsium-Atome von
 $\approx 200 \ \mu m \ [115]$ entspricht der Länge atomarer Trajektorien im Bereich hoher (Fluss-)
Dichte. Eine darüber hinaus gehende Erhöhung der atomaren Flussdichte um weitere Größenordnungen scheitert daher bei dem verwendeten Cäsium-Atom
strahl an der ansteigenden Stoßrate zwischen Cäsium-Atomen. Andere Elemente mit kleinerem Stoßquerschnitt als das "große" Cäsium-Atom können höhere Flussdichten erzielen.

Einsatzgebiet und Vielseitigkeit Die hier vorgestellte Apparatur dient ausschließlich zur Demonstration des Atomstift-Prinzips. Es wird ein einfach zu präparierender Cäsium-Atomstrahl eingesetzt, so dass ein Resistverfahren benötigt wird, um permanente Strukturen zu erzeugen. Langfristig ist der Atomstift jedoch konzipiert, um Material mit Nanometer-Genauigkeit direkt auf einem Substrat abzuscheiden. Mit einer fortgeschrittenen Version des Atomstifts könnten z. B. Silber-Leiterbahnen auf Mikrochips abgeschieden werden.

Prinzipiell lässt sich das Schema des Atomstifts für jedes Element anwenden, welches optisch kollimierbar und magnetisch polarisierbar ist. Für beide Schritte werden Laser mit Wellenlängen entsprechend der Wellenlängen geeigneter atomarer Übergänge des Elements benötigt. Die Verfügbarkeit solcher Laser mit ausreichender Leistung stellte bisher das ent-scheidende Hindernis dar. Doch gerade die enormen Fortschritte der letzten Jahre bei der Herstellung von Laserdioden [92] zeigen, dass es bis zur Verfügbarkeit weiterer Wellenlängen oft nur eine Frage der Zeit ist. Insofern wird es wahrscheinlich in einigen Jahren möglich sein, den Atomstift mit mehreren Dutzend technisch interessanter Atome zu betreiben.

Bedienbarkeit und Zuverlässigkeit Dank des einfachen und kompakten Atomstift-Konzepts und durch Einsatz von Permanentmagneten ist der vorgestellte Atomstift vergleichsweise einfach und robust. Die Bedienbarkeit und Zuverlässigkeit eines ausgereiften Atomstifts ist vergleichbar mit Elektronenstrahl- oder Ionenstrahl-Apparaturen.

Anschaffungs- und Unterhaltskosten Die Komplexität eines Atomstifts ist vergleichbar mit der einer Elektronenstrahl- oder Ionenstrahl-Apparatur. Somit sind ähnliche Größenordnungen bezüglich Anschaffungs- und Unterhaltskosten zu erwarten.

Fazit

Der Atomstift ist ein neues Konzept zur Erzeugung von Nanostrukturen in einem seriellen Prozess durch Abscheidung von neutralen Atomen. Die aussichtsreichen Perspektiven sprechen für eine Weiterentwicklung des Konzepts mit der Zielsetzung einer Anwendung in Forschung und Industrie.

Kapitel 7 Zusammenfassung und Ausblick

Die Herstellung von Nanostrukturen mit Atomstrahlen ist von großem Interesse für die angewandte Forschung. Eine kontrollierte Abscheidung von neutralen Atomen mit Nanometer-Genauigkeit eröffnet einzigartige Perspektiven, z. B. die Erzeugung von Kristallen mit dreidimensional variierter chemischer Zusammensetzung. Die in dieser Arbeit präsentierten Konzepte und Ergebnisse leisten dieser Entwicklung neuen Vortrieb. Die beiden vorgestellten, sehr verschiedenen Methoden zur Erzeugung von Nanostrukturen durch Abscheidung von Atomen haben jeweils ihre eigenen Stärken und Einsatzgebiete. Gemeinsamer Ausgangspunkt der beiden Methoden ist ein thermischer Strahl von neutralen Atomen, dessen Strahlqualität durch eine zweidimensionale Laserkühlung gesteigert wird. Die Flugbahn der Atome wird vor der Abscheidung auf dem Substrat durch Lichtkräfte bzw. durch magnetische Kräfte manipuliert.

Parallele Abscheidung von Atomen mit Lichtmasken

Die parallele Erzeugung von Nanostrukturen mit so genannten Lichtmasken ist seit Anfang der 90er Jahre ein aktives Forschungsgebiet. Als Maske dient ein ebenes, monochromatisches Lichtfeld, welches mit Hilfe der optischen Dipolkraft atomare Trajektorien lenkt. Die Intensitätsverteilung der Lichtmaske wird durch Abscheidung der Atome auf ein direkt dahinter befindliches Substrat projiziert. Bislang wurde diese Methode nur zur Erzeugung von vergleichsweise einfachen Strukturen genutzt, wobei die Intensitätsverteilung der Maske durch Interferenz einiger, mit Hilfe von Spiegeln geleiteter Laserstrahlen erzeugt wurde.

Die hier vorgestellte holografische Erzeugung von Lichtmasken (Kap. 2) eröffnet neue Perspektiven für deren Gestaltung. Durch Auslesen eines Hologramms (mit einem einzelnen Referenz-Laserstrahl) können gleichzeitig mehrere tausend Laserstrahlen erzeugt werden. Das resultierende Interferenzmuster dieser Laserstrahlen kann sowohl periodische als auch nicht-periodische, komplexe Strukturen annehmen. Mit den vorgestellten Experimenten wird die Eignung und die Effizienz dieser Methode unter Beweis gestellt.

Einen völlig neuen Ansatz zur Erzeugung von Lichtmasken liefert das vorgeschlagene Multiplexen von gepulsten Lichtfeldern (Kap. 4). Die Anwendbarkeit gepulster Lichtmasken zur Erzeugung von Nanostrukturen wurde theoretisch begründet und experimentell demonstriert (Kap. 3). Die Methode eröffnet erstmals die Möglichkeit, eine gewünschte Vorlage in hervorragender Qualität durch eine Lichtmaske bzw. der entsprechenden atomaren Abscheidung wiederzugeben. Für eine experimentelle Realisierung bietet sich insbesondere eine Kombination mit der holografischen Erzeugung von Lichtfeldern an. Die in diesem Teil der Arbeit vorgestellten Methoden schlagen damit gemeinsam ein neues, faszinierendes Kapitel im Forschungsgebiet der Atomlithografie auf.

Serielle Abscheidung von Atomen bei hoher Schreibgeschwindigkeit

Der zweite Teil der Arbeit (Kap. 5 + 6) stellt eine serielle Technik zur Erzeugung von Nanobzw. Mikrostrukturen vor. Hier wird der Durchmesser eines thermischen Atomstrahls mit einer Blende auf wenige Nanometer bis Mikrometer begrenzt. Das Verschieben der Blende gegenüber dem dahinter befindlichen Substrat ermöglicht die Erzeugung gewünschter Strukturen durch lokale Abscheidung von Atomen. Zur Erhöhung des atomaren Flusses bzw. zur Verkürzung der Schreibzeit wird der Atomstrahl mit einem ebenen magnetischen Quadrupol gebündelt. Das vorgestellte Experiment bestätigt die aus Berechnungen und Simulationen hervorgehenden Erwartungen in vollem Umfang.

Der entscheidende Vorteil dieser Methode besteht in der im Vergleich zu anderen seriellen Atomlithografie-Verfahren deutlich reduzierten Schreibzeit. Die Kombination von transversaler Laserkühlung und Bündelung des Atomstrahls durch einen magnetischen Quadrupol liefert die dafür notwendige Erhöhung des atomaren Flusses. In den vorgestellten ersten Experimenten wurde mit vergleichsweise geringem Aufwand eine Erhöhung der Flussdichte um $1\frac{1}{2}$ Größenordnungen erreicht. Eine Optimierung der Komponenten sowie eine Skalierung der Apparatur kann bei den für die Zukunft geplanten Experimenten eine Erhöhung der Flussdichte um weitere 5 Größenordungen ermöglichen. Entsprechend reduziert sich die Schreibzeit pro Punkt und abgeschiedener Monolage auf einige Mikrosekunden, wodurch die Methode praktische Bedeutung bei der seriellen Erzeugung von Nanostrukturen erhält.
Anhang A Rechnungen und Beweise

A.1 Einschaltfunktion eines endlichen ebenen Quadrupols



Abbildung A.1: Halbunendlicher ebener Quadrupol.

Der Einfluss der endlichen Länge eines realen Quadrupols auf sein magnetisches Feld wird berechnet, indem zunächst das Randfeld eines halbunendlichen Quadrupols (Abb. A.1 betrachtet wird, der sich von $z = -\infty$... 0 erstreckt. Nach Halbach [51] folgt aus der Integration von Gleichung (5.7) für das magnetische Potenzial $\Phi_M^{-\infty,0}$ des halbunendlichen Quadrupols

$$\Phi_M^{-\infty,0}(\rho,\phi,z) = \Phi_M(\rho,\phi,z) \cdot D\left[\rho^2 \frac{d^2}{dz^2}\right] h(z) , \qquad (A.1)$$

wobei Φ_M das magnetische Potenzial eines unendlich langen Quadrupols ist, und h(z) die Einschaltfunktion des halbunendlichen Quadrupolpotenzials ist. Hier ist D ein linearer Differenzialoperator der Form

$$D[u] = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2(-u/4)^n}{n!(n+2)!} = 1 - \frac{u}{12} + \dots$$
(A.2)

mit $u = \rho^2 \frac{d^2}{dz^2}$. Für die Einschaltfunktion h(z) des halbunendlichen Quadrupols gilt nach Halbach [51] mit $v_{i,a} = \left(1 + (z/\rho_{i,a})^2\right)^{-1/2}$

$$h(z) = \frac{1}{2} \frac{\rho_a}{\rho_a - \rho_i} \left(1 - \frac{\rho_i}{\rho_a} + \frac{\rho_i}{8z} \left(v_i^3 - v_a^3 + 4(v_i - v_a) + 8(v_a^{-1} - v_i^{-1}) \right) \right)$$
(A.3)

Aus der Gleichung lässt sich leicht zeigen, dass h(z) + h(-z) = 1. Damit ist auch die aus dem Superpositionsprinzip herrührende Forderung erfüllt, dass zwei aneinander gefügte halbunendliche Quadrupole wieder das Feld eines unendlichen Quadrupols ergeben. Weiter gilt $h(-\infty) = 1$ und $h(\infty) = 0$, womit die physikalische Anschauung bestätigt wird, wonach das magnetische Feld tief im Inneren des halbunendlichen Quadrupols dem eines unendlichen Quadrupols entspricht, bzw. das Feld weit außerhalb verschwindet. In Abbildung A.2 ist der Verlauf der Einschaltfunktion h für verschiedene Verhältnisse von ρ_a zu ρ_i dargestellt. Je größer ρ_a/ρ_i ist, um so größer die Entfernung vom Rand des Magneten (in Einheiten von ρ_i), in der die Randfelder Einfluss auf das Magnetfeld haben. Bei dem in unseren Experiment verwendeten Quadrupol ist das Verhältnis $\rho_a/\rho_i = 5$ ($\rho_i = 5$ mm, ρ_a = 25 mm), so dass in einer Eindringtiefe von $z \approx -\rho_i$ in den Quadrupol die Einschaltfunktion auf 0,9 angestiegen ist, bzw. in einer Entfernung von $z \approx \rho_i$ vom Quadrupol auf 0,1 abgesunken ist. Also kann man von einer Randzone des Magneten sprechen, die sich ca. 5 mm beiderseits des Randes ausdehnt. Für $\rho \ll \rho_i$ ist die Näherung

$$D\left[\rho^2 \frac{d^2}{dz^2}\right] h(z) \approx h(z) + O(\rho^2)$$
(A.4)

möglich. Da $\Phi_M(\rho, \phi, z) \sim \rho^2$ ist (Gl. 5.8) folgt:

$$\Phi_M^{-\infty,0}(\rho,\phi,z) = \Phi_M(\rho,\phi,z) \cdot h(z) + O(\rho^4) .$$
(A.5)



Abbildung A.2: (a) Darstellung der Einschaltfunktion h(z) eines halbunendlichen Quadrupols und (b) deren zweiter Ableitung $\frac{\partial^2}{\partial z^2}h(z)$. Alle Längen sind auf den Innendurchmesser ρ_i des Quadrupols normiert. Die Ausdehnung des Quadrupols ist durch graue Farbgebung angedeutet.

Zur Berechnung des magnetischen Potenzials Φ_M^L eines Quadrupols aus Seltenerd-Material mit endlicher Länge L kann das Superpositionsprinzip angewendet werden. Für einen ebenen Quadrupol mit der Ausdehnung -L/2...L/2 ist daher die Funktion $K_{QP}^L = h(z - L/2) - h(z + L/2)$ in guter Näherung die Einschaltfunktion des magnetischen Potenzials. Es gilt:

$$\Phi_M^L(\rho, \phi, z) = \Phi_M(\rho, \phi, z) \cdot K_{QP}^L(z) + O(\rho^4)$$
(A.6)

Die Einschaltfunktion für den verwendeten Magneten ist in Abbildung 5.4a dargestellt. Wichtig für das Verständnis der atomoptischen Eigenschaften des Quadrupols ist der aus dem Superpositionsprinzip bzw. aus Symmetriebetrachtungen herrührende Zusammenhang [51]

$$\int_{-\infty}^{\infty} K_{QP}^L(z) dz = L .$$
(A.7)

Damit ist die so genannte "optische Wirklänge" jeder magnetischen Feldgröße ebenfalls L.

A.2 Thermischer Atomstrahl hinter Quadrupol

Berechnet wird die Dichte bzw. Flussdichte eines kollimierten, thermischen Atomstrahls hinter einem ebenen magnetischen Quadrupol. Der Atomstrahl mit der mittleren Atomgeschwindigkeit $\bar{v}_z = 2/\sqrt{\pi} \cdot v_M$ habe die longitudinale Geschwindigkeitsverteilung (5.49)

$$\sigma_z(v_z) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v_z^2}{v_M^3} e^{-\frac{v_z^2}{v_M^2}} , \qquad (A.8)$$

wobe
i $v_M = (2k_BT/m_{\rm Atom})^{1/2}$ ist. Die transversale Geschwindigkeitsverteilung vor dem Quadrupol sei (5.50)

$$\sigma_{\perp}(v_x, v_y) = \frac{1}{2\pi v_G^2} e^{-\frac{v_{\perp}^2}{2v_G^2}}$$
(A.9)

mit $v_{\perp} = \sqrt{v_x^2 + v_y^2}$. Der kreisförmige Atomstrahl habe dort die Dichte (5.51)

$$\vartheta_0(\rho) = \vartheta_b \cdot \Theta(\rho_b - \rho) \tag{A.10}$$

Lösung auf der Symmetrieachse

Dichte die Dichte des beschriebene Atomstrahls beträgt auf der Symmetrieachse ($\rho = 0$) nach (5.47)

$$\begin{aligned} \vartheta_{z}(0) &= 2a_{0}L \int_{0}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sigma_{z}(v_{z})\sigma_{\perp}(v_{x},v_{y}) \vartheta_{0}\left(\frac{a_{0}L}{v_{z}^{2}}z\right)}{v_{z}\sqrt{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}} \, dv_{x} \, dv_{y} \, dv_{z} \\ &= \vartheta_{b} \cdot 2a_{0}L \int_{\sqrt{a_{0}L\frac{z}{\rho_{b}}}}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}} \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v_{z}}{v_{M}^{3}} e^{-\frac{v_{z}^{2}}{v_{M}^{2}}} \frac{1}{2\pi v_{G}^{2}} e^{-\frac{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}{2v_{G}^{2}}} \, dv_{x} \, dv_{y} \, dv_{z} \end{aligned}$$

mit $\xi = \frac{\sqrt{v_x^2 + v_y^2}}{v_G}$ und $\zeta = \frac{v_z}{v_M}$ folgt:

$$\vartheta_{z}(0) = \vartheta_{b} \cdot \frac{4}{\pi^{\frac{3}{2}}} \frac{a_{0}L}{v_{G}v_{M}} \underbrace{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\infty} e^{-\frac{\xi^{2}}{2}} d\xi \, d\phi}_{\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}}} \underbrace{\int_{\rho_{b}}^{\infty} \zeta e^{-\zeta^{2}} d\zeta}_{-\frac{1}{2}e^{-\zeta^{2}}} d\zeta$$

$$= \vartheta_b \cdot 2\sqrt{2} \frac{a_0 L}{v_G v_M} e^{-\frac{a_0 L}{v_M^2} \frac{z}{\rho_b}}$$

Mit der mittleren thermischen Atomgeschwindigkeit $\bar{v}_z = \frac{\sqrt{\pi}}{2} v_M$ erhöht sich die Dichte nach dem Durchgang durch den Quadrupol auf der Symmetrieachse um den Faktor

$$\frac{\vartheta_z(0)}{\vartheta_b} = 4\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{a_0 L}{v_\perp \bar{v}_z} e^{-\frac{4}{\pi} \frac{a_0 L}{\bar{v}_z^2} \frac{z}{\rho_b}} , \qquad (A.11)$$

Flussdichte Die Flussdichte auf der Symmetrieachse lautet für den beschriebenen Atomstrahl nach Gleichung (5.48)

$$\begin{split} \psi_{z}(0) &= 2a_{0}L \int_{0}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\sigma_{z}(v_{z})\sigma_{\perp}(v_{x},v_{y}) \vartheta_{0}\left(\frac{a_{0}L}{v_{z}^{2}}z\right)}{\sqrt{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}} \, dv_{x} \, dv_{y} \, dv_{z} \\ &= \vartheta_{b} \cdot 2a_{0}L \int_{\sqrt{a_{0}L\frac{z}{\rho_{b}}}}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}} \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v_{z}^{2}}{v_{M}^{3}} e^{-\frac{v_{z}^{2}}{v_{M}^{2}}} \frac{1}{2\pi v_{G}^{2}} e^{-\frac{v_{x}^{2}+v_{y}^{2}}{2v_{G}^{2}}} \, dv_{x} \, dv_{y} \, dv_{z} \end{split}$$

mit $\xi = \frac{\sqrt{v_x^2 + v_y^2}}{v_G}$ und $\zeta = \frac{v_z}{v_M}$ folgt:

$$\psi_{z}(0) = \vartheta_{b} \cdot \frac{4}{\pi^{\frac{3}{2}}} \frac{a_{0}L}{v_{G}} \underbrace{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\infty} e^{-\frac{\xi^{2}}{2}} d\xi \, d\phi}_{\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}}} \underbrace{\int_{\rho_{b}}^{\infty} \zeta^{2} e^{-\zeta^{2}} d\zeta}_{\frac{\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}}}{\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}}}}_{\frac{\sqrt{\pi}}{4} \operatorname{erf}(\zeta) - \frac{\zeta}{2} e^{-\zeta^{2}}} d\zeta$$
$$= \vartheta_{b} \cdot \sqrt{2\pi} \frac{a_{0}L}{v_{G}} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}} \frac{z}{\rho_{b}}\right) + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}} \frac{z}{\rho_{b}}} e^{-\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}} \right)$$

Die Flussdichte erhöht sich mit $\bar{v}_z=\frac{\sqrt{\pi}}{2}v_M$ hinter dem Quadrupol auf der Symmetrieachse um den Faktor

$$\frac{\psi_z(0)}{\psi_b} = \frac{\psi_z(0)}{\bar{v}_z \cdot \vartheta_b} = \sqrt{2\pi} \frac{a_0 L}{v_G \bar{v}_z} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{z}{z^{\dagger}}}\right) + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{z}{z^{\dagger}}} e^{-\frac{z}{z^{\dagger}}} \right)$$

$$\operatorname{mit} \frac{1}{z^{\dagger}} = \frac{4}{\pi} \frac{a_0 L}{\bar{v}_z^2} \cdot \frac{1}{\rho_b}$$
(A.12)

Näherungslösung neben der Symmetrieachse

Dichte Wenn $z \frac{v_{\perp}^{\max}}{v_z} \ll \rho_z \ll z \frac{a_0 L}{v_z^2}$, so gilt nach (5.45) für die Dichte des beschriebenen Atomstrahls

$$\begin{split} \vartheta_z(\rho_z) &= 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int\limits_0^\infty \frac{\sigma_z(v_z)}{v_z^2} \vartheta_0 \left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) dv_z \\ &= \vartheta_b \cdot 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int\limits_{\sqrt{a_0 L \frac{z}{\rho_b}}}^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi} v_M^3} e^{-\frac{v_z^2}{v_M^3}} dv_z \end{split}$$

mit $\xi = \frac{v_z}{v_M}$ folgt:

$$\vartheta_{z}(\rho_{z}) = \vartheta_{b} \cdot 4 \frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}} \frac{z}{\rho_{z}} \int_{\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}}}^{\infty} \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-\xi^{2}} d\xi$$
$$= \vartheta_{b} \cdot 4 \frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}} \frac{z}{\rho_{z}} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{a_{0}L}{v_{M}^{2}}} \frac{z}{\rho_{b}}\right)\right)$$

Die Atomstrahl-Dichte $\vartheta_z(\rho)$ erhöht sich damit hinter dem Quadrupol für $z\frac{v_\perp^{\max}}{v_z}\ll\rho_z\ll z\frac{a_0L}{v_z^2}$ um den Faktor

$$\frac{\vartheta_z(\rho)}{\vartheta_b} = \frac{16}{\pi} \frac{a_0 L}{\bar{v}_z^2} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{a_0 L}{\bar{v}_z^2} \frac{z}{\rho_b}}\right) \right) \cdot \frac{z}{\rho_z}$$
(A.13)

Flussdichte Wenn $z \frac{v_{\perp}^{\text{max}}}{v_z} \ll \rho_z \ll z \frac{a_0 L}{v_z^2}$, so gilt nach (5.46) für die Flussdichte des beschriebenen Atomstrahls

$$\begin{split} \psi_z(\rho_z) &= 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int\limits_0^\infty \frac{\sigma_z(v_z)}{v_z} \vartheta_0\left(\frac{a_0 L}{v_z^2} z\right) \, dv_z \\ &= \vartheta_b \cdot 2a_0 L \frac{z}{\rho_z} \int\limits_{\sqrt{a_0 L \frac{z}{\rho_b}}}^\infty \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v_z}{v_M^3} e^{-\frac{v_z^2}{v_M^2}} \, dv_z \end{split}$$

mit $\xi = \frac{v_z}{v_m}$ folgt:

$$\psi_z(\rho_z) = \vartheta_b \cdot \frac{8}{\sqrt{\pi}} \frac{a_0 L}{v_M} \frac{z}{\rho_z} \int_{\sqrt{\frac{a_0 L}{v_M^2} \frac{z}{\rho_b}}}^{\infty} \xi e^{-\xi^2} d\xi$$
$$= \vartheta_b \cdot \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{a_0 L}{v_M} \frac{z}{\rho_z} e^{-\frac{a_0 L}{v_M^2} \frac{z}{\rho_b}}$$

Die Atomstrahl-Flussdichte $\psi_z(\rho_z)$ erhöht sich damit hinter dem Quadrupol für $z\frac{v_\perp^{\max}}{v_z}\ll\rho_z\ll z\frac{a_0L}{v_z^2}$ um den Faktor

$$\frac{\psi_z(\rho_z)}{\psi_b} = \frac{\psi_z(\rho_z)}{\bar{v}_z\vartheta_b} = \frac{8}{\pi}\frac{a_0L}{\bar{v}_z^2}e^{-\frac{4}{\pi}\frac{a_0L}{\bar{v}_z^2}\frac{z}{\rho_b}} \cdot \frac{z}{\rho_z} .$$
(A.14)



Abbildung A.3: Berechnete Entwicklung der (Fluss-) Dichte im Nahbereich der Quadrupol-Symmetrie
achse für $z \frac{v_{\perp}^{\text{max}}}{v_z} \ll \rho_z \ll z \frac{a_0 L}{v_z^2}$. Es wurden die experimentellen Parameter eingesetzt.

Anhang B

Atomlithografie mit Cäsium

B.1 Die Cäsium D₂-Linie



Abbildung B.1: Termschema des D_2 -Übergangen bei Cäsium. Eingezeichnet sind die in den Experimenten verwendeten Laser.



Abbildung B.2: Normalisierte Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den magnetischen Unterniveaus des Übergangs $|F = 4\rangle \rightarrow |F' = 5\rangle$ der Cäsium D₂-Resonanzlinie.

B.2 Resist-Technik mit Nonanthiol-Monolage auf Gold

Das hier vorgestellte Resistverfahren mit <u>s</u>elbst <u>a</u>nordenden <u>M</u>onolagen (SAM) von Nonanthiol auf Gold wird in [62] detailliert vorgestellt. Als Substrat dient ein polierter Silizium-Wafer, der zunächst mit einer ca. 1,5 nm dicken Chromschicht (als Kontaktschicht), und anschließend mit einer 30 nm dicken Goldschicht bedampft wird. Nonanthiol (chem. Formel: $CH_3(CH_2)_8SH$) bildet aus einer Ethanol-Lösung auf der Goldoberfläche spontan eine ca. 1,5 nm dicke, selbst angeordnete Monolage (SAM) [7, 99]. Auf Grund der hydrophoben Eigenschaften der Nonanthiol-Schicht wird das bedeckte Gold vor einer wässrigen Gold-Ätzlösung geschützt. Bei diesem Resist handelt es sich um einen so genannten "Positiv"-Resist, d. h. die mit Cäsium-Atomen bedampften Bereiche der Nonanthiol-Schicht werden zerstört. Daher wird beim anschließenden Naßätzen das Gold unter den bedampften Stellen weggeätzt (Abb. B.3). Als permanente Struktur bleibt das Gold unter den nicht bedampften Stellen übrig.

Dieses Verfahren hat sich in den letzten Jahren bei der Erzeugung von Nanostrukturen bewährt. Belichtet wurde die Resistschicht u. a. mit Röntgenstrahlen, UV-Licht und Elektronenstrahlen [23], aber auch mit metastabilen Edelgasatomen [9, 94] und neutralen Cäsiumatomen [61, 68]. Insbesondere wird an diesem Verfahren die einfache Anwendung und die Robustheit geschätzt.

Der Vorteil von Resist-Techniken bei der Nanostrukturierung mit Atomstrahlen gegenüber der Erzeugung von Strukturen durch direkte Abscheidung von Atomen besteht vor allem in der z. T. erheblich kürzeren Schreibzeit. Des Weiteren ist es möglich, mit Resist-Techniken auch Atome zur Erzeugung von Nanostrukturen zu verwenden, die unter Normalbedingungen gasförmig sind (z. B. Edelgase) oder mit Luftsauerstoff bzw. /-Feuchtigkeit reagieren (wie das hier verwendete Cäsium).

Damit stellt die hier angewendete Resist-Technik in Kombination mit einem optisch einfach präparierbaren Cäsium-Atomstrahl eine schnelle und robuste Methode zur Erzeugung von Nanostrukturen mit Atomstrahlen dar.

Präparation Bei der Präparation der Substrate ist Sauberkeit von größter Wichtigkeit, da vor allem organische Fremdmoleküle die Ausbildung der Schutzschicht negativ beeinflussen können. Daher wird das Substrat vor der Präparation mit Nonanthiol in einer so genannten Piranha-Lösung (75 % H_2SO_4 (konz.), 25 % H_2O_2 (35 %)) gereinigt. Das Sub-



Abbildung B.3: Schematische Darstellung der Strukturierung von goldbeschichteten Silizium-Substraten mit Hilfe der SAM-Resist-Technik.

strat verbleibt dazu 3 - 5 Minuten in der stark oxidierenden Lösung. Anschließend wird das Substrat gründlich mit destilliertem Wasser gespült, und sofort in einer Lösung von 1 mM Nonanthiol in Ethanol eingebracht. Dort verbleibt es bis zum Einsatz im Experiment, mindestens aber 12 Stunden. In dieser Zeit baut sich die Selbstanordnende Monolage Nonanthiol auf der Goldoberfläche auf. Diese Nonanthiol-Schicht ist stark hydrophob, und schützt das bedeckte Gold somit vor einer wässrigen Goldätzlösung.

Bedampfung Vor der Bedampfung wird das präparierte Substrat in die Vakuumapparatur gelegt. Um eine vorzeitige Schädigung des Resists durch freie Ladungsträger zu verhindern, sind Ionisations -Vakuummessröhren auszuschalten. Auch sollte kein Cäsium-Dampf in der Apparatur vorhanden sein (Wenn nötig, Belüftung der Vakuumapparatur mit Sauerstoff.) Die Schwellendosis D_S für die Bedampfung (ausreichende Schädigung des Resists) liegt bei etwa 1 Cäsiumatom pro Nonanthiol-Molekül, was etwa $4, 8 \cdot 10^{14}$ Atomen pro cm² entspricht. Gute Ergebnisse werden ab 3 Cäsiumatomen pro Nonanthiol-Molekül erzielt $(1, 5 \cdot 10^{15}$ Atomen pro cm²).

Entwicklung Nach der Bedampfung mit Cäsium-Atomen wird das Substrat der Vakuumapparatur entnommen. Ein Anhauchen des Substrats macht belichtete Stellen durch feine Kondensatbildung sichtbar (die bedampften Stellen sind hydrophil). Das Substrat wird anschließend in einer Gold-Ätzlösung entwickelt. Die Chemische Zusammensetzung zeigt Tabelle B.1

Die Ätzlösung löst die Goldschicht bei Zimmertemperatur mit einer Rate von etwa 3 nm/min, die Si-Schicht wird jedoch nicht angegriffen. Bei dieser Ätzrate wird die ca. 30 nm dicke Goldschicht unter mit Cäsium bedampfte Stellen nach ungefähr 10 min entfernt. Unbeschädigte SAM's widerstehen der Ätzlösung dagegen länger als 30 min, so dass mit dieser

Name	Chem. Formel	Konzentration	Menge auf 100 ml H_2O
Kaliumhydroxid	КОН	1 M	5,61 g
Kaliumthiosulfat	$K_2S_2O_3$	0,1 M	3,94 g
Kaliumhexacyanoferrat(III)	$K_3 Fe(CN)_6$	0,01 M	330 mg
Kaliumhexacyanoferrat(IV)	$K_4 Fe(CN)_6$	0,001 M	37 mg

Tabelle B.1: Zusammensetzung der Ätzlösung

Methode eine permanente Strukturierung des Substrats erzielt wird. Eine Schematische Darstellung der Resist-Technik findet sich in Abbildung B.3.

Anhang C

PC-Programme

C.1 Das Programm "Atomoptik"

Das Programm "Atomoptik" (Abb. C.1) wurde zur Simulation der Wirkung atomoptischer Elemente auf Atomstrahlen in der Programmiersprache Delphi¹ geschrieben. Es kann mit Grafikunterstützung (Abb. C.1, Punkt 1) eine beliebige Anordnung von atomoptischen Elementen, wie z. B. magnetischen Multipolen, Blenden oder optischen Melassen, erstellt werden. Der Einfluss dieser Anordnung auf thermische Atomstrahlen wird durch Berechnung einer großen Zahl atomarer Trajektorien simuliert. Die Anfangsparameter dieser Trajektorien entsprechen der bekannten Orts- und Geschwindigkeitsverteilung realer Atomstrahlen. Dabei kann im Prinzip eine unbegrenzte Zahl an Atomtrajektorien berechnet werden, die einzige Einschränkung ist die linear mit der Zahl der berechneten Trajektorien steigende Rechenzeit.

Die Bahnen der Trajektorien werden durch schrittweise numerische Integration der Impulsänderung der Atome auf Grund der beteiligten Magnet- oder Lichtfelder berechnet. Die Impulsänderung wird klassisch mit $\Delta \vec{p} = \int_{t}^{t+\Delta t} \vec{F} dt$ hergeleitet. Ein ebener magnetischer Multipol kann mathematisch als "dünner" Multipol oder als ausgedehnter Multipol dargestellt werden. Des Weiteren können Aberrationen wie parasitäre höhere Multipolordnungen, Variationen des Magnetfeldes in z-Richtung und/oder räumliche Fehlstellungen des Multipols wie Verkippung oder Verschiebung gegen die Strahlachse simuliert werden.

Ausgewählte Trajektorien werden direkt in einem Diagramm dargestellt, so dass der atomare Strahlengang intuitiv verständlich wird. Weiter werden die Trajektorien in einer 3D-Matrix mit einer durch den verfügbaren RAM-Speicher begrenzten Auflösung aufgezeichnet. Jeder Matrixeintrag M_{klm} entspricht dabei einer rechteckigen Fläche A_{kl} innerhalb einer Ebene E_m senkrecht zum Atomstrahl. Passiert eine Atomtrajektorie die Fläche A_kl in der Ebene E_m , so wird der Eintrag M_{klm} der Matrix um eins erhöht. Auf diese Art und Weise entsteht ein gerastertes 3-dimensionales (Fluss-) Dichteprofil über den gesamten Atomstrahl.

Dargestellt wird die Dichte bzw. Flussdichte mit Farbkontur-Diagrammen von 2D-Schnitten durch die 3D-Matrix. Dabei können die Schnitte sowohl senkrechte (Abb. C.1, Punkt 3) als auch parallel zur Strahlpropagationsrichtung liegen (Abb. C.1, Punkt 5). Auch

 $^{^1\}mathrm{Auf}$ "Pascal" basierte, objektorientierte Programmiersprache für Windows und Linux, entwickelt von der Firma Borland



Abbildung C.1: Das Programm "Atomoptik" zur 3D-Simulation des Einflusses von atomoptischen Elementen auf thermische Atomstrahlen. 1: Grafische Darstellung der atomoptischen Anordnung. 2: exemplarische Darstellung ausgewählter Atomtrajektorien. 3: Darstellung der Atomdichte in Strahlrichtung (helle Bereiche $\hat{=}$ hohen Dichten. 4: Schnitt durch 3 in Strahlrichtung. 5: Darstellung der Atomdichte senkrecht zum Atomstrahl. 6. Schnitt durch 5.

Diagrammdarstellungen von 1D-Schnitten sind möglich (Abb. C.1, Punkt 4, 6).

Ferner ist das Programm in der Lage, mehrere verschiedene Simulationen nacheinander selbstständig zu bearbeiten. Damit kann ein ganzes Paket der z. T. sehr zeitintensiven Simulationen ohne weiteren Eingriff des Benutzers über mehrere Tage ablaufen.

Erweiterungsmöglichkeit durch modulare Programmierung Intern besteht das in Delphi entwickelte Programm aus 3 einzelnen Modulen, die programmiertechnisch bis auf definierte Schnittstellen strikt voneinander getrennt sind (Abb. C.2). Des Weiteren sind die atomoptischen Elemente bzw. deren Mathematische Modellierung zur Berechnung der Trajektorien objektorientiert eingebunden, d. h. jedes atomoptische Element entspricht einem gekapselten Programmobjekt.

Durch die damit erreichte Übersichtlichkeit des Programmcodes sinkt zum einen dessen Fehleranfälligkeit, zum anderen ist eine einfache und effiziente Erweiterung des Programms sichergestellt. So können weitere, beliebige atomoptische Elemente dem Programm hinzugefügt werden, ohne dass Programmierkenntnisse über die anspruchsvolle Visualisierung der Ergebnisse oder über die Steuerung des Programms erforderlich sind. Zur Erleichterung ist den Quelldateien eine kurze Anleitung über die Erweiterung bzw. Veränderung von Atomoptischen Elementen beigefügt.



Abbildung C.2: Schema über den internen Aufbau des Programms "Atomoptik". Das Programm ist programmiertechnisch in 3 Module (Rechtecke) eingeteilt, die strikt voneinander getrennt sind. Definierte Schnittstellen (Pfeile) sichern die Kommunikation zwischen den Modulen.

C.2 Das Programm "Lichtmaske"

Mit dem Programm "Lichtmaske" werden atomare Flussdichten beim Durchgang eines Atomstrahls durch eine Lichtmaske simuliert (Abb. C.3). Die Struktur der Lichtmaske wird dabei durch Angabe von Intensität, Einfallswinkel und Phase der die Maske konstituierenden Laserstrahlen definiert, deren Anzahl im Prinzip unbegrenzt ist. Simuliert werden kann sowohl eine Dauerstrich-Lichtmaske, als auch eine aus einem oder mehreren gepulsten Lichtfeldern bestehende Lichtmaske. Die Intensitätsverteilung der Lichtmaske wird als Farbkontur-Diagramm dargestellt. In der Darstellung kann ein beliebiger Bereich ausgewählt werden, auf dem die atomare Flussdichteverteilung berechnet wird.



Abbildung C.3: Das Programm "Lichtmaske" zur 3D-Simulation der atomaren Flussdichteverteilung in Lichtmasken. 1: Eingabe der Parameter. 2: Farbkontur-Darstellung der Lichtmasken-Intensitätsverteilung.
3: Profil der Lichtmaske oder der Flussdichte. 4: Farbkontur-Darstellung der atomaren Flussdichte.

Die Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Atomstrahl ist wählbar. Insbesondere besteht die Möglichkeit zur Simulation eines thermischen Atomstrahls mit den Parametern des in den vorgestellten Experimenten verwendeten Atomstrahls. Dabei kann eine unbegrenzte Zahl an Atomtrajektorien simuliert werden, die einzige Einschränkung ist die linear mit der Zahl der berechneten Trajektorien steigende Rechenzeit. Die Trajektorien werden wie im Programm "Atomoptik" (Anh. C.1) in einer 3D-Matrix mit einer durch den verfügbaren RAM-Speicher begrenzten Auflösung aufgezeichnet. Auf diese Art und Weise entsteht ein gerastertes 3-dimensionales (Fluss-) Dichteprofil über dem betrachteten Gebiet. Dargestellt wird die Dichte bzw. Flussdichte mit Farbkontur-Diagrammen von 2D-Schnitten durch die 3D-Matrix.

Erweiterungsmöglichkeit durch Modulare Programmierung Wie auch das Programm "Atomoptik" ist das Programm "Lichtmaske" modular programmiert. Daher kann das Programm ohne Kenntnisse über die Visualisierung der Ergebnisse oder über die Programmsteuerung erweitert werden.

Literaturverzeichnis

- R. ALFERNESS, S. K. CASE, Coupling in doubly-exposed thick holographic gratings, J. Opt. Soc. Am. 65, 730 (1975)
- [2] J. J. AMODEI, D. L. STAEBLER, Holographic pattern fixing in electro-optic crystals, Appl. Phys. Lett. 18, 540 (1971).
- [3] W. R. ANDERSON, C. C. BRADLEY, J. J. MCCLELLAND, R. J. CELOTTA, Minimizing feature width in atom optically fabricated Chromium nanostructures, Phys. Rev. A 59, 2476 (1999)
- [4] A. ASHKIN, G. D. BOYD, J. M. DZIEDZID, R. G. SMITH, A. A. BALLMAN, J. J. LEVIN-STEIN, K. NASSAU, Appl. Phys. Lett. 9, 72 (1966)
- [5] A. AVILA, V. GIORDANO, E. D. CLERCQ, G. THEOBALD, P. CHEREZ, State Selection in a Cesium Beam by Laser Diode Optical Pumping Phys. Rev. A 36, 3719 (1987)
- [6] V. I. BALYKIN, V. S. LETHOKHOV, V. I. MUSHIN, JETP Lett. 29, 560 (1979)
- [7] C. D. BAIN, E. B. TROUGHTON, Y.-T. TAO, J. EVALL, G. M. WHITESIDES, R. G. NUZZO, Formation of Monolayer Films by the Spontaneous Assembly of Organic Thiols from Solution onto Gold, J. Am. Chem. Soc. 111, 321 (1989)
- [8] G. BERENDT, E. WEIMAR, Mathematik für Physiker, Band 2, VCH Verlagsgesellschaft (1990)
- [9] K. K. BERGGREN, A. BARD, J. L. WILBUR, J. D. GILLASPY, A. G. HELG, J. J. MC-CLELLAND, S. L. ROLSTON, W. D. PHILLIPS, M. PRENTISS, G. M. WHITESIDES, *Microli*thography by Using Neutral Metastable Atoms and Self-Assembled Monolayers, Science 269, 1255 (1995)
- [10] K. K. BERGGREN, R. YOUNKIN, E. CHEUNG, M. PRENTISS, A. BLACK, G. M. WHITE-SIDES, D. C. RALPH, C. T. BLACK, M. TINKHAM, Demonstration of a nanolithographic system using a self-assembled monolayer resist for neutral atomic cesium, Adv. Mat. 9, 52 (1997)
- [11] R. BERTRAM, H. MERIMECHE, M. MÜTZEL, H. METCALF, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, Magnetic whispering-gallery mirror for atoms, Phys. Rev. A 63, 053405 (2001)
- [12] G. BREIT, I. I. RABI, Measurement of Nuclear Spin, Phys. Rev. 38, 2082 (1931)
- [13] W. L. BRAGG, A new type of x-ray microscope, Nature 143, 678
- [14] W. L. BRAGG, the x-ray microscope, Nature 149, 470
- [15] B. BREZGER, TH. SCHULZE, P. O. SCHMIDT, R. MERTENS, T. PFAU, J. MLYNEK, Polarization gradient light masks in atom lithography, Europhys. Lett. 46, 148 (1999)
- [16] S. BREER, K. BUSE, Wavelength Demultiplexing with Volume Phase Holograms in Photorefractive Lithium Niobate, Appl. Phys. B 66, 339 (1998)
- [17] S. BREER, K. BUSE, K. PEITHMANN, H. VOGT, E. KRÄTZIG, stabilized Recording and Thermal Fixing of Holograms in Photorefractive Lithium Niobate Crystals, Rev. Sci. Instr. 69, 1591 (1998)

- [18] I. N. BRONSTEIN, K. A. SEMENDJAJEW, Taschenbuch der Mathematik, Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig
- [19] J. BRUGGER, J. W. BERENSCHOT, S. KUIPER, W. NIJDAM, B. OTTER, M ELVENSPOEK, Resistless patterning of sub-micron structures by evaporating through nanostencils, Microelectr. Eng. 53, 403 (2000)
- [20] C. BURSTEDDE, Computing light masks in neutral Atom Lithography, Zur Publikation eingereichtes Manuskript
- [21] K. BUSE, S. BREER, K. PEITHMANN, S. KAPPHAN, M. GAO, E. KRÄTZIG, Origin of thermal fixing in photorefractive lithium niobate crystals, Phys. Rev. B 56, 1225 (1997).
- [22] K. BUSE, A. ADIBI, D. PSALTIS, Non-volatile holographic storage in doubly doped lithiumniobate crystals, Nature 393, 665 (1998)
- [23] J. M. CALVERT, Lithographic patterning of self-assembled films, J. Vac. Sci. Technol. B 11, 2155 (1993)
- [24] S. K. CASE, Coupled wave theory for multiply exposed thick holographic gratings, J. Opt. Soc. Am. 65, 724 (1975)
- [25] F. S. CHEN, J. T. LAMACCHIA, D. B. FRASER, Holographic storage in lithium niobate, Appl. Phys. Lett. 13, 223 (1968)
- [26] C. COHEN TANNOUDJI, frontiers in strong resonant fields, Herausgeber: R. Balian, S. Haroche, S. Liberman, North Holland (1977), p. 1
- [27] C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC, G. GRYNBERG, Atom-Photon Interactions, John Wiley & Sons, Inc., New York
- [28] R. J. COLLIER, C. B. BURCKHARD, L. H. LIN, Optical Holography, Academic Press, New York, London (1971)
- [29] J. DALIBARD, C. COHEN-TANNOUDJI, Dressed-atom approach to atomic motion in laser light: the dipole force revisited, J. Opt. Soc. Am. B 2, 1707 (1985)
- [30] YU. N. DENISYUK, Photographic reconstruction of the optical properties of an object in its own scattered radiation field, Soviet Physics - Doklady 7, 543 (1962)
- [31] R. W. DITCHBURN, J. C. GILMOR, The Vapor Pressures of Monatomic Vapors, Rev. Mod. Phys. 13, 310 (1941)
- [32] U. DRODOFSKY, J. STUHLER, B. BREZGER, T. SCHULZE, M. DREWSEN, T. PFAU, J. MLYNEK, Nanometerscale lithography with chromium atoms using light forces, Microelectronic Engineering 35, 285 (1997)
- [33] U. DRODOFSKY, J. STUHLER, TH. SCHULZE, M. DREWSEN, B. BREZGER, T. PFAU, J. MLYNEK, Hexagonal nanostructures generated by light masks for neutral atoms, Appl. Phys. B 65, 755 (1997)
- [34] P. ENGELS, S. SALEWSKI, H. LEVSEN, K. SENGSTOCK, W. ERTMER, Atom lithography with a cold, metastable neon beam, Appl. Phys. B 69, 407 (1999)
- [35] W. ERTMER, R. BLATT, J. L. HALL, M. ZHU, Laser Manipulation of Atomic Beam Velocities: Demonstration of Stopped Atoms and Velocity Reversal, Phys. Rev. Lett. 54, 996 (1985)
- [36] Femtochrome Research Inc., FR-103 Autocorrelator Instruction Manual, Berkeley, Ca. (1991)
- [37] H. FRIEDBURG, W. PAUL, Optische Abbildungen mit neutralen Atomen, Die Naturwissenschaften 38, 159 (1951)
- [38] H. FRIEDBURG, Optische Abbildung mit neutralen Atomen, Zeitschrift für Physik 130, 493 (1951)

- [39] O. FRISCH, Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrückstoßes, Z. Physik 86, 42
- [40] D. GARBOR, A new microscopic Principle, Nature 161, 777 (1948)
- [41] P. M. GARCIA, K. BUSE, D. KIP, J. FREJLICH, Self-Stabilized Holographic Recording in LiNbO₃:Fe Crystals, Opt. Commun. 117, 235 (1995)
- [42] W. GERLACH, O. STERN, Der experimentelle Nachweis des magnetischen Moments des Silberatoms, Zeitschrift für Physik 8, 110 (1921)
- [43] F. GIRES, P. TOURNOIS, Interféromètre utilisable pour la compression lumineuses modulées en fréquence, Compt. Rend. 258, 6112 (1964)
- [44] A. M. GLASS, D. VON DER LINDE, T. J. NEGRAN, Highvoltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO₃, Appl. Phys. Lett. 25, 233 (1974).
- [45] A. GOEPFERT, F. LISON, R. SCHÜTZE, R. WYNANDS, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, Efficient magnetic guiding and deflection of atomic beams with moderate velocities, Appl. Phys. B 69, 217 (1999)
- [46] V. GOMER, O. HARMS, D. HAUBRICH, H. SCHADWINKEL, F. STRAUCH B. UEBERHOLZ, S. AUS DER WIESCHE, D. MESCHEDE, Magnetostatic traps for charged and neutral particles, Hyperfine Interactions 109, 281 (1997)
- [47] J. P. GORDON, A. ASHKIN, Motion of atoms in a radiation trap, Phys. Rev. A 21, 1606 (1980)
- [48] R. GUPTA, J.J. MCCLELLAND, Z.J. JABBOUR, AND R.J. CELOTTA, Nanofabrication of a two-dimensional array using laser focused atomic deposition, Appl. Phys. Lett. 67, 1378 (1995)
- [49] R. GUPTA, J.J. MCCLELLAND, P. MARTE, R.J. CELOTTA, Raman-Induced Avoided Crossings in Adiabatic Optical Potentials: Observation of λ/8 Spatial Frequency in the Distribution of Atoms, Phys. Rev. Lett. 76, 4689 (1996)
- [50] K. HALBACH, Design of Permanent Mulitpole Magnets with Rare Earth Cobalt Magnets, NIM 169, 1 (1980)
- [51] K. HALBACH, Physical and Optical Properties of Rare Earth Cobalt Magnets, NIM 187, 109 (1981)
- [52] K. HALBACH, Understanding modern magnets through conformal mapping, Int. J. Mod. Phys. B 4, 1201 (1990)
- [53] T. HÄNSCH, H. SCHAWLOW, Cooling of gases by laser radiation, Opt. Comm. 13, 68 (1975)
- [54] P. HARIHARAN, Optical Holography, Cambridge: Cambridge University Press, (1987)
- [55] M. D. HOOGERLAND, J. P. J. DRIESSEN, E. J. D. VRENDENBERGT, H. J. L. MEGENS, M. P. SCHUWER, H. C. W. BEIJERINCK, K. A. H. VAN LEEUWEN, Bright thermal atomicbeams by laser cooling - A 1400-fold gain in beam flux, Appl. Phys. B, 62, 323 (1996)
- [56] W. G. KAENDERS, F. LISON, A. RICHTER, R. WYNANDS, D. MESCHEDE, Imaging with an atomic beam, Nature 375, 214 (1995)
- [57] W. G. KAENDERS, F. LISON, I. MÜLLER, A. RICHTER, R. WYNANDS, D. MESCHEDE, Refractive components for magnetic atom optics, Phys. Rev. A 54, 5067 (1996)
- [58] W. G. KAENDERS, Magnetische Atomoptik mit laserpräparierten neutralen Atomen, Dissertation, Universität Hannover (1995)
- [59] R. KOWARSCHIK, Diffraction efficiency of sequentially stored gratings in reflection geometry, Opt. & Quantum Electronics 10, 171 (1978)
- [60] E. KRÄTZIG, R. ORLOWSKI, Ferroelectrics 27, 241 (1980)

- [61] M. KREIS, F. LISON, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, S. NOWAK, T. PFAU, J. MLYNEK, Pattern generation with cesium atomic beams at nanometer scales, Appl. Phys. B 63, 649 (1996)
- [62] M. KREIS, Lithographie mit Cäsiumatomen, Diplomarbeit in Physik, Institut f
 ür Angewandte Physik, Universität Bonn (1997)
- [63] H. KURZ, E. KRÄTZIG, W. KEUNE, H. ENGELMANN, U. GONSER, B. DISCHLER, A. RÄU-BER, Photorefractive Centers in LiNbO₃ Studied by Optical, Appl. Phys. 12, 355 (1977)
- [64] E. N. LEITH, J. UPATNIEKS, Reconstructed wavefronts and communication theory, J. Opt. Soc. Am. 52, 1123 (1962)
- [65] E. N. LEITH, J. UPATNIEKS, Wavefront reconstruction with diffused illumination and threedimensional objects, J. Opt. Soc. Am. 54, 1295 (1964)
- [66] P. D. LETT, R. N. WATTS, C. E. TANNER, S. L. ROLSTON, W. D. PHILLIPS, C. I. WESTBROOK, Optical Molasses, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2084 (1989)
- [67] V. LEYVA, G. A. RAKULJIC, B. O'CONNOR, Narrow bandwidth volume holographic optical filter operating at the Kr transition at 1547.82 nm, Appl. Phys. Lett. **65**, 1079 (1994)
- [68] F. LISON, H.-J. ADAMS, D. HAUBRICH, M. KREIS, S. NOWAK, D. MESCHEDE, Nanoscale atomic lithography with a cesium atomic beam, Appl. Phys. B 65, 419 (1997)
- [69] F. LISON, P. SCHUH, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, High-brilliance Zeeman-slowed cesium atomic beam, Phys. Rev. A 61, 013405 (1999)
- [70] F. LISON, D. HAUBRICH, P. SCHUH, D. MESCHEDE, Reflection of a slow cesium atomic beam from a naturally magnetized Nd-Fe-B surface, Appl. Phys. B 69, 501 (1999)
- [71] R. LÜTHI, R. R. SCHLITTLER, J. BRUGGER, P. VETTIGER, M. E. WELLAND, J. K. GIM-ZEWSKI, parallel nanodevice fabrication using a combination of shadow mask and scanning probe methods, Appl. Phys. Lett. 75, 1314 (1999)
- [72] Fa. Magnetfabrik Bonn GmbH, Dorotheenstraße 215, D-53119 Bonn, Datenblätter (2003)
- [73] E. MAJORANA, Atomi Orientati in Campo Magnetico Variabile, Nuova Cimento 9, 43 (1932)
- [74] J. J. MCCLELLAND, R. E. SCHOLTEN, E. C. PALM, R. J. CELOTTA, Laser-Focused Atomic Deposition, Science 262, 877 (1993)
- [75] J. J. MCCLELLAND, Atom-optical properties of a standing-wave light field, J. Opt. Soc. Am. B 12, 1791 (1995)
- [76] R. W. MCGOWAN, D. M. GILTNER, S. A. LEE, Light force cooling, focusing and nanometerscale deposition of aluminium atoms, Opt. Lett. 20, 2535 (1995)
- [77] J. H. MCLEOD, The Axicon: A New Type of Optical Element, J. Opt. Soc. Am. 44, 592 (1954)
- [78] J. H. MCLEOD, Axikons and Their Uses, J. Opt. Soc. Am. 50, 166 (1960)
- [79] I. MCMICHAEL, W. CHRISTIAN, D. PLETCHER, T. Y. CHANG, J. H. HONG, Compact holographic storage demonstrator with rapid access, Appl. Opt. 35, 2375 (1996)
- [80] D. MESCHEDE, Optik, Licht und Laser, B. G. Teubner (1999)
- [81] D. MESCHEDE, H. METCALF, Atomic nanofabrication: atomic deposition and lithography by laser and magnetic forces, J. Phys. D 36, R17-R38 (2003)
- [82] H. METCALF, W. PHILLIPS, J. PRODAN, Focusing of Slow Atomic Beams, Bull. Am. Phys. Soc. 29, 795 (1994)
- [83] H. METCALF, P. VAN DER STRAATEN, Laser Cooling and Trapping, Springer, Berlin Heidelberg - New York (1999)

- [84] F. H. MOK, Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate, Opt. Lett. 18, 915 (1993)
- [85] Fa. Magnetfabrik Schramberg GmbH & Co. KG, Max-Planck-Str. 15, D-78713 Schramberg-Sulgen, Datenblätter (2003)
- [86] R. MÜLLER, M. T. SANTOS, L. ARIZMENDI, J. M. CABRERA, A narrow band interference filter with photorefractive LiNbO 3, J. Phys. D 27, 241 (1994)
- [87] M. MÜLLER, M. MÜTZEL, D. HAUBRICH, U. RASBACH, D. MESCHEDE, C. O'DWYER, G. GAY, B. VIARIS DE LESEGNO, J. WEINER, The Nanopencil: Serial Writing in the Sub-Micrometer Domain, in Vorbereitung (2004)
- [88] M. MÜTZEL, Atomlithographie mit einer gepulsten optischen Stehwelle, Diplomarbeit in Physik, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn (1999)
- [89] M. MÜTZEL, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, Nanoscale focusing of atoms with a pulsed standing wave, Appl. Phys. B 70, 689 (2000)
- [90] M. MÜTZEL, S. TANDLER, D. HAUBRICH, D. MESCHEDE, K. PEITHMANN, M. FLASPÖH-LER, K. BUSE, Atom Lithography with a Holographic Light Mask, Phys. Rev. Lett. 88, 083601 (2002)
- [91] M. MÜTZEL, U. RASBACH, D. MESCHEDE, C. BURSTEDDE, J. BRAUN, A. KUNOTH, K. PEITHMANN, K. BUSE, Atomic nanofabrication with complex light fields, Appl. Phys. B 77, 1 (2003)
- [92] S. NAKAMURA, The Roles of Structural Imperfections in InGaN-Based Blue Light-Emitting Diodes and Laser Diodes, Science 281, 956 (1998)
- [93] I. NEE, O. BEYER, M. MÜLLER, K. BUSE, Multi-Channel Wavelength-Division-Multiplexing with Thermally-Fixed Bragg Gratings in Photorefractive Lithium-Niobate Crystals, J. Opt. Soc. Am. B 20, 1593 (2003)
- [94] S. NOWAK, T. PFAU, J. MLYNEK, Nanolithography with Metastable Helium, Appl. Phys. B 63, 203 (1996)
- [95] E. OESTERSCHULZE, W. SCHOLZ, C. MIHALCEA, D. ALBERT, B. SOBISCH, W. KULISCH, Fabrication of Small Diamond Tips for Scanning Probe Microscopy Application, Appl. Phys. Lett. 70, 435 (1996)
- [96] E. OESTERSCHULZE, Recent Developments of Probes for Scanning Probe Microscopy, in Advances in Imaging and Electron Physics 118, 129-206 Edt. P. H. Hawkes, Academic Press (2001)
- [97] K. PEITHMANN, A. WIEBROCK, K. BUSE, Photorefractive properties of highly-doped lithium niobate crystals in the visible and near-infrared, Appl. Phys. B 68, 777 (1999)
- [98] W. D. PHILLIPS, H. METCALF, Laser Deceleration of an Atomic Beam, Phys. Rev. Lett. 54 992 (1982)
- [99] M. D. PORTER, T. B. BRIGHT, D. L. ALLARA, C. E. D. CHIDSEY, Spontaneously Organized Molecular Assemblies: 4. Structural Characterization of n-Alkyl Thiole Monolayers on Gold by Optical Ellipsometry, Infrared Spectroscopy and Electrochemistry, J. Am. Chem. Soc. 109, 3559 (1987)
- [100] J. V. PRODAN, W. D. PHILLIPS, H. METCALF, Laser Production of a Very Slow Monoenergetic Atomic Beam, Phys. Rev. Lett. 49, 1149 (1982)
- [101] D. PSALTIS, F. MOK, Holographic memories, Sci. Am. 273, 70 (1995)
- [102] U. Rasbach, Magneto-optische Effekte und Messung der elektrischen Tensorpolarisierbarkeit an einem Cäsium-Atomstrahl, Dissertation, Universität Freiburg (Schweiz) (2001)

- [103] S. J. REHSE, R. W. MCGOWAN, S. A. LEE, Optical manipulation of group III Atoms, Appl. Phys. B 70, 657 (2000)
- [104] P. ST. J. RUSSEL, Optical volume holography, Physics Reports 71, 209 (1981)
- [105] P. A. M. DOS SANTOS, L. CESCATO, J. FREJLICH, Interference-term real-time measurement for self-stabilized two-wave mixing in photorefractive crystals, Opt. Lett. 13, 1014 (1988)
- [106] K. SAKODA, Optical Properties of Photonic Crystals Springer-Verlag, Berlin (2001)
- [107] O. SCHMIDT, K.-M. KNAAK, R. WYNANDS, D. MESCHEDE, Cesium saturation spectroscopy revisited: How to reverse peaks and observe narrow resonances, Appl. Phys. B 59, 167 (1994)
- [108] T. SCHULZE, T. MÜTHER, D. JÜRGENS, B. BREZGER, M. OBERTHALER, T. PFAU, J. MLYNEK, Structured doping with light forces, Appl. Phys. Lett. 78, 1781 (2001)
- [109] L. SOLYMAR, D. J. COOKE, Volume Holography and Volume Gratings, Academic Press, New York (1981)
- [110] O. STERN, Ein Weg zur Experimentellen Pr
 üfung der Richtungsquantelung im Magnetfeld, Zeitschrift f
 ür Physik 7, 249 (1921)
- [111] R. STÜTZLE, D. JÜRGENS, A. HABENICHT, AND M. K. OBERTHALER, Dissipative light masks for atomic nanofabrication, J. Opt B 5, 164 (2003)
- [112] R. D. SWENUMSON, U. EVEN, Continuous flow reflux oven as the source of an effusive molecular Cs beam, Rev. Sci. Instrum. 52, 559 (1981)
- [113] S. TANDLER, Atomlithographie mit einer holographisch erzeugten Lichtmaske, Diplomarbeit in Physik, Institut für Angewandte Physik, Universität Bonn (2001)
- [114] G. TIMP, R. E. BEHRINGER, D. M. TENNANT, J. E. CUNNINGHAM, M. PRENTISS, K. K. BERGGREN, Using Light as a Mask for Submicron, Neutral-Atom Lithography, Phys. Rev. Lett. 69, 1636 (1992)
- [115] B. UEBERHOLZ, Kalte Stöße in einer magneto-optischen Falle mit hohem Magnetfeldgradienten, Dissertation, Universität Bonn (2001)
- [116] R. UNANYAN, S. GUÉRIN, B. W. SHORE AND K. BERGMANN, Efficient population transfer by delayed pulses despite coupling ambiguity, Eur. Phys. J. D 8, 443-449 (2000)
- [117] R. N. WATTS, C. E. WIEMAN, Manipulating atomic velocities using diode lasers, Opt. Lett. 11, 291 (1986)
- [118] C. E. WIEMAN, T. W. HÄNSCH, Doppler-Free Laser Polarization Spectroscopy, Phys. Rev. Lett. 36, 1170 (1976)
- [119] C. E. WIEMAN, L. HOLBERG, Using diode lasers for atom optics, Rev. Sci. Instrum. 61, 1 (1991)
- [120] D. WINELAND, H. DEHMELT, Proposed $10^{14} \Delta f < f$ Laser Fluorescence Spectroscopy on Tl+ Mono-Ion Oscillator III (side band cooling), Bull. Am. Phys. Soc. **20**, 637 (1975)
- [121] D. WINELAND, R. DRULLINGER, F. WALLS, Radiation-pressure cooling of bound resonant absorbers, Phys. Rev. Lett. 40, 1639 (1978)
- [122] M. WOLFKE, Über die Möglichkeit der optischen Abbildung von Molekulargittern., Physikalische Zeitschrift 21, 495 (1920)
- [123] Fa. Vacuumschmelze GmbH & Co. KG, Grüner Weg 37, D-63450 Hanau, Datenblätter (2003)