Martin Nittmann

Neue Konzepte und Technologien für diodengepumpte, hochrepetierende Nanosekundenlase im Wellenbereich von 213 nm bis 4,6 µm



Cuvillier Verlag Göttingen

Neue Konzepte und Technologien für diodengepumpte, hochrepetierende Nanosekundenlaser im Wellenlängenbereich von 213 nm bis 4,6 $\mu{\rm m}$

Martin Nittmann

Vom Fachbereich Physik der Technischen Universität Kaiserslautern zur Verleihung des akademischen Grades "Doktor der Naturwissenschaften" genehmigte Dissertation

> Betreuer: Prof. Dr. R. Wallenstein Zweitgutachter: Prof. Dr. R. Beigang

Datum der wissenschaftlichen Aussprache: 13.02.2008

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <u>http://dnb.ddb.de</u> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2008 Zugl.: (TU) Kaiserslautern, Univ., Diss., 2008

978-3-86727-605-4

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2008 Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen Telefon: 0551-54724-0 Telefax: 0551-54724-21 www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen. 1. Auflage, 2008 Gedruckt auf säurefreiem Papier

978-3-86727-605-4

Für meine Kinder:

Das Sternenkind Anabel, den Sonnenschein Niklas, und das (noch) namenlose Fünkchen, das sich auf dem langen Weg in diese Welt des Lichts befindet.

Abstract

New concepts and technologies for diode-pumped solid state lasers with pulse durations in the nanosecond regime at high repetition rates and wavelenths ranging from 213 nm to 4.6 μm

This work focuses on the design, development and characterization of high repetition rate nanosecond lasers at new wavelengths which range from the deep ultra violet (UV) at 213 nm to the mid infrared at 4.6 μ m. The base components are diode pumped solid-state lasers providing radiation in the near infrared (NIR) at 1064 nm and 1342 nm. Different nonlinear optical processes are used for frequency conversion to other wavelengths required by a particular application.

Numerous requirements of industrial applications, such as a high output power, a suitable wavelength, a good long term stability and a compact setup, have always been considered at all development stages of these laser systems. Thus all demonstrated concepts are well suited for applications in a scientific as well as an industrial environment.

The used laser concept uses fiber coupled diode laser modules with a high brilliance to efficiently pump a $Nd:YVO_4$ crystal in a longitudinal geometry.

In a first step an actively q-switched laser operating on the main transition of Nd:YVO₄ at 1064 nm has been developed. The laser emits pulses with a duration of 8.9 ns and a repetition rate of 15 kHz. It provided an average output power of 4.6 W in a diffraction limited beam with a spatial beam quality of $M^2 < 1.1$. Further power scaling to an average output power of 13 W has been obtained with a single-pass Nd:YVO₄ amplifier.

The use of the second four level transition of Nd:YVO₄ at 1342 nm opens the opportunity to address new wavelengths, which can hardly be obtained by nonlinear processes pumped by 1064 nm. Therefore the 1342 nm attracted great interest during the last years and hence in this work such a q-switched laser source with an average output power of 2.1 W has been developed. It provides pulses with a pulse repetition rate of 10 kHz and a pulse duration of 9.2 ns. Further power scaling to 4.9 W at a pulse repetition rate of 15 kHz and a pulse duration of 11 ns has been obtained in an optimized cavity and the use of two pump diodes.

The developed lasers are well suited for frequency conversion in nonlinear optical processes, due to the high available peak power and the excellent spatial beam quality. Moreover these lasers are compact, efficient and provide a good long term stability, which makes these lasers very attractive for industrial applications.

The further work focuses on the frequency conversion of the NIR radiation obtained with the new developed lasers.

The generation of the fifth harmonic of 1064 nm radiation provides coherent radiation in the deep UV at 213 nm. The efficient generation of 213 nm was challenging but attractive for numerous applications in micro machining and material processing. The concept developed and used in this work was the efficient sum frequency generation (SFG) of the second and third harmonic of 1064 nm. This concept allowed for a compact and long term stable generation of 213 nm radiation with an average output power of as much as 154 mW. The pulse duration of this radiation was 5.3 ns at a pulse repetition rate of 15 kHz. Of special interest is the good spatial beam quality of $M^2 = 1.4$.

The 1342 nm laser facilitates efficient generation of red an blue radiation by the means of harmonic generation. The achieved average output power at 671 nm was 1.8 W at a pulse duration of 8 ns. Further an average output power of 1.4 W has been obtained at 447 nm with a pulse duration of 12 ns. The radiation at both wavelengths provides short pulses with high peak powers in a diffraction limited beam.

Medical applications such as dermatology and ophtalmology require yellow radiation, which can hardly be provided (e.g. by simple harmonic generation) by standard lasers in the NIR. Hence two different approaches to address the wavelength range around 590 nm has been investigated in this work. The first approach uses SFG of 1064 nm und 1342 nm radiation provided by two synchronized laser. Due to the phase locked coupling of the AOM trigger to the RF-wave it was possible to reduce the relative temporal jitter of the nanosecond pulses to 500 ps. For a comparison the SFG has been performed in LBO as well as in BiBO. The highest average output power at 593 nm of 1.6 W has been obtained in LBO. These investigations clearly demonstrate the possibilities for numerous experiments which arise from this concept. The second approach is a frequency doubled self Raman laser. The stimulated Raman scattering in YVO₄ allowed to generate an average output power of as much as 1.5 W at a wavelength of 1176 nm.

For the efficient generation of powerful radiation in the MIR an oscillator amplifier system at 1064 nm was used to pump an optical parametric generator (OPG) in periodically poled MgO:LiNbO₃. The OPG is continuously tunable from 3.5 to 4.6 μ m and provides an average output power of 700 mW at 3.7 μ m. Due to the strong absorption at higher wavelengths in MgO:LiNbO₃ the output power decreases, but as much as 170 mW at 4.6 μ m were demonstrated with this system. The absolute accuracy of the wavelength during the automatized tuning was better than 2 nm without the use of a spectrometer.

The last chapter deals with efficient 1342 nm pumped OPGs. The use of this wavelength allows for instance the efficient generation of 2 μ m radiation, which is close to the degeneracy of 1064 nm pumped OPGs. Moreover a 671 nm pumped OPG allows for the generation of tunable radiation around 1100 nm. Both concepts are new and cannot be found in literature.

Kurzzusammenfassung

Neue Konzepte und Technologien für diodengepumpte hochrepetierende Nanosekundenlaser im Wellenlängenbereich von 213 nm bis 4,6 μ m

Inhalt dieser Arbeit ist die Realisierung von Festkörper-Laserstrahlquellen mit Nanosekundenimpulsen hoher Repetitionsrate in Spektralbereichen vom tiefen Ultraviolett bei 213 nm bis hin zum mittleren Infrarot bei 4,6 μ m.

Als Grundlage dienen diodengepumpte Festkörperlaser, deren Emissionswellenlängen von 1064 und 1342 nm mit verschiedensten Techniken der nichtlinearen Optik in andere Spektralbereiche konvertiert werden. Die Motivation hierfür geht von Anwendungen aus, deren spezielle Anforderungen von bislang verfügbaren Lasern nicht erfüllt werden können. Eine Vielzahl technologischer Aspekte, die in Anwendung eine entscheidende Rolle spielen, wie z.B. ein kompakter Aufbau oder eine hohe Langzeitstabilität werden bei der Entwicklung der Systeme von vorneherein berücksichtig.

Das Konzept der Laser basiert auf der Verwendung fasergekoppelter Diodenlasermodule hoher Brillanz, die in einer longitudinalen Pumpgeometrie sehr effizient zur optischen Anregung von Neodym dotiertem Yttrium-Vanadat (Nd:YVO₄) eingesetzt werden. Basierend auf dem Standard-Laserübergang bei 1064 nm wird ein aktiv gütegeschalteter Laser mit einer mittleren Ausgangsleistung von 4,6 W mit Impulsdauern von 8,9 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz realisiert. Die emittierte Strahlung ist beugungsbegrenzt mit einem M² kleiner 1,1. Zur optionalen Leistungsskalierung wird dieser Laser in einer Verstärkerstufe im Einfachdurchgang auf eine mittlere Ausgangsleistung von 13 W nachverstärkt.

Die Verwendung des Laserübergangs von 1342 nm in Nd:YVO₄ eröffnet völlig neue Möglichkeiten spezielle Spektralbereiche mit den Mitteln der nichtlinearen Optik zu erreichen. Ein hierfür optimierter Laser erreicht unter Verwendung einer Pumpdiode eine mittlere Ausgangsleistung von 2,1 W mit Impulsdauern von 9,2 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz. Zur Leistungssteigerung wird das Resonatorkonzept modifiziert und ein Laseroszillator mit zwei Pumpdioden realisiert. Dieser erreicht bei 15 kHz eine mittlere Leistung von 4,9 W bei einer Impulsdauer von 11 ns. Die entwickelten Laser zeichnen sich aus durch ihren hohen Wirkungsgrad, eine kompakte Bauform und sehr kurze Impulsdauern. Aufgrund der damit verbundenen hohen Spitzenleistungen wird in Verbindung mit einer hervorragenden Strahlqualität die Eignung für optisch nichtlineare Prozesse sichergestellt.

Aufbauend auf diesen Lasern werden verschiedene Konzepte untersucht, um die Laserstrahlung mit den Mitteln der nichtlinearen Optik in andere Spektralbereiche zu konvertieren.

Die Erzeugung der führten Harmonischen von 1064 nm liefert Laserstrahlung im tiefen Ultraviolett bei 213 nm. Erstmals wurde über die Summenfrequenzmischung der zweiten und dritten Harmonischen ein kompaktes, langzeitstabiles Lasersystem mit einer mittleren Ausgangsleistungen von bis zu 154 mW realisiert. Die Impulsdauer verkürzt sich bei der Frequenzkonversion auf 5,3 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz. Herausragend ist hierbei auch die nahezu erhaltene Strahlqualität der emittierten Strahlung mit einem M^2 von 1,4.

Zur effizienten Erzeugung von Laserstrahlung im roten und blauen Spektralbereich werden die Harmonischen von 1342 nm genutzt. Die erreichte mittlere Ausgangsleistung bei 671 nm beträgt 1,8 W bei einer Impulsdauer von 8 ns. Im blauen Spektralbereich, bei 447 nm, beträgt die erreichte Ausgangsleistung 1,4 W bei einer Impulsdauer von 12 ns. Die Kombination der hohen Ausgangsleistung, der exzellenten Strahlqualität und kurzen Impulsdauer ist bisher einzigartig.

Insbesondere medizinische Anwendungen in den Bereichen Dermatologie und Ophtalmologie benötigen neuartige Lasern im gelben Spektralbereich. Hierfür werden zwei völlig unterschiedliche Konzepte untersucht. Der erste Ansatz zur Erzeugung von Laserstrahlung im gelben Spektralbereich stellt ein frequenzverdoppelter Selbstramanlaser dar. Unter Ausnutzung der stimulierten Raman Streuung in YVO₄ wird eine mittlere Ausgangsleistung von 1,5 W bei einer Wellenlänge im nahen Infrarot von 1176 nm erzeugt.

Der zweite Ansatz verspricht höhere mögliche Ausgangsleistungen im gelben Spektralbereich. Er nutzt die Summenfrequenzmischung (SFG) zweier synchronisierter Laseroszillatoren bei 1064 nm und 1342 nm. Durch die phasenstarre Kopplung des AOM Triggers an die RF-Welle wird der zeitliche Jitter der jeweiligen Nanosekundenimpulse zueinander auf etwa 500 ps reduziert. Vergleichende SFG-Experimente werden in den optisch nichtlinearen Materialien LBO und BiBO durchgeführt. Die höchste mittlere Leistung bei 593 nm wird mit 1,6 W in LBO erreicht und erfüllt damit bereits die Anforderungen vieler Applikationen. Darüberhinaus demonstrieren diese Untersuchungen das Potential dieses Konzepts und können als Grundlage für eine Vielzahl anderer Experimente angesehen werden.

Zur Erzeugung von leistungsstarker Laserstrahlung im mittleren Infrarot wird mit dem Oszillator-Verstärkersystem bei 1064 nm ein optisch parametrischer Generator basierend auf periodisch gepoltem MgO:LiNbO₃ gepumpt. Das System ist über den kompletten Frequenzbereich von 3,5 bis 4,6 μ m stufenlos abstimmbar und erreicht mittlere Ausgangsleistungen von bis zu 700 mW bei 3,7 μ m und sogar noch 170 mW bei 4,6 μ m. Die absolute Wellenlängengenauigkeit der entwickelten automatisierten Abstimmung ist ohne die Verwendung eines Spektrometers besser als 0,05 % der Wellenlänge.

Im letzten Kapitel wird gezeigt, dass sich auch der Laser bei 1342 nm bestens zum effizienten Pumpen eines optisch parametrischen Generators (OPG) eignet. Mit diesem Konzept lässt sich der Bereich der Entartung von 1064 nm gepumpten Systemen um 2 μ m erschließen. Analog dazu wird ein bei 671 nm gepumpter OPG realisiert, der abstimmbare Strahlung im Bereich von 1100 nm erzeugt. Beide Konzepte sind bislang einzigartig und nicht in der Literatur veröffentlicht.

Publikationsliste

Zeitschriftenbeiträge

G. Anstett, M. Nittmann, A. Borsutzky and R. Wallenstein. Experimental investigation and numerical simulation of the spatio-temporal dynamics of nanosecond pulses in Q-switched Nd:YAG lasers. *Appl. Phys. B* (2003) **76**, 833-838.

G. Anstett, M. Nittmann and R. Wallenstein. Experimental investigation and numerical simulation of the spatio-temporal dynamics of the light-pulses in nanosecond optical parametric oscillators. *Appl. Phys. B* (2004) **79**, 305-313.

O. Paul, A. Quosig, T. Bauer, M. Nittmann, J. Bartschke, G. Anstett and J. A. L'huillier. Temperature-dependent Sellmeier equation in the MIR for the extraordinary refractive index of 5% MgO doped congruent LiNbO₃. *Appl. Phys.* B (2007) **86**, 111-115.

Internationale Tagungsbeiträge

G. Anstett, M. Nittmann, R. Wallenstein und A. Borsutzky. Spatio-temporal dynamics of the pulse formation in a pulsed ns optical parametric oscillator. *Conference on Lasers and Electrooptics 2001*, 6.-11. Mai 2001, Baltimore, USA.

M. Nittmann, T. Bauer, J. A. L'huillier, P. v. Löwis of Menar, J. Bartschke, G. Anstett und M. Raab. Powerful high repetition rate nanosecond optical parametric generator in MgO:PPLN tunable from 3.5 μ m to 4.6 μ m. Conference on Lasers and Electrooptics 2007, 5.-11. Mai 2007, Baltimore, USA.

Nationale Tagungsbeiträge

M. Nittmann, G. Anstett, A. Borsutzky und R. Wallenstein. Raum-zeitliche Impulsentwicklung in kritisch phasenangepassten Nanosekunden OPOs. *Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG)*, 2.-6. April 2001, Berlin. G. Anstett, M. Nittmann und R. Wallenstein. Experimentelle Untersuchung und numerische Simulation der raum-zeitlichen Impulsentwicklung in gütegeschalteten Nd:YAG-Lasern. *Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG)*, 4.-8. März 2002, Osnabrück.

Inhaltsverzeichnis

1 5 7 9 11 13 14
5 5 7 9 11 13 14
5 7 9 11 13 14
7 9 11 13 14
9 11 13 14
11 13 14
13 14
14
1 /
14
15
17
18
19
22
24
31
31
32
32
34
35
· · · · ·

		3.1.5	Vergleich der thermischen Eigenschaften $\ .$	35
		3.1.6	Ramanaktivität	36
		3.1.7	Fazit	37
	3.2	Pump	systeme	37
		3.2.1	Räumliche Strahleigenschaften	37
		3.2.2	Spektrale Eigenschaften und Leistungskennlinien	38
		3.2.3	Polarisation	38
	3.3	Güteg	geschalteter Nd:YVO ₄ -Laser bei 1064 nm $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	41
		3.3.1	Resonatordesign	41
		3.3.2	Versuchsaufbau	44
		3.3.3	Optimierung des Resonators	45
		3.3.4	Güteschaltung	46
		3.3.5	Experimentelle Charakterisierung des Lasers	46
		3.3.6	Leistungsskalierung mit Single-Pass Verstärker	51
	3.4	Güteg	geschalteter Nd:YVO ₄ -Laser bei 1342 nm	54
		3.4.1	Linearer Resonator mit einer Pumpdiode	54
		3.4.2	Doppel-L-Resonator mit zwei Pumpdioden	55
		3.4.3	Experimentelle Charakterisierung	57
		3.4.4	Fazit	60
4	Anv	vendu	ngsnahe Erzeugung von DUV-Laserstrahlung bei 213 nm	61
	4.1	Zielset	tzung	61
	4.2	DUV-	Laserkonzepte in der Literatur	62
	4.3	Optise	ch nichtlineare Prozesse zur Erzeugung von 213 nm	63
	4.4	Versue	chsaufbau	64
	4.5	SHG v	von 1064 nm	65
		4.5.1	Konzept	66
		4.5.2	Experimentelle Charakterisierung	66
	4.6	THG	von 1064 nm	68
		4.6.1	Konzept	68
		4.6.2	Experimentelle Charakterisierung	69
	4.7	Die fü	infte Harmonische von 1064 nm	70

INHALTSVERZEICHNIS

		4.7.1	Phasenanpassung in BBO	70
		4.7.2	Charakterisierung	72
		4.7.3	Langzeitstabilität	76
	4.8	Fazit		78
5	Nar	noseku	ndenlaser im roten und blauen Spektralbereich	79
	5.1	Nanos	ekundenlaser im roten Spektralbereich	79
		5.1.1	Materialauswahl in Voruntersuchungen	80
		5.1.2	Experimentelle Ergebnisse in MgO:PPLN	80
		5.1.3	Experimentelle Ergebnisse in LBO	81
		5.1.4	Fazit zur Materialauswahl	82
		5.1.5	SHG des leistungsstärkeren 1342 nm-Lasers mit zwei Pumpdioden	82
		5.1.6	Fazit	84
	5.2	Nanos	ekundenlaser im blauen Spektralbereich	86
		5.2.1	Versuchsaufbau	86
		5.2.2	THG von 1342 nm in KTP	87
		5.2.3	THG von 1342 nm in LBO	87
		5.2.4	Fazit	88
	5.3	Variał	ble Nutzung von Rot und Blau	90
6	Sun	nmenfr	requenzmischung von zwei synchronisierten Lasern	93
	6.1	Versue	chsaufbau	94
	6.2	Wahl	des optisch nichtlinearen Materials	95
	6.3	Zeitlic	he Überlagerung der Impulse	96
	6.4	Exper	imentelle Ergebnisse	97
	6.5	Fazit		102
	6.6	Ausbli	ick	102
7	Güt	egesch	alteter Ramanlaser	103
	7.1	Versue	chsaufbau	104
	7.2	Exper	imentelle Ergebnisse	105
	7.3	Steige	rung der Pulsrepetitionsrate	107

	7.4	Zeitliche Stabilität der Ramanimpulse				
	7.5	Fazit	11			
8	OP	s im nahen und mittleren Infrarot 1	12			
	8.1	1064 nm gepumpter OPG im Wellenlängenbereich 3,5-4,6 $\mu \mathrm{m}$ 1	12			
		8.1.1 Konzepte zur Erzeugung von Laserstrahlung im MIR $\ldots \ldots 1$	12			
		8.1.2 Versuchsaufbau $\ldots \ldots 1$	13			
		8.1.3 Ausgangsleistung und Strahlqualität 1	14			
		8.1.4 Abstimmbarkeit $\ldots \ldots 1$	16			
		8.1.5 Fazit	18			
	8.2	1342 nm-gepumpter OPG im Wellenlängenbereich von 2 μm 1	20			
		8.2.1 Versuchsaufbau $\ldots \ldots 1$	21			
		8.2.2 Experimentelle Charakterisierung	22			
		8.2.3 Fazit	23			
	8.3	Rot-gepumpter OPG im nahen Infrarot	25			
		8.3.1 Versuchsaufbau $\ldots \ldots 1$	26			
		8.3.2 Experimentelle Charakterisierung	27			
		8.3.3 Fazit	27			
9	Zus	mmenfassung 13	31			
\mathbf{A}	Eige	nschaften ausgewählter optisch nichtlinearer Materialien 13	35			
	A.1	Lithiumtriborat LiB_3O_5	35			
	A.2	Betabariumborat BBO	36			
	A.3	Lithiumniobat $LiNbO_3$	39			
	A.4	Kaliumtitanylphosphat (KTP)	40			
	A.5	Wismutborat (BiBO)	42			
\mathbf{Li}	terat	rverzeichnis 14	43			
Da	anksa	gung 1	53			
Le	Lebenslauf 1					

Kapitel 1

Einleitung

Der Laser hat sich fast 50 Jahre nach seiner Entdeckung durch T. H. Maiman [1] zu einer Schlüsselkomponente entwickelt, die den Fortschritt in zahllosen Bereichen der modernen Industrie ermöglicht. Das breite Anwendungsfeld des Lasers erstreckt sich über so unterschiedliche Bereiche wie Halbleiterfertigung, Mikromaterialbearbeitung, Präzisionsmesstechnik, Umweltanalytik oder Mikrochirurgie. So vielfältig wie diese Anwendungen, so unterschiedlich sind auch die jeweiligen Anforderungen an die Lasersysteme, bezüglich Ausgangsleistung, Impulsdauer und -wiederholrate, spektraler Eigenschaften und Strahlqualität. Entsprechend vielfältig sind daher auch die bestehenden Konzepte zur Erzeugung von Laserstrahlung.

Eine herausragende Stellung nehmen dabei diodengepumpte Festkörperlaser ein. Diese kompakten und leistungsfähigen Strahlquellen zeichnen sich durch ihre hervorragende Strahlqualität und einen hohen Wirkungsgrad aus. Die Eigenschaften sind dabei der Kombination von Ionen der Seltenen Erden (wie z.B. Nd, Yb,...) mit einem geeigneten Wirtskristall (wie z.B. YAG, YVO₄,...) zu verdanken. Ihre spezielle Elektronenstruktur schirmt die laseraktiven Übergänge der Seltenen Erden derart vom umgebenden Kristallfeld ab, dass sich ein scharf begrenztes Linienspektrum ausbildet, wie man es sonst nur von Gasen kennt. Die damit verbundenen großen Lebensdauern der oberen Laserniveaus ermöglichen zudem den Einsatz der Güteschaltung zur Erzeugung von Nanosekundenimpulsen mit einer um viele Größenordnungen gesteigerten Spitzenleistung.

Der größte Nachteil dieses Materialsystems ist jedoch die limitierte Anzahl möglicher Laserübergänge und die damit verbundene Beschränkung auf wenige Emissionswellenlängen im nahen Infrarot. Viele Anwendungen in Industrie und Forschung sind allerdings auf sehr spezielle Wellenlängen angewiesen, um die geforderte prozessabhängige Wechselwirkung mit der Laserstrahlung zu erreichen.

Techniken der nichtlinearen Optik nehmen hier eine Schlüsselrolle ein, um die Laserstrahlung in andere Frequenzbereiche zu konvertieren. So wird in optisch parametrischen Prozessen die nichtlineare Wechselwirkung leistungsstarker Laserstrahlung mit einem geeigneten Medium genutzt, um eine eingestrahlte Pumpwelle in zwei Wellen bei jeweils größeren Wellenlängen zu konvertieren. Im umgekehrten Fall, führt die Summenfrequenzmischung, von zwei eingestrahlten zu einer resultierenden Welle mit kürzerer Wellenlänge. Eine substantielle Konversion kann aber nur unter Erfüllung der Phasenanpassung (die gleichbedeutend mit der Impulserhaltung der Photonen ist) erreicht werden. Phasenanpassung kann entweder in doppelbrechenden Kristallen oder in periodisch strukturierten Kristallen in Form von Quasiphasenanpassung realisiert werden. Die Grenzen des technisch Machbaren werden hier durch die Eigenschaften der verfügbaren optisch nichtlinearen Kristalle bestimmt. Relevante Größen sind hier die effektive Nichtlinearität, Möglichkeiten und Akzeptanzen der Phasenanpassung, sowie der Transparenzbereich und die Zerstörschwelle der Materialien. Im Allgemeinen werden von den zur Verfügung stehenden Materialien nur wenige der notwendigen Eigenschaften simultan bereitgestellt. Die Herausforderung bei der Entwicklung von neuen Lasersystemen für eine spezifische Applikation ist es daher geeignete Materialien zu selektieren und innovative Konzepte zu entwickeln, die die Unzulänglichkeiten der Materialien kompensieren oder umgehen können Dies wird insbesondere in den Grenzbereichen (DUV und MIR), in denen die etablierten Materialien bereits hochabsorbierend sind, relevant. Darüber hinaus können Wellenlängen in der Nähe des Standardübergangs von 1064 nm nur schwer durch nichtlineare Optik erzeugt werden.

Gegenstand dieser Arbeit ist die Entwicklung geeigneter Konzepte, um diese Wellenlängenbereiche zu erreichen. Die Konzepte beinhalten die direkte Erzeugung von NIR-Strahlung auf nicht Standard Übergängen, Selbstramanlasern und nichtlinearer Optik. Über die rein laserphysikalischen Anforderungen hinaus stellen die vorgesehenen Anwendungen besondere Anforderungen an das Gesamtkonzept eines Lasersystems. Hierzu zählen ein effizienter, kompakter und langzeitstabiler Aufbau. Aus diesem Grund mussten neue Konzepte entwickelt werden um diese Wellenlängenbereiche mit den geforderten technischen Anforderungen erschließen zu können. Darüber hinaus müssen etablierte Konzepte, wie das Resonatordesign eines Lasers bei 1064 nm, welches die Basis für einige der neuen Konzepte bildet, im Hinblick auf die speziellen Anforderungen der geplanten Anwendungen optimiert und weiterentwickelt werden.

Die Grundlage für alle im folgenden dargestellten Konzepte bilden gütegeschaltete Nanosekundenlaser, ausgehend von dem Lasermaterial Nd:YVO₄ mit Pulsrepetitionsraten im Bereich von 15 kHz. Bei der Konzipierung der Laser wurde besonderer Wert auf eine beugungsbegrenzte Strahlqualität und vergleichsweise kurze Impulsdauern gelegt. Beide Parameter bilden die Grundvoraussetzung um hohe (Spitzen-)Leistungsdichten, und damit verbunden, hohe Konversionseffizienzen in optisch nichtlinearen Materialien zu erreichen.

Die Erzeugung von Laserstrahlung im tiefen ultravioletten Spektralbereich nahe 200 nm wird heute von Excimerlasern dominiert. Entscheidende Nachteile dieser Laser sind hohe Anschlussleistungen, ein schlechtes Strahlprofil und die Verwendung hochkorrosiver Prozessgase. Entsprechend ist die Erzeugung dieser Wellenlängen in modernen Festkörperlasern hochattraktiv aber nach wie vor eine Herausforderung. Der Spektralbereich ist unter anderem interessant für Anwendungen in der Mikromaterialbearbeitung von weitestgehend transparenten Materialien, wie zum Beispiel Glas, Diamant oder Saphir. Auch in der Messtechnik können spezielle Anwendungen, die den photoelektrischen Effekt in Metallen nutzen nur von Lasern mit hinreichend hoher Photonenenergie realisiert werden. Die Grenzwellenlänge in Gold beträgt beispielsweise 238 nm in Platin 218 nm. Der in dieser Arbeit wurde daher ein innovativer Lösungsansatz verfolgt, der auf der Erzeugung der fünften Harmonischen eines Nd:YVO₄ Lasers beruht. Die Herausforderung in dieser Arbeit besteht hierbei nicht allein in der effizienten Erzeugung beugungsbegrenzter Strahlung bei 213 nm, sondern in der Optimierung des Gesamtsystems auf eine hohe Langzeitstabilität trotz des eingeschränkten Transparenzbereichs der Materialien im tiefen UV.

Von großem Interesse sind auch nach wie vor Laserstrahlquellen im sichtbaren Spektralbereich. Während kohärente Strahlquellen bei 532 nm auf der Basis frequenzverdoppelter Neodym-Laser (bei 1064 nm) gut etabliert sind, ist die Realisierung von roter und blauer Laserstrahlung immer noch eine Herausforderung. Anwendungen liegen insbesondere im Bereich der Display- und Drucktechnik. Eine elegante Möglichkeit bietet die Nutzung des Nd:YVO₄ -Laserübergangs bei 1342 nm. Durch einfache Frequenzverdopplung und -verdreifachung lassen sich hiermit Wellenlängen bei 671 nm und 447 nm erzeugen. Problematisch ist allerdings der geringere Wirkungsquerschnitt und der größere Quantendefekt dieses alternativen Laserübergangs. Ein wichtiger Teil dieser Arbeit besteht daher in der Entwicklung geeigneter Resonatorkonzepte, mit denen auch bei 1342 nm kurze Impulsdauern, hohe Spitzenleistungen bei einer beugungsbegrenzten Strahlqualität erreicht werden können.

Gelbes Laserlicht im Bereich von 590 nm hat eine besondere Bedeutung für medizinische Anwendungen in der Dermatologie und Ophtalmologie. Viele Anwendungen in diesem Bereich fordern eine mittlere Ausgangsleistung von über 1 W. Zwei mögliche Konzepte sind vielversprechend für die Erzeugung derartiger Strahlung.

Zum einen ist dies die effiziente Erzeugung von Laserstrahlung bei 1176 nm durch Verwendung der stimulierten Raman-Streuung direkt im Laserkristall und anschließende Frequenzverdopplung in den gelben Spektralbereich. Zum Anderen ist die Summenfrequenzmischung der beiden Laserübergänge bei 1064 nm und 1342 nm ein vielversprechendes Konzept für die Realisierung einer entsprechenden Strahlquelle. Die Herausforderung liegt allerdings in der sub-Nanosekunden genauen Synchronisation zweier Laseroszillatoren, um einen hinreichend guten zeitlichen Überlapp der Nanosekundenimpulse zu gewährleisten.

Optisch parametrische Prozesse bieten eine interessante Möglichkeit um abstimmbare Strahlung bei fast beliebigen Wellenlängen zu erzeugen. Eingeschränkt wird dies natürlich durch den Transparenzbereich der optisch nichtlinearen Materialien und die stark anwachsende spektrale Breite in der Nähe der Entartung. Ausgehend von den etablierten Emissionswellenlängen 1064 nm und 532 nm liegen diese Lücken im Bereich von 1,1 μ m bzw. 2,2 μ m. Ein in dieser Arbeit erstmals realisierter Ansatz nutzt die neu entwickelten Strahlquellen bei 1342 nm und 671 nm zur effizienten Frequenzkonversion in einem optisch parametrischen Generator.

Für Anwendungen in der Spektroskopie, Umweltanalytik, sowie militärische Applika-

tionen sind abstimmbare Strahlquellen im mittleren Infrarot von besonderen Interesse. Vor diesem Hintergrund wird, ausgehend von einer Pumpwellenlänge von 1064 nm, ein leistungsstarker, von 3,5-4,6 μ m abstimmbaren OPG realisiert. Diese Strahlquelle setzt neue Maßstäbe im mittleren Infrarot bezüglich der kombinierten Betrachtung von Ausgangsleistung, Effizienz, Abstimmbarkeit und Strahlqualität.

Die spektrale Spannweite, der in dieser Arbeit realisierten Konzepte, reicht damit vom tiefen UV bei 213 nm über den sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich, bis ins mittlere Infrarot bei 4,6 μ m.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Gütegeschaltete Festkörperlaser

Die Physikalischen Grundlagen zu gütegeschalteten Festkörperlasern sind ausführlich in verschiedenen Werken der Literatur beschrieben. Im Folgenden sollen daher nur in Kürze die für diese Arbeit relevanten Zusammenhänge zusammengefasst werden. Die Ausführungen folgen dabei der Notation von Svelto [2].

Grundlage für alle theoretischen Beschreibungen des Laserprozesses sind die Ratengleichungen für die Besetzungsinversion N und die Photonenzahl Φ . Diese lassen sich für ein monomodiges System ohne Berücksichtigung räumlicher Effekte schreiben als

$$\frac{dN}{dt} = -B\Phi N$$

$$\frac{d\Phi}{dt} = [V_a B N - (1/\tau_c)]\Phi \quad .$$
(2.1)

Hierbei bezeichnet B den Einsteinkoeffizienten der stimulierten Emission, V_a das Modenvolumen im aktiven Medium und τ_c die Resonatorlebensdauer, definiert durch

$$\tau_c = \frac{L_e}{\gamma c} \quad , \tag{2.2}$$

mit der optischen Resonatorlänge L_e und den logarithmischen Gesamtverlusten pro Umlauf γ .

Die Schwellenbedingung in einem Laser beruht auf der Annahme, dass pro Resonatorumlauf die Verstärkung einer spektralen Mode gerade deren Gesamtverluste überwiegt. Hieraus lässt sich ein Ausdruck für die minimale Schwellenleistung P_{th} eines Lasers herleiten, in der Form

$$P_{th} = \frac{\gamma h \nu A_b}{\eta_p \tau \sigma} \quad . \tag{2.3}$$

Die Schwellenleistung ist damit direkt proportional zu den Verlusten des Lasers. Die übrigen Faktoren bezeichnen die Querschnittsfläche der Lasermode A_b , die Pumpeffizienz η_p , die Lebensdauer des oberen Laserniveaus τ und den Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission σ .



Abbildung 2.1: Prinzipskizze der Güteschaltung

Bei der aktiven Güteschaltung von Laserresonatoren (siehe Abbildung 2.1) werden während des Pumpvorgangs die Verluste bis zu einem wählbaren Zeitpunkt t_s künstlich groß gehalten und dann plötzlich auf einen viel kleineren Wert reduziert. Dadurch wird die Besetzungsinversion für $t < t_s$ nicht durch stimulierte Emission abgebaut und erreicht wegen der andauernden Energiezufuhr sehr große Werte. Ab dem Zeitpunkt t_s liegt plötzlich eine große Überbesetzung im oberen Laserniveau vor, die in einem sehr kurzen Riesenimpuls durch stimulierte Emission abgebaut wird.

Ausgehend von den Ratengleichung 2.1 lässt sich für einen gütegeschalteten Laser die Impulsspitzenleistung P_p berechnen

$$P_p = \frac{\gamma_{OC}}{2} \left(\frac{A_b}{\sigma}\right) \left(\frac{h\nu}{\tau_c}\right) \left[x - \ln(x) - 1\right] \quad . \tag{2.4}$$

Wobei γ_{OC} die logarithmischen Verluste durch den Auskoppelspiegel bezeichnet und x

die Schwellenüberhöhung zum Zeitpunkt t_s darstellt, die sich schreiben lässt als

$$x = \frac{N_i}{N_c} = \frac{\tau R_p \sigma l}{\gamma} \quad . \tag{2.5}$$

In ähnlicher Weise wie die Impuls
spitzenleistung lässt sich auch die Impulsdauer τ_p berechnen

$$\tau_p = \tau_c \eta_E \frac{x}{x - \ln(x) - 1}$$
, (2.6)

wobei η_E den Energieextraktionsfaktor darstellt, definiert über

$$\eta_E = \frac{N_i - N_f}{N_i} \quad . \tag{2.7}$$

Anhand der Gleichung 2.4 erkennt man, dass hohe Impulsspitzenleistungen bei gütegeschalteten Lasern unter anderem dadurch zu erreichen sind, indem man kurze Resonatoren bei hohen Auskoppelgraden wählt. Gleichzeitig muss eine hohe Schwellenüberhöhung erreicht werden. Beides führt gemäß Gleichung 2.6 auch zu kurzen Impulsdauern.

2.1.1 Akustooptische Güteschaltung

Bei der akustooptischen Güteschaltung erzeugt ein RF-Signal, das über einen piezoelektrischen Transducer in einen geeigneten Kristall eingekoppelt wird, eine akustische Welle, deren Wellenlänge durch die Frequenz des RF-Signals bestimmt ist. Dadurch entsteht eine Art Phasengitter, welches sich mit der akustischen Schallgeschwindigkeit durch den Kristall bewegt. Ein einfallender Laserstrahl wird an diesem Phasengitter gebeugt, wobei man zwei verschiedene Beugungsformen unterscheidet. Relevant hierfür ist der sogenannte Q-Parameter von der Form

$$Q = \frac{2\pi\lambda L}{n\Lambda^2} \quad . \tag{2.8}$$

Hierbei ist λ die Wellenlänge des Laserstrahls, L die Wechselwirkungslänge, n der Brechungsindex des Kristalls und Λ die Wellenlänge der akustischen Welle.

Ist $Q \gg 1$, so wird die einfallende Lichtwelle in einen einzelnen Beugungskegel gebeugt. Die Beugungseffizienz ist maximal, wenn das Licht unter dem Bragg-Winkel auf die akustische Welle auftrifft. Unter den genannten Bedingungen spricht man deshalb von Bragg-Beugung. Gilt hingegen $Q \ll 1$, so kann die Beugung von Licht an der akustischen Welle nur dann erfolgen, wenn das Licht parallel zu den Wellenfronten der akustischen Welle in das Medium eintritt. Die eintretende Lichtwelle wird in diesem Fall symmetrisch zu beiden Seiten der einfallenden Lichtwelle in mehreren Beugungsordnungen gebeugt, deren Intensitäten durch Besselfunktionen beschrieben werden. Diese Form der Lichtbeugung an akustischen Wellen wird als Raman-Nath-Beugung [3] bezeichnet. Beide Beugungsformen sind in Abbildung 2.2 schematisch dargestellt.



Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Bragg-Beugung *(links)* und Raman-Nath-Beugung *(rechts)* in akustooptischen Güteschaltern

Während bei der Bragg-Beugung aufgrund der großen Wechselwirkungslänge zwischen einfallender, gebeugter Lichtwelle und akustischer Welle Phasenanpassungsprozesse berücksichtigt werden müssen, spielen diese bei der Raman-Nath-Beugung keine Rolle. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Güteschaltern erhält man für den Q-Faktor Werte von etwa 6-8. Man befindet sich daher vorwiegend im Bragg-Regime, wobei auch noch höhere Beugungsordnungen von vernachlässigbarer Intensität beobachtet werden.

Der Bragg-Winkel lässt sich in folgender Form berechnen

$$\theta_B \approx \sin \theta_B = \frac{\lambda F}{2 v_c} \quad ,$$
(2.9)

wobei F die Frequenz des RF-Signals und v_c die Schallgeschwindigkeit der akustischen Welle darstellen. In dem häufig verwendeten Quarzglas beträgt die Schallgeschwindigkeit beispielsweise 3760 m/s [4].

Ein weiteres wichtiges Merkmal eines AOM ist die Abklingzeit t_f , in der die Intensität der gebeugten Welle von 90% auf 10% der maximal gebeugten Intensität abklingt. Moduliert man die Schallwelle mit einem idealen Rechteckpuls, d.h. schaltet man die Schallwelle unendlich schnell aus, so ist die Anstiegszeit bzw. die Abklingzeit der gebeugten Welle im wesentlichen abhängig von der Transitzeit der akustischen Welle durch die Lichtwelle. Damit gilt

$$t_f \propto \frac{w_0}{\mathbf{v}_c} \quad . \tag{2.10}$$

Dabei sind w_0 der Strahlradius der Lichtwelle und v_c die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Schallwelle im Medium. Die Abklingzeit des AOM muss bei der Verwendung als akustooptischer Güteschalter klein im Vergleich zur Impuls-Aufbauzeit des gütegeschalteten Lasers sein.

Dennoch hat das Abklingverhalten der akustischen Welle bei der Güteschaltung maßgeblichen Einfluss auf den Startprozess der Impulsgeneration. Dies wirkt sich entsprechend auf die Impulsenergie, die Impulsform und vor allem auf den Zeitpunkt der Impulsausbildung aus. Letzteres führt dann zu einem zeitlichen Jitter der Laserimpulse relativ zum Triggersignal, das den Abschaltvorgang des RF-Signals initiiert.

Entscheidend ist dabei insbesondere die Phase der akustischen Welle zum Abschaltzeitpunkt. In Arbeiten von Rahm [5] wurde daher gezeigt, dass phasenstarres Schalten des AOM-Steuersignals relativ zur RF-Trägerwelle eine erhebliche Reduktion des zeitlichen Impulsjitters bewirkt und zwar von einigen Nanosekunden auf etwa 300 ps.

Für die meisten Anwendungen hat dieser zeitliche Jitter praktisch keine Auswirkungen. Es gibt jedoch Fälle, wie zum Beispiel das Self-Seeding in den Arbeiten von Rahm oder die Synchronisation zweier gütegeschalteter Laser zur effizienten Summenfrequenzmischung wie sie in dieser Arbeit gezeigt wird, die mit diesem reduzierten Jitter überhaupt erst möglich werden.

2.1.2 Räumliche Eigenschaften von Laserstrahlung und Strahlqualität

Die räumliche Ausbreitung von Laserstrahlung kann in guter Näherung durch die Lösungen der paraxialen Helmholtzgleichung beschrieben werden. Diese Lösungen bilden einen vollständigen orthogonalen Satz von Funktionen, nach denen jede beliebige Feldverteilung entwickelt werden kann. Die mathematische Beschreibung erfolgt entweder mittels der Gauß-Hermite-Polynome H_m für Rechtecksymmetrie oder der Gauß-Laguerre-Polynome L_p^l für Kreissymmetrie. Die daraus resultierenden Feldverteilungen werden transversale Moden des elektromagnetischen Feldes genannt und entsprechend ihrer Ordnung mit TEM_{mm} bzw. TEM_{pl} bezeichnet. Die Mode niedrigster Ordnung, die Grundmode (TEM₀₀), ist der Gaußsche Strahl.

Für die Intensitätsverteilung $I(\rho, z)$ eines Gaußschen Strahls erhält man in Zylinderkoordinaten:

$$I(\rho, z) = I_0 \left(\frac{w_0}{w(z)}\right)^2 e^{-\frac{2\rho^2}{w^2(z)}} \quad .$$
 (2.11)

Die Intensität fällt bei $\rho = w(z)$ auf $1/e^2$ ihres Maximalwertes ab. Diese Stelle definiert man als den Strahlradius des Gaußschen Strahls. Den kleinsten Radius $w_0(z = z_0)$ erhält man in der Strahltaille. Den Abstand von der Strahltaille, bis zu dem sich der Strahlradius um den Faktor $\sqrt{2}$ vergrößert hat, bezeichnet man als Rayleighlänge z_R . Sie berechnet sich zu:

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad . \tag{2.12}$$

In Abhängigkeit von der Rayleigh-Länge erhält man für die Strahlparameter des Gaußschen Strahls [6]:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z - z_0}{z_R}\right)^2}$$
 (2.13)

Radius der Strahltaille:

Radius der Wellenfront

Strahlradius:

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda \, z_R}{\pi}} \tag{2.14}$$

(2.15)

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z - z_0} \right)^2 \right]$$



Abbildung 2.3: Gaußscher Strahl, der sich in z-Richtung ausbreitet

An Gleichung (2.15) erkennt man, dass für den Krümmungsradius im Fernfeld, d.h. für $z \gg z_R$, ungefähr $R(z) \approx z$ gilt. Die Wellenfronten entsprechen hier näherungsweise Kugelwellen, die von der Position der Strahltaille z_0 ausgehen. Der Gaußsche Strahl hat daher das Erscheinungsbild einer Fraunhofer-Beugung an einer Öffnung mit einem Durchmesser von $2w_0$ und wird deshalb auch beugungsbegrenzter Strahl genannt. Im Fernfeld kann aus der linearen Abhängigkeit des Strahlradius vom Abstand zur Strahltaille die Strahldivergenz θ definiert werden:

$$\theta \approx \tan \theta = \frac{w_0}{z_R} = \frac{\lambda}{\pi w_0} ,$$
(2.16)

wobei gemäß dieser Definitionen mit θ der halbe Öffnungswinkel bezeichnet wird.

Das Produkt aus Taillenradius w_0 und Öffnungswinkel θ bleibt für beliebige Strahlen beim Durchgang durch beugungsbegrenzte lineare optische Systeme erhalten [7]. Es wird als Strahlparameterprodukt bezeichnet und ist bis auf einen konstanten Faktor M^2 nur abhängig von der Wellenlänge des Strahls:

$$\theta w_0 = M^2 \frac{\lambda}{\pi} . \tag{2.17}$$

Im Vergleich zu sämtlichen höheren transversalen Moden nimmt das Strahlparameterprodukt für den Gaußschen Strahl den kleinst möglichen Wert an. Der Parameter M^2 kann daher als Qualitätsmaßzahl für beliebige Laserstrahlung aufgefasst werden und wird auch als Beugungsmaßzahl bezeichnet. Man definiert den M²-Parameter normalerweise als das auf einen gaußschen Strahl normierte Strahlparameterprodukt. Dadurch ergibt sich für den beugungsbegrenzten Gauß-Strahl ein M²-Parameter von Eins. Für beliebige andere Strahlen gilt dann $M^2 > 1$. Sie werden "M²-fach beugungsbegrenzt" genannt.

Die besondere Bedeutung der Beugungsmaßzahl wird durch folgenden Sachverhalt ersichtlich: Die Propagation eines Lichtstrahls durch komplexe optische Systeme kann sehr vorteilhaft mithilfe des Matrixformalismus der paraxialen Optik (auch ABCD-Formalismus genannt) beschrieben werden [8]. Dieser Formalismus gilt dabei zunächst nur für reine Gaußstrahlen. Durch eine Substitution der Wellenlänge gemäß $\lambda \to M^2 \lambda$ wird der ABCD-Formalismus jedoch für beliebige Strahlen gültig. Mit der gleichen Substitution treffen auch die Formeln für die Strahlparameter (2.13)-(2.15) auf beliebige Strahlen zu.

2.1.3 M²-Messung durch das Hyperbel-Anpassungsverfahren

Die Beugungsmaßzahl M² lässt sich aus dem Radius der Strahltaille und der Strahldivergenz bestimmen. Eine kombinierte Messung beider Strahlparameter ist mit dem Hyperbel-Anpassungsverfahren möglich. Für dieses Verfahren wird der Strahlradius (jeweils in x- und y-Richtung) an mehreren Stellen entlang der Propagationsachse z bestimmt. An die gemessenen Radien W(z) wird anschließend eine Hyperbel gemäß

$$W^2(z) = A + Bz + Cz^2 (2.18)$$

angefittet. Vergleicht man diese Gleichung mit der Gleichung für den Strahlradius eines Gaußstrahls (2.13), so erhält man aus den Fitparametern A, B und C die Strahlparameter:

Radius der Strahltaille:
$$W_0 = \sqrt{A + \frac{B^2}{4C}}$$
 (2.19)

Lage der Strahltaille:
$$Z_0 = -\frac{B}{2C}$$
 (2.20)

Divergenz: $\Theta = \sqrt{C}$ (2.21)

Rayleighlänge:
$$Z_R = \frac{1}{C} \sqrt{AC - \frac{B^2}{4}}$$
 (2.22)

Beugungsmaßzahl:
$$M^2 = \frac{\pi}{\lambda} \left(A C - \frac{B^2}{4} \right)^{-\frac{1}{2}}$$
 (2.23)

Um mit diesem Verfahren zuverlässige Werte für die Strahlparameter zu erhalten, sollte an genügend vielen Positionen, insbesondere im Bereich der Strahltaille ($z \approx Z_0$) und im Fernfeld ($z > 3 Z_R$) der Strahlradius bestimmt werden. Ein Beispiel für eine geeignete Messung zeigt Abbildung 2.4.

Da die Strahltaille in den meisten Fällen innerhalb des Laserresonators liegt, und dort für direkte Messungen nicht zugänglich ist, ist es oft zweckmäßig den Strahl mithilfe einer aberrationsfreien Linse zu fokussieren und so eine zweite Strahltaille zu erzeugen. Dies kann auch bei Lasern mit sehr geringer Divergenz vorteilhaft sein. Man beachte jedoch, dass die Formeln (2.19) bis (2.22) nur für den Strahl nach Durchgang durch die Linse gelten.

Die größte Fehlerquelle des Hyperbel-Anpassungsverfahrens liegt in der korrekten Bestimmung der Strahlradien. Handelsübliche Apparaturen verwenden hierfür zumeist die Methode der bewegten Messerschneide oder die Methode des bewegten Spaltes. Diese Verfahren liefern jedoch nur bei annähernd gaußschen Intensitätsverteilungen des Strahlprofils korrekte Ergebnisse [9]. Das von der ISO-Norm [10] vorgeschlagene Verfahren, sieht daher die Bestimmung des Strahlradius mithilfe der Zweiten-Momente-Methode aus der gemessenen zweidimensionalen Intensitätsverteilung der Laserstrahlung vor.



Abbildung 2.4: Messpunkte und Fitfunktion zur Bestimmung der Beugungsmaßzahl mit dem Hyperbel-Anpassungsverfahren

2.1.4 Die Momente einer Verteilung

Die statistische Analyse einer Intensitätsverteilung I(x, y, z) erlaubt eine Definition des Strahlradius für beliebige Verteilungen. Dies geschieht über die in der statistischen Analysis definierten Momente einer Wahrscheinlichkeitsverteilung [11]:

Nulltes Moment:

$$E = \int \int I(x, y, z) \, dx \, dy \qquad (2.24)$$

Erstes Moment (Erwartungswert):

$$\bar{x} = \frac{\int \int x I(x, y, z) \, dx dy}{\int \int I(x, y, z) \, dx dy} \qquad (2.25)$$

Zweites Moment (Varianz):
$$\sigma_x^2 = \frac{\int \int (x-\bar{x})^2 I(x,y,z) \, dx dy}{\int \int I(x,y,z) \, dx dy} \quad .$$
(2.26)

Angewandt auf die Intensitätsverteilung eines Laserstrahls erhält man aus den Momenten folgende physikalische Bedeutung: Das nullte Moment entspricht gerade der in der Verteilung enthaltenen Gesamtintensität, das erste Moment dem Schwerpunkt der Verteilung. Die Wurzel aus der Varianz ($\sigma = \sqrt{\sigma^2}$) heißt Streuung oder Standardabweichung. Sie ist ein Maß für die Streuung der Verteilung um ihren Schwerpunkt. Setzt man in die Formel für die Varianz die Verteilung eines Gauß-Profils (Gleichung (2.26)) ein, so erhält man:

$$\sigma_{x,y}(z) = \frac{1}{2}w(z)$$
 . (2.27)

Dies legt nahe, die Standardabweichung auch für beliebige Intensitätsverteilungen als halben Strahlradius zu definieren. Man kann zeigen, dass mit dem so definierten Strahlradius die Formeln für die Strahlpropagation des Gaußstrahls auch für Strahlen mit beliebigem Strahlprofil anwendbar sind [12]. Um weitergehende Informationen über die Intensitätsverteilung zu erhalten, müssen zusätzlich auch die höheren Momente der Verteilung betrachtet werden. Die dritten Momente charakterisieren beispielsweise die Asymmetrie eines Laserstrahls, während die vierten Momente mehr Informationen über die Intensitäten in den Randbereichen des Strahls liefern. Für die vollständige Beschreibung einer Intensitätsverteilung müssen daher alle Momente berücksichtigt werden [13].

2.2 Nichtlineare Optik

2.2.1 Nichtlineare Drei-Wellen-Wechselwirkung

Im Geltungsbereich der nichtlinearen Optik induziert die Mischung zweier elektromagnetischer Wellen mit den Frequenzen ω_1 und ω_2 in einem Medium eine Polarisation mit den Summen- und Differenzfrequenzanteilen $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$. Diese Polarisation zweiter Ordnung kann durch die Komponenten d_{ijk} eines Tensors dritter Stufe ausgedrückt werden:

$$P_i^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2) = \varepsilon_0 g \sum_{j,k} d_{ijk}(-\omega_3, \omega_1 \pm \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\pm \omega_2) \quad .$$
(2.28)

Die Komponenten dieses nichtlinearen optischen Tensors entsprechen dabei den nichtlinearen Koeffizienten des betrachteten Kristalls:

$$d_{ijk} = \frac{1}{g} \chi_{ijk}^2 \quad . \tag{2.29}$$

Dabei ist g ein Entartungsfaktor, der bei Frequenzverdopplung ($\omega_1 = \omega_2$) den Wert 1 und ansonsten den Wert 2 annimmt. Aus Gleichung (2.28) geht hervor, dass $P^{(2)}$ für ein Medium mit Inversionssymmetrie verschwindet, weshalb sich in Gasen, Flüssigkeiten und Festkörpern mit zentrosymmetrischer Kristallstruktur nur nichtlineare Prozesse dritter Ordnung beobachten lassen. Zur weiteren Betrachtung wird der effektive nichtlineare Koeffizient d_{eff} eingeführt. Diese skalare Größe ergibt sich aus der Summation der Matrixelemente des Tensors d_{il} für eine bestimmte Ausbreitungs- und Polarisationsrichtung. Dadurch vereinfacht sich Gleichung (2.28) zu:

$$P_i^{(2)} = 2 \,\varepsilon_0 \, d_{\text{eff}} \, E(\omega_1) \, E(\omega_2) \quad . \tag{2.30}$$

Zur Beschreibung der Propagation elektromagnetischer Wellen in einem Medium lässt sich aus den Maxwellgleichungen die Wellengleichung ableiten. Diese hat für nichtmagnetische, dielektrische Medien die Form:

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} = \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P} \quad . \tag{2.31}$$

Dabei ist c_0 die Vakuumlichtgeschwindigkeit und μ_0 die Permeabilitätskonstante des Vakuums. Die Polarisation \vec{P} lässt sich durch die Gleichung (2.30) ausdrücken. Als Lösungsansatz betrachtet man die drei an der Wechselwirkung beteiligten Felder als unendlich ausgedehnte, ebene, monochromatische Wellen, die sich in z-Richtung ausbreiten:

$$E(z,t) = E_i(z)e^{i(\omega_i t - k_i z)}$$
 (2.32)

mit:
$$k_i = \frac{2\pi n}{\lambda_i} = \frac{\omega_i n}{c_0}$$
 und $i = 1, 2, 3$

Daraus lassen sich unter der Annahme sich nur langsam verändernder Feldamplituden (*slowly varying field approximation*) die gekoppelten Amplitudengleichungen herleiten:

$$\frac{\partial E_1(z)}{\partial z} = i \frac{\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} E_2^*(z) E_3(z) e^{i\Delta kz}$$

$$\frac{\partial E_2(z)}{\partial z} = i \frac{\omega_2 d_{\text{eff}}}{n_2 c} E_1^*(z) E_3(z) e^{i\Delta kz}$$

$$\frac{\partial E_3(z)}{\partial z} = i \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} E_1^*(z) E_2(z) e^{-i\Delta kz}$$
(2.33)

In diesem eindimensionalen Modell beschreibt Δk die Differenz der Wellenvektoren zwischen der erzeugten Polarisationswelle und den beiden eingestrahlten Wellen:

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \quad . \tag{2.34}$$

Die gekoppelten Amplitudengleichungen beschreiben die Änderungen der wechselwirkenden Felder als Funktion des Weges z. Diese Wechselwirkung, und damit die Frequenzkonversion, ist für $\Delta k = 0$ am größten, da sich dabei die beteiligten Felder phasenrichtig addieren. Der Energieübertrag zwischen den drei Wellen lässt sich für diesen Fall mit Hilfe der Manley-Rowe-Beziehung quantifizieren [14]:

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_{\omega_1}}{\omega_1} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_{\omega_2}}{\omega_2} \right) = -\frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{I_{\omega_3}}{\omega_3} \right) \quad . \tag{2.35}$$

Die Energieerhaltung muss dabei durch $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ gewährleistet sein.

Eine besondere Form der nichtlinearen Drei-Wellen-Wechselwirkung ist die optisch parametrische Verstärkung (OPA). Hierbei werden eine starke Pumpwelle (ω_p) und eine schwache Signalwelle (ω_s) in ein nichtlineares Medium eingestrahlt. Dort wird gemäß der Manley-Rowe-Beziehung (2.35) die Pumpwelle zugunsten der Signalwelle und der Differenzfrequenz, der sogenannten Idlerwelle $(\omega_i = \omega_p - \omega_s)$ abgebaut. Es gilt die Konvention $\omega_p > \omega_s > \omega_i$. Man kann diesen Vorgang auch als eine Aufteilung eines Pumpphotons in je ein Signal- und ein Idlerphoton interpretieren. Wenn nur eine Pumpwelle eingestrahlt wird, kann bei genügend hoher Verstärkung der Prozess auch aus dem Quantenrauschen der Vakuumfluktuationen starten. Diesen Vorgang bezeichnet man als optisch parametrische Erzeugung (optical parametric generation, OPG).

2.2.2 Phasenanpassung in doppelbrechenden Materialien

Die Phasenanpassungsbedingung für die optisch parametrische Verstärkung muss bei beliebiger Ausbreitungsrichtung der beteiligten Wellen in vektorieller Form geschrieben werden:

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i = 0.$$
 (2.36)

Der Betrag eines Wellenvektors hängt über $|\vec{k_i}| = \frac{\omega_i n}{c_0}$ vom Brechungsindex n des Mediums ab. Im Allgemeinen verhindert daher die Dispersion des Mediums die Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung. In anisotropen Materialien jedoch kann unter Ausnutzung der natürlichen Doppelbrechung die Polarisations- und Ausbreitungsrichtung der beteiligten Wellen so gewählt werden, dass die Phasenanpassungsbedingung erfüllt wird [15]. Um dies genauer zu verstehen, soll im Folgenden die Ausbreitung von Lichtwellen in optisch anisotropen Medien näher betrachtet werden.

Die dielektrische Verschiebung \vec{D} ist in isotropen Medien über die skalare Dielektrizitätszahl ε mit der elektrischen Feldstärke \vec{E} verknüpft:

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} . \tag{2.37}$$

In optisch anisotropen Medien ist die dielektrische Verschiebung D im Allgemeinen nicht mehr parallel zur elektrischen Feldstärke \vec{E} . Die relative Dielektrizitätszahl ε_r muss daher durch den dielektrischen Tensor $\tilde{\varepsilon}_{ij}$ ersetzt werden. Dieser 3×3 -Tensor kann durch eine Hauptachsentransformation in Diagonalform gebracht werden:

$$\vec{D} = \begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \varepsilon_0 \tilde{\varepsilon}_{ij} \vec{E} .$$
(2.38)

Durch Multiplikation dieser Gleichung mit $\frac{1}{2}\vec{E}$ erhält man einen Ausdruck für die elektrostatische Energiedichte:

$$w_e \equiv \frac{1}{2} \vec{E} \vec{D} = \frac{1}{2\varepsilon_0} \left(\frac{D_x^2}{\varepsilon_x} + \frac{D_y^2}{\varepsilon_y} + \frac{D_z^2}{\varepsilon_z} \right) .$$
 (2.39)

Mithilfe der Maxwell-Relation $n_i = \sqrt{\varepsilon_i}$ für nichtmagnetische Stoffe und der Substitution $i = D_i/\sqrt{2\varepsilon_0 w_e}$ mit i = x, y, z erhält man daraus eine Ellipsoidengleichung:

$$\frac{x^2}{{n_x}^2} + \frac{y^2}{{n_y}^2} + \frac{z^2}{{n_z}^2} = 1.$$
 (2.40)

Mit diesem in Abbildung 2.5 dargestellten Indexellipsoid kann der Brechungsindex für ebene, monochromatische Wellen beliebiger Ausbreitungsrichtung in optisch anisotropen Medien bestimmt werden. Läuft eine elektromagnetische Welle in Richtung ihres Wellenvektors \vec{k} durch den Kristall, so ist die Schnittfläche durch den Nullpunkt des Ellipsoiden, senkrecht zu \vec{k} , in der Regel eine Ellipse. Auf dieser Indexellipse lässt sich für die entsprechende Polarisationsrichtung der Welle der Brechungsindex des Mediums abtragen. Sind alle drei Hauptachsen des Indexellipsoiden unterschiedlich lang, so gibt es genau zwei Richtungen $\vec{k}_{1,2}$, die optischen Achsen des Kristalls, in denen die zugehörige Indexellipse zu einem Kreis entartet. Man spricht dabei von optisch zweiachsigen oder biaxialen Kristallen. Sind dagegen zwei Hauptachsen des Indexellipsoiden gleich lang, so gibt es nur noch eine optische Achse, und zwar in Richtung der



Abbildung 2.5: Indexellipsoid eines optisch einachsigen Kristalls mit Schnittebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Die optische Achse entspricht der z-Achse

Rotationssymmetrieachse. Diese Kristalle nennt man entsprechend optisch einachsige oder uniaxiale Kristalle.

Zur Beschreibung der Propagation linear polarisierten Lichts in optisch einachsigen Kristallen wird die Lichtwelle in zwei zueinander senkrecht polarisierte Anteile zerlegt. Der senkrecht zur optischen Achse polarisierte Anteil $\vec{D_o}$ wird als ordentliche (*ordinary*, o) Welle bezeichnet. Ihr Brechungsindex n_o ist unabhängig von der Ausbreitungsrichtung im Kristall. Der Anteil $\vec{D_e}$, der senkrecht zu \vec{k} und $\vec{D_o}$ polarisiert ist, wird außerordentliche (*extraordinary*, e) Welle genannt. Der zugehörige Brechungsindex n_e ändert sich in Abhängigkeit vom Winkel θ zur optischen Achse. Aus geometrischen Überlegungen erhält man [16]:

$$n_e(\theta) = \frac{n_e \, n_o}{\sqrt{n_o^2 \, \sin^2 \theta \, + \, n_e^2 \, \cos^2 \theta}} \,. \tag{2.41}$$

Nach Konvention unterscheidet man zwischen positiv einachsigen Kristallen $(n_e \leq n_o)$ und negativ einachsigen Kristallen $(n_e \geq n_o)$. Stellt man die Brechungsindizes in Abhängigkeit der Ausbreitungsrichtung dar, so ergibt sich für ordentlich polarisierte Wellen eine Kugel und für außerordentliche Wellen ein Rotationsellipsoid um die optische Achse. Diese Konstruktion wird Indexfläche genannt.

2.2.3 Der Walk-off-Winkel

Für eine außerordentlich polarisierte Welle ist in anisotropen Medien im allgemeinen Fall die dielektrische Verschiebung \vec{D} nicht parallel zum elektrischen Feldvektor \vec{E} .

Dies wird durch den Tensorcharakter der Dielektrizitätskonstante ϵ beschrieben. Die Richtung \vec{k} der Phasengeschwindigkeit kann daher von der Richtung des Energieflusses, gegeben durch den Poyntingvektor $\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H}$, abweichen. Der Winkel zwischen diesen beiden Richtungen wird als Walk-off-Winkel ρ bezeichnet. Für einachsige Kristalle gilt:

$$\rho(\theta) = \pm \arctan\left[\left(\frac{n_o}{n_e}\right)^2 \tan\theta\right] \mp \theta \quad .$$
(2.42)

Durch das Auseinanderlaufen unterschiedlich polarisierter Wellen verkürzt sich für einen optisch nichtlinearen Prozess die effektive Wechselwirkungslänge auf die sogenannte Walk-off-Länge l_w . Für eine kollineare Typ-I Phasenanpassung mit räumlich gaußförmigen Wellen erhält man für die Walk-off-Länge [11]:

$$l_w = \frac{w_p \sqrt{\pi}}{2 \rho} \sqrt{\frac{w_p^2 + w_s^2}{w_p^2 + \frac{w_s^2}{2}}} \approx \frac{w_p}{\rho} \quad .$$
 (2.43)

Hierbei sind w_p und w_s die Radien der Pump- bzw Signalstrahlung. Die Näherung gilt unter der Annahme $w_s \simeq w_p$.

2.2.4 Akzeptanzbreiten

Die Konversionseffizienz wird entscheidend von der Phasenfehlanpassung Δk beeinflusst. Diese wird in der Praxis von verschiedenen Faktoren verursacht. Die Laserstrahlung besitzt beispielsweise eine endliche Divergenz und spektrale Bandbreite und der nichtlineare Kristall eine leicht inhomogene Temperaturverteilung. Daher ist die Phasenanpassung für bestimmte Anteile des Laserstrahls oder in bestimmten Regionen des Kristalls nicht mehr exakt erfüllt. Um die Abhängigkeit der Phasenfehlanpassung von verschiedenen Parametern (Winkel θ , Temperatur T, Wellenlänge λ) quantitativ zu erfassen entwickelt man Δk in eine Taylorreihe:

$$\Delta k(\theta, T, \lambda) = \Delta k(0) + \frac{\partial \Delta k}{\partial \theta} \Delta \theta + \frac{\partial \Delta k}{\partial T} \Delta T + \frac{\partial \Delta k}{\partial \lambda} \Delta \lambda + \mathcal{O}(\Delta \theta^2, \Delta T^2, \Delta \lambda^2) . \quad (2.44)$$

Der Term nullter Ordnung ($\Delta k(0)$) ist bei gegebener Phasenanpassung gleich Null. Die Terme erster Ordnung sind bei kritischer Phasenanpassung die bestimmenden Größen. Für nichtkritische Phasenanpassung werden auch sie gleich Null, weshalb die Akzeptanzbereiche hier sehr viel größer werden.

Bei vernachlässigbarem Pumpabbau lässt sich die nichtlineare Verstärkung durch eine *sinc*-Funktion beschreiben. Für die Frequenzverdopplung hat diese die folgende Form:

$$I_{2\omega} = I(0) \Gamma^2 l^2 \left(\frac{\sin(\Delta k l/2)}{(\Delta k l/2)}\right)^2$$
(2.45)

mit dem Verstärkungskoeffizienten

$$\Gamma = \frac{\omega \ d_{\text{eff}} \left| E_{\omega}(0) \right|}{n \ c_0} \quad . \tag{2.46}$$

Die *sinc*-Funktion fällt bei einem Wert von

$$\Delta k = \pm 0,886 \frac{\pi}{l} \tag{2.47}$$

auf die Hälfte ihres Maximalwerts bei $\Delta k = 0$ ab. In erster Näherung erhält man hieraus zusammen mit 2.44 für die Winkelakzeptanz [17]:

$$\Delta \theta = 0,886 \frac{2\pi}{l} \left(\frac{\partial \Delta k}{\partial \theta}\right)^{-1} \quad . \tag{2.48}$$

In der Praxis wird häufig das Akzeptanzbreiten-Längenprodukt $\Delta \theta \cdot l$ verwendet. Es bietet den Vorteil, dass es unabhängig von der im Experiment vorliegenden Kristalllänge ist. Die Bandbreiten- und Temperaturakzeptanz lassen sich entsprechend in ähnlicher Weise ausdrücken.

2.2.5 Quasiphasenanpassung

Im Gegensatz zur Phasenanpassung über Doppelbrechung, die im Idealfall an jedem Punkt im Kristall erfüllt ist, wird bei der Quasiphasenanpassung (*quasi-phase-matching*, QPM) die Phasenverschiebung periodisch korrigiert. Dadurch ist es möglich, die Kristallrichtung mit dem höchsten d_{eff} für die Frequenzkonversion zu verwenden. Zur Realisierung der Quasiphasenanpassung werden in Kristallen mit polarer Achse periodisch antiparallele Domänen erzeugt (siehe Abbildung 2.6).



Abbildung 2.6: Schematische Darstellung eines Kristalls für die Quasiphasenanpassung. Die im Kristall eingezeichneten Pfeile geben die Polarisationsrichtung an.

Eine ferroelektrische Domäne mit antiparalleler Polarisation entspricht einem Bereich des Kristalls, der an einer Ebene senkrecht zur Polarisationsebene gespiegelt wurde. In diesem Bereich ändert der nichtlineare Koeffizent sein Vorzeichen. Dies entspricht einem Phasensprung von π in der nichtlinearen Polarisation. Mathematisch kann dieser Sachverhalt anhand des folgenden Zusammenhangs verstanden werden. Aus Gleichung

2.33 folgt:

$$\frac{\partial E_3(z)}{\partial z} = -i \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} E_1^*(z) E_2(z) e^{-i\Delta kz} = i \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} E_1^* E_2 e^{-i\Delta kz + \pi} \quad .$$
(2.49)

Verlaufen die Domänen periodisch mit einer Periodenlänge $\Lambda = 2 l_c$, so verschwindet die Phasenverschiebung zwischen den beteiligten Wellen nach jeder Kohärenzlänge.

Für eine weitere quantitative Beschreibung muss die räumliche Abhängigkeit d(z) des effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} berücksichtigt werden. Zur Vereinfachung definiert man hierzu den normierten nichtlinearen Koeffizienten

$$g(z) \equiv \frac{d(z)}{d_{\text{eff}}} \quad . \tag{2.50}$$

g(z) kann dabei im Intervall 0 < z < l Werte zwischen -1 und +1 annehmen. Damit ergibt sich aus Gleichung 2.33:

$$E_3 = -i \Gamma d_{\text{eff}} l G(\Delta k) \tag{2.51}$$

mit dem Verstärkungskoeffizienten

$$\Gamma = \frac{\omega_3 E_1(z) E_2(z)}{n_3 c}$$
(2.52)

und der Phasenfehlanpassungsfunktion

$$G(\Delta k) = \frac{1}{l} \int_0^l g(z) \ e^{-i\Delta kz} \ dz \quad .$$
 (2.53)

Man erkennt, dass $G(\Delta k)$ die Fouriertransformierte von g(z) darstellt. Ihr Betrag kann Werte ≤ 1 annehmen und gibt die Reduktion des effektiven nichtlinearen Koeffizienten gegenüber konventioneller Phasenanpassung an.

Ist g(z) eine periodische Funktion in z mit Periode Λ , so ergibt sich als Fourierentwicklung

$$g(z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} G_m e^{-iK_m z}$$
 (2.54)

mit dem Gittervektor *m*-ter Ordnung

$$K_m = \frac{2\pi m}{\Lambda} \quad . \tag{2.55}$$

Unter der Bedingung $K_m \approx \Delta k$ wird das Integral 2.53 von dem Term *m*-ter Ordnung dominiert und in Näherung ergibt sich

$$E_3(z) = \Gamma d_Q l e^{\Delta k' l/2} \frac{\sin(\Delta k' l/2)}{\Delta k' l/2}$$
(2.56)

mit den beiden Substitutionen

$$d_Q := d_{\text{eff}} G_m \tag{2.57}$$

$$\Delta k' := \Delta k - K_m \quad . \tag{2.58}$$

Unter dieser Ersetzung ergeben sich für Quasiphasenanpassung die gleichen Zusammenhänge wie bei der konventionellen Frequenzkonversion. Ist g(z) wie beim idealen QPM-Kristall eine Rechteck-Funktion, die im Bereich des Kristalls nur die Werte -1 und +1 annimmt, so folgt für den effektiven nichtlinearen Koeffizienten bei Quasiphasenanpassung

$$d_Q = \frac{2d_{\text{eff}}}{\pi m} \quad . \tag{2.59}$$

Abbildung 2.7 verdeutlicht nochmals anschaulich das Anwachsen der Intensitäten für verschiedene Ordnungen der Quasiphasenanpassung. Man erkennt, dass der Frequenzkonversionsprozess in höheren Ordnungen weniger effizient verläuft. Man kann dies auch so verstehen, dass bei QPM *m*-ter Ordnung nur der $\frac{1}{m}$ -te Bruchteil der Kristalllänge für die Konversion zur Verfügung steht.



Abbildung 2.7: Normierte Intensität für optimale Phasenanpassung und verschiedene Ordnungen der Quasiphasenanpassung
2.2.6 Erzeugung der Harmonischen

Die Erzeugung der Harmonischen von Laserstrahlung erfolgt in der Regel über Summenfrequenzmischung (SFM), wobei aus zwei eingestrahlten Frequenzen ω_1 und ω_2 im nichtlinearen Kristall eine Welle mit der Summenfrequenz ω_3 erzeugt wird. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen (*Second Harmonic Generation*, SHG) und die Erzeugung der dritten Harmonischen (*Third Harmonic Generation*, THG) können hierbei als Spezialfälle angesehen werden.

Im einfachsten Fall der Frequenzverdopplung gilt $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ und $\omega_3 = 2\omega$. Damit reduzieren sich die gekoppelten Amplitudengleichungen 2.33 auf zwei Gleichungen:

$$\frac{\partial E_{\omega}(z)}{\partial z} = i \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}}{k_{\omega}c^2} E_{\omega}^*(z) E_{2\omega}(z) e^{i\Delta kz}$$

$$\frac{\partial E_{2\omega}(z)}{\partial z} = i \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}}{k_{2\omega}c^2} E_{\omega}^2(z) e^{-i\Delta kz} .$$
(2.60)

Diese sind analytisch lösbar, wenn zu Beginn die Feldstärke der zweiten Harmonischen gleich Null ist, also $E_{2\omega}(0) = 0$. Die Lösungen sind Jacobisch Elliptische Funktionen.

Für ebene Wellen und vernachlässigbaren Pumpabbau lässt sich daraus die Konversionseffizien
z η_ω für den SHG-Prozess berechnen

$$\eta_{\omega} = \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 l^2}{\varepsilon_0 n_{\omega}^2 n_{2\omega} c \lambda_{\omega}^2} P_{\omega} \left(\frac{\sin \Delta k l/2}{\Delta k l/2}\right)^2 \quad . \tag{2.61}$$

Die Konversionseffizienz ist somit proportional zur Pumpleistung P_{ω} , zum Quadrat der Kristalllänge l und zum sogenannten *figure of merit* (FOM = $d_{\text{eff}}^2/n_{\omega}^2 n_{2\omega}$).

Eine detailliertere Beschreibung haben Boyd und Kleinman 1968 entwickelt [18]. Die Theorie berücksichtigt Doppelbrechung, Fokussierung, Phasenfehlanpassung und lineare Absorption. Für den allgemeineren Fall der Summenfrequenzmischung berechnet sich demnach die erzeugte Leistung P_{ω_3} zu:

$$P_{\omega 3} = \frac{8 \pi^2 d_{\text{eff}}^2 l^2}{\varepsilon_0 n_\omega^2 n_{2\omega} c \lambda_\omega^2 A} P_{\omega 1} P_{\omega 2} e^{-\frac{l}{2}(\alpha_{\omega 1} + \alpha_{\omega 2} + \alpha_{\omega 3})} h(\xi, B, \sigma, z_f, \alpha_{\omega i}) \quad .$$
(2.62)

Unter der Annahme, dass der Fokus der Laserstrahlung in der Mitte des nichtlinearen Kristalls liegt ($z_f = 0$) und die Absorption vernachlässigt werden kann ($\alpha_{\omega i} \approx 0$) berechnet sich die Funktion $h(\xi, B, \sigma)$ aus der Gleichung

$$h(\xi, B, \sigma) = \frac{1}{4\xi} \iint_{-\xi}^{+\xi} \frac{\exp\left[i\sigma(\tau - \tau') - \frac{B^2}{\xi}(\tau - \tau')^2\right]}{(1 + i\tau)(1 - i\tau')} d\tau d\tau'$$
(2.63)

mit den Definitionen

$$\xi = \frac{l}{2 z_R} \tag{2.64}$$

$$B = \frac{1}{2} \rho \sqrt{2\pi n_{\omega} l/\lambda} \tag{2.65}$$

$$\sigma = z_R \Delta k \quad . \tag{2.66}$$

Hierbei berücksichtigt ξ die Fokussierung des Strahls, B den Walk-off und σ die Phasenfehlanpassung. Die Funktion h kann Werte zwischen 0 und 1,068 annehmen. Für ein gegebenes B lässt sich aus h die optimale Fokussierung ξ berechnen. Interessanterweise muss hierbei für maximale Konversion, entgegen den Überlegungen bei ebenen Wellen, ein $\Delta k \neq 0$ gewählt werden. Das korrespondierende σ_m , für das h maximal wird, liegt für typische Fokussierungen zwischen 0,5 ($\xi \simeq 4$) und 1 ($\xi \simeq 0, 2$). Da σ_m in der Praxis durch die Justage automatisch richtig bestimmt wird, definiert man eine maximale Funktion $h_m(B,\xi)$, für die gilt $h_m(B,\xi) = h(\sigma_m, B, \xi)$. Die Funktion $h_m(B,\xi)$ ist in Abbildung 2.8 als Funktion von ξ für verschiedene Werte von B aufgetragen. Das absolute Maximum wird hierbei für B = 0 und $\xi = 2, 84$ erreicht.



Abbildung 2.8: Darstellung der Funktion $h_m(B,\xi)$ als Funktion des Fokussierungsparameters ξ für verschiedene Werte des Doppelbrechungs-Parameters B

Nach wie vor unberücksichtigt ist in dieser Theorie der Pumpabbau der eingestrahlten Wellen. Ist dieser nicht mehr zu vernachlässigen, führen die Lösungen der gekoppelten Amplitudengleichungen 2.60 zu Jacobisch Elliptischen Funktionen sn(a|b). Die entsprechende Theorie soll hier aber nicht weiter ausgeführt werden.

Weiterhin gilt diese Theorie zur Frequenzkonversion zunächst nur für einfrequente Strahlung. Typischerweise besteht aber die Laserstrahlung aus mehreren longitudinalen Moden wodurch eine Vielzahl von Mischungskombinationen entsteht, da alle zum Konversionsprozess beitragen. Dieser Effekt führt in der Regel zu einer Erhöhung der tatsächlich erreichbaren Konversionseffizienz.

2.2.7 Stimulierte Raman-Streuung

Bei der Wechselwirkung von elektromagnetischen Wellen mit Materie treten neben den parametrischen Prozessen auch elastische und inelastische Streuprozesse auf. Die inelastische Streuung erfolgt in Medien an akustischen Phononen und wird als Brillouin-Streuung bezeichnet. Die elastische Streuung, die sogenannte Raman-Streuung kann in festen, flüssigen oder gasförmigen Medien auftreten.

In Kristallen liegen die Eigenfrequenzen der optischen Phononen typischerweise im Bereich zwischen 100 und 1000 cm⁻¹. In Gasen und Flüssigkeiten können auch größere Werte erreicht werden. Allerdings können nur Gitterschwingungen, die zu bestimmten Symmetrien gehören, Raman-Streuung verursachen. Man nennt diese Raman-aktiv.

Die Stimulierte Raman-Streuung kann mithilfe eines eindimensionalen Modells veranschaulicht werden. Hierbei geht man davon aus, dass sich bei Molekülschwingungen mit der Frequenz $\omega_{\rm v}$ die lineare Polarisierbarkeit α des Moleküls mit der Auslenkung q ändert. Eine Taylorentwicklung von α um die Ruhelage ergibt damit

$$\alpha = \alpha_0 - \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)_0 q \tag{2.67}$$

wobei α_0 die übliche Polarisierbarkeit darstellt, die den Brechungsindex und die Absorption bestimmt. Höhere Terme der Taylorentwicklung, die für Raman-Streuung höherer Ordnung verantwortlich sind, werden hier vernachlässigt.



Abbildung 2.9: Prinzip der Stimulierten Raman–Streuung

Bei der Wechselwirkung einer einfallenden Strahlung der Frequenz ω_L mit einem solchen Molekül (Abbildung 2.9) entstehen daher Seitenbänder mit einer um $\pm \omega_v$ verschobenen Frequenz. Die neu entstehenden Frequenzen werden als Stokes ($\omega_S = \omega_L - \omega_v$) und Anti-Stokes ($\omega_{AS} = \omega_L + \omega_v$) bezeichnet. Die Überlagerung von ω_L mit ω_S erzeugt dabei eine Beat-Frequenz bei $\omega_L - \omega_S$, die ihrerseits die Molekülschwingung ω_v antreibt. Diese verstärkte Vibration verstärkt wiederum die Stokes-Welle bei ω_S . Aufgrund dieser Selbstverstärkung unter Einwirkung einer kohärenten Welle ω_L wird der Prozess als stimulierter Streuprozess bezeichnet.

Die stimulierte Raman-Streuung kann klassisch wie ein parametrischer Erzeugungsprozess beschrieben werden, bei dem eine der elektromagnetischen Wellen durch eine Anregungswelle des Materials ersetzt ist [19]. Betrachtet man nur den Stokes-Fall, entspricht dies einem Zwei-Photonen-Prozess bei dem ein Photon ω_1 absorbiert und ein Photon ω_2 emittiert wird, während das Material einen Übergang vom Ausgangszustand $|i\rangle$ (*initial*) zu dem angeregten Endzustand $|f\rangle$ (*final*) macht.



Abbildung 2.10: Energieniveau-Schema für den Stokes- (*links*) und Anti-Stokes-Ramanübergang (*rechts*)

Mit einer Störungsrechnung zweiter Ordnung kann man die Raman-Übergangswahrscheinlichkeit berechnen. In elektrischer Dipolnäherung ist die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit, Volumeneinheit und Energieintervall gegeben durch:

$$\frac{dW_{fi}}{d\omega_1} = \frac{dW_{fi}}{d\omega_2} = \frac{8\pi^3\hbar N\omega_1\omega_2}{\varepsilon_1\varepsilon_2} |\langle f|M|i\rangle|^2 |\langle a_f|a_2^+a_1|a_i\rangle|^2 g(\hbar\Delta\omega) \quad .$$
(2.68)

Hierbei ist M das Übergangsmatrixelement für den Zweiphotonenübergang, N die Dichte der Moleküle oder Einheitszellen im Medium, ε die dielektrische Konstante, $|a\rangle$ der Zustand des Strahlungsfeldes und a^+ und a^- die zugehörigen Erzeugungs- und

Vernichtungsoperatoren des Feldes. $g(\hbar\Delta\omega)$ ist die gemeinsame Zustandsdichte, die die Linienform beschreibt, wobei für eine Lorentz-Kurve gilt:

$$g(\hbar\Delta\omega) = \frac{\hbar\Gamma/\pi}{\hbar^2(\Delta\omega)^2 + \hbar^2\Gamma^2} \quad , \tag{2.69}$$

wobei $\hbar\Gamma$ die in Energieeinheiten gemessene Halbwertsbreite der Linie ist. Sind die mittlere Anzahlen der Photonen n_1 und n_2 viel größer als 1, gilt folgende Näherung:

$$|\langle a_f | a_2^+ a_1 | a_i \rangle|^2 \cong n_1 n_2$$
 . (2.70)

Die Ubergangswahrscheinlichkeit (Gleichung 2.68) ist also proportional zur Dichte des Mediums N, dem Matrixelement M für den Zweiphotonenübergang, dem Produkt der am Prozess beteiligten mittleren Photonenzahlen n_1n_2 und der Zustandsdichte $g(\hbar\Delta\omega)$, die durch eine Lorentzfunktion gegeben ist. Betrachtet man die Ausbreitung der Wellen mit ω_1 und ω_2 im Raman-Medium, führt der Raman-Übergang zur Absorption von ω_1 und zur Verstärkung von ω_2 . Die Änderung der mittleren Photonenzahl der Ramanverschobenen Welle in einer einfachen Mode pro Länge ist:

$$\frac{dn_2}{dz} = \left(\frac{dW_{fi}}{d\omega_2}\rho_i - \frac{dW_{if}}{d\omega_2}\rho_f\right)\frac{\sqrt{\varepsilon_2}}{c} - \alpha_2 n_2 = (G_R - \alpha_2)n_2 .$$
(2.71)

Hierbei sind ρ_i und ρ_f die Besetzungen der Niveaus $|i\rangle$ und $|f\rangle$ und α_2 der Schwächungskoeffizient bei ω_2 . Da $W_{fi} = W_{if}$ ist, wird der Verstärkungskoefizient G_R zu

$$G_R = \frac{dW_{fi}}{d\omega_2} (\rho_i - \rho_f) \frac{\sqrt{\varepsilon_2}}{c n_2} = \frac{8\pi^3 \hbar N \omega_1 \omega_2}{\varepsilon_1 \sqrt{\varepsilon_2} c} |M_{fi}|^2 n_1 g(\hbar \Delta \omega) (\rho_i - \rho_f) \quad .$$
(2.72)

Im Fall vernachlässigbaren Pumpabbaus der Pumpwelle ist n_1 konstant und Gleichung 2.71 kann mit einer Exponentialfunktion des Ortes gelöst werden:

$$n_2(z) = n_2(0) e^{(G_R - \alpha)z} (2.73)$$

Man kann den Verstärkungskoeffizienten G_R der stimulierten Raman-Streuung über die Übergangswahrscheinlichkeit W_{fi} mit dem spontanen Wechselwirkungsquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ in Verbindung bringen, den man aus der Messung der spontanen Raman-Streuung kennt. Definitionsgemäß ist der differentielle, spontane Raman-Streuquerschnitt $d^2\sigma/d(\hbar\omega_2)d\Omega$ durch die Streuwahrscheinlichkeit eines einfallenden Photons bei ω_1 pro Einheitsfläche in ein Raman-Photon einer bestimmten Polarisation bei ω_2 pro Einheitsraumwinkel um Ω und Einheitsenergieintervall um $\hbar\omega_2$ durch

$$\frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega_2)d\Omega} = \frac{g_E\rho_i \left(dW_{fi}/d(\hbar\omega_2)\right)}{N|\langle a_f|a_2^+a_1|a_i\rangle|^2c} = \left(\frac{\omega_1\omega_2^3\sqrt{\varepsilon_2}}{c^4\varepsilon_1}\right)|M_{fi}|^2 g(\hbar\Delta\omega) \rho_i \qquad (2.74)$$

gegeben, wobei

$$g_E = \frac{k_2^2 (dk/d\omega_2)}{2\pi^2}$$
(2.75)

die Dichte der Strahlungsmoden bei ω_2 pro Einheitsraumwinkel ist. Aus den Gleichungen 2.72 und 2.74 erhält man mit der Beziehung

$$n_1 = \frac{\varepsilon |E_1|^2}{2\pi\hbar\omega_1} \tag{2.76}$$

für den Verstärkungskoeffizienten

$$G_{R} = N \frac{4\pi^{2}c^{3}\varepsilon_{1}}{\omega_{1}\omega_{2}^{2}\varepsilon_{2}\rho_{i}}(\rho_{i}-\rho_{f})\left(\frac{d^{2}\sigma}{d(\hbar\omega_{2})d\Omega}\right)|E_{1}|^{2}$$

$$= N \frac{4\pi^{2}c^{3}\varepsilon_{1}}{\omega_{1}\omega_{2}^{2}\varepsilon_{2}\rho_{i}}(\rho_{i}-\rho_{f})\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)|E_{1}|^{2}g(\hbar\Delta\omega)$$
(2.77)

Kennt man den Streuquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ aus der spontanen Raman-Streuung und die Linienbreite Γ , so kann man mit der Annahme, dass $|f\rangle$ unbesetzt ist, die stimulierte Raman-Erzeugung berechnen.

Stimulierte Raman-Streuung im Bild gekoppelter Wellen

Im Bild gekoppelter Wellen erkennt man, dass ein Zwei-Photonen-Übergang ein parametrischer Prozess dritter Ordnung ist. Da die Nettoübergangsrate gleich der Rate der Erzeugung oder Vernichtung von Photonen bei ω_1 und ω_2 ist, gilt:

$$\frac{dW_{fi}}{d\omega} (\rho_i - \rho_f) = \frac{2}{\hbar\omega_1} \left| Re\left(\frac{\partial}{\partial t} \vec{P}^{(3)*}(\omega_1) \vec{E}_1 \right) \right|
= \frac{2}{\hbar\omega_2} \left| Re\left(\frac{\partial}{\partial t} \vec{P}^{(3)*}(\omega_2) \vec{E}_2 \right) \right| .$$
(2.78)

Aus Gleichung 2.78 und der aus Gleichung 2.68 folgenden Proportionalität

$$\frac{dW_{fi}}{d\omega} \propto n_1 n_2 \propto |E_1|^2 |E_2|^2 \tag{2.79}$$

folgt für die nichtlinearen Polarisationen dritter Ordnung:

$$\vec{P}^{(3)*}(\omega_1) \propto |E_2|^2 \vec{E}_1
\vec{P}^{(3)*}(\omega_2) \propto |E_1|^2 \vec{E}_2 .$$
(2.80)

Die stimulierte Raman-Streuung kann dann als ein Prozess gekoppelter Wellen dritter Ordnung zwischen der Pump- und der Stokes-Welle beschrieben werden. Die Wellengleichungen lauten

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}_{1}) - \frac{\omega_{1}^{2}}{c^{2}} \varepsilon_{1} \vec{E}_{1} = \frac{4\pi\omega_{1}^{2}}{c^{2}} \vec{P}^{(3)*}(\omega_{1})$$

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}_{2}) - \frac{\omega_{2}^{2}}{c^{2}} \varepsilon_{2} \vec{E}_{2} = \frac{4\pi\omega_{2}^{2}}{c^{2}} \vec{P}^{(3)*}(\omega_{2}) \quad .$$
(2.81)

Daher kann für die Stokes-Erzeugung eine Raman-Suszeptibilität dritter Ordnung durch

$$P_i^{(3)}(\omega_2) = 6 \varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_2, \omega_1, -\omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k^*(\omega_1) E_l(\omega_2)$$
(2.82)

definiert werden [20].

Es wird damit ersichtlich, dass der stimulierte Raman-Prozess im Falle der Stokes-Welle automatisch phasenangepasst ist $(k_1 + k_2 - k_2 - k_1 = 0)$. Der Raman-Verstärkungskoeffizient G_R für die Stokes-Welle hängt mit dem Imaginärteil von $\chi^{(3)}$ zusammen

$$G_R = -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2k_2} \operatorname{Im}(\chi^{(3)}(\omega_2))|E_1|^2 \quad , \qquad (2.83)$$

wobei

$$Im(\chi^{(3)}(\omega_2)) = -Im(\chi^{(3)}(\omega_1))$$
(2.84)

gilt, was zeigt, dass die Stokes-Welle auf Kosten der Pumpwelle Verstärkung erfährt. Damit erhält man analog zu den gekoppelten Amplitudengleichungen beim parametrischen 3-Wellen-Mischprozess folgende gekoppelte Differentialgleichungen:

$$\frac{\partial}{\partial z} |E_1|^2 = -\frac{4\pi\omega_1^2}{c^2k_1} \operatorname{Im}(\chi^{(3)}(\omega_1)) |E_1|^2 |E_2|^2$$

$$\frac{\partial}{\partial z} |E_2|^2 = -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2k_2} \operatorname{Im}(\chi^{(3)}(\omega_2)) |E_1|^2 |E_2|^2 .$$
(2.85)

Aus diesen Gleichungen lässt sich der Verlauf der Intensitäten entlang des Mediums berechnen, wobei sich ein exponentieller Zusammenhang analog zu Gleichung 2.73 ergibt. Für praktische Anwendungen ist es hierbei gebräuchlich den Raman-Verstärkungskoeffizienten g_R zu verwenden, der als Materialkonstante von der Intensität der eingestrahlten Welle I_L unabhängig ist. Man erhält dann für die Intensität der Stokes-Welle I_S beim Durchgang durch ein Medium:

$$I_S(z) = I_S(0) e^{g_R I_L z} (2.86)$$

Stimulierte Anti-Stokes-Streuung

Die Anti-Stokes-Erzeugung kann nicht wie die stimulierte Stokes Erzeugung als ein Zwei-Photonen-Prozess erklärt und verstanden werden, da die Anti-Stokes-Welle in diesem Fall anstelle einer Verstärkung Absorption erfährt. Der Unterschied liegt an dem negativen Vorzeichen des Imaginärteils der Suszeptibilität bei der Anti-Stokes-Erzeugung.

Die Beschreibung der Anti-Stokes-Erzeugung muss daher über einen Vier-Wellen-Mischprozess erfolgen, wobei die beteiligten Felder über die Raman-Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ verknüpft sind. In Abbildung 2.10 erkennt man, dass $\omega_{2AS} = \omega_1 - \omega_{2S} + \omega_1$ ist. Außerdem verbleibt das Medium im Gegensatz zur Stokes-Erzeugung nicht im angeregten Zustand, sondern endet im Grundzustand. Analog zu Gleichung 2.82 kann auch im Anti-Stokes-Fall ein Ausdruck für die nichtlineare Polarisation angegeben werden, der allerdings noch einen Ausdruck für die Phasenanpassung enthält.

$$P_i^{(3)}(\omega_{2AS}) = 3 \varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_{2AS}, \omega_1, \omega_1, -\omega_{2S}) E_j(\omega_1) E_k(\omega_1) E_l^*(\omega_{2S}) e^{i\vec{k}_{2AS}\cdot\vec{r}} .$$
(2.87)

Die Phasenanpassungsbedingung lautet hierbei

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_1 \vec{k}_{2S} - \vec{k}_{2AS} \quad . \tag{2.88}$$

Effiziente Erzeugung von Anti-Stokes-Strahlung kann daher nur beim Erfüllen der Phasenanpassungsbedingung erfolgen. Wenn alle beteiligten Wellen die gleiche Polarisation haben, kann in normal dispersiven Medien die Phasenanpassungsbedingung nur nichtkollinear erfüllt werden. Daher wird Stokes- und Anti-Stokes-Strahlung kegelförmig um die anregende Strahlung erzeugt.

Kapitel 3

Gütegeschaltete Nd:YVO₄ Laser für die Nichtlineare Optik

Nanosekundenlaser hoher Repetitionsrate basierend auf gütegeschalteten Neodym-Festkörpermaterialien sind für viele Anwendungen von besonderem Interesse. Sie sind robust, preiswert, effizient und deshalb seit vielen Jahren zuverlässige Arbeitspferde der Industrie, beispielsweise in den Bereichen Beschriftung, Markierung und Mikromaterialbearbeitung. Für Anwendungen mit besonderen Anforderungen an die Emissionswellenlänge jenseits der standardisierten 1064, 532 und 355 nm war dieses Laserkonzept bislang kaum von Bedeutung. Neue Konzepte der nichtlinearen Optik können jedoch die Einsatzmöglichkeiten dieser Laser um ein Vielfaches erweitern. Daraus ergibt sich ein klares Anforderungsprofil für die Lasersysteme. Hohe Spitzenleistungen, wie sie für die nichtlineare Optik benötigt werden, resultieren bei gegebener Pulsrepetitionsrate und mittlerer Leistung aus kurzen Impulsdauern. Des Weiteren eröffnet die Verwendung alternativer Laserübergänge (wie z.B. 914 nm oder 1342 nm in Nd:YVO₄) ganz neue Zugangsmöglichkeiten in bisher nur schwer zu erreichende Spektralbereiche.

Für die Konzipierung der Laser gilt es daher im Folgenden, die drei wesentlichen Baugruppen entsprechend aufeinander abzustimmen: das laseraktive Medium, das Pumpsystem und den Resonator.

3.1 Materialien für Festkörperlaser

Festkörperlaser basieren in der Regel auf einem dielektrischen Wirtsmaterial (Kristall oder Glas), in welches laseraktive Ionen als Dotierung eingebracht werden. Zur Verwendung kommen dabei häufig Oxide wie Saphir (Al_2O_3) oder YAG ($Y_3Al_5O_{12}$) oder auch Vanadate (YVO_4 , $GdVO_4$), die mit Vertretern der Seltenen Erden (z.B Nd, Yb) oder Übergangsmetallen (z.B. Ti, Cr) dotiert werden. Die optischen Eigenschaften, wie Absorption und Emission werden dabei in erster Linie von der Dotierung bestimmt, während die mechanischen und thermischen Eigenschaften, wie Bruchspannung und Wärmeleitfähigkeit, durch das Wirtsmaterial vorgegeben werden. Die geeignete Kombination von Dotierung und Wirtsmaterial gestattet es in weiten Bereichen die Materialeigenschaften an die Anforderungen des Lasersystems anzupassen. Aus kristallographischer Sicht sind jedoch nicht alle Kombinationsmöglichkeiten realisierbar. Wertigkeit, Größe und Valenzzustand des Dotierungsions müssen zum Substituenten des Wirtsmaterials passen. Eine von den Eigenschaften beider Komponenten hervorragende Kombination wäre beispielsweise Neodym-dotierter Saphir. Da sich aber die Ionenradien von Neodym und Aluminium fast um einen Faktor zwei unterscheiden, kann eine entsprechende Substitution nicht mehr in die Kristallstruktur des Saphir eingepasst werden.

3.1.1 Herstellung

Die Herstellung der Kristalle erfolgt durch künstliche Züchtung aus einer Schmelze. Das wichtigste Verfahren für oxidische Kristalle ist das Czochralski-Verfahren [21]. Die Kristallisation erfolgt hierbei an einem Keimkristall, der langsam aus einer flüssigen Schmelze gezogen wird. Der Temperaturgradient zwischen Kristall und Schmelze sowie die Ziehgeschwindigkeit bestimmen maßgeblich das Wachstum und damit die Qualität der Kristalle. So ist zum Beispiel Neodym-dotiertes Yttriumvanadat (Nd:YVO₄) bereits seit 1966 als Lasermaterial bekannt [22]. Qualitätsprobleme bei der Züchtung der Kristalle verhinderten jedoch lange Zeit die Nutzung des Materials für leistungsfähige Laserstrahlquellen. Erst Mitte der 90er Jahre wurde der Zuchtprozess soweit optimiert, dass homogen dotierte Kristalle mit guter optischer Qualität hergestellt werden konnten [23, 24].

3.1.2 Dotierungsionen

Die Wahl des Dotierungsions zwischen Seltenen Erden und Übergangsmetallen wird von den Anforderungen an das Lasersystem bestimmt. Beide Klassen besitzen aufgrund ihrer unterschiedlichen Elektronenstruktur völlig komplementäre Eigenschaften. Bei den Übergangsmetallen (der 4. Periode) sind die Zustände der 3*d*-Elektronen für die Lasereigenschaften verantwortlich. Diese treten in starke Wechselwirkung zum umgebenden Kristallfeld, wodurch sich homogen verbreiterte Übergänge mit einer starken Temperaturabhängigkeit und kurzen Lebensdauern ergeben. Die große Linienbreite ermöglicht die Realisierung von weit abstimmbaren Lasern oder die Erzeugung von ultrakurzen Pulsen in modengekoppelten Systemen. Die kurze Lebensdauer verhindert jedoch die Anwendung der Güteschaltung zur Erzeugung von ns-Laserimpulsen, da keine Besetzung im oberen Laserniveau gespeichert werden kann.

Im Gegensatz hierzu werden die optischen Eigenschaften der Seltenen Erden von den Elektronen der 4f-Schale bestimmt. Diese werden jedoch von den voll besetzten Schalen 5s und 5p vom umgebenden Kristallfeld weitgehend abgeschirmt. Die Übergänge innerhalb der 4f-Schale sind daher sehr schmal und besitzen lange Lebensdauern

 $(> 100 \,\mu s)$. Diese Eigenschaften sind für Festkörpermaterialen sehr untypisch. Vergleichbares findet man ansonsten nur in kalten Gasen. Der herausragendste Vertreter der Seltenen Erden ist das Neodym (Elektronenkonfiguration (Xe) $4f^35s^25p^65d^06s^0$ [25]), da sich hier unter den relevanten Energieniveaus klassische Vier-Niveau-Systeme finden, die sich aufgrund der großen Linienstärken hervorragend für eine effiziente Nutzung der stimulierten Emission eignen.



Abbildung 3.1: Vereinfachtes Termschema von Nd: YVO_4 . Eingezeichnet sind neben dem gebräuchlichsten Pumpübergang bei 808 nm die drei stärksten Laserübergänge bei 914 nm, 1064 nm und 1342 nm.

Ein vereinfachtes Termschema mit den drei stärksten Laserübergängen ist in Abbildung 3.1 für Nd:YVO₄ dargestellt. Die Anregung für den Laserprozess kann sehr effizient aus dem Grundzustand ${}^{4}I_{9/2}$ durch optisches Pumpen in das Niveau ${}^{4}F_{5/2}$ bei einer Wellenlänge von etwa 808 nm erfolgen. Dieser Zustand zerfällt sehr schnell nichtstrahlend in das Niveau ${}^{4}F_{3/2}$, von dem aus die eigentlichen Laserübergänge stattfinden. Der stärkste und dadurch auch meistgenutzte Übergang endet im Niveau ${}^{4}I_{11/2}$, welches weiter nichtstrahlend zerfällt und entspricht einer Wellenlänge von 1064 nm. Eine alternative Emissionswellenlänge von 1342 nm ergibt sich beim Übergang in das Niveau ${}^{4}I_{13/2}$. Ebenfalls nutzbar ist der Übergang von ${}^{4}F_{3/2}$ in das Niveau ${}^{4}I_{9/2}$, der einer Wellenlänge von 914 nm entspricht. Das untere Laserniveau ist hier allerdings gleich dem

obersten Subniveau des durch den Starkeffekt aufgespaltenen Grundzustandes und ist bei Zimmertemperatur thermisch besetzt. Die daraus ermöglichte Reabsorption der Laserstrahlung muss bei einer Nutzung dieses Quasi-Drei-Niveau-Systems durch die Verwendung besonders hoher Pumpintensitäten und einer daraus resultierenden Entleerung des Grundzustandes unterdrückt werden. Die unteren Laserniveaus der beiden anderen Übergänge sind aufgrund der großen Energiedifferenz zum Grundzustand thermisch unbesetzt, weswegen es sich hier um klassische Vier-Niveau-Systeme handelt.

3.1.3 Wirtsmaterialien

Die Laserübergänge sind gemäß den Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge eigentlich verboten und werden erst durch die geringe verbleibende Kopplung an das Kristallfeld schwach erlaubt. Diese Kopplung hat zur Folge, dass auch das Wirtsmaterial Einfluss auf die optischen Eigenschaften, wie Wellenlänge, Lebensdauer und Wirkungsquerschnitt nimmt. In Tabelle 3.1 sind vergleichend die Materialeigenschaften der Neodym-dotierten Orthovanadate (YVO₄ und GdVO₄) sowie Nd:YAG dargestellt.

Material	$Nd:YVO_4$	$\mathbf{Nd}:\mathbf{GdVO}_4$	Nd:YAG
Kristallstruktur	tetragonal,	tetragonal,	kubisch,
	uniaxial [26]	uniaxial [27]	isotrop [28]
Thermische	8,9~(a)	8,6~(a)	10,1 [29]
Leitfähigkeit $[W/(m \cdot K)]$	12,1 (c) $[29]$	10,5 (c) [29]	
Thermischer Ausdehnungs-	4,4~(a)	1,5~(a)	6,9 [30]
koeffizient $[10^{-6}/K]$	11,4 (c) $[30]$	7,3 (c) [27]	
$dn/dT \ [10^{-6}/K]$	8,3 (a)	6,9~(a)	7,3 [31]
	3,0 (c) [28]	4,6 (c) [32]	
Bruchspannung [MPa]	51 [31]	50 [31]	220-270 [31]
Laserwellenlänge	1064,1 [33]	1062,9 [34]	1064,0 [30]
$Wirkungsquerschnitt^1 der$	7 (a) [35]	1,2 (a) $[36]$	2,8 [37]
stim. Emission $[10^{-19} \text{cm}^2]$	15,6 (c) $[37]$	7,6 (c) $[34]$	
Fluoreszenzlebensdauer	100	90 [34]	220
Fluoreszenzbandbreite [GHz]	212 [28]	331 [34]	169 [38]
Laserwellenlänge	1342	1342	1319
$Wirkungsquerschnitt^1 der$			1,0 [31]
stim. Emission $[10^{-19} \text{cm}^2]$	4,5 (c) $[35]$	1,8 (c) $[35]$	
Fluoreszenzbandbreite [GHz]	230 [30]	360 [34]	190 [30]

Tabelle 3.1: Materialparameter für Neodym-dotierte Laserkristalle

¹In den Angaben der Literatur wird meist nicht explizit zwischen Wirkungsquerschnitt und effektivem Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission unterschieden. Aufgrund der zu berücksichtigenden Entartungsfaktoren in Nd^{3+} unterscheiden sich die beide Angaben in etwa um einen Faktor

3.1.4 Vergleich der spektroskopischen Eigenschaften

Die für Laserprozesse wichtigsten spektroskopischen Eigenschaften sind der Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission, die Fluoreszenzlebensdauer und die Fluoreszenzbandbreite. Nd: YVO_4 zeichnet sich hier durch den mit Abstand größten Wirkungsquerschnitt für die stimulierte Emission sowohl bei 1064 nm als auch bei 1342 nm aus. Damit verbunden sind eine niedrige Schwelle und in gütegeschalteten Lasern kurze Impulsdauern. Die Fluoreszenzlebensdauer ist ein Maß dafür, wieviel Energie bei kontinuierlicher Anregung im oberen Laserniveau gespeichert werden kann, bevor diese durch spontanen Zerfall wieder verloren geht. Die inverse Fluoreszenzlebensdauer kann daher bei kontinuierlich gepumpten Lasern als untere Grenze für die Pulsrepetitionsrate angesehen werden, ab der in gütegeschalteten Systemen zunehmend Pumpleistung durch spontane Emission verloren geht und damit die Effizienz des Lasers sinkt. In Nd:YAG beträgt diese etwa 4 kHz, in Nd:YVO₄ und Nd:GdVO₄ etwa 10 kHz. Das bedeutet, dass für Pulsrepetitionsraten oberhalb von 10 kHz alle aufgeführten Materialien gut geeignet sind. Die Fluoreszenzbandbreite ist in gütegeschalteten Lasern von untergeordneter Bedeutung. Sie wird wichtig für die Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse in modengekoppelten Systemen, da über das Zeit-Bandbreiten-Produkt die minimal erreichbare Impulsdauer gegeben wird.

3.1.5 Vergleich der thermischen Eigenschaften

Im Laserbetrieb bildet sich ein starker Temperaturgradient zwischen dem Pumpvolumen und der Wärmesenke, mit der der Kristall in Kontakt steht aus. Dieser Gradient ist verantwortlich für zwei Effekte: Zum einen entstehen Spannungen im Kristall, die bei zu starker Pumpleistung (oder schlechter Kühlung) zum Bruch des Kristalls führen können. Gleichzeitig führt der Temperaturgradient auch zur Ausbildung einer thermischen Linse. Verantwortlich sind hierfür einerseits die Aufwölbung der Kristallfacetten (durch die thermische Ausdehnung des Materials), wie auch ein an die Temperaturunterschiede gekoppelter Brechungsindexgradient (bestimmt durch die Größe dn/dT).

Aufgrund von Messungen von X. Peng et al. [39] galt lange Zeit die geringe thermische Leitfähigkeit von Nd:YVO₄ als großer Nachteil dieses Materials. In neueren Messungen von Y. Saito [29] wurden allerdings annähernd doppelt so große Werte für die thermische Leitfähigkeit ermittelt, die die Vergleichswerte von Nd:GdVO₄ und Nd:YAG sogar geringfügig übertreffen. Dies deckt sich auch mit Messungen zu Temperaturverteilung in einem diodengepumpten Laser, bei dem keine signifikanten Unterschiede zwischen Nd:YVO₄ und Nd:GdVO₄ festgestellt werden konnten [40]. Die besonders große Bruchspannung von Nd:YAG (im Vergleich zu Nd:YVO₄ und Nd:GdVO₄ mehr als viermal so groß) ist der Grund für den bevorzugten Einsatz dieses Materials in Hochleistungslasern. Für die Realisierung von TEM₀₀-Lasern konnten Arbeiten von D. Krennrich [41]

^{2.} Die hier angegebenen Werte beziehen sich, soweit nachvollziehbar, auf den für den Laserprozess relevanten effektiven Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission.

zeigen, dass bei vergleichbaren endgepumpten Lasersystemen die maximale Pumpleistung nicht durch die Bruchgrenze limitiert wird. Vielmehr können die thermischen Linsen höherer Ordnung, die bei zu starken Pumpleistungen auftreten, durch einfache optische Elemente nicht mehr kompensiert werden. Des Weiteren weist Nd:YVO₄ ein relativ geringes dn/dT auf, wodurch die Ausbildung der thermischen Linse wieder abgeschwächt wird.



Abbildung 3.2: Absorption von Nd:YVO₄ mit einer Dotierungskonzentration von 1 % Neodym. [42]

3.1.6 Ramanaktivität

Die stimulierte Raman-Streuung ist ein optisch nichtlinearer Effekt 3. Ordnung, der sich nutzen lässt, um Laserstrahlung zu größeren Wellenlängen zu konvertieren. Die Raman-Verschiebung ist dabei in der Größenordnung von etwa 100 nm. Yttriumvanadat besitzt neben der hervorragenden Eignung als Lasermaterial auch einen verhältnismäßig großen Verstärkungskoeffizienten für die stimulierte Raman-Streuung von 4,5 cmGW⁻¹. Die Raman-aktiven Phononen mit einer Eigenfrequenz von 890 cm⁻¹ können dabei der totalsymmetrischen Streckschwingung (A_{1g}) der tetrahedralen VO₄³⁻ Gruppe zugeordnet werden [43]. Aufgrund ihrer Symmetrie kann diese Schwingung unabhängig von der Polarisation des einfallenden Lichtes angeregt werden. Der Raman-Verstärkungskoeffizient in YAG beträgt vergleichsweise nur 0,1 cmGW⁻¹ bei einer geringen Verschiebung von nur 370 cm⁻¹ [44].

3.1.7 Fazit

Das Hauptkriterium für die Wahl von Nd:YVO₄ als laseraktivem Material für die Lasersysteme in dieser Arbeit liegt in dem höchsten Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission begründet. Insbesondere bei der sehr interessanten alternativen Wellenlänge von 1342 nm lässt dies die Erzeugung kurzer Impulsdauern und hoher Spitzenleistungen erwarten. Ein großer Vorteil für Anwendungen in der nichtlinearen Optik ist die spontane Polarisation der von Nd:YVO₄ emittierten Laserstrahlung aufgrund der großen Anisotropie des Kristalls. Der optimale Arbeitsbereich, gegeben durch die Fluoreszenzlebensdauer, liegt zwischen 15 und 20 kHz. Das Material ist im Markt gut etabliert, wobei ausgereifte Züchtungsverfahren die Basis für eine hervorragende Qualität der Kristalle sicherstellen.

3.2 Pumpsysteme

3.2.1 Räumliche Strahleigenschaften

Untersuchungen von Krennrich et. al [41] haben erst kürzlich gezeigt, dass eine Leistungsskalierung für Nd:YVO₄ -Laser mit TEM_{00} -Strahlprofil nicht durch die Bruchgrenzen des Materials, sondern durch die Strahlqualität der Pumplaser limitiert wird. Entscheidend ist die Ausbildung von thermischen Linsen höherer Ordnung, die mit einfachen sphärischen Linsen oder Spiegeln nicht mehr korrigiert werden können [45].

Die Strahlqualität von fasergekoppelten Diodenlasern wird üblicherweise angegeben über den Kerndurchmesser und die numerische Apertur (NA) der Faser. Die NA steht über die Formel

$$NA = \sin \theta \tag{3.1}$$

in direktem Zusammenhang mit dem Divergenzwinkel θ , des aus der Faser emittierten Lichtes. Die Herausforderung an die Hersteller liegt in der Fertigung spezieller Mikrooptiken, die das von den Einzelemittern abgestrahlte Licht in die Faser einkoppeln. Fasergekoppelte Pumpsysteme hoher Brillanz stehen daher erst seit Ende der 1990er Jahre zur Verfügung. Die (zu Beginn dieser Arbeit) besten Systeme verfügten über einen Kerndurchmesser von 400 μ m und eine NA von 0,22. Zur Verwendung kamen Pumpdioden von den Herstellern LIMO (Lissotschenko Mikrooptik) und DILAS. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten konnten keine signifikanten Qualitätsunterschiede zwischen beiden Herstellern festgestellt werden.

Aus dem Faserdurchmesser und der numerischen Apertur der Faser lässt sich über die Formel für das Strahlparameterprodukt

$$\theta w_0 = \frac{M^2 \lambda}{\pi} \tag{3.2}$$

ein Wert für das M^2 des Pumplichts abschätzen. Dieser beträgt etwa 170. Die in Abbildung 3.3 dargestellte Messung des Strahlradius im Bereich der Taille bei einem Abbildungsverhältnis des Teleskops von 2:3 kann diesen Wert in guter Näherung bestätigen.

Hieraus ergibt sich bei einer Strahltaille von 300 μ m eine Rayleighlänge des Pumplichts von 2 mm. Um über die Länge des Laserkristalls einen guten räumlichen Überlapp der Pumpstrahlung mit der Lasermode gewährleisten zu können, lässt sich hieraus bei einseitigem Pumpen eine maximale sinnvolle Kristalllänge von 4 mm bestimmen.

3.2.2 Spektrale Eigenschaften und Leistungskennlinien

Die Wellenlängen der eingesetzten Diodenlaser liegen bei etwa 808 nm. Die temperaturstabilisierte Wärmesenke der Diodenlaser wird über Peltierelemente gekühlt und die abgeführte Wärme letztendlich über einen luftdurchströmten Kühlkörper an die Umgebung abgegeben.

Für die Optimierung der Lasersysteme ist eine exakte Charakterisierung der Wellenlängenabhängigkeit der Diodenlaser vom Betriebsstrom und der Temperatur der Wärmesenke essentiell. Mit den gewonnenen Daten lässt sich die Pumpwellenlänge sehr genau an das Absorptionsspektrum von Nd:YVO₄ (siehe Abbildung 3.2) anpassen.

Der Betriebsbereich der Laserdioden reicht bis zu einem maximalen Strom von 40 A, was einer Ausgangsleistung von etwa 30 W entspricht. In Abbildung 3.4 ist die in guter Näherung lineare Abhängigkeit der Diodenleistung vom Strom dargestellt. Die Steigung beträgt etwa 0,9 W/A bei einer Schwelle von ca. 7 A. Charakteristisch ist auch die Abhängigkeit der Ausgangsleistung von der Diodentemperatur. Sie beträgt bei einem Strom von 30 A etwa 0,1 W/K. In ähnlicher Weise hängt auch die Wellenlänge der Laserdioden von Strom und Temperatur ab. Exemplarisch sind Messkurven bei vier verschiedenen Temperaturen in Diagramm 3.5 dargestellt. Die Abhängigkeit vom Strom beträgt etwa 0,15 nm/A und von der Temperatur 0,3 nm/K.

Die spektrale Breite der Pumpstrahlung von etwa 2 nm ist dabei weitgehend unabhängig vom Betriebsstrom und der Temperatur der Laserdioden. Auch die Form des Spektrums ändert sich, wie in Abbildung 3.6 bei einer Variation des Betriebsstroms dargestellt, nur wenig.

3.2.3 Polarisation

Das von den Laserdioden emittierte Pumplicht ist linear polarisiert. Diese Polarisation bleibt auch nach dem Durchgang durch die Pumpfaser von 3 m Länge weitgehend erhalten. Allerdings lässt sich die räumliche Ausrichtung der Polarisation durch die Lage der Faser sehr stark beeinflussen. Aufgrund der starken Anisotropie in Nd:YVO₄ ändert sich mit der Faserlage daher auch die effektive Absorptionslänge und darüber im Laserbetrieb die Ausgangsleistung des Lasers. Verschiedene Ansätze die Pumpstrahlung



Abbildung 3.3: Fokussierung der Pumpstrahlung bei Verwendung eines Teleskops mit Abbildungsverhältnis 2:3. Verwendet wird eine Diode der Firma *Dilas* vom Typ *MB30-805-400*



Abbildung 3.4: Leistungskurve einer Pumplaserdiode bei vier verschiedenen Temperaturen der Wärmesenke



Abbildung 3.5: Wellenlängenabhängigkeit einer Pumplaserdiode bei vier verschiedenen Temperaturen der Wärmesenke



Abbildung 3.6: Spektrum einer Pumplaserdiode bei verschiedenen Betriebsströmen

nach Durchgang durch die Faser zu depolarisieren, führten zu keinem befriedigenden Ergebnis.

Als Lösungsansatz wurden von den Herstellern spezielle Diodenlaser entwickelt, in die direkt eine depolarisierende Mikrooptik integriert ist. Die genaue Konfiguration bleibt dabei ein Firmengeheimnis der Hersteller.

3.3 Gütegeschalteter Nd:YVO₄-Laser bei 1064 nm

Die ersten gütegeschalteten Nd:YVO₄-Laser wurden zwar bereits Mitte der 1970er Jahre veröffentlicht [46]; sie waren aber noch sehr ineffizient und zeigten eher die prinzipielle Eignung des damals noch neuen Materials für Festkörperlaser. Mehr als 10 Jahre später wurde schließlich der erste Diodenlaser-gepumpte Nd:YVO₄-Laser von Fields et. al vorgestellt [47]. Aufgrund der schlechten Strahlqualität der Diodenlaser und mangels geeigneter Optiken, um die Diodenlaserstrahlung an die Lasermode anzupassen, dauerte es bis in die Mitte der 1990er Jahre bis erste TEM₀₀-Laser mit longitudinaler Pumpgeometrie in Nd:YVO₄ veröffentlicht wurden [48]. Neuere Veröffentlichungen zielen vor allem auf eine fortwährende Leistungsskalierung, wie z.B. in [49] oder letztlich in Arbeiten von L. McDonagh [50, 51], durch direktes Pumpen ins obere Laserniveau mit 888 nm.

Primäres Ziel dieser Arbeit war es nicht neue Leistungsrekorde bei 1064 nm aufzustellen, sondern mit den zur Verfügung stehenden Pumpquellen ein zuverlässiges Nanosekunden-Lasersystem zu entwickeln, welches als Grundlage für anschließende Frequenzkonversionsprozesse dient. Die Zielsetzung für das Lasersystem sind eine beugungsbegrenzte Strahlqualität sowie kurze Impulsdauern, um hohe Spitzenleistungen zu erzielen, die für gute Konversionseffizienzen benötigt werden.

3.3.1 Resonatordesign

Die Propagation der Laserstrahlung innerhalb eines Resonators lässt sich mithilfe des ABCD-Formalismus berechnen. Dadurch kann der Stabilitätsbereich des Resonators in Abhängigkeit einzelner Parameter untersucht werden. Die so gewonnenen Daten geben Aufschluss über Möglichkeiten zur Optimierung des Resonators. Interessant ist insbesondere die Auswirkung der thermischen Linse auf den Modendurchmesser im Laserkristall. Abbildung 3.7 zeigt entsprechende Berechnungen für einen endgepumpten Resonator, bestehend aus zwei Planspiegeln. Bei zunehmender Resonatorlänge vergrößert sich der Modenradius für eine feste Linsenbrennweite. Gleichzeitig kommt es schon bei schwächeren thermischen Linsen (größere Brennweite) zum sogenannten thermischen Überrollen. Hierbei divergiert der Radius der Resonatormode am Ort des Laserkristalls, woraus zunächst eine rapide Verschlechterung des Überlapps mit der Pumpmode resultiert, bis schließlich keine Eigenmode für den Resonator mehr gefunden werden kann.



Abbildung 3.7: Berechnete Strahlradien am Ort des Nd:YVO₄-Kristalls in Abhängigkeit von der Brennweite der thermischen Linse für verschiedene Resonatorlängen. Der Resonator besteht aus zwei Planspiegeln; der Kristall befindet sich in einem Abstand von 5 mm zu einem dieser Spiegel (Pumpspiegel).

Eine Krümmung des Pumpspiegels ändert das Verhalten dabei wie in Abbildung 3.8 dargestellt. Eine konkave Spiegelkrümmung (in der Abbildung R = -300 mm) bewirkt einen nahezu konstanten Kurvenverlauf zu großen Brennweiten hin. Dies vergrößert den Stabilitätsbereich des Lasers, da sich Änderungen der thermischen Linse nicht in einer Änderung des Modenüberlapps auswirken. Änderungen der thermischen Linse können beispielsweise durch Leistungsschwankungen des Pumplichts, äußere Temperatureinflüsse oder durch eine bewusste Regelung der Ausgangsleistung über die Pumpleistung erfolgen. Umgekehrt kommt es in einem solchen Resonator aber viel früher zum thermischen Überrollen, so dass die erreichbaren Ausgangsleistungen beschränkt werden. Die Verwendung eines konvexen Spiegels hat, wie in der Abbildung zu erkennen, den gegenteiligen Effekt. Der Resonator bleibt zwar bei stärkeren thermischen Linsen stabil, ist dafür aber auf einen geringeren Arbeitsbereich eingeschränkt. Der immer schlechter werdende Modenüberlapp für größer werdende Brennweiten der thermischen Linse sollte daher auch ein deutliches Anwachsen der Schwellenleistung mit sich bringen.

Bei gegebener Pumpgeometrie, also einem Strahlradius des Pumplichts von etwa 330 μ m, folgt aus Abbildung 3.7 ein optimaler Modenüberlapp bei einer Resonatorlänge von 150 mm. Voruntersuchungen haben jedoch gezeigt, dass die Brennweite der thermischen Linse für typische Pumpleistungen zwischen 180 und 200 mm beträgt [41]. Bei



Abbildung 3.8: Berechnete Strahlradien am Ort des Nd:YVO₄-Kristalls in Abhängigkeit der Brennweite der thermischen Linse. Die einzelnen Kurven beziehen sich auf verschiedene Krümmungsradien des Pumpspiegels. Das positive Vorzeichen bezeichnet eine konvexe Krümmung der Spiegelfläche, das negative eine konkave. Die Resonatorlänge beträgt 150 mm, der Abstand vom Laserkristall zum Pumpspiegel 5 mm, der Auskoppelspiegel ist plan.

einer Konfiguration mit einem plan-plan-Resonator befindet man sich hier bereits am Rande des Stabilitätsbereichs. Die Verwendung eines konvex gekrümmten Pumpspiegels kann diese thermische Linse teilweise kompensieren. Es gilt hier einen Kompromiss zwischen Kompensation der thermischen Linse und Stabilität des Resonators bei schwächeren Pumpleistungen zu finden.

Abbildung 3.9 zeigt gemessene Leistungskurven für den Laser im cw-Betrieb für zwei verschiedene Krümmungsradien des Pumpspiegels, die das berechnete Verhalten bestätigen. Der leichte Knick in der Leistungskurve mit Planspiegel (bei etwa 6 W mittlerer Ausgangsleistung) lässt auf das Anschwingen höherer transversaler Moden schließen. Daher lassen sich, mit der Randbedingung den Laser in der transversalen Grundmode betreiben zu wollen, höhere Ausgangsleistungen mit dieser Konfiguration nicht mehr erreichen.



Abbildung 3.9: Gemessene Leistungskurven für zwei Krümmungsradien des Endspiegels im cw-Betrieb. Aufgetragen ist die Ausgangsleistung des Lasers in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung.

3.3.2 Versuchsaufbau

Abbildung 3.10 zeigt das gewählte Resonatordesign. Der Aufbau besteht aus einem endgepumpten, linearen Zwei-Spiegel-Resonator. Dieser besteht aus einem dichroitischen Pumpspiegel (HR 1064, HT 808) und einem partiell reflektierenden Auskoppelspiegel mit einer Transmission von 50% bei 1064 nm. Die Verwendung eines konvex gekrümmten Pumpspiegels ermöglicht es die thermische Linse im Laserkristall in gewissen Grenzen zu kompensieren. Der verwendete Nd:YVO₄-Kristall von der Firma *Castech* hat die Dimensionen 4x4x4 mm³ und Antireflexbeschichtungen sowohl für die Pumpwellenlänge bei 808 nm als auch für die Laserwellenlänge bei 1064 nm. Die Kristalllänge wurde gleich der Rayleigh-Länge des fokussierten Pumplichtes gewählt, um einen optimalen Überlapp zwischen Pump- und Lasermode zu gewährleisten. Der Kristall ist in einen Kupferhalter eingebaut, der über einen Wasser-Umlaufkühler auf 20 °C temperaturstabilisiert wird. Der Wärmekontakt zwischen Nd:YVO₄ und Kupfer wird durch eine 0,1 mm dicke Indiumfolie verbessert. Die Neodym-Dotierung des Kristalls beträgt 0,5 %, was bei der gewählten Kristalllänge einen guten Kompromiss zwischen hinreichender Absorption und gleichmäßiger Verteilung des Pumplichtes darstellt.



Abbildung 3.10: Versuchsaufbau ns-Laser bei 1064 nm

3.3.3 Optimierung des Resonators

Die Feinabstimmung der Absorption wird durch Variation der Wellenlänge des Pumplichtes über die Temperatur der Pumpdioden vorgenommen. Abbildung 3.11 zeigt vier Leistungskurven für den Laser im cw-Betrieb bei verschiedenen Temperaturen der Pumpdiode. Der Übergang der Diodentemperatur von 29,9 °C zu 18,5 °C entspricht einer Änderung der Pumpwellenlänge um etwa 3 nm und korreliert mit einer Verringerung der Absorption im Laserkristall. Daraus folgt einerseits eine deutliche Erhöhung der Schwellenleistung aber auch eine Erhöhung der maximal erreichbaren Ausgangsleistung. Verantwortlich hierfür ist die gleichmäßigere Verteilung der thermischen Last über die Kristalllänge, was zu einer geringeren thermischen Linse führt.



Abbildung 3.11: Leistungskurven bei Variation der Diodentemperatur

3.3.4 Güteschaltung

Die Güteschaltung erfolgt durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) der Firma Gooch & Housego vom Typ QS041-4G-KS1. Die Strahlablenkung erfolgt in einem ca. 30 mm langen Block aus Quarzglas, dessen Ein- und Austrittsfacette für 1064 nm entspiegelt sind. Das Gerät ist für eine RF-Leistung von 5 W ausgelegt, kann aber bei entsprechender Kühlung auch bei deutlich höheren Leistungen betrieben werden. Abbildung 3.12 zeigt die extern gemessene Abhängigkeit der Beugungseffizienz von der RF-Leistung für verschiedene Radien der Laserstrahlung. Die maximale Beugungseffizienz von etwa 80 % wurde bei einem Strahlradius von 250 μ m und einer RF-Leistung von 20 W erreicht. Eine sichere Unterdrückung des Laserprozesses für die Güteschaltung konnte ab einer RF-Leistung von 7 W bei einer entsprechenden Beugungseffizienz von 60 % erreicht werden. Die Abhängigkeit vom Strahlradius ist dabei relativ gering, so dass die genaue Position des AOM innerhalb des Resonators als unkritisch betrachtet werden kann. Die Modulation des RF-Signals bei 40 MHz erfolgt über einen in das Lasernetzteil integrierten, digital ansteuerbaren Funktionsgenerator, der die Wahl beliebiger Pulsrepetitionsraten im Bereich von 1 Hz bis 300 kHz ermöglicht.



Abbildung 3.12: Beugungseffizienz des AOM in Abhängigkeit von der eingestellten RF-Leistung. Dargestellt sind drei Messkurven mit unterschiedlichen Radien der Laserstrahlung im AOM.

3.3.5 Experimentelle Charakterisierung des Lasers

Die mit einem Leistungsmessgerät der Firma *MellesGriot* (Typ 13-PEM-001) gemessenen Leistungskurven des Lasers sind in Abbildung 3.13 in Abhängigkeit von der



Abbildung 3.13: Mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer bei 1064 nm in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung bei Pulsrepetitionsraten von 10 und 15 kHz



Abbildung 3.14: Puls-zu-Puls-Stabilität des ns-Laser bei 1064 nm in Abhängigkeit von Pumpleistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz



Abbildung 3.15: Mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer bei 1064 nm in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate bei Pumpleistungen von 15,1 und 18,5 W



Abbildung 3.16: Puls-zu-Puls-Stabilität des ns-Laser bei 1064 nm in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate

eingestrahlten Pumpleistung dargestellt. Aufgetragen sind jeweils Kurven bei Pulsrepetitionsraten von 10 und 15 kHz. Man erkennt einen zunächst annähernd linearen Zusammenhang zwischen eingestrahlter und emittierter Leistung, der für höhere Pumpleistungen langsam in Sättigung geht. Hier beginnt das thermische Überrollen des Lasers, da sich die Modenanpassung von Laser- und Pumpmode bei wachsender thermischer Linse zunehmend verschlechtert.

Abbildung 3.15 zeigt die analogen Kurven in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate bei zwei unterschiedlichen Pumpleistungen. Der (für die meisten Anwendungen) optimale Arbeitsbereich des Lasers liegt zwischen 10 und 15 kHz, da man hier einen guten Kompromiss zwischen mittlerer Ausgangsleistung und Impulsenergie erreicht.

Bei einer Pumpleistung von 18,4 W erreicht der Laser eine mittlere Ausgangsleistung von 4,6 W bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz. Die Impulsdauer wurde bestimmt mit einer schnellen Photodiode (Alphalas, UPD-70-IR2-P) und einem Oszilloskop (Lecroy, 300 MHz) und beträgt hierbei 7,6 ns. Dies entspricht einer Impulsspitzenleistung von etwa 40 kW bei einer Impulsenergie von 306 μ J. Beim Ubergang zu höheren Pulsrepetitionsraten nähert sich die mittlere Ausgangsleistung asymptotisch der Leistung des cw-Betriebs von etwa 7,5 W. Die Impulsdauer nimmt dabei annähernd linear zu. Bei 50 kHz erreicht man eine mittlere Leistung von 6,7 W bei einer Impulsdauer von 14 ns. Dies entspricht einer Impulsspitzenleistung von etwa 9,5 kW bei einer Impulsenergie von 134 μ J. Bei Pulsrepetitionsraten unterhalb von 10 kHz nimmt die erreichbare mittlere Ausgangsleistung rapide ab, da hier die Lebensdauer des oberen Laserniveaus von $100 \ \mu s$ die Speicherung der Pumpenergie von Impuls zu Impuls begrenzt. Der zeitliche Verlauf der Laserimpulse ist für drei verschiedene Pulsrepetitionsraten in Abbildung 3.17 dargestellt. Die deutlich erkennbare Modulation der Impulse ist dabei auf das Modebeating, also die Interferenz der einzelnen spektralen Moden zurückzuführen. In der abklingenden Impulsflanke ist eine leichte Schulter zu erkennen. Zudem scheint die Intensität noch lange Zeit nicht vollständig auf Null abzufallen. Bei beidem handelt es sich allerdings um elektronische Messartefakte der schnellen Photodiode, wie in vergleichenden Messungen mit einem ultraschnellen ICCD-Kamerasystem gezeigt wurde [52].

Die Messung der Puls-zu-Puls-Stabilität wird mithilfe der Statistikfunktion des Oszilloskops durchgeführt. Dieses ermöglicht es die Standardabweichung (σ_{area}) der zeitlich integrierten Impulsform auszugeben. Die in Abbildung 3.14 und 3.16 dargestellten Messungen zeigen, dass der Laser bei 15 kHz ab einer Pumpleistung von etwa 14 W, was einer mittleren Ausgangsleistung von 2 W entspricht, in einem stabilen Betriebszustand mit $\sigma_{area} < 1\%$ arbeitet. Sowohl bei geringen Pumpleistungen als auch bei hohen Pulsrepetitionsraten nimmt die Puls-zu-Puls-Stabilität des Lasers ab und σ_{area} zu. Dieses Verhalten ist verständlich, da bei geringen Schwellenüberhöhungen (direkt nach Öffnung des Güteschalters) nur wenige longitudinale Moden die Laserschwelle erreichen und die vorhandene Inversion abbauen. Von entscheidender Bedeutung werden dabei die Startbedingungen der einzelnen Moden, die man allerdings als statistisch verteilt ansehen kann. Bei größeren Schwellenüberhöhungen sind dagegen mehr Moden an der Ausbildung eines Laserimpulses beteiligt, so dass ein Mittelungseffekt auftritt,



Abbildung 3.17: Zeitlicher Impulsverlauf bei 1064 nm für Pulsrepetitionsraten von 5, 15 und 30 kHz.



Abbildung 3.18: Strahlprofil des Lasers bei 1064 nm. Das Loch am unteren Rand des Strahlprofils rührt von einem Bläschen innerhalb des zur Abschwächung verwendeten Glasfilters her.



der die Fluktuationen der Impulsenergie dämpft [53].

Abbildung 3.19: Bestimmung der Beugungsmaßzahl für ns-Laser bei 1064 nm in horizontaler (*links*) und vertikaler Richtung (*rechts*).

Die Messungen der Strahlqualität mithilfe des Hyperbel-Anpassungsverfahrens (Abbildung 3.19) zeigt, dass es sich hierbei um einen praktisch beugungsbegrenzten Strahl handelt mit M²-Werten von 1,06 in horizontaler Richtung (x) und 1,09 in vertikaler Richtung (y). Das in Abbildung 3.18 dargestellte Strahlprofil zeigt, wie aus den M²-Messungen zu erwarten, die für TEM₀₀-Laser typische gaußförmige Intensitätsverteilung. Die leichten Strukturen innerhalb des Strahlprofils sind auf Inhomogenitäten in den zur Abschwächung verwendeten Filtern zurückzuführen.

3.3.6 Leistungsskalierung mit Single-Pass Verstärker

Eine Steigerung der Ausgangsleistung des Lasersystems kann mit verschiedenen Ansätzen erreicht werden. Die Möglichkeiten reichen von einem geänderten Resonatorkonzept (z.B mit zwei Pumpdioden) bis zu Verstärkerkonzepten in Single-, Doubleoder Multipassanordnung. Voruntersuchungen haben jedoch gezeigt, dass in einem mit doppelter Pumpleistung angeregten Nd:YVO₄-Laser die Verstärkung dermaßen zunimmt, dass mit den zur Verfügung stehenden AOMs eine Unterdrückung der stimulierten Emission nicht mehr möglich ist. Verstärkerkonzepte bieten zudem eine größere Variabilität durch die Möglichkeit der Modularisierung des Gesamtsystems. Multipass-Anordnungen können zwar die Energieextraktion aus einem Verstärker steigern, Schwierigkeiten ergeben sich allerdings bei der Erhaltung eines TEM₀₀-Strahlprofils. Die Strahlen für jeden Durchgang durch das verstärkende Medium haben bei diesen Konzepten aus rein geometrischen Gründen einen Winkel zueinander, weshalb eine perfekte Anpassung der Pumpmode an die Lasermode nicht mehr realisierbar ist.

Gewählt wurde daher eine Singlepass-Anordnung mit zwei Pumpdioden. Der Versuchsaufbau aus Abschnitt 3.3 wird hierzu, wie in Abbildung 3.20 dargestellt, um einen zweiseitig gepumpten Nd:YVO₄-Kristall erweitert. Dieser ist für Pump- und Laserstrahlung antireflexbeschichtet und hat die Dimensionen $4 \times 4 \times 8$ mm³. Die Neodym-



Abbildung 3.20: Versuchsaufbau Oszillator-Verstärkersystem bei 1064 nm

Dotierung ist aufgrund der größeren Kristalllänge mit 0,3 %geringer gewählt als beim Oszillator.

Die mittlere Ausgangsleistung kann dadurch bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz von 4,5 W auf 13 W erhöht werden (siehe Abbildung 3.21), während sich die Impulsdauer bei der Verstärkung um etwa eine Nanosekunde verkürzt. Die hierfür zusätzlich erforderliche Pumpleistung beträgt 37 W. Die Leistungskurven sind in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate in Abbildung 3.22 dargestellt. Die Sättigung der Impulsenergie bei Pulsrepetitionsraten kleiner 7 kHz spiegelt die begrenzte Lebensdauer des oberen Laserniveaus von etwa 100 μ s in Nd:YVO₄ wieder.

Das gewählte Verstärkerkonzept besitzt den Vorteil, dass die Strahlqualität sowie die Puls-zu-Puls-Stabilität des Lasers auch nach der Verstärkerstufe vollständig erhalten bleiben.



Abbildung 3.21: Ausgangsleistung des Oszillator-Verstärkersystems bei 1064 nm in Abhängigkeit von der Verstärker-Pumpleistung



Abbildung 3.22: Mittlere Ausgangsleistung, Impulsenergie und Impulsdauer des Oszillator-Verstärkersystems bei 1064 nm in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate

3.4 Gütegeschalteter $Nd:YVO_4$ -Laser bei 1342 nm

Die Nutzung des alternativen Laserübergangs in Nd: YVO_4 mit einer Emissionswellenlänge von 1342 nm eröffnet den Methoden der nichtlinearen Optik ein weites Feld neuer Möglichkeiten zur Erzeugung von Laserstrahlung in Frequenzbereichen, die mit dem Standard von 1064 nm nur schwer zugänglich sind. Hochinteressant sind beispielsweise die Harmonischen von 1342 nm, die für SHG bei 671 nm im roten und für THG bei 447 nm im blauen Spektralbereich liegen.

Veröffentlicht wurden bei der Neodym-Emissionswellenlänge von 1,3 μ m bereits zahlreiche Lasersysteme, zumeist jedoch mit kontinuierlicher Laseremission (wie zum Beispiel [54–59]). Modengekoppelte Lasersysteme bei 1,3 μ m mit Impulsdauern im Pikosekundenbereich wurden kürzlich sehr erfolgreich von D. Krennrich [41] realisiert. Weiterhin findet man einige Arbeiten im Bereich der passiven Güteschaltung [60, 61], wobei hier der Schwerpunkt auf der Verwendbarkeit von V³⁺:YAG als sättigbarem Absorber liegt. Aktiv gütegeschaltete Systeme finden sich nur im direkten Zusammenhang mit der Erzeugung der Harmonischen, wobei durch die Verwendung von Intracavity-Prozessen teilweise auf eine Charakterisierung der Fundamentalen verzichtet wird [62, 63]. Das von J. L. He et al. [64] beschriebene Lasersystem liefert beispielsweise 2,8 W bei einer Pulsrepetitionsrate von 20 kHz mit Impulsdauern von 40 ns; die Ergebnisse in [65, 66] liegen noch deutlich darunter.

Die Schwierigkeiten der experimentellen Umsetzung liegen darin begründet, dass der Laserübergang bei 1342 nm in Nd:YVO₄ zwei entscheidende Nachteile gegenüber der Hauptlinie bei 1064 nm aufweist. Erstens ist der Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission mit $4, 5 \times 10^{-19}$ cm² im Vergleich zu $15, 6 \times 10^{-19}$ cm² deutlich kleiner und zweitens hat man einen fast doppelt so großen Quantendefekt, der eine entsprechend größere thermische Last im Laserkristall mit sich bringt. Letzteres hat zur Folge, dass auch die thermische Linse im Laserkristall vergleichsweise stärker wird.

Die Zielsetzung war auch hier, den Laser speziell für die Verwendung mit nachfolgenden optisch nichtlinearen Konversionsprozessen zu optimieren. Die Anforderungen sind daher kurze Impulsdauern im Bereich von 10 ns, eine möglichst beugungsbegrenzte Strahlqualität und mittlere Ausgangsleistungen im Bereich von 4 bis 5 W (wodurch sich bei typischen Konversioneffizienzen für THG-Prozesse mindestens 1 W im blauen Spektralbereich erzeugen lässt).

3.4.1 Linearer Resonator mit einer Pumpdiode

In einem ersten Schritt wurde in dieser Arbeit ein linearer Zwei-Spiegel-Resonator, ähnlich zu dem für 1064 nm in Abschnitt 3.3, aufgebaut. Zur Erzeugung höherer Leistungsdichten im Laserkristall wird eine etwas stärkere Pumpfokussierung gewählt und die Resonatorlänge auf 61 mm verkürzt. Dadurch erhöht sich zwar einerseits die thermische Belastung im Kristall, wodurch die erreichbare mittlere Ausgangsleistung sinkt, andererseits bewirken die gesteigerte Photonendichte und die kürzere Resonatorumlaufzeit eine Reduzierung der Impulsdauer und damit eine Steigerung der Spitzenleistung im gütegeschalteten Betrieb. Ausgehend von einer Dotierungskonzentration im Nd:YVO₄ Kristall von 0.5% liegt die erreichbare cw-Ausgangsleistung des Lasers bei 2,9 W (bei einer Pumpleistung von 22 W). Hierbei wurde auch schon, wie zuvor bei 1064 nm, die Pumpwellenlänge durch Variation der Diodentemperatur auf eine maximale Ausgangsleistung des Lasers hin optimiert (siehe Abbildung 3.23).



Abbildung 3.23: cw-Leistungskurven eines 1342 nm Lasers bei Variation der Pumpdiodentemperatur; (*links*) bei einer Kristalldotierungen von 0,5% und (*rechts*) bei 0,3%.

Eine weitere Steigerung der maximalen Ausgangsleistung auf 3,6 W kann durch die Verwendung eines Nd:YVO₄-Kristalls mit nur 0,3% Nd bei gleichzeitiger Erhöhung der Pumpleistung auf 26 W erreicht werden. Die Leistungssteigerung erklärt sich aus der gleichmäßigeren Verteilung der Pumpstrahlung über die Länge des Laserkristalls und der dadurch verringerten thermischen Linse.

Es wird allerdings hier schon klar, dass mit diesem Laserkonzept die angestrebten Leistungswerte nicht erreicht werden können. Im gütegeschalteten Betrieb bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz reduziert sich die maximale Ausgangsleistung auf 2,1 W. Aufgrund der kürzeren Impulsdauer von 9,2 ns liefert das System mit 22 kW aber deutlich höhere Spitzenleistungen als der in [64] veröffentlichte Laser (mit 3,5 kW).

3.4.2 Doppel-L-Resonator mit zwei Pumpdioden

Für die Leistungsskalierung bei 1342 nm sind aufgrund des geringeren Wirkungsquerschnittes der stimulierten Emission die in Abschnitt 3.3.6 für 1064 nm angestellten Überlegungen nicht übertragbar. Vorversuche haben gezeigt, dass die Energieextraktion aus einer vergleichbaren Singlepass-Verstärkeranordnung für 1342 nm nur etwa ein Viertel so groß ist wie bei 1064 nm. Andererseits hat die geringere Verstärkung auch zur Folge, dass die Probleme bei der Güteschaltung in einem mit zwei Dioden gepumpten Oszillator bei 1342 nm nicht zu erwarten sind. Für eine Leistungsskalierung wurde daher ein neuer Resonator in Doppel-L-Form mit zwei Pumpdioden konzipiert. Der Aufbau ist in Abbildung 3.24 dargestellt. Die Pumpstrahlung wird durch dichroitische Pumpspiegel (S2, S3) mit einer HR-Beschichtung für 1342 nm und hoher Transmission bei 808 nm in einen Nd:YVO₄-Kristall mit den Dimensionen $4 \times 4 \times 8$ mm³ und einer Dotierung von 0,3 % fokussiert. Der Kristall ist in einen wassergekühlten Kupferhalter geklemmt, wobei der Wärmekontakt zwischen Nd:YVO₄ und Kupfer durch eine Indium-Folie verbessert wird.



Abbildung 3.24: Versuchsaufbau des beidseitig gepumpten Lasers bei 1342 nm

Die rechtwinklige Doppel-L-Geometrie des Resonators gestattet eine Reduzierung der Resonatorlänge gegenüber der ansonsten gebräuchlicheren Z-Geometrie. Der leichte Astigmatismus, den das konvergente Pumplicht beim Durchgang durch die 45°-Spiegel erfährt, wirkt sich hierbei nicht nachteilig auf die Leistung oder das Strahlprofil des Lasers aus. Der Auskoppelspiegel (S4) ist ein Planspiegel mit einer Transmission von etwa 40 % bei 1342 nm, der Endspiegel (S1) besitzt einen konkaven Krümmungsradius von 300 mm. Die geometrische Gesamtlänge des Resonators beträgt 116 mm. Für thermische Linsen mit Brennweiten von 100 bis 700 mm ergibt sich ein nahezu konstanter Modenradius am Ort des Nd:YVO₄-Kristalls von etwa 220 μ m. Die mit dem ABCD-Formalismus berechnete Abhängigkeit ist in Abbildung 3.25 aufgetragen. Dies gestattet eine recht einfache Regelung der Ausgangsleistung des Lasers über die Pumpleistung, ohne den Überlapp zwischen Laser- und Pumpmode zu beeinflussen.

Für die Güteschaltung wurde, wie für 1064 nm in Abschnitt 3.3.4, ein akusto-optischer Modulator der Firma *Gooch & Housego* eingesetzt. Die Ein- und Austrittsfacette sind entsprechend für 1342 nm entspiegelt. Mit einer RF-Leistung von 6 W kann eine stabile Güteschaltung ohne das Auftreten von Nachpulsen oder eines cw-Untergrundes realisiert werden.



Abbildung 3.25: Berechnete Strahlradien für beidseitig gepumpten Laser bei 1342 nm in Abhängigkeit von der thermischen Linse.

3.4.3 Experimentelle Charakterisierung

Bei deaktiviertem AOM erreicht der Laser bis zum thermischen Überrollen eine maximale cw-Leistung von 7,2 W bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 28,2 W. Eine gemessene Leistungskurve ist in Abbildung 3.26 dargestellt. Um die Vorteile des beidseitigen Pumpens aufzuzeigen, wird der Laser zunächst abwechselnd mit nur einer der beiden Pumpdioden betrieben. Hierbei liegt die maximal erreichte Ausgangsleistung nur bei etwa 5,1 W bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 21 W. Dabei ist es unerheblich, welche der beiden Pumpdioden eingesetzt wird. Die Vorteile des beidseitigen Pumpens erwachsen aus der gleichmäßigeren Verteilung der thermischen Last über die Länge des Nd:YVO₄-Kristalls und der damit verbundenen Verringerung der thermischen Linse.

Bei aktivierter Güteschaltung wurden die vollständigen Leistungskurven in Abhängigkeit von eingestrahlter Pumpleistung und Pulsrepetitionsrate gemessen. Die entsprechenden Ergebnisse sind in den Abbildungen 3.27 und 3.28 dargestellt. Bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz beträgt die maximal erreichte mittlere Ausgangsleistung 4,9 W bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 28 W. Die Impulsdauer, gemessen mit einer schnellen Photodiode, beträgt etwa 11 ns. Dies entspricht einer Impulsspitzenleistung von 30 kW bei einer Impulsenergie von 325 μ J. Der zeitliche Verlauf der annähernd gaußförmigen Impulse ist deutlich moduliert aufgrund des für Multimode-Laser typischen Modebeatings (Abbildung 3.29). Die Messung des Modebeatings geht dabei an die Grenzen des zeitlichen Auflösungsvermögens von Photodiode und Oszilloskop.

Der Laser weist auch eine hervorragende Puls-zu-Puls-Stabilität auf. Die Standardab-


Abbildung 3.26: cw-Leistungskurve des 1342 nm Lasers mit Doppel-L-Resonator im Vergleich mit jeweils nur einer der beiden Pumpdioden und mit beiden Pumpdioden



Abbildung 3.27: Beidseitig gepumpter Laser bei 1342 nm. Aufgetragen sind mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer in Abhängigkeit der Pumpleistung bei PRR=15 kHz



Abbildung 3.28: Beidseitig gepumpter Laser bei 1342 nm. Aufgetragen sind mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer in Abhängigkeit der Pulsrepetitionsrate bei einer Pumpleistung von 24 W



Abbildung 3.29: Impulsform des 1342 nm Lasers mit Doppel-L Resonator bei einer Pulsrepetitionsratevon 15 kHz

weichung der Impulsenergie, gemessen mit einer schnellen Photodiode beträgt bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz nur 0,3 %. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 3.30 die normierte Impulsenergie von 100 aufeinanderfolgenden Laserimpulsen aufgetragen.

Die Strahlqualität des Lasers ist beugungsbegrenzt mit einem gemessenen M^2 von 1,0 für beide Richtungen des Strahlprofils.



Abbildung 3.30: Schwankungen der normierten Impulsenergie von 100 aufeinanderfolgenden Laserimpulsen bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz.

3.4.4 Fazit

Insgesamt kann man feststellen, dass mit diesem Lasersystem die angestrebten Leistungswerte gut erfüllt wurden. Im Vergleich mit der Literatur liefert es die mit Abstand kürzesten Impulsdauern und höchsten Spitzenleistungen für hochrepetierende Nanosekundenlaser und verfügt zudem über eine absolut beugungsbegrenzte Strahlqualität. Das System wird in weiteren Teilen dieser Arbeit eingesetzt zur Frequenzverdopplung und -verdreifachung (Kapitel 5), als Pumpquelle für einen OPG (Kapitel 8) und zur Summenfrequenzmischung mit einem zeitlich synchronisierten Nd:YVO₄ Laser bei 1064 nm.

Kapitel 4

Anwendungsnahe Erzeugung von DUV-Laserstrahlung bei 213 nm

Für Strahlquellen im tiefen ultravioletten (*deep ultraviolet*, DUV) Spektralbereich existieren eine Vielzahl hochinteressanter Anwendungen. Diese beinhalten zum Beispiel die Fluoreszenzspektroskopie oder die Photolithografie. Auch für medizinische Anwendungen in den Bereichen Ophtalmologie und Mikrochirurgie sind DUV-Strahlquellen von Interesse, da man aufgrund der starken Absorption sehr geringe Eindringtiefen der Laserstrahlung und damit eine minimale Schädigung des umliegenden Gewebes erhält. Im Bereich der Mikromaterialbearbeitung eröffnen DUV-Laser ganz neue Möglichkeiten bei der Bearbeitung von Materialien mit einem großen Transparenzbereich, wie Gläser, Saphir oder Diamant. Zudem lassen sich mit kürzeren Wellenlängen entsprechend kleinere Strukturen realisieren. Dies ist aber nur möglich, wenn neben der kurzen Wellenlänge auch eine entsprechend gute Strahlqualität zur Verfügung gestellt werden kann.

4.1 Zielsetzung

Ein weiteres noch in der Entwicklung befindliches Anwendungsgebiet für DUV-Strahlung ist der berührungslose Test von elektrischen Kontakten in der Halbleiterindustrie. Durch die immer weiter voranschreitende Miniaturisierung integrierter Schaltkreise (ICs) sind entsprechend neue Konzepte gefragt, die bis weit über Tausend zählenden Kontakte der Chipträger vor dem Aufbringen des ICs zu überprüfen.

Eine Lösung besteht darin, die einzelnen Kontakte mit einem Laserimpuls von hinreichend kurzer Wellenlänge zu beleuchten und die durch den photoelektrischen Effekt entstehende Elektronenwolke zu detektieren. Hierüber lässt sich ein Signal generieren, mit dem die Güte des elektrischen Kontakts bewertet werden kann. Tabelle 4.1 gibt eine Übersicht über die Austrittsarbeit W_A , sowie die korrespondierende Grenzwellenlänge λ_G der Photoelektronen in verschiedenen Metallen. Aufgrund der hervorragenden Korrossionsbeständigkeit werden für die elektrischen Kontakte bevorzugt Gold oder Platin verwendet, so dass für ein entsprechendes Lasersystem eine Wellenlänge kleiner 218 nm gefordert werden muss.

Material	Al	Ag	Cu	Ni	Au	Pt
$W_A [eV]$	4,2	4,3	4,5	5,0	5,2	5,7
$\lambda_G \text{ [nm]}$	295	288	276	248	238	218

Tabelle 4.1: Austrittsarbeit und Grenzwellenlänge ausgewählter Metalle

Die Anforderungen an die Laserstrahlquelle können demnach wie folgt definiert werden:

- Pulsrepetitionsrate größer 10 kHz für entsprechend schnelle Bearbeitungsgeschwindigkeit.
- Impulsansteuerung triggerbar, um Synchronisation mit Scan-Einheit zu ermöglichen.
- Gute Strahlqualität (M²< 2), um bei großem Arbeitsabstand die Einzelkontakte auflösen zu können.
- Impulsenergie größer 10 μ J/Impuls für ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis.
- Wellenlänge kleiner 218 nm, um Austrittsarbeit der Elektronen in Platin zu überwinden.
- Eine Betriebsdauer des Lasersystems von mehr als 1000 h sollte unter industriellen Bedingungen ohne Wechsel irgendwelcher Komponenten erreichbar sein.

4.2 DUV-Laserkonzepte in der Literatur

Die angeforderte Wellenlänge schränkt das Feld der möglichen Strahlquellen erheblich ein. Excimerlaser, basierend auf ArF*, unterschreiten zwar mit 193 nm die geforderte Wellenlänge, sie weisen jedoch meist nur eine beschränkte Strahlqualität auf, die nicht ausreicht, um die einzelnen Kontakte räumlich auflösen zu können. Zudem sind Excimerlaser relativ komplexe Systeme, weil die Anregung durch intensive Elektronenstrahlen oder eine elektrische Hochspannungsentladung erfolgt. Ein weiterer Nachteil ist das korrosive Lasergas, das zu geringen Lebensdauern der Komponenten führt. Die Gesamteffizienz von Excimerlasern beträgt nur etwa 1 % [67].

Eine interessante Möglichkeit den geforderten Wellenlängenbereich zu erreichen, ist die Erzeugung der fünften Harmonischen von Neodym-basierten Festkörperlasern. Ausgehend von 1064 nm in Nd:YAG oder Nd:YVO₄ erreicht man auf diesem Wege Laserstrahlung bei 213 nm. Kontinuierlich emittierende Laser scheiden aus obigem Anforderungsprofil von vorneherein aus. Eine effiziente Frequenzkonversion in die fünfte Harmonische ist zudem nur durch den Einsatz von aufwändigen Überhöhungsresonatoren

möglich [68]. Blitzlampengepumpte Festkörperlaser mit Güteschaltung können zwar die angestrebten Impulsenergien bei weitem übertreffen [69], die Pulsrepetitionsrate ist dafür um mehr als zwei Größenordnungen zu gering. Auch modengekoppelte ps-Laser eignen sich gut zur Erzeugung von 213 nm [70]. Sie sind allerdings nur über externe Puls-Picker triggerbar und erreichen die angeforderten Impulsenergien typischerweise nur durch regenerative Verstärker. Die dann entstehenden Spitzenleistungen sind allerdings so hoch, dass diese Laser fast ausschließlich zur Laserablation in der Materialbearbeitung eingesetzt werden. Im Bereich hochrepetierender Nanosekundenlaser ist das Konzept von L. B. Chang zu erwähnen. Durch den Einsatz eines externen Überhöhungsresonators für die zweite Harmonische eines Nd:YAG-Lasers konnten in der fünften Harmonischen 540 mW bei einer Pulsrepetitionsrate von 3,5 kHz demonstriert werden [71]. Ein großer Nachteil des Konzepts ist allerdings die notwendige Längenstabilisierung des zusätzlichen Resonators, die das System sehr aufwändig und empfindlich macht. Was in allen genannten Arbeiten nur im Ansatz betrachtet wurde, ist die Langzeitstabilität des Lasers bei 213 nm. Diese wurde, wenn überhaupt, nur über sehr wenige Stunden hinweg dokumentiert, was für industrielle Anwendungen keine verlässliche Aussage liefert.

4.3 Optisch nichtlineare Prozesse zur Erzeugung von 213 nm

Zur Erzeugung der fünften Harmonischen bestehen grundsätzlich zwei Realisierungsmöglichkeiten der kaskadierten Summenfrequenzmischung. Entweder man mischt die Fundamentalen bei 1064 nm mit der vierten Harmonischen bei 266 nm (Prozess $\omega + 4\omega$) oder man mischt 532 nm der zweiten mit 355 nm der dritten Harmonischen (Prozess $2\omega + 3\omega$). Die Anforderungen an das optisch nichtlineare Medium sind einerseits eine hinreichend große Transparenz und andererseits die Möglichkeit zur Phasenanpassung aufgrund von Doppelbrechung und Dispersion. Für den Prozess $\omega + 4\omega$ kommen die Materialien CLBO (CsLiB₆O₁₀) und BBO (β -BaB₂O₄) in Frage, für $2\omega + 3\omega$ kann die Phasenanpassung nur noch in BBO realisiert werden.

Die wesentlichen Materialparameter für die möglichen Konversionsprozesse sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Für den Prozess $\omega + 4\omega$ zeichnet sich CLBO im Vergleich zu BBO durch größere Akzeptanzen und einen deutlich kleineren Walk-off aus. Die effektive Nichtlinearität und der *FOM* sind allerdings nur etwa halb so groß. In beiden Materialien können die vorhergehenden Prozesse zur Erzeugung der vierten Harmonischen so gewählt werden, dass die Polarisationen für die Erzeugung der 213 nm bereits nicht weiter angepasst werden müssen. Der Winkel des Walk-off liegt bei Prozess $2\omega + 3\omega$ zwischen den Winkeln der beiden möglichen $\omega + 4\omega$ Prozessen. Das d_{eff} und der *FOM* sind etwa so groß wie in CLBO, während die Winkelakzeptanzen im Mittel ein wenig besser als bei BBO und dem Prozess $\omega + 4\omega$ sind.

Der grundlegende große Nachteil bei Prozesses $\omega + 4\omega$ liegt in der zu erwartenden

Mischprozess	1064 + 2	$66 \rightarrow 213$	$532 + 355 \rightarrow 213$	
	$\omega + 4\omega$		$2\omega + 3\omega$	
Material	CLBO		BBO	
Polarisation	$o + o \rightarrow e$	$o + o \rightarrow e$	$o + o \rightarrow e$	
heta [°]	67,5	51,2	69,9	
φ [°]	45	90	90	
Walk-off [mrad]	30	96	61	
$d_{\rm eff} {\rm [pm/V]}$	0,95	$1,\!95$	1,09	
$FOM \ [pm^2/V^2]$	0,20	0,50	$0,\!18$	
Winkelakzeptanz [mrad cm]	2,42 / 0,58	0,67 / 0,16	0,52 / 0,34	

Tabelle 4.2: Mögliche Phasenanpassungs-Prozesse zur Erzeugung der fünften Harmonischen von 1064 nm in CLBO und BBO

Langzeitstabilität des Lasersystems. Durch die Verwendung von Strahlung bei 266 nm werden bedeutend mehr Komponenten (Kristall zur Erzeugung von 4ω , Linsen, ...) einem stark erhöhten Alterungsprozess durch kurzwelliges UV-Licht unterworfen. Beim Prozess $2\omega + 3\omega$ beschränkt sich diese DUV-Belastung auf den BBO-Kristall in dem die 213 nm erzeugt werden, sowie die wenigen darauffolgenden Komponenten zur Kollimation, Strahltrennung und ein etwaiges Austrittsfenster. Aufgrund dieser Vorteile wird im Folgenden ausschließlich der Prozess $2\omega + 3\omega$ behandelt.

4.4 Versuchsaufbau

Der verwendete Versuchsaufbau ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Der Nd:YVO₄-Laser aus Abschnitt 3.3 wird hierbei durch nichtkritische Phasenanpassung in LBO frequenzverdoppelt (siehe Abschnitt 4.5) und mit kritischer Winkelphasenanpassung ebenfalls in LBO frequenzverdreifacht (siehe Abschnitt 4.6). Die zweite und dritte Harmonische werden anschließend mit einem dichroitischen Spiegel getrennt und jeweils mit einer Plankonvexlinse kollimiert. Die Polarisation bei 355 nm wird dann mit einer Lambda-Halbe-Platte um 90° gedreht, wodurch diese ebenso wie die Strahlung bei 532 nm p-polarisiert ist. Dies hat den Vorteil, dass die daraus resultierenden 213 nm aufgrund der s-Polarisation mit geringeren Verlusten in Reflexion von 532 nm und 355 nm getrennt werden kann. Die verbleibende Fundamentalstrahlung bei 1064 nm, die bis hier kollinear mit der SHG-Strahlung verläuft, wird über einen dichroitischen Spiegel separiert und abgesumpft. Zweite und dritte Harmonische werden nun jeweils mit einer Zylinderlinse fokussiert, und mithilfe eines weiteren Dichroiten im BBO-Kristall überlagert.

Die Wegdifferenz für SHG- und THG-Strahlung beträgt etwa 10 cm, was einer Laufzeitdifferenz von ca. 300 ps entspricht. Bei einer Impulsdauer von 8 ns sind hieraus keine substantiellen Beeinträchtigungen zu erwarten. Es sei jedoch angemerkt, dass die



Abbildung 4.1: Versuchsaufbau ns-Laser bei 213 nm

räumliche Überlagerung der beiden Strahlen einen kritischen Punkt des Gesamtsystems darstellt, so dass auf eine zuverlässig arbeitende Mechanik der Halter besonders Wert gelegt wurde. Die Strahlradien für SHG und THG betragen in horizontaler Richtung 105 bzw. 95 μ m und in vertikaler Richtung 340 bzw. 315 μ m am Ort des BBO-Kristalls. Die vertikale Richtung entspricht hierbei der Phasenanpassungsrichtung.

Der BBO-Kristall von der Firma *Castech* hat die Dimensionen 5x5x8 mm³ und einen Schnittwinkel $\theta = 69,6^{\circ}$. Die Facetten sind unbeschichtet da keine (Langzeit-)UVbeständigen Antireflexschichten verfügbar sind. Die Strahlung bei 213 nm wird mit einer Zylinderlinse aus Calciumfluorid mit einer Brennweite $f_z = 150$ mm wieder kollimiert und mit zwei Dichroiten von der SHG- und THG-Strahlung getrennt.

4.5 SHG von 1064 nm

Die hervorragende Eignung von LBO zur Erzeugung der zweiten Harmonischen von 1064 nm wurde schon kurz nach der Entdeckung des Materials Anfang der 90er Jahre erkannt [72, 73] und in zahllosen darauf folgenden Experimenten angewandt. Interresant ist hierbei insbesondere die hohe Zerstörschwelle des in hervorragender Qualität erhältlichen Materials und die Möglichkeit der nichtkritischen Phasenapassung. Dadurch kann LBO für die effiziente Frequenzverdopplung von leistungsstarken TEM_{00} -Lasern unter Beibehaltung der beugungsbegrenzten Strahlqualität eingesetzt werden [74].

4.5.1 Konzept

Die Strahlung des 1064 nm Lasers wird mit einer Plankonvex-Linse auf etwa 100 μ m (Radius) fokussiert. Dadurch erhält man bei 15 kHz eine maximale Energiedichte im Fokus von ca 1 J/cm². Die nichtkritische Phasenanpassung (NCPM) in LBO erlaubt aufgrund des fehlenden Walk-off-Winkels den Einsatz großer Kristalllängen (verwendet wird ein Kristall mit den Maßen 3x3x20 mm³). Als geringer Nachteil muss allerdings die für die Phasenanpassung notwendige hohe Temperatur von 148 °C angesehen werden. Die Ofenregelung muss hierbei eine sehr moderate Rampe beim Aufheizen und Abkühlen des Kristalls fahren (≈ 2 K/min), da sich bei zu schneller Temperaturänderung die Antireflexbeschichtungen von den Kristallfacetten ablösen können. (Der Grund hierfür sind die unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten von Kristall und Coating.) Die hohe Temperatur führt somit zu relativ langen Aktivierungszeiten, die benötigt werden, bis das Lasersystem betriebsbereit ist.

4.5.2 Experimentelle Charakterisierung

Abbildung 4.2 zeigt die gemessenen Leistungskurven der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate in einem Bereich von 5-50 kHz. Die eingestrahlte Diodenpumpleistung beträgt hierbei 18,4 W, während die Fundamentalleistung bei 1064 nm dem Kurvenverlauf in Abbildung 3.15 entspricht.

Die maximale Ausgangsleistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz und einer Diodenpumpleistung von 18,4 W beträgt 1,96 W. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 43 % bezogen auf die eingestrahlte Fundamentalleistung von 4,6 W und einer Konversionseffizienz von 11 % bezogen auf die aufgewendete Pumpleistung. Mit einer schärferen Fokussierung wurden in Voruntersuchungen deutlich höhere SHG-Leistungen von bis zu 2,7 W erzeugt (dies entspricht einer Konversionseffizienz von fast 60 %). Die höhere Konversion wirkt sich jedoch nachteilig auf die Strahlqualität der verbleibenden Fundamentalstrahlung aus, die noch für die Summenfrequenzmischung zur Erzeugung der dritten Harmonischen benötigt wird. Mit dem Ziel, auch noch in der fünften Harmonischen eine hervorragende Strahlqualität zu erreichen, muss daher bei der Konversionseffizienz ein Kompromiss eingegangen werden. Die Impulsdauer bei 532 nm verkürzt sich aufgrund der Nichtlinearität des Konversionsprozesses auf etwa 7 ns. Die Spitzenleistung errechnet sich daraus zu 16 kW bei einer Impulsenergie von knapp 130 μ J. Die Strahlqualität der SHG-Strahlung ist dabei praktisch beugungsbegrenzt, mit gemessenen M²-Parametern von 1,0 und 1,07 für die horizontale und vertikale Richtung.



Abbildung 4.2: Mittlere Ausgangsleistung, Impulsenergie und Impulsdauer in Abhängigkeit der Pulsrepetitionsrate bei einer eingestrahlten Diodenpumpleistung von 18,4 W.



Abbildung 4.3: Bestimmung der Beugungsmaßzahl der SHG-Strahlung bei 532 nm in horizontaler *(links)* und vertikaler Richtung *(rechts)*.

4.6 THG von 1064 nm

4.6.1 Konzept

Die Anforderungen an die optisch nichtlinearen Materialien zur effizienten Erzeugung von 355 nm, bei gleichzeitig hoher Strahlqualität, sind große Winkelakzeptanzen und ein möglichst geringer Walk-off. Bislang ist kein Material bekannt, das für diesen Prozess in nichtkritischer Phasenanpassung genutzt werden kann. Konzepte zur Quasiphasenanpassung scheitern an den nicht mehr herstellbaren periodischen Strukturen (zumindest in erster Ordnung) und an der geringen Tranzparenz der polbaren Materialien im UV-Bereich. Von den in kritischer Phasenanpassung verwendbaren Materialien hebt sich LBO durch den geringsten Walk-off (von nur 9 mrad) und einer hervorragenden Transparenz im UV-Bereich ab. In der Literatur wurde für die THG-Erzeugung in LBO 11 W bei 355 nm und 10 kHz mit einer Konversionseffizienz von 44 % und einer annähernd beugungsbegrenzten Strahlqualität erzeugt [75].



Abbildung 4.4: Propagation der Laserstrahlung durch den SHG- und THG-Kristall

Der für die Phasenanpassung notwendige Schnittwinkel des LBO Kristalls liegt bei $\theta = 43,5^{\circ}$ und $\phi = 90^{\circ}$ und korrespondiert mit einer Temperatur von 42° C. Die Stabilisierung des leicht hygroskopischen LBO-Kristalls auf diese Temperatur, deutlich oberhalb der Raumtemperatur, schützt den Kristall gleichzeitig vor Schäden durch Wasseraufnahme aus der Luftfeuchtigkeit. Die Facetten des Kristalls sind antireflexbeschichtet, und zwar für 1064 nm und 532 nm auf der Eintrittsseite und für 355 nm auf der Austrittsseite.

Um den Aufbau möglichst kompakt zu halten, wurde auf den Einsatz einer zusätzlichen Linse zur nochmaligen Fokussierung in den THG-Kristall verzichtet. Zudem erhöht eine möglichst geringe Anzahl optischer Komponenten bekanntermaßen die mechanische Stabilität eines Lasersystems, was für den Einsatz in industriellen Umgebungen von großer Bedeutung ist. Der SHG-Kristall wird, wie in Abbildung 4.4 dargestellt, kurz vor dem Fokus der Fundamentalen platziert, der THG-Kristall mit den Dimensionen $3 \times 3 \times 15$ mm³ kurz dahinter. Der Abstand zwischen den beiden Kristallen ist der kleinstmögliche, der aufgrund der thermischen Isolation der beiden Kristallhalter möglich ist.

4.6.2 Experimentelle Charakterisierung

Die gemessenen Leistungskurven der dritten Harmonischen mit einer Wellenlänge von 355 nm sind in Abbildung 4.5 zu sehen. Aufgetragen ist die mittlere Ausgangsleistung in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate im Bereich von 5-50 kHz. Die maximale Ausgangsleistung von 670 mW wird bei einer Pulsrepetitionsrate von 17 kHz und einer Diodenpumpleistung von 18,4 W erreicht. Die Impulsdauer beträgt hierbei 7,1 ns. Die gleichzeitig verbleibende Leistung bei 532 nm beträgt etwa 1 W, wodurch für die Summenfrequenzmischung zur fünften Harmonischen 1,7 W bei 17 kHz zur Verfügung stehen.



Abbildung 4.5: Mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer bei 355 nm in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate bei $P_{in}=18,4$ W. Außerdem aufgetragen sind die verbleibende Leistung bei 532 nm, sowie die Summe aus 355 nm und 532 nm.

Die Strahlqualität der THG-Strahlung ist nahezu beugungsbegrenzt mit M^2 -Werten von 1,14 in horizontaler und 1,21 in vertikaler Richtung. Die entsprechenden Messkurven sind in Abbildung 4.6 dargestellt.



Abbildung 4.6: Bestimmung der Beugungsmaßzahl der THG-Strahlung bei 355 nm in horizontaler *(links)* und vertikaler Richtung *(rechts)*.

4.7 Die fünfte Harmonische von 1064 nm

4.7.1 Phasenanpassung in BBO

Das optisch nichtlineare Material BBO weist bekanntlich eine sehr große Doppelbrechung auf. Daraus resultiert eine ebenfalls sehr große Winkelabhängigkeit der Phasenanpassung und daraus sehr kleine Winkelakzeptanzen. Dies hat zum einen Konsequenzen für die zulässigen Divergenzwinkel der am Konversionsprozess beteiligten Strahlen, zum anderen stellen sich hieraus auch die Anforderungen an die mechanische Halterung und Justage des Kristalls. Weniger kritisch gestaltet sich dagegen die Abhängigkeit der Phasenanpassung über die Temperatur des Kristalls. In Abbildung 4.7 ist der entsprechende lineare Zusammenhang der beiden Phasenanpassungsparameter dargestellt. Die Berechnung erfolgt mithilfe des Computerprogramms SNLO [76]. Die Abhängigkeit des Kristallwinkels θ von der Temperatur beträgt demnach $d\theta/dT = 0,004^{\circ}/K$.

Abbildung 4.8 zeigt zwei gemessene Phasenanpassungskurven in Abhängigkeit der Temperatur. Die Halbwetsbreite der Kurve ist dabei unabhängig von der eingestrahlten Pumpleistung und beträgt etwa 1,1 K. Über den oben bestimmten Zusammenhang entspricht dies einem Neigungswinkel des Kristalls von 0,004° bzw. 70 μ rad. Diese Anforderungen müssen entsprechend vom mechanischen System des Kristallhalters erfüllt werden. Die verwendete Konstruktion ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Die Winkeljustage erfolgt über ein Feingewinde mit einer Steigung von 0,35 mm je Umdrehung. Dieses wirkt über einen Hebelarm von 60 mm Länge auf die durch die Kristallmitte verlaufende Drehachse. Die Halbwertsbreite der Winkelphasenanpassung entspricht demnach einem Drehwinkel des Feingewindes um 15°. Eine Verlängerung des Hebelarms könnte zwar eine Verbesserung der Winkelauflösung bewirken, die mechanische Stabilität würde dadurch aber merklich reduziert werden.

Vergleicht man die Lage der Maxima der Phasenanpassungskurven in Abbildung 4.8,



Abbildung 4.7: Zusammenhang zwischen Winkel- und Temperaturphasenanpassung in BBO für den Prozess 532 nm + 355 nm \rightarrow 213 nm.



Abbildung 4.8: Phasenanpassungskurven in BBO für den Prozess $2\omega + 3\omega = 5\omega$ in Abhängigkeit der Temperatur für zwei verschiedene Pumpleistungen.



Abbildung 4.9: Skizze des mechanischen Aufbaus des BBO Kristallhalters

so erkennt man eine Verschiebung zu niedrigeren Temperaturen bei höheren erzeugten DUV-Leistungen. Dieser Effekt ist auf die nicht zu vernachlässigende Absorption von 213 nm und eine damit verbundene lokale Erwärmung im BBO-Kristall zurückzuführen. Der für die Temperaturstabilisierung verantwortliche Sensor ist zwar in größtmöglicher Nähe zum Kristall in den Halter integriert, dennoch bildet sich aufgrund der Absorption ein (von der Laserleistung abhängiger) Temperaturgradient zwischen Sensor und der tatsächlichen Position des Strahls im BBO-Kristall aus. Entsprechend muss bei einer Änderung der Ausgangsleistung auch die Solltemperatur der Regelung angepasst werden.

4.7.2 Charakterisierung

Die erreichte mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer ist in Abhängigkeit der Diodenpumpleistung für eine Pulsrepetitionsrate von 15 kHz in Abbildung 4.10 dargestellt. Die maximal erreichte Ausgangsleistung beträgt 154 mW bei einer aufgewendeten Diodenleistung von 17,6 W. Die zugehörige Impulsdauer beträgt 5,3 ns und ist gegenüber der Fundamentalen deutlich verkürzt. Die Impulsspitzenleistung errechent sich hieraus zu 1,8 kW bei einer Impulsenergie von 10 μ J.

Die Abhängigkeit der mittleren Ausgangsleistung von der Pulsrepetitionsrate ist in Abbildung 4.11 dargestellt. Bemerkenswert ist hier vor allem der steile Abfall der Kurve in Richtung größerer Pulsrepetitionsraten aufgrund der sinkenden Konversionseffizienz durch die bei steigender Pulsrepetitionsrate ebenfalls sinkende Impulsspitzenleistung. Beim Übergang von 15 kHz auf 25 kHz sinkt die mittlere Ausgangsleistung auf 50 % ab; bei 50 kHz sind es sogar nur noch 2 %. Zum Vergleich verringert sich die THG-Leistung beim Übergang von 15 kHz auf 50 kHz nur auf 25 %. Der Grund hierfür liegt bei der sehr viel größeren Nichtlinearität der kaskadierten Summenfrequenzmischung zur Erzeugung der fünften Harmonischen.

Die große Nichtlinearität wirkt sich entsprechend auch auf die Puls-zu-Puls-Stabilität



Abbildung 4.10: Mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer der Fünften Harmonischen bei 213 nm in Abhängigkeit von der Diodenleistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz.



Abbildung 4.11: Abhängigkeit der mittleren Ausgangsleistung bei 213 nm von der Pulsrepetitionsrate.



Abbildung 4.12: Zeitlicher Impulsverlauf bei 213 nm. Dargestellt sind fünf beliebige aufeinanderfolgende Impulse

der Emission bei 213 nm aus. Schon geringe Fluktuationen der Grundwelle wirken sich sich deutlich auf die Impulsenergie der fünften Harmonischen aus. In Abbildung 4.12 ist der zeitliche Impulsverlauf von fünf aufeinander folgenden Impulsen dargestellt,



Abbildung 4.13: Puls-zu-Puls-Stabilität bei 213 nm. Dargestellt ist die normierte Impulsenergie von 100 aufeinanderfolgenden Impulsen.

aufgenommen bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz mit der "Fast Frame"-Funktion eines Tektronix Oszilloskops (TDS 7054). Die zeitliche Modulation der einzelnen Impulse durch das Modebeating wurde zu Gunsten der besseren Auswertbarkeit über eine Bandbreitenbegrenzung des Oszilloskops auf 250 MHz herausgefiltert. In Abbildung 4.12 ist die normierte Impulsenergie von 100 in gleicher Weise aufgenommenen Impulsen dargestellt. Die Standardabweichung ergibt einen Schwankungsbereich der Impulsenergie von ± 20 %.



Abbildung 4.14: M²-Messung der fünften Harmonischen. Die Fokussierung erfolgt mit einer Linsenbrennweite von f=100 mm.



Abbildung 4.15: Strahlprofil der fünften Harmonischen bei 213 nm bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz und einer mittleren Ausgangsleistung von 100 mW.

Zur Messung der Strahlqualität wurde die Strahlung über zwei Reflexionen an unbeschichteten Prismen abgeschwächt und anschließend mit einer Plankonvexlinse aus Quarzglas mit einer Brennweite von 100 mm fokussiert. Die Strahlradien in horizontaler und vertikaler Richtung wurden mit zwei bewegten Schlitzblenden mit Schlitzbreiten von 5 μ m in Abhängigkeit von der Position vermessen. Die aus dem M²-Fit resultierenden Beugungsmaßzahlen betragen 1,34 und 1,47. Die in Abbildung 4.14 dargestellte Messung nach dem Hyperbel-Anpassungsverfahren zeigt einen leichten Astigmatismus des Strahls, der sich in der unterschiedlichen Position der Strahltaillen widerspiegelt. Entsprechend leicht elliptisch stellt sich auch das in Abbildung 4.15 dargestellte Strahlprofil dar. Die Messung erfolgte mit einer CCD Kamera mit speziellem UV-Licht-Konverter (WinCAM D).

4.7.3 Langzeitstabilität

Wie sich zeigt ist eine Degeneration des BBO-Kristalls bei dauerhafter Belastung mit Laserstrahlung bei 213 nm unvermeidbar. Der Effekt betrifft ausschließlich die Austrittsfacette des Kristalls und führt, wie in Abbildung 4.16 dargestellt, zu einer irreversiblen weißen bis bräunlichen Verfärbung der Oberfläche im Einwirkbereich der Laserstrahlung. Der Kristallhalter ist in eine hochpräzise x-y-Translationsstufe integriert, sodass mit dem selben Kristall verschiedene Prozessparameter untersucht werden konnten. Eine mögliche Erklärung für die Degradation könnte ein Aufbrechen der Sauerstoffbindungen an der Oberfläche des Kristalls unter Einwirkung des energiereichen UV-Lichtes sein, was einer chemischen Reduktion des Kristalls entspricht.

Die zunehmende Degradation der Oberfläche führt zu einem annähernd linearen Absinken der Ausgangsleistung bei 213 nm. Eine entsprechende Langzeitmessung über 50 Stunden ist als Messung A in Abbildung 4.17 dargestellt. Die Abfallrate der mittleren Leistung beträgt hierbei in einem linearen Fit 1,07 mW/h. Man beachte hierbei, dass ein Absinken der Leistung erst nach ca. 6 Stunden zu beobachten ist. Insofern müssen veröffentlichte Messungen zur Langzeitstabilität, die nur wenige Stunden dokumentieren, eher kritisch betrachtet werden. Bei dem in [71] beschriebenen System wurden beispielsweise nur 10 Minuten aufgezeichnet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden mehrere Ansätze untersucht um die Langzeitstabilität des Lasers zu erhöhen. In einem ersten Schritt wurden verschiedene Gase zur Spülung des Lasers eingesetzt. Hierzu zählen Argon, Stickstoff, Sauerstoff und gefilterte Luft (*Spectra Physics* Air Filter, Model 2200), wobei für keines dieser Füllgase eine merkliche Erhöhung der Lebensdauer nachgewiesen werden konnte. Erfolg brachte schließlich eine Reduzierung der Leistungsdichte im Kristall durch eine Verringerung der zylindrischen Fokussierung in Kombination mit einer deutlichen Erhöhung der Kristalltemperatur auf etwa 150 °C. Als Ergebnis konnte eine Ausgangsleistung bei 213 nm von 80 mW für mehr als 90 Stunden bei einer Standardabweichung kleiner 2 % gehalten werden. Dieses Ergebnis ist umso beeindruckender, da es sich um ein gänzlich passives Lasersystem, ohne aktive Leistungsstabilisierung handelt.



Abbildung 4.16: Mikroskopaufnahme der Austrittsfacette des BBO-Kristalls zur Erzeugung von 213 nm.



Abbildung 4.17: Langzeitmessungen der fünften Harmonischen. Weitere Erklärungen im Text.

4.8 Fazit

Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Lasersystem bei 213 nm zeichnet sich aus, durch einen sehr kompakten und robusten Aufbau, der industriellen Anforderungen leicht gerecht werden kann. Das System wurde hierbei nicht nur auf maximale Ausgangsleistungen optimiert, sondern vor allem auch auf die Erhaltung einer nahezu beugungsbegrenzten Strahlqualität geachtet. Die maximal erreichte mittlere Leistung des Lasers beträgt 154 mW bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz und M²-Parametern von 1,34 und 1,47 für die beiden Raumrichtungen. Ein weiterer Schwerpunkt wurde auf die Erhöhung der Langzeitstabilität des Lasers gelegt. Hier konnte die Ausgangsleistung bei 80 mW über mehr als 90 Stunden konstant gehalten werden.

Kapitel 5

Nanosekundenlaser im roten und blauen Spektralbereich

5.1 Nanosekundenlaser im roten Spektralbereich

Die Erzeugung von Laserstrahlung im sichtbaren roten Spektralbereich kann für die meisten Anwendungen sehr effizient durch Diodenlaser realisiert werden. Ist man allerdings auf ein gutes Strahlprofil angewiesen oder sind Impulsenergien, wie sie in gütegeschalteten Festkörperlasern erzeugt werden, von Interesse, so stoßen Diodenlaser nach wie vor an ihre prinzipbedingten Grenzen.

Ein mögliches Anwendungsfeld sind hier Beschriftungs- und Markierungsaufgaben in Materialien die stark wellenlängenselektiv absorbieren. Dies können Kunststoffe oder Materialien in der Halbleiterindustrie sein. Auch für medizinische Anwendungen, beispielsweise im Bereich der Dermatologie, können diese Laser eine Rolle spielen und die weniger effizienten Rubinlaser ersetzen.

Basierend auf der zweiten Harmonischen des 1,3 μ m Übergangs in Neodym dotierten Festkörperlasern wurden gerade in jüngster Zeit leistungsfähige Lasersysteme im roten Spektralbereich demonstriert. Im Bereich der cw-Laser mit Intracavity-Verdopplung sind hier beispielsweise [59,77] zu nennen. Rote Laser mit Güteschaltung finden sich unter Verwendung periodisch gepolter Kristalle in [66] oder mit resonatorinterner Verdopplung in [62, 63]. Letzterer liefert bei knapp 80 W Pumpleistung eine mittlere Ausgangsleistung von mehr als 10 W – allerdings bei Impulsdauern von ca. 100 ns und einem auf 2,5 abgeschätzten M².

Die Frequenzverdopplung des in Abschnitt 3.4 vorggestellten Lasersystems verspricht die Realisierung einer Laserstrahlquelle mit deutlich kürzeren Impulsdauern, entsprechend größeren Impulsspitzenleistungen und einer beugungsbegrenzten Strahlqualität.

5.1.1 Materialauswahl in Voruntersuchungen

Ein klares Ziel bei dem im Rahmen dieser Arbeit realisierten Nanosekundenlaser hoher Pulsrepetitionsrate bei 671 nm war es, die beugungsbegrenzte Strahlqualität der fundamentalen Laserstrahlung auch für die frequenzverdoppelte Strahlung zu erhalten. Hieraus ergibt sich die notwendige Suche nach optisch nichtlinearen Medien mit hinreichend großer Winkelakzeptanz und einem möglichst geringen Walk-off Winkel. Beide Anforderung werden durch Quasiphasenanpassung und nichtkritische Phasenanpassung erfüllt.

In Voruntersuchungen werden daher zwei vielversprechende optisch nichtlineare Materialien zur Frequenzkonversion vergleichend untersucht. Zum einen handelt es sich hierbei um periodisch gepoltes kongruentes Lithiumniobat mit einer 5 %igen MgO-Dotierung (kurz MgO:PPLN). Dieses erscheint interessant, da unter Ausnutzung der Quasiphasenanpassung die größte Nichtlinearität des Materials verwendet werden kann, was eine effiziente Konversion in kurzen Kristallen verspricht. Der beim Einsatz mit 1064 nm Lasern zu berücksichtigende Zerstörungsmechanismus durch GRIIRA sollte bei den verwendeten Wellenlängen, wenn überhaupt, nur in abgeschwächter Form auftreten. Das alternativ untersuchte Material ist LBO mit nichtkritischer Phasenanpassung, welches ein etabliertes Material der doppelbrechenden Phasenanpassung darstellt und mit hohen Zerstörschwellen in hervorragender Qualität hergestellt werden kann.



Abbildung 5.1: Versuchsaufbau zur Erzeugung der zweiten Harmonischen von 1342 nm

Die Voruntersuchungen wurden mit dem leistungsschwächeren Laser aus Abschnitt 3.4 mit nur 1 Pumpdiode und einer maximalen Ausgangsleistung von 2,1 W durchgeführt. Der einfache, in Abbildung 5.1 dargestellte, Versuchsaufbau besteht dabei aus dem Laser, einer Linse zur Fokussierung der Fundamentalen und dem optisch nichtlinearen Kristall. Die Strahltrennung erfolgt über geeignete dichroitische Spiegel.

5.1.2 Experimentelle Ergebnisse in MgO:PPLN

Der MgO:PPLN-Kristall stammt aus Arbeiten von S. Zelt [78] und hat die Dimensionen $8,4\times8,0\times0,5$ mm³ sowie eine Multigratingstruktur mit vier Polungsperioden von 13,4 μ m bis 14,0 μ m. Gemäß Berechnungen sollte optimale Phasenanpassung bei einer Polungsperiode von 13,6 μ m und einer Temperatur von 49 °C erreicht werden. Abbildung 5.2 zeigt eine gemessene Phasenanpassungskurve in Abhängigkeit von der



Temperatur des MgO:PPLN-Kristalls die gut mit diesen Vorhersagen übereinstimmt.

Abbildung 5.2: Temperaturphasenan
passungskurve für SHG 1342 nm in MgO:CLN mit A=13,6 $\mu {\rm m}.$

Nach der Theorie von Boyd-Kleinman sollte für diesen Kristall ein Fokusdurchmesser von etwa 50 μ m optimale Konversionseffizienzen liefern. Für eine eingestrahlte Pumpleistung von 520 mW (bei 10 kHz) wurde zunächst ein Fokusdurchmesser von etwa 120 μ m gewählt. Dies entspricht einer Energiedichte von kanpp 0,5 J/cm² und liegt mehr als eine Größenordnung unterhalb der in der Literatur zu findenden Zerstörschwelle des Materials von 25 J/cm² [76].

Hiermit konnten bis zu 302 mW SHG-Strahlung bei 671 nm erzeugt werden, was einer Konversionseffizienz von 58 % entspricht. Bereits nach ersten Experimenten wurden allerdings deutliche Beschädigungen auf der Austrittsfacette des PPLN-Kristalls festgestellt, was offenkundig macht, dass diese Methode der Frequenzkonversion nur für geringe Leistungen anwendbar ist. Eine mögliche Ursache für die Zerstörung des Kristalls ist die blau-induzierte Infrarot-Absorption (BLIIRA) durch das Auftreten von parasitärer THG-Strahlung bei 447 nm. Die gemessene THG-Leistung beträgt etwa 110 μ W. Ein möglicher Weg, um mit diesem Materialsystem dennoch höhere Leistungen erreichen zu können wäre die Verringerung der Leistungsdichte im Kristall durch eine größere Fokussierung. Um auf die gleichen Konversionseffizienzen zu kommen müssten dann entsprechend längere Kristalle verwendet werden .

5.1.3 Experimentelle Ergebnisse in LBO

Als alternative Methode wurde die Erzeugung der zweiten Harmonischen bei fast nichtkritischer Phasenanpassung in LBO untersucht. Um direkt nichtkritische Phasenanpassung erreichen zu können muss der Kristall mit den Schnittwinkeln $\theta = 90^{\circ}$, $\phi = 0^{\circ}$ auf eine Temperatur von etwa 2°C gekühlt werden. Dies birgt bei typischen Laborbedingungen jedoch die große Gefahr der Wasserkondensation, was dem leicht hygroskopischen LBO zum einen auf Dauer direkt schadet, zum anderen führt Wasserkondensat auf den Kristallfacetten bei gleichzeitiger Lasereinstrahlung zur sofortigen Zerstörung der Oberflächen. Daher wird der Kristall um etwa 3° verkippt, so dass sich die Phasenanpassungstemperatur auf 17°C erhöht. Der Walk-off ist hierbei noch unter 3 mrad und die Akzeptanzen für Winkel und Bandbreite so groß, so dass man von fast nichtkritischer Phasenanpassung sprechen kann.

Im Experiment verwendet wurde ein LBO Kristall mit den Dimensionen $3 \times 3 \times 20 \text{ mm}^3$ mit einer Antireflexbeschichtung für 1342 nm auf der einen und einer Doppel-AR-Schicht für 1342 und 671 nm auf der anderen Facette.

Für die maximal eingestrahlte Pumpleistung von 2,1 W wurde eine Fokussierung auf 200 μ m (Durchmesser) verwendet, was einer Energiedichte von etwa 0,7 J/cm² entspricht. Die damit erreichte maximale Ausgangsleistung von 920 mW bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz entspricht einer maximalen Konversionseffizienz von 46 %. Die Strahlung ist mit Werten für den M²-Parameter von 1,2 bzw. 1,5 für die beiden Raumrichtungen nahezu beugungsbegrenzt.

5.1.4 Fazit zur Materialauswahl

Erwartungsgemäß konnten in MgO:PPLN höhere Konversionseffizienzen als in LBO erzielt werden. Der Unterschied fällt jedoch nicht so gravierend aus, wie der um einen Faktor 150 höhere *FOM* erwarten ließe. Dieses Verhältnis ergibt sich allerdings aus dem Wert für die effektive Nichtlinearität von 17 pm/V in MgO:PPLN bei (idealer) Quasiphasenanpassung. Das Ergebnis lässt daher auf eine suboptimale Qualität der periodischen Domänenstruktur schließen. Vergleichende Untersuchungen mit kommerziell hergestellten Kristallen und einer möglicherweise besseren Polungsqualität sind im Anschluss an diese Arbeit geplant. LBO dagegen kann bekanntermaßen in hervorragender optischer Qualität hergestellt werden und verspricht daher zuverlässige und reproduzierbare Konversionsergebnisse.

5.1.5 SHG des leistungsstärkeren 1342 nm-Lasers mit zwei Pumpdioden

Die Frequenzverdopplung des mit zwei Dioden gepumpten Lasers erfolgte im gleichen LBO-Kristall wie zuvor, jedoch bei einem Fokusdurchmesser von 250 μ m. Bei einer eingestrahlten Leistung von 4,2 W bei 1342 nm und einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz entspricht dies einer Energiedichte von 0,8 J/cm², bzw. einer Spitzenleistungsdichte von 144 MW/cm². Eine gemessene Leistungskurve in Abhängigkeit von der Diodenpumpleistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz ist in Abbildung 5.3 dargestellt.

Die maximal erreichte Ausgangsleistung beträgt 1,8 W bei einer Impulsdauer von 8 ns. Dies entspricht einer Impulsspitzenleistung von 22 kW und einer Impulsenergie von 180 μ J. Die Konversionseffizienz für den SHG-Prozess beträgt 42 %, und ist damit geringfügig kleiner als bei den Voruntersuchungen. Der Grund hierfür liegt bei der schwächeren Fokussierung sowie in der etwas reduzierten Impulsspitzenleistung aufgrund der längeren Impulsdauer. Bezogen auf die Diodenpumpleistung beträgt die Konversionseffizienz immerhin 6 %. In Abbildung 5.4 sind mittlere Ausgangsleistung, Impulsdauer und Konversionseffizienz des SHG-Prozesses in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate dargestellt. Die in den Laser eingestrahlte Pumpleistung beträgt dabei 26 W. Das Maximum der mittleren Ausgangsleistung liegt zwischen 10 und 15 kHz was mit der Fluoreszenzlebensdauer in Nd:YVO₄ korrespondiert. Die Impulsdauer steigt annähernd linear von 8 ns bei 5-10 kHz auf etwa 18 ns bei 50 kHz.

Die Strahlqualität des Lasers bleibt nach der Frequenzverdopplung weitgehend erhalten, mit gemessenen M²-Werten von 1,04 in horizontaler Richtung und 1,18 in vertikaler Richtung. Die entsprechenden Messungen mit dem Hyperbel-Anpassungsverfahren sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Die Verringerung des M² im Vergleich zu den Vorversuchen, insbesondere in vertikaler Richtung, ist der Vergrößerung des Strahldurchmessers zuzuschreiben. Abbildung 5.6 zeigt ein mit einer CCD-Kamera gemessenes Strahlprofil bei maximaler Ausgangsleistung.



Abbildung 5.3: Zweite Harmonische bei 671 nm auf der Basis des zweiseitig gepumpten Lasers bei 1342 nm. Aufgetragen sind mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer in Abhängigkeit der eingestrahlten Pumpleistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz



Abbildung 5.4: Zweite Harmonische bei 671 nm auf der Basis des zweiseitig gepumpten Lasers bei 1342 nm. Aufgetragen sind mittlere Ausgangsleistung und Impulsdauer in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate bei einer eingestrahlten Diodenpumpleistung von 26 W.

5.1.6 Fazit

Das im Rahmen dieser Arbeit realisierte Lasersystem hebt sich von vergleichbaren, in der Literatur veröffentlichten, Lasersystemen durch die höchste Impulsspitzenleistung bei gleichzeitig beugungsbegrenzter Strahlung ab. Ermöglicht wird dies durch das leistungsfähige Lasersystem bei 1342 nm, welches eine effiziente Extracavity-Frequenzkonversion ermöglicht. Der in der Literatur vorrangig verwendete Ansatz der resonatorinternen Frequenzverdopplung hat seine Berechtigung durch die höheren mittleren Ausgangsleistungen und besseren Konversionseffizienzen. Die beiden Parameter Spitzenleistung und Strahlqualität schaffen dafür im Folgenden die Grundlage für die Effizienz weiterer Frequenzkonversionsprozesse. Wichtig wird dies für die Erzeugung beugungsbegrenzter Nanosekundenimpulse im blauen Spektralbereich durch Erzeugung der dritten Harmonischen (siehe Abschnitt 5.2) sowie für die Nutzung dieses Lasersystems als Pumpquelle für einen OPG (Abschnitt 8.3).



Abbildung 5.5: Bestimmung der Beugungsmaßzahl der SHG-Strahlung bei 671 nm in horizontaler *(links)* und vertikaler Richtung *(rechts)*.



Abbildung 5.6: Mit einer CCD-Kamera aufgenommes Strahlprofil des Lasers bei 671 nm

5.2 Nanosekundenlaser im blauen Spektralbereich

Die Anwendungsmöglichkeiten für Laser im blauen Spektralbereich sind vielfältig. Hierzu zählen beispielsweise Gebiete wie die optische Datenspeicherung, Unterwasserkommunikation, Spektroskopie, Biotechnologie und medizinische Anwendungen. Speziell für gütegeschaltete Laser sind auch Anwendungen im Bereich der Mikrometerialbearbeitung und Beschriftung von Materialien mit entsprechender wellenlängenabhängiger Absorption denkbar.

Die bislang meistgenutzte blaue Laserstrahlquelle bilden Argon-Ionen-Laser mit mehreren möglichen Wellenlängen um 480 nm. Ein Nachteil ist jedoch die sehr geringe Effizienz der Gaslaser von unter einem Promille, wodurch die Kühlung von Argon-Ionen-Lasern sehr aufwändig ist. Auch mit Diodenlaser wurden bisweilen effiziente Strahlquellen im blauen Spektralbereich realisiert, die allerdings aufgrund ihrer begrenzten Lebensdauer und eingeschränkten Strahlqualität die alternativen Konzepte von Gas- und Festkörperlasern noch nicht ersetzen können.

Der bislang gebräuchlichste Ansatz im Bereich diodengepumpter Festkörperlaser nutzt den Quasi-Dreiniveau-Laserübergang des Nd³⁺-Ions mit anschließender Frequenzverdopplung [79, 80]. Die Schwierigkeiten liegen hierbei bei der Reabsorption der Laserstrahlung aus dem thermisch besetzten unteren Laserniveau, wodurch die Effizienz dieses Übergangs eingeschränkt wird. Alternativ wurden auch blaue Strahlquellen, basierend auf optisch parametrischen Prozessen, demonstriert [81, 82]. Der erhöhte Aufwand dieser Systeme kann dabei durch die gleichzeitige Erzeugung von Strahlung im roten und grünen Spektralbereich gerechtfertigt werden.

In dieser Arbeit wird die Realisierung eines gütegeschalteten Lasers bei 447 nm, basierend auf dem Laserübergang von 1342 nm in Nd:YVO₄ untersucht. Mit einem ähnlichen Ansatz wurde beispielsweise von Peng et al. ein frequenzverdreifachtes Nd:YAG-Lasersystem (ausgehend von 1319 nm) mit einer Pulsrepetitionsrate von 5 kHz veröffentlicht [83]. Dieses erzeugt eine auf den ersten Blick beeindruckende mittlere Leistung von 7,6 W bei 440 nm. Die aufgewendete Pumpleistung liegt allerdings bei 450 W, die Impulsdauer ist mit 170 ns sehr lang und die Strahlqualität bei einem M² von 12 schlecht. Basierend auf dem gütegeschalteten Lasersystem aus Abschnitt 3.4 werden im Folgenden, ähnlich wie bei der SHG im vorherigen Abschnitt, deutlich bessere Effizienzen, höhere Spitzenleistungen und kürzere Impulsdauern in einem im Vergleich zu [83] einfachen Versuchsaufbau erzielt.

5.2.1 Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau basiert auf dem in Abschnitt 5.1 verwendeten Aufbau. Dieser wird erweitert durch eine weitere Linse, die die SHG-Strahlung und Fundamentale gemeinsam in den THG-Kristall fokussiert (siehe Abbilduung 5.7). Eine $\lambda/2$ -Platte für 1342 nm zwischen dem SHG- und THG-Kristall ermöglicht auf einfache Weise die variable Einstellung des Leistungsverhältnisses zwischen roter und blauer Strahlung (siehe Abschnitt 5.3). Die Frequenzverdreifachung von 1342 nm wird in zwei verschiedenen Materialsystemen untersucht: KTP mit kritischer Phasenanpassung und LBO mit nichtkritischer Phasenanpassung.



Abbildung 5.7: Versuchsaufbau zur Erzeugung der dritten Harmonischen von 1342 nm

Die Vorteile von KTP gegenüber LBO sind das 6-mal größere d_{eff} von 4,0 pm/V gegenüber 0,68 pm/V (der FOM ist sogar 20-mal so groß), sowie die Einsatzmöglichkeit nahe Raumtemperatur. Nachteilig ist allerdings der nicht zu vernachlässigende Walkoff von 21,7 mrad sowie die recht geringe Winkelakzeptanz von 1,8 mrad·cm. Andererseits ermöglicht die nichtkritische Phasenanpassung in LBO durch den fehlenden Walk-off, eine deutliche Vergrößerung der Kristalllänge, um so die geringere Nichtlinearität zumindest ausgleichen zu können. Von großem Vorteil sind auch die großen Akzeptanzen, die in Kombination mit dem nicht vorhandenen Walk-off eine Erhaltung der beugungsbgrenzten Strahlqualität erwarten lassen. Inwieweit die geringeren Akzeptanzen und der Walk-off in KTP die Strahlqualität verringern, zeigen die folgenden Experimente.

5.2.2 THG von 1342 nm in KTP

Für die Experimente wurde ein KTP-Kristall mit den Dimensionen $3x3x10 \text{ mm}^2$ ohne AR-Beschichtungen verwendet. Die maximale THG-Leistung wurde bei einem Abstand von 45 mm zwischen SHG- und THG-Kristall erreicht. Mit eingestrahlten Pumpleistungen von 1,44 W (671 nm) und 1,75 W (1342 nm) konnten bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz maximal 880 mW THG-Strahlung erzeugt werden. Die Impulsdauer beträgt 10,2 ns, was einer Spitzenleistung von 5,7 kW sowie einer Impulsenergie von 59 μ J entspricht. Das Strahlprofil weist aufgrund der geringen Winkelakzeptanz des KTP bereits eine starke Elliptizität auf, so dass eine weitere Fokussierung zur Steigerung der Konversionseffizienz nicht sinnvoll erscheint.

5.2.3 THG von 1342 nm in LBO

Zur nichtkritischen Phasenanpassung für den Prozess 1342 nm + 671 nm \to 447 nm wird in LBO eine Temperatur von 185 °C benötigt. Eine technologische Schwierigkeit



Abbildung 5.8: Gemessene Temperaturphasenanpassungskurve für THG von 1342 nm in LBO mit $\theta=0^{\circ}$ und $\phi=0^{\circ}$. Die Halbwertsbreite der sinc²-Kurve beträgt 0,87 K.

dieses Konzeptes liegt bei der Realisierung einer hinreichend präzisen Temperaturregelung. Die geringe Breite der Phasenanpassungskurve (Abbildung 5.8) macht es erforderlich, dass für einen stabilen Laserbetrieb, ausgehend von einer Schwankungsbreite von $\pm 5\%$, die Ofensteuerung eine maximale Regelabweichung von $\pm 0,1$ °C aufweisen darf.

Bei identischem Aufbau wie zuvor mit KTP konnten in LBO 440 mW bei 447 nm erzeugt werden. Der Strahlradius beträgt allerdings nur etwa 300 μ m am Ort des THG-Kristalls. Zur Erhöhung der Leistungsdichte wird daher die Strahltaille im SHG-Kristall mit einer Linse (f=50 mm) über eine 4f-Abbildung in den THG-Kristall abgebildet. Dies erhöht die Leistungsausbeute bei 447 nm auf das Dreifache. Die zugehörigen Leistungskurven sind in Abbildung 5.9 dargestellt.

Die maximal erreichte Ausgangsleistung beträgt 1,4 W bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz. Bei einer Impulsdauer von 12 ns errechnet sich daraus eine Impulsspitzenleistung von 7,8 kW bei einer Impulsenergie von 140 μ J. Die Laserstrahlung bei 447 nm ist nahezu beugungsbegrenzt mit gemessenen M²-Parametern von 1,11 in horizontaler und 1,24 in vertikaler Richtung. Die diesbezüglichen Messkurven sind in Abbildung 5.10 dargestellt.

5.2.4 Fazit

LBO liefert für das dargestellte Lasersystem deutlich bessere Ergebnisse für die THG-Erzeugung des 1342 nm Lasers. Die folgende Tabelle 5.1 enthält nochmals alle für



Abbildung 5.9: Leistungskurven und Impulsdauer in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate für THG von 1342 nm bei einer eingestrahlten Diodenpumpleistung von 26 W. Dargestellt sind die gemessenen Werte bei 447 nm sowie die verbleibenden Leistungen bei 1342 nm und 671 nm).



Abbildung 5.10: Bestimmung der Beugungsmaßzahl der THG-Strahlung bei 447 nm in horizontaler *(links)* und vertikaler Richtung *(rechts)*.

Material	KTP CPM	LBO NCPM
Prozess	$eo \rightarrow o$	$eo \rightarrow e$
heta [°]	79	0
$\phi \ [\circ]$	0	0
$d_{\rm eff}~[{\rm pm/V}]$	4,04	$0,\!68$
$FOM \ [pm^2/V^2]$	$2,\!35$	$0,\!11$
Walk-off [mrad]	21,7	0
Winkelakz. [mrad·cm]	1,7	> 1000
$T [^{\circ}C]$	30	187,9
Kristallänge [mm]	10	20
THG Leistung [W]	0,88	1,4

den Konversionsprozess relevanten Daten der Kristalle sowie die maximal erreichten THG-Leistungen.

Tabelle 5.1: Vergleich von KTP und LBO zur THG-Erzeugung von 1342 nm

5.3 Variable Nutzung von Rot und Blau



Abbildung 5.11: Ausgangsleistung für 447 nm und 671 nm in Abhängigkeit von der $\lambda/2$ -Stellung

Um die mittlere Ausgangsleistung der blauen Laserstrahlung möglichst exakt einstellen zu können wird zwischen SHG- und THG-Kristall eine $\lambda/2$ -Platte für 1342 nm eingefügt, die über einen Schrittmotor mit Getriebeuntersetzung rotiert werden kann.

Aufgrund des geringen Dispersionsunterschieds für ordentlich und außerordentlich polarisierte Strahlen bewirkt diese Platte einen Gangunterschied von λ für 671 nm. Das rote Licht wird also praktisch nicht beeinflusst. Durch Einstellen des relativen Winkels zwischen den Polarisationen von 1342 nm und 671 nm kann man auf diese Weise sehr gut die Konversionseffizienz für den THG-Prozess und damit die Ausgangsleistung der blauen Strahlung steuern. Gleichzeitig ist dies eine elegante Lösung, um auch die rote SHG-Strahlung des Lasers bei den bestmöglichen Leistungswerten nutzen zu können. Zwar verbleiben selbst bei optimaler THG-Konversion immer noch 500 mW bei 671 nm, die in Anwendungen gleichzeitig zu den 447 nm genutzt werden können. Es muss allerdings berücksichtigt werden, dass die verbleibende SHG-Strahlung durch den Pumpabbau eine deutlich verschlechterte Strahlqualität aufweist ($M^2 \approx 2$). Bei einer Unterdrückung der Konversion in den blauen Spektralbereich durch Drehen der $\lambda/2$ -Platte kann daher die rote Laserstrahlung wieder bei maximaler Leistung und nahezu beugungsbegrenzter Strahlqualität genutzt werden. Die möglichen Leistungsverhältnisse in Abhängigkeit von der Winkelstellung der $\lambda/2$ -Platte sind in Abbildung 5.11 dargestellt.

Interessant ist auch die Betrachtung der Strahlprofile bei zunehmender Pumpleistung. Abbildung 5.12 zeigt für verschiedene Pumpleistungen einmal die Strahlprofile bei 447 nm und die korrespondierenden Strahlprofile der verbleibenden 671 nm. Das Strahlprofil bei 447 nm bleibt dabei weitgehend in der TEM_{00} Mode erhalten, während man bei den Strahlprofilen von 671 nm deutlich den zunehmenden Intensitätsabbau durch die Konversion erkennt. Dies spiegelt sich auch im M²-Paramter der verbleibenden SHG-Strahlung wieder, der sich auf einen Wert von 2 erhöht.



Abbildung 5.12: Gemessene Strahlprofile für die dritte Harmonische von 1342 nm sowie die verbleibende zweite Harmonische in LBO. Von oben nach unten nimmt die Pumpleistung, und damit die Konversionseffizienz zu.

Kapitel 6

Summenfrequenzmischung von zwei synchronisierten Lasern

Der Prozess der Summenfrequenzmischung (SFG) ist ein wohlbekanntes Mittel, um Laserstrahlung in Bereiche kürzerer Wellenlängen zu konvertieren. Als einfachste Fälle zählen hierzu die Erzeugung der Harmonischen (z.B. SHG und THG), wie auch in vorangegangen Kapiteln beschrieben. Die erreichbaren Wellenlängen lassen sich jedoch deutlich erweitern, wenn man Laserstrahlung ausgehend von verschiedenen Laserübergängen nutzt.

Ein interessantes Beispiel hierfür ist die Summenfrequenzmischung der Nd:YVO₄-Laserübergänge 1064 nm und 1342 nm zu 593 nm. Die Erzeugung von Laserstrahlung im gelben Spektralbereich ist nach wie vor eine Herausforderung. Bislang dominieren in diesem Spektralbereich immer noch Farbstofflaser, die zwar in ausgereifter Form kommerziell erhältlich sind, aber nach wie vor prinzipbedingte Nachteile gegenüber Festkörperlasern aufweisen. Optisch parametrische Oszillatoren, gepumpt bei 355 nm, bieten hier eine Alternative, sind jedoch kommerziell nur in Form von blitzlampengepumpten Nanosekundenlasern mit Pulsrepetitionsraten <100 Hz erhältlich. Schließlich bieten auch Ramanlaser die Möglichkeit, kohärente Strahlung im gelben Spektralbereich zu erzeugen. Diese sind zum einen in Form von cw-Faserlasern vielfach veröffentlicht, können aber auch als gütegeschaltete Laser mit hohen Pulsrepetitionsraten realisisert werden. Aufgrund ihres besonderen Potentials wurden daher im Rahmen dieser Arbeit vergleichende Untersuchungen auch mit diesem Laserkonzept durchgeführt (siehe Kapitel 7).

Die Anwendungsmöglichkeiten liegen für gelbes Laserlicht insbesondere im medizinischen Bereich, speziell im Bereich der Dermatologie und Ophthalmologie. Gerade hier ist man auf eine gute Anpassung der Absorptionslänge des Laserlichtes an das zu behandelnde Gewebe angewiesen, um eine Schädigung tiefer liegender Gewebeschichten zu vermeiden.

In der Literatur finden sich bereits Veröffentlichungen zur SFG von 1064 nm und 1342 nm von kontinuierlich emittierenden Lasern. Akzeptable Konversionseffizienzen
werden hierbei entweder durch die Verwendung eines Überhöhungsresonators oder periodisch gepolter Materialien mit entsprechend hoher Nichtlinearität erreicht [84,85].

Mit gütegeschalteten Lasern lassen sich aufgrund der hohen Spitzenleistung entsprechende Konversionseffizienzen prinzipiell sehr viel einfacher erzielen. Allerdings müssen die Impulse der beiden Laser sehr präzise synchronisiert werden, um einen ausreichenden zeitlichen Überlapp zu erreichen. Entsprechende Ergebnisse wurden bereits mit zwei ineinander gefalteten Resonatoren und passiver Güteschaltung über einen sättigbaren Absorber realisiert [86]. Ein großer Nachteil bei passiver Güteschaltung besteht allerdings darin, dass die Pulsrepetitionsrate durch die Wahl der Komponenten bei einer gegebenen Pumpleistung bereits festgelegt ist. Weiterhin fehlt diesen Systemen die Möglichkeit zur Triggerung.

Aktiv gütegeschaltete Laser weisen hingegen einen zeitlichen Jitter von Impuls zu Impuls auf, der typischerweise einige Nanosekunden beträgt und damit annähernd die gleiche Größenordnung wie die Impulsdauer erreicht. In dieser Arbeit wurde ein von M. Rahm [5] vorgeschlagenes Verfahren zur Güteschaltung hoher zeitlicher Präzision aufgegriffen, welches das Triggersignal phasenstarr an der RF-Trägerwelle des AOM koppelt und dadurch den zeitlichen Impulsjitter auf etwa 300 ps reduzieren kann.

6.1 Versuchsaufbau

Für die experimentelle Umsetzung der Summenfrequenzmischung (siehe Abbildung 6.1) wurde als Laser #1 ein Nd:YVO₄-Laser bei 1064 nm mit linearem Zwei-Spiegel-Resonator verwendet. Der Aufbau entspricht dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen System. Die maximale Ausgangsleistung beträgt 4 W mit einer Impulsdauer von 7,8 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz und 5 W mit 9,1 ns bei 15 kHz.

Laser #2 entspricht dem Nd:YVO₄-System bei 1342 nm mit zwei Pumpdioden aus Abschnitt 3.4. Der Laser liefert maximal 4,2 W mit einer Impulsdauer von 10,6 ns bei 10 kHz und 4,8 W mit 12,5 ns bei 15 kHz.

Grundlage für die zeitliche Synchronisation der beiden Laser ist ein spezieller Delay-Generator der Firma *Bergmann*. Diese beinhaltet einen 40 MHz RF-Ausgang und phasenstarr dazu zwei Triggerausgänge, die mit einer hochpräzisen digital einstellbaren Delay-Line in Schritten von 50 ps gegeneinander verzögert werden können. Die 40 MHz clock dient damit als Master-Oszillator für zwei AOM-Treiber der Firma *Neos*, an denen entsprechende Modifikationen vorgenommen wurden. Diese dienen im Wesentlichen als weitere Nachverstärker des RF-Signals und liefern eine maximale RF-Leistung von jeweils 6 W.

Beide Laser können über einen variablen Abschwächer, bestehend aus einer $\lambda/2$ –Platte und einem Dünnschichtpolarisator, in der Ausgangsleistung variiert werden, ohne die Strahlparameter zu beeinflussen.

Im Weiteren müssen beide Laser räumlich überlagert werden. Hierzu dient ein 45°-



Abbildung 6.1: Versuchsaufbau des Synchro

Umlenkspiegel für 1064 nm mit einer Reflektivität von etwa 99 % bei 1064 nm und einer Transmission von 90 % bei 1342 nm. Die Fokussierung der Laser erfolgt jeweils über eine Plankonvexlinse auf eine Strahltaille von 140 μ m. Die Fokussierung ist hierbei so gewählt dass die maximale Energiedichte im Kristall bis zu einer Pulsrepetitionsrate von 10 kHz einen Wert von 1 J/cm² nicht überschreitet.

Die Strahltrennung hinter dem optisch nichtlinearen Kristall erfolgt über zwei dichroitische Spiegel mit Breitbandbeschichtung. Diese sind für einen Einfallswinkel von 45° hochreflektierend von 410 nm bis 700 nm und hochtransmittierend von 730 nm bis 2,5 μ m.

6.2 Wahl des optisch nichtlinearen Materials

Die Summenfrequenzmischung von 1064 nm und 1342 nm kann in verschiedenen optisch nichtlinearen Materialien realisiert werden. Die Experimente wurden vergleichend in den beiden für diesen Prozess vielversprechendsten Materialien LBO und BiBO durchgeführt. Die relevanten Daten der verwendeten Kristalle sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt.

Material	LBO	BiBO
Abmessungen [mm]	3 x 3 x 20	3 x 2,8 x 10
Prozess	$o + o \rightarrow e$	$o + o \rightarrow e$
Schnittwinkel [°]	$\theta = 90, \Phi = 0$	$\theta = 3, 3, \Phi = 0$
$d_{\rm eff} [\rm pm/V]$	0,84	2,3
$FOM \ [(pm/V)^2]$	0,16	0,87
Walk-off [mrad]	0	9,7
Winkelakz [mrad cm]	>1000	7,8 / 6,1
AR-Beschichtung	$S_11064, S_21064+532$	_

Tabelle 6.1: Verwendete Kristalle zur Summenfrequenzmischung 1064 nm + 1342 nm

Die effektive Nichtlinearität ist in BiBO fast dreimal und der *Figure of Merit* mehr als fünfmal so groß wie in LBO. Dafür kann LBO bei Raumtemperatur nichtkritisch phasenangepasst werden und weist die weitaus größeren Akzeptanzen auf. Die Phasenanpassung in BiBO ist nahe der Hauptachsen im Kristall, weshalb die Akzeptanzen im Vergleich zu anderen Materialien immer noch groß sind und auch der Walk-off-Winkel relativ klein ist. Abbildung 6.2 zeigt die gemessene Phasananpassungskurve für LBO (links) und BiBO (rechts) in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Halbwertsbreite der sinc-Funktion beträgt 3,7 K für LBO und 2,5 K für BiBO. Beide Kristalle können daher mit handelsüblichen Temperaturregelungen stabilisiert werden.



Abbildung 6.2: Gemessene Temperaturphasenanpassungskurve für SFG von 1064 nm und 1342 nm in LBO $\theta=90^{\circ}$ und $\phi=0^{\circ}$ (*links*) und BiBO mit $\theta=3^{\circ}$ und $\phi=0^{\circ}$ (*rechts*).

6.3 Zeitliche Überlagerung der Impulse

Zunächst wurde der zeitliche Jitter der beiden Triggersignale gegeneinander vermessen. Hierzu stand ein 4-Kanal-Oszilloskop der Firma *Tektronix* (Modell TDS 7054) mit einer Bandbreite von 500 MHz und einer Abtastrate von 10 Gs/s zur Verfügung. Der gemessene Jitter beträgt 130 ps und liegt damit an der Grenze des Auflösungsvermögens des Oszilloskops. Um die unterschiedlichen Impulsaufbauzeiten der beiden Laser auszugleichen mussten die Triggersignale um 1,438 μ s gegeneinander verzögert werden. Der zeitliche Jitter der beiden Laserimpulse wurde mit einer InGaAs-Photodiode der Firma Alphalas vom Typ UPD-70-IR2-P mit einer Anstiegszeit von 70 ps gemessen und beträgt 500 ps.

Abbildung 6.3 zeigt fünf beliebig ausgewählte Impulse bei 1342 nm und 1064 nm, die um etwa 30 ns gegeneinander verzögert wurden, um die Impulse voneinander unterscheiden zu können. Gleichzeitig dargestellt ist außerdem der SFG-Impuls, der trotz des großen zeitlichen Versatzes gebildet werden kann. Die relative Skalierung der Impulse ist hierbei willkürlich und hängt in erster Linie von der Ausleuchtung der Photodioden ab. Ebenfalls im zeitlichen Impulsverlauf gut zu erkennen ist das Mode-beating der beiden Laser, das durch die Überlagerung der einzelnen spektralen Moden verursacht wird. Den beiden Pumpimpulsen entsprechend ist auch eine Modulation auf dem SFG-Impuls zu erkennen, die durch die Nichtlinearität des Mischprozesses deutlich verstärkt auftritt.

Abbildung 6.4 zeigt die erzeugte Leistung bei 593 nm in Abhängigkeit der zeitlichen Verzögerung der beiden Laserimpulse zueinander. Die Kurve wurde bei einer Pumpleistung von jeweils 2 W bei 1064 nm und 1342 nm aufgenommen. Man kann hieraus den tolerierbaren zeitlichen Jitter der Laserimpulse auf etwa 5 ns abschätzen, bevor mit einem merklichen Leistungsrückgang zu rechnen ist. Es gilt dabei jedoch zu beachten, dass die Messung der mittleren Ausgangsleistung noch keine Aussage über die Puls-zu-Puls-Stabilität beinhaltet.

6.4 Experimentelle Ergebnisse

In einem ersten Experiment wurde die Summenfrequenzmischung in BiBO untersucht und dabei die erzielte Ausgangsleistung bei 593 nm in Abhängigkeit der einzelnen Pumpleistungen bei 1064 nm und 1342 nm aufgenommen. Das entsprechende dreidimensionale Messfeld ist in Abbildung 6.5 dargestellt. Abbildung 6.6 zeigt die SFG-Leistung über dem Produkt der eingestrahlten Leistungen aufgetragen. Die Kurve gibt recht gut das aus der Theorie erwartete Ergebnis wieder. Die erzeugte Leistung zeigt zunächst eine annähernd lineare Abhängigkeit vom Produkt der eingestrahlten Leistungen. Die Steigung der Kurve nimmt jedoch mit zunehmendem Pumpabbau stetig ab.

Die in Abbildung 6.7 dargestellten Leistungskurven geben die erzielten Ergebnisse mit den verschiedenen optisch nichtlinearen Kristallen wieder. Gemessen wurde hier die mittlere Ausgangsleistung der SFG-Strahlung in Abhängigkeit von der eingestrahlten Leistung bei 1342 nm bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz. Die gleichzeitig eingestrahlte Leistung bei 1064 nm wurde bei 4 W konstant gehalten.

Die höchste Leistung wurde mit dem LBO-Kristall erreicht und beträgt 1,63 W bei



Abbildung 6.3: Variation der zeitlichen Verzögerung. Dargestellt ist beispielhaft der zeitliche Impulsverlauf von jeweils fünf beliebigen am SFG Prozess beteiligten Impulse



Abbildung 6.4: Variation der erzeugten SFG-Leistung in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung



Abbildung 6.5: Leistung der SFG-Strahlung in Abhängigkeit von den jeweiligen Leistungen bei 1064 und 1342 nm



Abbildung 6.6: Leistung der SFG-Strahlung in Abhängigkeit vom Produkt der jeweiligen Leistungen bei 1064 und 1342 nm



Abbildung 6.7: SFG von 1064 nm und 1342 nm. Leistungskurven in Abhängigkeit von der eingestrahlten Leistung bei 1342 nm (bei einer konstant gehaltenen Leistung bei 1064 nm von 4 W) jeweils in LBO und BiBO.

einer eingestrahlten Gesamtleistung von 7,5 W. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 22 % ohne Berücksichtigung der Fresnelverluste. In BiBO konnte bei einer eingestrahlten Gesamtleistung von 7,7 W nur 1,48 W erzeugt werden. Das Ergebnis widerspricht insofern den Erwartungen, da das für den Konversionsprozess relevante Produkt aus $FOM \cdot l \cdot h(B, \xi)$ bei BiBO um mehr als einen Faktor 5 größer ist als bei LBO. Die Antireflex-Beschichtung des LBO-Kristalls, die zudem nur für den Teil der Pumpstrahlung bei 1064 nm optimiert ist, kann diese Unterschiede nicht erklären. Was bleibt, ist möglicherweise eine schlechtere Kristallqualität des BiBO-Kristalls, was in folgenden Experimenten mit neuen Kristallen verifiziert werden muss.

Abbildung 6.8 zeigt die Abhängigkeit der SFG-Leistung von der Pulsrepetitionsrate. Die dargestellte Kurve wurde für die Frequenzkonversion in BiBO aufgenommen, wobei der prinzipielle Verlauf unabhängig vom verwendeten optisch nichtlinearen Medium ist. Man erkennt das für hochrepetierende Nd:YVO₄-Laser typische Maximum der Kurve im Bereich zwischen 15 und 20 kHz. In diesem Bereich besteht der beste Kompromiss zwischen höchster mittlerer Leistung bei großen Pulsrepetitionsraten und maximaler Impulsspitzenleistung für optimale Konversionseffizienz bei niedrigen Pulsrepetitionsraten.

Das Spektrum der SFG-Strahlung wurde mit einem fasergekoppelten Spektrum-Analysator AQ6315-A der Firma ANDO vermessen. Der Schwerpunkt der spektralen Verteilung liegt bei einer Wellenlänge von 593,5 nm mit einer Halbwertsbreite von 0,23 nm. Ein Beispiel für ein gemessenes Spektrum ist in Abbildung 6.9 dargestellt. Lage und



Abbildung 6.8: Leistungskurve und Konversionseffizienz in Abhängigkeit von der Pulsrepetitionsrate für SFG 1064 + 1342 nm in BiBO

Breite des Spektrums bleiben dabei im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig von Pumpleistung, Pulsrepetitionsrate, zeitlichem Versatz der Impulse oder der Wahl des Kristalls.

In einem abschließenden Experiment wurde eine etwas stärkere Fokussierung der Pumpstrahlung auf einen Strahlradius von etwa 100 μ m realisiert. Die maximal erreichte



Abbildung 6.9: Spektrum der SFG von 1064 + 1342 nm

Konversionseffizienz in LBO betrug hiermit ebenfalls 25% – allerdings schon bei einer eingestrahlten Gesamtleistung von 4 W. Die auftretende Leistungsdichte reichte jedoch aus um deutliche Schäden auf der Austrittsfacette des LBO-Kristalls zu verursachen. Begrenzend dürfte die Zerstörschwelle der Antireflexbeschichtung gewesen sein, da die Zerstörschwelle von LBO mehr als eine Größenordnung größer ist.

6.5 Fazit

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass mit der verwendeten Synchronisierung zweier gütegeschalteter Laser mit Pulsrepetitionsraten im Kilohertzbereich effizient Frequenzkonversion durch Summenfrequenzmischung möglich ist. Am Beispiel der SFG von 1064 nm und 1342 nm wurde eine maximale Leistung von 1,6 W im gelben Spektralbereich erzeugt, was einer Konversionseffizienz von 25 % entspricht.

6.6 Ausblick

Im folgenden werden noch zwei weitere interessante Prozesse aufgezeigt, die mit der oben beschriebenen Technik realisierbar sind.

1064 nm + 671 nm \rightarrow 411 nm: Die Erzeugung von Laserlicht in der Nähe von 400 nm könnte speziell für medizinische Anwendungen von Interesse sein, da man sich hier in großer Nähe zum absoluten Absorptionsmaximum des Hämoglobin bei 414 nm befindet. Alternative Möglichkeiten mit vergleichbarem Aufwand in diesen Spektralbereich zu gelangen, wären beispielsweise UV-gepumpte OPOs oder frequenzverdoppelte Ti:Sa-Laser.

1067 nm – 1064 nm \rightarrow 0,8 THz: Die Differenzfrequenzmischung der stärksten Laserübergänge in Nd:KGW und Nd:YVO₄ bieten eine neuartige und vielversprechende Methode um leistungsstarke Strahlung bei Terahertz-Frequenzen zu liefern. Als optisch nichtlineares Material könnte hier periodisch gepoltes Lithiumniobat dienen, wobei die Terahertzstrahlung zur Reduzierung der Absorption nahe der Oberfläche erzeugt und senkrecht dazu abgestrahlt wird. Alternativ zu Nd:YVO₄ kann auch Nd:GdVO₄ mit einer Wellenlänge von 1062 nm eingesetzt werden. Die Mischung mit einem Nd:KGW-Laser liefert dann eine Frequenz von 1,3 THz. Entsprechende Experimente sind bereits in der Vorbereitung.

Kapitel 7

Gütegeschalteter Ramanlaser

Stimulierte Raman-Streuung (SRS) bietet neben den in den vorangegangenen Kapiteln verwendeten Methoden der nichtlinearen Optik eine weitere Möglichkeit zur Frequenzkonversion von Laserstrahlung. Die Frequenzverschiebung für die Stokeswelle ist gegeben durch die Frequenz der Eigenmoden der ramanaktiven Gitterschwingungen in Kristallen und beträgt etwa 500 bis 1000 cm⁻¹ zu größeren Wellenlängen hin. Dies entspricht bei der stärksten Emissions-Wellenlänge in Neodym-dotierten Festkörperlasern von 1 μ m etwa 100 nm. Die zweite Harmonische eines solchen Ramanlasers liegt damit im sichtbaren gelben Spektralbereich. Dieser ist beispielsweise für medizinische Anwendungen in der Dermatologie von besonderem Interesse [87]. Effiziente und zuverlässige Strahlquellen auf der Basis von Festkörperlasern, die die bislang verwendeten Farbstofflaser ersetzen können, haben daher allein im medizinischen Bereich ein sehr großes Marktpotenzial.

Da die stimulierte Raman-Streuung ein optisch nichtlinearer Prozess dritter Ordnung ist, sind die entsprechenden Kopplungen in der Regel deutlich kleiner als bei der gebräuchlicheren Drei-Wellen-Wechselwirkung. Man benötigt daher große Wechselwirkungslängen oder hohe Leistungsdichten, um dennoch gute Konversionseffizienzen erreichen zu können. Hierzu gibt es in der Literatur verschiedene Ansätze:

- Raman–Faserlaser Die Verwendung großer Wechselwirkungslängen wird in Faserlasern mit typischen Faserlängen von bis zu einigen hundert Metern umgesetzt. Die erzeugte Strahlung wird hierbei zumeist kontinuierlich emittiert [88–91], wobei auch schon modengekoppelte Ansätze demonstriert wurden [92, 93]. Trotz großer Anstrengungen in diesem Gebiet können jedoch optische Fasern den Impulsenergien, wie sie in gütegeschalteten Festkörperlasern erreicht werden, nicht standhalten.
- Raman-Erzeugung mit ultrakurzen Impulsen Die Fokussierung von gepulsten Lasern mit hohen Spitzenleistungen kann in raman-aktiven Materialien direkt zu erstaunlichen Konversionseffizienzen führen. So demonstrierte Cerny et al. Konversionseffizienzen von fast 40 % im Einfachdurchgang und 85 % (na-

he dem Quantenlimit) im Zweifachdurchgang durch einen BaWO₄-Kristall [94]. Gleichzeitig dient diese Methode vielfach zur Identifizierung und Charakterisierung raman-aktiver Kristalle [43, 44]. Die zusätzliche Verwendung eines externen Resonators für die zu erzeugende Raman-Strahlung erlaubt es hierbei, die Raman-Schwelle deutlich herabzusetzen [95–97].

• Intracavity Ramanlaser Durch die Kombination von Laser- und Ramanresonator kann die Leistungsüberhöhung im Laserresonator genutzt werden um effiziente Konversion zu erreichen. Gleichzeitig erlaubt diese Konfiguration die Realisierung sehr kompakter und vergleichsweise einfacher Systeme. Die Schwierigkeiten liegen hier in der Kontrolle der thermischen Linsen, verursacht durch den Laserkristall auf der einen und den Raman-Kristall auf der anderen Seite [98]. Entsprechende Systeme mit Güteschaltung wurden bereits mit verschiedenen Raman-Kristallen erfolgreich demonstriert [98–100]. Als besondere Form der Intracavity-Ramanlaser können sogenannte Selbstramanlaser angesehen werden, bei denen das laseraktive Material gleichzeitig für die stimulierte Raman-Streuung verantwortlich ist [101–103].

Material	Raman-Shift $[cm^{-1}]$	Raman-Verstärkung [cm/GW]	Quelle
YVO_4	890	4,5	[44]
$\mathrm{KGd}(\mathrm{WO}_4)_2$	768	4,4	[44]
GdVO_4	882		
$BaNO_3$	1047	10-11	[44]
$LiIO_3$	770		[104]

Tabelle 7.1: Raman-Verschiebung und Verstärkungskoeffizienten (bei 1064 nm) verschiedener Materialien

7.1 Versuchsaufbau

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden zunächst an das von Chen [102] vorgeschlagene Konzept des Selbstramanlasers angelehnt. Der in Abbildung 7.1 dargestellte Versuchsaufbau besteht aus einem endgepumpten Nd:YVO₄-Laser mit einem linearen Resonator, bestehend aus zwei Planspiegeln im Abstand von 136 mm. Die Pumpquelle wird gebildet durch ein fasergekoppeltes Diodenlasermodul der Firma *Dilas* (MB30-805-400) mit einer Wellenlänge von etwa 808 nm und einer maximalen Ausgangsleistung von 30 W.

Die Pumpstrahlung aus der Faser mit einem Kerndurchmesser von 400 μ m wird über zwei Linsen mit einem Abbildungsverhältnis von 2:3 in den Nd:YVO₄-Kristall eingestrahlt. Der resultierende Strahldurchmesser der Taille beträgt dementsprechend



Abbildung 7.1: Versuchsaufbau Ramanlaser mit linearem Resonator

670 μ m. Der Nd:YVO₄-Kristall hat die Dimensionen 4x4x8 mm³, eine Neodym-Dotierung von 0,3% und wurde von der Firma *Castech* bezogen. Die Facetten des Kristalls sind speziell für 1064 nm und 808 nm antireflexbeschichtet, wobei die Beschichtungen auch bei der ersten Stokes-Welle von 1176 nm noch eine akzeptable Reflektivität von <1% aufweisen. Die akustooptische Güteschaltung erfolgt über einen AOM der Firma *Gooch & Housego* (Modell QS041-4G-KS1), der mit einer maximalen RF-Leistung von 8 W betrieben werden kann. Die Pulsrepetitionsrate wurde bei diesen Experimenten, wenn nicht anders angegeben, auf einen Wert von 15 kHz gesetzt.

7.2 Experimentelle Ergebnisse

Bei ersten Voruntersuchungen zeigte sich, dass entgegen den Erwartungen (beruhend auf der Veröffentlichung von Chen), keine effiziente Konversion in die erste Stokes-Welle erreicht werden konnte. Die maximal erzeugte Raman-Leistung betrug hier 25 mW bei einer aufgewendeten Pumpleistung von 13 W und einer Transmission des Auskoppelspiegels von 20% bei 1176 nm. Die Schwelle, ab der Raman-Strahlung beobachtet werden konnte, betrug etwa 10 W.

Die Problematik stellt sich hierbei zunächst folgendermaßen dar: Aufgrund der geringen Konversion in die Raman-Welle wird in dem gegebenen HR-Resonator für 1064 nm nur sehr wenig Leistung ausgekoppelt. Mit steigender Pumpleistung führt dies zu einer sehr hohen Verstärkung im aktiven Medium. Bereits geringe Restreflektivitäten von im Resonator befindlichen Flächen (Rückseiten der Spiegel, Facetten von AOM und Kristallen) reichen dementsprechend aus, um die Laserschwelle zu erreichen. Ab einer gewissen Pumpleistung führt dies zu einem sehr instabilen Verhalten des Lasers. Um den Resonator etwas zu stabilisieren, wird daher zunächst ein Auskoppelspiegel mit einer Transmission von 3% bei 1064 nm und 11% bei 1176 nm verwendet.

Um die Konversionseffizienz zu steigern, werden zusätzliche Nd:YVO₄-Kristalle mit



Abbildung 7.2: Leistungskurven des Ramanlasers bei verschiedenen Längen des Ramanaktiven Mediums

8 mm und 20 mm Länge sowie ein undotierter YVO₄ Kristall mit 30 mm Länge in den Resonator eingesetzt. Die entsprechenden Leistungskurven sind in Abbildung 7.2 dargestellt. Mit dem zusätzlichen Kristall von 8 mm Länge senkt sich die Raman-Schwelle auf immerhin 8 W und die maximale Ausgangsleistung beträgt 150 mW bei einer Pumpleistung von etwa 13 W. Der Einsatz des zusätzlichen Nd:YVO₄-Kristalls von 20 mm Länge senkt die Schwelle auf etwa 6,8 W und steigert die maximale Ausgangsleistung auf 600 mW. Der Einsatz des zusätzlichen YVO₄-Kristalls ohne Neodym-Dotierung von 30 mm Länge senkt zwar die Schwelle weiter auf etwa 6 W, die maximal erreichte mittlere Ausgangsleistung beträgt aber nur 540 mW. In einer nächsten Messreihe werden ausgehend von den Ergebnissen mit dem zusätzlichen 20 mm Kristall nochmals Auskoppelspiegel mit einer HR-Beschichtung bei 1064 nm und verschiedenen Auskoppelgraden (12%, 20% und 30%) bei 1176 nm verwendet. Die gemessenen Leistungskurven sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Die mittlere Ausgangsleistung von 20% liefert hierbei die besten Ergebnisse mit einer maximal erreichten Ausgangsleistung von 20% liefert hierbei die besten Ergebnisse mit einer maximal erreichten Ausgangsleistung von 600 mW.

Als ein möglicher begrenzender Faktor für die Erzeugung der stimulierten Raman-Strahlung wird die Abhängigkeit von der RF-Leistung des AOM untersucht. Hierzu wird bei verschiedenen Ausgangsleistungen des AOM-RF-Treibers Leistungskurven der Ramanstrahlung aufgenommen. Als Auskoppelspiegel dient für diese Messung ein HR-Spiegel bei 1064 nm mit einer Transmission von 12% bei 1176 nm. Wie in Abbildung 7.4, zu sehen spielt die RF-Leistung und damit die Beugungseffizienz eine entscheidende Rolle für die Raman-Erzeugung, was leicht verständlich ist, da bei geringen RF-Leistungen die Beugungseffizienz des AOM nicht ausreicht, um ein vorzeitiges Starten des Laserprozesses zu unterdrücken. Entsprechend sinkt auch die erreichbare Spitzen-



Abbildung 7.3: Leistungskurven des Ramanlasers bei verschiedenen Auskoppelspiegeln

leistung des Laserimpulses bei 1064 nm und damit die Konversionseffizienz. Der Verlauf der Kurven lässt allerdings vermuten, dass, speziell bei der maximalen RF-Leistung von 8 W, eher andere Effekte zu einer Beschränkung der Raman-Leistung führen. Eine abschließende Klärung dieser Vermutung ließe sich mit einem leistungsfähigeren AOM bewerkstelligen.

7.3 Steigerung der Pulsrepetitionsrate

Als effektiver Ansatz zur Steigerung der mittleren Ausgangsleistung erweist sich die Erhöhung der Pulsrepetitionsrate (siehe Abildung 7.5). So beträgt die maximal erreichte Raman-Leistung bei einer Pulsrepetitionsrate von 50 kHz 1,5 W bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 20 W.

Auch dieser Effekt lässt sich durch die beschränkte Beugungseffizienz des Güteschalters verstehen. Ab einer gewissen Verstärkung kann der AOM ein Anschwingen des Laserprozesses (Prelasing) nicht mehr unterdrücken, so dass eine weitere Erhöhung der Besetzung des oberen Laserniveaus verhindert wird.

Betrachtet man die Impulsenergien in Abhängigkeit von der Pumpleistung (Abbildung 7.6), so erkennt man, dass diese nahezu unabhängig von der Pulsrepetitionsrate bei etwa 40 μ J in Sättigung gehen. Dies bedeutet, dass in dem bestehenden Resonator die erreichbare Besetzungsinversion begrenzt ist.



Abbildung 7.4: Beugungseffizienz des AOM (*links*) und Leistungskurven des Ramanlasers bei verschiedenen RF-Leistungen des AOM (*rechts*)

7.4 Zeitliche Stabilität der Ramanimpulse

Für die Messung der Puls-zu-Puls-Stabilität des Ramanlasers werden 110 aufeinanderfolgende Impulse mit einer schnellen Photodiode der Firma Alphalas (Typ UPD-70-IR2-P) mit einer Anstiegszeit von 70 ps über die Fast-Frame-Funktion des 500 MHz-Oszilloskops der Firma Tektronix (Modell TDS 7054) aufgenommen. Anschließend werden aus den gespeicherten Impulsformen die relative Spitzenleistung und Impulsenergie (normiert auf den Mittelwert) berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 7.7 dargestellt. Man erkennt eine sehr große Schwankungsbreite der einzelnen Impulse mit einer Standardabweichung der Impulsenergie von 26 % und der Impuls-Spitzenleistung von 68 %. Die Erzeugung der Raman-Welle ist demnach sehr stark abhängig von den bei jedem Impuls vorliegenden Startbedingungen. Dieses Verhalten schränkt die Verwendbarkeit des Lasers auf Anwendungen mit sehr langsamen Prozessen ein, bei denen über eine große Anzahl von Impulsen gemittelt werden kann.

Die Messung des zeitlichen Impulsverlaufs der Ramanimpulse (Abbildung 7.8) zeigt sehr starke Modulationen im zeitlichen Abstand der Resonatorumlaufzeit. Dies lässt sich über die exponentielle Abhängigkeit der stimulierten Ramanstreuung von der Pumpleistung erklären. Hierdurch wird das für einen Multimode-Laser typische Modebeating deutlich verstärkt. Dieser Effekt ist auch bei Drei-Wellen-Mischprozessen sichtbar, wenngleich aufgrund der lediglich quadratischen Abhängigkeit von der Pumpleistung nicht ganz so ausgeprägt. Die starke Modulation des Stokes-Impulses wurde in der Literatur auch schon durch Selbst-Modenkopplung erklärt [105]. Die Dynamik des Energietransfers zwischen Fundamental- und Stokeswelle soll in Analogie zum synchronen Pumpen für diese Form der Modenkopplung verantwortlich sein.

Für die Frequenzverdopplung der Ramanstrahlung könnte man bei typischerweise erreichbaren Konversionseffizienzen von 40-50% mit den hier gezeigten Ergebnissen etwa 600-700 mW Laserstrahlung im gelben Spektralbereich erzeugen. Entsprechende Experimente sind für die nähere Zukunft im Anschluss an diese Arbeit geplant.



Abbildung 7.5: Leistung in Abhängigkeit von der Pumpleistung für verschiedene Pulsrepetitionsraten bei 1176 nm.



Abbildung 7.6: Impulsenergie in Abhängigkeit von der Pumpleistung für verschiedene Pulsrepetitionsraten bei 1176 nm.



Abbildung 7.7: Puls-zu-Puls-Stabilität des Ramanlasers. Aufgetragen sind Spitzenleistung und Impulsenergie, normiert auf den Mittelwert für 110 aufeinanderfolgende Impulse.



Abbildung 7.8: Vergrößerte Darstellung eines einzelnen Impulsverlaufs des Ramanlasers. Außerdem dargestellt die verbleibende Impulsform bei 1064 nm sowie 1064 nm-Emission ohne Raman-Aktivität

7.5 Fazit

Die hier durchgeführten Untersuchungen zeigen, dass das Konzept des Ramanlasers eine interessante Möglichkeit zur Erzeugung alternativer Laserwellenlängen bietet. Als problematisch erweist sich jedoch die Stabilität und Reproduzierbarkeit des Ramanlasers. Als Grund hierfür kann die exponentielle Abhängigkeit der stimulierten Raman-Streuung von der eingestrahlten Pumpstrahlung angesehen werden. Diese macht das Konzept extrem empfindlich gegenüber Qualitätsschwankungen der Komponenten oder mechanischen Einflüssen, die die Justage beeinflussen können. Bis das hier vorgestellte Konzept zu einem markttauglichen Produkt werden kann, müssen daher noch einige technologische Herausforderungen gemeistert werden.

Kapitel 8

OPGs im nahen und mittleren Infrarot

8.1 1064 nm gepumpter OPG im Wellenlängenbereich 3,5-4,6 μ m

Abstimmbare Laserstrahlung mit Wellenlängen im mittleren Infrarot (MIR) wird benötigt für zahlreiche Anwendungen in den Bereichen Spektroskopie und LIDAR. Auch für militärische Einsatzgebiete wie die Raketenabwehr durch Blendung oder Zerstörung der Zielsensorik sind solche Strahlquellen von großem Interesse. Die spezifischen Einzelheiten der Anwendung entscheiden dabei, ob eher Impulsenergie oder mittlere Leistung von größerer Bedeutung sind. In jedem Fall aber ist eine Pulsrepetitionsrate im kHz-Bereich zur schnellen Signalverarbeitung oder zur Mittelung der Signale von Vorteil. Eine gute Strahlqualität ermöglicht eine hohe Ortsauflösung bei atmosphärischen Messungen über große Distanzen oder die Einkopplung in Fasern mit kleinem Kerndurchmesser.

8.1.1 Konzepte zur Erzeugung von Laserstrahlung im MIR

Zur Realisierung abstimmbarer Strahlquellen im MIR sind optisch nichtlineare Materialien mit einer großen Transparenz in diesem Spektralbereich gefragt. Leider besitzen praktisch alle Materialien mit einem Transparenzbereich, der über 5 μ m hinaus geht, wie zum Beispiel AgGaSe, ZGP, LIS oder GaAs, starke Absorptionen im Sichtbaren und nahen Infrarot [106–109]. Optisch parametrische Prozesse in diesen Materialien benötigen daher Pumpquellen mit Wellenlängen in der Größenordnung 2 μ m. Laser, basierend auf Atomen der Seltenen Erden wie Erbium, Tulium, oder Holmium, eingebettet in Wirtskristalle wie YSGG oder YAG, kommen hierfür in Frage [110]. Diese sind bislang aber wenig effizient und müssen bei Wellenlängen angeregt werden, die kommerziell nur mit eingeschränkter Leistung erhältlich sind. Auch zusätzliche optisch parametrische Prozesse in NIR-Materialien kommen als Pumpquellen in Frage, die ihrerseits bei einer Wellenlänge von 1 μ m gepumpt werden. Eine Herausforderung liegt hierbei darin, die Strahlung im Bereich von 2 μ m spektral soweit einzuschränken, dass diese innerhalb der Akzeptanzen für den darauffolgenden Konversionsprozess liegt. Basierend auf diesem Konzept konnten mit entsprechend starken Pumplasern bereits beachtliche Leistungen im MIR erzeugt werden. So erreichten beispielsweise Henriksson et al. bis zu 170 μ J im Wellenlängenbereich von 3,3-5,2 μ m bei einer Pulsrepetitionsrate von 20 Hz in einer Kette bestehend aus Nd:YAG-Laser, KTP-OPO und ZGP-OPO [111]. Phua et al. konnten, ausgehend von einem Nd:YVO₄-Laser mit Pulsrepetitionsraten im Bereich von 15-20 kHz, mit einer ähnlichen OPO bis zu 5,5 W mittlere Leistung, verteilt auf vier Wellenlängen (3,5 μ m, 4,3 μ m, 4,6 μ m und 5,5 μ m), erzeugen [112]. Nachteilig bei diesen Konzepten ist allerdings die enorm gesteigerte Empfindlichkeit des aus drei aufeinanderfolgenden Resonatoren bestehenden Gesamtsystems. Zudem wird auch die erreichbare Strahlqualität im MIR durch den zusätzlichen Konversionsprozess reduziert.

Die direkte Verwendung von NIR-Materialien wie Lithiumniobat (LN) oder Lithiumtantalat (LT) wird durch die rapide abnehmende Transparenz ab etwa 4 μ m erheblich eingeschränkt. Die höchste bislang mit diesem Ansatz veröffentlichte mittlere Leistung beträgt 260 mW bei 4060 nm in einem Intracavity-OPO von Jensen et al., basierend auf PPLN, der in einen Yb:YAG-Laser integriert ist [113].

Das im Folgenden realisierte Konzept geht aus von dem in Abschnitt 3.3.6 vorgestellten Oszillator-Verstärker System bei 1064 nm. Die Verwendung dieses hochrepetierenden TEM₀₀-Nanosekundenlasers als Pumpquelle für einen OPG, basierend auf MgO:PPLN, lässt gute Konversionseffizienzen trotz vergleichsweise großer Strahldurchmesser im OPG-Kristall erwarten. Ermöglicht wird dies durch die mittlerweile hervorragende Qualität der kommerziell erhältlichen periodisch gepolten Kristalle. Gleichzeitig bietet auch das Lasersystem die entsprechenden Voraussetzungen durch die hohen Spitzenleistungen und eine beugungsbegrenzte Strahlqualität. Der Aufbau besticht dabei durch seine Einfachheit, die dem Konzept neben wirtschaftlichen Aspekten eine große Stabilität verleiht. Das Konzept des OPG bietet zudem die Möglichkeit einer weiten Wellenlängenabstimmung nur durch die Wahl der Polungsperiode und der Temperatur des Kristalls.

8.1.2 Versuchsaufbau

Der Aufbau des Systems ist in Abbildung 8.1 dargestellt. Als Pumpquelle dient das in Kapitel 3.3.6 dargestellte gütegeschaltete Oszillator-Verstärker-System bei einer Emissionswellenlänge von 1064 nm. Bei einer Diodenpumpleistung von 54 W liefert der Laser in diesem Aufbau eine maximale Ausgangsleistung von 13 W mit Impulsdauern von 9 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 25 kHz. Dies entspricht einer Impulsspitzenleistung von fast 60 kW bei einer Impulsenergie von 520 μ J. Ein Faraday-Isolator der Firma *Linos* schützt das Lasersystem vor Rückreflexen, die im Verstärker zu ei-



Abbildung 8.1: Versuchsaufbau des 1064 nm gepumpten OPG-Systems

nem Abbau der Besetzungsinversion oder zu einem instabilen Verhalten des Lasers aufgrund gekoppelter Oszillatoren führen können. Die Laserstrahlung wird mit einer Linse der Brennweite 300 mm in einen MgO:PPLN-Kristall fokussiert. Der Taillenradius beträgt hierbei 170 μ m. Die Länge des Kristalls beträgt 34,5 mm, die Dicke 1 mm. Der MgO:PPLN-Kristall besitzt 8 Kanäle mit Polungsperioden von 27,1 μ m bis 29,9 μ m. Durch die Wahl des Kanals kann die Wellenlänge in groben Schritten, durch Änderung der Temperatur des Kristalls in feinen Schritten (praktisch stufenlos) abgestimmt werden.

8.1.3 Ausgangsleistung und Strahlqualität

Abbildung 8.2 zeigt die gemessene OPG-Leistung in Abhängigkeit von der Polungsperiode des MgO:PPLN-Kristalls. Die Messung wird bei einer Pumpleistung von 13 W, einer Pulsrepetitionsrate von 25 kHz und einer konstanten Kristalltemperatur von 70 °C durchgeführt. Die höchste Leistung wird bei einer Polungsperiode von 29,1 μ m erreicht, und zwar in der Signalstrahlung 2,31 W bei 1460 nm und 680 mW bei 3924 nm in der Idlerstrahlung. Dies entspricht einer Gesamt-Konversionseffizienz von 23 % ohne Berücksichtigung von Fresnelverlusten an den Kristallfacetten (ohne AR-Schichten). Für kürzer werdende Polungsperioden nimmt die OPG-Leistung aufgrund der zuneh-



Abbildung 8.2: Signal-, Idler-, und OPG-Gesamtleistung in Abhängigkeit von der Polungsperiode des MgO:PPLN-Kristalls bei einer konstanten Temperatur von 70 °C. Dies entspricht einer Wellenlängenabstimmung von 3,63 μ m bis 4,60 μ m in der Idlerstrahlung und 1,50 μ m bis 1,38 μ m in der Signalstrahlung.



Abbildung 8.3: Mit einer pyroelektrischen Kamera aufgezeichnes Strahlprofil bei 4,5 μ m

menden Idlerabsorption ab. Für eine Polungsperiode von 27,5 μ m werden noch 320 mW bei 4465 nm und im Kanal mit 27,1 μ m immerhin noch 170 mW bei 4604 nm erzeugt.

Die Strahlqualität der erzeugten Idlerstrahlung wird aus Messungen mit einer pyroelektrischen Kamera (*Spiricon Pyrocam3*) auf ein M² kleiner 2,5 abgeschätzt. Ein aufgezeichnetes Strahlprofil bei einer Wellenlänge von 4,5 μ m ist in Abbildung 8.3 dargestellt.

8.1.4 Abstimmbarkeit

Die Abstimmung der Wellenlänge bei gleichzeitig eingestrahlter Pumpleistung ist mit einem erhöhten Risiko verbunden, den MgO:PPLN-Kristall zu schädigen. So gibt es bestimmte Kombinationen von Temperatur und Polungsperiode, bei denen die parasitäre SHG-Erzeugung der Pumpstrahlung um ein Vielfaches erhöht ist. An diesen Punkten wird durch das Auftreten der grüninduzierten Infrarotabsorption (GRIIRA, siehe Abschnitt A.3) auch entprechend ein Vielfaches an Pumpleistung bei 1064 nm im Kristall absorbiert, was in diesem zu starken thermischen Schädigungen führt.



Abbildung 8.4: Beispiel für die Messung (*links*) und Änderung der Position der Grünpeaks in Abhängigkeit von der Polungsperiode (*rechts*)

Um nun das OPG-System sicher betreiben zu können, wurde in einer Voruntersuchung der komplette Temperaturbereich für jeden Kristall abgescannt und bei einer Pumpleistung von ca. 1 W die erzeugte SHG-Leistung mitprotokolliert. Ein Beispiel für eine entsprechende Messung ist in Abbildung 8.4 bei einer Polungsperiode von 27,5 μ m dargestellt.

Das Auftreten dieser sogenannten Grünpeaks kann auf Quasiphasenanpassung höherer Ordnung zurückgeführt werden. Sehr ähnliche Ergebnisse wurden bereits in Untersuchungen von O. Paul [114] gezeigt, der die in seinen Experimenten aufgetretenen Grünpeaks unter Verwendung der Sellmeier-Gleichung für CLN als Phasenanpassung 4. Ordnung identifizierte. Die hier gemessenen Peaks weisen jedoch deutliche Abweichungen von diesen Messungen auf, deren Ursache noch nicht ganz geklärt werden konnte.



Abbildung 8.5: Wellenlängenabstimmung der Idlerstrahlung von 3,5 μ m bis 4,5 μ m in Schritten von 5 nm. Aufgetragen ist die mittlere Ausgangsleistung in Abhängigkeit von der Wellenlänge, sowie die korrespondierende Kombination aus Polungsperiode und Kristalltemperatur. Ab einer Wellenlänge von 4,1 μ m wurde die Pumpleistung von 12 W auf 9 W reduziert.

Abbildung 8.5 zeigt die gemessene Idlerleistung in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Die Pumpleistung beträgt zunächst 12 W und wird aufgrund der zunehmenden Absorption ab einer Wellenlänge von etwa 4,1 μ m auf 9 W reduziert, um Schädigungen des Kristalls vorzubeugen. Diese Leistungsangaben entsprechen einer Energiedichte

von 0,5 J/cm² bzw. 0,4 J/cm². Die spektrale Breite der Idlerstrahlung wurde bei einer Wellenlänge von 4,0 μ m direkt mit einem Fourierspektrometer gemessen und beträgt wie in Abbildung 8.6 gezeigt 4 nm, oder in Frequenzen ausgedrückt 75 GHz.



Abbildung 8.6: Direkt gemessenes Spektrum der Idlerstrahlung bei einer Idlerwellenlänge von 4 μ m. Die spektrale Breite beträgt 4 nm

Um die Wellenlängenabstimmung des OPG-Systems zu automatisieren, wurde eine Steuersoftware programmiert, die basierend auf den temperaturabhängigen Sellmeier-Gleichungen die zu einer bestimmten Wellenlänge zugehörige Temperatur und Polungsperiode einstellt. Die erreichte Genauigkeit ist, wie in Abbildung 8.7 zu sehen, bei einer Wellenlängenabstimmung von $3,5 - 4,5 \mu m$ besser als 2 nm. Die Automatisierung erlaubt es auch, die Bereiche der Grünpeaks als verboten zu markieren, um so einen sicheren und vollautomatisierten Betrieb des OPG-Systems zu gewährleisten.

8.1.5 Fazit

Das im Rahmen dieser Arbeit realisierte OPG-System liefert die höchste bislang veröffentlichte Leistung im mittleren infraroten Spektralbereich für ein einstufiges System, ausgehend von 1064 nm. Dieses Konzept zeichnet sich durch eine hohe Gesamteffizienz, eine hervorragende Strahlqualität und aufgrund des relativ einfachen Versuchsaufbaus durch eine überlegene Stabilität aus. Zudem wurde die vollautomatisierte Durchstimmbarkeit von 3,5 bis 4,5 μ m demonstriert.



Abbildung 8.7: Gemessene Abweichungen vom Sollwert bei automatisierter Anwahl der Idlerwellenlänge für einen Wellenlängenbereich von $3,5 \ \mu m$ bis $4,5 \ \mu m$.

8.2 1342 nm-gepumpter OPG im Wellenlängenbereich von 2 μ m

Speziell für Aufgaben im Bereich der Spektroskopie ist die spektrale Breite der Laserstrahlung von zentraler Bedeutung. Dopplerfreie Anwendungen der Laserspektroskopie benötigen typischerweise Linienbreiten von wenigen MHz oder darunter. Gütegeschaltete Laser mit Impulsdauern im Nanosekundenbereich können spektral durch die Methode des Injection Seeding bis auf das Fourierlimit von einigen zehn Megahertz eingeengt werden [115]. Um geringere Linienbreiten zu erreichen, müssen gemäß dem Zeit-Bandbreitenprodukt für das Fourierlimit größere Impulsdauern verwendet werden. Für höchste Anforderungen an die Schmalbandigkeit der Strahlung werden entsprechend stabilisierte kontinuierlich emittierende Laser mit spektraler Filterung eingesetzt. Die erreichbaren Linienbreiten liegen hier im 100-mHz-Bereich [116] und werden letztlich begrenzt durch das Shawlow-Townes-Limit [117].



Abbildung 8.8: Spektrale Breite für einen bei 1064 nm gepumpten OPG mit Entartung

Es gibt aber auch Anwendungen, wie z.B. der selektive Nachweis bestimmter Gasmoleküle, in denen nur das dopplerverbreitete Spektrum von Interesse ist. Die Linienbreiten bewegen sich dann in der Größenordnung von einigen hundert MHz bis einigen GHz. Hierfür können auch ungeseedete Nanosekundenlaser mit typischen spektralen Breiten von etwa 60 GHz zum Einsatz kommen. Optisch parametrische Prozesse zur Erzeugung abstimmbarer Strahlung belassen die Linienbreiten dabei weitgehend in der gleichen Größenordnung [11]. Anders sieht dies jedoch im Bereich der Entartung eines optisch parametrischen Prozesses aus. Hier wächst die Linienbreite aufgrund der divergierenden Akzeptanzen auf mehr als hundert Nanometer an. Für OPOs besteht hier die Möglichkeit, die spektrale Breite über eine schmalbandige Rückkopplung, z.B. mit Bragg-Spiegeln [118], einzuengen. Dies erfolgt allerdings auf Kosten der Abstimmbarkeit des Systems. Für OPGs gibt es im Wellenlängenbereich der Entartung dagegen keine entsprechenden Möglichkeiten. Abbildung 8.8 zeigt sehr deutlich, wie in einem Bereich von mehreren hundert Nanometern um die Entartung bei 2128 nm die spektrale Breite von Signal- und Idlerstrahlung eines 1064 nm-gepumpten OPGs anwachsen.

Eine Alternative stellt daher ein OPG mit einer Pumpwellenlänge von 1342 nm dar, dessen Entartung erst bei 2,7 μ m liegt. Die Voraussetzung für einen effizienten Konversionsprozess ist dabei eine Strahlquelle mit guter räumlicher Strahlqualität und kurzen Impulsdauern zur Erzielung hoher Spitzenintensitäten wie sie in Kapitel 3.4 bereits vorgestellt wurden.



Abbildung 8.9: Versuchsaufbau des 1342 nm-gepumpten OPG-Systems

8.2.1 Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau, dargestellt in Abbildung 8.9, ist dem aus Abschnitt 8.1 sehr ähnlich und bewusst einfach gehalten, was die Stabilität erhöht und die Kosten des Systems überschaubar hält. Der bereits in Abschnitt 3.4 ausführlich dargestellte Laser mit zwei Pumpdioden und einer Emissionswellenlänge von 1342 nm wird mit einer antireflexbeschichteten Plankonvexlinse mit f=200 mm kollimiert. Ein Faradayisolator (LINOS FI-1310-4 SL) unterdrückt das Auftreten gekoppelter Oszillatoren, die durch Rückreflexe an den unbeschichteten Kristallfacetten entstehen können. Eine Linse mit f=100 mm fokussiert anschließend die Strahlung in einen MgO:PPLN-Kristall. Der Kristall mit einer Länge von 45,2 mm und einer Dicke von 0,5 mm von der Firma *HCP* wurde exemplarisch bei einer Polungsperiode von 34,9 μ m verwendet. Die Strahltrennung erfolgt über zwei dichroitische Spiegel.

8.2.2 Experimentelle Charakterisierung

Die Abstimmbarkeit des OPGs entspricht prinzipiell dem in Abschnitt 8.1 vorgestellten Systems bei einer Pumpwellenlänge von 1064 nm. Für die verwendete Polungsperiode von 34,9 μ m sind die erreichbaren Signal- und Idlerwellenlängen bei Variation der Kristalltemperatur von 60 bis 120 °C in Abbildung 8.10 dargestellt. Da sowohl Signal- als auch Idlerwellenlänge außerhalb des zur Verfügung stehenden Gittermonochromators (ANDO AQ6315 mit Wellenlängenbereich 350-1750 nm) liegen, wird stattdessen die parasitär auftretende Summenfrequenzmischung von 1342 nm und der Signalstrahlung gemessen. Die Wellenlänge der SFG-Strahlung liegt bei etwa 814 nm und lässt über die Energieerhaltung gemäß

$$\lambda_{sig} = \left(\frac{1}{\lambda_{SFG}} - \frac{1}{\lambda_{pump}}\right)^{-1} \tag{8.1}$$

eine einfache Berechnung der Signalwellenlänge zu. Die Änderung der Kristalltemperatur von 60°C korrespondiert mit einem Abstimmbereich von 19 nm bei der Signalstrahlung (2061 nm-2080 nm) und 65 nm bei der Idlerstrahlung (3846 nm-3781 nm).

In Abbildung 8.11 sind exemplarisch gemessene Leistungskurven sowie in Abbildung 8.12 die zugehörigen Konversionseffizienzen in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung bei 1342 nm bei einer Signalwellenlänge von 2,28 μ m und einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz dargestellt. Bei der maximal verwendeten Pumpleistung von 2,5 W wurden 400 mW Signal- und 250 mW Idlerstrahlung erzeugt, was einer Gesamt-Konversionseffizienz von mehr als 25% entspricht.

Die direkte Messung der spektralen Breite der Signalstrahlung ist mit den zur Verfügung stehenden Mitteln nicht möglich. Die spektrale Breite der SFG-Strahlung lässt aber in ähnlicher Weise, wie bei der Bestimmung der absoluten Wellenlänge, Rückschlüsse auf die spektrale Breite der Signalstrahlung zu. Als Abschätzung, die auch von analogen Experimenten mit einer Pumpwellenlänge von 671 nm (siehe Abschnitt 8.3) bestätigt wird, kann die Signalbandbreite auf einen Wert kleiner 2 nm bestimmt werden. Sie ist damit etwa 50 mal schmaler als bei einem vergleichbaren OPG bei einer Pumpwellenlänge von 1064 nm.



Abbildung 8.10: Wellenlängenabstimmung der Signal- und Idlerstrahlung über die Temperatur des PPLN-Kristalls

8.2.3 Fazit

Die gezeigten Messungen demonstrieren erstmalig die Verwendung von 1342 nm als Pumpe für einen OPG. Bei einer Pumpleistung von nur 2,5 W konnte eine Gesamt-Konversionseffizienz des OPG von 25 % erreicht werden. Der große Vorteil dieses Konzepts liegt in dem wesentlich erleichterten Zugang in den Wellenlängenbereich der Entartung von vergleichbaren, auf 1064 nm basierenden Lasern. Als weiterer Vorteil ist davon auszugehen, dass die Zerstörschwelle des verwendeten MgO:PPLN-Kristalls durch das Ausschließen von GRIIRA bei dieser Pumpwellenlänge höher sein sollte als beim Pumpen mit 1064 nm.



Abbildung 8.11: Mittlere Ausgangsleistung in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung bei 1342 nm. Die Wellenlängen von Signal- und Idlerstrahlung betragen 2,28 μ m bzw. 3,26 μ m



Abbildung 8.12: Konversionseffizienz des 1342 nm-gepumpten OPGs in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung. Die Wellenlängen von Signal- und Idlerstrahlung betragen 2,28 μ m bzw. 3,26 μ m

8.3 Rot-gepumpter OPG im nahen Infrarot

Die Erzeugung abstimmbarer Strahlung im nahen Infrarotbereich kann für den Wellenlängenbereich von 680 bis 1100 nm in ausgereiften Systemen durch Ti:Sa-Laser erreicht werden. Ab 1400 nm können optisch parametrische Generatoren gepumpt bei 1064 nm auf der Basis von periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN) als zuverlässige Strahlquellen dienen. Lithiumniobat kann als Standardmaterial für Quasiphasenanpassung mittlerweile in hervorragender Qualität hergestellt und periodisch gepolt werden. Aufgrund der hohen Nichtlinearität und des großen Transparenzbereichs eignet es sich hervorragend für den Einsatz in OPGs in Kombination mit hochrepetierenden gütegeschalteten Festkörperlasern. OPGs weisen gegenüber OPOs eine einfachere Abstimmbarkeit auf, die nicht an die Reflektivitäten von Resonatorspiegeln gekoppelt ist. Zudem sind sie durch das gänzliche Fehlen des Resonators robuster gegen äußere Einflüsse, benötigen im Gegenzug allerdings höhere Schwellenleistungen. Im Wellenlängenbereich zwischen 1100 und 1400 nm können diese Systeme aufgrund der massiven Idlerabsorption nicht mehr eingesetzt werden. Ein Wechsel zur leicht verfügbaren zweiten Harmonischen bei 532 nm als Pumpquelle kann aufgrund der grüninduzierten Infrarotabsorption (siehe Anhang A.3) nur für sehr niedrige Ausgangsleistungen als Lösung dienen. Bei einer Annäherung an die Entartung bei 1064 nm kommt es hier zunächst zu einer spektralen Verbreiterung aufgrund der rapide wachsenden Akzeptanzen, was die Eignung für spektroskopische Anwendungen stark einschränkt. Ab einem gewissen Punkt kommt es schließlich zu einer spektralen Kondensation bei 1064 nm, da der parametrische Prozess nicht mehr aus dem Rauschen starten muss, sondern von nicht ganz unterdrückten Fragmenten der fundamentalen Laserstrahlung geseedet wird. Um die in Abbildung 8.13 veranschaulichte Lücke im nahen Infrarot zu schließen wurde von Zenzie et. al ein Ti:Sa-gepumpter OPO demonstriert [119]. Dieser arbeitet allerdings bei einer Pulsrepetitionsrate von nur 10 Hz und ist aufgrund der großen Komplexität (drei aufeinanderfolgende Resonatoren) für praktische Anwendungen kaum geeignet.





Eine elegante Lösung, um die Lücke in diesem Spektralbereich abzudecken bietet der Einsatz der frequenzverdoppelten Strahlung eines 1342 nm-Lasers als Pumpe für einen

OPG. Die Realisierung einer solchen Strahlquelle wird ermöglicht durch die vorhergehende Entwicklung des in Abschnitt 5.1 vorgestellten Lasersystems bei 671 nm, welches gütegeschaltete Impulse hoher Spitzenleistung und einer hervorragenden Strahlqualität liefert.

8.3.1 Versuchsaufbau



Abbildung 8.14: Versuchsaufbau des 671 nm gepumpten OPG-Systems

Abbildung 8.14 zeigt den Versuchsaufbau des OPG-Systems. Grundlage ist, wie bereits oben erwähnt, das in Abschnitt 5.1 vorgestellte Lasersystem mit einer Emissionswellenlänge von 1342 nm mit zwei Pumpdioden. Ein Faradayisolator (LINOS FI-1310-4 SL) unterdrückt das Auftreten gekoppelter Oszillatoren, die durch Rückreflexe an den unbeschichteten Kristallfacetten entstehen können. Die Laserstrahlung wird nach Durchgang durch den Faraday-Isolator mit einer Linse mit f=125 mm in einen LBO-Kristall mit den Dimensionen $3x3x20 \text{ mm}^3$ fokussiert. Die Strahltaille im Kristall misst dabei etwa 120 μ m. Die nach der SHG-Erzeugung verbleibende Fundamental-Strahlung wird mit einer Linse mit f=80 mm in einen MgO dotierten periodisch gepolten CLN Kristall zu einer Strahltaille von 90 μ m fokussiert. Die unbeschichtete Kristall von der Firma HCP hat die Dimensionen 45,1x5x0,5 mm³ mit drei Kanälen mit Polungsperioden von 13,46, 13,66 und 13,86 μ m.

8.3.2 Experimentelle Charakterisierung

Die Wellenlängenabstimmung kann durch die Wahl von Temperatur und Polungsperiode erfolgen. Vermessen wurde exemplarisch die Signalwellenlänge in einem Temperaturbereich von 58-115 °C bei den Polungsperioden 13,46, 13,66 und 13,86 nm. Wie in Abbildung 8.15 dargestellt, lässt sich damit der Wellenlängenbereich von 1090 bis 1340 nm lückenlos abdecken. Betrachtet man allerdings die in Abbildung 8.16 dargestellte spektrale Breite der Signalstrahlung, so erkennt man, dass ab einer Wellenlänge von 1250 nm eine rapide Verbreiterung der Spektralen Breite einsetzt. Dies ist durch die zunehmende Bandbreiten-Akzeptanz im Bereich der Entartung zu verstehen. Ab einer Signalwellenlänge von 1300 nm beginnt die durch den parametrischen Prozess erzeugte Strahlung bei der Entartungswellenlänge von 1342 nm zu kondensieren.

Was bei einer Wellenlängenabstimmung des Systems berücksichtigt werden muss, ist eine leichte Verschiebung der Wellenlängen in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung. Das Verhalten ist für eine Signalwellenlänge von etwa 1145 nm in Abbildung 8.17 dargestellt. Bei einer Erhöhung der Pumpleistung von der Schwelle (bei etwa 200 mW) auf 1,2 W reduziert sich die Signalwellenlänge um ca. 2 nm. Dies ist auf eine Absorption der durch den Kristall transmittierten Strahlen zurückzuführen, die zu einer zusätzlichen lokalen Erwärmung des Kristalls um ca. 3 °C führt. Gleichzeitig lässt sich mit zunehmender Pumpleistung eine spektrale Verbreiterung der Signalstrahlung von 1,3 nm auf 3,1 nm beobachten.

Die Ausgangsleistung wurde exemplarisch bei einer Signalwellenlänge von 1090 nm in Abhängigkeit von der OPG-Pumpleistung bei 671 nm (siehe Abbildung 8.18) vermessen. In Abbildung 8.19 sind jeweils auch die zugehörigen Konversionseffizienzen von Signal-, Idler und Gesamt-OPG-Strahlung dargestellt . Bei einer maximal eingestrahlten Leistung von 1,5 W werden 420 mW Signalstrahlung bei 1090 nm und 260 mW Idlerstrahlung bei 1745 nm erzeugt. Dies entspricht einer Gesamtkonversionseffizienze von 44%.

8.3.3 Fazit

Bei dem vorgestellten OPG wurde erstmalig die Pumpwellenlänge von 671 nm verwendet. Es stellt eine interessante Möglichkeit dar abstimmbare Laserstrahlung im nahen infraroten Spektralbereich zu erzeugen. Besonders in dem für andere Lasertypen schwer zugänglichen Wellenlängenbereich von 1100 bis 1200 nm kann mit dieser Methode abstimmbare Strahlung mit mittleren Ausgangsleistungen von einigen hundert Milliwatt bei einer spektralen Breiten unter 2 nm erzeugt werden.



Abbildung 8.15: Wellenlängenabstimmung der Signalstrahlung über die Temperatur und Polungsperiode des MgO:CLN-Kristalls.



Abbildung 8.16: Spektrale Breite der Signalstrahlung in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei $\lambda_P=671~{\rm nm}$



Abbildung 8.17: Änderung der Wellenlänge und Bandbreite der Signalstrahlung in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung aufgrund von Absorptionen im PPLN-Kristall



Abbildung 8.18: OPG-Leistungskurve bei einer Pumpwellenlänge von bei 671 nm in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pumpleistung. Die Wellenlängen von Signal- und Idlerstrahlung betragen 1090 nm bzw. 1745 nm


Abbildung 8.19: OPG Konversionseffizienz bei einer Pumpwellenlänge von bei 671 nm in Abhängigkeit der eingestrahlten Pumpleistung. Die Wellenlängen von Signal- und Idlerstrahlung betragen 1090 nm bzw. 1745 nm

Kapitel 9

Zusammenfassung

Im Fokus dieser Arbeit stand die anwendungsnahe Realisierung und Charakterisierung der wesentlichen physikalischen Prozesse von innovativen Laserstrahlquellen im Wellenlängenbereich vom tiefen Ultraviolett bei 213 nm bis hin zum mittleren Infrarot bei 4,6 μ m durch optisch nichtlineare Frequenzkonversion.

Grundlage für alle Strahlquellen bildeten gepulste Festkörperlaser mit Pulsrepetitionsraten im Kilohertzbereich. Als effiziente Pumpquellen für das Lasermaterial Nd:YVO₄ wurden fasergekoppelte Diodenlasermodule mit hoher Brillianz verwendet. Die Pulserzeugung erfolgte durch aktive Güteschaltung mit akustooptischen Modulatoren. Diese Laser sind effizient, kompakt und konnten aufgrund der reduzierten Zahl der erforderlichen Komponenten robust und zuverlässig aufgebaut werden, wodurch eine Grundvoraussetzung für zahlreiche Applikationen geschaffen wurde. Mit Spitzenleistungen im Kilowattbereich eigenen sich diese Laser darüberhinaus sehr gut für Anwendungen in der nichtlinearen Optik.

Basierend auf diesen Lasern wurden verschiedene Konzepte realisiert um die Laserstrahlung mit den Mitteln der nichtlinearen Optik in andere Spektralbereiche zu konvertieren.

Basierend auf dem Standard-Laserübergang von 1064 nm in Nd:YVO₄ wurde bei einer eingestrahlten Pumpleistung von 18,4 W eine Ausgangsleistung von 4,6 W mit Impulsdauern von 8,9 ns bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz erreicht. Die emittierte Strahlung war beugungsbegrenzt mit einem M²-Faktor kleiner 1,1. Zur optionalen Leistungsskalierung wurde der Laser in einem Single-Pass-Verstärker auf eine mittlere Leistung von 13 W nachverstärkt. Die hervorragende Strahlqualität blieb auch nach der Verstärkung vollständig erhalten.

Die Verwendung des Laserübergangs von 1342 nm in Nd: YVO_4 eröffnete völlig neue Möglichkeiten spezielle Spektralbereiche mit den Mitteln der nichtlinearen Optik zu erreichen. Trotz des größeren Quantendefekts und des deutlich kleineren Wirkungsquerschnitts der stimulierten Emission, wurden Nanosekundenlaser mit hohen Spitzenleistungen und einer guten Strahlqualität entwickelt. Es wurde ein Resonatorkonzept mit zwei Pumpdioden realisiert. Dieses erreichte bei 15 kHz eine mittlere Leistung von 4,9 W bei einer Impulsdauer von 11 ns. Der entwickelte Laser zeichnet sich durch seine hervorragende Strahlqualität ($M^2 < 1,1$), eine kompakte Bauform und sehr kurze Impulsdauern aus.

Aufbauend auf diesen Lasern wurden verschiedene Konzepte untersucht, um die Laserstrahlung mit den Mitteln der nichtlinearen Optik in andere Spektralbereiche zu konvertieren.

Für Anwendungen im tiefen ultravioletten Spektralbereich wurde erstmals über die Summenfrequenzmischung der zweiten und dritten Harmonischen von 1064 nm in BBO, ein Nanosekundenlasersystem bei der fünften Harmonischen (213 nm) realisert. Dieses lieferte mittlere Ausgangsleistungen von bis zu 154 mW bei einer Pulsrepetitionsrate von 15 kHz. Herausragend war hierbei auch die Strahlqualität der emittierten Strahlung mit einem M^2 von 1,4. In einem bezüglich der Langzeitstabilität optimierten Aufbau konnte die Degradation des Lasersystems soweit reduziert werden, dass keine Abnahme der Ausgangsleistung, bei einer Messzeit von über 90 Stunden, beobachtet wurde.

Der Laserübergang bei 1342 nm wurde genutzt um mithilfe der zweiten und dritten Harmonischen effiziente Strahlquellen im roten und blauen Spektralbereich zu realisieren. Die erreichten mittleren Ausgangsleistungen betrugen 1,8 W bei 671 nm und 1,4 W im blauen Spektralbereich mit einer beugungsbegrenzten Strahlung (M²<1,2).

Während sichtbare Strahlung im blauen, grünen und roten Spektralbereich durch die Harmonischen von Laserstrahlung bei 1064 nm und 1342 nm erzeugt werden kann, ist der für viele Applikationen interessante Spektralbereich im gelben (um 590 nm) schwierig zu erreichen. Hierfür wurden zwei völlig unterschiedliche Konzepte untersucht. Den erste Ansatz zur Erzeugung von Laserstrahlung im gelben Spektralbereich stellte ein frequenzverdoppelter Selbstramanlaser dar. Unter Ausnutzung der stimulierten Raman Streuung in YVO₄ wurde eine mittlere Ausgangsleistung von 1,5 W bei einer Wellenlänge im nahen Infrarot von 1176 nm erzeugt.

Der zweite Ansatz nutzt die Summenfrequenzmischung (SFG) zweier synchronisierter Laseroszillatoren bei 1064 nm und 1342 nm. Durch die phasenstarre Kopplung des AOM Triggers an die RF-Welle wurde der zeitliche Jitter der jeweiligen Nanosekundenimpulse zueinander auf etwa 500 ps reduziert. Vergleichende SFG-Experimente wurden in den optisch nichtlinearen Materialien LBO und BiBO durchgeführt. Die höchste mittlere Leistung bei 593 nm wurde mit 1,6 W in LBO erreicht und erfüllt damit bereits die Anforderungen vieler Applikationen. Darüberhinaus demonstrieren diese Untersuchungen das Potential dieses Konzepts und können als Grundlage für eine Vielzahl anderer Experimente angesehen werden.

Ebenso attraktiv für viele Applikationen wie Spektroskopie, LIDAR oder militärische Anwendungen ist der Spektralbereich von 3,5-4,6 μ m. Es gestaltet sich ausgesprochen schwierig im MIR >4 μ m Strahlung zu erzeugen, da alle verfügbaren optisch nichtlinearen Materialien entweder im MIR oder NIR absorbieren. Dies führt dazu, dass entweder

die Pumpwelle oder die erzeugte Welle absorbiert wird. Aus diesem Grunde wurden oft komplizierte, mehrstufige nichtlineare Konversionsprozesse eingesetzt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein 1064 nm gepumpten optisch parametrischen Generator entwickelt, der die Materialgrenzen in periodisch gepoltem Lithiumniobat weiter auslotet und Strahlung von 3,5 bis 4,6 μ m emittiert. Das System ist über diesen kompletten Frequenzbereich stufenlos abstimmbar und erreichte mittlere Ausgangsleistungen von bis zu 700 mW bei 3,7 μ m und bis zu 170 mW bei 4,6 μ m. Die absolute Wellenlängengenauigkeit der entwickelten vollautomatisierten Abstimmung ist ohne die Verwendung eines Spektrometers besser als 0,05 % der Wellenlänge.

Die Nutzung Optisch parameterischer Oszillatoren ist im Bereich der Entartung durch die stark Anwachsende spektrale Breite der erzeugten Strahlung erheblich eingeschränkt. Ausgehend von den etablierten Emissionswellenlängen 1064 nm und 532 nm liegen diese Lücken im Bereich von 1,1 μ m bzw. 2,2 μ m. Ein in dieser Arbeit erstmals realisierter Ansatz nutzt die neu entwickelten Strahlquellen bei 1342 nm zur effizienten Frequenz-konversion in einem optisch parametrischen Generatoren. Das OPG-System erreicht eine Bandbreite kleiner 2 nm mit Ausgangsleistungen von bis zu 500 mW. Analog dazu wurde ein bei 671 nm gepumpter OPG demonstriert, der abstimmbare Strahlung im Bereich von 1100 nm erzeugt. Bei einer maximal eingestrahlten Leistung von 1,5 W wurden 420 mW Signalstrahlung bei 1090 nm und 260 mW Idlerstrahlung bei 1745 nm erzeugt. Dies entspricht einer Gesamtkonversionseffizienz von 44%.

Damit stehen erstmalig neuartige Strahlquellen zur Verfügung, die die bisherigen Wellenlängengrenzen für Festkörperlaser im UV und im mittleren Infraroten erweitern. Zudem wurden systematisch Wellenlängenlücken, im roten, gelben und blauen Spektralbereich, sowie im IR bei 1,1 μ m und 2,2 μ m geschlossen. Diese einzigartigen Laserstrahlquellen haben bereits neuartige industrielle, medizinische und wissenschaftliche Applikationen ermöglicht. Die vorgestellten Konzepte besitzen darüber hinaus das Potenzial ein weites Feld von neuartigen Anwendungen zu erschließen.

Anhang A

Eigenschaften ausgewählter optisch nichtlinearer Materialien

Zur Frequenzkonversion von Laserstrahlung steht eine Vielzahl optisch nichtlinearer Materialien zur Verfügung. Leider existiert jedoch in den meisten Fällen kein *optimales* Material, welches sich von seinen Eigenschaften her von allen anderen abhebt. So ist man in der Praxis fast immer gezwungen bezüglich bestimmter Parameter Kompromisse einzugehen. Aus diesem Grund besteht auch nach wie vor ein großes Interesse an der Entwicklung neuer Materialien mit verbesserten Eigenschaften.

Das folgende Kapitel gibt einen Überblick über die in dieser Arbeit verwendeten optisch nichtlinearen Materialien. Es werden die wesentlichen Eigenschaften aufgezeigt, aus denen sich die Vor- und Nachteile für den jeweiligen Einsatz mit hochrepetierenden gütegeschalteten Festkörperlasern ableiten lassen.

A.1 Lithiumtriborat LiB_3O_5

Lithiumtriborat LiB₃O₅ (kurz LBO) ist ein negativ biaxialer Kristall der Punktgruppe mm2. Die in Abbildung A.1 dargestellte Transmission reicht von 160 bis 2600 nm. LBO eignet sich hervorragend zur zur Winkelphasenanpassung im ultravioletten, sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich. Die Grenzwellenlänge für SHG-Phasenanpassung beträgt 558 nm, weshalb die große Transparenz im tiefen ultravioletten Spektralbereich nur bedingt genutzt werden kann.

Die Brechungsindizes von LBO werden durch folgende Sellmeierformel

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} - D \lambda^2 \tag{A.1}$$

beschrieben. Für die Sellmeierkoeffizienten findet man in der Literatur bei einer Temperatur von 20 °C [120]:



Abbildung A.1: Transmissionsspektrum von Lithiumtriborat [76]

LBO besitzt einen verhältnismäßig kleinen Walk-off Winkel sowie eine sehr hohe Zerstörschwelle von 25 J/cm². Nachteilig ist das sehr kleine d_{eff} von maximal 0,85 pm/V. Um dennoch gute Konversionseffizienzen in LBO zu erreichen verwendet man daher nach Möglichkeit nichtkritische Phasenanpassung, die die Verwendung großer Kristalllängen erlaubt.

LBO ist leicht hygroskopisch weshalb bei Verwendung um Raumtemperatur auf eine Begrenzung der relativen Luftfeuchtigkeit, z.B durch Trockenpatronen in der Nähe des Kristalls, geachtet werden muss.

A.2 Betabariumborat BBO

Die hervorragende Eignung des nichtlinearen Kristalls β -BaB₂O₄ (Beta–Bariumborat, BBO) für optisch parametrische Prozesse ist seit 1985 bekannt [121]. BBO besitzt einen großen Transparenzbereich von 200 nm bis 3000 nm (siehe Abbildung A.2) weshalb es

	A	$B \ [\mu m^2]$	$C \ [\mu m^2]$	$D \ [\mu m^{-2}]$
n_x	2,4542	0,01125	0,01135	0,0138
$ n_y $	2,5390	0,01277	0,01189	0,01848
n_z	2,5865	0,01310	0,01223	0,01861

Tabelle A.1: Sellmeier-Koeffizienten für LBO

sich für FRequenzkonversionen im sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich, sowie für die Erzeugung von UV-Strahlung eignet. Bei der UV-Erzeugung liegt auch eine herausragende Eigenschaft von BBO, da das Material bis zu einer Grenzwellenlänge von 411 nm Phasenanpassung für den SHG-Prozess erlaubt.

Das Material ist relativ hart, gut polierbar, chemisch stabil und nur gering hygroskopisch [122]. Die laserinduzierte Oberflächen–Zerstörschwelle wurde bei einer Wellenlänge von 355 nm zu etwa 0.5 GW/cm^2 ermittelt [123].



Abbildung A.2: Transmissionsspektrum von Beta–Bariumborat [122]

Die Brechungsindizes von BBO können ebenfalls durch Gleichung A.1 wiedergegeben werden Für die Sellmeierkoeffizienten findet man bei [120]:

	A	$B \ [\mu m^2]$	$C \ [\mu m^2]$	$D \; [\mu m^{-2}]$
n_o	2,7359	0,01878	0,01822	0,01354
n_e	$2,\!3753$	0,01224	0,01667	0,01516

Tabelle A.2: Sellmeier-Koeffizienten für BBO

Die daraus berechneten Dispersionskurven sind in Abbildung A.3 dargestellt. Der uniaxiale BBO–Kristall weist eine große Doppelbrechung bei geringer Dispersion auf.

Für die effektive Nichtlinearität berechnet man bei kollinear
er Typ-I Phasenanpassung für einen $oo \to e$ -Prozess:

$$d_{\text{eff}} = d_{31} \sin\theta - d_{22} \cos\theta \sin 3\Phi \tag{A.2}$$



Abbildung A.3: Dispersionskurven für ordentliche und außerordentliche Strahlen in Beta-Bariumborat

Hierbei ist θ der Phasenanpassungswinkel und Φ der Azimutalwinkel, der zur Maximierung von d_{eff} gleich 90° gewählt wird. Die Faktoren d_{31} und d_{22} sind die aus Symmetrieüberlegungen verbleibenden Matrixelemente des optisch nichtlinearen Tensors. Für die Matrixelemente findet man in der Literatur beispielsweise $d_{31} = 0.16$ pm/V und $d_{22} = 2.2$ pm/V [124].

Als Nachteil für die meisten nichtlinearen Konversionsprozesse erweist sich der relativ große Walk-off Winkel ρ für den außerordentlich polarisierten Strahl. Hierdurch wird die effektive Wechselwirkungslänge auf die Walk-off-Länge begrenzt (Gleichung (2.43)). In BBO beträgt ρ im sichtbaren Spektralbereich ca. 3,5° - 4,5°.

BBO zählt zu den Standardmaterialien bei 355 nm gepumpten Optisch-Parametrischen-Oszillatoren basierend auf gütegeschalteten Low-Rep-Systemen. Man erreicht hier eine Durchstimmbarkeit der Signalwellenlänge über den gesamten sichtbaren Spektralbereich und der Idlerwellen im nahen Infrarot bis ca. 3 μ m. Hierfür ist lediglich eine Änderung des Phasenanpassungswinkels von etwa 10° notwendig. Der große Walk-off ist bei den enormen Spitzenleistungen und dementsprechend großen Strahldurchmessern dieser Laser nur von untergeordneter Bedeutung.

A.3 Lithiumniobat LiNbO₃

 $LiNbO_3$ ist ein negativ uniaxialer Kristall der Punktgruppe 3m. Daraus ergibt sich folgender reduzierter Tensor des nichtlinearen Koeffizienten 2. Ordnung:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(A.3)

Unter Erfüllung der Bedingung der Kleinman Symmetrie gilt außerdem $d_{24} = d_{31}$. In der Literatur werden für die nichtlinearen Koeffizienten folgende Werte angegeben:

$$d_{22} = 4 \ pm/V d_{31} = 5,9 \ pm/V d_{33} = 27 \ pm/V$$
(A.4)

Diese Werte beziehen sich auf die Frequenzverdopplung einer Fundamentalwellenlänge von $\lambda_p = 1064 \ nm$. Mit Hilfe der Millerschen Regel

$$d_{mn}(\omega'_3, \omega'_1, \omega'_2) = \frac{\left[n^2(\omega'_3) - 1\right] \left[n^2(\omega'_2) - 1\right] \left[n^2(\omega'_1) - 1\right]}{\left[n^2(\omega_3) - 1\right] \left[n^2(\omega_2) - 1\right] \left[n^2(\omega_1) - 1\right]} d_{mn}(\omega_3, \omega_1, \omega_2)$$
(A.5)

lassen sich die angegebenen Werte auf andere Wellenlängenbereiche übertragen.

LiNbO₃ ist aufgrund seiner doppelbrechenden Eigenschaften gut zur Winkelphasenanpassung geeignet. Oft verwendet man aber die ferro-elektrische Natur des Materials, die eine periodische Domäneninversion und somit die Anwendung der Quasiphasenanpassung ermöglicht. Dies hat zur Folge, dass man LiNbO₃ in einem $e \rightarrow e + e$ Prozess unter Ausnutzung des größten nichtlinearen Koeffizienten d_{33} verwenden kann.

Die Sellmeier-Gleichungen erlauben eine Berechnung der Brechungsindizes in Abhängigkeit von Wellenlänge und Temperatur. Für den außerordentlichen Brechungsindex gilt

$$n_e(\lambda, T) = a_1 + b_1 \cdot f(T) + \frac{a_2 + b_2 \cdot f(T)}{\lambda^2 - a_3^2} + \frac{a_4 + b_3 \cdot f(T)}{\lambda^2 - a_3^2} - a_6 \cdot \lambda^2$$
(A.6)

mit den Koeffizienten und dem dimensionslosen Temperaturparameter

$$f(T) = (T - 24, 5)(T + 570, 82)$$
(A.7)

Lithiumniobat besitzt einen Transparenzbereich von 330 bis 5500 nm und eignet sich in periodisch gepolter Form aufgrund des sehr großen d_{eff} besonders für die Erzeugung intensiver OPG-Strahlung im infraroten Spektralbereich. In der Literatur findet man für die Zerstörschwelle des Materials eine Energiedichte von 3 J/cm² []. Diese kann jedoch durch das Auftreten der grün-induzierten Infrarot-Absorption erheblich herabgesetzt werden.

Koeffizient	Wert
a_1	5,319725
a_2	0,09147285
a_3	0,3165008
a_4	100,2028
a_5	$11,\!37639$
a_6	0,01497046
b_1	$4,753469 \cdot 10^{-7}$
b_2	$3,310965 \cdot 10^{-8}$
b_3	$2,760513 \cdot 10^{-5}$

Tabelle A.3: Sellmeier-Koeffizienten für Mg:O dotiertes LiNbO₃

Grüninduzierte Infrarotabsorption: In Lithiumniobat werden in Anwesenheit von kurzwelligem Licht (im Wellenlängenbereich von 532 nm) Elektronen durch 2-Photonen-Absorption vom Valenzband ins Leitungsband angeregt und dort nach kurzer Zeit von ionisierten Fehlstellen wieder eingefangen. In CLN sind dies hauptsächlich Nb5+ Ionen, die sich auf Li Plätzen befinden. Aufgrund der starken Coulomb-Wechselwirkung zwischen Ion und Elektron entsteht dabei ein gebundenes Elektron-Phonon-Paar (Polaron), dessen Absorptionsband im nahen Infrarot liegt. Die Stärke der GrIIRA hängt sowohl von der intrinsischen Fehlstellendichte als auch von der Lebensdauer der Polaronen ab. [125] Die GrIIRA hat damit die gleiche Ursache wie die Photorefraktivität und kann durch MgO-Dotierung stark reduziert werden [126].

A.4 Kaliumtitanylphosphat (KTP)

KTP (Kaliumtitanylphosphat, KTi OPO_4) ist ein positiv biaxialer Kristall der Symmetrieklasse mm2. Aus der Symmetrie ergibt sich folgender reduzierter Tensor des nichtlinearen Koeffizienten zweiter Ordnung:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(A.8)

Für die Werte der einzelnen nichtlinearen Komponeneten findet man in der Literatur []

$$d_{15} = 3,7 \ pm/V d_{24} = 1,9 \ pm/V d_{31} = 3,7 \ pm/V d_{32} = 2,2 \ pm/V d_{33} = 14,6 \ pm/V$$
(A.9)

Für die Sellmeierkoeffizienten gemäß Gleichung A.1 findet man für flux-grown-KTP

	А	B $[\mu m^2]$	C $[\mu m^2]$	D $[\mu m^{-2}]$
n _x	$3,\!0065$	$0,\!03901$	0,04251	0,01327
n _y	3,0333	$0,\!04154$	$0,\!04547$	0,01408
n_z	3,3134	$0,\!05694$	$0,\!05658$	0,01682

Tabelle A.4: Sellmeier-Koeffizienten für KTP

KTP wird vornehmlich in zwei unterschiedlichen Verfahren hergestellt (*Flux-Grown* und *Hydrothermal*). Das Hydrothermal-Verfahren erreicht im allgemeinen bessere optische Kristallqualitäten, ist aufgrund der größeren Wachstumszeiten für die Kristalle auch teuerer. Die Transmission reicht in KTP (Abbildung A.4) von 350 bis 4500 nm. Im Transmissionsspektrum fallen insbesondere die scharfen Absorptionsbanden bei etwa 2,8 μ m ins Auge. Diese rühren von OH-Streckschwingungen an in den Kristall eingelagerten Wasser-Molekülen her.



Abbildung A.4: Transmissionsspektrum von Kaliumtitanylphosphat (KTP) [76]

Unter Einwirkung von intensiver Laserstrahlung kann es in KTP zur Ausbildung von sogenannten Greytracks kommen. Dies sind Farbzentren, die sich vermehrt bei hohen Leistungsdichten durch Zwei-Photonenprozesse und und kurzen Wellenlängen ausbilden. Sie führen zu einer Verstärkten Absorption der einfallenden Laserstrahlung und senken dadurch die Zerstörschwelle des Kristalls. Die genaue Entstehung dieser Farbzentren ist dabei bis heute nicht vollständig verstanden. Man geht jedoch davon aus, dass Verunreinigungen durch Eisen oder Platin am entstehungsprozess beteiligt sind. In jedem Fall hat sich gezeigt, dass spezielle Züchtungsmethoden die Bildungsrate der Farbzentren stark reduzieren können.

Aufgrund der elektrooptischen Eigenschaften kann auch KTP periodisch gepolt werden. Dies erlaubt die Nutzung der höchsten nichtlinearen Komponente.

A.5 Wismutborat (BiBO)

Wismutborat ist ist ein relativ junges Material, das erst seit 1999 in guter optischer Qualität bei entsprechender Kristallgröße gezüchtet werden kann. Die Transparenz reicht, wie in Abbildung A.5 dargestellt, im kurzwelligen Spektralbereich bis 290 nm. Abgesehen von Anwendungen im tiefen Ultraviolett stellt BiBO eine mögliche Alternative zu BBO dar. Die Vorteile liegen für viele Konversionsprozesse im etwas größeren d_{eff} sowie im kleineren Walk-off. Besonders interessant ist bei BiBO auch die Möglichkeit der nichtkritischen Phasenanpassung zur Erzeugung von Laserstrahlung im gelben Spektralbereich durch Summenfrequenzmischung.



Abbildung A.5: Transmissionsspektrum von Wismutborat (BiBO) [76]

Die Brechungsindizes in BiBO lassen sich ebenfalls nach Formel A.1 berechnen mit den Koeffizienten

	А	$\mathbf{B}\;[\mu m^2]$	C $[\mu m^2]$	D $[\mu m^{-2}]$
n _x	3,0740	0,0323	0,0316	0,0137
n _y	3,1685	$0,\!0373$	0,0346	0,0175
n_z	$3,\!6545$	$0,\!0511$	0,0371	0,0226

Tabelle A.5: Sellmeier-Koeffizienten für BiBO

Literaturverzeichnis

- [1] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187:493–494, 1960.
- [2] O. Svelto. *Principles of lasers*. Plenum Press, New York, 4 edition, 1998.
- [3] C. V. Raman and N. S. Nath. The diffraction of light by high frequency ultrasonic waves. Proc. Indian Acad. Sci. A, 2:406–420, 1935.
- [4] AA Optoelectronic, F-78470 Saint-Rémy-lès-Chevreuse. Do you know acoustooptics? Application notes, 2007.
- [5] Marco Rahm. Numerische Modellierung, experimenteller Aufbau und optische Charakterisierung eines spektral weit abstimmbaren, einfrequenten optisch parametrischen Generators mit Self-injection Seeding. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern, 2006.
- [6] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. Fundamentals of Potonics. John Wiley & sons, Inc., 1991.
- [7] M. V. Klein and T. E. Furtak. Optik. Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York London Paris Tokyo, 1988.
- [8] H. Kogelnik and T. Li. Laser beams and resonators. Applied Optics, 5:1550, 1966.
- [9] Gregor Anstett. Untersuchung der räumlichen Strahlqualität von gepulsten optisch parametrischen Oszillatoren aus Beta-Bariumborat. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 1997.
- [10] Optik und optische Instrumente; Laser und Laseranlagen; Pr
 üfverfahren f
 ür Laserstrahparameter: Strahlabmessungen, Divergenzwinkel und Strahlpropagationsfaktor. ISO/TC172/SC9/WG1, Deutsche Fassung ISO/DIS 11146, 1995.
- [11] S. J. Brosnan and R. L. Byer. Optical Parametric Oscillator threshold and linewidth studies. *IEEE J. Quantum Electron.*, 15:415–431, 1979.
- [12] R. Simon, E. C. G. Sudarshan, and N. Mukunda. Generalized rays in first-order optics: Transformation properties of Gaussian Schell-model fields. *Phys. Rev. A*, 29(6):3273–3279, 1984.

- [13] R. Martínez-Herrero, P. M. Mejías, M. Sánchez, and I. L. Neira. Third- and fourth-order parametric characterization of partially coherent beams propagating through ABCD optical systems. *Optical and Quantum Electronics*, 24:1021–1026, 1992.
- [14] J. M. Manley and H. E. Rowe. General energy realations in nonlinear reactions. Proc. IRE, 47:2115–2116, 1959.
- [15] J.A. Giordmaine and Robert C. Miller. Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO₃ at optical frequencies. *Phys. Rev. Lett.*, 14(24):973–976, 1965.
- [16] A. Yariv and P. Yeh. Optical waves in crystals. John Wiley & Sons, New York, 1984.
- [17] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan. Handbook of Nonlinear optical crystals. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2 edition, 1997.
- [18] G. D. Boyd and D. A. Kleinmann. Parametric interaction of focused gaussian light beams. J. Appl. Phys., 39(8):3597–3639, 1968.
- [19] Y. R. Shen. The Principles of Nonlinear Optics. John Wiley, New York, 1984.
- [20] R. L. Sutherland. Handbook of Nonlinear Optics. Marcel Decker, New York, 1996.
- [21] J. Czochralski. Ein neues Verfahren zur Messung der Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle. Z. Phys. Chemie, 92:219–221, 1918.
- [22] J. R. Connor. Unusual crystal-field energy levels and efficient laser properties of Nd:YVO₄. Appl. Phys. Lett., 9(11):407–409, 1966.
- [23] S. Erdei. Growth of oxygen deficiency-free YVO(4) single-crystal by top-seeded solution growth technique. J. Crystal Growth, 134(1-2):1–13, 1993.
- [24] H. Zheng, H. G. Yang, Y.Z. Zhang, J. F. Zhou, H. C. Xia, X. Wu, and Y. D. Jiang. Nd:YVO₄ crystal growth by the floating zone method. J. Crystal Growth, 160(1-2):136–140, 1996.
- [25] R. C. Powell. Physics of Solid-State Laser Materials. Springer Verlag, New York, 1998.
- [26] E. Broch. The crystal structure of yttrium vanadate. Zeitschrift für physikalische Chemie - Abteilung B - Chemie der Elementarprozesse Aufbau der Materie, 20(5/6):345–350, 1933.
- [27] H. Zhang, J. Liu, J. Wang, C. Wang, L. Zhu, Z. Shao, X. Meng, X. Hu, M. Jiang, and Y. T. Chow. Characterization of the laser crystal Nd:GdVO4. J. Opt. Soc. Am. B, 19:18–27, 2002.

- [28] C. L. Fincher and R. A. Fields. Test Report on 1 % Nd:YVO₄ . ITI Electro-Opics Corporation, 1993.
- [29] Y. Saito and T. Taira. The studies of thermal conductivity in GdVO4, YVO4, and Y3Al5O12 measured by quasi-one-dimensional flash method. Opt. Exp, 14(22):10528–10536, 2006.
- [30] P. Peuser and N. Schmitt. Diodengepumpte Festkörperlaser. Springer Verlag, Berlin, 1995.
- [31] D. Krennrich, R. Knappe, B. Henrich, R. Wallenstein, and J. A. L'huillier. A comprehensive study of Nd:YAG, Nd:YAlO₃, Nd:YVO₄ and Nd:YGdVO₄ lasers operating at wavelengths of 0.9 μ m and 1.3 μ m. Appl. Phys. B, to be published.
- [32] P. K. Mukhopadhyay, A. Nautiyal, P. K. Gupta, K. Ranganathan, J. George, S. K. Sharma, and T. P. S. Nathan TPS. Experimental determination of the thermo-optic coefficient (dn/dT) and the effective stimulated emission crosssection (sigma(e)) of an a-axis cut 1-at. % doped Nd:GdVO4 crystal at 1.06 μm wavelength. Appl. Phys. B, 77(1):81–87, 2003.
- [33] P. P. Yaney and L. G. Deshazer. Spectroscopic studies and analysis of laser states of Nd³⁺ in YVO4. J. Opt. Soc. Am., 66(12):1405–1414, 1976.
- [34] T. Jensen, V. G. Ostroumov, J. P. Meyn, G. Huber, A. I. Zagumennyi, and I. A. Shcherbakov. Spectroscopic characterization and laser performance of diodelaser-pumped Nd:GdVO₄. Appl. Phys. B, 58:373–379, 1998.
- [35] L. Fornasiero, S. Kuck, T. Jensen, G. Huber, and B. H. T. Chai. Excited state absorption and stimulated emission of Nd³⁺ in crystals YVO₄,GdVO₄, and Sr₅(PO₄)₃/. Appl. Phys. B, 67(5):549–553, 1998.
- [36] E. Wu, H. Pan, S. Zhang, and H. Zeng. High power single-longitudinal-mode operation in a twisted-mode-cavity laser with a c-cut Nd:GdVO₄ crystal. *Appl. Phys. B*, 80:459–462, 2005.
- [37] R. Scheps, J. F Myers, and G. Mizell. High-efficiency 1.06-μm output in a monolithic Nd:YVO₄ laser. Appl. Opt., 33(24):5546-5549, 1994.
- [38] Casix. Produktinformation Nd:YVO₄. Datenblatt, 2007.
- [39] X. Peng, A. Asundi, Y. Chen, and Z. Xiong. Study of the mechanical properties of Nd:YVO₄ crystal by use of laser interferometry and finite-element analysis. *Appl. Opt.*, 40:1396–1403, 2001.
- [40] J. Didierjean, S. Forget, S. Chenais, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, K. Altmann, and C. Pflaum. High resolution absolute temperature mapping in laser crystals in diode-end-pumped configuration. *Proc. SPIE*, (5707):370–379, 2005.

- [41] Dirk Krennrich. Erzeugung und Charakteisierung ultrakurzer Lichtimpulse von diodengepumpten modengekoppelten Festkörperlasern mit Neodym dotierten Lasermaterialien im Wellenlängenbereich von 0,9 μm und 1,3 μm. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern, 2005.
- [42] NASA Datenbank für Nd-Lasermaterialien (mittlerweile eingestellt), 1999.
- [43] A. A. Kaminskii, K. Ueda, H. J. Eichler, Y. Kuwano, H. Kouta, S. N. Bagaev, T. H. Chyba, J. C. Barnes, G. M. A. Gad, T. Murei, and J. Lu. Tetragonal vanadates YVO₄ and GdVO₄ - new efficient $\chi^{(3)}$ -materials for raman lasers. *Opt. Commun.*, 194:201–206, 2001.
- [44] H. J. Eichler, G. M. A Gad, A. A. Kaminskii, and H. Rhee. Raman crystals in the visible and near-infrared. *Journal of Zhejiang University Science A*, 4(3):241– 253, 2003.
- [45] W. A. Clarkson. Thermal effects and their mitigation in end-pumped solid-state lasers. J. Phys. D., 34:2381–2395, 2001.
- [46] David A. Kleinmann and David H. Auston. Cw and self-q-switched laser operation of Nd-YVO4. IEEE J. Quantum Electron., QE11(9):D84–D84, 1975.
- [47] R. A. Fields, M. Birnbaum, and C. L. Fincher. Highly efficient Nd:YVO₄ diodelaser end-pumped laser. J. Appl. Phys., 51(23):1885–1886, 1987.
- [48] G. Feugnet, C. Bussac, C. Larat, M. Schwarz, and J. P. Pocholle. High-efficiency TEM₀₀ Nd:YVO₄ laser longitudinally pumped by a high-power array. *Opt. Lett.*, 20(2):157–159, 1995.
- [49] Y. P. Lan Y.-F. Chen and S. C. Wang. Efficient high-power diode-end-pumped TEM₀₀ nd:yvo₄ laser with a planar cavity. *Opt. Lett.*, 25(14):1016–1018, 2000.
- [50] L. McDonagh, R. Wallenstein, R. Knappe, and A. Nebel. High-efficiency 60 w TEM_{00} Nd:YVO₄ oscillator pumped at 888 nm. *Opt. Lett.*, 31(22):3297–3299, 2006.
- [51] L. McDonagh, R. Wallenstein, and R. Knappe. 47 W, 6 ns constant pulse duration, highrepetition-rate cavity-dumped Q-switched TEM₀₀ Nd:YVO₄ oscillator. *Opt. Lett.*, 31(22):3303–3305, 2000.
- [52] Martin Nittmann. Experimentelle Untersuchung zur raum-zeitlichen Impulsentwicklung in einem Nanosekunden optisch parametrischen Oszillator aus Beta-Bariumborat. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 2001.
- [53] G. Anstett and R. Wallenstein. Experimental investigation of the spectrotemporal dynamics of the light pulses of Q-switched Nd:YAG lasers and nanosecond optical parametric oscillators. Appl. Phys. B, 79(7):827–836, 2004.

- [54] J. H. Lu and J. R. Lu, T. Murai, K. Takaichi, T. Uematsu, J. Q. Xu, K. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, and A. A. Kaminskii. 36-W diode-pumped continuouswave 1319-nm Nd:YAG ceramic laser. *Opt. Lett.*, 27(13):1120–1122, 2002.
- [55] R. F. Wu, P. B. Phua, and K. S. Lai. Linearly polarized 100-W output from a diode-pumped Nd : YAIO laser. Appl. Opt., 39(3):431–434, 2000.
- [56] A. Minassian and M. J. Damzen. 20 W bounce geometry diode-pumped Nd:YVO₄ laser system at 1342 nm. Opt. Commun., 230(1-3):191–195, 2004.
- [57] A. Di Lieto, P. Minguzzi, A. Pirastu, S. Sanguinetti, and V. Magni. A 7-W diode-pumped Nd:YVO₄ cw laser at 1.34 μ m. *Appl. Phys. B*, 75(4-5):463–466, 2002.
- [58] J. L. He, J. Du, J. Sun, S. Liu, Y. X. Fan, H. T. Wang, L. H. Zhang, and Y. Hang. High efficiency single- and dual-wavelength Nd:GdVO₄ lasers pumped by a fiber-coupled diode. *Appl. Phys. B*, 79(3):301–304, 2004.
- [59] H. Ogilvy, M. J. Withford, P. Dekker, and J. A. Piper. Efficient diode doubleend-pumped Nd:YVO₄ laser operating at 1342 nm. *Opt. Expr.*, 11(19):2411–2415, 2003.
- [60] J. K. Jabczynski, W. Zendzian, J. Kwiatkowski, J. Sulc, M. Nemec, and H. Jelinkova. Passively Q-switched neodymium slab lasers at 1.3-μm wavelength sidepumped by a 600-W laser diode stack. *Opt. Engineering*, 45(11):Art.No.114204, 2006.
- [61] A. Agnesi, A. Guandalini, G. Reali, J. K. Jabczynski, K. Kopczynski, and Z. Mierczyk. Diode pumped Nd:YVO₄ laser at 1.34 μm Q-switched and made locked by a V³⁺: YAG saturable absorber. Opt. Commun., 194(4-6):429–433, 2001.
- [62] H. Ogilvy, M. J. Withford, P. Dekker, and J. A. Piper. High repetition rate, Q-switched and intracavity frequency doubled Nd:YVO₄ laser at 671 nm. Opt. Expr., 12(15):3543–3547, 2004.
- [63] W. Qin, C. L. Du, and S. C. Ruan. 10.2-W Q-switched intracavity frequencydoubled Nd:YVO₄ /LBO red laser double-endpumped by laser-diode-arrays. Opt. Expr., 15(4):1594–1599, 2007.
- [64] J. L. He, G. Z. Luo, H. T. Wang, S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Y. B. Chen, and N. B. Ming. Generation of 840 mW of red light by frequency doubling a diodepumped 1342 nm Nd:YVO₄ laser with periodically-poled LiTaO₃. Appl. Phys. B, 74(6):537–539, 2002.
- [65] G. Z. Luo, S. N. Zhu, J. L. He, Y. Y. Zhu, H. T. Wang, Z. W. Liu, C. Zhang, and N. B. Ming. Simultaneously efficient blue and red light generations in a periodically poled LiTaO₃. *Appl. Phys. Lett.*, 78(20):3007–3008, 2001.

- [66] X. P. Hu, X. Wang, J. L. He, Y. X. Fan, S. N. Zhu, H. T. Wang, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming. Efficient generation of red light by frequency doubling in a periodically-poled nearly-stoichiometric LiTaO₃ crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 85(2):188–190, 2004.
- [67] F. K. Kneubühl and M. W. Sigrist. Laser. B. G. Teubner, Leipzig, 1999.
- [68] J. Sakuma, Y. Asakawa, T. Sumiyoshi, and H. Sekita. High-power cw deep-UV coherent light sources around 200 nm based on external resonant sum-frequency mixing. *IEEE Journal of selected topics in Quantum Electronics*, 10(6):1244–1251, 2000.
- [69] T. Yasukawa, Y. Yafai, Y. S. Wang, H. Dietz, D. Molotkov, N. Kongratyuk, G. Hillrichs, P. Wiedemann, and S. I. Schastak. Preliminary results of development of a single-mode Q-switched Nd:YAG ring laser at 213 nm and its application for the microsurgical dissection of retinal tissue ex vivo. *Lasers in Medical Science*, 19(4):234–239, 2005.
- [70] Bernd Köhler. Erzeugung von Pikosekundenlichtimpulsen hoher mittlerer Leistung im ultravioletten und infraroten Spektralbereich durch Frequenzkonversion eines cw-modengekoppelten Nd:YVO₄-Oszillator-Verstärkersystems. Dissertation, Universität Kaiserslautern, 2001.
- [71] L. B. Chang, S. C. Wang, and A. H. Kung. Efficient compact watt-level deepultraviolet laser generated from a multi-kHz Q-switched diode-pumped solid-state laser system. *Opt. Commun.*, 209(4-6):397–401, 2002.
- [72] J. Y. Huang, Y. R. Shen, C. T. Chen, and B. C. Wu. Noncritically phasematched 2nd-Harmonic Generation and Optical Parametric Amplification in a Lithium Triborate crystal. *Appl. Phys. Lett.*, 58(15):1579–1581, 1991-58-1579.
- [73] T. Ukachi, R. J. Lane, W. R. Bosenberg, and C. L Tang. Phase-matched 2ndharmonic generation and growth of a LiB3O5 crystal. J. Opt. Soc. Am. B, 9(7):1128–1133, 1992.
- [74] L. McDonagh and R. Wallenstein. Low-noise 62 W cw intracavity-doubled TEM₀₀ Nd:YVO₄ green laser pumped at 888 nm. Opt. Lett., 32:802–804, 2000.
- [75] X. Liu, D. Li, P. Shi, C. R. Haas, A. Schell, N. Wu, and K. Du. Highly efficient third-harmonic generation with electro-optically Q-switched diode-end-purnped Nd:YVO₄ slab laser. *Opt. Commun.*, 272(1):192–196, 2007.
- [76] A. V. Smith. SNLO nonlinear optics code. available from A. V. Smith, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423, v41, 2007.
- [77] Z. Sun, R. Li, Y. Bi, X. Yang, Y. Bo, Y. Zhang, G. Wang, W. Zhao, H. Zhang, W. Hou, D. Cui, and Z. Xu. Generation of 11.5 W coherent red-light by intracavity frequency-doubling of a side-pumped Nd:YAG laser in a 4-cm LBO. *Opt. Commun.*, 241:167–172, 2004.

- [78] Sascha Zelt. Erzeugung von periodischen Domänen in ferroelektrischen Kristallen und deren Anwendung in der nichtlinearen Optik. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern, 2003.
- [79] C. Czeranowsky, M. Schmidt, E. Heumann, G. Huber, S. Kutovoi, and Y. Zavartsev. Continuous wave diode pumped intracavity doubled Nd:GdVO₄ laser with 840 mW output power at 456 nm. *Opt. Commun.*, 205:361–365, 2002.
- [80] C. Czeranowsky, E. Heumann, and G. Huber. All-solid-state continuous-wave frequency-doubled Nd:YAG-BiBO laser with 2.8-W output power at 473 nm. *Opt. Lett.*, 28(6):432–434, 2003.
- [81] F. Brunner, E. Innerhofer S. V. Marchese, T. Sudmeyer, R. Paschotta, T. Usami H. Ito S. Kurimura, K. Kitamura, G. Arisholm, and U. Keller. Powerful redgreen-blue laser source pumped with a mode-locked thin disk laser. *Opt. Lett.*, 29(16):1921–1923, 2004.
- [82] B. Ruffing, A. Nebel, and R. Wallenstein. High-power picosecond LiB₃O₅ optical parametric oscillators tunable in the blue spectral range. *Appl. Phys. B*, 72:137– 149, 2001.
- [83] H. Peng, W. Hou, Y. Chen, D. Cui, Z. Xu, C. Chen, F. Fan, and Y. Zhu. Generation of 7.6-W blue laser by frequency-tripling of a Nd:YAG laser in LBO crystals. *Opt. Expr.*, 14(14):6543–6549, 2006.
- [84] J. D. Vance, C. Y. She, and H. Moosmüller. Continuous-wave, all-solidstate, single-frequency 400-mw source at 589 nm based on doubly resonant sum-frequency mixing in a monolithic Lithium-Niobate resonator. Appl. Opt., 37:4891–4896, 1998.
- [85] Y. F. Chen, S. W. Tsai, S. C. Wang, Y. C. Huang, T. C. Lin, and B. C. Wong. Efficient generation of continuous-wave yellow light by single-pass sum-frequency mixing of a diode-pumped Nd:YVO₄ dual-wavelength laser with periodically poled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 27(20):1809–1811, 2002.
- [86] P. Tidemand-Lichtenberg, J. Janousek, R. Melich, J. L. Mortensen, and P. Buchhave. Synchronization of 1064 and 1342 nm pulses using passive saturable absorbers. *Opt. Commun.*, 241:487–492, 2004.
- [87] M. Landthaler and U. Hohenleutner. Laseranwendungen in der dermatologie. Dt. Ärztebl., 95:A–280–284, 1998.
- [88] Y. C. Zhao and S. D. Jackson. Highly efficient free running cascaded raman fiber laser that uses broadband pumping. Opt. Exp, 13(12):4731–4736, 2005.
- [89] J. C. Travers, S. V. Popov, and J. R. Taylor. Efficient continuous-wave holey fiber Raman laser. Appl. Phys. Lett., 87(3):031106, 2005.

- [90] M. Feng, Y. G. Li, J. F. Li, J. Li, X. G. Zhang, K. C. Lu, and H. J. Wang. High power one- and two-order cascaded Raman lasers based on home-madephosphosilicate fibre. *Chin. Phys. Lett.*, 22(5):1137–1139, 2005.
- [91] S. K. Sim, H. C. Lim, L. W. Lee, L. C. Chia, R. F. Wu, I. Cristiani, A. Rini, and V. Degiorgio. High-power cascaded Raman fibre laser using phosphosilicate fibre. *Electron. Lett.*, 40(12):738–739, 2004.
- [92] J. Schroder, S. Coen, F. Vanholsbeeck, and T. Sylvestre. Passively mode-locked Raman fiber laser with 100 GHz repetition rate. *Opt. Lett.*, 31(23):3489–3491, 2006.
- [93] D. A. Chestnut and J. R. Taylor. Wavelength-versatile subpicosecond pulsed lasers using Raman gain infigure-of-eight fiber geometries. *Opt. Lett.*, 30(22):2982– 2984, 2005.
- [94] P. Cerny and H. Jelinkova. Near-quantum-limit efficiency of picosecond stimulated Raman scatteringin BaWO₄ crystal. Opt. Lett., 27(5):360–362, 2002.
- [95] H. M. Pask. The design and operation of solid-state Raman lasers. Prog. Quantum Electron., 27(1):3–56, 2003.
- [96] V. V. Ermolenkov, V. A. Lisinetskii, Y. I. Mishkel, A. S. Grabchikov, A. P. Chaikovskii, and VA. Orlovich. A radiation source based on a solid-state Raman laser for diagnosingtropospheric ozone. J. Opt. Technol., 72(1):32–36, 2005.
- [97] N. Takei, S. Suzuki, and F. Kannari. 20-Hz operation of an eye-safe cascade Raman laser with a Ba(NO₃)₂ crystal. *Appl. Phys. B*, 74(6):521–527, 2002.
- [98] H. M. Pask and J. A. Piper. Diode-pumped LiIO₃ intracavity raman lasers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 36(8):949–955, 2000.
- [99] R. P. Mildren, H. M. Pask, H. Ogilvy, and J. A. Piper. Discretely tunable, all-solid-state laser in the green, yellow, and red. Opt. Lett., 30(12):1500–1502, 2005.
- [100] Y. F. Chen, K. W. Su, H. J. Zhang, J. Y. Wang, and M. H. Jiang. Efficient diodepumped actively q-switched Nd:YAG/BaWO₄ intracavity raman laser. *Optics letters*, 30(24):3335–3337, 2005.
- [101] K. Andryunas, Y. Vishakas, V. Kabelka, I. V. Mochalov, A. A. Pavlyuk, G. T. Petrovskii, and V. Syrus. Stimulated-raman self-conversion of Nd-3+ laser-light in doubletungstenate crystals. *Jetp Lett.*, 42(8):410–412, 1985.
- [102] Y. F. Chen. High-power diode-pumped actively Q-switched Nd:YVO₄ self-ramanlaser: influence on dopant concentration. Optics letters, 29(16):1915–1917, 2004.
- [103] Y. F. Chen. Compact efficient all-solid-state eye-safe laser with self-frequency Raman conversion in a Nd:YVO₄ crystal. *Opt. Lett.*, 29(18):2172–2174, 2004.

- [104] H. M. Pask and J. A. Piper. Efficient all-solid-state yellow laser producing 1.2-W average power. Optics letters, 24(21):1490–1492, 1999.
- [105] Y. B. Band, J. R. Ackerhalt, J. S. Krasinkski, and D. F. Heller. Inracavity Raman Lasers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 25(2):208–213, 1989.
- [106] B. C. Ziegler and K. L. Schepler. Transmission and damage-threshold measurements in AgGaSe₂ at 2.1 μm. Appl. Opt., 30:5077–5080, 1991.
- [107] S. Das, G. C. Bhar, S. Gangopadhyay, and C. Ghosh. Linear and nonlinear optical properties of ZnGeP₂ crystal for infrared laser device applications: revisited. *Appl. Opt.*, 42:4335–4340, 2003.
- [108] O. Balachninaite, L. Petraviciute, M. Maciulevicius, V. Sirutkaitis, L. Isaenko, S. Lobanov, A. Yelisseyev, and J.-J. Zondy. Optical characterization of the LiInS₂ and LiInSe₂ crystals. *Proc. SPIE*, (6403):64031Y-1-6, 2007.
- [109] T. Skauli, P. S. Kuo, K. L. Vodopyanov, T. J. Pinguet, O. Levi, L. A. Eyres, J. S. Harris, M. M. Fejer, B. Gererd, L. Becouarn, and E. Lallier. Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics. J. Appl. Phys., 94:6447–6455, 2003.
- [110] K. L. Vodopyanov, F. Ganikhanov, J. P. Maffetone, I. Zwieback, and W. Ruderman. ZnGeP₂ optical parametric oscillator with 3.8-12.4 μm tunability. Opt. Lett., 25(11):841–843, 2000.
- [111] M. Henriksson, M. Tiihonen, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. ZnGeP₂ parametric oscillator pumped by a linewidth-narrowed parametric 2 μ m source. *Opt. Lett.*, 31(12):1878–1880, 2006.
- [112] P. B. Phua, B. S. Tan, R. F. Wu, K. S. Lai, L. Chia, and E. Lau. High-averagepower mid-infrared ZnGeP₂ optical parametric oscillator with a wavelengthdependent polarization rotator. *Opt. Lett.*, 31(4):489–491, 2006.
- [113] O. B. Jensen, T. Skettrup, O. B. Petersen, and M. B. Larsen. Diode-pumped intracavity optical parametric oscillator in pulsed and continous-wave operation. J. Opt. A., 4:190–193, 2002.
- [114] Oliver Paul. Erzeugung und Charakterisierung von ns-Pulsen mit Wellenlängen von 1,3 bis 5μ m durch optisch parametrische Frequenzkonversion in LiNbO₃. Diplomarbeit, Technische Universität Kaiserslautern, 2006.
- [115] Thorsten Bauer. Einfrequenter diodengepumpter Nd:YVO₄ ringoszillator mit güteschaltung und hoher Pulsrepetitionsrate. Diplomarbeit, Technische Universität Kaiserslautern, 2000.
- [116] N. Uekara and K. Ueda. 193 mHz beat line width of frequency stabilized laserdiode-pumped Nd:YAG ring lasers. Opt. Lett., 18:505, 1993.

- [117] A. L. Shawlow and C. H. Townes. Infrared and optical Masers. Phys. Rev., 112:1940, 1958.
- [118] M. Henriksson, L. Sjöqvist, V. Pasiskevicius, and F. Laurell. Narrow linewidth 2 μ m optical parametric oscillation in periodically poled LiNbO₃ with volume bragg grating outcoupler. *Appl. Phys. B*, 86:497–501, 2007.
- [119] H. H. Zenzie and P. F. Moulton. Tunable optical parametric oscillators pumped by ti:sapphire lasers. Optics Letters, 19(13):963–965, 1994.
- [120] K. Kato. Tunable UV generation to 0.2325 μ m in LiB₃O₅. *IEEE J Quantum Electron*, 26:1173–1175, 1990.
- [121] C. Chen, B. Wu, A. Jiang, and G. You. A new type ultraviolet shg crystal β -BaB₂O₄. Scientia Sinica Series B, 28:235–243, 1985.
- [122] D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham, and A. Zalkin. Optical, mechanical and thermal properties of barium borate. J. Appl. Phys., 62:1986–1983, 1987.
- [123] H. Kouta. Wavelength-dependence of repetitive pulse laser-induced damage threshold in BaB₂O₄. Appl. Opt., 38:545–547, 1999.
- [124] Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R. L. Byer, C. Chen, and A. D. Jiang. Barium Borate optical parametric oscillator. *IEEE. J. Quantum. Electron.*, QE-25:1196–1199, 1983.
- [125] Y. Furukawa, K. Kitamura, A. Alexandrovski, R. K. Route, M. M. Fejer, and G. Foulon. Green-induced infrared absorption in MgO doped LiNbO₃. *Appl. Phys. Lett.*, 78(14):1970–1972, 2001.
- [126] D. A. Bryan, Robert, Gerson, and H. E. Tomaschke. Increased optical damage resistance in lithium niobate. Appl. Phys. Lett., 44(9):847–849, 1984.

Danksagung

Ich danke Herrn PROFESSOR RICHARD WALLENSTEIN für die Möglichkeit in diesem interessanten Forschungsgebiet unter hervorragenden Bedingungen eine Promotionsarbeit anfertigen zu können.

Bei Herrn PROFESSOR RENÈ BEIGANG bedanke ich mich für sein Interesse an dieser Arbeit.

Ich danke Herrn DR. JÜRGEN BARTSCHKE für seine Fachwissen und seine Unterstützung - auch in vielen Fragen des Alltags.

Ich danke Herrn THORSTEN BAUER für die tolle Atmosphäre und hervorragende Zusammenarbeit im gemeinsamen Büro und Labor.

Ich danke Herrn DR. JOHANNES L'HUILLER für seine Hilfsbereitschaft, viele fachliche Diskussionen und seine Einblicke in die Welt der Bits und Bytes.

Ich danke Herrn PATRIC V. LÖWIS OF MENAR für seine kleinen elektronischen Wunderwerke und die Geduld, die er mir im Umgang mit denselben entgegengebracht hat.

Ich danke allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Wallenstein für die gute Zusammenarbeit und das ausgezeichnete Arbeitsklima.

Für die kritische Durchsicht dieser Arbeit danke ich besonders JOHANNES L'HUILLER, THORSTEN BAUER, FLORIAN LENHARDT, FRANK ZIMMER und MELANIE KRAUS.

Bei den beiden PETERS (BOHNERT UND FROHNHÖFER) bedanke ich mich für ihre Fähigkeiten und Erfahrung in allen Bereichen der Konstruktion und Fertigung mechanischer Komponenten.

Ein zusätzlicher Dank gilt nochmals den Herren JÜRGEN BARTSCHKE, THORSTEN BAUER und PATRIC V. LÖWIS OF MENAR für das gemeinsame Wagnis einer Firmengründung und die Zeit, die sie mir dennoch für diese Arbeit gelassen haben.

Ich danke meinen Eltern, meiner Familie und allen Freunden für ihre Unterstützung während der gesamten Studien- und Promotionszeit.

Mein größter und besonderer Dank gilt meiner Frau JULIANE für ihre Liebe, ihre Geduld und Interesse an meiner Arbeit.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name	Martin Nittmann
Geburtsdatum	16.November 1974
Geburtsort	Speyer
Eltern	Josef Nittmann und Gisela Nittmann geb. Körner
Familienstand	verheiratet seit 22.06.2001
Staatsangehörigkeit	deutsch

Schulausbildung

08/1981 - 01/1984	Grundschule Rossmarktschule, Speyer
01/1984 - 07/1985	Grundschule Zeppelinschule, Speyer
08/1985 - 06/1994	Staatliches Friedrich-Magnus Schwerd Gymnasium,
	Speyer
	Abschluss: Abitur

Wehrdienst

07/1994 - 06/1995	Grundwehrdienst beim
	4. Fernmeldebatallion 890, Philippsburg

Hochschulausbildung

10/1995 - 12/2001	Physikstudium an der Universität Kaiserslautern,
	Abschluss: Diplom Physiker
02/2002 -	Promotion an der TU Kaiserslautern

Berufliche Tätigkeit

02/2002 -	Wissenschaftlicher Mitarbeiter
	an der TU Kaiserslautern