

DISS. ETH No. 12623

**Investigations of spectral dynamics in rare
earth ion doped crystals using high
resolution laser techniques**

A dissertation submitted to the

SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH

For the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by
FELIX R. GRAF
Dipl. Natw. ETH

born June 5, 1967
citizen of Winterthur

Accepted on the recommendation of:
Prof. Urs P. Wild, Examiner
Prof. Richard R. Ernst, Co-Examiner

1998

Abstract

Solids containing rare earth (RE) ions have attracted spectroscopists' attention since the beginning of this century. In the last 30 years, their extremely narrow spectral features in combination with the use of non linear spectroscopy have served to sensitively measure ion-solid interactions and to progressively observe narrower homogeneous linewidths. The potential for using RE ion doped crystals as optical storage materials and processors has lately been a driving force in their investigations. Here, the ratio of inhomogeneous to homogeneous linewidth is regarded as an adequate measure of storage density and can become as big as 10^7 at cryogenic temperatures. Therefore, the analysis of line broadening is of fundamental as well as applied interest.

This work is concerned with the investigation of interactions of RE ions with their environment. By means of a laser with a kilohertz resolution and non-linear spectroscopy, spectral dynamics as a function of intrinsic, external electric field, or light-pulse induced perturbations are analyzed on different time scales.

In the first part, the theoretical background for the spectroscopy of RE ion doped crystals is outlined. The energy levels are presented and it is shown that due to their electronic properties RE ions have spectrally narrow electronic transitions, sometimes in the sub-kHz regime.

The investigations of these narrow spectral features on the seconds to minutes time scale require very stable tunable laser sources. At present, such devices are not commercially available. In the second part, the performance of a home built laser system is characterized using persistent spectral holes. The results show that frequency selective materials can be used as powerful tools for the high resolution

spectral analysis of laser sources. Complementary to that, they give a measure for the long term evolution of the spectral holes for the particular hole burning substance.

In the third part, the effect of an external electric field on RE ion doped crystals is investigated. It is shown that for these systems the electric field induced frequency shifts are fully reversible. A general theory of Stark splittings of RE doped crystals is introduced and two methods are presented which allow for the determination of the magnitude and orientation of the electric dipole moment differences with sub-degree accuracy.

Finally in the last part, spectral line broadening mechanisms of RE ion doped crystals are discussed and investigated by means of two-pulse photon echoes. Through variation of the experimental parameters, a discrimination between the different contributions is partly achieved and characteristic properties for different dephasing mechanisms are presented. In combination with the measurements from the third part, quantitative predictions of the electric dipole-dipole induced broadening are carried out, which are compared to the experimental results.

Zusammenfassung

Seit Anfang des Jahrhunderts befassen sich Spektroskopiker mit Festkörpern, die mit Lanthanidionen dotiert sind. Aufgrund zunehmend besser werdender spektraler Auflösung konnten im Laufe der letzten dreissig Jahre Ionen-Festkörperwechselwirkungen mit immer höherer Empfindlichkeit untersucht werden. Das hieraus resultierende bessere Verständnis der Wechselwirkungsdynamik hat massgeblich dazu beigetragen, dass fortlaufend schmalere homogene Linienbreiten bestimmt wurden. Die potentielle Nutzbarkeit von Lanthanidionen dotierten Kristallen für die Datenspeicherung und -prozessierung hat deren Untersuchungen während der letzten Jahre zusätzlich vorangetrieben. Hierbei wird das Verhältnis der inhomogenen zur homogenen Linienbreite als ein gutes Mass für die Kapazität eines frequenzselektiven Speichers betrachtet. Dieses Verhältnis kann bei kryogenen Temperaturen Werte bis zu 10^7 erreichen. Insofern sind Untersuchungen der die Linienbreiten bestimmenden charakteristischen Prozesse, sowohl von grundlagenwissenschaftlichem, als auch von anwendungsorientiertem Interesse.

Die hier präsentierte Arbeit befasst sich mit verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen von Lanthanidionen dotierten Kristallen. Mit Hilfe einer schmalbandigen Laserquelle und nichtlinearen spektroskopischen Methoden wird die spektrale Dynamik als Funktion von intrinsischen, externen und Lichtpuls-induzierten Störungen auf verschiedenen Zeitskalen untersucht.

Im ersten Teil werden die spektroskopischen Grundlagen präsentiert. Hierbei wird das Schwergewicht auf den Ursprung der schmalbandigen spektralen Linien gelegt und es wird gezeigt, wie sich verschiedene Störungen auf das Energiespektrum auswirken können.

Typische Linienbreiten liegen meistens im Kilohertzbereich. Die Untersuchung derart schmaler optischer Übergänge auf Zeitskalen von Sekunden bis Stunden erfordert äusserst stabile Laser. Kommerziell sind solche Lichtquellen zur Zeit nicht erhältlich. Deshalb wurde ein kommerzielles System weiterentwickelt, welches im zweiten Teil mittels Lochbrennen charakterisiert wird. Die Resultate belegen einerseits die Brauchbarkeit von frequenzselektiven Materialien zur Spektralanalyse von Lasern. Andererseits geben sie ein Mass für die spektrale Stabilität des Lochbrennmaterials.

Im dritten Teil wird der Einfluss von elektrischen Feldern auf Lanthanidionen dotierte Kristalle untersucht. Es wird gezeigt, dass das Anlegen eines externen elektrisches Feld zu vollkommen reversiblen atomaren Frequenzverschiebungen führt. Eine allgemeine Theorie über Stark Aufspaltungen von Defektzentren in Kristallen wird vorgestellt und zwei Methoden werden präsentiert, welche genaue Messungen der statischen Dipolmomentdifferenzen und deren Orientierungen ermöglichen.

Der letzte Teil ist der Untersuchung von Linienverbreiterungsmechanismen mittels Intensitätsabschwächung von Zweipuls Photonenecho gewidmet. Durch Anpassung der experimentellen Parameter wird eine Unterscheidung der einzelnen Prozesse teilweise erreicht. Charakteristische Erkennungsmerkmale der verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen werden präsentiert. Kombiniert mit den Resultaten aus dem dritten Teil können Voraussagen über die erwartete Linienverbreitung aufgrund elektrischer Dipol-Dipol-Kopplungen gemacht werden.