
NICHTLINEARE ANREGUNGEN UND LADUNGS-
TRANSPORT IN LITHIUMNIOBATKRISTALLEN
UNTERSUCHT MIT
FEMTOSEKUNDEN-LICHTGITTERN

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

Der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Karl Dominik Maxein

aus

Neuwied-Gladbach

Bonn 2009

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

1. Gutachter: Prof. Dr. Karsten Buse
2. Gutachter: Prof. Dr. Manfred Fiebig

Tag der Abgabe: 15.12.2009

Tag der Annahme: 22.12.2009

Tag der Promotion: 22.01.2010

Erscheinungsjahr: 2010

INHALTSVERZEICHNIS

1	Einleitung	9
2	Grundlagen	13
2.1	Eigenschaften von Lithiumniobat-Kristallen	13
2.2	Absorptionsprozesse in LiNbO_3	14
2.2.1	Lineare Absorption	15
2.2.2	Zwei-Photonen-Absorption	16
2.2.3	Lichtinduzierte Absorption	16
2.3	Optischer Kerr-Effekt	16
2.4	Photorefraktion in Lithiumniobat	17
2.4.1	Pockels-Effekt	17
2.4.2	Ein-Zentren-Modell	17
2.4.3	Polaronen und das Zwei-Zentren-Modell	18
2.5	Elementare Volumen hologramme	19
2.5.1	Schreiben und Auslesen von Volumen hologrammen	19
2.5.2	Holographie mit Femtosekunden-Lichtpulsen	22
2.6	Lichtinduzierte Streuung	23
3	Ausstattung und Messmethoden	25
3.1	Lichtquellen	25
3.2	Puls- und Strahlcharakterisierung	26
3.2.1	Leistung und Energie	26

3.2.2	Strahldurchmesser und Strahlprofil	27
3.2.3	Pulsdauer und Spitzenintensität	28
3.3	„Pump-Probe“-Verfahren	29
3.4	Kristalle und ihre Charakterisierung	30
4	Versuchsanordnungen und Ergebnisse	33
4.1	Transiente Holographie	33
4.1.1	Aufbau	34
4.1.2	Ergebnisse 1K-Gitter	35
4.1.3	Ergebnisse der 2K-Holographie	36
4.2	Photorefraktive Gitter	39
4.2.1	Aufbau	39
4.2.2	Stabilisierung des Aufbaus	41
4.2.3	Justage	44
4.2.4	Ablauf der Messung	46
4.2.5	Messungen mit unbehandelten Kristallen	46
4.2.6	Messungen mit oxidierten Kristallen	50
4.2.7	Fehlerbetrachtung	52
4.3	Lichtinduzierte Streuung	54
4.3.1	Aufbau	54
4.3.2	Ablauf der Messung	55
4.3.3	Ergebnisse	55
5	Diskussion	65
5.1	Trennung transienter Effekte: 2K-Holographie	65
5.1.1	Plateauhöhe im Vergleich zur 1K-Messung	65
5.1.2	Intensitätsabhängigkeit des Signals	67
5.1.3	Anstieg des 2K-Signals	67
5.1.4	Folgerungen für die Ladungsanregung	69
5.2	Photorefraktion mit Femtosekundenpulsen	71
5.2.1	Breite von Interferenzstreifen und photorefraktivem Gitter	71

5.2.2	Ladungstransportmodell	74
5.2.3	Einfluss der lichtinduzierten Streuung	83
5.3	Holographische Streuung von fs-Pulsen	85
5.3.1	Intensitätsabhängigkeit und Sensitivität	85
5.3.2	Ursache der z -Flächen-Streuung	86
5.3.3	Kohärenz und Streurichtung	86
5.3.4	Modellierung der Winkelabhängigkeit	87
5.3.5	Abhängigkeit vom Fe^{2+} -Gehalt	89
5.4	Übersicht über die Prozesse auf verschiedenen Zeitskalen	91
6	Praxisrelevanz der Ergebnisse	93
7	Zusammenfassung	95
	Verzeichnis der verwendeten Symbole	97
	Literaturverzeichnis	102
	Liste eigener Veröffentlichungen	111

KAPITEL 1

EINLEITUNG

Weil du mich gesehen hast, glaubst du. [1]

Das Sehen ist wohl der Sinneseindruck, der uns Menschen die größte Menge an Informationen über unsere Umgebung verschafft. Bildgebende Verfahren rücken die Welt außerhalb unseres direkten Erfahrungsbereichs in unser Blickfeld und prägen so unser Welt-Bild mit. Von Skizzen der Entdecker über die Fotografie und das Kino bis schließlich zum Fernseher hat sich die Darstellungstechnik immer weiter entwickelt. Heutzutage werden die Bildschirme bei steigender Auflösung immer blickfüllender, und LCD-Projektoren (vom engl. *liquid crystal display*) sorgen für ein regelrechtes Heimkino-Erlebnis. Mit Laserprojektoren wird der Seheindruck brillanter, weil sie den wahrnehmbaren Farbraum besser ausfüllen als andere Darstellungstechniken [2]. Dabei werden die Geräte immer kompakter. Besonders aktuell sind momentan batteriegetriebene Laserprojektoren im Westentaschenformat, genannt *Pikoprojektoren* [3]. Dadurch wird es beispielsweise möglich, dem Kunden durch eine spontane Präsentation die überzeugenden Fakten vor Augen zu führen und diesen damit überzeugen zu können.

Wegen der begrenzten Energiereserven spielt bei solchen Pikoprojektoren die Effizienz eine besonders große Rolle. Infrarot, Rot und Blau lassen sich inzwischen ökonomisch direkt mit Halbleiterlasern erzeugen. Grün wird dagegen durch Frequenzverdopplung mit möglichst hohem Wirkungsgrad aus infrarotem Licht gewonnen. Ein Kristall, der hierzu eingesetzt wird, ist *Lithiumniobat* (LiNbO_3) [4].

Der Pikoprojektor ist nur eines der zahlreichen Beispiele für die Anwendung von LiNbO_3 in der nichtlinearen Optik und Photonik [5], denn das Material bietet eine Reihe von wichtigen Vorteilen: Lithiumniobat ist mechanisch und thermisch robust, unempfindlich gegen Feuchtigkeit, lässt sich gut bearbeiten und ist preiswert verfügbar. Die Kristalle besitzen vergleichsweise große nichtlineare Koeffizienten [6], und ihre ferroelektrischen Domänen lassen sich strukturieren, was „Quasi-Phasenanpassung“ möglich macht. So findet Lithiumniobat in der nichtlinearen Optik vor

allem als periodisch gepoltes Lithiumniobat (kurz PPLN, vom englischen *periodically-poled lithium niobate*) breite Anwendung zur Frequenzverdopplung, in optisch-parametrischen Oszillatoren und sogar zur Erzeugung von Terahertzwellen [7–9].

Jedoch sind auch diese hervorragenden Kristalle nicht ohne Nachteile. So zeigt LiNbO_3 *lichtinduzierte Streuung*, und bei ausreichend hohen Intensitäten tritt zusätzlich der sogenannte *optische Schaden* auf. Beide Erscheinungen lassen sich auf den *photorefraktiven Effekt* zurückführen [10]: Inhomogene Beleuchtung regt Ladungsträger an, die sich im LiNbO_3 -Kristall umverteilen und Raumladungsfelder erzeugen. Über den Pockelseffekt entstehen schließlich Brechungsindexmuster, die Strahlprofil und Phasenanpassung zerstören.

Der photorefraktive Effekt ist in vielerlei Hinsicht interessant – er ermöglicht beispielsweise holographische Datenspeicherung, Signalverarbeitung und die Erzeugung photonischer und diffraktiver Komponenten mit Licht in LiNbO_3 [11] – doch zur Zeit steht sein störender Einfluss für nichtlineare Anwendungen im Vordergrund der Forschung. Verschiedene Ansätze, um ihn zu verringern, reichen vom Heizen [12] über die Dotierung mit Magnesium [13, 14] bis hin zur Entleerung der Eisenstörstellen durch thermoelektrische oder thermooptische Verfahren [15, 16]. Alle diese Methoden haben jedoch praktische Nachteile oder beseitigen die Störung nicht vollständig. Das gilt insbesondere, wenn LiNbO_3 mit kurzen Pulsen eingesetzt werden soll.

Im Bereich von Dauerstrichlicht bis hin zu Nanosekunden-Laserpulsen ist der photorefraktive Effekt gut untersucht [17], und mit Pikosekunden-Pulsen wurden bereits photorefraktive Strukturen durch zwei- oder mehrstufige Anregungsprozesse über intrinsische Störstellen erzeugt [18, 19]. Will man das Material aber mit Licht sehr hoher Energiedichte verwenden, wie sie in Femtosekunden-Laserpulsen vorkommt, gibt es noch viele unbeantwortete Fragen.

Mit Femtosekundenpulsen kann Lithiumniobat strukturiert werden; so geschriebene Wellenleiter basierten allerdings auf irreversiblen Materialveränderungen, nicht auf Photorefraktion [20]. Untersuchungen transienter Effekte in LiNbO_3 mit fs-Licht zeigen einen wesentlichen Einfluss von Kerr-Effekt und Zwei-Photonen-Absorption auf kurzen Zeitskalen [21–23]. Die nichtlineare Anregung zieht eine länger anhaltende lichtinduzierte Absorption nach sich [24–26]. Es ist auch möglich, mit fs-Pulsen der Wellenlänge $1,5\ \mu\text{m}$ photorefraktive Strukturen in eisendotiertem Lithiumniobat zu erzeugen [27], und die Holographie mit kurzen Pulsen wurde bereits für die sogenannte *spektrale Holographie* [28] und für die Erzeugung von Mikrohologrammen zur Datenspeicherung eingesetzt [29].

Eine genauere Untersuchung des photorefraktiven Effekts mit Femtosekundenpulsen steht aber noch aus und soll in dieser Arbeit erfolgen. Ziel ist es, ein besseres Verständnis der Photorefraktion auf den Zeitskalen von Sub-Pikosekunden bis Minuten zu erhalten. Dabei folgen wir den freien und angeregten Ladungsträgern von ihrer Erzeugung bis zum abschließenden Einfang. Teile der Ergebnisse wurden bereits in wissenschaftlichen Zeitschriften veröffentlicht [30–32].

Zunächst wird die Erzeugung *kleiner gebundener Polaronen* [33] durch Pulsbeleuchtung untersucht. Es ist bekannt, dass die zugehörige lichtinduzierte Absorption in weniger als 1 ps entsteht [22, 24]. Der Aufbau dieser Absorption war einer direkten Beobachtung bisher allerdings nicht zugänglich, da er von instantanen, linearen Effekten überlagert wurde. In dieser Arbeit wird mit der 2K-Holographie eine Methode vorgestellt, um die linearen Störprozesse von den quadratischen Aufbauprozessen der Polaronen zu trennen und die Polaronenbildung somit separat zu beobachten.

Das Niveau des kleinen gebundenen Polarons ist wie das Eisen ein photorefraktives Zentrum [34]. Wie beeinflusst seine schnelle Bevölkering mit Elektronen die photorefraktiven Eigenschaften des Kristalls? Dazu vergleichen wir auf der Zeitskala mehrerer Sekunden bis Stunden das Schreiben elementarer Hologramme mit Pulsen und Dauerstrichlicht miteinander. Zwischen diesen beiden Beleuchtungsarten zeigen sich dabei in der Tat deutliche Unterschiede, die uns Informationen über den Ladungstransport in LiNbO_3 geben.

Diese Messungen werden selbst vom photorefraktiven Effekt in der Form lichtinduzierter Streuung gestört. Dabei weist die Streuung für Pulse und Dauerstrichlicht zahlreiche Unterschiede auf, die in einer separaten Versuchsreihe genauer untersucht werden.

KAPITEL 2

GRUNDLAGEN

2.1 Eigenschaften von Lithiumniobat-Kristallen

Lithiumniobat-Kristalle (LiNbO_3) sind künstlich hergestellte, ferroelektrische Kristalle, die eine trigonale Kristallstruktur besitzen und zur Punktgruppe $3m$ gehören. In dieser Form weist LiNbO_3 große pyroelektrische, piezoelektrische, linear-elektrooptische und volumenphotovoltaische Effekte auf [6]. Zur Beschreibung dieser Kristalleigenschaften durch Tensoren definiert man ein kartesisches Koordinatensystem: Dabei ist die z -Richtung die c -Achse des Kristalls, um die er eine dreizählige Rotationssymmetrie aufweist. Die y -Achse liegt senkrecht dazu in einer der drei Spiegelebenen, folglich steht die x -Achse senkrecht auf dieser Spiegelebene.

Optisch ist LiNbO_3 einachsiger doppelbrechend, wobei die c -Achse auch die optische Achse ist. Parallel zur c -Achse polarisiertes Licht wird als „außerordentlich polarisiert“ (kurz e-pol vom engl. *extraordinary*) bezeichnet, senkrecht dazu spricht man von „ordentlich polarisiertem“ (o-pol) Licht. Der Brechungsindex für außerordentlich polarisiertes Licht ist dabei im sichtbaren und nahinfraroten Bereich stets kleiner als der Brechungsindex für ordentliche Polarisation [35].

Entspricht die Zusammensetzung des Kristalls genau der Summenformel LiNbO_3 , spricht man von *stöchiometrischem* Lithiumniobat. Dieses ist allerdings schwierig herzustellen, weshalb häufiger – und in dieser Arbeit ausschließlich – *kongruent schmelzendes* oder kurz *kongruentes* LiNbO_3 verwendet wird, welches gegenüber der Summenformel ein etwa 5-prozentiges Defizit an Lithium und 1% Überschuss an Niob enthält; die vakanten Lithiumplätze werden von Niob besetzt (*antisite defect*), was durch Nb_{Li} gekennzeichnet wird [36, 37]. Im Gegensatz zu den einfach positiv geladenen Lithiumatomen ist das Niob fünffach positiv geladen ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$). An diesen lokalen Überschuss positiver Ladung kann sich ein Elektron anlagern, welches aufgrund seiner negativen Ladung das umliegende Gitter so verformt, dass der Energiezustand absinkt und das Elektron noch stärker gebunden wird – es bildet sich

ein sogenanntes kleines gebundenes Polaron [33], welches kurz mit $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ bezeichnet wird.

Lithiumniobat ist dielektrisch und hat eine Energielücke von etwa 4 eV zwischen Valenz- und Leitungsband [38]. Innerhalb der Bandlücke befinden sich – je nach Dotierung und Stöchiometrie – Störstellen, die ebenfalls Ladungsträger aufnehmen und abgeben können. Die im Rahmen dieser Arbeit wichtigsten Störstellen sind die bereits vorgestellten kleinen gebundenen Polaronen sowie Eisen: Wie in Abb. 2.1 dargestellt, kommt Eisen (Fe) in LiNbO_3 in den zwei Valenz- oder Oxidationszuständen Fe^{2+} und Fe^{3+} vor. Enthält der Kristall Fe^{2+} , erscheint er durch eine breite Absorptionsbande um 477 nm bräunlich verfärbt [39].

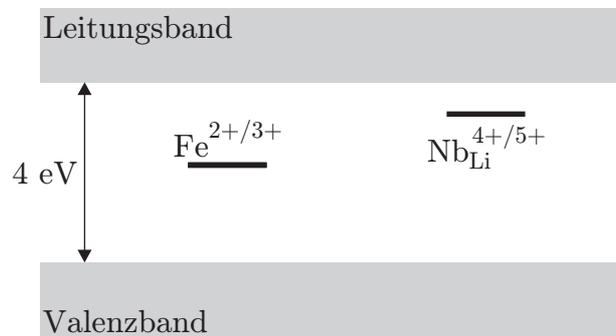


Abbildung 2.1: Vereinfachtes Energieschema von LiNbO_3 . Horizontal ist der Ort, vertikal die Energie aufgetragen. In der 4 eV breiten Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsband liegen die photorefraktiven Zentren Eisen (Fe) und Niob-auf-Lithiumgitterplatz (Nb_{Li}). Die hochgestellten Zahlen geben die möglichen Ladungszustände der jeweiligen Störstelle an.

2.2 Absorptionsprozesse in LiNbO_3

Undotiertes LiNbO_3 ist für sichtbares Dauerstrichlicht weitgehend transparent: Aufgrund der großen Bandlücke sind lineare Anregungen vom Valenz- zum Leitungsband erst mit UV-Licht unterhalb von etwa 320 nm möglich [40, 41]. Dennoch tritt auch für größere Wellenlängen Absorption auf: Dotiert man die Kristalle mit Eisen, so lassen sich von besetzten Eisenzentren in der Bandlücke (Fe^{2+}) Elektronen ins Leitungsband anregen, und es tritt *lineare Absorption* auf [39]. Für Pulse hoher Spitzenintensität I_{Puls} wird auch eine Band-zu-Band-Anregung durch *Zwei-Photonen-Absorption* möglich [21]. Bevölkern zuvor angeregte Ladungsträger für eine gewisse Zeit Störstellen und können von dort aus erneut angeregt werden, tritt darüber hinaus *lichtinduzierte Absorption* auf [24]. Diese Prozesse sind in Abb. 2.2 skizziert und werden in den folgenden Abschnitten genauer ausgeführt.

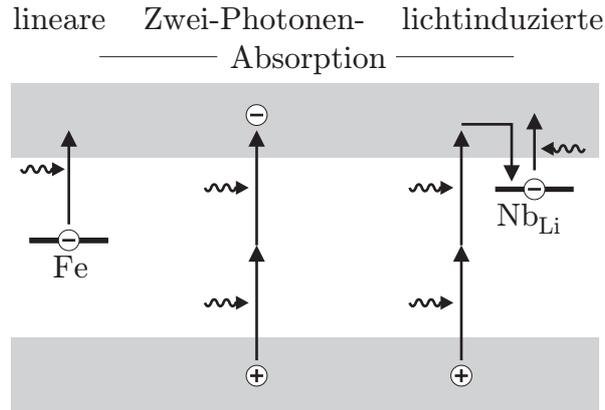


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der verschiedenen Absorptionsprozesse in LiNbO_3 . Lineare Absorption sichtbaren Lichts ist nur von besetzten Störstellen in der Bandlücke aus möglich. Für hohe Spitzenintensitäten treten zusätzlich Band-zu-Band-Anregungen durch Zwei-Photonen-Absorption auf. Besetzen angeregte Ladungsträger zuvor unbesetzte Störstellen, so kommt es zu (transienter) lichtinduzierter Absorption.

2.2.1 Lineare Absorption

Die Änderung der Intensität I von Licht, das ein absorptives Medium in x -Richtung durchläuft, lässt sich mit dem Absorptionskoeffizienten α beschreiben durch

$$dI/dx = -\alpha I(x) . \quad (2.1)$$

Ist der Absorptionskoeffizient unabhängig von der Intensität und homogen über das gesamte Medium, d. h. $\alpha(\mathbf{r}, I) = \alpha_0 = \text{konst.}$, so gilt für die Intensität im Medium das Lambert-Beer-Gesetz [42]

$$I(x) = I(0) \exp(-\alpha_0 x) . \quad (2.2)$$

Hierbei wird $x = 0$ für die Frontfläche des Mediums angenommen, und $I(0)$ ist die Intensität der Welle zu Beginn (aber bereits innerhalb) des Kristalls.

Die von uns verwendeten Kristalle zeigen eine lineare Absorption im sichtbaren Bereich vor allem aufgrund ihres Gehalts an Fe^{2+} : Von diesem Störstellenniveau aus können Elektronen mit Licht ins Leitungsband angeregt werden. Das Maximum dieser breiten Absorptionsbande liegt bei der Wellenlänge 477 nm, und typische Werte des linearen Absorptionsparameters $\alpha_0(532 \text{ nm})$ bei der Wellenlänge 532 nm liegen im Bereich $250\text{-}1500 \text{ m}^{-1}$ für unbehandelte eisendotierte Kristalle.

2.2.2 Zwei-Photonen-Absorption

Für höhere Intensitäten spielen allerdings nichtlineare Absorptionsprozesse, insbesondere die Zwei-Photonen-Absorption, eine zunehmende Rolle. Der Absorptionskoeffizient α hängt dann von der lokalen Intensität I ab und lässt sich dazu in einer Taylorreihe

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \beta_{2\gamma} I + \dots \quad (2.3)$$

weiter entwickeln, wobei $\beta_{2\gamma}$ der Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizient ist. Für Wellenlängen unterhalb von 600 nm dominieren bei der Zwei-Photonen-Absorption die Band-zu-Band-Anregungen, das heißt es werden Elektronen vom Valenz- in das Leitungsband angeregt, womit neben beweglichen Elektronen auch Löcher im Valenzband als zusätzliche Energieniveaus erzeugt werden. In undotiertem Lithiumniobat für Licht der Wellenlänge 532 nm liegt $\beta_{2\gamma}$ bei $1,2 \times 10^{-3}$ m/GW und für 388 nm bei 35×10^{-3} m/GW [21, 43]. Für Dauerstrichlicht spielt die Zwei-Photonen-Absorption in diesem Wellenlängenbereich damit meist keine Rolle, man muss sie aber als Absorptionsprozess berücksichtigen, sobald man mit den Spitzenintensitäten in Bereiche von $\text{TW}/\text{m}^2 = 100 \text{ MW}/\text{cm}^2$ gelangt, was in der Praxis mit Nanosekunden- oder kürzeren Pulsen der Fall sein kann.

2.2.3 Lichtinduzierte Absorption

Auch von kleinen gebundenen Polaronen ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$) können Elektronen ins Leitungsband angeregt werden. Das Maximum dieser linearen Absorption liegt etwa bei der Wellenlänge 760 nm, reicht aber weit ins Grüne und Infrarote hinein [37, 44, 45]. Da dieses Energieniveau allerdings weitgehend unbesetzt ist, spielt diese Absorption zunächst keine Rolle. Werden aber Elektronen anderweitig ins Leitungsband angeregt (siehe 2.2.1 und 2.2.2), wird der Zustand von dort aus transient bevölkert, und es kommt zur lichtinduzierten Absorption; der lineare Absorptionsparameter α_0 erhöht sich dadurch um α_{li} [24, 25, 34]. Während sich bei dauerhafter Beleuchtung ein Gleichgewichtszustand einstellt, fällt die durch Lichtpulse erzeugte lichtinduzierte Absorption nach jedem Puls mit einer gestreckt-exponentiellen Funktion auf einer Zeitskala von Mikro- bis Millisekunden ab [25, 44–46].

2.3 Optischer Kerr-Effekt

Bei hohen Spitzenintensitäten I_{Puls} sind kurzfristige, transiente Änderungen des Brechungsindex durch Licht beobachtbar [22]. Hier ist insbesondere der optische Kerr-Effekt als Ursache hervorzuheben, bei dem sich der Brechungsindex n linear mit der lokalen Intensität I des Lichtfelds ändert [42]:

$$n = n_0 + n^{(2)} I . \quad (2.4)$$

Dabei hängt der Kerr-Koeffizient $n^{(2)}$ von der Frequenz der beteiligten Lichtfelder sowie deren Polarisation relativ zum Kristall und zueinander ab [47]. Die Größe n_0 bezeichnet den Brechungsindex des Materials ohne äußere Änderungen.

2.4 Photorefraktion in Lithiumniobat

Photorefraktion bedeutet allgemein, dass durch Licht der Brechungsindex n eines Materials verändert werden kann. Im engeren Sinn wird der Begriff hier verwendet, um die Änderung von n durch die Anregung und Umverteilung von Ladungsträgern mit einem inhomogenen Lichtfeld zu bezeichnen [10].

2.4.1 Pockels-Effekt

Der Pockels-Effekt, auch als linearer elektrooptischer Effekt bezeichnet [48], führt dazu, dass aus einem Raumladungsfeld Brechungsindexmodulationen resultieren. Die lokale Brechungsindexänderung $\Delta n(x)$ ist dabei linear zum vorhandenen elektrischen Feld $E(x)$. Besitzen die Raumladungsfelder in LiNbO_3 eine Komponente parallel zur c -Achse, ändert sich der Brechungsindex sowohl für außerordentlich als auch für ordentlich polarisiertes Licht, für außerordentlich polarisiertes Licht ist die Änderung allerdings etwa dreimal so groß wie für ordentlich polarisiertes [47, 49].

2.4.2 Ein-Zentren-Modell

Bei moderaten Intensitäten ist Eisen in der Regel das einzig relevante photorefraktive Zentrum in LiNbO_3 . Dieser Fall wird durch das Ein-Zentren-Modell beschrieben [50, 51]. Auch in nominell undotierten Kristallen sind aufgrund des Herstellungsverfahrens Spuren von Eisen vorhanden. Von Fe^{2+} -Zentren aus können Elektronen mit Licht in das Leitungsband angeregt werden, wodurch Fe^{3+} entsteht. Für die beweglichen Elektronen im Leitungsband kommt es aufgrund verschiedener Antriebe zu einer Ladungsumverteilung: Die *Drift* ist die Bewegung von Elektronen in einem elektrischen Feld. Hierbei kann es sich sowohl um ein äußeres Feld als auch um das entstehende Raumladungsfeld handeln. Die *Diffusion* führt aufgrund der thermischen Bewegung der Elektronen zu einem Strom, der proportional zum Dichtegradienten der beweglichen Elektronen im Leitungsband ist. Drift und Diffusion treten in jedem Material auf. Der starke *volumenphotovoltaische Effekt* ist dagegen eine Besonderheit in LiNbO_3 und der dominante Ladungsantrieb entlang der c -Achse. Er führt zu einer asymmetrischen Verteilung der Bewegungsrichtung der angeregten Ladungsträger und damit zu einem der Intensität proportionalen effektiven gerichteten Strom \vec{j}_{Phv} entlang c im Leitungsband [52, 53].

Wird der Kristall inhomogen beleuchtet, so verteilen diese Antriebe die Ladungen um, und Raumladungsfelder bauen sich auf. Ohne äußeres Feld ist bei Beleuchtung mit einer konstanten Intensitätsverteilung die Driftstromdichte \vec{j}_{Drift} der Gegenspieler der volumenphotovoltaischen Stromdichte \vec{j}_{Phv} und der Diffusionsstromdichte \vec{j}_{Diff} : Die Ladungsumverteilung läuft so lange aufgrund der letztgenannten Antriebe weiter, bis die entgegengerichteten Driftströme diese aufgrund der wachsenden Raumladungsfelder kompensieren. So stellt sich bei anhaltender Beleuchtung schließlich ein Gleichgewicht ein:

$$\vec{j}_{\text{Phv}} + \vec{j}_{\text{Diff}} + \vec{j}_{\text{Drift}} \rightarrow 0 . \quad (2.5)$$

In dieser Sättigung ergibt sich mit der Photoleitfähigkeit σ_{Photo} das Raumladungsfeld

$$\mathbf{E}^{\text{Sätt}} = \frac{\vec{j}_{\text{Drift}}}{\sigma_{\text{Photo}}} = - \frac{\vec{j}_{\text{Phv}} + \vec{j}_{\text{Diff}}}{\sigma_{\text{Photo}}} . \quad (2.6)$$

Ist das Lichtmuster zeitlich konstant, so nähert sich die Amplitude Δn_0 des Brechungsindexmusters exponentiell einem Sättigungswert $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$:

$$\Delta n_0(t) = \Delta n_0^{\text{Sätt}} [1 - \exp(-t/\tau_M)] . \quad (2.7)$$

Die charakteristische Anstiegszeit τ_M wird als Maxwellzeit bezeichnet. Sie ist umgekehrt proportional zur Photoleitfähigkeit σ_{Photo} des Materials und somit im Fall linearer Anregungen umgekehrt proportional zur Intensität des Lichtmusters [51].

Von Fe^{3+} -Zentren werden die angeregten Elektronen eingefangen, wobei sich das Fe^{3+} in Fe^{2+} umwandelt. So bildet sich im Laufe der Beleuchtung ein Ladungsträgermuster heraus, welches auch nach Abschalten des Lichtmusters bestehen bleibt [54]. Ein Löschen des Musters erfolgt allenfalls über die Dunkelleitfähigkeit, im Wesentlichen der Verschiebung von Protonen (H^+) im Kristall [55], sowie dem Tunneln von Elektronen zwischen den Eisenzentren [56]. Bei Raumtemperatur und für die von uns verwendeten Eisenkonzentrationen ist allerdings beides auf einer Zeitskala von Stunden bis Tagen vernachlässigbar. Daher sind die photorefraktiven Muster für die hier vorgestellten Versuche als stabil anzusehen.

2.4.3 Polaronen und das Zwei-Zentren-Modell

Das Ein-Zentren-Modell gilt bei moderaten Intensitäten bis etwa 10^4 W/m^2 . Für höhere Intensitäten beginnen die Antisite-Defekte eine Rolle zu spielen, und man spricht vom „Zwei-Zentren-Modell“ [34, 57]: Wird der Zustand des kleinen gebundenen Polarons $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ signifikant bevölkert, muss dieses Zentrum mit in die Beschreibung einbezogen werden. Aufgrund der größeren volumenphotovoltaischen Koeffizienten tragen aus $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ angeregte Elektronen besonders stark zur Umverteilung und zum Aufbau des Ladungsträgermusters bei [34]. Daher erhöht sich für steigenden Intensitäten die Sättigungsbrechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ beim Übergang vom

Ein- zum Zwei-Zentren-Modell. Die inverse Maxwell-Zeit τ_M^{-1} für den Aufbau eines Brechungsindexmusters wächst in diesem Modell überproportional mit der Intensität [58].

2.5 Elementare Volumenhologramme in Transmissionsgeometrie

Die durchgeführten Experimente beschäftigen sich zum großen Teil damit, welche Brechungsindex- und Absorptionsänderungen durch Lichteinwirkung in LiNbO_3 hervorgerufen werden. Diese Änderungen werden auf holographische Weise bestimmt. Dazu wird der Kristall nicht homogen, sondern räumlich periodisch mit einem Interferenzmuster der Periodenlänge Λ bestrahlt. Verändert sich durch die Beleuchtung der Brechungsindex oder die Absorption, so bilden die Änderungen ein ebenfalls regelmäßiges Muster der Periode Λ . Die Stärke dieses Gitters kann dann ausgelesen werden, indem man einen weiteren Lichtstrahl am Gitter beugt. Der Vorteil dieser Methode ist, dass auch Gitter mit sehr kleiner Amplitude bereits einen messbaren Anteil des Leselichts abbeugen, falls dieses unter dem Braggwinkel θ_{Bragg} einfällt. Das Verfahren ist auch unter dem Begriff *Vier-Wellen-Mischen* bekannt.

Zunächst wird erläutert, wie durch Interferenz ebener Wellen elementare Volumenhologramme (Bragg-Gitter) in einem Kristall entstehen können und wie eine Lichtwelle daran gebeugt wird. Im zweiten Teilabschnitt wird dann auf Besonderheiten eingegangen, wenn die Volumenhologramme durch Femtosekunden-Lichtpulse erzeugt werden.

2.5.1 Schreiben und Auslesen von Volumenhologrammen

Im Rahmen dieser Arbeit spielen lediglich Transmissionshologramme mit ungeneigten Gitterebenen eine Rolle. Bei dieser Geometrie treten die beteiligten Schreib- und Lesestrahlen durch die selbe Oberfläche in den Kristall ein, und die beiden interferierenden Schreibstrahlen verlaufen symmetrisch zur Flächennormalen. Der Gittervektor \mathbf{K} mit dem Betrag $K = 2\pi/\Lambda$ des resultierenden Musters liegt dann parallel zu dieser Fläche. Für solche Gitter sind die entstehende Periodenlänge Λ im Material und der Auslesewinkel θ'_L außerhalb des Kristalls unabhängig vom Brechungsindex. Dadurch ist beispielsweise ein Wechsel der Polarisation des Schreib- oder Leselichts ohne Neujustage der Winkel möglich.

Es werden zwei ebene monochromatische Wellen gleicher Intensität $I/2$ mit den Wellenvektoren \mathbf{k}_{S1} und \mathbf{k}_{S2} ($|\mathbf{k}_{S1}| = |\mathbf{k}_{S2}|$) wie in Abb. 2.3 schematisch gezeigt in einem Kristall zur Überlagerung gebracht. Im Kristall entsteht durch Interferenz bei

vollständiger Modulation ein Intensitätsmuster, das durch

$$I(\mathbf{r}) = \Delta I [1 + \sin(\mathbf{K}\mathbf{r})] \quad (2.8)$$

beschrieben werden kann. Dabei ist \mathbf{r} ein Ortsvektor und $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{S1} - \mathbf{k}_{S2}$ der Gittervektor des Intensitätsmusters, der mit der Gitterperiode durch $\Lambda = 2\pi/|\mathbf{K}|$ zusammenhängt. Die Amplitude der Intensitätsmodulation ist durch $\Delta I = I$ gegeben.

Durch die in den Abschnitten 2.2.3, 2.3 lichtinduzierte Absorption und den Kerr-Effekt kann ein solches Intensitätsmuster in LiNbO₃-Kristallen in ein Absorptions- oder ein Brechungsindexmuster gleicher Periodenlänge Λ umgesetzt werden. Auch durch den photorefraktiven Effekt entsteht aus einem solchen Sinusmuster der Intensität ein Raumladungsfeld \mathbf{E} und damit eine Brechungsindexänderung, die in erster Näherung ebenfalls einen sinusförmigen Verlauf der gleichen Periodenlänge Λ hat [51]:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \Delta E_0(t) \sin(\mathbf{K}\mathbf{r} + \varphi) \quad (2.9)$$

$$\Rightarrow \Delta n(z, t) = \Delta n_0(t) \sin(Kz + \varphi) \quad (\text{für } \mathbf{K} \parallel z). \quad (2.10)$$

Dabei wird im Folgenden nicht weiter beachtet, dass die Phasenlage φ zwischen Intensitäts-, Absorptions- und Brechungsindexgitter für die verschiedenen Effekte und Ladungsantriebe unterschiedlich ist.

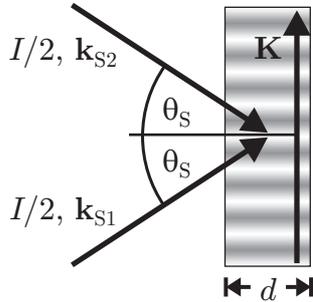


Abbildung 2.3: Durch die Überlagerung zweier ebener Wellen in Transmissionsgeometrie (Gesamtintensität I , Wellenvektoren \mathbf{k}_{S1} , \mathbf{k}_{S2}) im Kristall der Dicke d entsteht dort durch Interferenz ein Intensitätsgitter mit dem Gittervektor $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{S1} - \mathbf{k}_{S2}$. Brechung ist nicht dargestellt, alle Angaben gelten im Kristall.

Wir gehen im Folgenden davon aus, dass es sich bei einem so entstandenen Gitter um ein dickes Hologramm handelt, das heißt, für die Dicke d des Kristalls gelte $d \gg \Lambda$. In diesem Fall kann ein Lesestrahl mit Vakuum-Wellenlänge λ_L nur dann am Gitter gebeugt werden, wenn er unter einem Winkel θ_{Bragg} auf das Hologramm trifft, welcher die Braggbedingung erfüllt:

$$2\pi/|\mathbf{K}| = \Lambda = \frac{\lambda_L}{2n \sin \theta_{\text{Bragg}}} = \frac{\lambda_L}{2 \sin \theta'_{\text{Bragg}}}. \quad (2.11)$$

Wie man erkennt, ist die Größe dieses sogenannten Braggwinkels θ'_{Bragg} außerhalb des Kristalls unabhängig vom Brechungsindex n . Abbildung 2.4 zeigt den Auslesevorgang schematisch: Von links durchläuft eine ebene Welle, welche die Bragg-

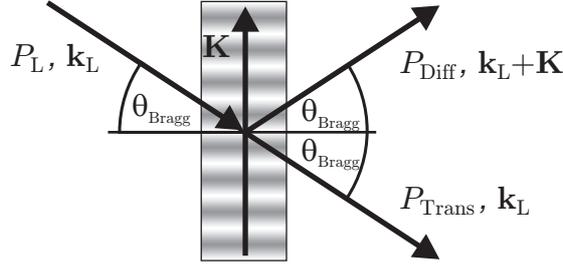


Abbildung 2.4: Auslesen eines elementaren Volumen hologramms in Transmissionsgeometrie (Schema): Im Kristall befindet sich – durch das Muster angedeutet – ein sinusförmiges Absorptions- oder Brechungsindexgitter mit Gittervektor \mathbf{K} . An diesem wird eine von links unter dem Bragg-Winkel θ_{Bragg} einfallende ebene Welle (Leistung des Lesestrahls P_L , Wellenvektor \mathbf{k}_L) teilweise abgebeugt. Es bezeichnen P_{Trans} und P_{Diff} die Leistung der transmittierten bzw. der abgebeugten Welle. Brechung ist nicht dargestellt, alle Angaben (Winkel, Wellenvektoren) gelten im Kristall.

Bedingung (2.11) erfüllt, das Hologramm. Ein Teil der Welle wird durch das Hologramm so abgebeugt, dass für den Wellenvektor \mathbf{k}_{Diff} des abgebeugten Lichts gilt:

$$\mathbf{k}_{\text{Diff}} = \mathbf{k}_L + \mathbf{K} . \quad (2.12)$$

Welcher Anteil des einfallenden Lichts abgebeugt wird, ist durch den Beugungswirkungsgrad η charakterisiert, der für die Leistung des abgebeugten (P_{Diff} , vom engl. *diffracted*) und des transmittierten Lesestrahls (P_{Trans}) definiert ist als

$$\eta = \frac{P_{\text{Diff}}}{P_{\text{Diff}} + P_{\text{Trans}}} . \quad (2.13)$$

Für Pulse gilt analog mit den Energien $\mathcal{E}_{\text{Diff}}$ des abgebeugten und $\mathcal{E}_{\text{Trans}}$ des transmittierten Lesepulses

$$\eta = \frac{\mathcal{E}_{\text{Diff}}}{\mathcal{E}_{\text{Trans}} + \mathcal{E}_{\text{Diff}}} . \quad (2.14)$$

Da es sich bei der Beugung am Gitter um einen linearen Prozess handelt, brauchen wir im Folgenden nicht zwischen den Definitionen von η für Dauerstrichlicht und Pulse zu unterscheiden.

Handelt es sich bei dem im Kristall vorhandenen Gitter um ein Absorptionsmuster der Form $\alpha(\mathbf{r}) = \alpha_0 + \Delta\alpha \sin \mathbf{K}\mathbf{r}$, so gilt für den Beugungswirkungsgrad [59]:

$$\eta = \sinh^2 \left(\frac{\Delta\alpha d}{4 \cos \theta_{\text{Bragg}}} \right) \approx \left(\frac{d}{4 \cos \theta_{\text{Bragg}}} \right)^2 \Delta\alpha^2 \quad (\eta \ll 1) . \quad (2.15)$$

Liegt dagegen im Kristall nur eine Brechungsindexmodulation vor, die sich als sinusförmiges Muster $n(\mathbf{r}) = n_0 + \Delta n_0 \sin \mathbf{K}\mathbf{r}$ beschreiben lässt, so gilt für den Zusammenhang zwischen dem Beugungswirkungsgrad η und der Modulation Δn_0 des

Brechungsindex [59]:

$$\eta = \sin^2 \left(\frac{\pi d \Delta n_0}{\lambda_L \cos \theta_{\text{Bragg}}} \right) \approx \left(\frac{\pi d}{\lambda_L \cos \theta_{\text{Bragg}}} \right)^2 \Delta n_0^2 \quad (\eta \ll 1). \quad (2.16)$$

2.5.2 Holographie mit Femtosekunden-Lichtpulsen

Verwendet man Sub-Pikosekunden-Lichtpulse, so ist deren räumliche Pulslänge oft kleiner als die räumliche Breite, es handelt sich sozusagen um Licht-Scheiben. Es gilt:

$$1 \text{ ps} \times c = 300 \text{ } \mu\text{m}, \quad (2.17)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ist. In Materie sind die Pulse noch um den Faktor n des entsprechenden Brechungsindexes räumlich kürzer. Dies muss bei den Holographie-Versuchen beachtet werden: Das Schema in Abbildung 2.5 zeigt im Querschnitt die Interaktion der Schreibpulse im Kristall. Der Bereich, in dem

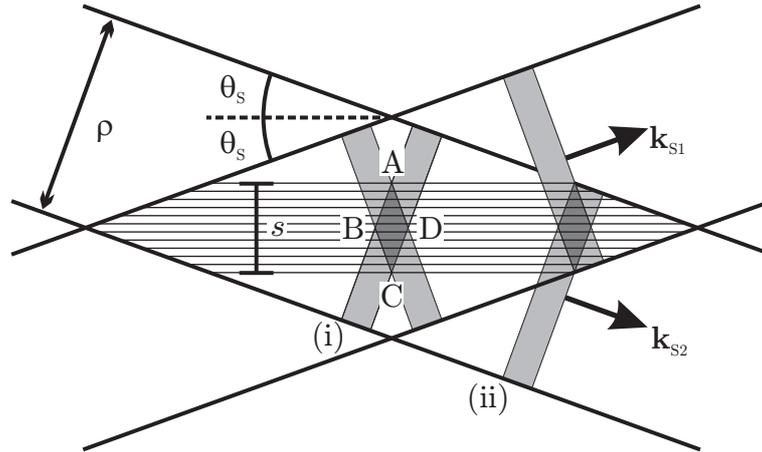


Abbildung 2.5: Wechselwirkung zweier Rechteckpulse im Kristall. In Grau: Femtosekunden-Pulse zu zwei Zeitpunkten $t_{(i)} < t_{(ii)}$, Dunkelgrau: Wechselwirkungsbereich zum jeweiligen Zeitpunkt mit den Eckpunkten A, B, C und D; \mathbf{k}_{S1} , \mathbf{k}_{S2} : Schreibstrahl-Wellenvektoren, s : Breite des Interaktionsstreifens (schraffiert), ρ : Räumliche Breite der Pulse, $2\theta_s$: Überlagerungswinkel, jeweils im Kristall.

sich die zeitlich als Rechtecke angenommenen Pulse zum entsprechenden Zeitpunkt überlappen, ist dunkelgrau dargestellt. Er bewegt sich mit den Pulsen durch den Kristall. Die Pulse wechselwirken (interferieren) nur im Bereich des Überlapps, und daher kann nur im schraffierten Streifen der Breite s ein Gitter im Kristall entstehen, nicht im gesamten geometrischen Überlapp-Bereich der Pump-Strahlen [60]. Für zwei Pulse der Dauer τ_{Puls} , die im Kristall mit dem Winkel $2\theta_s$ zusammentreffen,

ergibt sich für die Breite s dieses Streifens [60]

$$s = \frac{\tau_{\text{Puls}}c/n}{\sin \theta_{\text{S}}} = \frac{\tau_{\text{Puls}}c}{\sin \theta'_{\text{S}}}, \quad (2.18)$$

wobei θ'_{S} der Einfallswinkel der Schreibpulse außerhalb des Kristalls ist. Aufgrund der Transmissionsgeometrie ist die Streifenbreite bei gleichem Außenwinkel unabhängig vom Brechungsindex. Je größer dieser Winkel, desto schmaler ist der Streifen und damit auch das Volumen des Gitters im Kristall. Aus diesem Grund wählen wir für die fs-Holographieversuche einen möglichst kleinen Winkel θ'_{S} . Zu klein darf dieser Winkel aber auch nicht werden, sonst wird die Gitterperiode Λ des Gitters größer als die Kristalldicke, womit es sich nicht mehr um ein dickes Gitter mit eindeutigem Braggwinkel handelt. Ein sinnvoller Kompromiss liegt für die gegebenen experimentellen Parameter bei $\theta'_{\text{S}} \approx 4^\circ$.

2.6 Lichtinduzierte Streuung

Durchläuft Laserlicht ein Medium, kommt es stets zu geringfügiger Streuung an Oberflächenfehlern, Unregelmäßigkeiten im Material oder ähnlichem. Streulicht überlagert sich mit der einlaufenden, ursprünglichen Welle, und es kommt zur Interferenz. Ist das Medium photorefraktiv, führt das entstehende Interferenzmuster zur Bildung von parasitären Brechungsindexgittern, die – je nach Phasenlage – zu einer Strahlkopplung und damit einem Energieübertrag von der einlaufenden Hauptwelle zur Streuwelle führen. Diese wird dadurch verstärkt, wodurch der Modulationsgrad des Interferenzmusters und damit die Kopplungsstärke weiter steigt. Es handelt sich also um einen selbstverstärkenden Prozess, durch den das anfangs schwache Streulicht erheblich verstärkt wird, es kommt zur sogenannten *lichtinduzierten* oder *holographischen Streuung* [61, 62].

Weil photorefraktive Materialien oft anisotrop sind, die anfänglichen Streuamplituden stark vom Streuwinkel abhängen und das gestreute Licht zur Verstärkung Phasen Anpassungsbedingungen erfüllen muss, ist die Verstärkung des Streulichts nicht in alle Richtungen gleich ausgeprägt. Hinzu kommt, dass die Streuprozesse untereinander um Verstärkung durch die Hauptwelle konkurrieren und sich somit zum Teil gegenseitig unterdrücken. So bilden sich je nach Material, Geometrie, Lichtpolarisation und primären Streuzentren charakteristische Streumuster heraus, die auch zur Untersuchung von Materialien verwendet werden können [63, 64]. Meist ist die lichtinduzierte Streuung allerdings unerwünscht, denn durch sie verliert die Hauptwelle nicht nur Energie, auch das Strahlprofil kann sich erheblich verändern, was die Verwendung der photorefraktiven Kristalle für optische Anwendungen erschwert.

KAPITEL 3

AUSSTATTUNG UND MESSMETHODEN

3.1 Lichtquellen

Das Lasersystem CPA2010 (für engl. *Chirped Pulse Amplification*, [65]) der Firma Clark MXR, Inc. erzeugt Femtosekunden-Laserpulse der Wellenlänge 776 nm: In diesem System werden zunächst in einer mit Erbium dotierten Glasfaser mit Hilfe von Modenkopplung kurze Pulse mit ca. 1550 nm Wellenlänge erzeugt. Diese werden nach Verlassen des Faseroszillators in periodisch gepoltem LiNbO₃ frequenzverdoppelt und zeitlich gestreckt. Der anschließende regenerative Verstärker besteht aus einem Titan-Saphir-Kristall, der optisch mit Nanosekunden-Laserpulsen aus einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser gepumpt wird. Die gestreckten Pulse durchlaufen diesen Kristall mehrmals und werden schließlich in einem Kompressor auf nahezu bandbreitenbegrenzte Dauer komprimiert. So verlassen die Pulse das Lasersystem mit etwa 200 fs Pulsdauer und rund 1 mJ Energie. Soweit nicht anders angegeben, wird die maximal mögliche Repetitionsrate von 1000 Hz verwendet, das Lasersystem ist allerdings auch auf kleinere Raten ν_{Rep} bis 2 Hz einstellbar.

Zur Wellenlängenkonversion der Femtosekundenpulse wird ein optisch-parametrischer Verstärker [66] vom Typ TOPAS (für engl. *Traveling-wave Optical-Parametrical Amplification of Superfluorescence*) der Firma Light Conversion, Inc. eingesetzt. Er ermöglicht die Erzeugung von Pulsen mit beliebiger Wellenlänge zwischen 225 und 2719 nm. Dabei reduziert sich allerdings die Pulsenergie je nach Wellenlängenbereich auf etwa 10 bis 100 μJ , und Strahlqualität und Energie-Stabilität verringern sich zum Teil erheblich. Für die hier vorgestellten Messungen werden aus dem TOPAS Pulse der Wellenlänge 532 nm genutzt. Dazu wird zunächst in einem optisch-parametrischen Verstärkungsprozess „Idler“-Licht der Wellenlänge 1692 nm aus den Pulsen der fundamentalen Wellenlänge 776 nm erzeugt. Anschließend werden aus „Idler“- und fundamentalen Pulsen in einem nichtlinearen Kristall durch Summenfrequenzbildung die gewünschten 532 nm-Pulse erzeugt.

Wesentlich effizienter (ca. 40 %) und mit geringeren Qualitätsverlusten als mit dem TOPAS gelingt die Frequenzkonversion, indem die Pulse einen für die Erzeugung der zweiten Harmonischen passend geschnittenen β -Bariumborat-Kristall (BBO) durchlaufen [67]. Allerdings ist man hier auf die Erzeugung der halben fundamentalen Wellenlänge, also 388 nm, beschränkt.

Zwei Laser stehen zur Erzeugung von Dauerstrichlicht (kurz cw-Licht vom englischen *continuous wave*) zur Verfügung: Ein frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser liefert Licht der Wellenlänge 532 nm bei einer maximalen Leistung von 150 mW. Einem Helium-Neon-Gaslaser (kurz HeNe) mit 3 mW Ausgangsleistung entstammt Licht, dessen Wellenlänge bei 633 nm liegt.

Eine Variation der Strahlintensitäten und Pulsenergien ist durch Verwendung einer $\lambda/2$ -Platte vor einem Glan-Laser-Polarisator möglich: Der Polarisator wird auf die gewünschte Lichtpolarisation für das Experiment eingestellt, während die Stellung der $\lambda/2$ -Platte die in den Polarisator einlaufende Polarisations Ebene bestimmt. Durch Drehen der $\lambda/2$ -Platte ist damit eine kontinuierliche Abschwächung des Lichts ohne einen messbaren Strahlversatz möglich. Daneben stehen Neutralfilter zur Verfügung, die durch Reflexion oder Absorption die Intensität um einen festen Faktor reduzieren.

Zum Löschen photorefraktiver Muster wird darüber hinaus eine Kaltlichtlampe der Firma Schott vom Typ KL1500LCD eingesetzt. Diese liefert etwa 800 mW inkohärentes Licht mit der Farbtemperatur 3000 K, verteilt über das gesamte sichtbare Spektrum. Das Licht kann durch einen flexiblen Lichtleiter direkt auf die Probe geleitet werden, so dass effizientes Löschen möglich ist.

3.2 Puls- und Strahlcharakterisierung

Der Einfachheit halber, insbesondere bei Vergleichen zwischen Dauerstrich-Licht und Pulsen, werden alle Messgrößen für Dauerstrichlicht auch für Pulse verwendet. Die entsprechenden Größen ergeben sich für Pulse, indem über viele Pulsabstände ν_{Rep}^{-1} zeitlich gemittelt wird.

3.2.1 Leistung und Energie

Zur Messung der Lichtleistung P eines Strahls werden verschiedene Messgeräte eingesetzt: Für ein LabMaster Ultimo-System stehen für Leistungen bis 50 mW Photodioden-Messköpfe für sichtbares und nahinfrarotes Dauerstrich-Licht zur Verfügung. Größere Dauerstrich-Leistungen bis 10 W sowie die mittlere Leistung von Pulslicht mit einer Repetitionsrate $\nu_{\text{Rep}} > 10$ Hz können mit einem thermoelektrischen Kopf für den LabMaster gemessen werden. Sowohl die Diodenköpfe als auch der ther-

moelektrische Kopf sind auf absolute Leistungen kalibriert. Daneben stehen Photodioden und ein Strom-Spannungs-Wandler mit verschiedenen Verstärkungsstufen (Photometer) zur Verfügung, um relative Leistungen bzw. Leistungsänderungen von Dauerstrich-Licht zu messen.

Die Energie $\mathcal{E}_{\text{Puls}}$ einzelner Laserpulse im Bereich 3 – 2000 μJ wird mit einem kalibrierten pyroelektrischen Messkopf bestimmt. Weiterhin lässt sich $\mathcal{E}_{\text{Puls}}$ ebenfalls mit Hilfe von Photodioden messen: Diese werden dazu mit einer Vorspannung von ca. 9 V belegt und an einen Lastwiderstand angeschlossen, um die Dauer des Ladungsabflusses von der Diode auf etwa 15 μs zu begrenzen. Der am Lastwiderstand anfallende Spannungspuls wird dann an einen elektronisch vom Laser getriggerten *Boxcar*-Integrator SR250 geführt. Dieser integriert die anfallende Spannung für jeden Laserpuls auf und liefert eine dazu proportionale Ausgangsspannung, gleitend gemittelt über 300 Pulse.

Die Spannungen von Photometer und Boxcar-Integrator werden mit einer Analog-Digitalwandlerkarte digitalisiert und stehen dann auf dem Laborrechner als Daten zur Verfügung.

3.2.2 Strahldurchmesser und Strahlprofil

Zur Bestimmung des Strahlprofils führen wir eine Rasierklinge senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und ihrer eigenen Kante in den Strahl und messen die Leistung des Teilstrahls, der an der Klinge vorbei läuft. Die Intensitätsprofile aller Strahlen in dieser Arbeit haben näherungsweise die Form einer gaußschen Normalverteilung („gaußförmig“). Entsprechend ergibt sich für die Leistung P des Strahls hinter der Klinge in Abhängigkeit von deren Position x :

$$P(x) \propto \left[1 - \text{Erf} \left(\frac{(x - x_0) 2\sqrt{\ln 2}}{\rho} \right) \right]. \quad (3.1)$$

Dabei steht Erf für die *Error*-Funktion

$$\text{Erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-w^2) dw. \quad (3.2)$$

Aus der Messung des Verlaufs von $P(x)$ ergeben sich durch Anpassung von Gl. 3.1 der Strahldurchmesser ρ als volle Halbwertsbreite (kurz FWHM vom engl. *full-width at half-maximum*) der Intensitätsverteilung sowie die Strahlage x_0 in Richtung der Rasierklingebewegung. Die Skala der so bestimmten Strahlage hat zwar einen willkürlichen Nullpunkt; behält man diesen aber über mehrere Messungen bei oder misst bei einer Bewegung der Klinge mehrere Strahlen gleichzeitig, so lassen sich auch Lageänderungen eines Strahls oder die relative Lage mehrerer Strahlen bestimmen. Beides ist bei der Justage oft hilfreich.

Die tatsächlichen Strahlen weichen in zweifacher Hinsicht vom beschriebenen gaußförmigen Strahlprofil ab: Zum einen sind die Strahlen nicht immer exakt radialsymmetrisch um die Ausbreitungsachse, sondern zum Teil leicht elliptisch. Hier wird dann die oben beschriebene Messung zweimal durchgeführt, entlang der großen Halbachse und senkrecht dazu, wodurch man zwei Durchmesser erhält, deren geometrisches Mittel dann als Durchmesser in die weiteren Rechnungen eingeht.

Zum anderen weisen die Strahlen auch unregelmäßige Abweichungen von einer gaußschen Intensitätsverteilung auf. Um dies zu dokumentieren, wird die Intensitätsverteilung mehrerer Strahlen mit Hilfe einer CCD-Kamera (vom engl. *charge-coupled device*) gemessen. Dies ist für zwei Beispiele in Abb. 3.1 gezeigt.

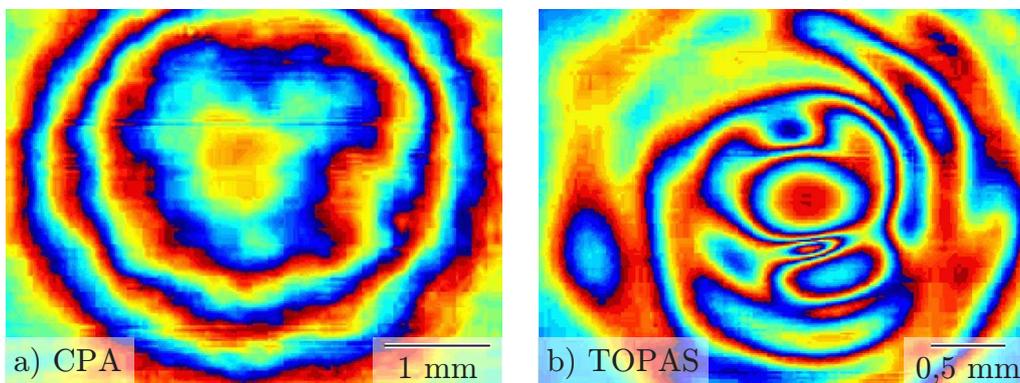


Abbildung 3.1: Mit einer CCD-Kamera aufgenommene räumliche Intensitätsverteilung zweier Strahlen, a) der fundamentalen 776 nm-Pulse aus dem CPA2010 und b) der 532 nm-Pulse des TOPAS. Die Intensität wird durch eine vierstufige Farbskala, jeweils von blau nach rot, dargestellt.

3.2.3 Pulsdauer und Spitzenintensität

Für die verwendeten Pulse wird ein gaußförmiger zeitlicher Verlauf der Intensität angenommen. Angaben der Pulsdauer τ_{Puls} bezeichnen stets die volle Halbwertsbreite, also die Dauer, während der die Intensität größer als die Hälfte des Maximalwerts ist.

Die Pulsdauer für Pulse der Wellenlängen 532 und 776 nm wird mit Hilfe eines Autokorrelators „PulseCheck“ der Firma APE durch untergrundfreie Autokorrelation 2. Ordnung mit Frequenzverdopplung bestimmt [68]. Für die Pulse der Wellenlänge 388 nm ist dieser Autokorrelator nicht geeignet, weshalb hier ein eigenes Verfahren eingesetzt wird, siehe Abb. 3.2: Zwei Teilpulse durchlaufen fast kollinear einen dünnen LiNbO₃-Kristall. Verzögert man die Pulse gegeneinander, ändert sich die Transmission, da die Zwei-Photonen-Absorption bei Überlagerung der Pulse wegen der höheren Intensität stärker wird. Aus der entstehenden Transmissions-Autokor-

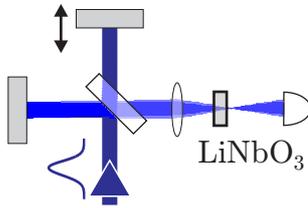


Abbildung 3.2: Schema zur Autokorrelation der 388 nm-Pulse: Der Puls wird an einem Strahlteiler aufgespalten, und die Teilpulse werden am Ausgang des leicht verstellten Mach-Zehnder-Interferometers unter einem kleinen Winkel in einem LiNbO₃-Kristall überlagert. Hinter dem Kristall wird die gesamte Pulsennergie in Abhängigkeit von der Verzögerung der beiden Teilpulse bestimmt.

relationskurve lässt sich unter Annahme einer bestimmten Pulsform die Dauer des Pulses bestimmen, wobei die Pulsdeformation bei starker nichtlineare Absorption zu berücksichtigen ist [21]. Im Fall schwacher gaußförmiger Pulse sind die Pulsdauer τ_{Puls} und die volle Halbwertsbreite der Autokorrelation τ_{Autokorr} verknüpft über $\tau_{\text{Autokorr}} = \sqrt{2}\tau_{\text{Puls}}$.

Integriert man an einem Ort die Intensität über den gesamten zeitlichen Verlauf eines Pulses auf, erhält man die Energieflussdichte Φ_{Puls} . Insbesondere für nichtlineare Wechselwirkung mit dem Kristall ist die Spitzenintensität I_{Puls} des Pulses ein wichtiger Parameter. Für einen Puls der räumlichen vollen Halbwertsbreite ρ und der Pulsdauer τ_{Puls} ist sie gegeben durch

$$I_{\text{Puls}} = \mathcal{E}_{\text{Puls}} \frac{8 (\ln 2)^{\frac{3}{2}}}{\pi^{\frac{3}{2}} \rho^2 \tau_{\text{Puls}}} . \quad (3.3)$$

3.3 „Pump-Probe“-Verfahren

Elektronische Messgeräte wie z. B. Oszilloskope sind in ihrer Bandbreite auf einige GHz beschränkt. Daher ist die direkte Beobachtung schneller physikalischer Vorgänge (unterhalb von etwa 100 ps) mit solchen Geräten nicht möglich. Das sogenannte „Pump-Probe“-Verfahren ermöglicht es, diese Begrenzung zu durchbrechen [69]. Dazu muss der zu beobachtende Prozess allerdings beliebig oft wiederholbar, durch Lichtpulse auslösbar und mit Licht beobachtbar sein.

Ein kurzer Lichtpuls wird in zwei Teilpulse aufgespalten. Einer der Lichtpulse, der „Pump“- oder Schreibpuls, löst den zu beobachtenden Prozess aus, beispielsweise, indem er im zu untersuchenden Material Ladungsträger anregt. Der zweite Puls, genannt „Probe“-, Lese- oder Tastpuls, durchläuft ebenfalls das zu untersuchende Raumgebiet und wird durch den laufenden Prozess bezüglich bestimmter optischer Eigenschaften verändert. Diese Eigenschaften werden anschließend gemessen und liefern so ein Maß für den Zustand des Prozesses zu dem Zeitpunkt, zu dem der Tastpuls das entscheidende Gebiet durchlaufen hat.

Die zeitliche Lage Δt des Tast- gegen den Schreibpuls lässt sich verschieben, indem man die Laufstrecken der Pulse relativ zueinander verändert. Wiederholt man die Messung für verschiedene (auch negative) Verzögerungen, erhält man den zeitlichen Verlauf des beobachteten Prozesses relativ zum Eintreffen des Pump-Pulses. Die maximal erreichbare zeitliche Auflösung ist dabei durch die Tastpulsdauer, die geometrische Anordnung und die Dispersion des Materials gegeben, siehe z. B. Hsieh et al. [70].

Zur Verzögerung der Tastpulse verwenden wir eine Verzögerungsstrecke, auf der die Tastpulse hin- und parallel dazu wieder zurücklaufen. Die Länge dieser Strecke kann durch einen Retroreflektor auf einem computergesteuerten Verschiebetisch mit etwa 1 μm Genauigkeit verändert werden. Die minimal verwendete Schrittweite beträgt in den vorgestellten Versuchen 5 μm , was einer Änderung der Verzögerung um 30 fs entspricht. Die maximale Verzögerung liegt bei 6 ns.

3.4 Kristalle und ihre Charakterisierung

In dieser Arbeit finden ein undotierter LiNbO_3 -Wafer und verschiedenen Boules von eisendotiertem Lithiumniobat Verwendung, die mit der vom Hersteller angegebenen Gesamteisenkonzentration c_{Fe} in der folgenden Tabelle 3.4 aufgeführt sind.

Bezeichnung	Hersteller	Dotierung	Fe_2O_3 in Schmelze (Gew%)	c_{Fe} in 10^{24} m^{-3}
W12	Cry	undotiert	~ 0	~ 0
DT1	Del	Fe	0,02	7,0
EQ2	Cry	Fe	0,05	17,5
DT2	Del	Fe	0,138	48,3

Tabelle 3.1: *Tabelle der verwendeten Wafer und Boules. Cry: Crystal Technology, Inc., Palo Alto, Kalifornien, USA. Del: Deltronic Crystal Industries, Inc., Dover, New Jersey, USA. Die Angabe in Gewichtsprozent (Gew%) Fe_2O_3 in der Schmelze entspricht den Herstellerangaben, die angegebene Konzentration ist daraus berechnet. Alle Boules und Wafer wurden im Czochralski-Verfahren aus kongruenter Schmelze gezogen.*

Aus diesen Wafern und Boules wurden in der Zentralwerkstatt des Physikalischen Instituts einzelne Kristalle herausgeschnitten und deren Oberflächen geschliffen und poliert. Dabei sind alle Kristalle sogenannte *x-cuts*, das bedeutet, die für den Eintritt der Lichtstrahlen genutzte größte Fläche der Kristalle liegt senkrecht zu deren *x*-Achse.

Manche Kristalle werden (z. T. mehrfach) Temperbehandlungen unterworfen [71,72], um den Fe^{2+} -Gehalt zu steigern (Reduktion) oder zu senken (Oxidation). Dazu

werden diese Proben in einem Ofen unter Vakuum oder Sauerstoffatmosphäre auf Temperaturen zwischen 500 und 1000 °C erhitzt, dort für mehrere (typischerweise 10) Stunden gehalten und wieder kontrolliert auf Raumtemperatur abgekühlt.

Zur Bestimmung des Fe²⁺-Gehalts der unbehandelten (engl. *as grown*), oxidierten und reduzierten Kristalle werden diese in einem „Cary 500 Scan“-Transmissionsspektrometer untersucht. Aus der reflexionskorrigierten Messung der linearen Absorption $\alpha_0(477 \text{ nm, o-pol})$ für ordentlich polarisiertes Licht bei 477 nm lässt sich gemäß der Formel

$$c_{\text{Fe}^{2+}} = 2,16 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \alpha_0(477 \text{ nm, o-pol}) \quad (3.4)$$

die Fe²⁺-Konzentration $c_{\text{Fe}^{2+}}$ im Kristall bestimmen [39].

KAPITEL 4

VERSUCHSANORDNUNGEN UND ERGEBNISSE

4.1 Transiente Holographie

Mit der ersten Messanordnung wird untersucht, wie schnell sich in LiNbO_3 nach Pulsbeleuchtung und Zwei-Photonen-Absorption kleine gebundene Polaronen ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$) bilden. Da dieser Prozess in weniger als einer Pikosekunde abläuft, wenden wir dazu ein „Pump-Probe“-Verfahren an, siehe Abschnitt 3.3.

Die $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ -Zentren verursachen, wie in Abschnitt 2.2.3 besprochen, eine Lichtabsorption. Allerdings sind dem Aufbau dieser lichtinduzierten Absorption transiente Effekte überlagert: Beobachtet man direkt die Absorption eines Lesepulses, so ist der störende Effekt die Zwei-Farben-Zwei-Photonen-Absorption des Lese- und des Schreiblichts [24]. Beleuchtet man den Kristall dagegen wie in Abschnitt 2.5.1 dargestellt mit einem Interferenzmuster und misst das am lichtinduzierten Absorptionsgitter gebeugte Leselicht, so überlagert zusätzlich ein Brechungsindexgitter durch den Kerr-Effekt das Signal [22, 23].

Wir stellen hier mit der 2K-Holographie eine Methode vor, um diese Effekte zu trennen. Die zugrunde liegende Idee ist sehr einfach: Zwei interferierenden Schreibpulse mit den Wellenvektoren \mathbf{k}_{S1} und \mathbf{k}_{S2} erzeugen ein Intensitätsgitter mit dem Gittervektor $\mathbf{K} = \mathbf{k}_{\text{S1}} - \mathbf{k}_{\text{S2}}$. Da beide störenden Effekte linear in der Intensität I sind, weisen auch das Brechungsindexgitter der Kerr-Antwort und das Absorptionsgitter der Zwei-Farben-Zwei-Photonen-Absorption nur die zu \mathbf{K} gehörige Fourierkomponente auf. Die Anregung der Ladungsträger für die $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ -Bildung geschieht jedoch durch Zwei-Photonen-Absorption und verläuft daher quadratisch mit I . Folglich enthalten daraus entstehende Gitter nicht nur Raumfrequenzkomponenten bei $K = |\mathbf{K}|$, sondern auch bei $2K$. Liest man nun die Gitter unter dem Braggwinkel für die $2K$ -Komponente aus, so sollte man den Aufbau des Absorptionsgitters durch

die kleinen gebundenen Polaronen ungestört von den linearen Effekten beobachten können.

4.1.1 Aufbau

Der Aufbau zur 2K-Messung ist in Abb. 4.1 dargestellt: Zwei identische Schreibpulse der Wellenlänge $\lambda_S = 388$ nm der Pulsdauer 215 fs (FWHM) treffen gleichzeitig und symmetrisch auf die x -Fläche eines LiNbO_3 -Kristalls. Es handelt sich um undotiertes LiNbO_3 aus dem Wafer W12 mit der Kristalldicke $d = 70$ μm . In y - und z -Richtung ist der Kristall 5 bzw. 6 mm breit. Er sitzt auf einer 3 mm großen Blendenöffnung eines drehbaren Kristallhalters, auf welche die Schreibstrahlen zentriert werden. Die Schreibpulse sind parallel zur z -Achse, also außerordentlich, polarisiert. Sie durchlaufen etwa 40 cm vor dem Kristall Quarzlinsen der Brennweite 500 mm, so dass ihre räumliche Ausdehnung am Ort des Kristalls etwa $\rho_S = 0,7$ mm ist. Die Summe der Spitzenintensitäten beider Schreibpulse I_{Puls} wird zwischen 4 und 140 GW/cm^2 variiert. Dabei ist hier stets I_{Puls} im Kristall, also nach Durchlaufen der Frontfläche, angegeben.

Der Winkel $\theta'_S = 4^\circ$ zwischen den Schreibstrahlen außerhalb des Kristalls entspricht einer Gitterperiode Λ von $\Lambda = 2\pi/|\mathbf{K}| = 2,8$ μm . Der Gittervektor \mathbf{K} liegt entlang der y -Achse. In dieser Richtung senkrecht zur polaren c -Achse bilden sich Raumladungsfelder schwächer aus als entlang c , da der volumenphotovoltaische Effekt als Ladungsantrieb im Wesentlichen entlang der optischen Achse wirkt [47]. Daher ist der photorefraktive Effekt in dieser Richtung stark unterdrückt und für außerordentlich polarisiertes Leselicht gar nicht vorhanden, da der entsprechende Pockels-Koeffizient aus Symmetriegründen null ist.

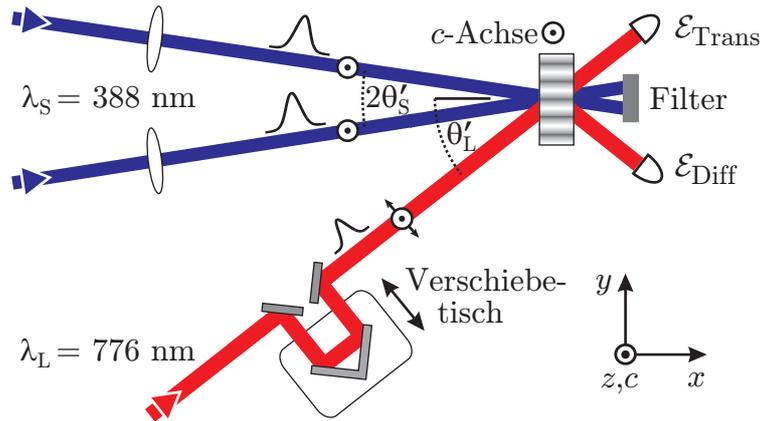


Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau zur transienten Holographie.

Ausgelesen wird das Gitter mit einem schwachen Puls bei einer Auslesewellenlänge $\lambda_L = 776$ nm. Dieser wird vor der Frequenzverdopplung als Oberflächenreflex aus

dem Laserstrahl des CPA2010 abgezweigt. Die zeitliche Lage Δt des Lesepulses gegenüber den Schreibpuls wird mit der in Abschnitt 3.3 vorgestellten Verzögerungstrecke festgelegt. Der Auslesewinkel θ'_L außerhalb des Kristalls wird entweder auf das 1K- oder das 2K-Gitter Bragg-angepasst und beträgt entsprechend etwa 8° oder 16° . Die FWHM-Pulsdauer des Lesepulses beträgt 165 fs, seine räumliche Ausdehnung ρ ist 3,5 mm. Er ist damit also wesentlich breiter als die Schreibpulse und leuchtet so den Bereich, in dem sich ein Gitter bilden kann, weitgehend homogen aus. Zur Justage des Lesestrahls auf den Braggwinkel und das Intensitätsmaximum der Schreibstrahlen auf dem Kristall stellen wir eine Verzögerung Δt von wenigen Pikosekunden zwischen Schreib- und Lesepuls ein. Das Optimum findet man dann, indem man durch Variation der jeweiligen Größe die Energie der abgebeugten Pulse maximiert.

Auf den Braggwinkel und das Maximum der Schreibpulse auf dem Kristall wird der Lesestrahl justiert, indem bei einer Verzögerung von wenigen Pikosekunden zwischen Schreib- und Lesepuls die Energie der abgebeugten Pulse maximiert wird.

Die wichtigste Messgröße ist erneut der Beugungswirkungsgrad η , hier definiert durch Gl. 2.14 mit $\mathcal{E}_{\text{Diff}}$ als der Energie des abgebeugten und $\mathcal{E}_{\text{Trans}}$ als der des transmittierten Pulses.

4.1.2 Ergebnisse 1K-Gitter

Messungen unter dem Bragg-Winkel für das 1K-Gitter wurden von Hsieh et al. und Sturman et al. vorgestellt und sollen hier nur aufgegriffen werden, um sie mit den Messungen in der 2K-Anordnung vergleichen zu können [22, 23]. Ein typischer Datensatz dieser Messung ist in Abb. 4.2 dargestellt: Trägt man den Beugungswirkungsgrad η über der Zeitverzögerung Δt auf, so beobachtet man einen Wert von nahezu Null, dann einen steilen Anstieg zu einem Maximum und schließlich einen Abfall auf einen Wert, der dann für viele Pikosekunden nahezu konstant bleibt. Auch dieses „Plateau“ fällt schließlich, im Bereich von Mikro- bis Millisekunden, auf Null ab.

Das Maximum wird im Wesentlichen durch den optischen Kerr-Effekt verursacht; des Weiteren spielt auch ein Absorptionsgitter aufgrund der Zwei-Farben-Zwei-Photonen-Absorption eine Rolle. Da beide Effekte bei der Intensitätsspitze der Schreibstrahlen am Stärksten sind und folglich dort die Abbeugung am größten ist, setzen wir beim Maximum $\Delta t = 0$. Eine zusätzliche Information, wann Schreib- und Lesepulse gleichzeitig mit ihren Intensitätsmaxima auf den Kristall treffen, gibt es nicht.

Der lang anhaltende Effekt wird durch ein Absorptionsgitter erklärt [22, 23]. Es ist bekannt, wie Femtosekundenpulse der Wellenlänge 388 nm eine lichtinduzierte Absorption für Lesepulse im Infraroten bewirken [21, 24, 25]: Elektronen werden aus

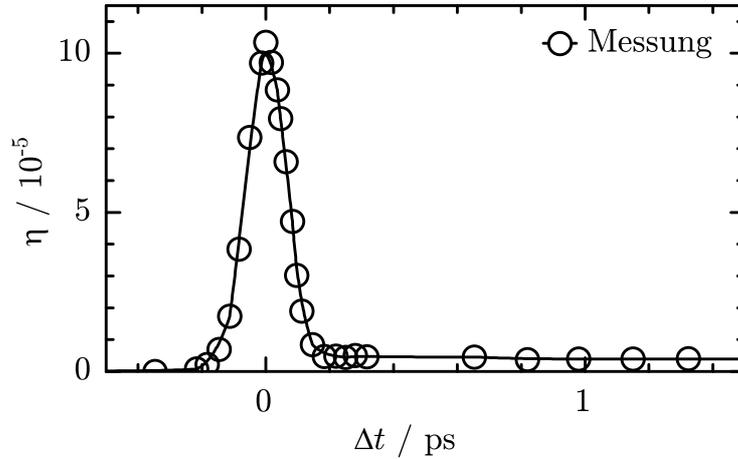


Abbildung 4.2: *Beugungswirkungsgrad η über der Verzögerungszeit Δt zwischen Schreib- und Leseimpulsen. Typische 1K-Messung mit einem Kristall der Dicke $70 \mu\text{m}$: Schreib- und Leseimpulse sind außerordentlich polarisiert, die Spitzenintensität (Summe) liegt bei $34 \text{ GW}/\text{cm}^2$. Die Linie zwischen den Messpunkten dient der Augenführung.*

dem Valenzband angeregt und bilden kleine gebundene Polaronen, die ein Absorptionsmaximum um 780 nm besitzen [25]. In unserer Anordnung wird diese Absorption strukturiert als Gitter induziert und wirkt somit als Absorptionsgitter.

Unter anderem aufgrund der Intensitätsabhängigkeit des Plateaus wird davon ausgegangen, dass die Anregung der Ladungsträger durch Zwei-Photonen-Absorption erfolgt [24]. Allerdings ist diese Anregung nur schwer von eventuellen zusätzlichen (gleichzeitig stattfindenden) linearen Anregungen zu trennen. Durch die im Folgenden vorgestellten 2K-Messungen ist es aber erstmals möglich, lediglich den auf Zwei-Photonen-Absorption basierenden Absorptionsanteil zu beobachten und dessen Anstieg ohne überlagernde Störungen (Kerr, Zwei-Farben-Zwei-Photonen-Absorption) zu messen.

4.1.3 Ergebnisse der 2K-Holographie

Das Ergebnis einer typischen Messung mit dem Auslesewinkel für das 2K-Gitter ist in Abb. 4.3 gezeigt. Die relative Variation der Punkte beträgt im Bereich des Plateaus etwa $10 - 15\%$ und nimmt mit fallender Schreibpulsenergie zu.

Es fällt zunächst auf, dass im Vergleich zur 1K-Messung kein Maximum mehr vorhanden ist. Stattdessen beobachtet man einen monotonen Anstieg des 2K-Beugungswirkungsgrades von $\eta_{2K} = 0$ auf den Plateauwert $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$. Die Anstiegszeit ist etwa gleich der Pulsdauer der Schreib- und Leseimpulse.

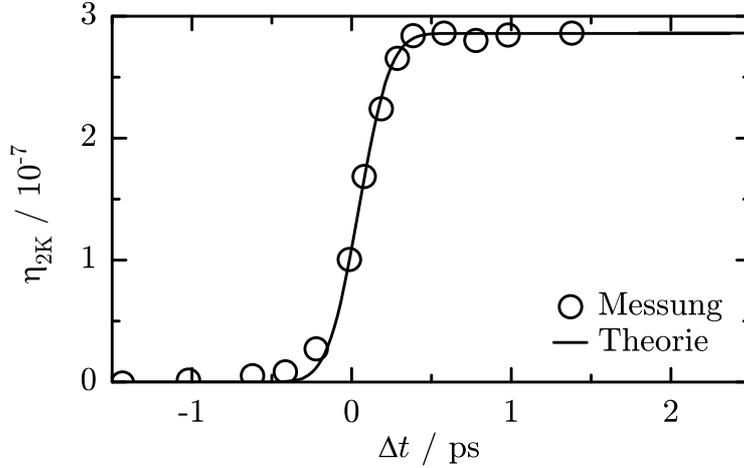


Abbildung 4.3: Beugungswirkungsgrad η beim Auslesen des 2K-Gitters als Funktion der Probe-Verzögerung Δt . Schreib- und Lesepulse sind außerordentlich polarisiert, die Summe der Schreibpulsintensitäten beträgt 40 GW/cm^2 . Jeder Punkt ist eine Mittelung über etwa 100 aufeinanderfolgende Messungen bei 10 Hz Repetitionsrate. Die Lage von $\Delta t = 0$ ergibt sich aus der dargestellten Anpassung der Theoriekurve, die in Abschnitt 5.1.3 erläutert wird.

Der im Plateau erreichte Wert von $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ liegt dagegen deutlich unter den bei 1K-Messungen beobachteten Größen. Er wächst monoton mit der Spitzenintensität der Schreibpulse I_{Puls} . Trägt man seinen Wert als Funktion der Schreibintensität I_{Puls} in einem doppellogarithmischen Diagramm auf (Abb. 4.4), so erkennt man zwei Bereiche: Für kleine Intensitäten steigt $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ mit I_{Puls}^4 , für große Intensitäten mit I_{Puls}^2 . Beide Abhängigkeiten sind im Diagramm 4.4 durch die Geraden mit Steigung 4 bzw. 2 angezeigt, an die sich die Datenpunkte anschmiegen. Der Übergang zwischen beiden Bereichen liegt im Fall dieser Messung bei etwa

$$I_{\text{Puls}} = [\beta_{2\gamma}(388 \text{ nm})d]^{-1} = 40 \text{ GW/cm}^2, \quad (4.1)$$

wobei I_{Puls} wieder die Summe der Spitzenintensitäten beider Schreibpulse bezeichnet, $\beta_{2\gamma}(388 \text{ nm}) \simeq 3,5 \text{ cm/GW}$ der Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizient bei 388 nm [21, 43] und d die Kristalldicke ist. Die gezeigten Daten gelten für außerordentlich polarisiertes Schreib- und Leselicht. Ist das Leselicht ordentlich polarisiert, ist der gemessene Beugungswirkungsgrad etwas größer, ansonsten zeigen die Daten die gleiche Abhängigkeit.

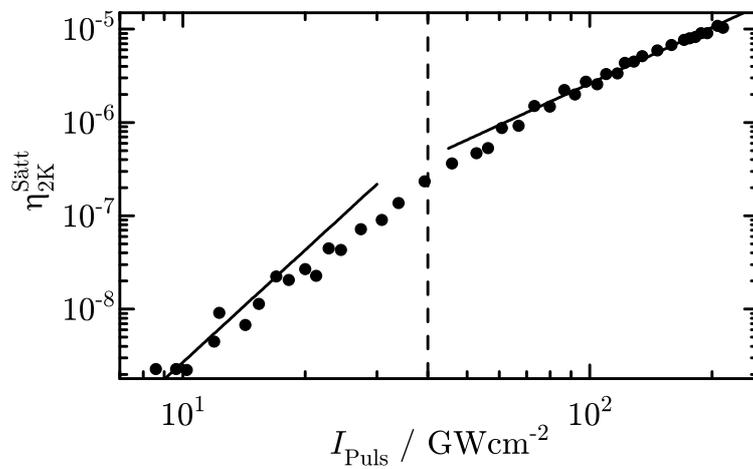


Abbildung 4.4: Abhängigkeit des Sättigungs-Beugungswirkungsgrades $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ von der Pulsintensität I_{Puls} bei 2K-Messungen. Die Punkte markieren jeweils die gemittelten Ergebnisse von 400 aufeinanderfolgenden Messungen mit außerordentlich polarisierten Schreib- und Tastpulsen bei 10 Hz Repetitionsrate. Die durchgezogenen Linien markieren die Abhängigkeiten $\eta_{2K}^{\text{Sätt}} \propto I_{\text{Puls}}^4$ für niedrige Pulsintensitäten bzw. $\eta_{2K}^{\text{Sätt}} \propto I_{\text{Puls}}^2$ im Bereich hoher Spitzenintensitäten. Die gestrichelte Linie bei der Schreibintensität $I_{\text{Puls}} = 40 \text{ GW/cm}^2$ markiert die Grenze zwischen diesen Bereichen.

4.2 Photorefraktive Gitter

Nachdem die Bildung von Polaronen mit etwa 100 fs Zeitauflösung untersucht wurde, spielen sich die folgenden Messungen auf der wesentlich langsameren Zeitskala von einigen Sekunden ab. Es soll herausgefunden werden, wie sich die zuvor beobachteten schnellen Prozesse auf die Photorefraktion in LiNbO_3 auswirken.

Dafür wird zunächst das Schreiben photorefraktiver Gitter in eisendotierten Kristallen untersucht, besonders im Hinblick auf Unterschiede zwischen einer Folge vieler Pulse oder Dauerstrich-Licht als Schreiblicht. Der Aufbau ähnelt dem zur transienten Holographie aus Abschnitt 4.1.1 stark, da ebenfalls durch ein Interferenzmuster Gitter erzeugt und anschließend ausgelesen werden. Die andere Zeitskala bringt aber naturgemäß einige Unterschiede mit sich, insbesondere die für den Versuch benötigte Stabilität betreffend.

4.2.1 Aufbau

Leistung und Polarisation des Schreibstrahls der Wellenlänge $\lambda_S = 532 \text{ nm}$ (Dauerstrich oder Pulse) werden wie in Abschnitt 3.1 geschildert eingestellt, bevor der Strahl in den in Abb. 4.5 skizzierten Aufbau geführt wird. Ein dielektrischer Strahlteiler spaltet ihn dort in zwei Strahlen gleicher Leistung auf. Der reflektierte Teilstrahl trifft auf zwei Silberspiegel, die auf einem Mikrometer-Verschiebetisch montiert sind, und wird von diesen auf den Kristall gelenkt. Das durch den Strahlteiler transmittierte Licht wird an nur einem Silberspiegel auf einem linearen Piezotranslator reflektiert, bevor es den anderen Strahl auf der Kristalloberfläche unter einem Winkel von $2\theta'_S = 8,4^\circ$ trifft. Dabei bezeichnet θ'_S den Schreibwinkel außerhalb des Kristalls. Der Durchmesser ρ der Schreibstrahlen variiert für verschiedene Messrei-

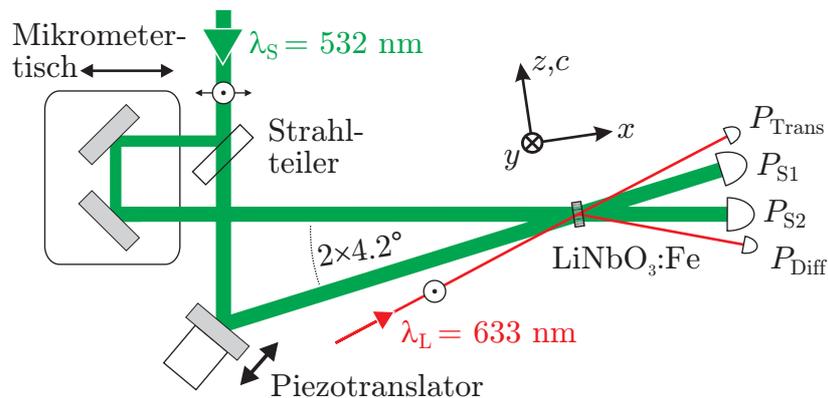


Abbildung 4.5: Experimenteller Aufbau zur Untersuchung photorefraktiver Gitter (Skizze).

hen im Bereich 1,3...2,7 mm für Pulse und 2,0...3,3 mm für Dauerstrich-Licht. Schreibintensität \hat{I} und (für Pulse) Energieflussdichte Φ_{Puls} bezeichnen stets die Summe dieser Größen für beide Schreibstrahlen im Kristall.

Brechungsindexgitter, die sich im Kristall entwickeln, werden mit einem ordentlich polarisierten Lichtstrahl des HeNe-Lasers bei 633 nm im Bragg-Winkel ausgelesen. Während mit Dauerstrich-Licht beim Schreiben ein Gitter über die gesamte Breite des Kristalls entsteht, ist dies für Pulse nur in einem schmalen Streifen der Fall, vgl. Abschnitt 2.5.2. Daher wird der Lesestrahl durch Hilfe einer 1500 mm-Linse so auf einen FWHM-Durchmesser von etwa 100 μm fokussiert, dass der Kristall im Rayleigh-Bereich des Fokus liegt. Der Lesestrahl im Kristall ist damit schmaler als der Interferenzstreifen zwischen den Schreibpulsen, und das Gitter kann über die Breite des Lesestrahls in guter Näherung als homogen betrachtet werden. Eine Unterscheidung zwischen dem Lesen von Dauerstrich-Licht- und pulsgeschriebenen Gittern ist daher nicht erforderlich. Der Lesestrahl lässt sich mit Hilfe eines Spiegels auf einem Verschiebetisch horizontal, also parallel zur Ebene der Schreibstrahlen, verschieben und in seiner horizontalen und vertikalen Richtung verändern. Das Löschen der photorefraktiven Gitter durch den Lesestrahl kann vernachlässigt werden, da dieser ausreichend abgeschwächt und immer nur kurz zum Auslesen auf den Kristall gegeben wird.

Hinter dem Kristall werden sowohl die beiden Schreibstrahlen als auch der transmittierte und der am Gitter gebeugte Lesestrahl auf Silizium-Photodioden geführt. Deren Signale werden dann wie in Abschnitt 3.2 beschrieben für Dauerstrich- und Pulslicht unterschiedlich verarbeitet, um die mittleren Leistungen der Schreibstrahlen hinter dem Kristall (P_{S1} , P_{S2}) sowie die des transmittierten (P_{Trans}) und gebeugten Lesestrahls (P_{Diff}) zu ermitteln. Aus den letzten beiden Größen bestimmen wir den Beugungswirkungsgrad η gemäß Gl. 2.13. Daraus ergibt sich die vorliegende Brechungsindexmodulation $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ durch Gl. 2.16.

Der Kristall mit den Abmessungen $x = d = 0,5$ mm, $y = 0,8...1,2$ mm und $z = 1$ mm ist in einem Kristallhalter auf einem motorisierten Drehtisch montiert und kann um die vertikale (\hat{z} -)Achse rotiert werden, um die Winkelselektivität der Gitter zu messen. Zusätzlich kann der Halter zur Ausrichtung des Kristalls um die z -Achse geneigt werden. Da die Schreibstrahlen breiter als 1 mm sind, kann entlang der horizontalen z -Achse von einer vollständigen, weitgehend homogenen Beleuchtung ausgegangen werden. Die z -Flächen des Kristalls sind mit Leitsilber bedeckt und miteinander kurzgeschlossen. Dieser Kurzschluss und die vollständige Beleuchtung verhindern den Aufbau makroskopischer elektrischer Felder entlang der z -Achse, die das Schreiben der Gitter behindern könnten.

4.2.2 Stabilisierung des Aufbaus

Zur transienten Holographie (Abschnitt 4.1) ist eine Stabilisierung des Aufbaus nicht nötig: Das Auslesen des einzelnen Gitters hängt nicht von dessen Phasenlage ab, und die vom vorherigen Puls erzeugten Gitter sind beim Eintreffen des folgenden Schreibpulses bereits zerfallen, daher ist deren relative Phasenlage nicht relevant. Der einzelne Puls ist außerdem so kurz, dass Änderungen des Aufbaus während dieser Zeit vernachlässigbar klein sind.

Beim Schreiben photorefraktiver Gitter ist die Situation dagegen anders: Diese Gitter bauen sich kumulativ über viele Pulse oder während dauerhafter Beleuchtung auf. Daher muss das Interferenzmuster der Schreibstrahlen räumlich stabil sein. Ändert sich die Phasenlage ϕ_S zwischen den Schreibstrahlen, so ändert sich die Phase des Interferenzmusters um den gleichen Wert; eine Verschiebung um π führte zu einer Umkehrung des Interferenzmusters, und anstatt zu Schreiben würde nun gelöscht. Daher muss beim hier besprochenen Aufbau die Langzeitstabilität des Interferenzmusters gewährleistet sein.

Passive Stabilisierung

Die Stabilität des Aufbaus in Abb. 4.5 lässt sich prüfen, indem man an die Stelle des Kristalls einen Strahlteiler setzt, so dass die Schreibstrahlen dahinter in kleinem Winkel interferieren. Die Verschiebungen dieses Interferenzmusters entsprechen den Änderungen von ϕ_S . Man betrachtet nun die Intensität an zwei Punkten, die etwa eine viertel Periodenlänge des Musters auseinander liegen. Daraus lässt sich $\phi_S(t)$ auch über π hinaus eindeutig rekonstruieren.

Ein großer (Länge der Interferometerarme etwa 120 cm), offener Aufbau auf dem luftgelagerten optischen Tisch zeigt Schwankungen von ϕ_S um π auf der Skala von rund einer Sekunde. Der größte Anteil davon lässt sich durch Luftverwirbelungen erklären, die den Brechungsindex der Luft und damit die optischen Weglängen verändern: Deckt man den Aufbau mit einer Kiste ab und verringert somit die Luftbewegung, gehen die schnellen Schwankungen deutlich zurück. Es bleiben allerdings Driftbewegungen von ϕ_S mit einer Geschwindigkeit von etwa $\pi/(500 \text{ s})$ erkennbar. Verkleinert man den Aufbau auf etwa $1/3$ der ursprünglichen Größe, reduzieren sich diese Änderungen ebenfalls auf etwa $1/3$.

Die verbleibenden Schwankungen sind in Abb. 4.6 gemeinsam mit der Lufttemperatur im abgedeckten Aufbau gezeigt. Offenbar ist die Temperatur die wesentliche Ursache für die beobachteten Änderungen. Da die Temperatur im Labor nicht besser stabilisiert werden kann, müssen die verbleibenden Änderungen durch eine aktive Stabilisierung ausgeglichen werden.

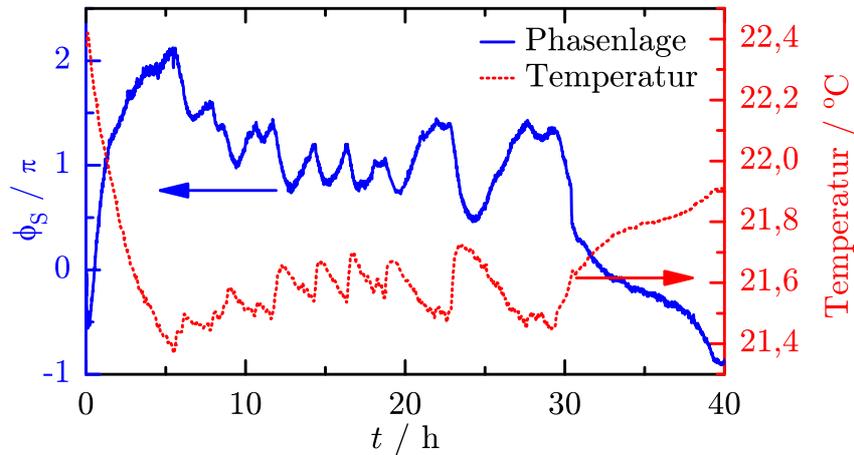


Abbildung 4.6: Drift von Phasenlage ϕ_S zwischen den Schreibstrahlen und Lufttemperatur im abgedeckten, kompakten Aufbau (siehe Text) als Funktion der Zeit.

Aktive Stabilisierung

Für eine aktive Stabilisierung des Aufbaus müssen Längenänderungen der Schreibarme detektierbar sein. In Aufbauten zur Holographie verwendet man dazu oft direkt das Interferenzmuster der Schreibstrahlen und stabilisiert darauf. Diese einfache Lösung ist hier nicht möglich, denn im Aufbau sollen Pulse und Dauerstrich-Licht zum Schreiben eingesetzt werden, und diese müssten unterschiedlich detektiert werden. Jeder Schreiblichtwechsel zöge daher einen Umbau der Stabilisierung nach sich. Es wäre ohnehin schwierig, auf das Interferenzmuster der Pulse zu stabilisieren, da dieses nur einmal je Millisekunde, bei niedrigeren Repetitionsraten noch seltener, verfügbar ist.

Daher entschließen wir uns, in unserem Aufbau einen alternativen Weg zu beschreiben: Längenänderungen zwischen den beiden Armen des Interferometers werden mit einem Dauerstrich-Hilfslaserstrahl (Wellenlänge 633 nm) gemessen. Sein Verlauf ist in Abb. 4.7 dargestellt: Der Strahl wird am Strahlteiler aufgespalten und läuft etwa parallel zu den Schreibstrahlen entlang der gleichen Spiegel durch den Aufbau. Die beiden Teilhilfsstrahlen kreuzen sich schließlich unmittelbar unterhalb des Kristalls auf einer Gradientindex-Zylinderlinse der Brennweite 0,48 mm, hinter der in 3,5 mm Abstand das Ende einer Monomode-Glasfaser fixiert ist, die das empfangene Licht zu einer Photodiode leitet. Die Linse vergrößert das Interferenzmuster der sich überlagernden Hilfsstrahlen etwa 7-fach, so dass der Glasfaserkern mit 9 μm ausreichend klein ist, um darüber deutlich weniger als eine Periode des vergrößerten Musters zu beobachten. Im Gegensatz zu einer sphärischen Linse fächert die Zylinderlinse das Muster nur in einer Ebene auf, was zu einer wesentlich höheren Intensität am Faserende führt.

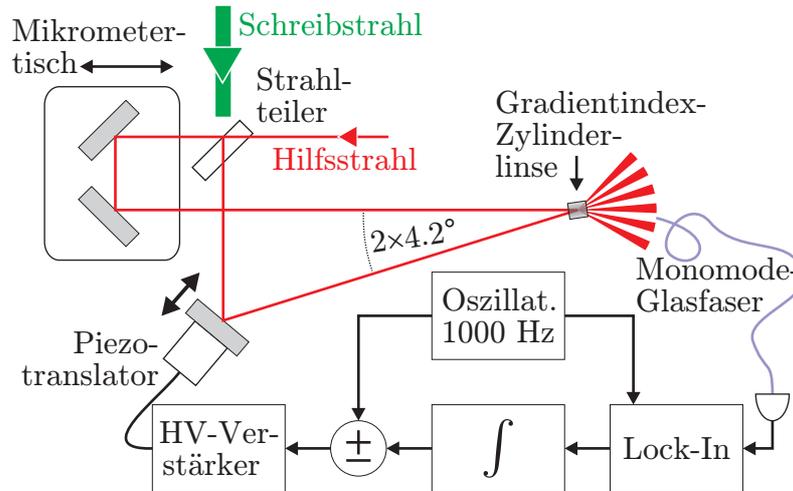


Abbildung 4.7: Schema zur aktiven Stabilisierung des Schreibaufbaus. Der Hilfsstrahl verläuft unterhalb der in Abb. 4.5 gezeigten Strahlebene. Er trifft den Strahlteiler von der anderen Seite als der Schreibstrahl, wird aber an der gleichen Fläche geteilt. Beide Teilhilfsstrahlen treffen sich auf einer Gradientindex-Zylinderlinse unterhalb des Kristalls. Im vergrößerten Interferenzmuster dahinter greift eine Monomode-Glasfaser Licht ab und leitet es zu einer Photodiode. Über die im unteren Bildteil gezeigte Rückkopplung wird ein Piezotranslator so geregelt, dass das Muster stationär bleibt.

Die Länge eines Schreibarms kann über den Piezotranslator verändert werden. Dieser wird über einen unten in Abb. 4.7 gezeigten Regelkreis mit dem Signal der Photodiode angesteuert: Ein Oszillator erzeugt eine sinusförmige Spannung bei etwa 1 kHz. Dieses Signal wird über einen Hochspannungsverstärker auf den Piezotranslator gegeben, so dass die Länge dieses Schreibarms um etwa $\lambda_S/20$ schwankt, und in der gleichen Weise „zittert“ nun das Interferenzmuster ein wenig. Ein Lock-In-Verstärker misst die Stärke der Schwankungen des Photodiodensignals bei der Frequenz ν_{Osz} des Oszillators und gibt ein zur Amplitude proportionales Ausgangssignal, wobei auch die Phasenlage zwischen Oszillator und Signal berücksichtigt wird. Das aufintegrierte Signal des Lock-In-Verstärkers wird schließlich zum Oszillatorsignal am Eingang des Hochspannungsverstärkers addiert, wobei man das Signal des Integrators noch invertieren kann.

Liegt das Ende der Glasfaser genau in einem Maximum oder Minimum des Interferenzmusters (Umkehrpunkt), so schwankt die Intensität nicht bei ν_{Osz} , und das Ausgangssignal des Integrators und damit die mittlere Position des Piezotranslators ist konstant. Allerdings ist einer dieser beiden Punkte labil, abhängig vom gewählten Vorzeichen für das Integratorsignal. Zwischen beiden Punkten ändert sich die Integratorspannung in Richtung der stabilen Lage, bis die Glasfaser im Umkehrpunkt des Interferenzmusters liegt. Kleine, langsame Änderungen von ϕ_S verschieben das

Muster etwas aus dem Gleichgewicht, und die Regelung kompensiert diese Änderung, bis es wieder erreicht ist. Auf diese Weise wird der optische Weglängenunterschied der beiden Arme konstant gehalten, was zu einem stabilen Interferenzmuster der Schreibstrahlen im Kristall führt.

Die Zylinderlinse und der Anschluss für die konfektionierte Glasfaser sind in den Kristallhalter integriert; damit ist die Einrichtung des Systems einfach. Da die Faser sehr platzsparend vom Halter weggeführt werden kann und kein Detektor direkt am Halter nötig ist, hat man im Gegensatz zu konventionellen Lösungen mehr Platz für Untersuchungen im Raum hinter dem Kristall.

4.2.3 Justage

Zur Justage des Aufbaus werden zunächst die Schreibstrahlen mittig auf den Kristall im Halter (maximale Transmission) und auf die gleiche Höhe (siehe Abschnitt 3.2.2) ausgerichtet. Der zu untersuchende Kristall wird mit Hilfe des Drehtischs und der Neigung des Halters so ausgerichtet, dass die Reflexe der Schreibstrahlen in den jeweils anderen Schreibstrahl laufen. Damit fallen die Schreibstrahlen symmetrisch auf den Kristall.

Durch Verschieben des Mikrometertischs im einen Schreibarm können die optischen Wegstrecken der Schreibstrahlen aneinander angeglichen werden. Das ist besonders für die Versuche mit Pulsen von großer Bedeutung: Da die Pulse weniger als 200 fs dauern, müssen die Weglängen bis auf wenige μm übereinstimmen. Wie in Abschnitt 2.5.2 beschrieben, interferieren die Pulse nur in einem Streifen, der für unsere experimentellen Parameter schmaler ist als der geometrische Strahldurchmesser. Durch eine Veränderung der Verzögerung verschiebt sich der Interferenzstreifen in der Ebene der Schreibstrahlen und senkrecht zu deren Winkelhalbierender.

Zur Ausrichtung des Streifens in die Kristallmitte muss zunächst seine Lage bestimmt werden. Da der Streifen selbst nicht direkt zugänglich ist, misst man stattdessen die Lage des zugehörigen Hologramms. Man bestrahlt dazu einen eisendotierten Kristall für einige Sekunden mit den interferierenden Schreibpulsen. Der Lesestrahl wird auf den Braggwinkel eingestellt, über die Vorderfläche des Kristalls in z -Richtung verfahren, also parallel verschoben, und dabei die Leistung des abgebeugten Strahls bestimmt. Das Ergebnis einer solchen Messung ist in Abb. 4.8 gezeigt, wobei der verwendete Kristall breiter ist als die sonst in diesem Abschnitt verwendeten Proben. Da der Lesestrahl deutlich schmaler als das Hologramm ist, liefert die Messung Aufschluss über dessen Position und nebenbei auch dessen Breite. Aus der Position lässt sich die notwendige Verschiebung des Mikrometertischs bestimmen, um den Interferenzstreifen zentral im Kristall zu positionieren.

Durch die zwei horizontalen Freiheitsgrade des Lesestrahls ist es möglich, sowohl den Auslesewinkel einzustellen als auch den Strahl auf das photorefraktive Gitter

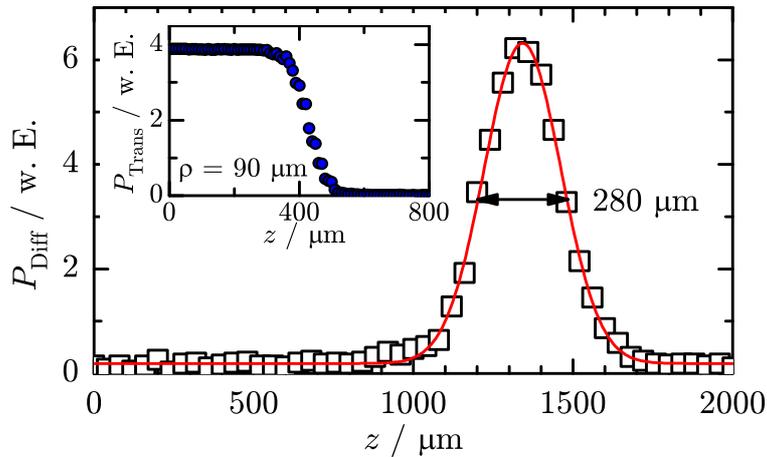


Abbildung 4.8: Bestimmung der Lage und Breite eines schwachen, mit Pulsen geschriebenen Hologramms in einem unbehandelten EQ2-Kristall. Angegeben ist die aus dem Lesestrahle abgebeugte Leistung P_{Diff} als Funktion von dessen z -Position, also entlang der horizontalen Achse. Die durchgezogene Linie ist die Anpassung einer gaußschen Normalverteilung mit $280 \mu\text{m}$ Halbwertsbreite. Der eingesetzte Graph zeigt eine analoge Messung, hier wird allerdings anstatt des Kristalls eine Rasierklinge mit der Kante entlang der y -Richtung verwendet und die transmittierte Leistung P_{Trans} bestimmt. Die Anpassung von Gl. 3.1 ist als durchgezogene Linie eingetragen und liefert eine FWHM-Breite des Lesestrahls in der Kristallebene von $\rho = 90 \mu\text{m}$.

zu zentrieren. Um den Strahl zu justieren, wird er in horizontaler und vertikaler Richtung so eingestellt, dass das Signal des abgebeugten Strahls maximal wird und der Lesestrahle somit im Zentrum des Interferenzstreifens liegt. Horizontal wird er dazu ohne Winkeländerung verschoben. Zur Optimierung der vertikalen Position des Lesestrahls auf dem Kristall ändern wir die Richtung des Strahls mit dem Spiegel leicht. Der erzielbare Beugungswirkungsgrad ist in dieser Richtung sehr unempfindlich gegen kleine Abweichungen vom optimalen Einfallswinkel, und die Abweichung des Strahls von der Schreibstrahlebene beträgt stets weniger als $0,1^\circ$. Durch diese Justage und die vorherige Optimierung des Braggwinkels wird der Lesestrahle auf die Lage und den Winkel der Schreibstrahlen justiert, unabhängig vom verwendeten Kristall. Daher ist es auch möglich, an dieser Stelle den Kristall im Halter zu wechseln, ohne diesen Ablauf erneut durchführen zu müssen. So lassen sich auch Kristalle untersuchen, die kein oder nur ein sehr schwaches photorefraktives Gitter aufbauen und bei denen die Justage sehr schwierig wäre.

4.2.4 Ablauf der Messung

Während des Schreibens wird der Kristall mit den beiden interferierenden Schreibstrahlen beleuchtet. In regelmäßigen Abständen werden die Schreibstrahlen für den Bruchteil einer Sekunde durch einen mechanischen Verschluss unterbrochen, gleichzeitig wird der Lesestrahl freigegeben und der Beugungswirkungsgrad bestimmt. Der Lesestrahl wird dann wieder unterbrochen und der Schreibvorgang fortgesetzt.

Nach Abschluss der Messung werden die vorhandenen Gitter mit homogenem Licht gelöscht. Bei Experimenten mit Dauerstrich-Licht wird dazu einer der beiden Schreibstrahlen unterbrochen. Für fs-Pulse reicht es dagegen aus, in einen der Arme eine Glasplatte der Dicke 1 mm zu halten, die den optischen Weg in diesem Arm um ca. 500 μm verlängert. Durch beide Veränderungen kommt es nicht mehr zur Interferenz. Fiele das kohärente Löschlicht allerdings im Braggwinkel, also aus der gleichen Richtung wie beim Schreiben, auf das Gitter, käme durch die Beugung erneut ein Interferenzmuster mit der Periodenlänge des zu löschenden Gitters zustande, und das Gitter würde zum Teil wieder neu geschrieben. Daher wird der Kristall während des Löschvorgangs in wechselnder Richtung um $\pm 3^\circ$ um die y -Achse aus seiner Schreibposition herausgedreht, um Löschen unter dem Bragg-Winkel zu vermeiden. Zum Teil wurde das Löschen auch mit dem inkohärenten Licht der Kaltlichtlampe durchgeführt. Eine Wartezeit von 30 min stellt sicher, dass kleine Bewegungen durch eine mögliche Erwärmung und anschließende Abkühlung von Kristall und Halter bei der folgenden Messung nicht zu Instabilitäten führen.

4.2.5 Messungen mit unbehandelten Kristallen

Typische Schreibkurven sind in Abb. 4.9 zu sehen. Hier ist der Verlauf der Amplitude Δn_0 der Brechungsindexänderung bei verschiedenen mittleren Intensitäten als Funktion der Zeit dargestellt für Dauerstrich-Licht und Pulse ordentlicher und außerordentlicher Polarisation. Die Brechungsindexmodulation steigt für alle Beispiele an und erreicht schließlich ein Gleichgewicht. Während die Kurven für das Schreiben mit Pulslicht monoton ansteigen, zeigt sich für Dauerstrich-Licht ein Maximum, nach dem Δn_0 schließlich auf den Sättigungswert abfällt. Dieser Abfall von Δn_0 ist für außerordentliches Dauerstrich-Licht wesentlich ausgeprägter. Sein Verlauf fällt zusammen mit einer Abnahme der hinter dem Kristall gemessenen Leistung der Schreibstrahlen $P_{S1} + P_{S2}$, wie in Abb. 4.10 erkennbar ist. Daher liegt ein Zusammenhang mit lichtinduzierter oder holographischer Streuung nahe.

Um den Schreibvorgang quantitativ zu erfassen, passen wir daran die von der Zeit t abhängige Monoexponentialfunktion 2.7 an, woraus wir den Sättigungswert $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ der Brechungsindexänderungen und die Maxwellzeit τ_M erhalten. Für die Dauer-

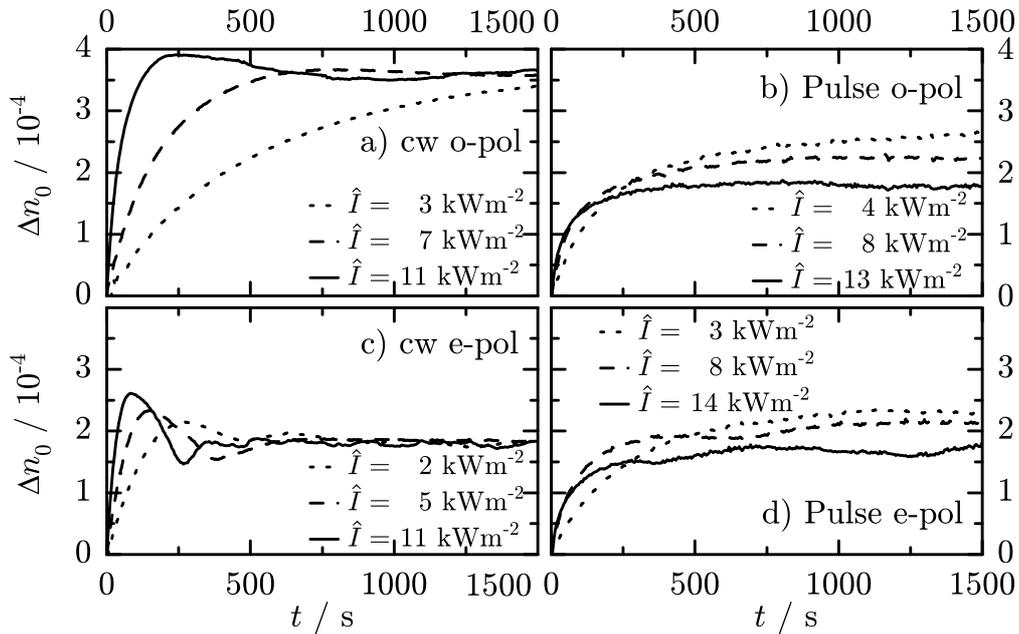


Abbildung 4.9: Schreibkurven in einem unbehandelten EQ2-Kristall: Aufgetragen ist die Brechungsindexmodulation Δn_0 über der Schreibzeit t für verschiedene Schreibintensitäten \hat{I} für Schreibprozesse mit a) ordentlich polarisiertem Dauerstrich-Licht (cw), b) ordentlich polarisiertem Pulslicht, c) außerordentlich polarisiertem Dauerstrich-Licht, und d) außerordentlich polarisiertem Pulslicht.

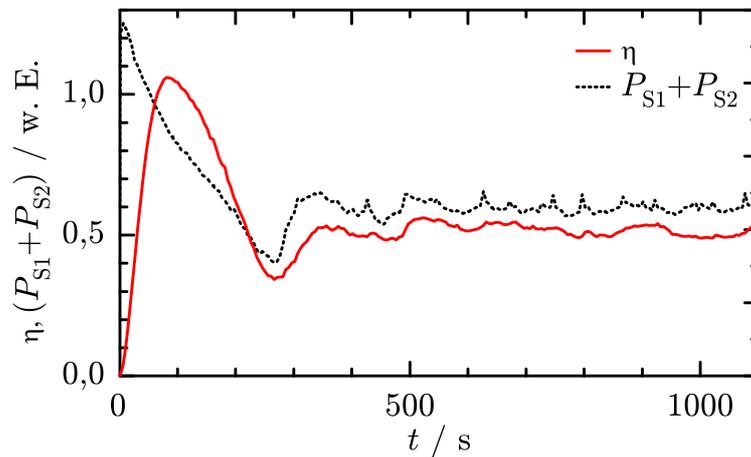


Abbildung 4.10: Vergleich der zeitlichen Verläufe des Beugungswirkungsgrades η und der Summe $P_{S1} + P_{S2}$ der Schreibstrahl-Leistungen hinter einem unbehandelten EQ2-Kristall. Beide Größen sind in willkürlichen Einheiten aufgetragen. Geschrieben wird mit außerordentlich polarisiertem Dauerstrich-Licht der Intensität $\hat{I} = 11 \text{ kW/m}^2$.

strich-Kurven wird die Anpassung nur bis zum Erreichen des Maximums durchgeführt.

In Abb. 4.11 sind die Intensitätsabhängigkeiten von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ und τ_M^{-1} für einen unbehandelten EQ2-Kristall dargestellt. In der doppellogarithmischen Auftragung von τ_M^{-1} zeigen alle Serien eine Steigung von $0,9 \pm 0,1$, das heißt, die Abhängigkeit von der Intensität ist in etwa linear. Auch die Steigung τ_M^{-1}/\hat{I} dieser linearen Abhängigkeit ist für Dauerstrich-Licht und Pulse etwa gleich.

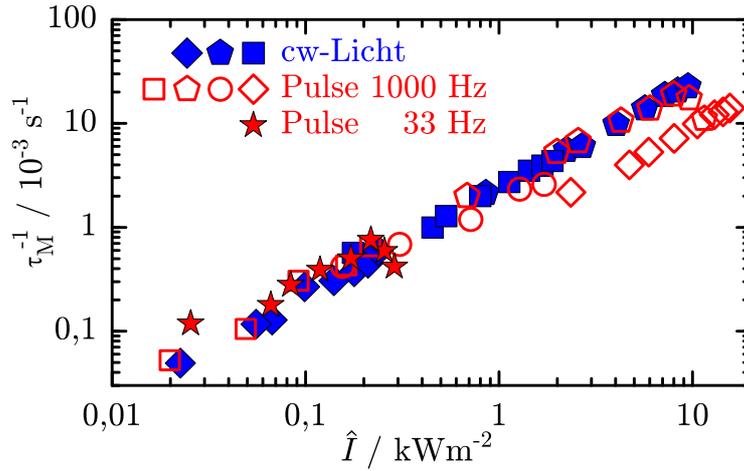


Abbildung 4.11: Abhängigkeit der inversen Schreibzeit τ_M^{-1} von der mittleren Schreibintensität \hat{I} in unbehandeltem $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ des Boules EQ2. Verschiedene Symbole repräsentieren unterschiedliche Messreihen.

Wie in Abb. 4.12 a) zu sehen, ist die Sättigungsbrechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ für Dauerstrich-Licht weitgehend unabhängig von der Intensität. Für niedrige Intensitäten liegt der Wert bei den Versuchen mit Pulslicht bei 1000 Hz im gleichen Bereich, fällt aber dann oberhalb einer Intensität von etwa 1 kW/m^2 ab. Die genauen Parameter des Rückgangs sind für die beiden gezeigten Mess-Serien etwas unterschiedlich, aber das generelle Verhalten stimmt überein.

Um zu überprüfen, ob wirklich die mittlere Intensität \hat{I} der entscheidende Parameter ist, führen wir diese Messung erneut, aber nun mit der Repetitionsrate 33 Hz durch. Dies ist in Abb. 4.12 b) zusammen mit den schon in Abb. 4.12 a) gezeigten Messungen bei 1000 Hz über der Energieflussdichte Φ_{Puls} eines Pulses aufgetragen. Über diesem Parameter ist für die Messreihen mit beiden Repetitionsraten ein ähnlicher Abfall von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ zu beobachten, obwohl sich die mittlere Intensität \hat{I} zwischen den Pulsen der beiden Repetitionsraten bei gleicher Energieflussdichte um einen Faktor 30 unterscheidet.

Auch unbehandelte nominell undotierte LiNbO_3 -Kristalle werden in diesem Zusammenhang untersucht. In ihnen ist kein Aufbau von Gittern beobachtbar.

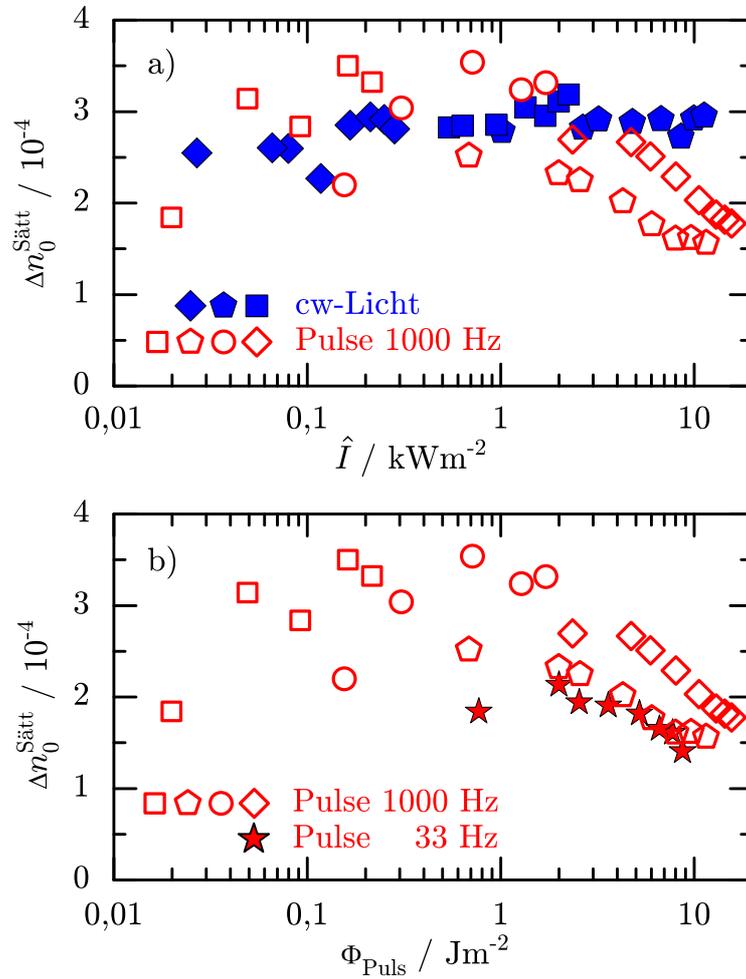


Abbildung 4.12: Abhängigkeit der Sättigungsbrechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ von der Beleuchtungsstärke in einem unbehandelten EQ2-Kristall. a) Der obere Graph zeigt die Messungen für Dauerstrichlicht und für Pulslicht bei 1000 Hz Repetitionsrate. Hier ist $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ über der mittleren Intensität \hat{I} aufgetragen. b) Der untere Graph dient dem Vergleich von Messungen mit Pulslicht bei den Repetitionsraten $\nu_{\text{Rep}} = 1000 \text{ Hz}$ und $\nu_{\text{Rep}} = 33 \text{ Hz}$. Hier ist $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ in Abhängigkeit von der Energieflussdichte Φ_{Puls} der einzelnen Pulse dargestellt. Die Symbole entsprechen verschiedenen, unabhängigen Messreihen, die mit den gleichen Symbolen auch in Abb. 4.11 gezeigt sind.

4.2.6 Messungen mit oxidierten Kristallen

Analog führen wir Versuche auch mit oxidierten $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ -Kristallen durch. Auch hier ist das Schreiben von Gittern sowohl mit Dauerstrich-Licht als auch mit fs-Pulsen möglich, aber man beobachtet große Unterschiede in den Schreibzeiten für ähnliche mittlere Intensitäten. In Abb. 4.13 sind Schreibkurven für Dauerstrich-Licht und Pulse gezeigt, aber man beachte die verschiedenen Zeitskalen: Obwohl die mittlere Intensität \hat{I} gleich ist, werden in diesem Fall die Gitter mit Pulsen etwa 50-mal so schnell geschrieben wie mit Dauerstrich-Licht.

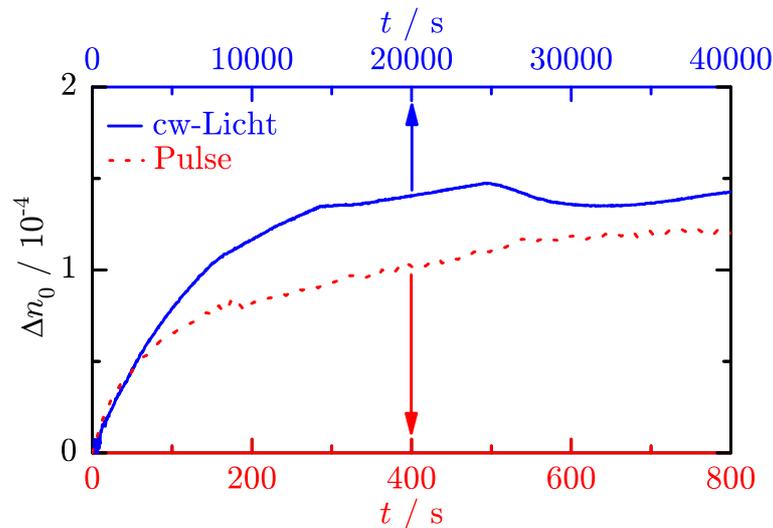


Abbildung 4.13: Vergleich von Schreibkurven mit Pulsen und Dauerstrich-Licht in einem oxidierten EQ2-Kristall: Aufgetragen ist die Brechungsindexänderung Δn_0 über der Schreibzeit t bei einer Schreibintensität von $\hat{I} = 4 \text{ kW/m}^2$. Die obere Zeitskala gilt für die mit Dauerstrich-Licht gemessene Kurve, die untere für die Messung mit Pulsen. Die Schreibstrahlen sind ordentlich polarisiert.

Beim Schreiben mit Pulsen in unbehandelten und oxidierten EQ2-Kristallen beobachten wir etwa die gleiche Aufbauzeit der Gitter, wie auch in Abb. 4.14 erkennbar. Die in Abb. 4.15 gezeigten Sättigungswerte $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ im oxidierten Material sind für verschiedene Intensitäten etwa gleich und liegen für kleine Intensitäten etwa einen Faktor 2-4 unter denen im unbehandelten Kristall. Da $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ dort aber mit steigendem \hat{I} sinkt, nähern sich die Werte im unbehandelten Kristall denen im oxidierten Kristall für große Intensitäten an.

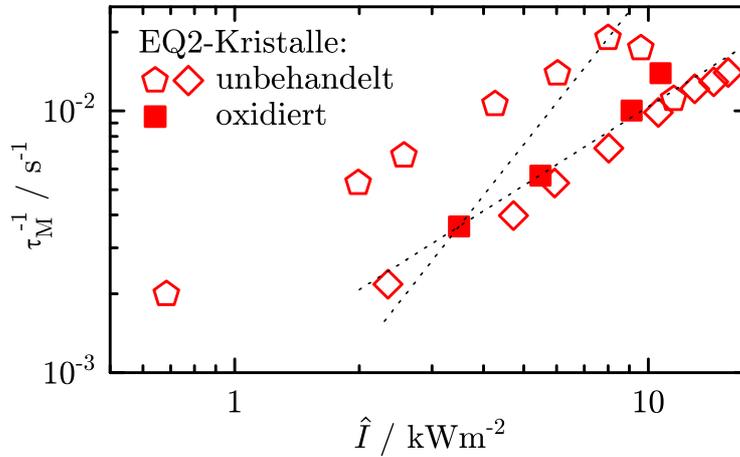


Abbildung 4.14: Abhängigkeit der inversen Schreibzeit τ_M^{-1} von der mittleren Intensität \hat{I} beim Schreiben mit ordentlich polarisiertem Pulslicht, verglichen für unbehandelte und oxidierte Kristalle aus dem Boule EQ2. Die gepunkteten Linien zeigen die Steigung für eine lineare bzw. quadratische Abhängigkeit an.

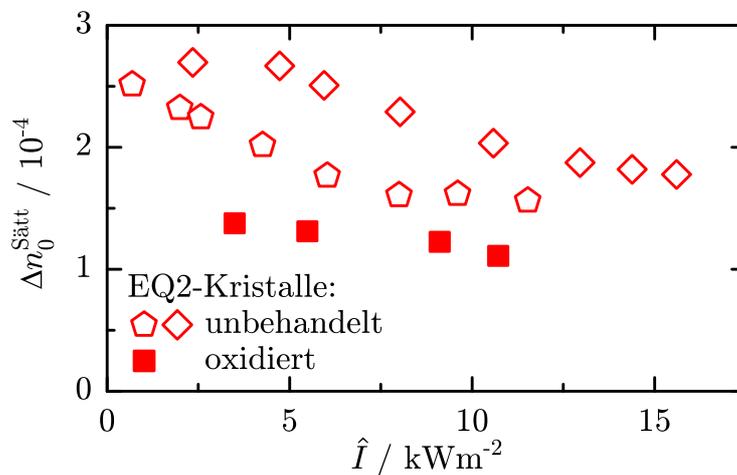


Abbildung 4.15: Abhängigkeit der Sättigungsbrechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ von der mittleren Intensität \hat{I} beim Schreiben mit ordentlich polarisiertem Pulslicht, verglichen für unbehandelte und oxidierte Kristalle aus dem Boule EQ2. Die gezeigten Daten gehören zu den gleichen Messreihen wie die in Abb. 4.14 gezeigten Punkte, was durch gleiche Symbole zum Ausdruck gebracht wird.

4.2.7 Fehlerbetrachtung

Besonders in den Abbildungen 4.14 und 4.15 und fällt die starke Abweichung zwischen den beiden Messreihen in unbehandelten Kristallen auf. Diese Messungen sind mit den gleichen Symbolen auch in Abb. 4.11 und in den Abbildungen 4.12 a) und b) enthalten und zeigen dort selbstverständlich die gleiche Abweichung. Der Grund dafür wird deutlich, wenn wir die beiden letztgenannten Abbildungen kombinieren und die Sättigungsmodulation $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ als Funktion der inversen Schreibzeit τ_M^{-1} auftragen, wie in Abb. 4.16 gezeigt: Dieser Graph entspricht fast der in Abb. 4.12 gezeigten Intensitätsabhängigkeit von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ für Pulse bei 1000 Hz, jedoch sind die Abweichungen nun wesentlich kleiner. Hauptsächlich Ursache für die beobachteten Fehler

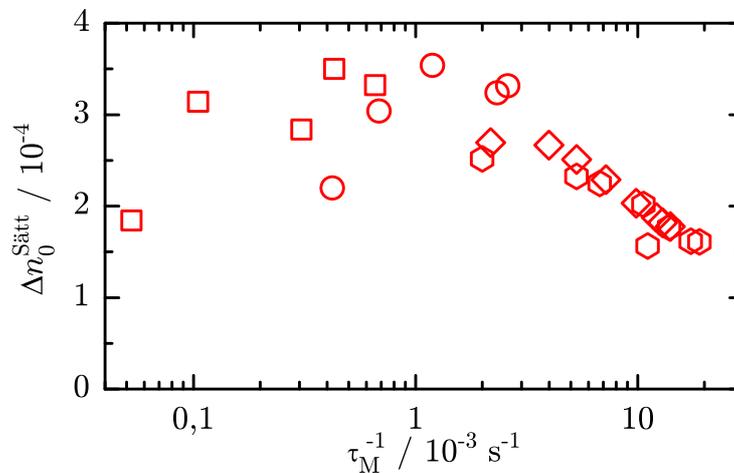


Abbildung 4.16: Kombination aus den Abbildungen 4.11 und 4.12 für Pulse bei 1000 Hz: Aufgetragen ist die Sättigungsbrechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ als Funktion der inversen Schreibzeit τ_M^{-1} für das Schreiben von Gittern in einem unbehandelten EQ2-Kristall. Die Symbole zeigen an, um welche korrespondierenden Messreihen in den angegebenen Abbildungen es sich handelt.

ist das schlechte Strahlprofil für Pulse bei 532 nm mit Intensitätsschwankungen bis zu einem Faktor 2 im zentralen Bereich des Strahls, wie in Abb. 3.1b) gezeigt. Die für die Messreihen angegebene Intensität \hat{I} wird aus der Leistung und dem Strahldurchmesser bestimmt und kann diese Schwankungen nicht berücksichtigen. Da τ_M^{-1} im unbehandelten Kristall linear von der Intensität abhängt (vgl. Abb. 4.11), ist es ein gutes Maß für die lokale Intensität im Bereich des Lesestrahls und gibt daher die Bedingungen für das Schreiben des beobachteten Gitters besser wieder als \hat{I} .

Bei den Messungen mit Dauerstrich-Licht ist das Strahlprofil wesentlich gleichmäßiger und die Intensitätsbestimmung daher unproblematisch. Innerhalb einer Messreihe lässt sich die Schreibkurve und der erreichte Sättigungswert $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ gut reproduzieren. Liegt zwischen zwei Messreihen allerdings eine Neujustage des Aufbaus, insbesondere des Lesestrahls, so weichen die ermittelten Werte von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ um bis

zu 25% von einander ab. Für sehr lange Schreibzeiten über mehrere Stunden, wie mit Dauerstrich-Licht in den oxidierten Kristallen oder für sehr kleine Intensitäten, steigen die Instabilitäten und damit die Schwankungen von Messung zu Messung auch ohne Neujustage stark an.

4.3 Lichtinduzierte Streuung

Die Messungen des vorherigen Abschnitts zeigen mehrere Unterschiede zwischen Puls- und Dauerstrich-Licht für das Schreiben von Gittern auf, darunter sehr unterschiedliche Streuverluste im Kristall. Diese Streuung soll nun im Detail mit einem vereinfachten Aufbau untersucht werden, in dem die Kristalle nur mit einem Schreibstrahl beleuchtet werden.

4.3.1 Aufbau

Der Aufbau ist in Abb. 4.17 gezeigt. Ein Kristall der Dicke $d = 0,5$ mm und der Breite 1 mm entlang der z -Achse wird senkrecht zu seiner y - z -Oberfläche mit einem Laserstrahl der Wellenlänge 532 nm beleuchtet. Das Licht ist ordentlich oder außerordentlich polarisiert, und die Schreibintensität wird stets im Kristall angegeben. Bei dem Laserstrahl handelt es sich entweder um Pulse mit der Repetitionsrate $\nu_{\text{Rep}} = 1000$ Hz oder um Dauerstrichlicht. Das Intensitätsprofil des Strahls weist als volle Halbwertsbreite mindestens 1,3 mm.

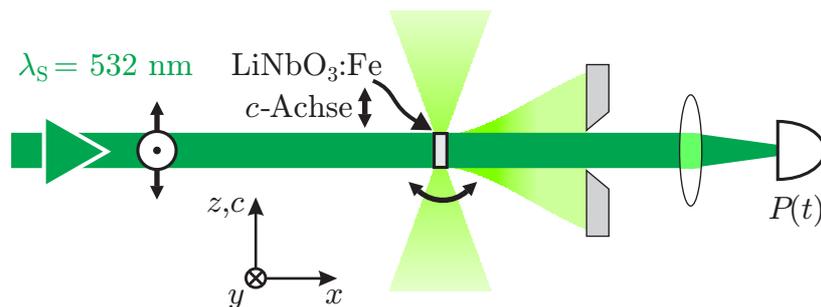


Abbildung 4.17: Schematischer Aufbau für die Versuche zur lichtinduzierten Streuung: Das Licht trifft so auf den Kristall, dass dieser entlang der c -Achse homogen ausgeleuchtet ist. Hinter dem Kristall befindet sich eine Schlitzeblende, um gestreutes Licht aufzuhalten. Mittels einer Photodiode wird hinter der Blende die Leistung des nicht gestreuten Lichts bestimmt. Der Kristall befindet sich auf einer Rotationseinheit und kann um die y -Achse (senkrecht zur Skizzenebene) gedreht werden.

Der Kristall ist auf einem drehbaren Halter befestigt, so dass er um die y -Achse rotiert werden kann. Licht, das seitlich am Kristall vorbei laufen würde, wird blockiert. Wie beim Schreiben der photorefraktiven Gitter (vgl. Abschnitt 4.1.1) ist der Kristall wieder mit Leitsilber kurzgeschlossen und entlang der z -Achse vollständig ausgeleuchtet, um den Aufbau makroskopischer Feldern über den Kristall zu verhindern. Hinter dem Kristall befindet sich in ca. 5 cm Abstand eine Schlitzeblende der Breite 2,2 mm. Licht, das den Kristall unverändert passiert, kann diese Blende

ungestört durchlaufen, während gestreutes Licht hier geblockt wird. Die Blende ist breiter als der ursprüngliche Strahl und breiter als der Kristall, da die Kristalloberflächen durch das Polieren leicht gewölbt sind, wodurch das zunächst parallele Licht leicht divergent wird. Mit einer Linse wird alles Licht, welches durch die Blende gelangt, auf eine der Silizium-Photodioden gebündelt und dessen Leistung P wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben als Funktion der Zeit t bestimmt.

4.3.2 Ablauf der Messung

Nach Einschalten des Laserstrahls wird der zeitliche Verlauf der Leistung $P(t)$ hinter der Blende gemessen und daraus der Verlauf der relativen Transmission $T_{\text{rel}}(t)$ bestimmt. Diese ist definiert als das Verhältnis der Leistung $P(t)$ zur maximalen Leistung P_{max} hinter dem Kristall während der jeweiligen Messung.

Wenn Streuung eingesetzt hat, wird der Kristall zur Bestimmung der Winkelselektivität nach einiger Zeit der Bestrahlung um den Winkel θ' um die y -Achse gedreht. Um ein mögliches Löschen photorefraktiver Gitter zu verringern, wird während dieser Messung der Lichtstrahl durch einen Neutralglasfilter abgeschwächt und die Leistung $P(\theta')$ hinter dem Kristall als Funktion des Drehwinkels relativ zur Ausrichtung beim Schreiben gemessen. Eine solche Messung dauert etwa 30 s. Hieraus wird die relative Transmission $T_{\text{rel}}(\theta')$ analog zur relativen Transmission bei der Zeitmessung bestimmt.

Schließlich werden die Streuhologramme wieder gelöscht, indem der Kristall entweder mit der Kaltlichtlampe oder unter ständig wechselndem Einfallswinkel (vgl. Abschnitt 4.2.4) mit dem zuvor zur Messung verwendeten Laserlicht beleuchtet wird. Das Löschen und eine anschließende Wartezeit von in der Regel 30 min stellt sicher, dass der Ausgangszustand vor Beginn einer nachfolgenden Messung wieder hergestellt ist.

4.3.3 Ergebnisse

Abfall der Transmission

In Abb. 4.18 sind typische Zeitverläufe der relativen Transmission T_{rel} für Messungen mit Dauerstrich-Licht und Pulsen bei verschiedenen mittleren Intensitäten \hat{I} dargestellt. Der Verlauf stimmt für Dauerstrich- und Pulsbeleuchtung in einigen Charakteristika überein: Vom Anfang der Beleuchtung an sinkt die relative Transmission und erreicht schließlich einen Sättigungswert $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$. Je größer die mittlere Intensität, desto schneller wird der Sättigungswert erreicht. Die Größe von $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$ variiert nicht besonders stark mit der Intensität im untersuchten Intervall.

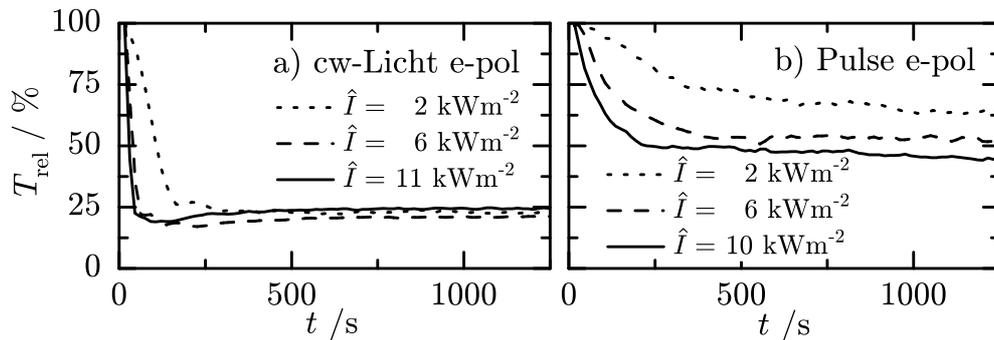


Abbildung 4.18: Verläufe der relativen Transmission T_{rel} für außerordentlich polarisiertes a) Dauerstrich- (cw) und b) Pulslicht beim Durchlaufen eines unbehandelten DT2-Kristalls.

Der Effekt der lichtinduzierten Streuung bleibt ohne Beleuchtung zumindest auf einer Zeitskala von einigen Minuten erhalten: Unterbricht man den Lichtstrahl für diese Zeit, so ist die Streuung unmittelbar nach der Unterbrechung genauso groß wie zuvor. Mit Licht lässt sich die Streuung vollständig beseitigen: Führt man einen der in Abschnitt 4.3.2 beschriebenen Löschvorgänge durch, so ist an deren Ende kein Unterschied zum Ausgangszustand vor der Beleuchtung zu erkennen. Genauere Untersuchungen zum Dunkelverhalten der Streuung werden nicht durchgeführt.

Diese Beobachtungen zeigen bereits auf, dass es sich bei der Streuung um eine photorefraktive Erscheinung handelt.

Intensitätsabhängigkeit der Streuung

Zur Beschreibung des Anstiegs definiert man die Sensitivität der Streuung S_{Streu} als

$$S_{\text{Streu}} = \frac{d}{dt} \sqrt{\eta_{\text{Streu}}}, \quad (4.2)$$

mit der Streueffizienz $\eta_{\text{Streu}} = (1 - T_{\text{rel}})$. Diese Definition wird von der Analogie zur Holographie nahegelegt: Geht man davon aus, dass das gestreute Licht durch Beugung an Gittern aus dem geradeaus laufenden transmittierten Strahl heraus gelenkt wird, so ist $1 - T_{\text{rel}}$ die Effizienz dieser Hologramme und entspricht dem Beugungswirkungsgrad. Allerdings muss man davon ausgehen, dass es sich bei den ablenkenden Gittern um eine Überlagerung einer Vielzahl elementarer Hologramme handelt, die auch nicht über die gesamte Dicke des Mediums homogen sind. Insofern ist die Definition in Gl. 4.2 nur an die entsprechende Definition der Holographie angelehnt.

In der Praxis bestimmen wir S_{Streu} durch eine lineare Anpassung an die Werte von $\sqrt{\eta_{\text{Streu}}}$, bis η_{Streu} 60 % des maximalen Werts erreicht. Trägt man S_{Streu} als Funktion

der Intensität auf wie in Abb. 4.19, so findet man für Dauerstrich und Pulse einen etwa linearen Anstieg mit der Intensität. Allerdings bemerkt man hier einen ersten Unterschied zwischen Dauerstrich- und Pulslicht: Die Steigung ist für Dauerstrich-Beleuchtung deutlich größer als für Pulse, das bedeutet, bei gleicher mittlerer Intensität erfolgt der Transmissionsabfall bei Dauerstrich-Beleuchtung deutlich schneller.

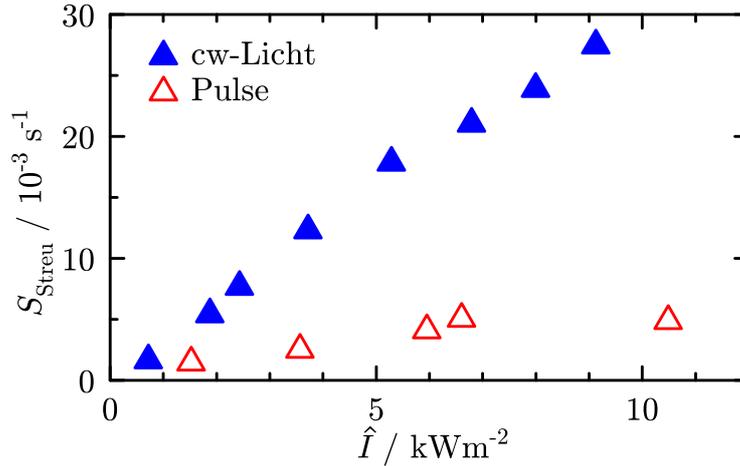


Abbildung 4.19: Sensitivität S_{Streu} für außerordentlich polarisierte Dauerstrich- und Pulsbeleuchtung eines unbehandelten DT2-Kristalls als Funktion der mittleren Intensität \hat{I} .

Um das Sättigungsverhalten zu untersuchen, definiert man zunächst die Sättigungstransmission genauer: Wir berechnen $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$ als den Mittelwert aller relativen Transmissionswerte nach Erreichen der Streuung. Wann ist das der Fall? Im Bereich der Sättigung treten Schwankungen von etwa 10% auf, die auf Instabilitäten und schwankende Laserleistung zurückzuführen sind. Daher legen wir als Eintritt der Sättigung den Punkt fest, bei dem die Transmission T_{rel} erstmals die Grenze von 20% oberhalb des *kleinsten* gemessenen Transmissionswerts für diese Messung unterschreitet. Für zwei unbehandelte Kristalle der Boules EQ2 und DT2 sind diese Sättigungswerte in Abb. 4.20 als Funktion der Schreibintensität aufgetragen.

Man erkennt in der Abbildung einen leichten Trend zu höherem $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$ für abnehmende Intensitäten. Allerdings ist dieser Trend nicht sehr ausgeprägt: Für eine Messanordnung (Kristall, Polarisation) stimmen alle Werte von $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$ bis auf die mit den kleinsten \hat{I} erzielten im Rahmen der Schwankungen überein. Als Ursache für die geringfügige Abnahme der Streuung für kleine Intensitäten kommen vor allem experimentelle Gründe in Betracht: Da sich die Streuung wie gezeigt bei kleinen Intensitäten am langsamsten aufbaut, könnten hier die Schreibzeiten in den Messungen zu gering gewesen sein, oder aus Instabilitäten im Aufbau resultierende kleine Schreibwinkeländerungen eine größere Rolle spielen.

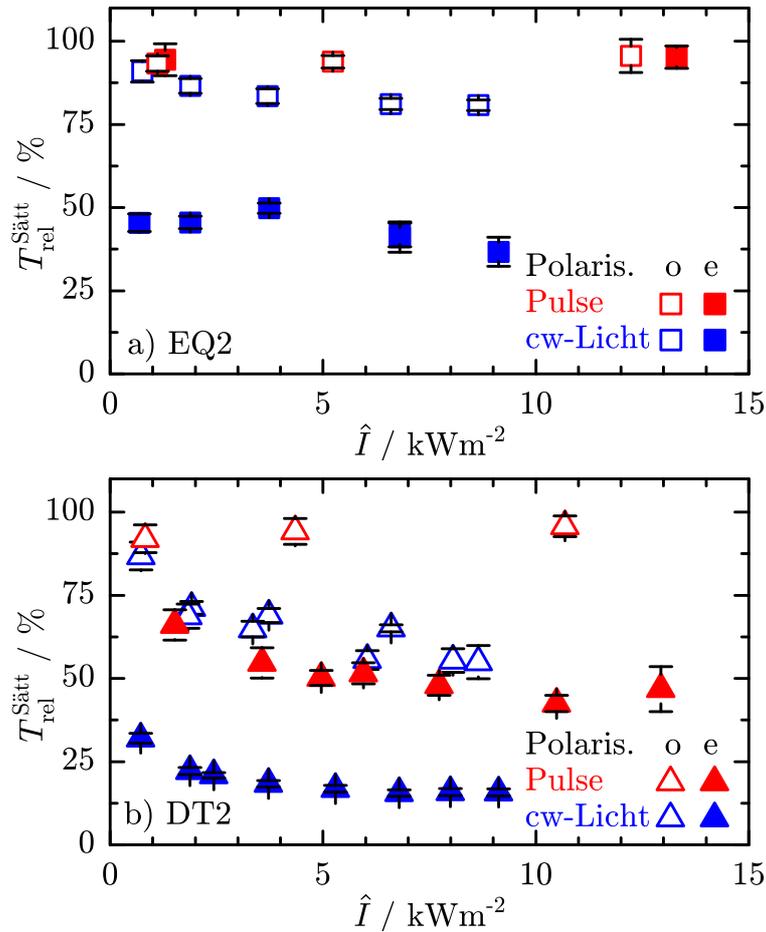


Abbildung 4.20: Sättigungswerte $T_{rel}^{Sätt}$ der lichtinduzierten Streuung mit ordentlich und außerordentlich polarisierter Beleuchtung durch Dauerstrich-Licht und Pulse, a) in einem unbehandelten EQ2-Kristall und b) im ebenfalls unbehandelten, aber höher Fe-dotierten DT2-Kristall. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung bei der im Text auf Seite 57 beschriebenen Mittelwertbildung beim Berechnen von $T_{rel}^{Sätt}$ an.

Bei den Untersuchungen ist keine „Schwellintensität“ erkennbar, unterhalb der die Streuung nicht mehr auftritt. Vielmehr ist festzuhalten: Tritt für eine Polarisierung und Beleuchtungsart in einem Kristall Streuung auf, dann ist sie für alle untersuchten Intensitäten vorhanden.

Abhängigkeit von Eisen- und Fe^{2+} -Konzentration

Streuung tritt mit Dauerstrichlicht in allen untersuchten Kristallen auf. Für Pulse ist die Streuung in jedem Kristall stets schwächer, d. h. die verbleibende Transmission $T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$ ist größer, und ist in einem Teil der Proben überhaupt nicht beobachtbar.

Abbildung 4.21 gibt einen Überblick über die Messungen mit allen verfügbaren Proben. Die durch einen grauen Kasten markierten Messungen zeigen keine Streuung, in allen anderen wird Streuung beobachtet. Messungen mit verschiedenen Kristallen nominell gleicher Fe- und Fe^{2+} -Konzentrationen zeigen dennoch vereinzelt Unterschiede in der Stärke der Verluste; dagegen liegen die Werte für mehrere Messungen mit dem gleichen Kristall meist nahe zusammen, auch wenn verschiedene Seiten und Stellen der Oberfläche bestrahlt werden. Für eine solche Wiederholungsmessung mit einem unbehandelten DT2-Kristall ist in Abb. 4.21 die Schwankungsbreite als Fehlerbalken eingezeichnet. Dessen obere Ausdehnung entspricht einer Ausreißermessung, die übrigen fünf Messungen liegen im Rahmen der unteren Ausdehnung des Fehlerbalkens zusammen.

Um zu überprüfen, ob das Auftreten von Streuung mit Pulsen eine Funktion des Fe^{2+} -Gehalts und nicht auf andere Unterschiede der individuellen Kristalle (Oberflächenrauigkeit, Defektkonzentration, ...) zurückzuführen ist, unterziehen wir zwei Proben mit verschiedenem Gesamteisen Gehalt einer Folge von Messungen zur lichtinduzierten Streuung. Zwischen diesen Messungen wird die Fe^{2+} -Konzentration der Kristalle durch Temperverfahren wie in Abschnitt 3.4 beschrieben verändert. Diese Folgen von Messungen sind in Abb. 4.21 durch Pfeile gekennzeichnet.

Hierdurch wird erreicht, dass ein DT1-Kristall, der im unbehandelten Zustand und nach der ersten und zweiten Reduktionsbehandlung keine Streuung mit fs-Pulsen zeigt, nach einer weiteren Erhöhung des Fe^{2+} -Gehalts den Effekt deutlich aufweist. Die gegenteilige Entwicklung beobachtet man mit einem DT2-Kristall: Dieser Kristall streut Pulse im unbehandelten Zustand und nach der ersten Oxidationsbehandlung, doch diese Streuung verschwindet nach einer zweiten, stärkeren Oxidation. Durch die Prozessierung der Kristalle ändert sich auch die Stärke der Streuung mit Dauerstrich-Licht; tendenziell sinkt sie mit sinkendem Fe^{2+} -Gehalt. Sie ist jedoch stets vorhanden und deutlich nachweisbar.

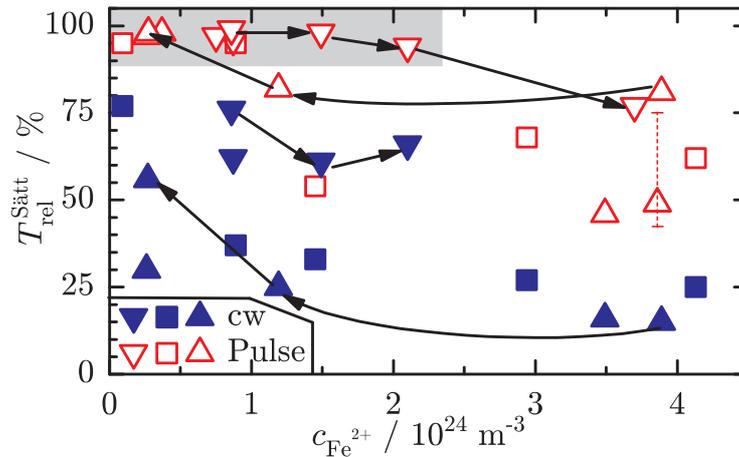


Abbildung 4.21: Übersicht über die Stärke der Streuung. Aufgetragen ist die relative Transmission in Sättigung $T_{rel}^{Sätt}$ über der Fe^{2+} -Konzentration. Offene Symbole repräsentieren Puls-, geschlossene Symbole Dauerstrich-Messungen (cw). Die verschiedenen Symbolformen zeigen den Boule an, aus dem die jeweilige Probe stammt, und damit ihren Gesamteisengehalt, angegeben in Klammern: ∇ : DT1 ($7 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$), \square : EQ2 ($17,5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$), \triangle : DT2 ($48,3 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$). Pfeile verbinden Messungen des selben Kristalls vor und nach Temperbehandlungen. Bei den mit einem grauen Kasten hinterlegten Punkten zeigt sich keine lichtinduzierte Streuung. Der Fehlerbalken zu einer Messung mit DT2 zeigt die Schwankungsbreite bei mehrfacher Wiederholung.

Winkelabhängigkeit der Streuung

Zur Untersuchung der Winkelabhängigkeit beleuchten wir einen Kristall bis zum Erreichen der Sättigungsstreuung und beobachten dann die Änderungen der Transmission, wenn der Kristall um die y -Achse gedreht wird. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.22 dargestellt: Sowohl für Dauerstrichlicht als auch für Pulse zeigt sich eine ausgeprägte Winkelselektivität der Streuverluste, die für Dauerstrich-Licht allerdings deutlich schärfer ist. Innerhalb der Messgenauigkeit liegt das Minimum der Transmission für Dauerstrich-Licht beim gleichen Winkel wie die vorausgegangene Beleuchtung (0°). Bei den Messungen mit Pulsen ist das Minimum dagegen durchgehend um etwa $0,5^\circ$ gegenüber dem Schreibwinkel verschoben.

Streumuster

Wohin verschwindet nun das fehlende Licht? Um dieser Frage nachzugehen entfernen wir von den Seitenflächen der Kristalle das Leitsilber für einige Messungen. Die so durchgeführten Messungen zeigen keine wesentlichen Abweichungen von den Untersuchungen der selben, kurzgeschlossenen Kristalle. Das abgelenkte Licht stellt sich

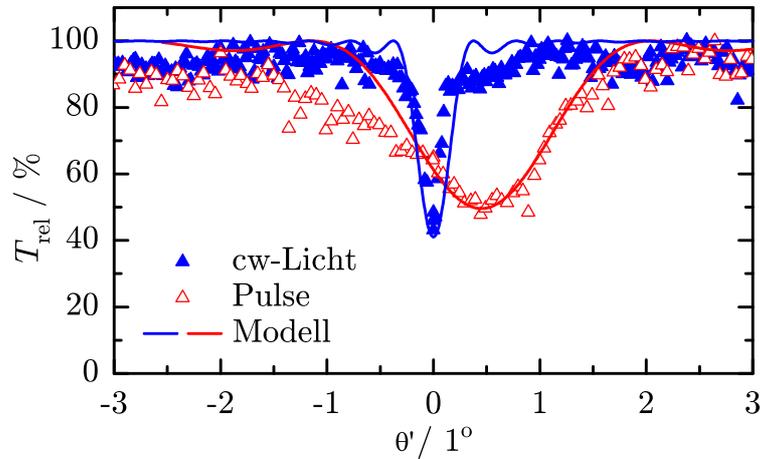


Abbildung 4.22: Winkelabhängigkeit der relativen Transmission T_{rel} in unbehandelten DT2-Kristallen für Dauerstrich-Licht und Pulse, in Abhängigkeit vom Drehwinkel θ' . Zur Messung werden die Kristalle um die y -Achse gedreht, nachdem die Streuung zuvor bei 0° Sättigung erreicht hat. Die Modellrechnungen werden in Abschnitt 5.3.4 erläutert.

für Dauerstrich- und Pulsbeleuchtung sehr unterschiedlich dar: Wie in Abb. 4.23 zu sehen, bilden sich Streukeulen neben dem Hauptstrahl in der von Strahlrichtung und z -Achse aufgespannten Ebene aus, falls Streuung bei Pulsen beobachtet wird. Zwischen der ursprünglichen Strahlrichtung und dem Maximum dieser Streukeulen liegen dabei außerhalb des Kristalls etwa 13° . Auch für Dauerstrichlicht wird ein kleiner Teil des Lichts in Vorwärtsrichtung gestreut. Dieses Muster ist jedoch wesentlich diffuser und schwächer als bei Pulsen. Stattdessen verlässt für Dauerstrich-Licht der Großteil des gestreuten Lichts den Kristall durch die zur c -Achse senkrechten Seitenflächen, es wird also um etwa 90° aus der ursprünglichen Richtung abgelenkt.

Verringert man den Strahldurchmesser des Dauerstrich-Lichts auf etwa $200\ \mu\text{m}$, indem man es mit einer langbrennweitigen Linse auf den Kristall fokussiert, so zeigt sich allerdings ein ähnliches Bild wie in Abb. 4.23a): Es bilden sich die üblichen Streukeulen, und an den Seitenflächen ist keine auffällige Streuung mehr zu erkennen. Alle übrigen Messungen wurden aber mit Dauerstrichlicht durchgeführt, welches wie in Abschnitt 4.3.1 beschrieben den gesamten Kristall entlang der c -Achse ausleuchtet.

Interferometrische Untersuchungen und weitere Beobachtungen

Da prinzipiell auch makroskopische Brechungsindexänderungen Ursache für die Strahldeformationen sein könnten, etwa in Form von Gradientenlinsen, untersuch-

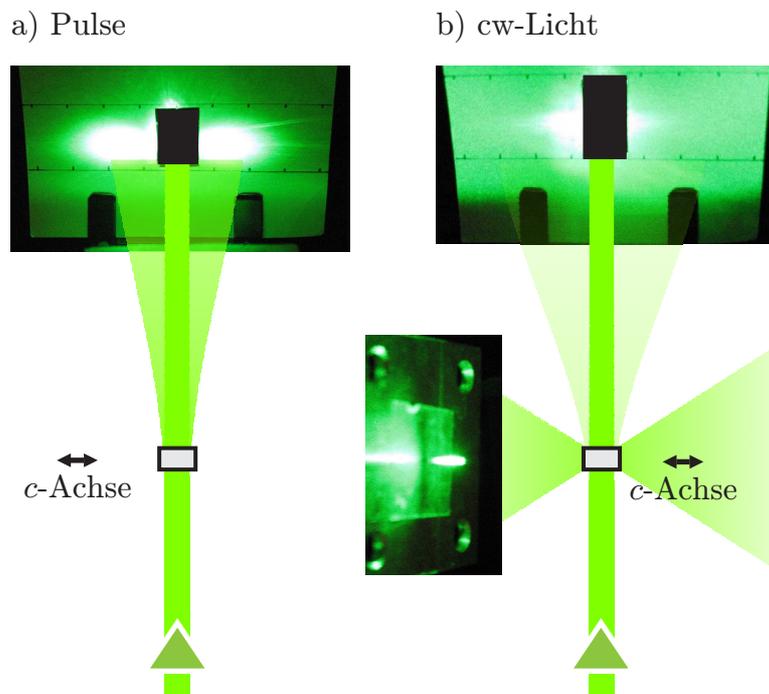


Abbildung 4.23: Ausbreitungsrichtung des Streulichts a) für Pulse und b) für Dauerstrich-Licht (cw). Die großen Fotos zeigen einen Schirm, auf den der Strahl nach Durchlaufen des $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ -Kristalls trifft, wobei das ungestreute Licht durch eine Öffnung läuft und im Bild zusätzlich ausgeblendet ist. Für Pulsbeleuchtung bilden sich Streukeulen neben dem Hauptstrahl, die im Laufe der Bestrahlung stärker werden. Für Dauerstrich-Beleuchtung ist das Streulicht in Vorwärtsrichtung breiter aufgefächert als der gezeigte Schirm. Das Licht unmittelbar neben dem Zentrum ist nicht auf lichtinduzierte Streuung, sondern auf Streuung an Kristallkanten etc. zurückzuführen, es bleibt in der Zeit unverändert. Der Hauptteil des gestreuten Lichts tritt über die Seitenflächen aus, die während der Belichtung immer heller aufleuchten. Das kleine Foto zeigt einen Blick auf eine solche leuchtende c -Seitenfläche des Kristalls bei unfokussierter Dauerstrich-Beleuchtung.

ten wir die Kristalle nach Beleuchtung bis zum Auftreten der Sättigung auch in einem Transmissionsinterferometer. Allerdings konnten hier keine Abweichungen in den beleuchteten Bereichen der Kristalle gefunden werden. Für makroskopische Brechungsindexänderungen ergibt sich daraus eine obere Grenze von 3×10^{-4} auf einer Skala von etwa 0,1 mm.

Hält man einen mit Pulslicht beleuchteten Kristall, der Streuung zeigt, in der Hand, betrachtet ihn unter kleinen Winkeln gegen das Raumlicht und dreht ihn dabei, fällt im beleuchteten Bereich ein Schillern auf: Je nach Kristallwinkel gegen die Blick- und Beleuchtungsrichtung werden verschiedene Farbanteile des Raumlichts ins Auge gelenkt. Zusammen mit den interferometrischen Beobachtungen zeigt dies an, dass die Ursache der Streuung keine makroskopischen, sondern mikroskopische Brechungsindexänderungen, sprich Gitter, sind. Allerdings wird das Schillern nicht beobachtet, wenn der Kristall mit Dauerstrich-Licht beleuchtet wurde. Grund für die schlechtere Wahrnehmbarkeit ist hier aber wahrscheinlich der größere Streuwinkel sowie die ineffizientere Beleuchtung der Gitter mit Raumlicht durch die nicht-polieren Seitenflächen.

KAPITEL 5

DISKUSSION

5.1 Trennung transienter Effekte durch 2K-Auslesung

Die Messung mit der 2K-Methode zeigt wie erhofft einen monotonen Anstieg des Beugungswirkungsgrades auf einen Plateauwert ohne die bei der 1K-Messung dominierende Überlagerung durch ein Maximum, siehe Abb. 4.3. Offensichtlich sind also nichtlineare Anregungen vorhanden, und die linearen Störungen spielen bei der 2K-Holographie keine wesentliche Rolle mehr.

Zunächst soll geklärt werden, ob das 2K-Plateau die gleiche physikalische Ursache wie das 1K-Plateau hat. Dazu betrachten wir das Verhältnis der Beugungswirkungsgrade im 1K- und 2K-Plateau sowie die Intensitätsabhängigkeit von $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$. Schließlich vergleichen wir den zeitlichen Anstieg des 2K-Signals mit dem Verlauf, der bei instantaner Besetzung der Polaronenzustände nach der Zwei-Photonen-Anregung zu erwarten wäre. Dauerte die Besetzung der Nb_{Li} durch die angeregten Elektronen länger als unsere Zeitauflösung von etwa 100 fs, wäre dies als Abweichung zwischen Daten und Rechnung zu erkennen.

5.1.1 Plateauhöhe im Vergleich zur 1K-Messung

Das Signal im Plateaubereich $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ ist bei den 2K-Messungen etwa eine Größenordnung kleiner als bei 1K. Ist dieser Unterschied allein dem Verhältnis der Amplituden von 1K- und 2K-Gitter des gleichen Prozesses geschuldet, oder gibt es beispielsweise zusätzlich einen linearen Untergrund beim 1K-Plateau?

Falls beide Signale vollständig durch die Besetzung der Nb_{Li} mit Elektronen aus der Zwei-Photonen-Absorption zustande kommen, ist die Dichte der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ propor-

tional zum Quadrat der lokalen Intensität $I(\mathbf{r}, t)$.¹ Während das Intensitätsgitter im zentralen Bereich der Pulse beschrieben werden kann durch

$$I(y) = \Delta I [1 + \sin(Ky)] / 2 , \quad (5.1)$$

(der Gittervektor \mathbf{K} liegt parallel zur y -Achse des Kristalls, siehe Abschnitt 4.1.1) setzt sich das Gitter zu $I^2(y)$ aus zwei Fourierkomponenten zusammen:

$$I^2(y) \propto 1 + \sin^2(Ky) + 2 \sin(Ky) = 1 + \frac{1}{2}[1 - \cos(2Ky)] + 2 \sin(Ky) . \quad (5.2)$$

Das Amplitudenverhältnis der beiden Fourierkomponenten des I^2 -Gitters beträgt also 1 : 4. Die Amplitude $\Delta\alpha$ der lichtinduzierten Absorption α_{li} des jeweiligen (1K- oder 2K-)Gitters ist proportional zu dieser Amplitude, und der Beugungswirkungsgrad η eines Absorptionsgitters hängt gemäß Gl. 2.15 quadratisch von der Absorptionsamplitude ab. Dies führt zu einem Faktor 16, der zwischen den Beugungswirkungsgraden des Plateaus von 1K- und 2K-Messung zu erwarten ist.

Zwei weitere Faktoren sind noch zu berücksichtigen, erweisen sich aber als vernachlässigbar: Zum einen hängt die Kogelnik-Formel 2.15 auch beim Bragg-Winkel vom Auslesewinkel ab. Dadurch wird der Beugungswirkungsgrad bei 2K-Messungen gegenüber den 1K-Messungen um den Faktor

$$\frac{\cos \theta_{\text{Bragg}}(1K)}{\cos \theta_{\text{Bragg}}(2K)} \approx \frac{\cos(3,5^\circ)}{\cos(6,9^\circ)} = 1,005 \approx 1 \quad (5.3)$$

größer. Dieser Faktor ist offenbar im Rahmen unserer Genauigkeit gleich 1. Zum anderen ist der Lesestrahl in diesen Versuchen breiter als das eigentliche Hologramm, welches durch die Breite des Interferenzstreifens der Femtosekundenpulse beschränkt ist, vgl. Abschnitt 2.5.2. Durch den schrägeren Einfall des Leselichts bei der 2K-Messung fällt auch weniger Licht auf den Bereich des eigentlichen Hologramms. Dies wird aber dadurch kompensiert, dass sich im Kristallhalter hinter dem Kristall eine Lochblende mit 3 mm Durchmesser befindet, die damit kleiner ist als die volle Halbwertsbreite des Auslestrahls. Das Verhältnis der Leistungen, die auf das zentrale Hologramm treffen, zu denen, die am Hologramm vorbei *und* durch die Lochblende gelangen, bleibt damit in guter Näherung gleich, somit wird η nicht beeinflusst.

Somit sollte bei reiner Zwei-Photonen-Absorption als Ursache für α_{li} zwischen den Plateauwerten der 1K- und 2K- Messungen der Faktor 1/16 liegen, was auch gut mit den Messungen übereinstimmt. Wir schließen daraus, dass das Plateau bei 1K-Messungen ebenfalls vollständig durch Zwei-Photonen-angeregte Ladungsträger entsteht.

¹Dabei wird vorausgesetzt, dass die Einfangquote von Elektronen in $\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$ unabhängig von der Elektronendichte ist, da die Dichte der angeregten Elektronen deutlich unter der Dichte der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$ liegt.

5.1.2 Intensitätsabhängigkeit des Signals

In Abb. 4.4 wird die Intensitätsabhängigkeit des Beugungswirkungsgrades im Plateaubereich $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ für außerordentlich polarisierte Schreib- und Lesepulse dargestellt. Für die Messwerte im Bereich geringer Intensitäten ist ein Verlauf entsprechend $\eta_{2K}^{\text{Sätt}} \propto I_{\text{Puls}}^4$ erkennbar. Allerdings lösen sich die Punkte bei steigender Pulsenergie für $I_{\text{Puls}} \rightarrow 40 \text{ GW/cm}^2$ von der durchgezogenen Linie, die diese Abhängigkeit darstellt. Der Anstieg der Kurve in der doppellogarithmischen Darstellung flacht in diesem Bereich immer weiter ab und schmiegt sich oberhalb von 40 GW/cm^2 schließlich an die Funktion $\eta_{2K}^{\text{Sätt}} \propto I_{\text{Puls}}^2$ an.

Die grundsätzliche Erklärung ist [23]: Für große Intensitäten der Eingangspulse werden die Schreibpulse beim Durchlaufen des Kristalls erheblich durch Zwei-Photonen-Absorption geschwächt. Entsprechend schwächer fallen die erzeugten Gitter zum Ende des Kristalls hin aus, womit das Gitter effektiv dünner als der Kristall wird. Diese effektive Dicke des Gitters bezeichnen wir mit d_{eff} .

Von Sturman et al. wurde eine Herleitung der Intensitätsabhängigkeit für den niedrigen Intensitätsbereich $\beta_{2\gamma} I_{\text{Puls}} d < 1$ gegeben; dies ist die Grenze für das dort beschriebene Modell [23]. Auch für den hohen Intensitätsbereich lässt sich die Abhängigkeit aber gut abschätzen: In den Beugungswirkungsgrad gemäß Gl. 2.15 geht die Kristalldicke d als Dicke des Gitters ein. Allerdings geht man bei der Herleitung dieser Gleichung von einem homogenen Gitter aus. Für ein inhomogenes Gitter setzt man hier besser dessen effektive Dicke d_{eff} anstelle von d ein. Wir legen d_{eff} so fest, dass der Schreibpuls nach Durchlaufen der Strecke d_{eff} um einen bestimmten Faktor abgeschwächt sein soll und das im Folgenden geschriebene Hologramm entsprechend schwächer ausfällt. Der Abschwächungsfaktor ist eine monotone Funktion von $\beta_{2\gamma} I_{\text{Puls}} \Delta x$ mit der durchlaufenen Strecke Δx [21] und legt damit den Wert von $\beta_{2\gamma} I_{\text{Puls}} d_{\text{eff}}$ fest. Somit erhält man

$$d_{\text{eff}} \propto I_{\text{Puls}}^{-1}. \quad (5.4)$$

Damit reduziert sich für $\beta_{2\gamma} I_{\text{Puls}} d \gg 1$ der Anstieg von η mit I_{Puls} für hohe Intensitäten um einen Faktor I_{Puls}^{-2} gegenüber der I_{Puls}^4 -Abhängigkeit bei kleinen Intensitäten, und man erhält die beobachtete quadratische Abhängigkeit für $I_{\text{Puls}} \gg 40 \text{ GW/cm}^2$.

5.1.3 Anstieg des 2K-Signals

Kann man die Zeit, welche die durch Zwei-Photonen-Absorption angeregten Ladungsträger zum Besetzen der Nb_{Li} -Zentren benötigen, gegenüber den anderen relevanten Zeiten vernachlässigen, insbesondere gegenüber den Schreib- und Lesepulsdauern, dann lässt sich der Verlauf des Signalanstiegs $\eta_{2K}(t)/\eta_{2K}^{\text{Plat}}$ ohne Anpassungs-

parameter beschreiben durch [30]:

$$\eta_{2K}(t)/\eta_{2K}^{\text{Plat}} = \frac{a}{4\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[-a^2 \left(s - \frac{2\Delta t}{\tau_{\text{Puls}}/\sqrt{\ln 2}} \right)^2 \right] \left[1 + \text{Erf}(s\sqrt{2}) \right]^2 ds, \quad (5.5)$$

wobei τ_{Puls} die Pulsdauer (volle Halbwertsbreite), Erf die *Error-Funktion* (siehe Gl. 3.2),

$$a = \sqrt{(1 + 4q^2)/(1 + 40q^2)} \quad \text{mit} \quad q = \theta_S \tilde{D}/(c\tau_{\text{Puls}}) \quad (5.6)$$

dimensionslose Parameter und $\tilde{D} = \rho_L/\sqrt{1 + 4\rho_L^2/\rho_S^2}$ ein effektiver Durchmesser sind, berechnet aus den FWHM-Strahldurchmessern ρ_S und ρ_L von Schreib- und Lesestrahlen.

Die Herleitung dieser Gleichung orientiert sich an der Rechnung von Sturman et al. für die 1K-Holographie [23] und soll kurz skizziert werden. Wesentliche Voraussetzungen sind die Anwendbarkeit der *slowly varying envelope approximation*, eine Näherung für Pulse mit langsam veränderlicher Einhüllender [66], und die wegen der kleinen Propagationswinkel im Kristall gültige paraxiale Näherung. Außerdem wird von kleinen Beugungswirkungsgraden ausgegangen, und Anregungen höherer Ordnung als die Zwei-Photonen-Absorption werden vernachlässigt.

Wir beschreiben die räumlich und zeitlich veränderlichen Feldamplituden A_{S1} , A_{S2} und A_L der Schreibpulse und des Lsepulses als Gaußfunktionen. Für Schreib- und Lesewinkel gilt wegen der Wellenlängen und der 2K-Geometrie das Verhältnis $\theta_L \approx 4\theta_S$, daher ist nur der Schreibwinkel θ_S ein freier Parameter. Als gemeinsame Pulsdauer τ_{Puls} für alle Pulse nehmen wir den Mittelwert von experimenteller Schreib- und Lsepulsdauer an.

Die Schreibpulse bewirken im Kristall ein veränderliches Intensitätsmuster $I(\mathbf{r}, t)$ mit

$$I(\mathbf{r}, t) \propto A_{S1}^2(\mathbf{r}, t) + A_{S2}^2(\mathbf{r}, t) + 2A_{S1}A_{S2} \cos(\mathbf{K}\mathbf{r}). \quad (5.7)$$

Bei Zwei-Photonen-Absorption und einer instantanen Besetzung der absorbierenden Zentren ist die Zahl der Ladungsträgeranregungen und damit die zeitliche Änderung $\partial\alpha_{\text{li}}(\mathbf{r}, t)/\partial t$ der lichtinduzierten Absorption proportional zu I^2 . Quadriert man Gl. 5.7 und betrachtet nur die resultierende 2K-Komponente, so erhält man durch zeitliche Integration die Amplitude $\Delta\alpha_{2K}(\mathbf{r}, t)$ des 2K-Absorptionsgitters:

$$\Delta\alpha_{2K}(\mathbf{r}, t) \propto \int_{-\infty}^t [A_{S1}(\mathbf{r}, \tilde{t}) A_{S2}(\mathbf{r}, \tilde{t})]^2 d\tilde{t}. \quad (5.8)$$

Dieses Gitter koppelt die Lsepulsamplitude A_L mit der Amplitude A_{Diff} des abgebeugten Pulslichtfelds. Dabei ist der Lsepuls gegenüber den das Gitter schreibenden Pulsen um Δt verzögert. Sturman et al. leiten in Ref. 23, Gl. (14), die resultierende gebeugte Amplitude A_L hinter dem Kristall her. Zur Berechnung des entsprechenden Integrals vernachlässigt man die Dispersion und verwendet eine paraxiale

Näherung. Vereinfacht gesprochen „sieht“ dadurch jede Stelle des Lesepulses während des gesamten Durchgangs durch den Kristall der Dicke d ein konstantes $\Delta\alpha_{2K}$. Die korrespondierende Amplitude des abgebeugten Pulses ist damit proportional zu $A_L \Delta\alpha_{2K} d$.

Den Verlauf des Beugungswirkungsgrades als Funktion von Δt erhält man schließlich, indem man die Pulsenergie des gesamten abgebeugten Pulses hinter dem Kristall durch Integration bestimmt und auf den Wert für $\Delta t \rightarrow \infty$ normiert. Die so gefundene Gleichung 5.5 ist im Wesentlichen eine Faltung zwischen dem auslesenden Gaußpuls und dem Aufbau des Beugungswirkungsgrads des Gitters. Der zusätzliche Parameter a^2 im Exponenten der Gaußfunktion beschreibt dabei die geometrische Verbreiterung, die aus dem nicht-kollinearen Verlauf der beteiligten Pulse folgt; der Faktor $\sqrt{2}$ vor der Integrationsvariablen im Argument der *Error*-Funktion resultiert aus der quadratischen Anregung, welche die Schreibpulse beim Erzeugen des Gitters entsprechend kürzer wirken lässt.

Als freie Parameter stehen in dieser Beschreibung nur die Höhe des Plateaus $\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$ und die Lage in der Zeit zur Verfügung; der Verlauf des Anstiegs ist dagegen durch die experimentellen Parameter (insbesondere Pulsdauer und Schreibwinkel) festgelegt. Das Ergebnis dieser Anpassung an die Messung ist in Abb. 4.3 als durchgezogene Linie dargestellt. Wie man erkennt, wird der Anstieg der Daten durch das Modell gut beschrieben.

5.1.4 Folgerungen für die Ladungsanregung

Mit dem Anstieg des 2K-Gitters beobachten wir die Auffüllung des Polaronen-Zustands $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ mit Elektronen, die zuvor durch Zwei-Photonen-Absorption ins Leitungsband angeregt wurden, siehe Abschnitt 2.2.3. Läge die Relaxationszeit dieser heißen Ladungsträger in einem Intervall zwischen 0,1 und 10 ps, müsste man diese Zeitkonstante im beobachteten 2K-Signal wiederfinden, denn dieses stellt vor allem die Population der kleinen gebundenen Polaronen dar, die erst nach Thermalisierung besetzt werden können. Oberhalb von 1 ps wäre die Relaxationszeit bei den Messungen zur lichtinduzierten Absorption erkennbar gewesen [24]. Allerdings zeigen beide Messungen, insbesondere der hier vorgestellte Aufbau des 2K-Signals, keine solchen Eigenschaften.

Stattdessen wird der Anstieg von η_{2K} gut durch die Annahme beschrieben, dass der Aufbau des Gitters adiabatisch der absorbierten Energie folgt, wie in Abschnitt 5.1.3 dargelegt. Damit zeigen die 2K-Messungen, dass der Intraband-Relaxationsprozess der angeregten Elektronen im Leitungsband inklusive der Bildung der kleinen gebundenen Polaronen schneller als unsere Auflösungsgrenze stattfindet ($\lesssim 100$ fs). Dieses Verhalten weicht erheblich von dem typischer Halbleitermaterialien ab, in denen die Thermalisierung üblicherweise auf der Pikosekunden-Zeitskala abläuft [73–75].

Mit dem verfügbaren Lasersystem ist hier die Grenze der Zeitauflösung erreicht. Aus verschiedenen Gründen wäre es aber interessant, mit kürzeren Pulsen die obere Schranke für die Aufbauzeit des $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ weiter nach unten zu treiben und die tatsächliche Zeitkonstante zu finden: So ist die von Beyer et al. veröffentlichte Messung des Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizienten $\beta_{2\gamma}$ sehr davon abhängig, ob signifikant Mehrfachanregungen während eines Pulses vorkommen [21]. Werden die kleinen gebundenen Polaronen tatsächlich weit schneller als die zur Untersuchung verwendete Pulsdauer gebildet, ist eine neue Messung der Zwei-Photonen-Absorption in LiNbO_3 erforderlich. Dabei ist entweder die erneute Anregung aus den $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ -Zuständen zu berücksichtigen, oder es müssen Pulse verwendet werden, die kürzer als die Bildungsdauer der Polaronen sind.

5.2 Photorefraktion mit Femtosekundenpulsen

5.2.1 Breite von Interferenzstreifen und photorefraktivem Gitter

Bevor auf die eigentlichen Messungen zur Photorefraktion eingegangen wird, soll eine Beobachtung diskutiert werden, die im Rahmen der Justage des Aufbaus zur Photorefraktion gemacht wird. Wie in Abschnitt 2.5.2 dargestellt, interferieren die Pulse nur in einem Streifen im Kristall. Bei der Justage in Abschnitt 4.2.3 wird die laterale Position dieses Interferenzstreifens gemessen und dabei auch – eher beiläufig – die Breite des damit geschriebenen Hologramms bestimmt. Aus Abb. 4.8 erhält man eine volle Halbwertsbreite von etwa $250\ \mu\text{m}$, was sich aus der Entfaltung der angepassten Normalverteilung und des Intensitätsprofils des Lesestrahls ergibt. Es fällt auf, dass dies wesentlich weniger ist als die gemäß Abschnitt 2.5.2 berechnete Breite des Interferenzstreifens

$$s = c\tau_{\text{Puls}} / \sin \theta'_S = 3 \times 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}} 160 \text{ fs} / \sin 4,2^\circ = 655\ \mu\text{m} . \quad (5.9)$$

Wie kann der erhebliche Unterschied zwischen Theorie und Experiment erklärt werden?

Annahme bei den folgenden Überlegungen ist wie in Abschnitt 2.5.2 ein rechteckiges zeitliches Strahlprofil und eine unbegrenzte laterale Ausdehnung der Pulse, so dass der Streifen nicht zusätzlich eingeschränkt wird. Betrachten wir zunächst Abb. 2.5: Bei den Punkten A und C der Raute, in der die Pulse sich überlappen, findet keine Interferenz mehr statt. Das bedeutet, dass ein Punkt am Rande des dargestellten Interferenzstreifens das Interferenzmuster nicht mehr wahrnehmen kann. Ein Punkt im Zentrum des Streifens auf der Höhe der Gerade BC wird dagegen für die Zeit der Pulsdauer mit dem Interferenzmuster belichtet. Zwischen diesen extremen Linien liegt ein linearer Verlauf der Belichtungszeit τ_{Muster} mit dem Muster. Setzt man s als die Breite des Streifens und z als Koordinate quer zum Streifen mit $z = 0$ in der Mitte des Streifens, so ergibt sich

$$\tau_{\text{Muster}} = \tau_{\text{Puls}} [1 - |z|/(s/2)] \quad \text{für } |z| \leq s/2 . \quad (5.10)$$

Außerhalb dieses Streifens ist τ_{Muster} null, und es kann kein Gitter geschrieben werden. Daher betrachten wir im Folgenden nur das Innere des Streifens, und die Bedingung $|z| \leq s/2$ gilt für alle Überlegungen dieses Abschnitts.

Beobachtet man lokale Reaktionen des Materials auf das Lichtmuster, so ist zu erwarten, dass deren Stärke ebenfalls zum Rand des Streifens hin entsprechend τ_{Muster} abfällt und somit ein Streifen „sichtbar“ wird, der schmaler ist als s : Für lineare Effekte erwartet man eine volle Halbwertsbreite der Modulationsamplituden Δn_0 bzw. $\Delta \alpha$, die halb so groß wie die Streifenbreite s nach Gl. 2.18 ist. Effekte höherer

Ordnung in der Intensität führen entsprechend zu noch schmalere vollen Halbwertsbreiten.

Für nicht-lokale, kumulative Effekte wie das Schreiben photorefraktiver Gitter, bei denen homogene Beleuchtung ein Löschen bewirkt, kommt noch ein weiterer Aspekt hinzu: Die Teile der Pulse, die in einem Punkt nicht überlappen, führen zu einer homogenen Beleuchtung mit der Intensität des einzelnen Pulses und löschen deshalb das bereits existierende Gitter teilweise. Ist τ_{Muster} die Zeit, für die ein Punkt mit dem Interferenzmuster beleuchtet wird, so finden nach jedem Schreiben zwei kurze Löschvorgänge der Dauer $\tau_{\text{Puls}} - \tau_{\text{Muster}}$ statt, einer unmittelbar nach dem Schreiben, der zweite unmittelbar vor dem nächsten Schreibvorgang mit dem Muster. Insgesamt ergibt sich damit die Zeit τ_{Hom} der homogenen Beleuchtung je Pulszyklus zu

$$\tau_{\text{Hom}} = 2 \times (\tau_{\text{Puls}} - \tau_{\text{Muster}}) = \tau_{\text{Puls}} \frac{2|z|}{s/2}, \quad (5.11)$$

Mit $\tau_{\text{M}}(I_{\text{Muster}})$ und $\tau_{\text{M}}(I_{\text{Hom}})$ bezeichnen wir die Maxwellzeit als Funktion der jeweiligen räumlich mittleren Intensität I_{Muster} im Bereich der Interferenz und I_{Hom} im Bereich homogener Beleuchtung. Die Intensität I_{Muster} ist 2-mal so groß wie I_{Hom} , da sich im homogenen Bereich die beiden Pulse ja nicht überlappen. Sowohl für die lineare Photorefraktion im Ein-Zentren-Modell (siehe Abschnitt 2.4) als auch für die Messungen mit Pulsen (siehe Abb. 4.14) zeigt sich ein etwa linearer Zusammenhang zwischen Intensität und Photoleitfähigkeit σ_{Photo} . Daher gilt wegen $\tau_{\text{M}}^{-1} \propto \sigma_{\text{Photo}}$:

$$\tau_{\text{M}}(I_{\text{Hom}}) = 2\tau_{\text{M}}(I_{\text{Muster}}). \quad (5.12)$$

Betrachten wir nun die Amplitude der Brechungsindexmodulation Δn_0 zu drei verschiedenen Zeitpunkten eines Pulszyklus, bezeichnet mit (i) , (ii) und (iii) : Die Beziehung zwischen Δn_0 vor dem Löschen (i) mit der homogenen Beleuchtung der Intensität I_{Hom} und danach (ii) ist gegeben durch

$$\Delta n_0^{(ii)} = \Delta n_0^{(i)} \underbrace{\exp(-\tau_{\text{Hom}}/\tau_{\text{M}}[I_{\text{Hom}}])}_{\equiv e_{\text{Hom}}}. \quad (5.13)$$

Nach dem Schreiben (iii) mit dem Muster der Intensität I_{Muster} ist die Brechungsindexmodulation angestiegen auf

$$\Delta n_0^{(iii)} = (\Delta n_0^{\text{Sätt}} - \Delta n_0^{(ii)}) \underbrace{(1 - \exp[-\tau_{\text{Muster}}/\tau_{\text{M}}(I_{\text{Muster}})])}_{\equiv e_{\text{Muster}}} + \Delta n_0^{(ii)}. \quad (5.14)$$

Dabei ist $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ die Sättigungsbrechungsindexänderung ohne zwischenzeitliches Löschen.

Ein dynamisches Gleichgewicht ist dann erreicht, wenn bei jedem Zyklus Löschen-Schreiben Δn_0 genauso viel gesenkt wie anschließend wieder erhöht wird, so dass gilt:

$$\Delta n_0^{(i)} \stackrel{!}{=} \Delta n_0^{(iii)}. \quad (5.15)$$

Setzt man die letzten drei Gleichungen ineinander ein und vereinfacht, so ergibt sich im Gleichgewicht für die Brechungsindexmodulation $\Delta n_0^{(i)}$ nach dem Schreiben:

$$\Delta n_0^{(i)} = \Delta n_0^{\text{Sätt}} \frac{(1 - e_{\text{Muster}})}{(1 - e_{\text{Hom}} e_{\text{Muster}})}. \quad (5.16)$$

Berücksichtigt man, dass mit einem einzelnen Puls immer nur ein sehr kleiner Teil des Gitters geschrieben und gelöscht wird, so lassen sich die Exponentialfunktionen e_{Muster} und e_{Hom} gut linear annähern. Einsetzen der Gleichungen 5.10, 5.11 und 5.12 ergibt nach längeren Rechnungen

$$\Delta n_0^{(i)} = \Delta n_0^{\text{Sätt}} \left(1 - \frac{|z|}{s/2}\right). \quad (5.17)$$

Das bedeutet, die Amplitude der Brechungsindexänderung durch Photorefraktion nimmt genau wie die Stärke der transienten Gitter zum Rand des Streifens hin linear auf Null ab. Die Halbwertsbreite des $\Delta n_0^{(i)}$ -Streifens beträgt daher ebenfalls nur die Hälfte der berechneten theoretischen Streifenbreite s . Sein Verlauf ist in Abb. 5.1 mit den relativen Größen $|z|/s$ und $\Delta n_0^{(i)}/\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ aufgetragen.

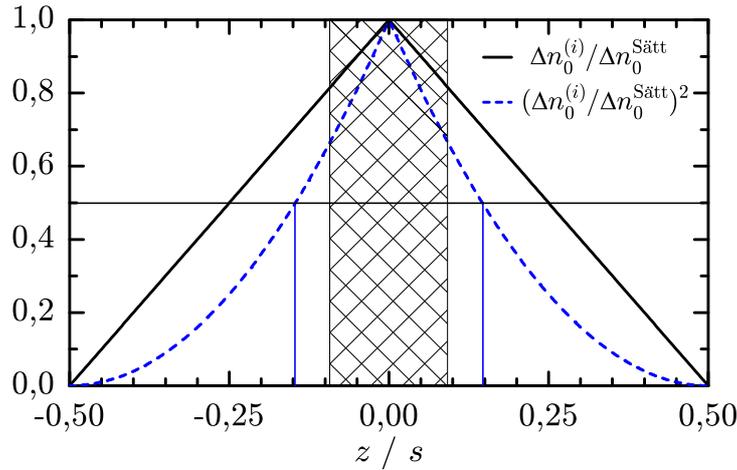


Abbildung 5.1: Aufgetragen sind $\Delta n_0^{(i)}$ (Verlauf der Brechungsindexänderung im Gleichgewicht) und $(\Delta n_0^{(i)})^2$ (Verlauf des Beugungswirkungsgrades im Gleichgewicht) als Funktion der relativen Position z/s innerhalb des Interferenzstreifens der Breite s gemäß Gl. 2.18. Beide Funktionen sind auf ihr Maximum im Zentrum des Streifens normiert und fallen zum Rand hin zu null ab. Die senkrechten Striche markieren die Halbwertsbreite des Beugungswirkungsgrad-Streifens. Die schraffierte Fläche zeigt an, welcher Teil des Hologramms vom Lesestrahle bei den eigentlichen Messungen ausgelesen wird.

Der tatsächlich beobachtbare Streifen ist aber die Breite des aus dem Brechungsindexgitter resultierenden Beugungswirkungsgrad-Profiles, und η ist (solange es wie in

diesem Fall klein ist) proportional zu $\Delta n_0^2(z)$, siehe Gl. 2.16. Dieses Profil von η ist in Abb. 5.1 als zweite Funktion dargestellt, und man erhält eine volle Halbwertsbreite von etwa 29% der berechneten Streifenbreite s , genauer $1 - 1/\sqrt{2}$. Das ist sogar etwas schmaler als tatsächlich beobachtet.

Betrachtet man in Abb. 5.1 den Verlauf des Beugungswirkungsgrades im schraffierten, von unserem Lesestrahл ausgeleuchteten Bereich, so erkennt man, dass η (blaue Kurve) zum Rand dieses Bereichs hin abfällt. Dadurch ist der beobachtete Beugungswirkungsgrad für das Pulshologramm etwa 15% kleiner als für ein gleich starkes Dauerstrich-Gitter. Für unsere Messungen hat diese Abweichung noch keine große Bedeutung. Allerdings sollte für die Planung künftiger Experimente zur Pulsholographie die dargestellte Problematik und der gefundene Korrekturfaktor von 29% für die Streifenbreite s gemäß Ref. [60] berücksichtigt werden.

5.2.2 Ladungstransportmodell

In Abschnitt 4.2 werden die Experimente zur Photorefraktion mit Femtosekundenpulsen beschrieben. Die beiden zentralen Beobachtungen dort sind:

- Im oxidierten $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ -Kristall kann mit Pulsen wesentlich schneller ein Gitter geschrieben werden als mit Dauerstrichlicht.
- Beim Schreiben mit Pulsen im unbehandelten $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ -Kristall sinkt der Sättigungswert $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ der Brechungsindexmodulation mit stärker werdenden Pulsen.

Beide Beobachtungen passen offensichtlich nicht zu den herkömmlichen Modellen der Photorefraktion (Ein- und Zwei-Zentren-Modell, siehe Abschnitt 2.4). Daher stellen wir ein neues Ladungstransportmodell für die Photorefraktion mit kurzen Pulsen vor. Es ist in Abb. 5.2 skizziert und soll zunächst kurz erläutert werden. Auf die einzelnen Prozesse wird dabei anhand der entsprechenden Nummern in Abbildung 5.2 verwiesen.

Durch Zwei-Photonen-Absorption des Schreiblichts werden Elektronen vom Valenzins Leitungsband angeregt, und es entstehen bewegliche Elektronen und Löcher (1). Ein Elektron könnte nun direkt aus dem Band mit einem lokalen Loch rekombinieren (2), oder es wird von einem unbesetzten photorefraktiven Zentrum (Fe oder Nb_{Li}) eingefangen (3) und rekombiniert nach einer gewissen Zeit von dort aus mit einem lokal vorhandenen Loch (4). Diese Anregungs- und Relaxationszyklen erhöhen zwar die Photoleitfähigkeit σ_{Photo} , tragen aber kaum zur räumlichen Umverteilung von Ladungsträgern bei, da der volumenphotovoltaische Effekt nicht greift.

Nach dem Einfang (3) des Elektrons ist alternativ zu Prozess (4) auch eine Ein-Photonen-Anregung des Elektrons aus den photorefraktiven Zentren möglich. Findet diese statt, so trägt das Elektron – wie nach linearer Anregung beim „normalen“

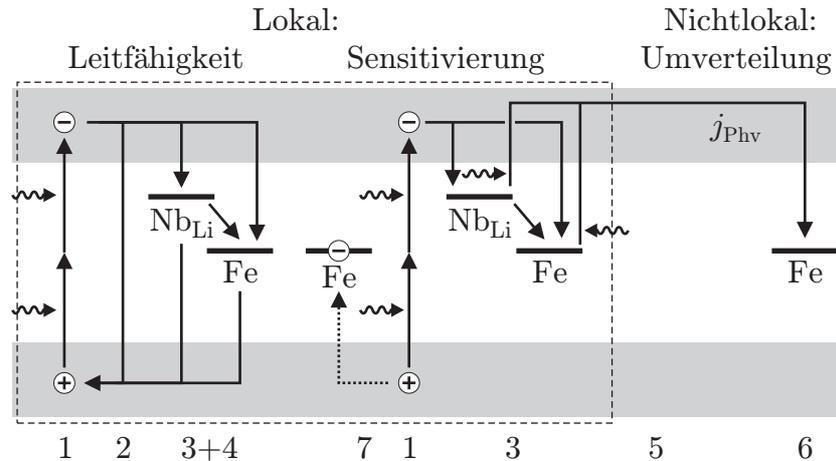


Abbildung 5.2: Ladungstransportmodell für die Photorefraktion mit Femtosekundenpulsen, siehe Text.

photorefraktiven Effekt – zum volumenphotovoltaischen Strom \vec{j}_{PhV} bei (5) und wird damit (vereinfacht dargestellt) räumlich verschoben. An seiner neuen Position wird es von einem unbesetzten Eisenzentrum Fe^{3+} eingefangen (6) und bildet Fe^{2+} . Im Gegenzug entsteht in der Nähe der ursprünglichen Position ein zusätzliches Fe^{3+} aus einem bereits vor der Beleuchtung vorhandenen Fe^{2+} , indem das dort nun überzählige Loch schließlich mit dessen Elektron annihiliert.

In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Schritte dieses Modells nun begründet und untersucht, sowie alternative Möglichkeiten diskutiert.

Zusätzliche Ladungsanregung durch Zwei-Photonen-Absorption

Gitter mit Dauerstrichlicht werden in oxidierten Kristallen der EQ2-Serie wesentlich langsamer geschrieben als in unbehandelten Kristallen, wie Abb. 4.13 zeigt. Das ist aufgrund der Modelle zur Photorefraktion so zu erwarten: Die geringere Absorption des Schreiblichts im oxidierten Kristall führt zu einer geringeren Photoleitfähigkeit σ_{Photo} , und diese ist umgekehrt proportional zur inversen Maxwellzeit τ_M^{-1} beim Aufbau des photorefraktiven Gitters, siehe Abschnitt 2.4.2. Mit Pulsen dagegen ist τ_M in unbehandelten und oxidierten Kristallen etwa gleich groß, wie man aus den Abbildungen 4.13 und 4.14 entnimmt.

Das Schreiben mit Pulsen führt also im oxidierten Kristall zu einem viel größeren σ_{Photo} als das Schreiben mit Dauerstrich-Licht bei gleicher mittlerer Intensität \hat{I} . Bei linearer Anregung aus den wenigen verbliebenen Fe^{2+} -Stellen hinge die Leitfähigkeit nur von \hat{I} ab und wäre für Pulse und Dauerstrich-Licht gleich. Somit muss für Pulse ein zusätzlicher Anregungsmechanismus zum Tragen kommen, der die zusätzliche Leitfähigkeit bewirkt. Wegen der hohen Spitzenintensitäten liegt dafür die Zwei-

Photonen-Absorption als Ursache nahe, die Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband anregt. So wird mit dem Valenzband ein riesiges zusätzliches Reservoir an anregbaren Ladungsträgern verfügbar.

Bei der Wellenlänge 532 nm beträgt der Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizient $\beta_{2\gamma} = 0,12 \text{ cm/GW}$ [21]. Für die Spitzenintensität I_{Puls} unserer stärksten Pulse erhalten wir damit einen Absorptionskoeffizienten von $\beta_{2\gamma} I_{\text{Puls}} \approx 140 \text{ m}^{-1}$. Das ist zwar etwas geringer als die lineare Absorption im unbehandelten EQ2-Kristall von $\alpha_0 = 285 \text{ m}^{-1}$, man kann aber annehmen, dass die Zwei-Photonen-Absorption die Elektronen höher ins Leitungsband anregt und das zu einer besseren Quanteneffizienz bei der Anregung führt. Somit könnte die Zwei-Photonen-Anregung im oxidierten Kristall ähnliche Ladungsträgerdichten und damit eine Photoleitfähigkeit in der gleichen Größenordnung erzeugen wie die lineare Absorption im unbehandelten Kristall.

Ursache der Ladungsumverteilung

Eine durch Zwei-Photonen-Anregung aus dem Valenzband erzeugte Photoleitfähigkeit könnte zwar den schnelleren Schreibvorgang mit Pulsen erklären, würde aber für sich allein genommen zu wesentlich geringeren Brechungsindexänderungen führen als beobachtet: Wie von Krätzig et al. gemessen, verschwindet der volumenphotovoltaische Effekt für Band-zu-Band-Übergänge [76, 77]. Dies ist aber in LiNbO_3 entlang der c -Achse der dominierende Ladungsantrieb für lineare Anregungen aus den photorefraktiven Zentren und deutlich stärker als die Diffusion [78].

Die Amplitude $\Delta E_0^{\text{Sätt}}$ des Raumladungsfelds in Sättigung ist im Wesentlichen gegeben durch

$$\Delta E_0^{\text{Sätt}} = \frac{\vec{j}_{\text{Phv}} + \vec{j}_{\text{Diff}}}{\sigma_{\text{Photo}}}, \quad (5.18)$$

wenn wie in den verwendeten Kristallen keine Raumladungsbegrenzung eintritt. Kämen die mit Pulsen in den oxidierten Kristall geschriebenen Gitter nur aufgrund der Diffusion zustande, wäre der Umverteilungsstrom kleiner als beim Schreiben mit Dauerstrich-Licht, denn \vec{j}_{Diff} ist wesentlich schwächer als \vec{j}_{Phv} für die linearen Anregungen. Gemeinsam mit der größeren Photoleitfähigkeit durch die Zwei-Photonen-Absorption würde daher der Sättigungswert erheblich absinken. Das ist aber offensichtlich nicht der Fall: Die Sättigungswerte sind nur etwa einen Faktor 2-3 kleiner als die Brechungsindexamplituden, die mit Dauerstrich-Licht in unbehandelten und in oxidierten Kristallen erreicht werden (siehe Abb. 4.13 und vergleiche Abb. 4.15 mit Abb. 4.12). Daher muss auch mit Pulsen im oxidierten Kristall ein wesentlicher Teil der Ladungsträger aus photorefraktiven Zentren heraus angeregt werden, damit ein nennenswerter volumenphotovoltaischer Strom \vec{j}_{Phv} existiert.

Diese Zentren sind im oxidierten Material zunächst überwiegend unbesetzt (Fe^{3+} bzw. $\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$), was ja auch der Grund für das langsame Schreiben mit Dauerstrich-

Licht in diesen Kristallen ist. Daher muss es sich um eine indirekte Anregung der Elektronen handeln: Ein Teil der durch Zwei-Photonen-Absorption ins Leitungsband angeregten Elektronen wird von diesen Zentren eingefangen. Auf diese Weise wird der Kristall sensitiviert, denn in den besetzten Zentren Fe^{2+} und $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ stehen nun Elektronen für erneute Anregung ins Band zur Verfügung. Diese lineare Anregung ist sowohl für Fe als auch für Nb_{Li} möglich, da sich die Wellenlänge 532 nm in den Absorptionsbanden beider Zentren befindet. Bei dieser Folgeanregung tritt nun auch der volumenphotovoltaische Strom auf, der für die effiziente räumliche Umverteilung der Elektronen benötigt wird.

Abschließendes Einfangen der Ladungsträger

Da wir in den Kristallen ein elektrooptisches Gitter beobachten (vgl. 2.4.1), das ohne Beleuchtung über viele Minuten stabil ist, muss die endgültige Raumladungsverteilung in $\text{Fe}^{2+/3+}$ -Zuständen gespeichert sein. Die Umverteilung der Elektronen führt zu einer überschüssigen negativen Ladung an deren neuer Position, die letztlich von den Fe^{3+} -Zentren eingefangen wird, die dadurch zu Fe^{2+} werden.

In den Bereichen mit positivem Ladungsüberschuss bilden die überzähligen Löcher Lochpolaronen an Sauerstoffplätzen, kurz O^- [79], was zu einer reduzierten Beweglichkeit dieser Ladungsträger führt. Da die Elektronen in Eisenstörstellen noch unbeweglicher sind, sollten die Ausgleichsprozesse in diesen Bereichen wesentlich langsamer ablaufen als dort, wo Elektronen als Ladungsträger vorliegen, die – auch in Form von kleinen gebundenen Polaronen – wesentlich beweglicher sind. Auf einer Zeitskala von einigen Sekunden fangen vorhandene Fe^{2+} -Zentren aber auch hier die überzähligen Lochpolaronen ein, wodurch die lokale Fe^{3+} -Konzentration steigt [80].

Nach Abschluss dieser Vorgänge entspricht die Zahl an Elektronen oberhalb des Valenzbands wieder dieser Zahl vor Beginn der Beleuchtung entsprechen, d. h. der Anzahl der anfänglichen Fe^{2+} -Zustände. Daher tragen letztlich nur diese Elektronen zum abschließenden Ladungsmuster bei. Es gibt auch in unseren oxidierten Proben noch ausreichend viel Fe^{2+} , um die beobachteten Brechungsindexänderungen zu rechtfertigen, das bedeutet, es tritt keine Raumladungsbegrenzung auf.

Letztlich werden bei dem hier geschilderten Ladungstransportprozess nur Elektronen von einem Fe^{2+} zu einem Fe^{3+} an einer anderen Position im Kristall umverteilt, wie es beim photorefraktiven Effekt mit linearer Anregung auch der Fall ist. Durch die Zwei-Photonen-Absorption ist es beim Schreiben mit Pulsen jedoch möglich, sich Ladungsträger aus dem Valenzband zu „borgen“ und dadurch die Umverteilung zu beschleunigen.

Auswirkung von Konkurrenzprozessen auf $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$

Kann dieses Modell auch den Abfall der maximalen Brechungsindexänderung $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ mit ansteigender Energieflussdichte erklären? Dazu wäre es nach Gl. 5.18 erforderlich, dass die Leitfähigkeit schneller mit Φ_{Puls} ansteigt als der (volumenphotovoltaische) Strom. Dies wäre dann der Fall, wenn die in Abb. 5.2 mit den Nummern (2) und (4) bezeichneten Prozesse stärker wachsen als die für die Umverteilung zuständige Abfolge (1)-(3)-(5). Dies soll im Folgenden untersucht werden.

Dazu ist es hilfreich, die Dichten der beteiligten Zustände Löcher, Eisenstörstellen und Nb_{Li} abzuschätzen: Die Absorption eines Pulses der höchsten Pulsenergie bei einer optimalen Quanteneffizienz von 0,5 würde zu einer Dichte N_+ der Löcher von weniger als 10^{22} m^{-3} im Kristall führen. Vergleicht man dies mit den Dichten c_{Fe} der Eisenzentren in EQ2 aus Tabelle 3.4 und der Dichte $c_{\text{Nb}_{\text{Li}}}$ der Antisite-Defekte gemäß Abschnitt 2.1, so erhält man

$$N_+ < 10^{22} \text{ m}^{-3} \ll c_{\text{Fe}} \approx 2 \times 10^{25} \text{ m}^{-3} \ll c_{\text{Nb}_{\text{Li}}} \approx 10^{27} \text{ m}^{-3} . \quad (5.19)$$

Betrachten wir zunächst die Prozesse (2) und (3). Diese stehen in direkter Konkurrenz zu einander: Ein Elektron im Leitungsband hat die „Wahl“, lokal mit einem Loch zu rekombinieren oder von einem photorefraktiven Zentrum eingefangen zu werden. Im Kristall sind aber wie eben abgeschätzt viel mehr photorefraktive Zentren als Löcher vorhanden. Sofern die Löcher daher keinen Einfangquerschnitt haben, der einige Größenordnung über denen der photorefraktiven Zentren liegt, kann man wohl davon ausgehen, dass der Prozess (2) gegenüber (3) für alle verwendeten Pulsenergien vernachlässigt werden kann. Somit kommt es hier zu keiner Verschiebung von \vec{j}_{Phv} relativ zu σ_{Photo} mit der Pulsenergie.

Auch die Prozesse (4) und (5) stehen in einem Konkurrenzverhältnis zueinander. Ein Elektron in einem photorefraktiven Zentrum kann entweder durch ein Photon angeregt (5) oder zuvor an ein „vorbeikommendes“ Loch(-polaron) verloren gehen (4). Zusätzlich ist noch ein Übergang von Nb_{Li} in das Eisenzentrum möglich. Bei der genaueren Betrachtung ist es daher sinnvoll, zwischen dem Vorgang (4) über die Antisite-Störstelle (4Nb_{Li}) und über die Eisenstörstelle (4Fe) zu unterscheiden.

Aus der Diskussion der 2K-Messungen in Abschnitt 5.1.3 wissen wir, dass die Bildung der kleinen gebundenen Polaronen aus Elektronen im Leitungsband, also die Bevölkering des Nb_{Li} -Niveaus, höchstens 100 fs dauert. Damit stehen bereits gefüllte Zentren zur erneuten Anregung zur Verfügung, während der erzeugende Schreibpuls noch andauert. Die Lebensdauer der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ liegt im Bereich von etwa $10^{-6} - 10^{-3} \text{ s}$, in eisendotierten Kristallen eher zum kürzeren Bereich der Skala hin [25, 45]. Während der Pulsdauer von 200 fs dürfte damit, unabhängig von den Löchern, die Zahl der Rekombinationen vernachlässigbar sein. Auch zwischen den Pulsen dominiert aus dem $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ der Übergang in die Eisenzentren, die mindestens 1000 mal häufiger als die Löcher sind. Ohnehin sind bis zum folgenden Puls nach frühestens 1 ms

alle $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ verschwunden, eine erneute Anregung aus diesem Zentrum ist also nur während des gleichen Pulses möglich. Damit haben auch die Vorgänge zwischen den Pulsen und damit die Löcherdichte keinen Einfluss auf den Anregungsprozess (3) aus dem Nb_{Li} -Zentrum.

Beim Eisenzentrum sieht das allerdings anders aus. Dieses wird überwiegend nicht direkt aus dem Leitungsband bevölkert, sondern erst beim Abbau der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ indirekt mit Elektronen gefüllt. Das legen bereits die in Gl. 5.19 genannten Dichteverhältnisse zwischen Eisen und Antisites nahe, und das wird auch von den Messungen von Herth et al. bestätigt [80]. Somit kann eine Anregung aus dem Eisen erst mit dem folgenden Puls stattfinden, was durch eine Lebensdauer im Bereich von einer Sekunde auch möglich ist. Da sich die Fe^{2+} -Besetzung abbaut, indem die Elektronen an Löcher abgegeben werden (4Fe), ist hier nun allerdings deren Dichte von entscheidender Bedeutung für die Lebensdauer [80]. Sind also aufgrund starker Schreibpulse viele Löcher vorhanden, so wird dieses auch schneller abgebaut, und relativ zum Anfangszustand (und zur Zahl der anfangs angeregten Ladungsträger) besteht weniger Fe^{2+} bis zum folgenden Puls, um erneut angeregt zu werden (3), als bei schwachen Pulsen. Damit steigt \bar{j}_{Phv} aufgrund der Anregung aus dem Eisen schwächer an als die Leitfähigkeit σ_{Photo} insgesamt und kann damit zu einer Abnahme der Brechungsindexänderung mit zunehmender Pulsenergie führen.

Nur dieses Absinken der Fe^{2+} -Lebensdauer mit der Löcherdichte kann also im Rahmen des Modells dafür in Frage kommen, das Absinken von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ im unbehandelten Kristall zu erklären. Alle anderen Prozesse weisen keine entsprechende Intensitätsabhängigkeit auf. Weiter lässt sich schließen: Würde die Anregung aus dem $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ wesentlich mehr zur Ladungsumverteilung beitragen als die Anregung aus den Fe^{2+} , dann würde sich diese Lebensdaueränderung von Fe^{2+} kaum auswirken. Das steht aber mit dem beobachteten Absinken von $\Delta n_0^{\text{Sätt}}$ nicht in Einklang.

Folglich dominiert im beschriebenen Modell die photorefraktive Anregung über das Eisenzentrum gegenüber der Anregung über das Nb_{Li} -Niveau oder liegt wenigstens in der gleichen Größenordnung.

Lichtinduzierte Bevölkering von Eisenzentren

In der vorangegangenen Diskussion wurden die Prozesse des in Abb. 5.2 skizzierten Ladungstransportmodells einzeln untersucht. Dabei stellt sich heraus, dass eine Reihe theoretisch möglicher Prozesse vernachlässigbar sind. Für ein entsprechend vereinfachtes Modell soll hier der erste Ansatz einer quantitativen Beschreibung entwickelt werden.

Eine wesentliche Größe ist die Anzahl der Ladungsträger, die für einen Puls in den photorefraktiven Zentren zur Anregung verfügbar sind, also die Dichte der mit Elektronen besetzten Fe- und Nb_{Li} -Energieniveaus. Da im letzten Abschnitt die Bedeu-

tung des Eisenzentrums deutlich wurde, soll hier zunächst nur die Besetzungsdichte N_{Fe} dieser Fe-Zentren behandelt werden. Dazu treffen wir folgende auf der vorangegangenen Diskussion basierende Annahmen:

- Alle durch Zwei-Photonen-Absorption ins Leitungsband angeregten Elektronen bilden zunächst $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ und besetzen von dort aus die Eisenzentren. Eine Rekombination mit den Löchern direkt aus dem Leitungsband oder dem $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ist vernachlässigbar, wie in Abschnitt 5.2.2 besprochen. Daher gelangen alle (auch linear) angeregten Ladungsträger vollständig in das Eisenniveau.
- Aus Abschnitt 5.2.2 und den Beobachtungen von Herth et al. folgt [80]: Die Lebensdauer der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ist wesentlich größer als die hier verwendete Pulsdauer τ_{Puls} . Direkter Einfang aus dem Leitungsband durch das Eisen ist ebenfalls vernachlässigbar, daher erhöhen angeregte Ladungsträger N_{Fe} erst nach Ende des Pulses — verglichen mit dem Pulsabstand ν_{Rep}^{-1} aber nicht lange nach dem Puls, denn die Lebensdauer der $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ist kürzer als 1 ms. Es kann also eine quasi-instantane Erhöhung von N_{Fe} um $N_{2\gamma}$ unmittelbar nach dem Puls angenommen werden, das heißt, zwischen den Pulsen befinden sich alle zuvor angeregten Elektronen im Eisen. Diesen Zeitpunkt bezeichnen wir mit $t = 0$.
- Wir vernachlässigen das Ausbleichen des Eisens während des Pulses. Dieses hätte zwar einen Einfluss auf seine effektive lineare Absorption, aber nicht auf die gesuchte Besetzungsdichte des Eisens beim nächsten Puls, da alle angeregten Ladungsträger bis dahin wieder zurück ins Eisen gelangt sind. Aus dem gleichen Grund hat auch die erneute Anregung aus einem $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ -Zustand keinen Einfluss auf die Rechnung. In anderen Worten: Lineare Anregungen verringern für unsere Zwecke nicht die Anzahl der besetzten Fe-Zentren.
- Die Annihilation zwischen Fe^{2+} und Lochpolaronen ist wesentlich langsamer als die Pulsdauer und geschieht daher praktisch nur zwischen den Pulsen. Wir nehmen an, dass die Annihilationsrate proportional zur Dichte jedes der beteiligten Zentren ist.

Das sich daraus ergebende vereinfachte Modell ist in Abb. 5.3 dargestellt.

Aus dem letzten Punkt der Aufzählung folgt unmittelbar für die ungestörte Rekombination von Lochpolaronen der Dichte N_+ mit den besetzten Eisenzentren der Dichte N_{Fe} die Differentialgleichung

$$\partial N_{\text{Fe}} / \partial t = -g N_{\text{Fe}} N_+, \quad (5.20)$$

mit g als Proportionalitätskonstante, welche die Geschwindigkeit der Loch(-polaronen-)bewegung und einen Einfangquerschnitt des Fe^{2+} für diese Löcher enthält. Für N_{Fe} gilt zwischen den Pulsen im Allgemeinen $N_{\text{Fe}} = N_+ + c_{\text{Fe}^{2+}}$. Im Folgenden wollen

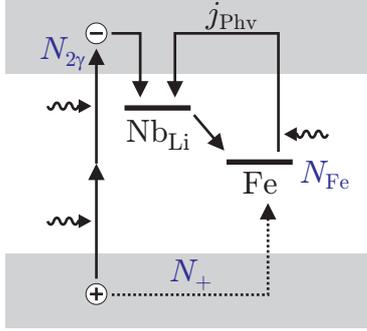


Abbildung 5.3: Vereinfachtes Modell zur Berechnung der Bevölkerung des Eisenzentrums mit Elektronen. Gegenüber Abb. 5.2 wurden vernachlässigbare Prozesse weggelassen, wie im Text erläutert. Die Größen in Blau bezeichnen die Dichte der durch einen Puls per Zwei-Photonen-Absorption aus dem Valenzband angeregten Ladungsträger ($N_{2\gamma}$), die Dichte der Löcher (N_+) und die Dichte der mit Elektronen besetzten Eisenzentren (N_{Fe}).

wir nur vollständig oxidiertes Material betrachten, wo $N_{\text{Fe}} = N_+$ gilt. Gleichung 5.20 wird damit zu

$$\partial N_{\text{Fe}} / \partial t = -g N_{\text{Fe}}^2 . \quad (5.21)$$

Separation der Variablen und anschließende Integration führt zur Lösung

$$N_{\text{Fe}}(t) = \frac{1}{gt + 1/N_{\text{Fe}}(0)} , \quad (5.22)$$

wobei $N_{\text{Fe}}(0)$ die Dichte der besetzten Eisenzentren unmittelbar nach dem Laserpuls bei $t = 0$ bezeichnet. Von diesem Zeitpunkt sinkt N_{Fe} bis zum Zeitpunkt $t = t_{\text{Rep}} = 1/\nu_{\text{Rep}}$ unmittelbar vor dem Eintreffen des nächsten Pulses.

Nach vielen Pulsen erreicht das System ein dynamisches Gleichgewicht, in dem zwischen den Pulsen so viele Löcher mit Fe^{2+} annihilieren wie beim folgenden Puls Elektronen durch Zwei-Photonen-Absorption neu zur Verfügung gestellt werden:

$$N_{2\gamma} \stackrel{!}{=} N_{\text{Fe}}(0) - N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}}) . \quad (5.23)$$

Dabei ist $N_{2\gamma}$ die Dichte an angeregten Ladungsträgern, die der Puls durch Zwei-Photonen-Absorption erzeugt. Aus dieser Bedingung ergibt sich mit Gl. 5.22 eine quadratische Gleichung für $N_{\text{Fe}}(0)$

$$N_{\text{Fe}}^2(0) - N_{2\gamma} N_{\text{Fe}}(0) - N_{2\gamma} / (gt_{\text{Rep}}) = 0 \quad (5.24)$$

mit der Lösung (wegen $N_{\text{Fe}} \geq 0$)

$$N_{\text{Fe}}(0) = N_{2\gamma} / 2 + \sqrt{N_{2\gamma}^2 / 4 + N_{2\gamma} / (gt_{\text{Rep}})} . \quad (5.25)$$

Die für uns interessante Größe ist die Besetzungszahl beim Eintreffen des Pulses, also $N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}})$. Diese erhalten wir aus Gl. 5.25 und Gl. 5.23:

$$N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}}) = -N_{2\gamma} / 2 + \sqrt{N_{2\gamma}^2 / 4 + N_{2\gamma} / (gt_{\text{Rep}})} . \quad (5.26)$$

Dies teilen wir nun durch die für das System charakteristische Dichte $N_{\text{char}} = (gt_{\text{Rep}})^{-1}$, was zu einer Normierung von $N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}})$ und $N_{2\gamma}$ auf diese Größe führt

$$\left(\frac{N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}})}{N_{\text{char}}}\right) = -\frac{1}{2}\left(\frac{N_{2\gamma}}{N_{\text{char}}}\right) + \sqrt{\frac{1}{4}\left(\frac{N_{2\gamma}}{N_{\text{char}}}\right)^2 + \left(\frac{N_{2\gamma}}{N_{\text{char}}}\right)}, \quad (5.27)$$

und tragen das so gewonnene Verhältnis in Abb. 5.4 auf. Man erkennt, dass die Besetzungsdichte des Eisens zunächst steil mit $N_{2\gamma}$ ansteigt, dann aber gegen die charakteristische Dichte N_{char} sättigt: Liegt $N_{2\gamma}$ oberhalb von etwa $2N_{\text{char}}$, so ändert sich $N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}})$ und damit auch die lineare Absorption für die Pulse kaum noch, selbst wenn die Pulsenergie und damit $N_{2\gamma}$ deutlich steigt.

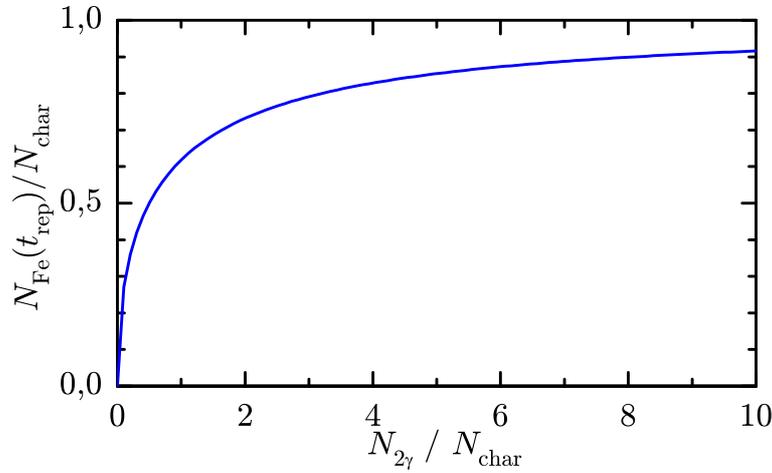


Abbildung 5.4: Dichte $N_{\text{Fe}}(t_{\text{Rep}})$ der besetzten Eisenzentren unmittelbar vor Eintreffen eines Pulses als Funktion der Zwei-Photonen-Anregungsrate $N_{2\gamma}$ je Puls. Beide Größen sind auf die charakteristische Dichte $N_{\text{char}} = 1/gt_{\text{Rep}}$ normiert. Die Kurve ist erst im Gleichgewicht, d. h. nach vielen Pulsen, gültig.

In welchem Bereich der Kurve finden sich die durchgeführten Messungen in oxidierten Kristallen wieder? Das lässt sich anhand der in Abb. 4.14 gezeigten Schreibzeit-Abhängigkeit von der Intensität eingrenzen: Die Leitfähigkeit ist proportional zur Anzahl der angeregten Ladungsträger, wobei die nichtlinear und linear angeregten Elektronen unterschiedlich zur Leitfähigkeit beitragen können. Für die in den Versuchen zur Photorefraktion benutzten Pulse gilt stets $\beta_{2\gamma}I_{\text{Puls}}d < 1$, woraus $N_{2\gamma} \propto \Phi_{\text{Puls}}^2$ folgt. Die Anzahl linear angeregter Elektronen ist proportional zu Φ_{Puls} und zusätzlich zu N_{Fe} :

$$\sigma_{\text{Photo}} = a_1\Phi_{\text{Puls}}^2 + a_2N_{\text{Fe}}\Phi_{\text{Puls}} \quad (5.28)$$

$$\approx \begin{cases} a_1\Phi_{\text{Puls}}^2 + a_2(N_{\text{char}}\Phi_{\text{Puls}}\sqrt{a_3})\Phi_{\text{Puls}} & \text{für } N_{2\gamma} \ll N_{\text{char}} \\ a_1\Phi_{\text{Puls}}^2 + a_2N_{\text{char}}\Phi_{\text{Puls}} & \text{für } N_{2\gamma} \gg N_{\text{char}} \end{cases} \quad (5.29)$$

Hier gibt der erste Term den Anteil der Zwei-Photonen-Absorption, der zweite Term den Anteil der linearen Absorption aus dem Eisen an. Die Größen a_1 , a_2 und a_3 sind Proportionalitätskonstanten. Für kleine Energieflussdichten Φ_{Puls} geht in Gl. 5.29 die Näherung $N_{\text{Fe}} \approx N_{\text{char}} \sqrt{N_{2\gamma}/N_{\text{char}}}$ der Gl. 5.27 ein. In diesem Bereich ergibt sich in Gl. 5.29 eine quadratische Abhängigkeit der Leitfähigkeit von Φ_{Puls} , unabhängig vom Verhältnis der Parameter a_1 und a_2 . Das lässt sich mit den in Abb. 4.14 gezeigten Messdaten nicht vereinbaren: Das zur Photoleitfähigkeit proportionale τ_{M}^{-1} steigt für den oxidierten Kristall insbesondere für die unteren Messwerte nicht quadratisch mit \hat{I} und damit mit Φ_{Puls} .

Im zweiten Zweig der Gl. 5.29 wird der Bereich $N_{2\gamma} \gg N_{\text{char}}$ untersucht. Hier finden wir in unserem Modell eine gemischte lineare und quadratische Abhängigkeit: Für sehr große Pulsenergie dominiert der in Φ_{Puls} quadratische erste Term. Pulse sehr kleiner Energie führen dagegen zu einer Abhängigkeit proportional zu Φ_{Puls} , da der lineare Term dominiert. Ob ein solcher Bereich mit fast linearer Abhängigkeit existiert, also so kleine Φ_{Puls} mit der Bedingung $N_{2\gamma} \gg N_{\text{char}}$ vereinbar sind, hängt vom Verhältnis der Koeffizienten a_1 und a_2 in Gl. 5.29 ab. Die in Abb. 4.14 gezeigten Daten wären jedenfalls gut durch einen solchen Bereich fast linearer Abhängigkeit zu beschreiben. Allerdings würde es die Daten sicher zu sehr beanspruchen, die Abweichung der oberen beiden Messwerte vom linearen Anstieg bereits als Übergang zum quadratisch-dominierten Bereich zu interpretieren.

Für die Besetzung der Eisenzentren in komplett oxidierten Kristallen wurde damit eine mathematische Beschreibung gefunden. Die Bestimmung der Parameter dieses Modells aus weiteren Messungen, eine Ausweitung auf Kristalle mit Fe^{2+} -Gehalt sowie die Einbeziehung der Nb_{Li} -Zentren bleibt späteren Arbeiten vorbehalten. Als unmittelbarer Ansatzpunkt zur Bestätigung des vorgestellten Ladungstransportmodells bietet es sich an, parallel zum Schreiben von Gittern die lichtinduzierte Absorption für verschiedene Wellenlängen zu bestimmen.

5.2.3 Einfluss der lichtinduzierten Streuung

Der Abfall der Brechungsindexmodulationsamplitude Δn_0 beim Schreiben mit Dauerstrich-Licht, der in Abb. 4.9 beobachtet wird, kann im Wesentlichen auf holographische Streuung zurückgeführt werden: Wie aus Abb. 4.10 ersichtlich wird, ist der beobachtete Abfall der Schreibstrahlleistungen $P_{\text{S1}} + P_{\text{S2}}$ hinter dem Kristall zum einen zeitlich gut mit dem Abfall des Beugungswirkungsgrades korreliert. Zum anderen stimmt er gut mit den Intensitätsverlusten hinter dem Kristall überein, die bei der Untersuchung der lichtinduzierten Streuung in Abschnitt 4.3 gemessen wurden, siehe Abb. 4.18. Die ausgeprägteren Rückgänge von Δn_0 für außerordentlich polarisiertes Licht, welches auch eine stärkere lichtinduzierte Streuung aufweist, stützen ebenfalls die Vermutung dieses Zusammenhangs. Die Streuung wirkt sich wie folgt auf das Schreiben der Gitter aus: Zum einen verlieren die Schreibstrahlen durch die

Streuung an Intensität, wodurch das Interferenzmuster immer schwächer ausgeprägt wird. Zum anderen findet durch die Streuung eine zusätzliche, weitgehend homogene Hintergrundbeleuchtung des Kristalls statt. Letzteres erhöht die Leitfähigkeit des Kristalls und kann so zu einem Absinken von Δn_0 führen.

Ein weiterer Effekt könnte im Zusammenhang mit dem Maximum und dem anschließenden Abfall der Beugungseffizienz allerdings auch eine Rolle spielen: Läuft man beim Schreiben in eine Raumladungsbegrenzung, das heißt, stehen keine Ladungsträger aus den photorefraktiven Zentren mehr für die Umverteilung zur Verfügung, kommt es zu komplexen Schreibzeiten [51, 81]. Allerdings sollte dieser Effekt für unsere Fe^{2+} -Konzentrationen keine Bedeutung haben, insbesondere nicht in unbehandelten eisendotierten Kristallen, aber auch nicht in den von uns verwendeten oxidierten Kristallen. Daher kann Raumladungsbegrenzung als Ursache ausgeschlossen werden.

5.3 Holographische Streuung von fs-Pulsen

Bei der Untersuchung der lichtinduzierten Streuung in Abschnitt 4.3 beobachtet man für Pulse und Dauerstrich-Licht, dass sich die Stärke der Streuung allmählich über die Zeit aufbaut, über unbeleuchtete Zeiten hinweg konstant bleibt und mit Licht wieder vollständig gelöscht werden kann. Makroskopische Brechungsindexänderungen sind im Kristall nicht nachweisbar, und dreht man einen beleuchteten Kristall um wenige Grad, so geht die Streuung zunächst sofort zurück. All dies zeigt deutlich, dass die lichtinduzierte Streuung sowohl mit Pulsen als auch mit Dauerstrich-Licht eine photorefraktive Erscheinung ist und auf parasitären Gittern beruht, wie in Abschnitt 2.6 dargestellt.

Allerdings findet man mehrere deutliche Unterschiede zwischen der Streuung von Pulsen und Dauerstrich-Licht. So ist die Streuung von Pulsen stets schwächer ausgeprägt, wächst langsamer an und zeigt eine geringere Winkelselektivität als die Streuung von Dauerstrichlicht. Pulslicht wird in Form von Streukeulen unter etwa 13° in Vorwärtsrichtung gestreut, während das gestreute Dauerstrich-Licht um etwa 90° abgelenkt wird und den Kristall durch die Seitenflächen verlässt. In Kristallen mit geringem Fe^{2+} -Gehalt schließlich zeigen Pulse im Gegensatz zu Dauerstrichlicht überhaupt keine Streuung.

In photorefraktiven Kristallen sind eine Vielzahl lichtinduzierter Streuprozesse möglich [82], die miteinander um die Verstärkung durch das einfallende Licht konkurrieren [83]. Wir wollen in den kommenden Abschnitten ergründen, warum bei Pulsbeleuchtung offenbar andere Prozesse dominieren als bei Dauerstrichlicht und welche physikalischen Ursachen dafür verantwortlich sind.

5.3.1 Intensitätsabhängigkeit und Sensitivität

Ein wesentlicher Unterschied zwischen Dauerstrich-Licht und Pulsen besteht in der erheblich höheren Spitzenintensität der letzteren. Drei Beobachtungen sprechen allerdings dagegen, dass nichtlineare Anregungen hier ein entscheidender Faktor sind: Erstens verläuft die beobachtete Sensitivität für Dauerstrich-Licht und Pulse in etwa linear, wie in Abb. 4.19 gezeigt, was der Erwartung für lineare Anregung aus den Eisenzentren entspricht. Hinzu kommt zweitens, dass bei der Streuung die Sensitivität für Pulse wesentlich geringer ist als für Dauerstrich-Licht. Würden nichtlineare Effekte einen zusätzlichen Beitrag zu Streuung und Leitfähigkeit liefern, würde man aber einen schnelleren Anstieg bei Pulsen erwarten, nicht bei Dauerstrich-Licht. Drittens beobachten wir in Kristallen mit geringem Fe^{2+} -Gehalt keine Streuung der Pulse mehr; gerade hier würden nichtlineare Anregungen aber besonders deutlich zur Geltung kommen, weil die linearen Anregungen dort schwächer ausfallen.

5.3.2 Ursache der z -Flächen-Streuung

Der Effekt der Streuung hin zu den z -Seitenflächen des Kristalls wird als „90°-Streuung“ oder z -Flächen-Streuung genannt, da das Licht dabei etwa um 90° abgelenkt wird und aus dem z -Flächen des Kristalls austritt. Er wird im Englischen auch als *light climbing effect* bezeichnet, da sich das Licht durch den großen Ablenkwinkel und mehrfache Totalreflexion quasi an der c -Achse entlang hangelt. Liu et al. beschreiben diesen Effekt und die Bedingungen, denen er unterliegt [84]. Im Wesentlichen hängt das Auftreten der z -Flächen-Streuung vom Verhältnis des Lichtstrahldurchmessers zur Kristalldicke ab: Generell konkurrieren die Prozesse Vorwärtstreuung und z -Flächen-Streuung um die Verstärkung durch die Hauptwelle. Es setzt sich letztlich der Effekt durch, der die größere Verstärkung erhält. Die z -Flächen-Streuung dominiert daher, wenn das nach der Seite, entlang der z -Achse laufende Licht eine lange Strecke zurücklegt und daher eine große Wechselwirkungsstrecke mit der Hauptwelle besitzt, auf der sie verstärkt werden kann. Fokussiert man den Dauerstrichlichtstrahl, so wird diese Verstärkungsstrecke und damit die erreichbare Verstärkung nach der Seite sofort wesentlich verringert, und der Effekt tritt nicht mehr auf; stattdessen kommt nun die Vorwärtstreuung unter kleinem Winkel zum Zug, was durch das Auftreten der typischen Streukeulen angezeigt wird.

5.3.3 Kohärenz und Streurichtung

Diese Verstärkung nach der Seite ist für die Beleuchtung mit Femtosekundenpulsen allerdings eingeschränkt, obwohl sie die von Liu et al. aufgeführten Bedingungen für die z -Flächen-Streuung ebenso erfüllt wie das Dauerstrich-Licht [84]. Da der Puls aber nur eine endliche Dauer hat, entfernen sich der einlaufende Puls und das an einem Streuzentrum entstehende Streulicht voneinander, wenn sie in verschiedene Richtungen laufen. Wie in Abb. 5.5 illustriert, überlappen bei Annahme einer zeitlich rechteckigen Pulsform und Vernachlässigung der Doppelbrechung Haupt- und Streupuls nur in einem paraboloiden Volumen miteinander. Legt man den Nullpunkt eines Koordinatensystems entsprechend den Kristallachsen durch das exemplarische Streuzentrum nahe der Frontfläche, so erhält man aus geometrischen Überlegungen

$$r_{\text{Streu}}(x) = \sqrt{\frac{2c\tau_{\text{Puls}}}{n}x + \left(\frac{c\tau_{\text{Puls}}}{n}\right)^2}, \quad (5.30)$$

wobei r_{Streu} den Radius des Überlappbereichs senkrecht zur x -Achse darstellt.

Bis zum Ende des Kristalls der Dicke d überlappt insbesondere nur der Teil des Streulichts mit der Pumpwelle, welcher sich innerhalb des Winkels $2\theta_{\text{Streu}}^{\text{max}}$ mit

$$2\theta_{\text{Streu}}^{\text{max}} = \arctan \sqrt{\frac{2c\tau_{\text{Puls}}}{nd} + \left(\frac{c\tau_{\text{Puls}}}{nd}\right)^2} \quad (5.31)$$

ausbreitet, der vom Schnitt des Paraboloiden mit der hinteren Kristallfläche aufgespannt wird. Licht, welches unter einem größeren Winkel gestreut wird, hat eine effektiv kürzere Strecke, auf der es verstärkt werden kann. Somit wird die Streuung unter großen Winkeln bei Femtosekundenpulsen unterdrückt, und die z -Flächen-Streuung tritt nicht auf. Allgemeiner gesagt ist nicht die Pulsdauer, sondern die zeitliche Kohärenz entscheidend: Eine Verstärkung kann nur dort stattfinden, wo Pump- und Streulicht sich kohärent überlagern, da die Kopplung durch Interferenz und das daraus entstehende photorefraktive Gitter erfolgt. Für bandbreitenbegrenzte Pulse, wie in den vorgestellten Messungen verwendet, fallen Kohärenzzeit und Pulsdauer allerdings zusammen.

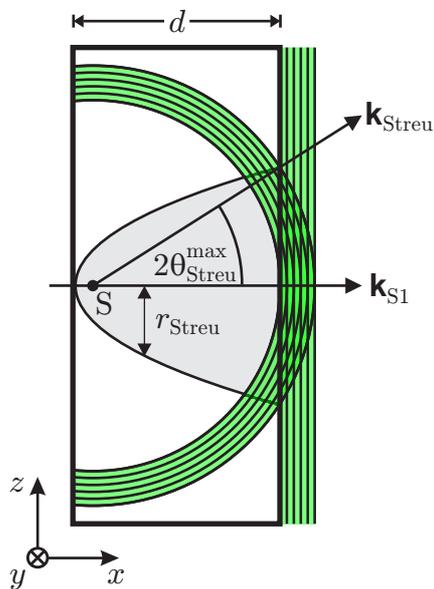


Abbildung 5.5: Schemazeichnung des Überlapps zwischen durchlaufendem Puls und Streulicht, welches vom Streuzentrum S nahe der vorderen x -Fläche des Kristalls ausgeht. Die Pulse haben die Ausdehnung $c\tau_{\text{Puls}}/n$ und überlappen sich innerhalb des Winkels $2\theta_{\text{Streu}}^{\text{max}}$ bis zum Ende des Kristalls der Dicke d . Der paraboloiden Bereich der Überlappung ist grau hinterlegt und sein Durchmesser $r_{\text{Streu}}(x)$ gemäß Gl. 5.30 angegeben. Die Vektoren \mathbf{k}_{S1} und $\mathbf{k}_{\text{Streu}}$ geben die Ausbreitungsrichtung von durchlaufender und gestreuter Welle an.

5.3.4 Modellierung der Winkelabhängigkeit

Wie lässt sich nun der in Abb. 4.22 dargestellte Unterschied in der Schärfe der Winkelselektivität zwischen Dauerstrich-Licht und Pulsen verstehen? Es zeigt sich, dass bereits die unterschiedlich großen Streuwinkel als Ursache für diese Beobachtung ausreichen: Gitter für kleinere Ablenkungswinkel haben gemäß Gl. 2.11 einen kleineren Gittervektor \mathbf{K} und sind dadurch weniger winkelselektiv um den Bragg-Winkel herum.

In einem vereinfachten Modell nimmt man dazu wie in Abb. 5.6 skizziert an, dass das Streulicht aus dem Pumpstrahl nur durch ein einzelnes, homogenes Gitter abgelenkt wird. Der Verlust lässt sich dann durch die Formel von Kogelnik für Transmissions-

hologramme bestimmen [59]:

$$\eta(\theta) = \nu \frac{\sin^2(\nu + \xi)}{(\nu + \xi)^2}, \quad \text{mit} \quad (5.32)$$

$$\nu = \frac{\pi d_{\text{eff}} \Delta n_0}{\lambda_S \cos(\theta_{\text{Bragg}})} \quad \text{und} \quad \xi = \sin(\theta + \theta_0 - \theta_{\text{Bragg}}) |\mathbf{K}| d_{\text{eff}} / 2.$$

Dabei sind d_{eff} eine effektive Dicke des elementaren Hologramms, λ_S die Wellenlänge des Schreib- (und hier auch Lese-)lichts, θ der Einfallswinkel des Strahls, gemessen im Kristall, und θ_0 eine Verschiebung dieses Winkels.

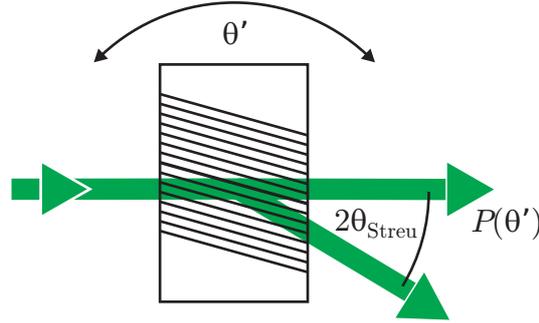


Abbildung 5.6: Schema für ein einfaches Modell zur Winkelabhängigkeit der lichtinduzierten Streuung: Das Licht wird durch die Streuung hauptsächlich um den Winkel $2\theta_{\text{Streu}}$ (gemessen im Kristall) aus der ursprünglichen Richtung abgelenkt. Diese Ablenkung schreiben wir vereinfacht einem einzelnen, homogenen Hologramm zu. Der Betrag des \mathbf{K} -Vektors und der Bragg-Winkel θ_{Bragg} dieses Gitters sind aus der Beobachtung von $2\theta_{\text{Streu}}$ bekannt, allerdings nicht die Lage von θ_{Bragg} bzgl. des Nullpunkts von θ . Man dreht nun den Kristall um den Außenwinkel θ' , misst die Streueffizienz $\eta_{\text{Streu}}(\theta')$ und vergleicht sie mit dem Beugungswirkungsgrad dieses gedachten Gitters $\eta(\theta')$ gemäß Gl. 5.32.

Als Ablenkwinkel $2\theta_{\text{Streu}}$ im Kristall nehmen wir für Dauerstrich-Licht den Winkel der Totalreflexion an der hinteren Kristallfläche an. Das entspricht nur einer unteren Grenze des Winkels, denn größere Ablenkungen würden ebenfalls zur beobachteten z -Flächen-Streuung führen. Für Pulse beobachten wir außerhalb des Kristalls das Intensitätsmaximum der Streukeulen bei etwa 13° und setzen daher als Winkel $2\theta_{\text{Streu}}$ im Kristall 6° an.

Im Modell ist θ_{Streu} gleich dem Bragg-Winkel θ_{Bragg} des einzelnen Hologramms, auch wenn die Lichtwelle nicht genau im Braggwinkel auf das Gitter trifft, und zusammen mit der Wellenlänge des Lichts ergibt sich der Betrag vom \mathbf{K} -Vektor dieses Gitters zu

$$\mathbf{K} = 2\mathbf{k}_{S1} \sin(\theta_{\text{Bragg}}) = \frac{4\pi n}{\lambda_S} \sin(\theta_{\text{Streu}}). \quad (5.33)$$

Diese Beziehung müssen wir im Kristall aufstellen, da für Dauerstrich-Licht wegen der Totalreflexion kein Streuwinkel außerhalb des Kristalls existiert. Die Lage des

Gitters im Kristall ist dadurch aber noch nicht festgelegt. Dazu ist in Gl. 5.32 der Parameter θ_0 vorhanden, der sozusagen eine Verschiebung des Nullpunkts von θ (im Kristall) erlaubt, um das Maximum des Modells mit dem Maximum der Streuung zur Deckung zu bringen.

Diese sehr einfache Modellierung lässt eine Beschreibung der Messdaten zu, indem im Modell Δn_0 angepasst wird, um die Stärke der Verluste anzugleichen. Außerdem setzen wir für die Dicke des Hologramms $1/3$ der Kristalldicke d an. Dieser Schritt ist gerechtfertigt, denn die Gitter sind hochgradig inhomogen. Entsprechende Kurven, bei denen die maximale Änderung von T_{rel} und die Lage des Minimums angepasst sind, zeigt Abb. 4.22 gemeinsam mit den Daten. Man erkennt, dass die Verbreiterung der Winkelselektivität durch dieses sehr einfache Modell bereits gut beschrieben wird.

Phasenkopplung zwischen den Strahlen führt zu einem Verkippen holographischer Gitter [85, 86], was die beobachtete Verschiebung des Transmissionsminimums erklären könnte. Eine weitergehende Modellierung sollte insbesondere das räumlich und zeitlich variierende Intensitätsverhältnis zwischen den beteiligten Strahlen berücksichtigen: Dieses Verhältnis beeinflusst wesentlich das Kippungsverhalten und insbesondere eine mögliche Symmetriebrechung durch die Richtung der c -Achse, die die asymmetrische Verschiebung des Minimums erklären kann.

5.3.5 Abhängigkeit vom Fe^{2+} -Gehalt

Offenbar gibt es für die lichtinduzierte Streuung von außerordentlich polarisierten Femtosekundenpulsen eine Schwelle des Fe^{2+} -Gehalts: Wie in Abb. 4.21 erkennbar, tritt für DT1-Kristalle mit dem Gesamteisen Gehalt $c_{\text{Fe}} = 7 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ die Streuung nur bei einer Fe^{2+} -Konzentration von mehr als $c_{\text{Fe}^{2+}} = (2,1 \dots 3,7) \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ auf. Entsprechend liegt die Schwelle für EQ2 ($c_{\text{Fe}} = 17,5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$) im Bereich $c_{\text{Fe}^{2+}} = (0,9 \dots 1,5) \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, und für DT2 ($c_{\text{Fe}} = 48,3 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$) bei $c_{\text{Fe}^{2+}} = (0,4 \dots 1,2) \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$. Die Fe^{2+} -Schwelle liegt also für Kristalle mit höherer Gesamteisenkonzentration niedriger.

Für Dauerstrichlicht mit außerordentlicher Polarisation ist eine solche Schwelle nicht erkennbar: In allen untersuchten Proben trat lichtinduzierte Streuung auf. Allerdings erkennt man für Dauerstrich-Licht in Abb. 4.21 für jede der drei Kristallserien den Trend, dass die Streuung mit sinkendem Fe^{2+} -Gehalt zurückgeht.

Die vorliegenden Daten liefern keine ausreichende Grundlage, die Ursache dieser abweichenden $c_{\text{Fe}^{2+}}$ -Abhängigkeit für Pulse und Dauerstrich-Licht zu bestimmen. Es kann aber vermutet werden, dass der Unterschied vor allem auf die Unterdrückung der z -Flächen-Streuung bei Pulsen zurückzuführen ist: Generell nimmt die Stärke der Streuung mit sinkendem Fe^{2+} -Gehalt ab. Die z -Flächen-Streuung liefert offenbar eine bessere Verstärkung des Streulichts als die Vorwärtsstreuung, sonst würde

sie bei Dauerstrich-Beleuchtung nicht über die Vorwärtsstreuung dominieren. Daher kann sie auch noch in Kristallen auftreten, in denen es aufgrund schlechter Verstärkungsbedingungen nicht mehr zu Vorwärtsstreuung kommt. Für Pulse tritt dort dann allerdings überhaupt keine Streuung mehr auf, da der z -Flächen-Streumechanismus für diese unterdrückt ist, siehe Abschnitt 5.3.2.

In den Kristallen, die für Pulse unterhalb der $c_{\text{Fe}^{2+}}$ -Streuschwelle liegen, sollte daher die Streuung von Dauerstrich-Licht ebenfalls unterbleiben, wenn die z -Flächen-Streuung anderweitig unterdrückt wird, beispielsweise durch Fokussierung des Dauerstrich-Lichts. Hierzu wurden aber bislang keine Untersuchungen durchgeführt.

Die wesentlichen Unterschiede zwischen der lichtinduzierten Streuung von Pulsen und Dauerstrich-Licht konnten auf die Unterdrückung der z -Flächen-Streuung für Pulse wegen deren kleinerer Kohärenzlänge zurückgeführt werden. Dies ist zwar plausibel, eine experimentelle Bestätigung wäre aber wünschenswert: Ist dieser Streumechanismus auch für Dauerstrich-Licht unterdrückt, beispielsweise durch einen kleinen Strahldurchmesser oder passende Kristallabmessungen, so sollten sich beide Beleuchtungsarten in Hinblick auf die Streuung gleich verhalten. Findet man hier dennoch Unterschiede, ist auch für Streuprozesse zusätzlich noch der Einfluss nichtlinearer Prozesse für die Pulse in Betracht zu ziehen. Diese Überprüfung wäre vor allem in Hinblick auf die bei Pulsen vorhandene Fe^{2+} -Schwelle für die Streuung interessant.

5.4 Übersicht über die Prozesse in LiNbO_3 auf verschiedenen Zeitskalen

Fassen wir die vorangegangene Diskussion zu den drei Experimenten einschließlich den darin zitierten Ergebnissen aus anderen Publikationen zusammen. Daraus ergibt sich ein Gesamtbild für den photorefraktiven Effekt in eisendotierten Lithiumniobatkristallen mit Femtosekundenpulsen, wie es in Abb. 5.7 dargestellt ist:

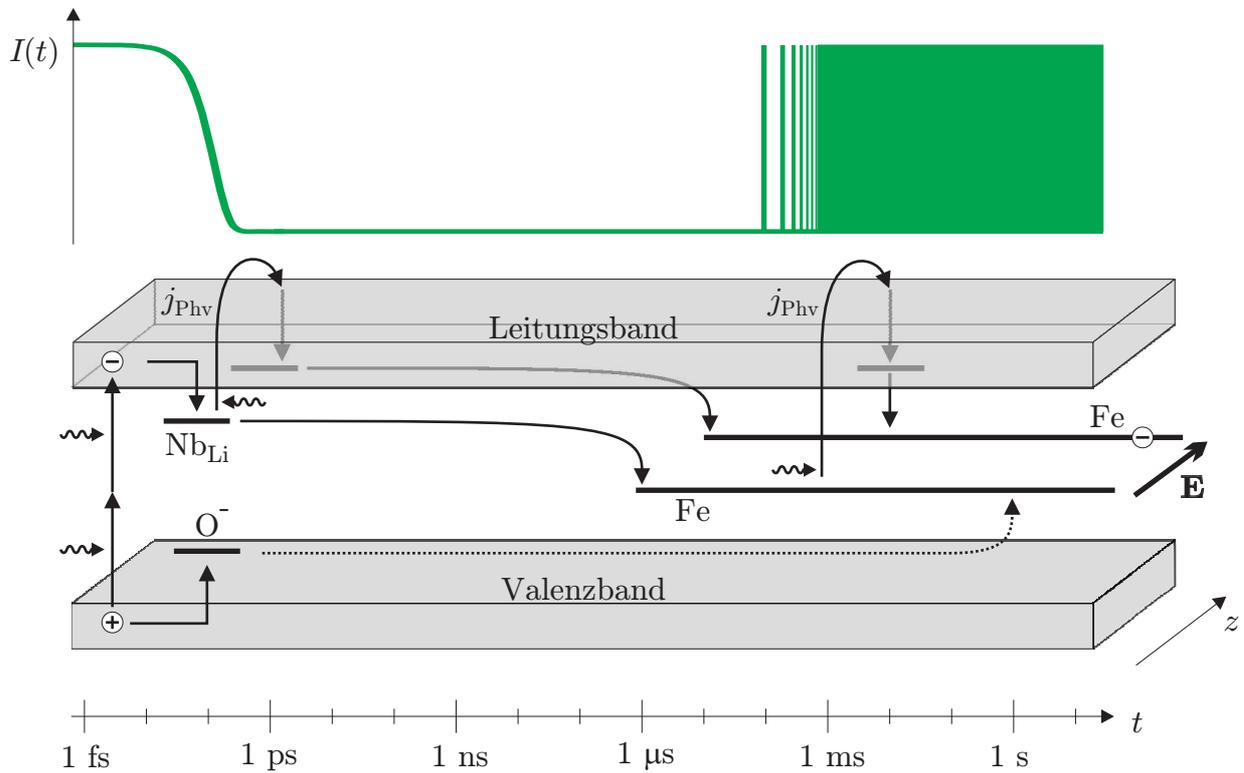


Abbildung 5.7: Übersicht über die Prozesse nach Anregung durch einen Femtosekunden-Laserpuls, siehe Text. Die nichtlinearen Anregungen beim zweiten Lichtpuls (bei 1 ms) und alle späteren Anregungen sind der Übersichtlichkeit halber nicht dargestellt.

Durch Zwei-Photonen-Absorption eines Lichtpulses wird ein Elektron vom Valenzins Leitungsband angeregt. Das dadurch im Leitungsband entstehende Loch wird schnell lokalisiert und bildet ein nur wenig bewegliches Lochpolaron (O^-), wobei wir die Zeitskala nicht genau kennen. Das Elektron im Leitungsband wird in 100 fs oder weniger ebenfalls lokalisiert, indem es mit $\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$ ein kleines, gebundenes Polaron ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$) bildet, es bleibt dabei aber wesentlich beweglicher als das Lochpolaron. Da der Puls länger andauert als die Bildungszeit dieses Polarons, kann das Elektron noch im gleichen Puls erneut durch lineare Absorption angeregt werden. Weil das

$\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ein photorefraktives Zentrum ist, trägt es dann zum volumenphotovoltaischen Strom bei.

Auf einer stark von der Fe^{3+} -Konzentration abhängigen Zeitskala von etwa 10^{-5} s „finden“ die kleinen gebundenen Polaronen ein unbesetztes Eisenzentrum, die Elektronen gehen in dieses tiefere Energieniveau über und erhöhen so die Fe^{2+} -Konzentration. Die besetzten Eisenzentren bewirken für die bei $\nu_{\text{Rep}} = 1000$ Hz in 1 ms Abstand folgenden Pulse eine lineare Absorption, aufgrund welcher die Elektronen aus dem Fe^{2+} linear ins Leitungsband angeregt werden und dort zum volumenphotovoltaischen Strom beitragen. Ein bestehendes Lochpolaron benötigt eine stark von $c_{\text{Fe}^{2+}}$ abhängige Zeit von etwa 1 s, um im Rahmen seiner langsamen Bewegung zufällig auf ein besetztes Eisenzentrum Fe^{2+} zu treffen und damit zu annihilieren.

Wird das Material mit einer regelmäßigen Folge von Pulsen bestrahlt, so stellt sich ein dynamisches Gleichgewicht der Dichte der Löcher und der Fe^{2+} -Konzentration ein, und während und nach jedem Puls laufen die Anregungs- und Rekombinationsprozesse in gleicher Weise und Stärke ab. Ist die Beleuchtung inhomogen, beispielsweise ein Interferenzmuster, so ist auch die Stromdichte inhomogen, und es kommt zur Umverteilung von Ladungsträgern. Dadurch baut sich auf der Sekunden- bis Minutenzeitskala, je nach Intensität, Dotierung und Oxidationszustand, ein Raumladungsfeld und damit über den Pockelseffekt ein photorefraktives Brechungsindexmuster auf. Auch die parasitären Gitter der lichtinduzierten Streuung entstehen auf diesen Zeitskalen.

Eine Lücke für das Verständnis des photorefraktiven Effekts mit Pulsen klafft noch im Bereich oberhalb von 100 fs: Während die Erzeugung der Ladungsträger untersucht ist, wird deren Umverteilung bislang nur anhand der kumulierten Raumladungsfelder nach vielen Pulsen auf der Sekundenskala beobachtet. Das lässt allerdings nur indirekte Schlüsse zu. Es wäre daher sehr interessant, den Aufbau eines photorefraktiven Gitters nach Beleuchtung mit einzelnen Schreibpulspaaren direkt zu messen. Dazu bieten sich „Pump-Probe“-Versuche mit geschickt gewählter anisotroper Schreib- und Auslesegeometrie an, um das entstehende schwache elektrooptische Gitter von den transienten Absorptions- und Phasengittern trennen zu können.

KAPITEL 6

PRAXISRELEVANZ DER ERGEBNISSE

Wesentliches Ziel dieser Arbeit ist es, den photorefraktiven Effekt mit Femtosekundenpulsen besser zu verstehen. Einige Ergebnisse haben allerdings auch eine direkte praktische Anwendung, die hier kurz dargestellt werden soll.

Die 2K-Holographie ist nicht auf Lithiumniobat beschränkt. Sie ermöglicht es vielmehr generell, einen nichtlinearen Anregungsprozess getrennt von gleichzeitigen linearen Störungen zu untersuchen. Dieses Verfahren lässt sich somit zur Untersuchung und Charakterisierung vieler Halbleiter und Dielektrika verwenden.

Holographische Streuung ist für die Anwendung von LiNbO_3 mit Femtosekundenpulsen verringert oder verschwindet sogar ganz für Kristalle mit niedrigem Fe^{2+} -Gehalt. Benötigt man für eine Anwendung einen Kristall, der mit schmalbandigem Dauerstrichlicht Streuung zeigt, so lässt sich dies möglicherweise lösen, indem man auf Licht einer kleineren Kohärenzlänge ausweicht, sofern die Anwendung das zulässt. Dafür ist man nicht unbedingt auf kurze Pulse angewiesen: Auch breitbandige Halbleiter-Diodenlaser liefern Licht mit einer vergleichbaren spektralen Breite von wenigen Nanometern und entsprechend kurzer Kohärenzlänge.

Für nichtlineare Anwendungen von Lithiumniobat mit Femtosekundenpulsen, beispielsweise zur THz-Erzeugung durch optische Gleichrichtung [8], stellt die Zwei-Photonen-Absorption die wesentliche Grenze dar. Die nichtlineare Anregung kann über die Sensitivierung des Kristalls zu optischem Schaden führen, auch wenn die Absorption selbst noch tolerierbar wäre. Das gilt auch in völlig Fe^{2+} -freien, aber Fe^{3+} -haltigen Kristallen. Für jene Verfahren zur Unterdrückung des optischen Schadens, die auf Oxidation der Kristalle beruhen [15, 16], stellen diese Ergebnisse daher eine klare Einschränkung dar. Es empfiehlt sich, die Kristalle für entsprechende Applikationen nur mit Pulsen großer Wellenlänge zu verwenden ($\lambda_S > 600 \text{ nm}$), da dort die Zwei-Photonen-Absorption weniger stark auftritt. Ist das nicht möglich, gibt die Änderung der Repetitionsrate eine wichtige Möglichkeit, die Photorefraktion bei gleichbleibender Durchschnittsleistung zu minimieren, da die maximale Fe^{2+} -Besetzung antiproportional zu ν_{Rep} ist.

Im Zusammenhang mit dem so genannten *thermischen Fixieren* bietet die Photorefraktion mit Pulsen dagegen eine ganz neue Möglichkeit. Das „konventionelle“ thermische Fixieren funktioniert wie folgt [54,87]: Schreibt man mit Dauerstrichlicht ein photorefraktives Gitter in einen Fe^{2+} -haltigen LiNbO_3 -Kristall und erhitzt ihn währenddessen auf etwa $180\text{ }^\circ\text{C}$, werden Wasserstoffionen (H^+) (oder auch Lithium) beweglich, können den photorefraktiven Raumladungsfeldern folgen und die Raumladungen kompensieren. Das so entstehende H^+ -Muster bleibt im Kristall nach Abkühlung auf Raumtemperatur stabil, da die Ionen wieder unbeweglich werden. Die H^+ -Ladungsverteilung ist zunächst durch eine gleichphasige Verteilung der negativen Fe^{2+} -Zentren kompensiert. Beleuchtet man den Kristall nun homogen, so verteilen sich die $c_{\text{Fe}^{2+}}$ -Zentren um, und ein Raumladungsmuster entsteht: Das Hologramm wurde entwickelt. In vollständig oxidierten Kristallen ist mit linearer Anregung kein Schreiben thermisch fixierter Hologramme möglich, weil kein Fe^{2+} zum Aufbau des Raumladungsfeldes zur Verfügung steht.

Mit Femtosekundenpulsen ließen sich dagegen auf analoge Weise thermisch fixierte Hologramme auch in Fe^{2+} -freiem $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ erzeugen. Solche „FemtoTherm“-Hologramme wären möglich, da *während* der Puls-Beleuchtung Raumladungsfelder der gleichen Größenordnung wie in unbehandelten Kristallen erreichbar sind, wie in dieser Arbeit gezeigt wird. Diese Felder bewirken wie beim konventionellen Verfahren die Umverteilung der H^+ -Ionen im erhitzten Kristall.

Im Idealfall rekombinieren nach dem Schreiben und Abkühlen alle transienten Fe^{2+} -Zentren wieder mit Löchern, so dass der Kristall wie zuvor frei von Fe^{2+} wird; möglicherweise muss bei diesem Schritt ähnlich dem Entwickeln nachgeholfen werden. Die so in oxidierte Kristalle geschriebenen „FemtoTherm“-Hologramme zeigten nur noch das Muster der Wasserstoffionen auf und hätten damit zwei wesentliche Vorteile: Sie wären für sichtbares und nahinfrarotes Licht völlig transparent, während die konventionellen Hologramme immer eine lineare Absorption durch die notwendigerweise vorhandenen Fe^{2+} -Zentren aufweisen. Gleichzeitig wären die „FemtoTherm“-Hologramme auch nicht durch Licht zu stören: Im Gegensatz zu konventionellen thermisch fixierten Hologrammen spielte weder die Erwärmung durch Absorption noch das Einschreiben eines störenden photorefraktiven Musters eine Rolle. Diese thermisch fixierten Strukturen wären beispielsweise als dauerhafte Datenspeicher [88] oder Komponenten für die Photonik sehr interessant.

Da das optische Reinigen [16] mit dem thermischen Fixieren nahe verwandt ist und in Kristallen mit geringem Fe^{2+} -Gehalt Anwendung finden soll, könnte auch dabei durch den Einsatz von Femtosekundenpulsen eine Verbesserung erzielt werden.

KAPITEL 7

ZUSAMMENFASSUNG

Die nichtlineare Optik ermöglicht die flexible Erzeugung kohärenten Lichts verschiedener Wellenlängen. Als nichtlinearer Kristall wird dabei oftmals Lithiumniobat (LiNbO_3) eingesetzt, vor allem wegen seiner hohen nichtlinearen Koeffizienten, der Möglichkeit des periodischen Polens und seiner mechanischen Robustheit. LiNbO_3 weist allerdings den photorefraktiven Effekt auf, der bei hohen Intensitäten Strahlprofil und Phasenanpassung durch optischen Schaden und lichtinduzierte Streuung zerstören kann. Es wurden bereits Möglichkeiten gefunden, die Photorefraktion zu verringern. Diese bringen aber allesamt Nachteile mit sich oder versagen in bestimmten Fällen, insbesondere bei Verwendung sehr hoher Intensitäten und kurzer Pulse, weil dort nichtlineare Anregungsprozesse wie die Zwei-Photonen- und die lichtinduzierte Absorption eine zunehmende Rolle spielen. In dieser Arbeit wird der photorefraktive Effekt daher mit Femtosekunden-Laserpulsen untersucht. Dazu werden auf der Sub-Pikosekunden-Zeitskala die schnelle Besetzung von Störstellen nach Zwei-Photonen-Anregungen und auf der Sekunden- bis Stundenskala der Aufbau photorefraktiver Gitter und lichtinduzierter Streuung untersucht. Die gewonnenen Daten erlauben auch Schlüsse über die Ladungstransportprozesse, die auf den dazwischen liegenden Zeitskalen ablaufen.

In früheren Untersuchungen wurde bereits gezeigt, dass bei Beleuchtung von LiNbO_3 mit fs-Pulsen durch Zwei-Photonen-Absorption vom Valenz- ins Leitungsband angeregte Elektronen schnell sogenannte kleine gebundene Polaronen bilden. Der Aufbauprozess der zugehörigen lichtinduzierten Absorption konnte allerdings nicht direkt gemessen werden, denn er war stets von instantanen, linearen Absorptions- und Brechungsindexänderungen überlagert. In dieser Arbeit wird die Methode der 2K-Holographie verwendet, um den Aufbau dennoch beobachten zu können: Belichtet man ein Material mit einem Interferenzmuster der Raumfrequenz K , entstehen durch nichtlineare Anregungen auch Gitter mit Vielfachen dieser Raumfrequenz. Beugt man Licht am Gitter der Raumfrequenz $2K$, so wird der beobachtete Aufbau dieses Gitters nicht mehr von den zuvor störenden linearen Effekten überlagert. Diese Methode ist in verschiedensten Materialien anwendbar. In dünnen, undotierten

LiNbO₃-Kristallen zeigt sich, dass der Anstieg der Dichte von kleinen gebundenen Polaronen mit einer instantanen Population dieser Zustände nach der Anregung vereinbar ist. Daher liegt die Einfangzeit des Elektrons unterhalb der mit unserer Pulsdauer möglichen Auflösung, erfolgt also in weniger als etwa 100 fs.

Wie wirken sich die nichtlinearen Prozesse auf dieser kurzen Zeitskala auf die photorefraktiven Eigenschaften aus? Beim Schreiben photorefraktiver Gitter mit fs-Pulsen in eisen-dotiertem LiNbO₃ beobachtet man zwei wesentliche Unterschiede zum Schreiben mit Dauerstrich-Licht der gleichen mittleren Intensität: Im unbehandelten Kristall verringert sich die Sättigungsbrechungsindexänderung mit steigender Energieflussdichte der Pulse, während sie für Dauerstrich-Beleuchtung aller verwendeten Intensitäten konstant ist. Im oxidierten Kristall sind weniger besetzte photorefraktive Zentren verfügbar, so dass die Aufbauzeit der Gitter mit Dauerstrich-Licht steigt, doch mit Pulsen erhält man ähnliche Schreibzeiten wie im unbehandelten Kristall. Das Schreiben mit Pulsen verläuft also in oxidierten Kristallen wesentlich schneller. Davon ausgehend wird ein Modell für Ladungsanregung und -umverteilung entwickelt: Beim Schreiben mit Pulsen stehen durch Zwei-Photonen-Anregungen zusätzliche Elektronen aus dem Valenzband zur Verfügung, welche die Besetzungsdichte der photorefraktiven Zentren erhöhen und so den Kristall sensitivieren. Elektronen werden von diesen Zentren aus linear angeregt und tragen zur Ladungsumverteilung durch den volumenphotovoltaischen Strom bei. Eine Modellierung des Gleichgewichts zeigt, dass die Besetzung der Eisenzentren mit Elektronen bei steigender Energieflussdichte bei einem Wert sättigt, der nur von der Repetitionsrate der Pulse abhängt.

Eine andere photorefraktive Erscheinung, die lichtinduzierte Streuung, zeigt ebenfalls deutliche Unterschiede zwischen Pulsen und Dauerstrich-Licht: Pulse werden nur in Kristallen gestreut, deren Fe²⁺-Gehalt oberhalb einer Schwelle liegt. Dauerstrichlicht wird dagegen in allen Proben gestreut, und seine Streuung ist stets stärker ausgeprägt und zeigt eine größere Winkelselektivität als die der Pulse. Diese Beobachtungen erklären sich durch unterschiedliche dominierende Streuprozesse: Während bei Pulslicht die Streuung in Form von Keulen in Vorwärtsrichtung erfolgt, verlässt das gestreute Dauerstrichlicht den Kristall hauptsächlich durch die zur z -Achse senkrechte Seitenfläche. Diese sogenannte z -Flächen-Streuung ist für Pulse wegen der kleinen Kohärenzlänge unterdrückt.

Aus den vorgestellten Messungen ergibt sich ein Ablauf der Photorefraktion mit fs-Pulsen von der Anregung der Ladungsträger unterhalb 100 fs bis zur Sättigung der photorefraktiven Strukturen nach vielen Minuten. Für den Einsatz von Lithiumniobat-Kristallen mit kurzen Pulsen ist dieses Gesamtbild von großer Bedeutung.

VERZEICHNIS DER VERWENDETEN SYMBOLE

α	Absorptionskoeffizient: $\alpha = \alpha_0 + \alpha_{li} + \beta_{2\gamma}I$.
α_0	Linearer Absorptionskoeffizient.
α_{li}	Stärke der lichtinduzierten Absorption.
$\Delta\alpha$	Modulationsamplitude eines Absorptionsgitters.
$\Delta\alpha_{2K}$	Modulationsamplitude des 2K-Absorptionsgitters.
$\beta_{2\gamma}$	Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizient.
η	Beugungswirkungsgrad eines Gitters.
η_{2K}	Beugungswirkungsgrad bei 2K-Messungen.
$\eta_{2K}^{\text{Sätt}}$	Beugungswirkungsgrad bei 2K-Messungen nach Ende des Anstiegs.
η_{Streu}	Effizienz der lichtinduzierten Streuung.
Λ	Periodenlänge eines Interferenzmusters oder eines Gitters: $\Lambda = 2\pi/\mathbf{K}$.
λ_L	Vakuumwellenlänge des Lese-/Abtaststrahls.
λ_S	Vakuumwellenlänge des Schreib- bzw. Pumpstrahls.
ν_{Osz}	Frequenz des Oszillatorsignals für die Stabilisierung.
ν_{Rep}	Repetitionsrate der fs-Laserpulse.
Φ_{Puls}	Energieflussdichte eines Pulses.
ϕ_S	Phasenlage zwischen den Schreibstrahlen im Holographieaufbau.

VERZEICHNIS DER VERWENDETEN SYMBOLE

ρ	Strahldurchmesser (volle Halbwertsbreite). Indizes S und L unterscheiden wo nötig zwischen Schreib- und Lesestrahl.
σ_{Photo}	Photoleitfähigkeit.
τ_{M}	Maxwellzeit, charakterisiert den Anstieg der Brechungsindexänderung.
τ_{Puls}	Pulsdauer (volle Halbwertsdauer der Intensität).
τ_{Autokorr}	Volle Halbwertsbreite der Autokorrelation.
τ_{Hom}	Belichtungszeit mit räumlich homogenem Pulslicht.
τ_{Muster}	Belichtungszeit mit dem Interferenzmuster.
θ	Allgemein ein Winkel, unter dem ein Lichtstrahl relativ zur Normalen der Kristallfläche läuft, durch die er in den Kristall eintritt. [†]
θ_{S}	Schreibwinkel für Gitter. [†]
θ_{L}	Winkel, unter dem ein Gitter ausgelesen wird. [†]
θ_{Bragg}	Braggwinkel des jeweiligen Leselichts. [†]
θ_{Streu}	Halber Winkel der Ablenkung des Streulichts aus der ursprünglichen Richtung. [†]
$\theta_{\text{Streu}}^{\text{max}}$	Maximum von θ_{Streu} für Pulse, bei dem noch ein Überlapp zwischen Streu- und Pumpwelle über den ganzen Kristall erfolgt. [†]
$A_{\text{S1,S2,L,Diff}}$	Zeitlich und örtlich veränderliche Feldamplituden der Schreibpulse, des Lesepulses und des abgebeugten Pulses.
c	Lichtgeschwindigkeit.
$c_{\text{Fe}}, c_{\text{Fe}^{2+}}$	Gesamteisen- bzw. Fe^{2+} -Konzentration im Kristall.
$c_{\text{Nb}_{\text{Li}}}$	Dichte der Antisite-Störstellen.
d	Kristalldicke.
d_{eff}	Effektive Dicke eines Gitters, unter Berücksichtigung der Inhomogenitäten durch Zwei-Photonen-Absorption oder holographische Streuung.
\mathbf{E}	Lokales elektrisches Feld, insbesondere photorefraktives Raumladungsfeld. Dünn geschrieben bezeichnet die Größe den Betrag dieses Vektors.
ΔE_0	Amplitude der Modulation eines photorefraktiven Raumladungsfeldes.

$\Delta E_0^{\text{Sätt}}$	Sättigungswert von ΔE_0 .
$\mathcal{E}_{\text{Diff}}$	Energie des an einem Gitter abgelenkten Pulses hinter dem Kristall.
$\mathcal{E}_{\text{Puls}}$	Energie eines Laserpulses.
$\mathcal{E}_{\text{Trans}}$	Energie des transmittierten Pulses hinter dem Kristall.
g	Proportionalitätskonstante für den Einfang von Lochpolaronen durch Fe^{2+} -Zentren.
I	Allgemeine Intensität.
\hat{I}	Zeitlich gemittelte Intensität. Für Versuche mit zwei Schreibstrahlen bezeichnet \hat{I} die Summe der Intensitäten beider Strahlen.
I_{Puls}	Spitzenintensität (räuml. und zeitl.) des Pulses. In Versuchen mit zwei Schreibpulsen bezeichnet I_{Puls} die Summe der Spitzenintensitäten beider Pulse.
ΔI	Modulationsamplitude eines gitterförmigen Intensitätsmusters.
\vec{j}_{Diff}	Diffusionsstromdichte.
\vec{j}_{Drift}	Driftstromdichte.
\vec{j}_{Phv}	Volumenphotovoltaische Stromdichte.
\mathbf{K}	Gittervektor des Intensitätsgitters zweier Schreibstrahlen. Dünn geschrieben bezeichnet die Größe den Betrag dieses Vektors.
$\mathbf{k}_{\text{S1, S2}}$	Wellenvektoren der Schreibstrahlen 1 bzw. 2. Dünn geschrieben bezeichnet es den Betrag dieses Vektors. [†]
$\mathbf{k}_{\text{L, Diff, Streu}}$	Wellenvektoren von Lesestrahle, abgelenktem Lesestrahle und Streuwelle. [†]
$N_{2\gamma}$	Dichte der durch einen einzelnen Puls per Zwei-Photonen-Absorption angeregten Ladungsträger.
N_+	Dichte der Löcher bzw. Lochpolaronen.
N_{Fe}	Dichte der (auch transient) mit Elektronen besetzten Eisenzentren. Ähnlich wie $c_{\text{Fe}^{2+}}$, aber letzteres gibt nur die permanente Dichte von Fe^{2+} im Kristall an.
N_{char}	Charakteristische Dichte für das Gleichgewicht der lichtinduzierten Fe^{2+} -Population: $N_{\text{char}} = 1/(gt_{\text{Rep}})$.

n	Brechungsindex.
n_0	Brechungsindex des unveränderten Materials.
$n^{(2)}$	Kerr-Koeffizient.
Δn	Lokale Änderung des Brechungsindexes.
Δn_0	Amplitude der Brechungsindexmodulation eines sinusförmigen Phasengitters.
$\Delta n_0^{\text{Sätt}}$	Sättigungswert der Brechungsindexmodulation Δn_0 .
P	Leistung eines Laserstrahls (für Pulse zeitlich über mehrere Pulse gemittelt), insbesondere des Strahls zur Untersuchung der holographischen Streuung hinter Kristall und Blende.
P_{max}	Maximale nach Durchlaufen des Kristalls gemessene Lichtleistung $P(t)$ während einer Messung.
$P_{S1,S2}$	Leistung des jeweiligen Schreibstrahls 1 bzw. 2 hinter dem Kristall, für Pulse zeitlich gemittelt.
P_{Diff}	Leistung des am Hologramm abgebeugten Leselichts.
P_{Trans}	Leistung des durch den Kristall transmittierten Leselichts.
\mathbf{r}	Allgemeiner Ortsvektor.
r_{Streu}	Radius des Überlappbereichs zwischen Streulicht und Hauptpuls entlang der x -Achse.
S_{Streu}	Sensitivität für lichtinduzierte Streuung.
s	Theoretische Breite des Interferenzstreifens bei Pulsinterferenz.
T_{rel}	Relative Lichttransmission in Bezug auf die max. Leistung.
$T_{\text{rel}}^{\text{Sätt}}$	Sättigungswert der relativen Transmission T_{rel} .
t	Zeit.
t_{Rep}	Abstand zwischen zwei Pulsen, Kehrwert der Repetitionsrate ν_{Rep} .
Δt	Verzögerung des Auslesepulses gegen den Schreibpuls bzw. Zeit nach Eintreffen des Schreibpulses.
x, y, z	Koordinaten für die Raumrichtungen. Soweit im Zusammenhang sinnvoll: orientiert an den entsprechenden Kristallachsen, die sie ebenfalls bezeichnen.

LiNbO_3	Der Kristall Lithiumniobat.
Fe	Eisen. $\text{Fe}^{2+/3+}$: Eisenzentren in den Valenzzuständen 2+ bzw. 3+.
H^+	Wasserstoff-Ion, Proton.
Li^+	Lithium-Ion.
Nb_{Li}	Niob-Atom auf einem Lithium-Gitterplatz, Antisite-Defekt. Als $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ auch kurz für das kleine gebundene Polaron, als $\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$ nicht durch ein Elektron besetzt.
O^-	Lochpolaron: An Sauerstoff aus dem Valenzband lokalisiertes Loch.
W12, DT1, EQ2, DT2	Kristallwafer und -boules, siehe Tabelle 3.4, S. 30.

†: Gestrichene Größen bezeichnen die Werte außerhalb des Kristalls, ungestrichene Größen sind die Werte im Kristall.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] *Die Bibel*. Johannes 20, 29.
- [2] A. Nebel, B. Ruffing und R. Wallenstein, „Diode pumping sharpens large laser displays: Free-space communications“, *Laser focus world* **35**, 263–266 (1999).
- [3] M. Freeman, M. Champion und S. Madhavan, „Scanned laser pico-projectors: seeing the big picture (with a small device)“, *Optics and Photonics News* **20**, 28–34 (2009).
- [4] U. Steegmueller, M. Kuehnelt, H. Unold, T. Schwarz, M. Schmitt, K. Auen, R. Schulz, C. Walter, I. Pietzonka, S. Illek *et al.*, „Progress in ultra-compact green frequency doubled optically pumped surface emitting lasers“, in *SPIE Proceedings*, **7198**, 2009.
- [5] L. Arizmendi, „Photonic applications of lithium niobate crystals“, *Phys. Stat. Sol. (a)* **201**, 253–283 (2004).
- [6] R. S. Weis und T. K. Gaylord, „Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure“, *Appl. Phys. A* **37**, 191–203 (1985).
- [7] K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi und H. Ito, „Coherent tunable THz-wave generation from LiNbO with monolithic grating coupler“, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2483–2485 (1996).
- [8] Y. Lee, T. Meade, V. Perlin, H. Winful, T. Norris und A. Galvanauskas, „Generation of narrow-band terahertz radiation via optical rectification of femtosecond pulses in periodically poled lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2505–2507 (2000).
- [9] R. Sowade, I. Breunig, I. Mayorga, J. Kiessling, C. Tulea, V. Dierolf und K. Busse, „Continuous-wave optical parametric terahertz source“, *Opt. Express* **17**, 22303–22310 (2009).

- [10] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein und K. Nassau, „Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **9**, 72–74 (1966).
- [11] P. Günter und J.-P. Huignard (Hrsg.) *Photorefractive materials and their applications 3*. Springer Science+Business Media, LLC, New York, 2007.
- [12] G. Miller, R. Batchko, W. Tulloch, D. Weise, M. Fejer und R. Byer, „42%-efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate“, *Opt. Lett.* **22**, 1834–1836 (1997).
- [13] G.-G. Zhong, J. Jin und Z.-K. Wu, „Measurements of optically induced refractive-index damage of lithium-niobate doped with different concentrations of MgO “, *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 631–631 (1980).
- [14] D. A. Bryan, R. Gerson und H. E. Tomaschke, „Increased optical damage resistance in lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 847–849 (1984).
- [15] M. Falk, T. Woike und K. Buse, „Reduction of optical damage in lithium niobate crystals by thermo-electric oxidization“, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 251912 (2007).
- [16] M. Kösters, B. Sturman, P. Werheit, D. Haertle und K. Buse, „Optical cleaning of congruent lithium niobate crystals“, *Nature Photonics* **3**, 510 – 513 (2009).
- [17] K. Buse, J. Imbrock, E. Krätzig und K. Peithmann, *Photorefractive materials and their applications 2*, **Materials**, Kapitel „Photorefractive Effects in LiNbO_3 and LiTaO_3 “, 83–126. Springer, 2007.
- [18] D. von der Linde, A. Glass und K. Rodgers, „Multiphoton photorefractive processes for optical storage in LiNbO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 155–157 (1974).
- [19] D. von der Linde, O. F. Schirmer und H. Kurz, „Intrinsic photorefractive effect of LiNbO_3 “, *Applied Physics* **15**, 153–156 (1978).
- [20] J. Burghoff, H. Hartung, S. Nolte und A. Tunnermann, „Structural properties of femtosecond laser-induced modifications in LiNbO_3 “, *Appl. Phys. A* **86**, 165–170 (2007).
- [21] O. Beyer, D. Maxein, K. Buse, B. Sturman, H. Hsieh und D. Psaltis, „Femtosecond time-resolved absorption processes in lithium niobate crystals“, *Opt. Lett.* **30**, 1366–1368 (2005).
- [22] H.-T. Hsieh, D. Psaltis, O. Beyer, D. Maxein, C. von Korff Schmising, K. Buse und B. Sturman, „Femtosecond holography in lithium niobate crystals“, *Opt. Lett.* **30**, 2233–2235 (2005).

- [23] B. Sturman, O. Beyer, D. Maxein und K. Buse, „Femtosecond recording and time-resolved readout of spatial gratings in lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **24**, 419–429 (2007).
- [24] O. Beyer, D. Maxein, K. Buse, B. Sturman, H. T. Hsieh und D. Psaltis, „Investigation of nonlinear absorption processes with femtosecond light pulses in lithium niobate crystals“, *Phys. Rev. E* **71**, 056603 (2005).
- [25] O. Beyer, D. Maxein, T. Woike und K. Buse, „Generation of small bound polarons in lithium niobate crystals on the subpicosecond time scale“, *Appl. Phys. B* **83**, 527–530 (2006).
- [26] D. Maxein, S. Kratz, P. Reckenthaeler, J. Bückers, D. Haertle, T. Woike und K. Buse, „Polarons in magnesium-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond light pulses“, *Appl. Phys. B* **92**, 543–547 (2008).
- [27] O. Beyer, I. Breunig, F. Kalkum und K. Buse, „Photorefractive effect in iron-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond pulses of 1.5 μm wavelength“, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 051120 (2006).
- [28] K. Oba, P.-C. Sun und Y. Fainman, „Nonvolatile photorefractive spectral holography“, *Opt. Lett.* **23**, 915–917 (1998).
- [29] S. Juodkazis, V. Mizeikis, M. Sudzius, H. Misawa, K. Kitamura, S. Takekawa, E. G. Gamaly, W. Z. Krolikowski und A. V. Rode, „Laser induced memory bits in photorefractive LiNbO_3 and LiTaO_3 “, *Appl. Phys. A* **93**, 129–133 (2008).
- [30] P. Reckenthaeler, D. Maxein, T. Woike, K. Buse und B. Sturman, „Separation of optical Kerr and free-carrier nonlinear responses with femtosecond light pulses in LiNbO_3 crystals“, *Phys. Rev. B* **76**, 195117 (2007).
- [31] D. Maxein, J. Bückers, D. Haertle und K. Buse, „Photorefraction in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ crystals with femtosecond pulses at 532 nm“, *Appl. Phys. B* **95**, 399–405 (2009).
- [32] J. Bückers, D. Maxein, D. Haertle und K. Buse, „Light-induced scattering of femtosecond laser pulses in iron-doped lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **26**, 1018–1022 (2009).
- [33] O. F. Schirmer, M. Imlau, C. Merschjann und B. Schoke, „Electron small polarons and bipolarons in LiNbO_3 “, *Journal of Physics: Condensed Matter* **21**, 123201 (2009).
- [34] F. Jermann und J. Otten, „Light-induced charge transport in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ at high light intensities“, *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 2085–2092 (1993).

- [35] U. Schlarb und K. Betzler, „Refractive indices of lithium niobate as a function of temperature, wavelength, and composition: A generalized fit“, *Phys. Rev. B* **48**, 15613–15620 (1993).
- [36] S. Abrahams und P. Marsh, „Defect structure dependence on composition in lithium-niobate“, *Acta Cryst. B* **42**, 61–68 (1986).
- [37] O. Schirmer, O. Thiemann und M. Wöhlecke, „Defects in LiNbO₃ – I. Experimental aspects“, *J. Phys. Chem. Solids* **52**, 185–200 (1991).
- [38] D. N. Nikogosyan *Properties of optical and laser-related materials – a handbook*. Wiley and Sons, 1997.
- [39] H. Kurz, E. Krätzig, W. Keune, H. Engelmann, U. Gonser, B. Dischler und A. Rüber, „Photorefractive centers in LiNbO₃, studied by optical-, Mössbauer- and EPR-methods“, *Appl. Phys.* **12**, 355–368 (1977).
- [40] W. Ching, Z.-Q. Gu und Y.-N. Xu, „First-principles calculation of the electronic and optical properties of LiNbO₃“, *Phys. Rev. B* **50**, 1992–1995 (1994).
- [41] I. V. Kityk, M. Makowska-Janusik, M. D. Fontana, M. Aillerie und F. Abdi, „Band structure treatment of the influence of nonstoichiometric defects on optical properties in LiNbO₃“, *J. Appl. Phys.* **90**, 5542–5549 (2001).
- [42] D. Meschede *Optik, Licht und Laser*. Teubner, 1999.
- [43] D. Maxein und K. Buse, „Interaction of femtosecond laser pulses with lithium niobate crystals: transmission changes and refractive index modulations.“ *Journal of Holography and Speckles* (im Druck, 2010).
- [44] D. Berben, K. Buse, S. Wevering, P. Herth, M. Imlau und T. Woike, „Lifetime of small polarons in iron-doped lithium-niobate crystals“, *J. Appl. Phys.* **87**, 1034–1041 (2000).
- [45] P. Herth, D. Schaniel, T. Woike, T. Granzow, M. Imlau und E. Krätzig, „Polarons generated by laser pulses in doped LiNbO₃“, *Phys. Rev. B* **71**, 125128 (2005).
- [46] B. Sturman, E. Podivilov und M. Gorkunov, „Origin of stretched exponential relaxation for hopping-transport models“, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 176602 (2003).
- [47] R. Boyd *Nonlinear optics*. Academic Press, 1992.
- [48] P. Y. A. Yariv *Optical waves in crystals*. Wiley and Sons, 1984.
- [49] M. Jazbinsek und M. Zgonik, „Material tensor parameters of LiNbO₃ relevant for electro- and elasto-optics“, *Appl. Phys. B-Lasers O.* **74**, 407–414 (2002).

-
- [50] V. L. Vinetskii und N. V. Kukhtarev, „Theory of the conductivity induced by recording holographic gratings in nonmetallic crystals“, *Sov. Phys. Solid State* **16**, 2414 (1975).
- [51] K. Buse, „Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods“, *Appl. Phys. B* **64**, 273–291 (1997).
- [52] A. Glass, D. von der Linde und T. J. Negran, „High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 233–235 (1974).
- [53] B. I. Sturman und V. M. Fridkin *The photovoltaic and photorefractive effects in noncentrosymmetric materials*. Gordon and Breach Science Publishers, Philadelphia, 1992.
- [54] J. J. Amodei, W. Phillips und D. L. Staebler, „Improved electrooptic materials and fixing techniques for holographic recording“, *Appl. Opt.* **11**, 390–396 (1972).
- [55] K. Brands, M. Falk, D. Haertle, T. Woike und K. Buse, „Impedance spectroscopy of iron-doped lithium niobate crystals“, *Appl. Phys. B* **91**, 279–281 (2008).
- [56] Y. Yang, I. Nee, K. Buse und D. Psaltis, „Ionic and electronic dark decay of holograms in $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$ crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 4076–4078 (2001).
- [57] G. A. Brost, R. A. Motes und J. R. Rotge, „Intensity-dependent absorption and photorefractive effects in barium titanate“, *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 1879–1885 (1988).
- [58] O. Althoff, A. Erdmann, L. Wiskott und P. Hertel, „The photorefractive effect in LiNbO_3 at high light intensity“, *Phys. Stat. Sol. (a)* **128**, K41 (1991).
- [59] H. Kogelnik, „Coupled wave theory for thick hologram gratings“, *Bell Syst. Tech. J.* **48**, 2909–2947 (1969).
- [60] A. A. Maznev, T. F. Crimmins und K. A. Nelson, „How to make femtosecond pulses overlap“, *Opt. Lett.* **23**, 1378–1380 (1998).
- [61] R. Magnusson und T. K. Gaylord, „Laser scattering induced holograms in lithium-niobate“, *Appl. Opt.* **13**, 1545–1548 (1974).
- [62] S. G. Odoulov und M. S. Soskin, *Photorefractive materials and their applications II*, Kapitel „Amplification, oscillation, and light-induced scattering in photorefractive crystals“, 5–43. Topics in applied physics, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1 ed., 1989.
- [63] R. A. Rupp, „Material characterization by holographic methods“, *Appl. Phys. A* **55**, 2–20 (1992).

- [64] M. Goulikov, M. Imlau und T. Woike, „Photorefractive parameters of lithium niobate crystals from photoinduced light scattering“, *Phys. Rev. B* **77**, 235110 (2008).
- [65] D. Strickland und G. Mourou, „Compression of amplified chirped optical pulses“, *Opt. Commun.* **56**, 219–221 (1985).
- [66] J. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing und P. Pershan, „Interactions between light waves in a nonlinear dielectric“, *Phys. Rev.* **127**, 1918–1939 (1962).
- [67] P. Franken, A. Hill, C. Peters und G. Weinreich, „Generation of optical harmonics“, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118–119 (1961).
- [68] J.-C. Diels und W. Rudolph *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, San Diego, 1996.
- [69] E. Ippen und C. Shank, „Anisotropic absorption saturation with picosecond pulses“, *Appl. Phys. Letters* **26**, 62–63 (1975).
- [70] H.-T. Hsieh, D. Psaltis, O. Beyer, D. Maxein, K. Buse und B. Sturman, „Enhanced temporal resolution in femtosecond dynamic-grating experiments“, *J. Appl. Phys.* **97**, 113107 (2005).
- [71] G. Peterson, A. Glass und T. Negran, „Control of susceptibility of lithium niobate to laser-induced refractive index changes“, *Appl. Phys. Lett.* **19**, 130–132 (1971).
- [72] D. Sugak, Y. Zhydachevskii, Y. Sugak, O. Buryy, S. Ubizskii, I. Solskii, M. Schrader und K.-D. Becker, „In situ investigation of optical absorption changes in LiNbO₃ during reducing/oxidizing high-temperature treatments“, *J. Phys. - Condens. Mat.* **19**, 086211 (2007).
- [73] A. Othonos, „Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors“, *J. Appl. Phys.* **83**, 1789–1830 (1998).
- [74] T. Sjodin, H. Petek und H.-L. Dai, „Ultrafast carrier dynamics in silicon: A two-color transient reflection grating study on a (111) surface“, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5664–5667 (1998).
- [75] A. McClelland, V. Fomenko und E. Borguet, „Ultrafast time-evolution of the nonlinear susceptibility of hot carriers at the Ge(111)-GeO₂ interface as probed by SHG“, *J. Phys. Chem. B* **108**, 3789–3793 (2004).
- [76] E. Krätzig und H. Kurz, „Photorefractive and photovoltaic effects in doped LiNbO₃“, *J. Mod. Opt.* **24**, 475–482 (1977).

-
- [77] E. Krätzig und H. Kurz, „Spectroscopic investigation of photovoltaic effects in doped LiNbO_3 “, *J. Electrochem. Soc.* **124**, 131–134 (1977).
- [78] K. Buse, „Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals II: Materials“, *Appl. Phys. B* **64**, 391–407 (1997).
- [79] O. F. Schirmer und D. von der Linde, „Two-photon- and x-ray-induced Nb^{4+} and O^- small polarons in LiNbO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 35 – 38 (1978).
- [80] P. Herth, T. Granzow, D. Schaniel, T. Woike, M. Imlau und E. Krätzig, „Evidence for light-induced hole polarons in LiNbO_3 “, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 067404 (2005).
- [81] N. V. Kukhtarev, „Kinetics of hologram recording and erasure in electrooptic crystals“, *Pis ma Zhurnal Tekhnicheskoi Fiziki* **2**, 1114–1119 (1976).
- [82] B. I. Sturman, S. G. Odoulov und M. Y. Goulkov, „Parametric four-wave processes in photorefractive crystals“, *Phys. Rep.-Rev. Sec. Phys. Lett.* **275**, 198–254 (1996).
- [83] G. Zhang, N. Y. Kamber, J. Xu, S. Liu, Q. Sun und G. Zhang, „Light-amplification competition between fanning noise and the signal beam in doped lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 905–910 (1999).
- [84] S. Liu, J. Xu, G. Zhang und Y. Wu, „Light-climbing effect in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ crystal“, *Appl. Opt.* **33**, 997–999 (1994).
- [85] S. Tao, Z. H. Song und D. R. Selviah, „Bragg-shift of holographic gratings in photorefractive $\text{Fe}:\text{LiNbO}_3$ crystals“, *Opt. Commun.* **108**, 144–152 (1994).
- [86] K. Buse, S. Kämper, J. Frejlich, R. Pankrath und K. H. Ringhofer, „Tilting of holograms in photorefractive $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ crystals by self-diffraction“, *Opt. Lett.* **20**, 2249–2251 (1995).
- [87] K. Buse, S. Breer, K. Peithmann, S. Kapphan, M. Gao und E. Krätzig, „Origin of thermal fixing in photorefractive lithium niobate crystals“, *Phys. Rev. B* **56**, 1225–1235 (1997).
- [88] L. Arizmendi, E. de Miguel-Sanz und M. Carrascosa, „Lifetimes of thermally fixed holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ crystals“, *Opt. Lett.* **23**, 960–962 (1998).
- [89] H. Wells *Die Zeitmaschine*. Deutscher Taschenbuchverlag (München), 1996.

LISTE EIGENER VERÖFFENTLICHUNGEN

- O. Beyer, D. Maxein, K. Buse, B. Sturman, H. Hsieh und D. Psaltis, „Femtosecond time-resolved absorption processes in lithium niobate crystals“, *Opt. Lett.* **30**, 1366–1368 (2005).
- O. Beyer, D. Maxein, K. Buse, B. Sturman, H. T. Hsieh und D. Psaltis, „Investigation of nonlinear absorption processes with femtosecond light pulses in lithium niobate crystals“, *Phys. Rev. E* **71**, 056603 (2005).
- H.-T. Hsieh, D. Psaltis, O. Beyer, D. Maxein, K. Buse und B. Sturman, „Enhanced temporal resolution in femtosecond dynamic-grating experiments“, *J. Appl. Phys.* **97**, 113107 (2005).
- H.-T. Hsieh, D. Psaltis, O. Beyer, D. Maxein, C. von Korff Schmising, K. Buse und B. Sturman, „Femtosecond holography in lithium niobate crystals“, *Opt. Lett.* **30**, 2233–2235 (2005).
- O. Beyer, D. Maxein, T. Woike und K. Buse, „Generation of small bound polarons in lithium niobate crystals on the subpicosecond time scale“, *Appl. Phys. B* **83**, 527–530 (2006).
- B. Sturman, O. Beyer, D. Maxein und K. Buse, „Femtosecond recording and time-resolved readout of spatial gratings in lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **24**, 419–429 (2007).
- P. Reckenthaeler, D. Maxein, T. Woike, K. Buse und B. Sturman, „Separation of optical Kerr and free-carrier nonlinear responses with femtosecond light pulses in LiNbO₃ crystals“, *Phys. Rev. B* **76**, 195117 (2007).
- D. Maxein, S. Kratz, P. Reckenthaeler, J. Bückers, D. Haertle, T. Woike und K. Buse, „Polarons in magnesium-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond light pulses“, *Appl. Phys. B* **92**, 543–547 (2008).
- J. Bückers, D. Maxein, D. Haertle und K. Buse, „Light-induced scattering of femtosecond laser pulses in iron-doped lithium niobate crystals“, *J. Opt. Soc. Am. B* **26**, 1018–1022 (2009).
- D. Maxein, J. Bückers, D. Haertle und K. Buse, „Photorefraction in LiNbO₃:Fe crystals with femtosecond pulses at 532 nm“, *Appl. Phys. B* **95**, 399–405 (2009).
- D. Maxein und K. Buse, „Interaction of femtosecond laser pulses with lithium niobate crystals: transmission changes and refractive index modulations.“ *Journal of Holography and Speckles* (im Druck, 2010).

Wesentliche Teile der vorliegenden Arbeit wurden bereits in den hervorgehobenen Veröffentlichungen publiziert. Als Konferenzbeitrag zur Photonics West 2009 in San José, Kalifornien, erschien außerdem:

- D. Maxein, J. Bückers, S. Kratz, D. Haertle, und K. Buse, „Investigation of the photorefractive effect in lithium niobate crystals using femtosecond laser pulses“, *SPIE Proceedings* **7197**, (2009).

DANKSAGUNG

Zu allererst gilt mein Dank meinem Doktorvater Professor Karsten Buse für die Möglichkeit, nach der Diplomarbeit das Femtosekunden-Projekt im Rahmen der Promotion fortzusetzen. Durch seinen Einsatz konnte ich meine Experimente in einem hervorragend ausgestatteten Labor durchführen. Besonders danke ich dafür, dass ihm das Wohlergehen und die Förderung seiner Mitarbeiter stets am Herzen liegen!

Bei dem Zweitgutachter Herrn Professor Manfred Fiebig und den weiteren Mitgliedern der Promotionskommission, Herrn PD Dr. Metsch und Herrn Professor Vöhringer, bedanke ich mich für ihre Bereitschaft, diese Aufgaben zu übernehmen.

Dr. Daniel Haertle, Johanna Bückers, Fabian Lüdtke und Felix Kalkum haben diese Arbeit in verschiedenen Stadien gelesen. Ihre konstruktiven Kritikpunkte und Anregungen waren mir eine große Hilfe, die Arbeit weiterzuentwickeln. Dafür ein herzliches Dankeschön!

Die Ergebnisse dieser Promotion wären ohne die gute und angenehme Zusammenarbeit im *FemtoTeam* nicht möglich gewesen. Ich danke meinem ehemaligen Betreuer bei der Diplomarbeit, Dr. Oliver Beyer, der in den Anfängen der Promotion noch aktiv im Femtosekunden-Labor mitwirkte. Ein herzlicher Dank gilt auch den drei Diplomanden, die ich betreuen durfte und die wesentlich zum Projekt beigetragen haben: Peter Reckenthäler im Bereich der Pulsdauermessung und der 2K-Holographie, Stephan Kratz bei der lichtinduzierten Absorption und den Anfängen der Photorefraktion sowie Johanna Bückers bei der stabilisierten Photorefraktion und der lichtinduzierten Streuung. Darüber hinaus danke ich den Gastwissenschaftlern PD Dr. Theo Woike (Institut für Geologie und Mineralogie, Universität Köln) für seinen Beitrag zur Untersuchung der Polaronenzustände und Professor Boris Sturman (Institute of Automation and Electrometry, Novosibirsk) für die mathematische Beschreibung der 2K-Holographie, sowie den Mitarbeitern der Zentralwerkstatt, insbesondere Herrn Vorzepf und Herrn Böhning, für die Präparation der Kristalle.

Das Arbeiten und das Miteinander in der Gruppe Hertz habe ich sehr genossen; dafür danke ich allen ehemaligen und aktiven Kolleginnen und Kollegen ganz herzlich. Besonders richtet sich dieser Dank an die Morlocks [89], von denen jetzt einer der Letzten den Weg in die Freiheit findet, und an die weiteren Kellerkinder. Immer bestand die Neugier, um Erkenntnisse, Fragestellungen und Herausforderungen auch über die Projektgrenzen hinweg zu diskutieren und zu lösen. Hoffentlich werde ich auch künftig in einem ähnlich interessierten und interessanten Umfeld arbeiten können! Nicht nur die Gespräche über physikalische Effekte in der Kaffeerrunde, auch die zahlreichen Filmabende und gemeinsamen Unternehmungen haben stets viel Freude gemacht!

Bei der Deutschen Telekom AG und der Deutschen Forschungsgemeinschaft bedanke ich mich für die finanzielle Förderung des Projekts und der Arbeitsgruppe im Rahmen des Heinrich-Hertz-Stiftungslehrstuhls und der Projekte BU913/13-1 und BU913/19-1.

Abschließend danke ich besonders meinen Eltern, die mir das Studium der Physik erst ermöglicht haben. Meiner ganzen Familie sowie meinen Freunden in Bonn und Gladbach bin ich für die andauernde Begleitung und Unterstützung durch die Höhen und Tiefen von Studium und Promotion sehr dankbar!