

Peter Haag

**Realisierung und elektronische Stabilisierung
von Diodenlaser gepumpten einfach-
resonanten kontinuierlich-emittierenden
optisch parametrischen Oszillatoren
aus periodisch gepoltem Lithiumniobat**



Cuvillier Verlag Göttingen

Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag

Realisierung und elektronische Stabilisierung von
Diodenlaser gepumpten einfach-resonanten
kontinuierlich-emittierenden optisch parametrischen
Oszillatoren aus periodisch gepoltem Lithiumniobat

Dissertation

Peter Haag

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: 08.07.2009

D386

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

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

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2009

Zugl.: (TU) Kaiserslautern, Univ., Diss., 2009

978-3-86955-097-8

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2009

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, 2009

Gedruckt auf säurefreiem Papier

978-3-86955-097-8

Abstract

Realization and electronical stabilization of diode laser pumped single-frequency continuous-wave optical parametric oscillators based on periodically poled lithium niobate

Single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillators (cw-SRO) are excellent coherent light sources for applications that require a high spectral resolution and large wavelength tuning. This includes various applications of optical radiometry and molecular spectroscopy, such as trace gas detection and frequency metrology. Especially for the trace gas detection there is the need of continuous tunability to measure a large frequency range. On the other hand a narrow spectral linewidth is needed to measure the positions of the detected absorption lines exactly. The goal of the present work was to build a widely tunable cw-SRO and to stabilize its emitted wavelength on a molecular absorption line. The wavelength tuning should be done all electronically. As part of the work the tunability specifications of state-of-the-art systems could be exploited.

The pump system consisted of a diode laser with DFB-structure with an emission wavelength of 923 nm. The power of the DFB-laser was 50 mW and amplified to 3 W in a tapered amplifier. The combination of master-oscillator and power-amplifier is called MOPA. The MOPA-system generated near diffraction limited, single-frequency radiation with a spectral bandwidth of less than 5 MHz. By changing the diode current from 100 mA to 200 mA the wavelength of the pump beam was continuously tunable over a range of more than 125 GHz without any spectral mode-hops.

The cw-SRO is based on a crystal made of Lithium Niobate which is poled for the quasi-phasematching (QPM). QPM makes use of the highest nonlinear coefficient of the material. The conversion efficiency increases and the oscillation threshold decreases. This results in a considerable increase of the cw-SRO output power. The wavelength of the converted wave depends on the poled periods in the crystal. Therefore the wavelength of the cw-SRO can be transferred to new ranges solely by changing the poling period of the crystal. By this way spectral ranges can be used which were not covered by lasers up to now.

The cw-SRO was built as a ring-resonator and reached a maximum idler output power of more than 420 mW at 2.1 μm with a oscillation threshold of 1.85 W. It generates single-frequency signal and idler waves with a spectral bandwidth of less than 10 MHz respectively. The wavelengths of the signal and idler waves were coarse tuned by changing the crystal temperature and by a variation of the poled periods of the crystal. The achieved wavelength coverage was 1.55 μm to 1.7 μm (signal) and 2.02 μm to 2.28 μm (idler) and was similar to the used mirror coatings. The wavelength was then fine tuned by changing the diode current of the DFB-laser. The current was varied between 100 mA and 200 mA and the idler wavelength tuned continuously over 88.4 GHz. So far this is the widest

achieved tuning range without any spectral mode-hops of a cw-SRO directly pumped by a diode laser.

To show the usability of the cw-SRO in molecular spectroscopy absorption lines in nitrous oxide were measured. In a first experiment precise recording of position and width of a single absorption line was achieved. The determined pressure broadening coefficient of 5.9 MHz/mbar and the absorption coefficient of $4.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ are in excellent agreement with known data. The absorption line was identified as a rotational R-line in the band (0,0,0,0) - (2,0,0,1) at $2.103 \text{ }\mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}). In a second measurement five adjacent absorption lines in nitrous oxide were recorded simultaneously while the idler wavelength was tuned over 48 GHz. The line spacings are in very good agreement with the theoretical expectations. In comparison the resolution exceeds a FTIR measurement by a factor of 30.

To stabilize of the idler wavelength to the maximum of an absorption line the Lock-In technique was used. By means of derivating the absorption signal an error signal was generated and the diode current was changed electronically to keep the frequency of the idler wave the same as the maximum of the absorption signal. The achieved stability of the idler frequency was $\pm 30 \text{ MHz}$. Thus a compact system was realized which is all electronically tunable and its properties like spectral width, tunability and frequency stability show a great capability for the use in spectroscopic measurements.

In conclusion the system described in this work is an alternative for existing SRO-systems or diode lasers for spectroscopy. Compared to the often used solid-state pump sources it is much more compact in design but yet having an identical efficiency. The enormous tuning range, the small spectral width and the frequency stability show its capability for the use in high-precision frequency metrology, laser cooling and trace gas detection. The variation of the idler wavelength is done purely by electronical means and is therefore resistant against influences from the environment as mechanical vibrations. Changing the poling period of the QPM-crystal results in changing the wavelength range between $1 \text{ }\mu\text{m}$ and $5 \text{ }\mu\text{m}$ very easily.

Kurzzusammenfassung

Realisierung und elektronische Stabilisierung von Diodenlaser gepumpten einfach-resonanten kontinuierlich-emittierenden optisch parametrischen Oszillatoren aus periodisch gepoltem Lithiumniobat

Einfach-resonante kontinuierlich emittierende optisch parametrische Oszillatoren (cw-SRO) stellen exzellente kohärente Strahlungsquellen dar für Anwendungen, die eine geringe spektrale Breite und einen weiten Durchstimmbereich der Wellenlänge erfordern. Dies umfasst beispielsweise Anwendungen für die Radiometrie, die Spurengasanalyse in der Molekülspektroskopie oder hochpräzise Frequenzmessungen. Gerade für die Spurengasanalyse sind einerseits weite kontinuierliche Durchstimmbereiche im GHz-Bereich notwendig, um einen möglichst großen Bereich des untersuchten Frequenzbereichs abzudecken. Andererseits ist eine möglichst geringe Linienbreite wichtig, um die exakten Positionen der detektierten Absorptionslinien genau bestimmen zu können. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es daher, einen weit abstimmbaren cw-SRO zu realisieren und dessen Wellenlänge auf das Maximum einer Moleküllinie zu stabilisieren. Die Durchstimmung der Wellenlänge soll dabei rein elektronisch erfolgen und einen größeren Bereich als von bisher bekannten Systemen abdecken.

Als Pumpsystem für den cw-SRO wurde ein Diodenlaser mit einer DFB-Struktur bei einer Emissionswellenlänge von 923 nm verwendet. Die Leistung der emittierten DFB-Strahlung betrug 50 mW und wurde mit Hilfe eines Trapezverstärkers auf 3 W verstärkt. Die Oszillator-Verstärker-Kombination wird als MOPA-System bezeichnet. Die Pumpstrahlung des MOPA-Systems war einfrequency mit einer spektralen Breite von weniger als 5 MHz und nahezu beugungsbegrenzt. Durch eine Änderung der Anregungsstroms der DFB-Laserdiode zwischen 100 mA und 200 mA konnte die Wellenlänge der Pumpstrahlung um mehr als 125 GHz kontinuierlich und modensprungfrei durchgestimmt werden.

Der cw-SRO basiert auf einem für die Quasiphasenanpassung (QPM) gepolten Lithium Niobat Kristall. Die QPM hat den Vorteil, den größten nichtlinearen Koeffizienten des Materials verwenden zu können. Die Konversionseffizienz wird erhöht und die Schwellpumpleistung verringert. Dies führt weiterhin zu einer deutlichen Erhöhung der Ausgangsleistung des cw-SRO. Die Wellenlänge der konvertierten Strahlung hängt nur von der Polungsperiode im QPM-Kristall ab. Daher ist es möglich, allein durch Variation der Polungsperiode die emittierten Wellenlängen in neue Bereiche zu verschieben. Dadurch können Spektralbereiche abgedeckt werden, die bisher noch nicht durch Laser erreicht werden können.

Der cw-SRO wurde als Ringresonator konzipiert und erzielte bei einer Schwellpumpleistung von 1.85 W eine maximale Ausgangsleistung der Idlerwelle von mehr als 420 mW bei 2.1 μm . Die erzeugte Signal- und Idlerstrahlung war einmodig bei einer spektralen Brei-

te von jeweils weniger als 10 MHz. Die Wellenlängen der Signal- und Idlerwelle wurden zunächst grob über eine Änderung der Kristalltemperatur und über eine Variation der Polungsperiode im Kristall durchgestimmt. Dabei konnte der komplette durch die Resonatorspiegel begrenzte Wellenlängenbereich zwischen $1.55\text{ }\mu\text{m}$ und $1.7\text{ }\mu\text{m}$ (Signalwelle) und $2.02\text{ }\mu\text{m}$ und $2.28\text{ }\mu\text{m}$ (Idlerwelle) abgedeckt werden. Eine feine Wellenlängendurchstimmung erfolgte durch die Änderung der Diodenstroms des DFB-Lasers. Dabei konnte durch eine Variation des Diodenstroms zwischen 100 mA und 200 mA die Idlerwelle um 88.4 GHz durchgestimmt werden. Dies ist der bisher größte modensprungfreie Durchstimmbereich für einen direkt durch einen Diodenlaser angeregten SRO.

Um die Einsatzmöglichkeit des cw-SRO für die Molekülspektroskopie zu demonstrieren, wurden Absorptionsmessungen an Distickstoffmonoxid durchgeführt. Dabei konnte die Position und Linienbreite einer einzelnen Moleküllinie exakt vermessen werden. Der Druckverbeitungskoeffizient von 5.9 MHz/mbar und der Absorptionskoeffizient von $4.3 \cdot 10^{-2}\text{ cm}^{-1}$ stimmen sehr gut mit aus der Literatur bekannten Werten überein. Die Absorptionslinie konnte eindeutig einer Rotationslinie aus dem R-Zweig des $(0,0,0,0) - (2,0,0,1)$ Übergangs bei $2.103\text{ }\mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}) zugeordnet werden. In einem zweiten Experiment wurden bei einer Idlerwellenlängendurchstimmung von 48 GHz gleichzeitig fünf nebeneinander liegende Absorptionslinien von Lachgas aufgezeichnet. Die Linienabstände stimmen sehr gut mit aus der Literatur bekannten Werten überein. Gleichzeitig ist die Auflösung im Vergleich zu einer FTIR-Messung um den Faktor 30 höher.

Zur Stabilisierung der Idlerwellenlänge auf das Maximum einer Absorptionslinie wurde die Lock-In-Technik verwendet. Dabei wurde aus dem Absorptionssignal ein Fehlersignal generiert, mit dessen Hilfe die Elektronik den Diodenstrom der DFB-Diode so ansteuern kann, dass die Frequenz der Idlerwelle stets dem Maximum des Absorptionsprofils entspricht. Auf diese Weise konnte eine Frequenzstabilität der Idlerwelle von $\pm 30\text{ MHz}$ erzielt werden. Damit wurde ein kompaktes System entwickelt, welches rein elektronisch abstimmbar ist, und durch seine Eigenschaften wie spektrale Breite, Durchstimmbarkeit, und Frequenzstabilität ein großes Potential für spektroskopische Untersuchungen aufweist.

Abschließend ist zusammenzufassen, dass das in dieser Arbeit vorgestellte System eine Alternative zu bisherigen SRO-Systemen oder Diodenlasern für die Spektroskopie darstellt. Gegenüber Systemen, die durch einen Festkörperlaser gepumpt werden, ist die enorme Kompaktheit des in dieser Arbeit vorgestellten Systems herauszustellen. Die Effizienz ist bei beiden Varianten vergleichbar. Der weite Durchstimmbereich, die geringe spektrale Breite und die gute Frequenzstabilität machen einen Einsatz bei hochpräziser Frequenzmessung, Laserkühlung und Spurengasanalyse möglich. Die Auswahl der Wellenlänge geschieht dabei rein elektronisch und ist dadurch unanfällig gegenüber äußeren störenden Einflüssen, wie z.B. Erschütterungen. Durch eine einfache Variation der Polungsperiode des QPM-Kristalls ist es möglich, den Wellenlängenbereich zwischen $1\text{ }\mu\text{m}$ und $5\text{ }\mu\text{m}$ frei zu wählen.

Publikationen

Veröffentlichungen

- T. Andres, P. Haag, S. Zelt, J.-P. Meyn, A. Borsutzky, R. Beigang and R. Wallenstein; *Synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillator of congruent and stoichiometric MgO doped periodically poled lithium niobate*, Appl. Phys. B 76, 241-244 (2003)
- F. Ruebel, P. Haag and J. A. L'huillier; *Synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillator with integrated sum frequency generation*, Appl. Phys. Lett. 92, 011122 (2008)

Internationale Tagungsbeiträge

- P. Haag, T. Andres, S. Zelt, A. Borsutzky, R. Beigang and R. Wallenstein; *Room temperature operation of a fs optical parametric oscillator based on MgO doped periodically poled Lithium Niobate*, OSA 2001 Annual Meeting/ILS-XVII Conference, 14.10.-18.10.2001 in Long Beach, California
- T. Andres, G. Torosyan, P. Haag, S. Zelt and R. Beigang; *Use of periodically poled nonlinear materials for the generation of ultrashort pulses of mid- and far-infrared radiation*, 15th Annual Meeting of the IEEE Lasers and Electro-Optics Society, 10.11.-14.11.2002 in Glasgow, Schottland
- F. Ruebel, P. Haag and J. A. L'huillier; *Generation of ultrashort pulses in the visible using cascaded intracavity processes in periodically poled MgO:LiNbO₃*, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/QUELS) 2008, San Jose, California, 4.5.-9.5.2008, Presentation JWA12
- F. Ruebel, P. Haag and J. A. L'huillier; *Synchronously pumped femtosecond cascaded optical parametric oscillation and second harmonic generation in periodically poled MgO:SLN*, Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications (NLO) 2007, Kona, Hawaii, 30.7.-3.8.2007, Technical Digest, Paper MB7

- F. Ruebel, P. Haag and J. A. L’huillier; *Yellow femtosecond pulses generated by cascaded frequency conversion in periodically poled stoichiometric MgO:LiNbO₃*, 9th European Conference on Applications of Polar Dielectrics (ECAPD’9), Rome, Italy, 26.8.-29.8.2008, Presentation O87

Nationale Tagungsbeiträge

- T. Andres, P. Haag, S. Zelt, J.-P. Meyn, A. Borsutzky, R. Beigang und R. Wallenstein; *Weit durchstimmbarer fs optisch parametrischer Oszillator basierend auf MgO dotiertem periodisch gepolten Lithium Niobat ohne photorefraktive Effekte*, Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (DPG), MO21.9 und Q514.9 (2002), Frühjahrstagung der DPG in Osnabrück (4.3.-8.3.2002)
- S. Zaske, P. Haag, J. L’huillier und C. Becher; *Diodengepumpter cw-OPO aus MgO:PPLN für Anwendungen in der Frequenzkonversion von Einzelphotonen*, Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Düsseldorf, Poster Q30.1 (2007)
- F. Rübel, P. Haag, R. Wallenstein und J. A. L’huillier; *Resonatorinterne Frequenzkonversion von fs-Lichtimpulsen in den sichtbaren Spektralbereich mit sektioniert periodisch gepoltem MgO:LiNbO₃*, DPG-Frühjahrstagung 2008, Fachverband Quantenoptik und Photonik, Darmstadt, 10.3.-14.3.2008, Beitrag Q13.1
- F. Rübel, P. Haag, R. Wallenstein und J. A. L’huillier; *Femtosekunden OPO basierend auf MgO:PPLN mit aktiver Wellenlängenkontrolle*, DPG-Frühjahrstagung 2008, Fachverband Quantenoptik und Photonik, Darmstadt, 10.3.-14.3.2008, Beitrag Q26.1

Sonstige Veröffentlichungen

- M. A. Tremont, H. Fuchs, O. Casel, P. Haag and R. Wallenstein; Abschlusspräsentation des BMBF Verbundprojektes *MISTRAL*, Teilvorhaben: *Erforschung von neuen Konzepten für miniaturisierte Strahlquellen aus Hochleistungshalbleiterlasern für den sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich*, 27.01.2004 in Regensburg

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Lineare und nichtlineare Optik	5
2.1.1	Lineare Suszeptibilität	5
2.1.2	Wellenausbreitung in anisotropen Medien	11
2.1.3	Nichtlineare Suszeptibilität	12
2.1.4	Die gekoppelten Amplitudengleichungen	18
2.2	Phasenanpassung	26
2.2.1	Phasenanpassung durch Doppelbrechung	28
2.2.2	Quasiphasenanpassung	29
2.2.3	Akzeptanzbandbreite der Phasenanpassung	34
2.3	Eigenschaften von kongruentem Lithiumniobat	34
2.3.1	Optisch nichtlineare Koeffizienten und Brechungsindex	35
2.3.2	Photorefraktivität	38
2.3.3	Transmissionsspektrum	39
2.4	Parametrische Wechselwirkung mit fokussierter Strahlung	40
3	Optisch parametrische Oszillation	45
3.1	Prinzipielle Funktionsweise	45
3.2	Schwellpumpleistung und Konversionseffizienz eines SRO	49
3.2.1	SRO-Betrieb und Schwellpumpleistung	49
3.2.2	Konversionseffizienz eines einfach-resonanten cw-OPOs	53
3.3	Wellenlängenabstimmung von QPM-OPOs	54
3.3.1	Änderung der Polungsperiode Λ	55
3.3.2	Änderung der Kristalltemperatur T_K	56
3.3.3	Änderung der Pumpwellenlänge λ_P	56
3.3.4	Feinabstimmung der OPO-Wellenlängen	58

4	Charakterisierung des MOPA-Systems	67
4.1	Aufbau und Eigenschaften von Diodenlasern	67
4.1.1	Halbleiterlaser als Quelle von Laserstrahlung	68
4.1.2	Vertikale Struktur des p-n-Übergangs	69
4.1.3	Lateraler Aufbau von Halbleiterlasern	71
4.1.4	DFB-Diodenlaser	72
4.2	Das MOPA-System	74
4.2.1	Aufbau des MOPA-Systems	76
4.2.2	Kennlinien des DFB-Diodenlasers	76
4.2.3	Aufbau und Eigenschaften des Trapezverstärkers	77
4.2.4	Kennlinie des Trapezverstärkers	79
4.2.5	Linienbreite der MOPA-Strahlung	82
4.2.6	Kontinuierliche Durchstimmung des MOPA-Systems	83
4.3	Zusammenfassung	85
5	Diodenlaser gepumpter cw-SRO	87
5.1	Experimenteller Aufbau des Diodenlaser gepumpten cw-SRO	87
5.2	Grundlegende Eigenschaften des SRO	90
5.2.1	Schwellpumpleistung und optische Ausgangsleistung	90
5.2.2	Wellenlängendurchstimmung	93
5.3	Spektrale Eigenschaften des SRO	96
5.3.1	Spektren der Signal- und Idlerstrahlung	96
5.3.2	Einfach-resonanter Betrieb des SRO	98
5.4	Weite kontinuierliche Durchstimmung der Idlerwellenlänge	101
5.5	Zusammenfassung	106
6	Spektroskopische Anwendung des cw-SRO	109
6.1	Kontinuierlich abstimmbare cw-OPOs und spektroskopische Anwendungen	109
6.2	Experimenteller Aufbau	112
6.3	Rotations-Schwingungsspektrum von N ₂ O	113
6.4	Hochauflösende Aufnahme einer einzelnen Moleküllinie	120
6.5	Hochauflösende Messung mehrerer nebeneinander liegender Moleküllinien .	122
6.6	Zusammenfassung	124
7	Elektronische Stabilisierung des cw-SRO	127
7.1	Verfahren zur Stabilisierung	128
7.2	Stabilisierung der Resonatorlänge des cw-SRO	131
7.3	Stabilisierung der Idlerwellenlänge des cw-SRO auf einen Schwingungs- Rotationsübergang von N ₂ O	133
7.4	Zusammenfassung	136

8 Zusammenfassung	139
Literaturverzeichnis	143
Danksagung	155

Kapitel 1

Einleitung

Spektroskopische Anwendungen in der Umweltanalytik an Substanzen, die nachhaltige Veränderungen der Umwelt hervorrufen, sind von hohem wissenschaftlichen und technischen Interesse. Dabei ist beispielsweise der starke Anstieg der Treibhausgase wie Kohlendioxid (CO_2), Distickstoffmonoxid (N_2O), Methan (CH_4), Schwefelhexafluorid (SF_6) und teilhalogenierte bzw. perfluorierte Fluorkohlenwasserstoffe (H-FKW/HFCs) zu nennen. Die Störung des natürlichen Gleichgewichts der Atmosphäre durch die Emission dieser Treibhausgase verstärkt den natürlichen Treibhauseffekt und führt zur globalen Erwärmung. Aber auch bei fossilen Energieträgern wie beispielsweise Gas und Öl, werden bei deren Umwandlung von chemischer in thermische Energie (Verbrennung) außer Wärme eine ganze Reihe an umweltschädlichen Substanzen freigesetzt. Darunter CO_2 , Kohlenmonoxid (CO), Schwefeloxide (SO_x) und Stickoxide (NO_x), um nur einige zu nennen. Diese chemischen Substanzen können mit Hilfe ihrer Moleküllinien eindeutig bestimmt werden. Dazu werden Absorptionsmessungen im Bereich zwischen nahem bis mittlerem Infrarot-Bereich verwendet, da dort die meisten Moleküle Schwingungs-Rotationsübergänge aus deren Grundzuständen besitzen [1].

Je nach Anwendungsbereich müssen Strahlquellen für die Spektroskopie unterschiedliche Voraussetzungen erfüllen. Bei Spurengasanalysen ist eine weite Durchstimmbarkeit der Wellenlänge notwendig, um möglichst viele nebeneinander liegende Moleküllinien gleichzeitig detektieren zu können, um dadurch Rückschlüsse auf die enthaltenen Inhaltsstoffe des Gases zu ermöglichen [2]. Zur hochauflösenden Molekülspektroskopie sind dagegen möglichst geringe Linienbreiten der verwendeten Strahlung bei gleichzeitiger modensprungfreier Durchstimmbarkeit der Frequenz der eingestrahlten Welle um mehrere GHz notwendig [3, 4]. Dadurch wird das Auflösungsvermögen bei der Untersuchung von Moleküllinien deutlich verbessert.

Als kohärente Strahlquellen für diese Absorptionsmessungen haben sich Laser durch die

geringen Linienbreiten der Strahlung, die hohe Leistungsdichte sowie die oftmals weiten Durchstimmbereiche der Wellenlänge als sehr gut geeignet herausgestellt. Mit der Entwicklung der Laser wie z.B. Festkörper-, Gas-, Farbstoff- oder Halbleiterlaser, wurde nahezu der gesamte Spektralbereich zwischen ultra-violett (UV) und mittleres Infrarot (MIR) abgedeckt. Speziell für den Bereich zwischen nahem Infrarot (NIR) und MIR mussten allerdings neue Strahlquellen für kohärente, schmalbandige und weit durchstimbare Strahlung gefunden werden. Laser emittieren nur in bestimmten eingeschränkten Wellenlängenbereichen, beispielsweise mit Seltenen Erden dotierte Lasermaterialien (z.B. Neodym) bei einer fest definierten Wellenlänge von ca. 1064 nm. Festkörperlaser wie Titan-Saphir-Laser (Ti:Sa) oder Laser mit Chrom-dotierten Kristallen (Cr:LiSAF, Cr:LiCAF, Cr:LiSGaF), hingegen emittieren zwischen 700 nm und 1100 nm. Neueste Entwicklungen auf dem Gebiet der Diodenlaser haben den Bereich zwischen $2\text{ }\mu\text{m}$ und $5\text{ }\mu\text{m}$ erschlossen, allerdings sind diese Systeme weder robust, noch emittieren sie schmalbandige Strahlung. Außerdem emittieren sie nicht kontinuierlich über den gesamten Wellenlängenbereich [5]. Laser decken daher den erforderlichen Spektralbereich nicht lückenlos ab [6, 7]. Eine bedeutende Rolle zur Erschließung neuer Spektralbereiche spielen optisch parametrische Prozesse.

Schon 1961 beobachtete P. A. Franken [8] beim Durchgang von Laserstrahlung durch Quarzglas, dass ein Teil der transmittierten Strahlung seine Frequenz verdoppelt. Dadurch wurde eine rasante Entwicklung auf dem Gebiet der nichtlinearen Optik eingeläutet, welches sich mit der nichtlinearen Wechselwirkung zwischen Licht und Materie beschäftigt. In einem nichtlinearen Prozess wird die einfallende Strahlung in andere Frequenzbereiche konvertiert. Ein optisch parametrischer Oszillator (OPO) beispielsweise wandelt die Pumpstrahlung in kohärente Strahlung um, die im längerwelligen Spektralbereich liegen kann. Der erste OPO wurde durch Giordmaine und Miller 1965 [9] bereits kurz nach dem ersten Laser demonstriert. Durch die Verwendung unterschiedlicher Pumpquellen und unterschiedlicher nichtlinearer Materialien konnten verschiedene Arten von OPOs realisiert werden: kontinuierlich emittierende OPOs [10–12], Kurzpuls-OPOs im Mikrosekunden- bis Nanosekunden-Bereich [13] und Ultrakurzpuls-OPOs im Pico- bis Femtosekunden-Bereich [14, 15]. OPOs wurden im UV, im sichtbaren und im IR-Bereich demonstriert und erreichen aufgrund der hohen Konversionseffizienz des nichtlinearen Prozesses mittlere Ausgangsleistungen zwischen einigen Milliwatt bis mehrere Watt. Mittlerweile sind OPOs ebenso praktisch anwendbar und kompakt wie Laser und kommerziell erhältlich.

Während der letzten Jahre wurden verschiedene OPOs für die Spektroskopie realisiert und erfolgreich in Experimenten demonstriert. Allerdings bestehen die Haupteinschränkungen dieser Systeme in der geringen Durchstimmbarkeit der Wellenlänge über wenige GHz oder der auftretenden Modensprünge während der Durchstimmung [16–19]. Durch die rasche Entwicklung von Halbleiterlasern seit den Anfängen 1962 [20–22], wurden zahlreiche neue

Wellenlängenbereiche erschlossen und die Ausgangsleistungen konnten auf mehrere Watt gesteigert werden. Dadurch war es möglich, Halbleiterlaser als Pumpquellen für OPOs einzusetzen. Halbleiterlaser zeichnen sich außerdem durch ihre gegenüber anderen Lasern kompakte Bauweise aus.

Speziell das System von M. E. Klein [23] stellte ein interessantes Konzept eines für die Spektroskopie geeigneten OPOs dar. Es war der erste OPO, der direkt durch einen Diodenlaser gepumpt wurde. Die Idlerwellenlänge konnte kontinuierlich und modensprungfrei über 56 GHz bei einer Wellenlänge von $2.1 \mu\text{m}$ durchgestimmt werden. Die Durchstimmung der OPO-Wellenlänge erfolgte durch einen externen Resonator in Littmann-Anordnung und dadurch über eine Änderung mechanischer Komponenten. Diese Art der Durchstimmung ist anfällig gegenüber Schwingungen oder sonstigen mechanischen Störungen, die von außen ins System eingebracht werden können. Eine Abhilfe ist eine elektronische Variation der Wellenlänge der Pumpstrahlung.

Die logische Konsequenz ist die Weiterentwicklung des OPOs mit gleichen spektralen Eigenschaften und der in einem ähnlich großen Wellenlängenbereich arbeitet wie der OPO von M. E. Klein. Als Ziel soll die Pumpwellenlänge allerdings rein elektronisch durch eine Änderung des Diodenlaserstroms abstimmbar sein. Im Hinblick auf eine hybride Integration des Pumpsystems und der kompakten Bauweise des gesamten Systems würde dies einen deutlichen Fortschritt mit sich bringen.

Zur Realisierung des OPOs hatte M. E. Klein verschiedene Berechnungen bezüglich des Resonatordesigns durchgeführt. Im Rahmen dieser Überlegungen wurden einzelne Parameter wie die optimale Kristalllänge, eine geeignete Fokussierung der Strahlung im Resonator, die Minimierung der Schwellpumpleistung, die Pumpwellenlänge oder der Resonatoraufbau optimiert. Durch den erstmaligen Einsatz eines DFB-Diodenlasers direkt als Pumplaser ist es wichtig, diese Parameter auf das System dieser Arbeit abzustimmen. Deshalb werden die theoretischen Überlegungen neu aufgegriffen, um einen effizienten Konversionsprozess mit dem OPO zu erzielen. Dabei wurden Überlegungen bezüglich neuer Kristallmaterialien durchgeführt. Speziell die Züchtung neuer Kristallmaterialien, aber auch die Optimierung bestimmter Phasenanpassungsverfahren, z.B. bei der Quasiphasenanpassung (QPM), waren für die Entwicklung von OPOs maßgebend. Bei der QPM wird in ferroelektrischen Kristallen durch Feldinduzierte Domäneninversion mit Hilfe eines starken elektrischen Feldes die spontane Polarisierung periodisch invertiert. Dadurch alterniert das Vorzeichen der Nichtlinearität in bestimmten Abständen. Der nichtlineare Kristall kann dadurch gezielt auf den entsprechenden Konversionsprozess angepasst werden. Dadurch kann der höchste nichtlineare Koeffizient eines Kristallmaterials ausgewählt und für den Konversionsprozess genutzt werden. Durch eine geeignete Wahl der Polungsbereiche kann außerdem der komplette Transparenzbereich des Kristalls für den Konversionsprozess verwendet werden und so Strahlung in Wellenlängenbereichen erzeugt werden,

die nicht mit herkömmlichen Lasern zugänglich sind. Das Standardmaterial LiNbO_3 hat beispielsweise einen Transparenzbereich von $0.4\ \mu\text{m}$ bis $4.5\ \mu\text{m}$.

Bei Anwendungen wie z.B. Laserkühlung bzw. Atom- oder Ionenfallen [24] oder zur hochpräzisen Frequenzmessung werden Strahlquellen benötigt, deren Ausgangsstrahlung sich möglichst exakt bei einer bestimmten Frequenz befindet. Darum ist ein weiteres Ziel dieser Arbeit, den direkt durch einen DFB-Diodenlaser gepumpten SRO mit Hilfe der elektronischen Ansteuerung der Pumpwellenlänge auf das Maximum einer Moleküllinie zu stabilisieren. Die Frequenzstabilität soll sich im Bereich von wenigen MHz bewegen, um die Anforderungen der zuvor dargestellten Anwendungen zu erfüllen.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Zur Realisierung eines für die Frequenzkonversion geeigneten Resonators sind verschiedene theoretische Vorbetrachtungen notwendig. Zunächst gilt es, ein nichtlineares Material zu finden, welches aufgrund seiner hohen nichtlinearen Effektivität die umlaufende Welle möglichst hoch verstärkt. Da das gesamte System möglichst kompakt aufgebaut werden soll, wurde eine Kombination aus DFB-Diodenlaser und Trapezverstärker als Pumplaser verwendet. Da bei diesem System die Pumpleistungen begrenzt sind, wird das Verhalten des OPOs beim Betrieb nahe der Schwelle betrachtet, um dort einen effizienten Betrieb zu gewährleisten. Dazu wurden grundlegende theoretische Betrachtungen durchgeführt, um ein geeignetes Design zu finden und es auf die Ansprüche anzupassen. Die theoretischen Betrachtungen folgen den Beschreibungen in den Arbeiten von Boyd [25] und Zernike [26].

2.1 Lineare und nichtlineare Optik

2.1.1 Lineare Suszeptibilität

Die Wechselwirkung von elektromagnetischen Wellen mit Materie kann anhand des klassischen Atommodells von Lorentz beschrieben werden. Ein Lorentz-Atom besteht aus einem Atomrumpf und einem Elektron. Wird ein konstantes, elektrisches Feld angelegt, verschiebt sich das Elektron und der Abstand zwischen den beiden Teilchen ändert sich. Das Atom wird polarisiert und es entsteht ein statischer Dipol. Oszilliert das elektrische Feld mit der Frequenz ω , dann schwingt das Elektron ebenfalls mit der Frequenz ω um den Ladungsschwerpunkt $x = 0$. Die Polarisation ändert sich ebenfalls mit der Frequenz ω und es entsteht ein oszillierender Dipol. Dieses oszillierende Elektron stellt eine beschleunigte Ladung dar, was zur Abstrahlung einer elektromagnetischen Welle führt. Für kleine elektrische Felder und damit kleine Auslenkungen ist die Frequenz dieser Welle die

gleiche wie die Oszillationsfrequenz des Dipols und dadurch die gleiche wie die Frequenz des eingestrahnten Feldes. Die Phase der Welle sowie die des Dipols hingegen ergibt sich aus der rückstellenden Kraft zwischen Elektron und Atomrumpf. Im Allgemeinen ist die eingestrahlte Welle phasenverschoben zu der vom Dipol erzeugten Welle. Dies hat einen Phasensprung zwischen der Welle vor dem Atom zu der Welle hinter der Wechselwirkung mit dem Atom zur Folge. Dadurch verzögert oder beschleunigt das Atom die Lichtausbreitung.

Die Oszillation des Elektrons um seinen Gleichgewichtszustand kann als harmonischer Oszillator beschrieben werden und es gilt folgende Bewegungsgleichung für eine erzwungene Schwingung:

$$\frac{d^2 r}{dt^2} + 2\gamma \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r = -\frac{e}{m} E(t). \quad (2.1)$$

Hierbei ist r die Auslenkung des Elektrons von seinem Gleichgewichtszustand, e ist die Ladung, m ist seine Masse und ω_0 seine natürliche Frequenz. γ stellt eine Dämpfungskonstante dar und $E(t)$ ist das eingestrahlte, elektrische Feld. Die Bewegung wird zunächst auf eine Dimension begrenzt.

Das eingestrahlte Feld soll die Form

$$E(t) = E_0 \cdot \cos(\omega t - \varphi) \quad (2.2)$$

haben. Zur Erleichterung der Rechnung wird die komplexe Schreibweise verwendet:

$$E(t) = E(\omega) \cdot e^{-i\omega t} + E^*(\omega) \cdot e^{+i\omega t}. \quad (2.3)$$

Die komplexen Feldamplituden hängen über die beiden folgenden Beziehungen mit der reellen Amplitude E_0 zusammen:

$$E(\omega) = \frac{1}{2} E_0 e^{i\varphi} \quad (2.4a)$$

$$E^*(\omega) = \frac{1}{2} E_0 e^{-i\varphi} = E(-\omega). \quad (2.4b)$$

Einsetzen der Gleichung (2.3) in Gleichung (2.1) liefert die Lösung:

$$r(t) = -\frac{e}{m} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - 2i\gamma\omega - \omega^2} \cdot E(\omega) \cdot e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.5)$$

Aus dieser Gleichung lassen sich drei wichtige Merkmale erkennen:

- Das Elektron schwingt mit der Frequenz der einfallenden Welle.
- Die Auslenkung $r(t)$ ist proportional zur Amplitude $E(\omega)$.
- Die Amplitude und die Phase der Oszillation des Elektrons sind von der natürlichen Frequenz ω_0 , der Lichtfrequenz ω und der Dämpfungskonstante γ abhängig.

Die räumliche Polarisationsdichte am Ort des betrachteten Atoms ergibt sich zu:

$$\text{räumliche Polarisationsdichte} = \frac{\text{Anzahl der Dipolmomente}}{\text{betrachtetes Volumen}}. \quad (2.6)$$

Ein Medium mit einer Elektronendichte N hat damit eine Polarisationsdichte von

$$P(t) = -e \cdot N \cdot r(t) \quad (2.7)$$

bzw. mit Gleichung (2.5) ergibt sich

$$P(t) = \frac{N \cdot e^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - 2i\gamma\omega - \omega^2} \cdot E(\omega) \cdot e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.8)$$

Mit der Definition der Suszeptibilität des Mediums als

$$\chi(\omega) = \frac{N \cdot e^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - 2i\gamma\omega - \omega^2}, \quad (2.9)$$

ergibt sich die vom eingestrahnten Feld induzierte Polarisation:

$$P(t) = \chi(\omega) \cdot E(\omega) \cdot e^{-i\omega t} + c.c. \quad (2.10)$$

Die Polarisation dient als Quellterm für die Maxwell-Gleichungen [27]:

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \frac{4\pi\sigma}{c} \vec{E} \quad (2.11)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\mu \vec{H}) \quad (2.12)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (2.13)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \quad (2.14)$$

mit $\vec{D} = \vec{E} + 4\pi \cdot \vec{P}$. Unter der Annahme, dass das Medium nicht leitfähig ($\sigma = 0$) und nicht magnetisierbar ist ($\mu = 1$), können die beiden Maxwellgleichungen (2.11) und (2.12) umgeschrieben werden in

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \quad (2.15)$$

und

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}. \quad (2.16)$$

Mit der Beziehung $\vec{P} = \chi \cdot \vec{E}$ und der Definition der Dielektrizitätskonstante $\epsilon = 1 + 4\pi\chi$, kann (2.15) vereinfacht werden zu

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\epsilon}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}. \quad (2.17)$$

Die Bildung der Rotation ($\nabla \times$) auf beiden Seiten der Gleichung (2.16) und Einsetzen von (2.17) ergibt die Beziehung:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\epsilon}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right). \quad (2.18)$$

Aufgrund der Beziehung $\vec{A} \times \vec{B} \times \vec{C} = \vec{B}(\vec{A} \cdot \vec{C}) - \vec{C}(\vec{A} \cdot \vec{B})$ gilt für $\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla \cdot (\nabla \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E}$. Außerdem gilt aufgrund der Maxwellgleichungen $\nabla \cdot \vec{E} = 0$. Damit ergibt sich die Wellengleichung

$$\nabla^2 \vec{E} = \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}, \quad (2.19)$$

die für den eindimensionalen Fall ($\partial/\partial x = \partial/\partial y = 0$) folgende Form annimmt:

$$\frac{d^2 \vec{E}}{dz^2} = \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}. \quad (2.20)$$

Eine mögliche Lösung für die Wellengleichung (2.20) ist eine ebene Welle der Form

$$E(z, t) = E_0 \cdot e^{i(\omega t - kz)} + c.c. \quad (2.21)$$

mit der Wellenzahl

$$k^2 = \frac{\epsilon \cdot \omega^2}{c^2}. \quad (2.22)$$

Dadurch ist k abhängig von der Frequenz der Welle und ihrer Geschwindigkeit im Medium. Die Geschwindigkeit im Medium wird durch die Brechzahl n beschrieben. Mit $k = n\omega/c$ gilt für den Brechungsindex

$$n^2 = \epsilon = 1 + 4\pi\chi. \quad (2.23)$$

Durch Einsetzen von Gleichung (2.9) in Gleichung (2.23) ergibt sich

$$n^2 = 1 + \frac{Ne^2}{m} \cdot \frac{4\pi}{\omega_0^2 - 2i\gamma\omega - \omega^2}. \quad (2.24)$$

Wenn keine Dämpfung vorliegt ($\gamma = 0$), dann besitzt n einen reellen Wert. Ist $\gamma \neq 0$, dann wird n komplex. Eine Erweiterung der Gleichung (2.24) mit der komplex Konjugierten des Nenners und anschließendem Einsetzen in Gleichung (2.21) ergibt eine ebene Welle der Form:

$$E(z, t) = E_0 \cdot \underbrace{e^{-n_I(\omega) \frac{\omega z}{c}}}_{\text{Absorption}} \cdot \underbrace{e^{-i\omega(t - n_R(\omega) \frac{z}{c})}}_{\text{Dispersion}}. \quad (2.25)$$

Der Imaginärteil in Gleichung (2.25) sorgt für eine Abschwächung des Feldes beim Durchgang durch ein Medium. Dies entspricht einer Absorption der Welle im Medium. Der Realteil entspricht einer ebenen Welle mit gleicher Frequenz, aber modifizierter Ausbreitungsgeschwindigkeit. Dies wird als Dispersion bezeichnet.

Die meisten Materialien besitzen mehr als eine natürliche Frequenz ω_0 und damit mehr als eine Absorptionsbande. Wird die Absorption durch die Bewegung der Elektronen hervorgerufen, dann ist ω_0 sehr groß, und die Absorptionsbanden liegen im ultravioletten oder sichtbaren Bereich des Spektrums. Ergibt sich die natürliche Frequenz aus den Resonanzfrequenzen der Schwingungen der Atome untereinander, dann liegen die Absorptionen im infraroten (IR) Bereich des Spektrums. Besteht das Material aus unterschiedlichen Atomen, besitzt jedes Atom seine eigene Resonanzfrequenz. Daher ist aufgrund des Absorptionsspektrums eine direkte Aussage bezüglich der Zusammensetzung eines Materials möglich. Weiterhin wird der Brechungsindex (2.24) eines Materials durch die Wechselwirkung der Atome des Mediums untereinander beeinflusst. Bei manchen Materialien ist diese Wechselwirkung der Atome unterschiedlich für verschiedene Richtungen. Solche Materialien werden anisotrop genannt. Die meisten Materialien, in denen eine solche Anisotropie vorkommt, sind von kristalliner Form [26]. Daher werden die weiteren Betrachtungen in dieser Arbeit auf Kristalle beschränkt.

Aufgrund der Richtungsabhängigkeit der Wechselwirkung in anisotropen Materialien genügt es nicht mehr, die Suszeptibilität χ durch einen Skalar zu beschreiben. Sie wird daher durch einen Tensor 2. Stufe beschrieben. Für P gilt:

$$P_i = \chi_{ik} E_k, \quad (2.26)$$

wobei nach der Einstein'schen Summenkonvention über doppelt auftretende Indizes summiert wird. Es wird angenommen, dass die magnetische und elektrische Energiedichte wie im isotropen Medium auch im anisotropen Medium zu je der Hälfte gespeichert wird. Weiterhin soll im anisotropen Medium auch der Energiefluss durch den Poynting-Vektor $\vec{S}$ beschrieben werden. Die gespeicherte elektrische Energiedichte beträgt

$$W_e = \frac{1}{8\pi} (\vec{E} \cdot \vec{D}) = \frac{1}{8\pi} E_j \epsilon_{jk} E_k. \quad (2.27)$$

Nach Bilden der zeitlichen Ableitung ergibt sich

$$\frac{\partial}{\partial t} W_e = \frac{1}{8\pi} \left(E_k \epsilon_{kj} \frac{\partial E_j}{\partial t} + E_j \epsilon_{jk} \frac{\partial E_k}{\partial t} \right). \quad (2.28)$$

Der Poynting-Vektor ist definiert als

$$\vec{S} = \frac{c}{4\pi} (\vec{E} \times \vec{H}). \quad (2.29)$$

Damit beträgt der Energiefluss in ein Einheitsvolumen

$$\nabla \cdot \vec{S} = \frac{c}{4\pi} \nabla \cdot (\vec{E} \times \vec{H}). \quad (2.30)$$

Durch die Multiplikation der Gleichung (2.11) mit $\vec{E}$ und Gleichung (2.12) mit $\vec{H}$ und unter Berücksichtigung der Beziehung $\nabla \cdot (\vec{A} \times \vec{B}) = \vec{A} \cdot (\nabla \times \vec{B}) + \vec{B} \cdot (\nabla \times \vec{A})$ ergibt sich für den Energiefluss

$$\nabla \cdot \vec{S} = \frac{1}{4\pi} \left(\vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} - \vec{H} \cdot \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \right) \quad (2.31)$$

und mit der Beziehung $D_i = \epsilon_{ij} E_j$:

$$\nabla \cdot \vec{S} = \frac{1}{4\pi} \left(E_k \epsilon_{kl} \frac{\partial E_l}{\partial t} - \vec{H} \cdot \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \right). \quad (2.32)$$

Der linke Term dieser Gleichung stellt die elektrische Energieflussdichte dar. Die zeitliche Änderung der elektrischen Energiedichte W_e im Einheitsvolumen muss aber dem Energiefluss in oder aus dem Volumen entsprechen. Es muss daher folgende Beziehung gelten:

$$\frac{\partial}{\partial t} W_E - \nabla \cdot \vec{S} = 0. \quad (2.33)$$

Mit Gleichung (2.28) folgt daraus, dass

$$\frac{1}{4\pi} \left(E_k \epsilon_{kj} \frac{\partial \vec{E}_j}{\partial t} \right) = \frac{1}{8\pi} \left(E_k \epsilon_{kj} \frac{\partial E_j}{\partial t} + E_j \epsilon_{jk} \frac{\partial E_k}{\partial t} \right). \quad (2.34)$$

Diese Gleichung kann nur erfüllt werden, wenn $\epsilon_{jk} = \epsilon_{kj}$. Daher ist der Tensor symmetrisch, d.h. er besitzt nur sechs unabhängige Koordinaten. Durch eine geeignete Drehung der Koordinatenachsen können drei der Koordinaten eliminiert werden. Die drei restlichen Koordinaten werden dielektrische Hauptachsen genannt und der Tensor ist diagonalisierbar:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_x & 0 & 0 \\ 0 & \chi_y & 0 \\ 0 & 0 & \chi_z \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}. \quad (2.35)$$

Entsprechend gilt für den Dielektrizitätstensor

$$\begin{pmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_x & 0 & 0 \\ 0 & \chi_y & 0 \\ 0 & 0 & \chi_z \end{pmatrix}, \quad (2.36)$$

und die elektrische Energiedichte beträgt:

$$W_E = \frac{1}{8\pi} E_j \epsilon_{jk} E_k = \frac{1}{8\pi} (\epsilon_x E_x^2 + \epsilon_y E_y^2 + \epsilon_z E_z^2). \quad (2.37)$$

2.1.2 Wellenausbreitung in anisotropen Medien

Es wird nun die Transmission einer ebenen, monochromatischen Welle durch einen Kristall betrachtet. Dazu wird eine Welle wie in Gleichung (2.21) definiert. Die Bewegung wird allerdings nicht mehr durch einen Skalar beschrieben, sondern durch den Wellenvektor $\vec{k}$ dargestellt:

$$\vec{k} = \frac{\omega n}{c} \vec{s}. \quad (2.38)$$

$\vec{s}$ ist ein Einheitsvektor senkrecht zur Wellenfront.

Die Orientierungen der Parameter $\vec{E}$, $\vec{H}$, $\vec{D}$ und $\vec{S}$ sollen nun genauer untersucht werden. Hierbei wird eine Fouriertransformation zur Umformung der Maxwellgleichungen (2.11) verwendet. Um eine Transformation vom Zeitraum in den Frequenzraum durchzuführen, wird in den Maxwellgleichungen (2.11) und (2.12) der Operator ∇ durch $\vec{s}(\frac{i\omega n}{c})$ ersetzt. Die zeitliche Ableitung $\frac{\partial}{\partial t}$ wird durch eine Multiplikation mit $i\omega$ ersetzt. Damit können die Maxwellgleichungen, für den Fall eines nichtleitenden, unmagnetischen Kristallmaterials, umgeformt werden zu:

$$\vec{H} \times \vec{s} = \frac{1}{n} \vec{D} \quad (2.39)$$

und

$$\vec{E} \times \vec{s} = -\left(\frac{1}{n}\right) \vec{H}. \quad (2.40)$$

Aus Gleichung (2.39) folgt direkt, dass $\vec{D}$ senkrecht zu $\vec{H}$ und $\vec{s}$ steht. Ebenso liefert Gleichung (2.40), dass $\vec{H}$ senkrecht zu $\vec{E}$ und $\vec{s}$ orientiert ist. Aufgrund der Anisotropie gilt aber weiterhin

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j. \quad (2.41)$$

Daraus lässt sich direkt erkennen, dass $\vec{D}$ nicht mehr parallel zu $\vec{E}$ ist. Aufgrund der Beziehung (2.29) zeigt die Richtung des Energieflusses ($\vec{E} \times \vec{H}$) nicht in die Richtung des Wellenvektors. Der Winkel zwischen beiden Richtungen ist definiert als:

$$\rho = \frac{\vec{S} \cdot \vec{k}}{|\vec{S}| \cdot |\vec{k}|} \quad (2.42)$$

und wird als räumlicher *walk-off* bezeichnet.

2.1.3 Nichtlineare Suszeptibilität

In Abschnitt 2.1.1 wurde der lineare Zusammenhang zwischen der induzierten Polarisaton und dem elektrischen Feld gezeigt. Diese Proportionalität war nur für den Fall kleiner elektrischer Felder gültig. Für große elektrische Felder ist die induzierte Polarisaton (2.10) nicht mehr linear proportional zu $\vec{E}$. Die Polarisaton kann durch eine Taylorreihenentwicklung ausgedrückt werden, die die dabei auftretenden höheren Terme von $\vec{E}$ enthält:

$$\begin{aligned}
P(t) &= \chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \dots \\
&= P_{lin}(t) + P_{nl}(t).
\end{aligned} \tag{2.43}$$

$\chi^{(k)}$ ist der Suszeptibilitätstensor k -ter Ordnung des nichtlinearen Mediums. Die nichtlineare Polarisation $P_{nl}(t)$ wird durch die Suszeptibilitäten höherer Ordnung $\chi^{(k)}$ mit $k \geq 2$ in Gleichung (2.43) beschrieben, wobei $\chi^{(k)} \gg \chi^{(k+1)}$. Weiterhin gilt, dass bei Medien mit Inversionssymmetrie, z.B. kubische Kristalle oder Gase, die Anteile von $\chi^{(2n)}$ Null sind.

Wechselwirken zwei Lichtwellen der Form

$$E_1(z, t) = E_1^0 \cos(\omega_1 t - k_1 z) \tag{2.44}$$

und

$$E_2(z, t) = E_2^0 \cos(\omega_2 t - k_2 z) \tag{2.45}$$

in einem Kristall, so kommt es zu einer Überlagerung beider Wellen und die Gesamtpolarisation lautet:

$$P(t) = \underbrace{\chi^{(1)}(E_1 + E_2)}_{\text{lin. Anteil}} + \underbrace{\chi^{(2)}(E_1 + E_2)^2 + \dots}_{\text{nichtlin. Anteil}} \tag{2.46}$$

Der lineare Anteil der Polarisation ist bereits bekannt. Er liefert zwei Wellen, die im Allgemeinen unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten haben und sich voneinander unabhängig im Medium ausbreiten. Der erste Term des nichtlinearen Anteils kann durch Einsetzen der beiden Felder E_1 und E_2 , mit Hilfe der trigonometrischen Zusammenhänge $\cos^2(\alpha) = \frac{1}{2}(1 + \cos(2\alpha))$ und $\cos(\alpha)\cos(\beta) = \frac{1}{2}[\cos(\alpha + \beta) + \cos(\alpha - \beta)]$ und anschließend Umsortieren der Terme umgeformt werden zu:

$$\begin{aligned}
P_{nl}(t) &= \chi^{(2)} \cdot \frac{1}{2} E_1^2 \cos(2(\omega_1 t - k_1 z)) + \\
&\quad \chi^{(2)} \cdot \frac{1}{2} E_2^2 \cos(2(\omega_2 t - k_2 z)) + \\
&\quad \chi^{(2)} \cdot E_1 E_2 \cos((\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z) + \\
&\quad \chi^{(2)} \cdot E_1 E_2 \cos((\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z) + \\
&\quad \chi^{(2)} \cdot \frac{1}{2} (E_1^2 + E_2^2).
\end{aligned} \tag{2.47}$$

Aus Gleichung (2.47) wird sofort ersichtlich, dass bereits die erste nichtlineare Ordnung der Polarisation zur Aussendung von fünf verschiedenen Frequenzen führen kann. Die beiden ersten Terme sind die zweiten Harmonischen der Ursprungswellen ω_1 und ω_2 . Die Frequenzen sind entsprechend $\omega_3 = 2 \cdot \omega_1$ und $\omega_3 = 2 \cdot \omega_2$. Der dritte Term liefert die Differenzfrequenz $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ und der vierte Term entsprechend die Summenfrequenz $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Der stationäre Term wird als optische Gleichrichtung bezeichnet mit der Frequenz 0. Bei diesen Prozessen sind jeweils drei unterschiedliche Wellen beteiligt, die miteinander *gemischt* werden. Deshalb werden solche Prozesse auch *Drei-Wellen-Mischungen* genannt.

Bei dem Konversionsprozess in einem OPO, wie er in den Experimenten verwendet wurde, handelt es sich um einen Spezialfall der Differenzfrequenz-Erzeugung. Die Differenzfrequenz-Erzeugung wird durch die nichtlineare Polarisation der Form

$$P(\omega_1 - \omega_2) = 2 \cdot \chi^{(2)} E_1 E_2^* \quad (2.48)$$

beschrieben. Die Frequenz der generierten Welle ω_3 ist die Differenz aus den Frequenzen der beiden eingestrahlten Felder. In Abbildung 2.1 ist das Energieniveau-Schema der Differenzfrequenz-Erzeugung dargestellt. Die Energieerhaltung verlangt, dass bei der Erzeugung eines Photons mit der Differenzfrequenz $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ ein Photon mit der höheren Frequenz (ω_1) vernichtet wird, während ein Photon mit der geringeren Frequenz (ω_2) erzeugt wird. Dadurch wird das Feld geringerer Frequenz bei der Differenzfrequenz-Erzeugung verstärkt. Aus diesem Grund wird dieser Prozess auch *optisch-parametrische Verstärkung* genannt.

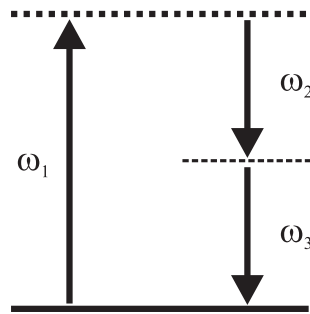


Abbildung 2.1: Energieniveau-Schema der Differenzfrequenz-Erzeugung. Ein Pumpphoton mit der Frequenz ω_1 zerfällt in zwei Photonen mit den Frequenzen ω_2 und ω_3 .

Anhand des Energieniveau-Schemas in Abbildung 2.1 lässt sich erkennen, dass ein wechselwirkendes Atom des nichtlinearen Mediums zunächst ein Photon der Frequenz ω_1 absorbiert und dadurch auf das höchste Energieniveau angeregt wird. Dieses Niveau zerfällt durch eine Zwei-Photonen-Emission, die durch das bereits vorhandene Feld ω_2 angeregt wird. Die in Abbildung 2.1 angedeuteten Energieniveaus sind virtuell.

Drei-Wellen-Mischung in drei Dimensionen

Bisher waren E , P und χ Skalare. Im dreidimensionalen Raum betrachtet haben E und P eine Richtung und werden dadurch zu Vektoren mit drei Komponenten. $\chi^{(2)}$ ist daher ein Tensor dritter Stufe. Da in den nächsten Schritten nur $\chi^{(2)}$ -Prozesse betrachtet werden, wird folgende Abkürzung definiert:

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ijk}. \quad (2.49)$$

Mit den oben gemachten Annahmen im dreidimensionalen Raum kann die erste nichtlineare Polarisation geschrieben werden als:

$$P_i(\omega_{n+m}) = \sum_{j,k} \sum_{n,m} \chi_{ijk}(\omega_{n+m}, \omega_n, \omega_m) \cdot E_j(\omega_n) \cdot E_k(\omega_m) \cdot e^{-i(\omega_n + \omega_m)t}. \quad (2.50)$$

Dabei wurde die Notation von $\chi(\omega_n, \omega_m)$ zu $\chi(\omega_{n+m}, \omega_n, \omega_m)$ geändert. Damit ist die Abhängigkeit der nichtlinearen Polarisation von allen drei Frequenzen eindeutig erkennbar. In Gleichung (2.50) ist E_j eine der Komponenten des ersten Feldes in $\chi^{(2)}$. Entsprechend ist E_k eine der Komponenten des zweiten Feldes. P_i ist eine der Komponenten der induzierten nichtlinearen Polarisation und χ_{ijk} eine der Komponenten der nichtlinearen Suszeptibilität. Die Indizes i, j, k laufen über x, y, z . Außerdem ist $\omega_{n+m} = \omega_n + \omega_m$.

Es werden zwei Ursprungswellen betrachtet, die eine nichtlineare Polarisation induzieren, d.h. n und m können maximal ± 2 betragen. Für jedes Paar n, m existieren drei mögliche Wechselwirkungen mit den drei unterschiedlichen Frequenzen. $E(\omega_n + \omega_m)$ wird aus $E(\omega_n)$ und $E(\omega_m)$ erzeugt, $E(\omega_n)$ aus $E(\omega_n + \omega_m)$ und $E(\omega_m)$. $E(\omega_m)$ beschreibt die Wechselwirkung aus $E(\omega_n + \omega_m)$ und $E(\omega_n)$. Würden alle möglichen Kombinationen in Gleichung (2.50) eingesetzt werden, ergäbe dies 162 Terme. Zur Veranschaulichung werden hier nur die Terme, die sich aus der Differenzfrequenzmischung ($\omega_1 - \omega_2 = \omega_3$) und deren Rückkonversion ergeben, angegeben:

$$\begin{aligned} P_i(\omega_1) &= \chi_{ijk}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_2) E_k(\omega_3) e^{-i(\omega_3 + \omega_2)t} \\ &+ \chi_{ijk}(\omega_1, \omega_3, \omega_2) E_j(\omega_3) E_k(\omega_2) e^{-i(\omega_3 + \omega_2)t} \\ P_j(\omega_2) &= \chi_{jki}(\omega_2, \omega_1, -\omega_3) E_k(\omega_1) E_i(-\omega_3) e^{-i(\omega_1 - \omega_3)t} \\ &+ \chi_{jki}(\omega_2, -\omega_3, \omega_1) E_k(-\omega_3) E_i(\omega_1) e^{-i(\omega_1 - \omega_3)t} \\ P_k(\omega_3) &= \chi_{kij}(\omega_3, -\omega_2, \omega_1) E_i(-\omega_2) E_j(\omega_1) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} \\ &+ \chi_{kij}(\omega_3, \omega_1, -\omega_2) E_i(\omega_1) E_j(-\omega_2) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t}. \end{aligned} \quad (2.51)$$

Die Polarisationssterme wurden mit Hilfe der Summenkonvention von Einstein nach der Oszillatorfrequenz angeordnet. Hierbei wurden *negative* Frequenzen verwendet, die keine realen Frequenzen darstellen, aber als Hilfsmittel dienen, um alle möglichen Kombinationen der Polarisationssterme darzustellen.

Miller'sche Regel

Die $\chi^{(2)}$ -Nichtlinearität ist im dreidimensionalen Fall [28]:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi^{(1)}(\omega_1) \cdot \chi^{(1)}(\omega_2) \cdot \chi^{(1)}(\omega_3) \cdot \Delta_{ijk}. \quad (2.52)$$

Diese Beziehung ist nach R. C. Miller benannt, der durch Messungen an Kristallen und deren Vergleich mit einem Referenzkristall herausfand, dass der Faktor Δ_{ijk} für viele Materialien einen konstanten Wert hat. Aus den vorherigen Betrachtungen ist bekannt, dass die nichtlineare erzeugte Leistung proportional zu $(\chi^{(2)})^2$ ist. Die erzeugte Leistung ist aber auch proportional zu $1/n^3$, d.h. es sind Kristalle mit kleinem Brechungsindex notwendig, wenn große Leistungen erzielt werden sollen. Darum wurde ein Konversionsmaß M (auch *figure of merit* oder *FOM* genannt) definiert:

$$M = \frac{(\chi^{(2)})^2}{4n^3} = \frac{d^2}{n^3}. \quad (2.53)$$

d wird als nichtlinearer Koeffizient bezeichnet. Ein Koeffizientenvergleich liefert allgemein:

$$d_{ijk} = \frac{1}{2}\chi_{ijk}. \quad (2.54)$$

In der Realität ist es nicht möglich zu unterscheiden, welche der Wellen zuerst eingestrahlt wird. Um diesen Aspekt mathematisch in die bereits bekannten Formeln einzuarbeiten, wird ein quadratischer Feldausdruck eingeführt, der $E_j E_k$ in $P = \chi_{ijk} E_j E_k$ ersetzt und beim Vertauschen von E_j und E_k unverändert bleibt. Der Feldausdruck lautet

$$F_l = \left(1 - \frac{1}{2}\delta_{jk}\right) (E_j E_k + E_k E_j), \quad (2.55)$$

mit dem Kronecker-Delta δ_{jk} . Mit dem quadratischen Feldausdruck F_l bleibt die resultierende nichtlineare Polarisation unverändert, selbst wenn die Indizes j und k vertauscht werden. Es gilt daher

$$\chi_{ijk} = \chi_{ikj} \quad \text{und} \quad d_{ijk} = d_{ikj}. \quad (2.56)$$

Dadurch gibt es nur noch 18 unabhängige Komponenten von d . Durch die Symmetrie der beiden Indizes i und j kann mit Hilfe der Transformation

$$d_{ijk} = d_{ikj} \mapsto d_{il} \quad (2.57)$$

der Tensor dritter Stufe in eine 3×6 -Matrix umgewandelt werden. Die nichtlineare Polarisation kann dadurch kompakt geschrieben werden:

$$P_l^{(2)} = 2d_{il}F_l. \quad (2.58)$$

Dabei gilt folgende Zählweise der Indizes:

l	1	2	3	4	5	6
jk	11	22	33	23,32	13,31	12,21

Tabelle 2.1: Die Zählweise der Indizes der effektiven nichtlinearen Koeffizienten.

In Matrixform lauten die beiden Gleichungen (2.55) und (2.58) dann:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_yE_z \\ 2E_xE_z \\ 2E_xE_y \end{pmatrix}. \quad (2.59)$$

Eine weitere Einschränkung der Kombinationsmöglichkeiten der Matrixelemente d_{il} ist durch die Betrachtung der Kristallsymmetrien möglich. Je höher die Symmetrie des Kristalls, desto mehr Elemente von d_{il} sind Null. Eine weitere Einschränkung liefert die Kleinman-Symmetrie [29]. Diese besagt, dass bei vernachlässigbarer Dispersion ($n(\omega_1) \approx n(\omega_2) \approx n(\omega_1 + \omega_2)$), alle drei Indizes von d_{ijk} beliebig vertauscht werden können, d.h. es gilt:

$$d_{ijk} = d_{ikj} = d_{jik} = d_{kji} = d_{kij} = d_{kji}. \quad (2.60)$$

Gilt die Kleinman-Symmetrie, dann reduzieren sich die Anzahl der voneinander unabhängigen Tensorelemente von 18 auf 10.

Als Beispiel für die Verwendung räumlicher Symmetrien und der Kleinman-Symmetrie soll ein Kristall der Klasse 222 dienen mit drei 2-zähligen Rotationsachsen. Angenommen, die Dispersion ist vernachlässigbar, dann gilt die Kleinman-Symmetrie, und die Indizes können beliebig vertauscht werden. Daraus folgt, dass $d_{123} = d_{213} = d_{312}$ oder mit Tabelle

2.1 $d_{14} = d_{25} = d_{36}$. Es gibt also nur noch eine unabhängige Komponente von d_{il} . Eine Übersicht über die Komponenten d_{il} der einzelnen Kristallklassen ist in Abbildung 2.2 dargestellt [26].

Der effektive nichtlineare Koeffizient d_{eff}

Durch die bisherigen Überlegungen wurden die unabhängigen Komponenten von d für den allgemeinen Fall auf 18 eingeschränkt, in speziellen Fällen, etwa wenn die Kleinman-Symmetrie gilt, sogar noch weniger. Gleichung (2.50) beinhaltet die Summe über Matrixelemente die ungleich Null sind und die Berücksichtigung der Polarisierung der wechselwirkenden Wellen. In der Praxis bleiben die Polarisationsrichtung oder der Einfallswinkel der Wellen durch geeignete Beschichtungen aber meist konstant oder variieren nur wenig. Daher ist es sinnvoll, die Summation für die speziellen Verhältnisse exemplarisch durchzuführen und das Ergebnis als einen effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} anzugeben. Dieser ist definiert als

$$P = d_{\text{eff}} \cdot E(\omega_1) \cdot E(\omega_2). \quad (2.61)$$

Für bestimmte experimentelle Vorgaben wie z.B. die Kristallklasse oder Polarisationsrichtungen, können die effektiven nichtlinearen Koeffizienten in Tabellen nachgelesen werden, wie z.B. in den Arbeiten von Zernike [26] oder Dmitriev [30].

2.1.4 Die gekoppelten Amplitudengleichungen

Die vorherigen Abschnitte liefern die theoretischen Voraussetzungen zur Herleitung von Gleichungen, die das Verhalten der Amplituden dreier wechselwirkender Wellen in einem nichtlinearen Medium beschreiben. Die Gleichungen liefern Hinweise über die Phasendifferenz zwischen der Polarisationswelle und der von der Polarisationswelle abgestrahlten Welle.

Zur Herleitung dieser Gleichungen wird nahezu analog zum linearen Fall vorgegangen (siehe Kapitel 2.1.1). Die nichtlineare Polarisation wird als Quellterm in die Maxwellgleichungen (2.11) und (2.12) eingesetzt, wobei $\vec{D} = \epsilon \vec{E} + 4\pi \vec{P}_{NL}$ ist. $\epsilon \vec{E}$ enthält alle linearen Eigenschaften, und $\vec{P}_{NL}$ stellt die nichtlineare Polarisation dar. Außerdem soll auch hier das Material nicht leitfähig ($\sigma = 0$) und nicht magnetisierbar ($\mu = 1$) sein. Durch Bildung der Rotation auf beiden Seiten der Gleichung (2.12) und anschließendem Einsetzen von Gleichung (2.11) ergibt sich:

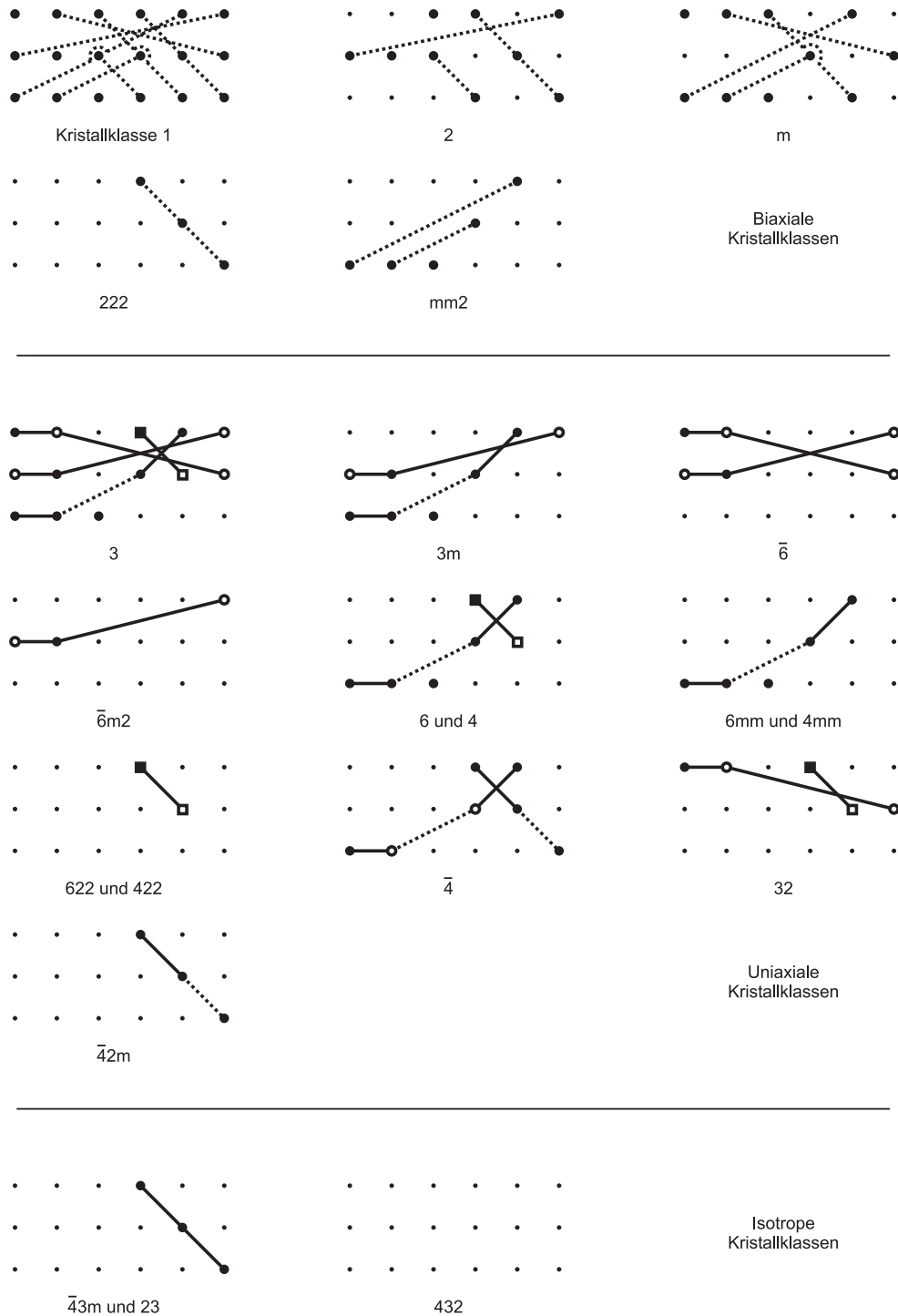


Abbildung 2.2: Übersicht der d_{il} -Matrizen der verschiedenen Kristallklassen nach Zernike [26]. Erläuterungen der Zeichen: $\cdot$ = Koeffizient ist Null; $\bullet$ = von Null verschiedener Koeffizient; $\blacksquare$ = Koeffizient ist Null, wenn die Kleinman-Symmetrie gilt; mit durchgezogener Linie verbundene Punkte = gleiche Koeffizienten; $\circ$ oder $\square$ = gleicher Wert des verbundenen Koeffizienten, aber umgekehrtes Vorzeichen. Verbindungen, die durch gestrichene Linien symbolisiert sind, gelten nur, wenn die Kleinman-Symmetrie gilt.

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\epsilon}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \vec{P}_{NL}}{\partial t} \right). \quad (2.62)$$

Mit den aus der linearen Optik bekannten Identitäten für die Kreuzprodukte folgt daraus die Wellengleichung:

$$\nabla^2 \vec{E} = \frac{\epsilon}{c} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}. \quad (2.63)$$

Zur Lösung dieser Gleichung wird das Problem auf eine Dimension beschränkt ($\partial/\partial x = \partial/\partial y = 0$), und es wird eine in z -Richtung laufende Welle betrachtet. Außerdem wird die Anzahl der miteinander wechselwirkenden Lichtwellen auf drei beschränkt. Die Lichtwellen haben die Form:

$$\vec{E}_i(z, t) = \vec{E}_i^0(z) \cdot e^{-i(\omega_i t - k_i z)} \quad (2.64)$$

mit $i = 1, 2, 3$. Die Indizes i nummerieren die unterschiedlichen Frequenzen der Wellen. Dazu gehören die drei Gleichungen mit den entsprechenden negativen Frequenzen. Diese Definition ist sehr ähnlich mit der aus Abschnitt 2.1.1 bekannten Schreibweise. Im linearen Modell bleibt die komplexe Amplitude $\vec{E}_i^0$ jedoch konstant, während sie im nicht-linearen Fall aufgrund der Wechselwirkung mit Wellen unterschiedlicher Frequenz variiert. Die Phase und die Amplitude der komplexen Feldamplitude hängen beide von z ab. Die Feldamplitude kann daher geschrieben werden als:

$$\vec{E}_i^0(z) = \frac{1}{2} \vec{E}_i(z) \cdot e^{-i\varphi(z)} \quad (2.65)$$

mit der reellen Amplitude $\vec{E}_i(z)$ und der reellen Phase $\varphi(z)$. Mit dieser Form der Darstellung der Amplitude lauten nach den Gleichungen (2.51) die Gleichungen für die Polarisation:

$$P_1(z, t) = 4 \cdot d \cdot E_2^{0*}(z) \cdot E_3^0(z) \cdot e^{-i((\omega_3 - \omega_2)t - (k_3 - k_2)z)} \quad (2.66)$$

$$P_2(z, t) = 4 \cdot d \cdot E_3^0(z) \cdot E_1^{0*}(z) \cdot e^{-i((\omega_3 - \omega_1)t - (k_3 - k_1)z)} \quad (2.67)$$

$$P_3(z, t) = 4 \cdot d \cdot E_1^0(z) \cdot E_2^0(z) \cdot e^{-i((\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z)}. \quad (2.68)$$

Hierbei wurde wiederum der Fall der Differenzfrequenz-Erzeugung $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ betrachtet mit der Identität $E(\omega) = E^*(-\omega)$. Zum Einsetzen dieser Gleichungen in die Wellengleichung (2.63) muss die zweite zeitliche Ableitung gebildet werden. Exemplarisch wurde dies für P_1 durchgeführt und sie lautet:

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} P_1 = -(\omega_3 - \omega_2)^2 \cdot 4 \cdot d \cdot E_2^{0*}(z) \cdot E_3^0(z) \cdot e^{-i((\omega_3 - \omega_2)t - (k_3 - k_2)z)}. \quad (2.69)$$

Analoge Ausdrücke ergeben sich für die beiden Gleichungen von P_2 und P_3 . Auf die gleiche Art werden die zweiten Ortsableitungen nach z von E_i gebildet:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_1(z, t) = - \left(k_1^2 \cdot E_1^0(z) - 2ik_1 \cdot \frac{\partial}{\partial z} E_1^0(z) - \underbrace{\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_1^0(z)}_{\star} \right) \cdot e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)}. \quad (2.70)$$

Mit Hilfe der Annahme, dass sich die Amplitude $E(z)$ entlang der Ausbreitung in z -Richtung innerhalb einer Wellenlänge nur wenig ändert, kann der mit $\star$ gekennzeichnete Term vernachlässigt werden (*slowly varying envelope approximation*). Weiterhin wird angenommen, dass jede Welle für sich bereits die Wellengleichung ohne Nichtlinearität erfüllt. Daraus folgt, dass $k_i^2 = \epsilon \frac{\omega_i^2}{c^2}$. Außerdem ist aus Abschnitt 2.1.1 bereits bekannt, dass $n^2 = \epsilon$. Aus der Wellengleichung (2.63) und den beiden Ableitungen von P_i nach Zeit (2.69) und E_i nach Ort (2.70) können damit die gekoppelten Amplitudengleichungen für die Dreiwellenmischung hergeleitet werden:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} \right) E_1(z) = -i \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1 c^2} \cdot d \cdot E_2^*(z) \cdot E_3(z) e^{i\Delta k \cdot z} \quad (2.71a)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} \right) E_2(z) = -i \frac{8\pi\omega_2^2}{k_2 c^2} \cdot d \cdot E_3(z) \cdot E_1^*(z) e^{i\Delta k \cdot z} \quad (2.71b)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} \right) E_3(z) = -i \frac{8\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} \cdot d \cdot E_1(z) \cdot E_2(z) e^{i\Delta k \cdot z}. \quad (2.71c)$$

Die drei Gleichungen koppeln die drei verschiedenen Felder und geben die Änderungsrate der Amplitude als Funktion der Wechselwirkungslänge für jeweils eine Frequenz in Abhängigkeit der beiden anderen Amplituden an und in Abhängigkeit der Phasendifferenz Δk zwischen der Polarisationswelle und der erzeugten Welle. Δk ist

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1, \quad (2.72)$$

und wird als Wellenvektordifferenz bzw. Phasenfehlانpassung bezeichnet. Durch die Kopplung der drei Differentialgleichungen (2.71a-c) ist eine allgemeine analytische Lösung sehr schwierig. Um sie analytisch lösen zu können, wird die Annahme gemacht, dass der Betrag

der erzeugten Leistung (die Konversionseffizienz) so klein ist, dass die Änderung der Amplituden von E_1 und E_2 vernachlässigt werden kann. Für den Fall der Differenzfrequenz-Erzeugung ($\omega_1 - \omega_2 = \omega_3$) ist somit nur noch die dritte Amplitudengleichung interessant, die dargestellt werden kann als:

$$\int_0^L \frac{\partial E_3(z)}{\partial z} dz = -i \frac{8\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} \cdot d \cdot E_1 \cdot E_2 \int_0^L e^{i\Delta k \cdot z} dz. \quad (2.73)$$

Mit dem Integral $\int e^{ax} dx = 1/a \cdot e^{ax}$ kann diese Gleichung umgeformt werden zu:

$$E_3(L) = -\frac{8\pi\omega_3^2 \cdot d \cdot E_1 \cdot E_2}{\Delta k \cdot k_3 c^2} \cdot (e^{i\Delta k \cdot L} - 1) \quad (2.74)$$

mit der Kristalllänge L . Durch die Beziehungen $\omega_3 = 2\pi c/\lambda_3$ und $k_3 = 2\pi n/\lambda_3$ kann Gleichung (2.74) auch mit Hilfe der Wellenlänge ausgedrückt werden:

$$E_3(L) = -\frac{16\pi \cdot d \cdot E_1 \cdot E_2}{\Delta k \cdot n_3 \lambda_3} \cdot (e^{i\Delta k \cdot L} - 1). \quad (2.75)$$

Die Intensität der Strahlung in einem Material mit dem Brechungsindex n beträgt:

$$S_i = \frac{cn}{2\pi} \cdot E_i \cdot E_i^*. \quad (2.76)$$

Wird Gleichung (2.75) mit ihrer komplex Konjugierten multipliziert und werden die einzelnen Terme für S_1 , S_2 und S_3 eingesetzt, liefert die Gleichung die Ausgangsleistung pro Einheitsfläche. Damit kann die Leistung hinter dem Kristall berechnet werden:

$$P_3 = \frac{512\pi^5 \cdot d^2 \cdot L^2}{c \cdot n_1 n_2 n_3 \cdot \lambda_3^2 \cdot A} \cdot P_1 \cdot P_2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k \cdot L}{2} \right). \quad (2.77)$$

A ist die Querschnittsfläche der ebenen Welle beim Durchlaufen des Kristalls und $\text{sinc}^2(x) = \left(\frac{\sin x}{x}\right)^2$. Die Einheiten in Gleichung (2.77) sind alle im *c.g.s.*-System angegeben, d.h. L und λ in cm und P in ergs.

Aus Gleichung (2.77) ist direkt erkennbar, dass die Leistung P_3 quadratisch mit der Kristalllänge anwächst. Außerdem ist P_3 proportional zum Produkt der Eingangsleistungen und zur FOM (Gleichung (2.53)). Verkleinern der Fläche A , z.B. durch Fokussieren des Eingangsstrahles, erhöht die Konversionseffizienz. Wenn die Phasendifferenz $\Delta k = 0$ (optimal phasenangepasst) ist, wird die Konversionseffizienz maximal (siehe Abschnitt 2.2).

Differenzfrequenz-Erzeugung

In Abbildung 2.3 ist das Schema einer Differenzfrequenz-Erzeugung (DFG) dargestellt. Eine starke Welle mit ω_3 wird mit einer schwachen Welle mit ω_1 im Kristall gemischt. Die Amplitude der starken Welle soll dabei konstant bleiben, d.h. $\frac{dE_3}{dz} = 0$. Die beiden Wellen erzeugen eine dritte Welle mit der Differenzfrequenz $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$.

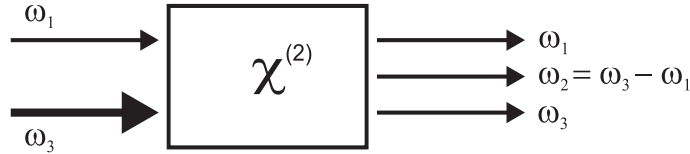


Abbildung 2.3: Differenzfrequenz-Erzeugung (DFG). Aus einer starken Welle (ω_3) und einer schwachen Welle (ω_1) wird eine Welle mit der Differenzfrequenz $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ erzeugt.

Die gekoppelten Amplitudengleichungen lauten für diesen Fall

$$\frac{dE_1}{dz} = \frac{8\pi i \omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} E_3 E_2^* e^{i\Delta k z}, \quad (2.78)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = \frac{8\pi i \omega_2^2 d_{\text{eff}}}{k_2 c^2} E_3 E_1 e^{i\Delta k z} \quad (2.79)$$

und

$$\frac{dE_3}{dz} = 0, \quad (2.80)$$

mit der Phasenfehlanpassung $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$. Für den Fall von optimaler Phasenanpassung $\Delta k = 0$, werden diese Gleichungen gelöst. Dazu wird zunächst Gleichung (2.79) bezüglich z abgeleitet. Anschließend wird die komplex Konjugierte von Gleichung (2.78) eingeführt, um den Faktor $\frac{dE_1^*}{dz}$ auf der rechten Seite der Gleichung zu eliminieren. Es ergibt sich folgende Gleichung

$$\frac{d^2 E_2}{dz^2} = \frac{64\pi^2 \omega_1^2 \omega_2^2 d_{\text{eff}}^2}{k_1 k_2 c^4} E_3 E_3^* E_2 = \kappa^2 \cdot E_2, \quad (2.81)$$

mit dem Kopplungskoeffizienten

$$\kappa = \frac{64\pi^2 \omega_1^2 \omega_2^2 d_{\text{eff}}^2}{k_1 k_2 c^4} \cdot |E_3|^2. \quad (2.82)$$

Eine allgemeine Lösung von Gleichung (2.81) ist die Beziehung

$$E_2(z) = C \cdot \sinh(\kappa z) + D \cdot \cosh(\kappa z).$$

C und D sind Konstanten, die von den Randbedingungen abhängen. Unter der Annahme, dass $E_2(0) = 0$ und $E_1(0)$ ein vorgegebener Wert ist, kann eine spezielle Lösung für die Gleichungen (2.78) und (2.79) hergeleitet werden:

$$\begin{aligned} E_1(z) &= E_1(0) \cdot \cosh(\kappa z) \\ E_2(z) &= i \left(\frac{n_1 \omega_2}{n_2 \omega_1} \right)^{1/2} \cdot \frac{E_3}{|E_3|} E_1^*(0) \cdot \sinh(\kappa z). \end{aligned}$$

In Abbildung 2.4 sind die Amplituden der eingestrahnten Welle $|E_1(z)|$ und der erzeugten Welle $|E_2(z)|$ als Funktion der Ausbreitungslänge z dargestellt. Beide Felder erfahren einen monotonen Anstieg. Bei der DFG gibt die eingestrahnte Welle ω_3 nicht nur Leistung an die erzeugte Welle ω_2 ab, sondern auch an die ebenfalls eingestrahnte Welle ω_1 . Läuft die Welle ω_1 wiederholt durch das nichtlineare Medium, wird sie mit jedem Durchlauf an Leistung dazugewinnen. Die Welle ω_2 wird dadurch ebenfalls an Leistung gewinnen. In der Praxis werden die eingestrahnte Welle ω_3 Pumpwelle, die verstärkte Welle ω_1 Signalwelle und die erzeugte Welle ω_2 Idlerwelle genannt. Die Erhöhung der Anzahl der Umläufe kann durch Spiegel realisiert werden, die für die Signalwelle und/oder Idlerwelle resonant sind. Ist die Verstärkung pro Umlauf größer als die Verluste, beginnt das System zu oszillieren. Dies ist die Arbeitsweise eines parametrischen Oszillators, der in dieser Arbeit verwendet wurde und in Kapitel 3 ausführlich diskutiert wird.

Optisch parametrische Fluoreszenz

Für den Fall, dass keine Signalwelle eingestrahlt wird, besagen die klassischen Amplitudengleichungen, dass keine Welle erzeugt werden kann, da die Ausgangsamplituden der beiden Wellen $E_1(0)$ und $E_2(0)$ jeweils Null sind. Eine quantenmechanische Betrachtung allerdings zeigt, dass auch ohne Einstrahlung einer Signalwelle elektromagnetische Energie mit den Frequenzen der Signal- und Idlerwelle im Medium auftritt. Die so erzeugten Felder sind deutlich schwächer, da sie durch spontane Zwei-Photonen-Emission erzeugt werden. Dieser Prozess wird als *parametrische Fluoreszenz* (OPF) bezeichnet und konnte durch Harris *et al.* [31] und Byer und Harris [32] experimentell nachgewiesen werden.

Ein einfallendes Photon mit der Frequenz ω_3 zerfällt aufgrund von $\chi^{(2)}$ -Prozessen in einem nichtlinearen Medium spontan in zwei Photonen geringerer Frequenz (und damit geringerer Energie). Die resultierenden Photonen werden Signal- und Idlerphoton genannt, mit den entsprechenden Frequenzen ω_1 und ω_2 . Nach der Energieerhaltung muss $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$

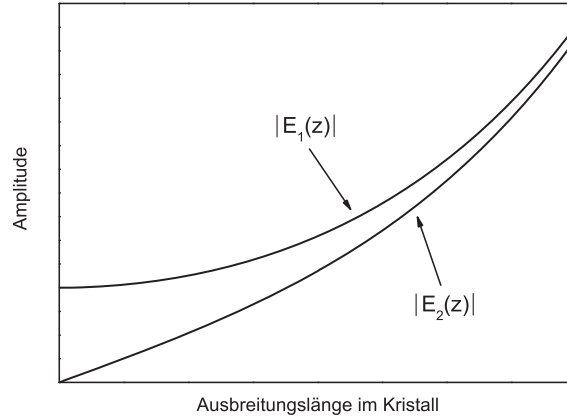


Abbildung 2.4: Die Amplitude der Differenzfrequenzwelle ($|E_2(z)|$) und die Amplitude der eingestrahlten Welle ($|E_1(z)|$) wächst in Abhängigkeit der Strecke z .

gelten. Bei der OPF wird keine Materie angeregt und der Prozess wird daher auch als virtuell bezeichnet. Allerdings tritt die OPF nur in Materie auf. Die Materie kann daher als Katalysator bezeichnet werden, der eine Erzeugung der Signal- und Idlerphotonen durch nichtlineare Polarisation ermöglicht [33]. Die OPF ist ein rein quantenmechanischer Prozess und wurde zuerst durch Louisell et al. [34] entdeckt und von Kleinman [35] weiter quantenmechanisch untersucht. Klassisch ist dieser Prozess nicht zu erklären, was sehr leicht an den Amplitudengleichungen (2.71a-c) zu erkennen ist. Wenn $E_1(z) = E_2(z) = 0$ ist, dann gilt für absorptionsfreie Medien $\frac{dE_3(z)}{dz} = 0$, d.h. $E_3(z) = \text{const.}$

Die OPF wird in der Theorie semiklassisch behandelt und Lösungen finden sich in den Arbeiten von Shen [36] und Yariv [27]. Die Signal- und Idlerfelder werden dabei quantisiert behandelt und ein Wechselwirkungs-Hamilton-Operator hergeleitet, welcher auf der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(2)}$ beruht. Die mittlere Photonenzahl der Signal- und Idlerwellen werden anschließend mit Hilfe der zeitabhängigen Störungsrechnung 1. Ordnung ermittelt. Wenn keine Eingangssignalphotonen oder -idlerphotonen vorhanden sind ($\langle n_1(0) \rangle = \langle n_2(0) \rangle = 0$), werden diese Photonen trotzdem erzeugt. Diese Erzeugung der Signal- und Idlerphotonen beruht auf den Nullpunktsfluktuationen des Vakuums (Vakuumfluktuationen), die im Medium über die nichtlineare Polarisation mit der Pumpstrahlung interagieren [37]. Die Vakuumfluktuationen, die mit dem Pumpfeld wechselwirken, erzeugen eine nichtlineare Polarisation, deren Strahlung in jede beliebige Richtung ausgesendet werden kann und die alle Frequenzen zwischen 0 und ω_3 erlaubt. Die einzige Bedingung, die gelten muss, ist die Energieerhaltung. Trotzdem tritt eine effiziente Verstärkung nur dann auf, wenn die Frequenzen und die Richtungen der Signal- und Idlerstrahlung noch zusätzlich die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k \simeq 0$ erfüllen.

Manley-Rowe-Beziehung

Durch die gekoppelten Amplitudengleichungen (2.71a-c) kann bei optimaler Phasenanpassung, also für $\Delta k = 0$, gezeigt werden, dass die eingestrahlte Pumpleistung P_3 immer umgewandelt werden kann in Signal- und Idlerleistung, P_1 und P_2 . Dies geschieht gerade mit dem Verhältnis ihrer Frequenzen. Dies wird durch die sogenannte *Manley-Rowe-Beziehung* [38]

$$\frac{n_1 c}{\omega_1} \frac{\partial}{\partial z} (E_1 E_1^*) = \frac{n_2 c}{\omega_2} \frac{\partial}{\partial z} (E_2 E_2^*) = -\frac{n_3 c}{\omega_3} \frac{\partial}{\partial z} (E_3 E_3^*) \quad (2.83)$$

beschrieben. Mit Hilfe von Gleichung (2.76) kann dies interpretiert werden als:

$$\frac{\Delta S_1}{\omega_1} = \frac{\Delta S_2}{\omega_2} = -\frac{\Delta S_3}{\omega_3}. \quad (2.84)$$

ΔS_i beschreibt hierbei die Intensitätsänderung und damit die Änderung der Photonenanzahl bei optischen Wellen mit den Frequenzen ω_i . Die Beziehung besagt, dass die Rate, mit der Photonen mit der Frequenz ω_1 erzeugt werden, gleich groß ist wie die Zahl der Photonen der Frequenz ω_2 und gleich groß wie die Anzahl der Photonen der Frequenz ω_3 , die bei diesem Prozess vernichtet werden. In einem verlustfreien Medium muss also ein ω_3 Photon vernichtet werden, um ein ω_1 Photon und ω_2 Photon zu generieren.

2.2 Phasenanpassung

Anhand von Gleichung (2.47) aus Abschnitt 2.1.3 ist sofort ersichtlich, dass bei einem nichtlinearen Prozess fünf unterschiedliche Frequenzen ausgesendet werden können. Für jeden dieser fünf möglichen Prozesse ergibt sich eine jeweils verschieden große Phasendifferenz Δk (2.72) zwischen der eingestrahlten Welle und der erzeugten Welle. Nach Gleichung (2.77) gilt für die Leistung der erzeugten Welle eines nichtlinearen Konversionsprozesses:

$$P_3 \sim \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k \cdot L}{2} \right). \quad (2.85)$$

Diese Abhängigkeit der Leistung ist entscheidend für die Effizienz der Konversionsprozesse. Eine effiziente Frequenzkonversion kann nur bei gleichzeitiger Einhaltung der Energie- ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) und Impulserhaltung ($k_3 = k_1 + k_2$) stattfinden. Mit Hilfe der Brechungsindizes $n_i = n(\omega_i)$ kann die Impulserhaltung geschrieben werden als:

$$n_3 \omega_3 = n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2. \quad (2.86)$$

Damit lautet die Phasenfehlanpassung:

$$\Delta k = \frac{n_3 \omega_3}{c} - \frac{n_1 \omega_1}{c} - \frac{n_2 \omega_2}{c}. \quad (2.87)$$

In Δk stecken viele unterschiedliche Parameter wie z.B. die Frequenzen der beteiligten Wellen, die Phasenanpassungswinkel θ oder φ oder die Temperatur T [39].

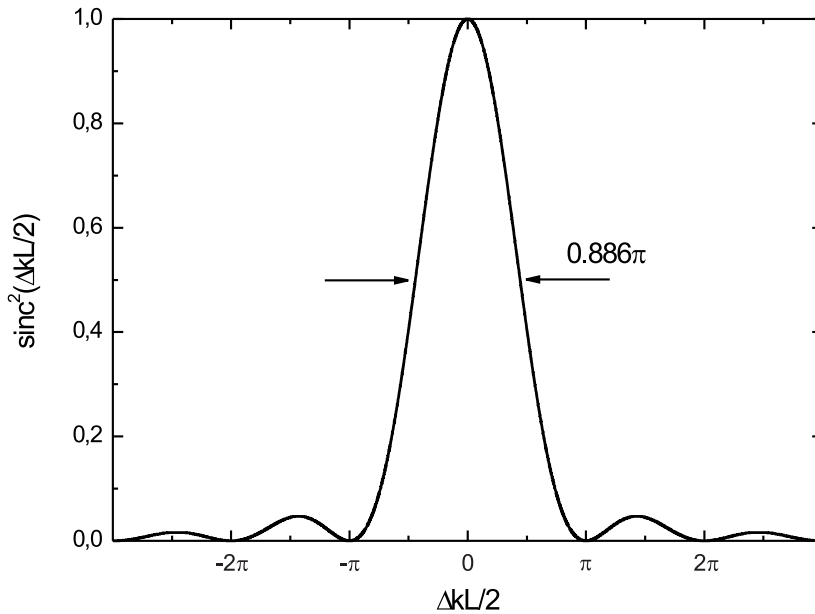


Abbildung 2.5: Normierte parametrische Verstärkung eines nichtlinearen Kristalls als Funktion der Phasenfehlanpassung $\Delta kL/2$. Bei $\Delta k = 0$ hat die Verstärkung ihr Maximum. Die Halbwertsbreite beträgt $0.886\pi/L$.

Abbildung 2.5 zeigt eine grafische Darstellung der sinc^2 -Funktion aus Gleichung (2.85). Die dargestellte Kurve hat ein deutliches Maximum, wenn $\Delta k = 0$ ist. An den Flanken fällt die Effizienz steil ab, so dass schon kleine Änderungen der Phasenfehlanpassung Δk deutliche Änderungen der Leistung der erzeugten Welle bedeuten. Die Effizienz nichtlinearer Prozesse hängt damit entscheidend von der Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ ab. Die Phasenanpassungsbedingung kann nicht für alle fünf möglichen Prozesse gleichzeitig erfüllt werden. Daher wird einer der Prozesse selektiert und die Parameter, die Δk beschreiben, durch ein geeignetes Phasenanpassungsverfahren optimiert.

In normaldispersiven und isotropen Medien nimmt der Brechungsindex mit der Wellenlänge monoton ab. Dadurch kann Gleichung (2.86) nicht mehr unter gleichzeitiger Ein-

haltung der Energieerhaltung erfüllt werden und Phasenanpassung lässt sich daher nicht realisieren. Bei anisotropen Materialien sind verschiedene Verfahren zur Phasenanpassung gebräuchlich: Phasenanpassung durch Doppelbrechung (*birefringent phasematching*, BPM) und Quasiphasenanpassung (*quasi-phasematching*, QPM). Diese beiden Methoden der Phasenanpassung werden in den folgenden Abschnitten näher erläutert.

2.2.1 Phasenanpassung durch Doppelbrechung

Doppelbrechung eines Materials bedeutet eine Abhängigkeit seines Brechungsindex von der Polarisations- und der Ausbreitungsrichtung sowie der Frequenz einer eingestrahnten Welle. In solchen Materialien existieren allerdings auch ausgezeichnete Richtungen, in denen der Brechungsindex unabhängig von der Polarisation der Welle ist. Diese Richtungen werden optische Achsen genannt. Besitzt ein Material genau eine optische Achse, so wird es uniaxial genannt. Bei zwei optischen Achsen handelt es sich um biaxiale Materialien.

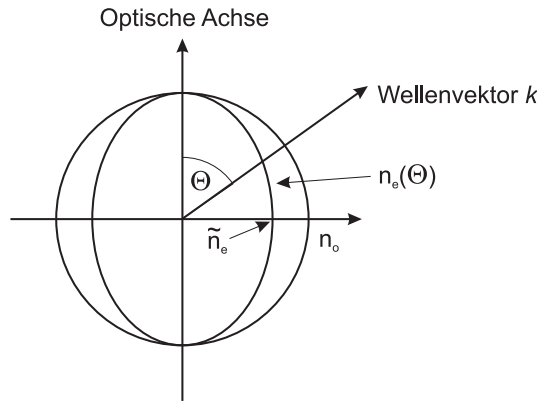


Abbildung 2.6: Schnitt durch den Brechungsindexellipsoid eines negativ uniaxialen Kristalls.

Die Ebene, die von der optischen Achse eines Kristalls und der Ausbreitungsrichtung $\vec{k}$ aufgespannt wird, wird als Hauptebene bezeichnet. Ist die durchlaufende Welle in dieser Ebene polarisiert, dann wird sie als *außerordentlich polarisierte* Welle (e-polarisiert) bezeichnet. Steht die Polarisation senkrecht zu dieser Ebene, dann wird diese Welle *ordentlich polarisiert* (o-polarisiert) genannt. Der Brechungsindex n_o der ordentlichen Welle ist unabhängig von der Ausbreitungsrichtung der eingestrahnten Welle. Der Brechungsindex n_e der außerordentlichen Welle hängt vom Winkel θ zwischen der optischen Achse und der Ausbreitungsrichtung $\vec{k}$ ab:

$$n_e(\theta) = \left(\frac{\sin^2 \theta}{\tilde{n}_e^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} \right)^{-1/2}. \quad (2.88)$$

$\tilde{n}_e$ ist der außerordentliche Brechungsindex bei einem Winkel von 90° . Gleichung (2.88) ist die Funktion einer Ellipse mit den Halbachsen n_o und $\tilde{n}_e$ und kann als Schnitt durch einen dreidimensionalen Brechungsindex-Ellipsoid (Indikatrix) beschrieben werden. Der ordentliche Brechungsindex n_o beschreibt einen Kreis. Wenn $n_e > n_o$ ist, wird der Kristall positiv uniaxial bezeichnet. Im umgekehrten Fall, wenn $n_e < n_o$, ist er negativ uniaxial.

Als Beispiel zeigt Abbildung 2.6 den Schnitt durch die Indikatrix eines negativ uniaxialen Kristalls. Durch eine geeignete Wahl eines Winkels θ und der Polarisierungen der am Mischprozess beteiligten Wellen kann Phasenanpassung erreicht werden. Dabei werden die Phasengeschwindigkeiten beider Wellen gleich groß, und zwischen den Wellen findet konstruktive Interferenz statt. Hierbei wird zwischen der *Typ1* Phasenanpassung (beide einfallenden Wellen sind gleich polarisiert) und der *Typ2* Phasenanpassung (die Polarisierungen der beiden Wellen stehen senkrecht zueinander) unterschieden [40].

2.2.2 Quasiphasenanpassung

Das Prinzip der Quasiphasenanpassung wurde bereits 1962 von Armstrong et al. [41] vorgeschlagen. Im Gegensatz zur BPM wird die Phasenanpassungsbedingung bei der QPM nicht an jedem Ort im Kristall erfüllt. Die durch Dispersion auftretende Phasenverschiebung zwischen den drei am Mischprozess beteiligten Wellen wird periodisch korrigiert.

Zur mathematischen Beschreibung der QPM wird ein beliebiger Konversionsprozess betrachtet mit einer konstanten Phasenfehlanpassung von $\Delta k \neq 0$. Die erzeugte Leistung des Prozesses beträgt dann nach (2.77)

$$P_3 = \Omega \cdot L^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k \cdot L}{2} \right) = \frac{4\Omega}{\Delta k^2} \cdot \sin^2 \left(\frac{\Delta k \cdot L}{2} \right), \quad (2.89)$$

wobei die Kristalllänge L variieren kann und Ω konstante Vorfaktoren beschreiben. Die Leistung P_3 ist damit proportional zu $\sin^2(\Delta k \cdot L/2)$. Ist der Prozess nicht phasenangepasst ($\Delta k \neq 0$), dann beträgt die Phasendifferenz zwischen Fundamentalwelle und der erzeugten Welle nach Durchlaufen einer Kristalllänge von

$$L_C = \frac{\pi}{\Delta k} \quad (2.90)$$

gerade π [33, 42]. Die Leistung erreicht dort ihr Maximum. Die Länge L_C wird Kohärenzlänge genannt. Für Wechselwirkungslängen von $L > L_C$ werden Partialwellen erzeugt, die mit der konvertierten Welle destruktiv interferieren. Die Intensität der konvertierten Strahlung sinkt daher wieder ab und ist nach einer Strecke von $L = 2 \cdot L_C$ genau Null. Die Wellen weisen dann eine Phasendifferenz von 2π auf und der Prozess startet neu. Dieser

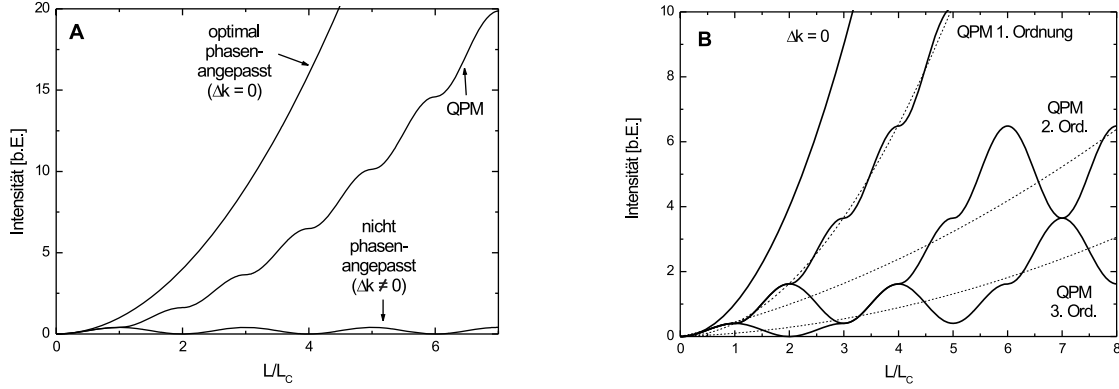


Abbildung 2.7: A: Intensität der konvertierten Strahlung als Funktion der Ausbreitungsrichtung L/L_C für optimal phasenangepasste ($\Delta k = 0$), quasiphasenangepasste (QPM) und nicht phasenangepasste ($\Delta k \neq 0$) Wechselwirkung. B: Intensität der Quasiphasenanpassung höherer Ordnungen (1. bis 3. Ordnung) als Funktion der Ausbreitungsrichtung [44].

Prozess ist in Abbildung 2.7A für die Intensität der konvertierten Strahlung als Funktion der Wechselwirkungslänge L dargestellt.

Während bei anderen Phasenanpassungsprozessen die Phasenanpassung über die gesamte Kristalllänge erfüllt ist, findet bei der QPM lediglich eine periodische Korrektur der Phasenfehlانpassung statt [43]. Die Grundidee der QPM besteht darin, das Vorzeichen der nichtlinearen Suszeptibilität immer genau nach der Kohärenzlänge L_C umzukehren. Dadurch wird die Phasenfehlانpassung Δk wieder auf Null zurückgestellt und der Prozess läuft in der gewünschten Richtung weiter. Die Intensität der konvertierten Strahlung steigt monoton an (siehe Abbildung 2.7A).

Bei einem für die QPM geeigneten Kristall erfährt der effektive nichtlineare Koeffizient eine räumlich periodische Modulation $d(z)$. Die maximalen Werte von d alternieren zwischen $+d_{\text{eff}}$ und $-d_{\text{eff}}$ über die gesamte Kristalllänge. Aufgrund der Amplitudengleichungen gilt dann unter Vernachlässigung der Zeitabhängigkeit und der Dispersion

$$\frac{dE_3}{dz} = \Gamma \cdot d(z) \cdot e^{-i\Delta k'z}, \quad (2.91)$$

mit dem Verstärkungskoeffizienten $\Gamma = \frac{i\omega_3 E_1 E_2}{n_3 c}$ und dem regulären Phasenfehlانpassungsterm $\Delta k' = \pi/L_C$. Eine Integration der Amplitudengleichung liefert mit Einführung der Normierung $g(z) = \frac{d(z)}{d_{\text{eff}}}$:

$$E_3 = \Gamma \cdot d_{\text{eff}} \cdot L \cdot G(\Delta k'). \quad (2.92)$$

Dabei ist $G(\Delta k')$ die Fouriertransformierte von $g(z)$:

$$G(\Delta k') = \frac{1}{L} \int_0^L g(z) \cdot e^{-i\Delta k' z} dz. \quad (2.93)$$

$G(\Delta k')$ wird als Phasenfehlanpassungsfunktion (*mismatch function*) bezeichnet. Ihr Betrag kann Werte zwischen +1 und -1 annehmen. Ist $g(z)$ eine beliebige periodische Funktion von z mit der Periode Λ , dann kann sie in eine Fourierreihe entwickelt werden:

$$g(z) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} G_m \cdot e^{i\Delta K_m z} \quad (2.94)$$

wobei

$$K_m = \frac{2\pi m}{\Lambda} \quad (2.95)$$

den Gittervektor m -ter Ordnung darstellt. G_m ist die Amplitude des m -ten Anteils. Wenn $K_m \approx \Delta k'$, dann liefert nur noch der Term $d_{\text{eff}}^{\text{QPM}} = G_m \cdot d_{\text{eff}}$ einen nennenswerten Beitrag zur Fourierintegration der Gleichung (2.91) [45]. Daraus ergibt sich für E_3 :

$$E_3 \approx i \cdot e^{-\frac{\Delta k L}{2}} \cdot \Gamma \cdot d_{\text{eff}}^{\text{QPM}} \cdot L \cdot \text{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right). \quad (2.96)$$

Die Phasenfehlanpassung Δk wird dabei um einen Term erweitert und kann geschrieben werden als:

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 - K_m. \quad (2.97)$$

Ist $g(z)$ eine Rechteckfunktion mit der Periode Λ , die die Werte +1 und -1 annimmt, dann lautet der Fourierkoeffizient G_m :

$$G_m = \frac{2}{\pi m} \cdot \sin(\pi m D). \quad (2.98)$$

mit $D = L/\Lambda$. D wird als *duty cycle* bezeichnet und stellt das Verhältnis von umgepolter Fläche zur Gesamtfläche dar [46]. Der Faktor G_m beschreibt den Zusammenhang zwischen effektiver Nichtlinearität bei einem QPM-Prozess m -ter Ordnung und optimaler

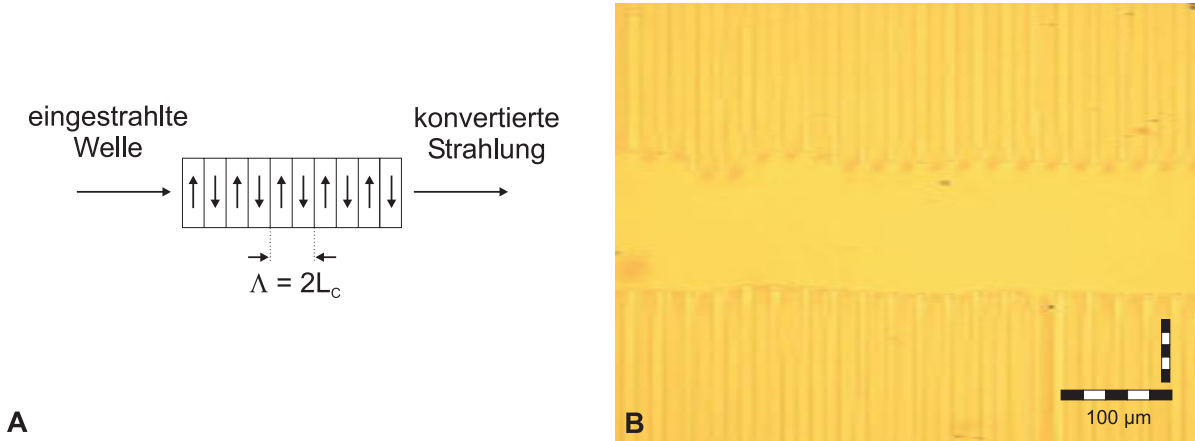


Abbildung 2.8: A: Schematischer Aufbau eines idealen quasiphasenangepassten Kristalls 1. Ordnung. Nach jedem ganzzahligen Vielfachen der Kohärenzlänge L_C wechselt das Vorzeichen der nichtlinearen Polarisierung (durch die vertikalen Pfeile symbolisiert). B: Mikroskopaufnahme des im Experiment verwendeten LiNbO₃-Kristalls. Der obere Polungskanal hat eine Polungsperiode von $26.0 \mu\text{m}$, der unten dargestellte Polungskanal eine Periode von $26.2 \mu\text{m}$. Der Duty-Cycle beträgt 0.45 und der Abstand zwischen den Polungskanälen ist ungefähr $250 \mu\text{m}$.

Phasenanpassung. Im Allgemeinen wird von QPM m -ter Ordnung gesprochen, wenn die Polungsperiode $\Lambda = 2 \cdot m \cdot L_C$ beträgt [47]. In Abbildung 2.7B ist die Intensität der konvertierten Strahlung für die QPM 1. Ordnung, 2. Ordnung und 3. Ordnung dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Konversionseffizienz mit zunehmender Ordnung abnimmt [45].

Der nichtlineare Koeffizient $d_{\text{eff}}^{\text{QPM}} = G_m \cdot d_{\text{eff}}$ wird maximal, wenn in Gleichung (2.98) der Faktor $\sin(\pi m D) = 1$ ist:

$$d_{\text{eff}}^{\text{QPM}} = \frac{2}{\pi m} \cdot d_{\text{eff}}. \quad (2.99)$$

Die Kristalle, die in dieser Arbeit verwendet wurden, waren ausschließlich für die QPM erster Ordnung gepolt ($m = 1$). Die Periodizität des Kristalls beträgt in diesem Fall

$$\Lambda = 2 \cdot L_C. \quad (2.100)$$

Abbildung 2.8A zeigt den idealen Aufbau eines Kristalls zur quasiphasenangepassten Frequenzkonversion. Durch periodisches Polen werden in ferroelektrischen Kristallen Bereiche ausgebildet, in denen die spontane Polarisierung abwechselnd ihre Richtung umkehrt [42, 48, 49]. Ferroelektrische Kristalle eignen sich dabei besonders gut für die QPM,

da das Vorzeichen ihrer nichtlinearen Koeffizienten von der Polarität der gepolten Bereiche abhängt. Die einzelnen gepolten Regionen gleicher Polarität werden Domänen genannt. Abbildung 2.8B zeigt eine Mikroskopaufnahme des im Experiment verwendeten Kristalls. Deutlich erkennbar sind die periodisch gepolten Bereiche und der dazwischen liegende ungepolte Bereich. Die oberen Domänen haben eine Breite von jeweils $13.0\ \mu\text{m}$, die unteren Domänen sind $13.1\ \mu\text{m}$ breit. Die Polungsperioden sind entsprechend $26.0\ \mu\text{m}$ und $26.2\ \mu\text{m}$.

Vorteile der Quasiphasenanpassung

Aus den zurückliegenden Betrachtungen können einige entscheidende Vorteile der QPM gegenüber der herkömmlichen Phasenanpassung mittels Doppelbrechung herausgearbeitet werden:

- Die Ausbreitungsrichtung und die Polarisierung der wechselwirkenden Felder können frei gewählt werden, sodass es zu keinem räumlichen *walk-off* kommt. Die Effizienz des nichtlinearen Prozesses wird maximal, und für alle Wellenlängen innerhalb des Transmissionsbereichs des nichtlinearen Mediums findet Phasenanpassung statt.
- Da die Ausbreitungsrichtung frei wählbar ist, kann der größte nichtlineare Koeffizient des Suszeptibilitäts-Tensors $\chi^{(2)}$ verwendet werden. Da hierdurch die wechselwirkenden Wellen die gleiche Polarisation besitzen können, ist es möglich, Materialien als nichtlineare Medien zu verwenden, die nur eine geringe Doppelbrechung aufweisen oder isotrop sind.
- Der gesamte Transparenzbereich des Kristalls kann verwendet werden, da die Domänenperiode Λ prinzipiell frei wählbar ist. Mit kleiner werdenden Wellenlängen werden auch die benötigten Polungsperioden kleiner, wobei dieser Prozess einzig durch die Herstellungsverfahren limitiert wird.
- Mehrere nichtlineare Prozesse lassen sich in einem einzigen Kristall realisieren, indem unterschiedlich große Polungsperioden hintereinandergeschaltet werden. Dies wurde bereits mehrfach in einem OPO gezeigt [50, 51].
- Zur Steigerung der Effizienz der nichtlinearen Wechselwirkung lassen sich Wellenleiterstrukturen in Kristallen integrieren [52]. Dieser Prozess macht sie außerdem interessant zur Verwendung in der integrierten Optik.
- Die Phasenanpassung ist ortsabhängig, d.h. verschiedene Effekte lassen sich gezielt gleichzeitig steuern, z.B. können Impulskompression oder die spektrale Akzeptanzbandbreite angepasst werden [53].

2.2.3 Akzeptanzbandbreite der Phasenanpassung

Um eine Aussage über die Abhängigkeit der Phasenanpassung auf Änderungen der Parameter wie den Phasenanpassungswinkel θ oder φ , die Temperatur T oder die Wellenlänge treffen zu können, wird die Akzeptanzbandbreite verwendet. Eine Änderung dieser Größen führt zu einer Änderung der Phasenfehlanpassung Δk . Δk kann daher als eine Reihe entwickelt werden, nach kleinen Störungen der einzelnen Parameter:

$$\Delta k(T, \theta, \varphi, \omega) = \Delta k(PM) + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial T} \Delta T + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \theta} \Delta \theta + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \varphi} \Delta \varphi + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \omega} \Delta \omega + \dots \quad (2.101)$$

Zum Vergleich verschiedener Materialien oder Konversionsprozesse bezüglich ihrer Akzeptanzbandbreite in Abhängigkeit der einzelnen Parameter wird ein Vergleichskriterium festgelegt. Dieses Vergleichskriterium ist zum Beispiel ein fester Wert von Δk . Üblicherweise wird der Wert von Δk definiert, bei dem die sinc^2 -Funktion auf die Hälfte abgesunken ist. Die volle Halbwertsbreite der sinc^2 -Funktion ist in Abbildung 2.5 gezeigt und beträgt

$$\Delta k_{50\%} = 0.886 \frac{\pi}{L}. \quad (2.102)$$

Aus den Gleichungen (2.101) und (2.102) ergibt sich für die Akzeptanzbandbreite der nichtlinearen Wechselwirkung als Funktion eines beliebigen Parameters i :

$$\Delta i = 0.886 \frac{\pi}{L} \left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial i} \right)^{-1}. \quad (2.103)$$

2.3 Eigenschaften von kongruentem Lithiumniobat

Für die Experimente wurde, aufgrund der oben genannten Vorteile der QPM, ein nichtlinearer Kristall gewählt, der periodisch gepolt werden konnte. Zur Herstellung solcher QPM-Kristalle sind verschiedene Verfahren bekannt. Eines dieser Verfahren, die feldinduzierte Domäneninversion [54], zeichnet sich vor allem durch die hohe Präzision bei der Herstellung der einzelnen Polungsbereiche aus. Außerdem lassen sich mit dem Lithographie-Verfahren zweidimensionale Strukturen erzeugen. Die Domäneninversion geschieht hierbei durch ein starkes elektrisches Feld, im Bereich von mehreren kV/mm [55]. Dieses Feld dient dazu, die Polarität innerhalb einzelner Domänen umzukehren. Die Ausdehnung so entstandener Polungsperioden liegen im Bereich von wenigen Mikrometern.

Zur Polung für die QPM sind ferroelektrische Materialien sehr gut geeignet, da das Vorzeichen der nichtlinearen Koeffizienten von der Domänenpolarität abhängt [56]. Unterhalb

einer kritischen Temperatur (Curie-Temperatur T_C) tritt eine Verschiebung der Ionen relativ zur neutralen Position auf [57]. Dadurch kann, je nach Richtung der Verschiebung, eine unterschiedliche Polarität der Polarisierung im Material auftreten.

Zur Charakterisierung eines ferroelektrischen Materials dienen die Koerzitivfeldstärke und die spontane Polarisierung. Die Koerzitivfeldstärke ist ein Maß für die elektrische Feldstärke, die mindestens an den Kristall angelegt werden muss, um eine Domäneninversion zu erreichen. Mit der spontanen Polarisierung wird das elektrische Dipolmoment pro Volumeneinheit beschrieben. Dies entspricht der Oberflächenladung, die das Feld der inneren Dipole kompensiert und wird mit der Einheit $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ angegeben.

Zur Auswahl eines für den nichtlinearen Prozess geeigneten Kristalls müssen verschiedene Parameter beachtet werden. Der Kristall soll einen ausreichend großen nichtlinearen Koeffizienten besitzen, damit der optisch parametrische Prozess mit möglichst großer Effizienz durchführbar ist. Außerdem soll sich das Transmissionsspektrum des Kristalls über einen möglichst weiten Wellenlängenbereich erstrecken, um den Durchstimmbereich möglichst groß wählen zu können. Diese Eigenschaften werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt und diskutiert.

2.3.1 Optisch nichtlineare Koeffizienten und Brechungsindex

Bei LiNbO_3 handelt es sich um einen trigonalen Kristall der Punktgruppe 3m [26]. Nach Abbildung 2.2 lautet der reduzierte Tensor 2. Ordnung mit den optisch nichtlinearen Koeffizienten daher:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.104)$$

Unter Beachtung der Kleinman-Symmetrie gilt $d_{24} = d_{31}$. Der Tensor besitzt deshalb nur drei von Null verschiedene nichtlineare Koeffizienten [45, 58]:

$$\begin{aligned} d_{22} &= 4 \text{ pm/V} \\ d_{31} &= 5.9 \text{ pm/V} \\ d_{33} &= 27 \text{ pm/V}. \end{aligned}$$

Die effektive Nichtlinearität für die QPM 1. Ordnung berechnet sich nach Gleichung (2.99) zu $d_{\text{eff}}^{\text{QPM}} = \frac{2}{\pi} \cdot d_{33} = 17 \text{ pm/V}$. In Tabelle 2.2 sind die effektiven nichtlinearen Koeffizienten unterschiedlicher ferroelektrischer Kristalle dargestellt. Dabei sind große Unterschiede

zwischen den einzelnen Kristallen festzustellen. LiNbO₃ besitzt dabei mit einem Wert von 17 pm/V den größten effektiven nichtlinearen Koeffizienten [59].

Material	effekt. nichtlin. Koeff.
LiNbO ₃	17 pm/V
KNbO ₃	13 pm/V
LiTaO ₃	9 pm/V
KTP	9 pm/V
RTA	7.7 pm/V

Tabelle 2.2: Effektive nichtlineare Koeffizienten verschiedener in der Praxis verwendeter Kristalle.

Die nichtlinearen Koeffizienten wurden mit Hilfe eines SHG-Experiments bei einer Fundamentalwellenlänge von 1064 nm ermittelt. Zur Übertragung dieser Werte auf andere Wellenlängenbereiche wird die Miller'sche Regel (2.52) verwendet.

Die Brechungsindizes von LiNbO₃ werden in Abhängigkeit der Wellenlänge und der Temperatur berechnet. Dies geschieht typischerweise mit einer semi-empirischen Funktion, der sogenannten Sellmeier-Gleichung. Für den ordentlichen Brechungsindex n_o von LiNbO₃ gilt nach der Arbeit von Dmitriev *et. al* [30]:

$$n_o^2(\lambda, T_C) = a_1 + \frac{a_2 + b_1 f(T_C)}{\lambda^2 - (a_3 + b_2 f(T_C))^2} + b_3 f(T_C) - a_4 \lambda^2. \quad (2.106)$$

Der außerordentliche Brechungsindex n_e errechnet sich zu:

$$n_e^2(\lambda, T_C) = c_1 + d_1 f(T_C) + \frac{c_2 + d_2 f(T_C)}{\lambda^2 - (c_3 + d_3 f(T_C))^2} + \frac{c_4 + d_4 f(T_C)}{\lambda^2 - c_5^2} - c_6 \lambda^2. \quad (2.107)$$

T_C stellt die Kristalltemperatur und λ die Wellenlänge dar. Der Temperatur-Parameter $f(T_C)$ errechnet sich aus der absoluten Temperatur in Kelvin sowie einem Offset, der f bei einer Referenz-Temperatur von $T_0 = 24.5^\circ$ verschwinden lässt. Wird die Temperatur in Grad Celsius ausgedrückt, so wird f :

$$f(T_C) = (T_C - 24.5)(T_C + 570.82). \quad (2.108)$$

Die Koeffizienten in den Gleichungen (2.106) und (2.107) sind in Tabelle 2.3 zusammengefasst.

In Abbildung 2.9 ist der ordentliche und der außerordentliche Brechungsindex für kongruentes LiNbO₃ als Funktion der Wellenlänge über den gesamten Transparenzbereich

Koeffizient (n_o)	Wert	Koeffizient (n_e)	Wert
a_1	4.9048	c_1	5.35583
a_2	0.11775	c_2	0.100473
a_3	0.21802	c_3	0.20692
a_4	2.7153×10^{-2}	c_4	100
b_1	2.2314×10^{-8}	c_5	11.34927
b_2	-2.9671×10^{-8}	c_6	1.5334×10^{-2}
b_3	2.1429×10^{-8}	d_1	4.629×10^{-7}
-	-	d_2	3.862×10^{-8}
-	-	d_3	-0.89×10^{-8}
-	-	d_4	2.657×10^{-5}

Tabelle 2.3: Sellmeier-Koeffizienten für kongruentes LiNbO_3 aus der Publikation von Dmitriev *et. al* [30].

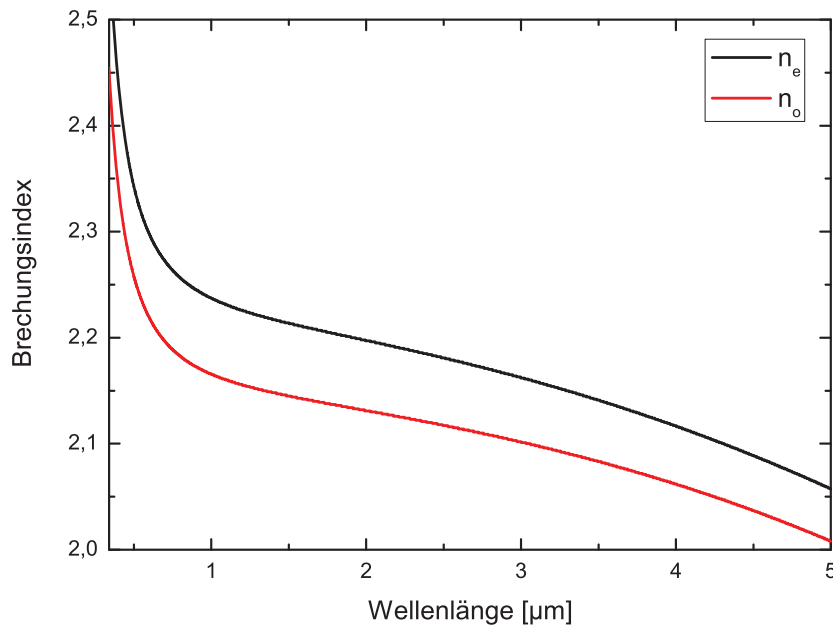


Abbildung 2.9: Ordentlicher (schwarze Kurve) und außerordentlicher (rote Kurve) Brechungsindex von kongruentem LiNbO_3 über den Wellenlängenbereich von 340 nm bis 5 μm .

des Materials dargestellt. Der Kristall LiNbO_3 ist negativ uniaxial, da über den gesamten Bereich $n_e < n_o$ ist. In negativ uniaxialen Kristallen ist Winkelphasenanpassung nur für e -polarisierte Pumpwellen durchführbar. Konventionelle Phasenanpassung ist nur über einen Typ2 Prozess möglich (siehe Abschnitt 2.2.1). Der entsprechende nichtlineare Ko-

effizient d_{22} beträgt aber nur 4 pm/V, und der Konversionsprozess ist daher nur wenig effizient. Zur Verwendung des größten nichtlinearen Koeffizienten d_{33} wird ein Prozess benötigt, bei dem alle Wellen e -polarisiert sind. Die effiziente Konversion bei gleicher Polarisation aller beteiligten Wellen ist nur bei QPM möglich [43]. Der große nichtlineare Koeffizient von 17 pm/V macht LiNbO₃ zu einem sehr gut geeigneten Material für die Konversion in einem optisch parametrischen Oszillator.

2.3.2 Photorefraktivität

Ein Problem bei der Verwendung von LiNbO₃ stellen seine photorefraktiven Eigenschaften dar. Der photorefraktive Effekt wurde von Ashkin *et. al* [60] beobachtet und als *optical damage* bezeichnet. Hierbei handelt es sich um eine lichtinduzierte Brechungsindexänderung aufgrund einer inhomogenen Bestrahlung von optischem Material. Die Ursache für den photorefraktiven Effekt ist das Ungleichgewicht von Lithium und Niob in kongruentem LiNbO₃ (CLN). Eine inhomogene Beleuchtung kann zum Beispiel durch einen Gaußschen Strahl vorliegen und führt zu einer ungleichmäßigen Anregung von Ladungsträgern aus Störstellen. Diese Ladungsträger werden umverteilt und in Störstellen gebunden. Dies hat zur Folge, dass die Raumladungsdichte inhomogen wird und somit ein elektrisches Raumladungsfeld aufgebaut wird. Aufgrund der damit verbundenen räumlichen Änderung der Intensität ändert sich der Brechungsindex im Material [61]. Als Folge hiervon erfährt die transmittierte Welle eine zeitliche und räumliche Instabilität.

Bei den Störstellen wird unterschieden zwischen intrinsischen und extrinsischen Störstellen. Durch das Kristallzüchtungsverfahren ist bei CLN die Lithium-Konzentration kleiner als die Niob-Konzentration. Das Defizit an Lithium bewirkt Lithium-Fehlstellen und Niob-Ionen auf Lithium-Plätzen. Diese Nb-Ionen auf Li-Plätzen (Nb_{Li}) sind intrinsische Störstellen. Extrinsische Störstellen sind z.B. Ionen anderer Materialien, die Verunreinigungen der Kristallschmelze darstellen und sich während der Kristallzucht in den Kristall einbauen.

Wird ein Nb-Ion (Nb_{Li}⁵⁺) beleuchtet, kann es ein Elektron aufnehmen und es entsteht ein gebundenes Nb_{Li}⁴⁺-Polaron. Im Gegensatz zu freien Nb_{Nb}⁴⁺-Polaronen ist hierbei das Elektron an die Störstelle gebunden. Gebundene Polaronen besitzen breite Absorptionsbanden. Ein Nb_{Li}⁴⁺-Polaron besitzt ein Absorptionsmaximum bei einer Wellenlänge von 760 nm [62]. Die Lebensdauer der gebundenen Polaronen in LiNbO₃ beträgt einige Mikrosekunden [63]. Als unmittelbare Folge gebundener Polaronen ist neben dem photorefraktiven Effekt auch die Grün-induzierte Infrarotabsorption (GRIIRA) zu nennen [64]. Dadurch kann bei Konversionsprozessen parasitär erzeugte sichtbare Strahlung die Infrarotabsorption im Kristall verstärken. Die Effizienz des Konversionsprozesses wird ebenso wie beim photorefraktiven Effekt verringert.

Die negativen Auswirkungen des photorefraktiven Effektes und der GRIIRA können durch Heizen des Kristalls umgangen werden. Beim Heizen des Kristalls wird eine thermische Anregung der Elektronen aus $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ -Zentren auch in unbeleuchtete Regionen des Mediums ermöglicht. Dadurch kommt es zu einer homogenen Elektronenverteilung und damit zu einem homogenen Brechungsindexprofil.

2.3.3 Transmissionsspektrum

Die Verluste, die im nichtlinearen Medium durch Absorption der einfallenden Strahlung entstehen, tragen ebenfalls negativ zur Effizienz des optisch parametrischen Prozesses bei. Die Transmission im Bereich zwischen $0.4\ \mu\text{m}$ und $6.5\ \mu\text{m}$ wurde mit einem Fourier-Transformations-Infrarot Spektrometer (FTIR) vom Typ *Bruker FTIR 120* vermessen. Das FTIR besitzt eine maximale Auflösung von $0.14\ \text{GHz}$. Der verwendete Lithiumniobat-Kristall hatte eine Länge von $500\ \mu\text{m}$ mit polierten Endflächen. Entsprechend der Durchgangsrichtung der Strahlung in den Experimenten wurde seine Orientierung auch bei dieser Messung gewählt. In Abbildung 2.10A ist die relative Transmission in Abhängigkeit der eingestrahnten Wellenlänge für den Spektralbereich zwischen $0.4\ \mu\text{m}$ und $1.1\ \mu\text{m}$ bei unpolarisierter Strahlung dargestellt. Abbildung 2.10B zeigt die relative Transmission von Lithiumniobat für den Spektralbereich von $2.0\ \mu\text{m}$ bis $6.5\ \mu\text{m}$. Im kurzwelligen Spektralbereich ist als begrenzender Faktor der Detektor des verwendeten FTIRs ausschlaggebend, welcher unterhalb von $0.4\ \mu\text{m}$ und oberhalb von $1.1\ \mu\text{m}$ keine Messung mehr erlaubt. Ebenso konnte im langwelligen Spektralbereich keine verlässliche Messung unterhalb $2.0\ \mu\text{m}$ durchgeführt werden. Der Detektor arbeitete dort nicht mehr im linearen Bereich und lieferte daher unzureichende Ergebnisse. Die Absorption im Bereich von $4.0\ \mu\text{m}$ bis $5.5\ \mu\text{m}$ ist auf die Anregung optischer Phononen zurückzuführen [56]. Über den gesamten gemessenen Bereich beträgt der Transmissionsgrad ca. 75 %. Als Grund für diese Einschränkung der Transmission sind die Fresnelverluste an den beiden Kristalloberflächen zu nennen. Bei einem Brechungsindex von $n = 2.13$ errechnen sich die Fresnelverluste zu jeweils ungefähr 13 % pro Kristalloberfläche.

Bei einer Wellenlänge von $2.87\ \mu\text{m}$ ist ein ausgeprägtes Absorptionsmaximum zu erkennen. Dieses Maximum stammt von der Anregung von OH-Streckschwingungen in Lithiumniobat. Die Intensität und Position dieser Absorption wird bei kongruentem Lithiumniobat durch den Anteil an Nb-Ionen auf Li-Plätzen ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$) bestimmt [65]. Die durchgeführten Transmissionsmessungen und Messungen aus anderen Quellen [15, 56] zeigen, dass kongruentes Lithiumniobat sehr gute lineare Transparenzeigenschaften vom sichtbaren bis in den mittleren Infrarotbereich besitzt.

Aufgrund der beschriebenen großen effektiven Nichtlinearität gegenüber anderen Materialien ist eine hohe Konversionseffizienz beim OPO Prozess zu erwarten. Der negative

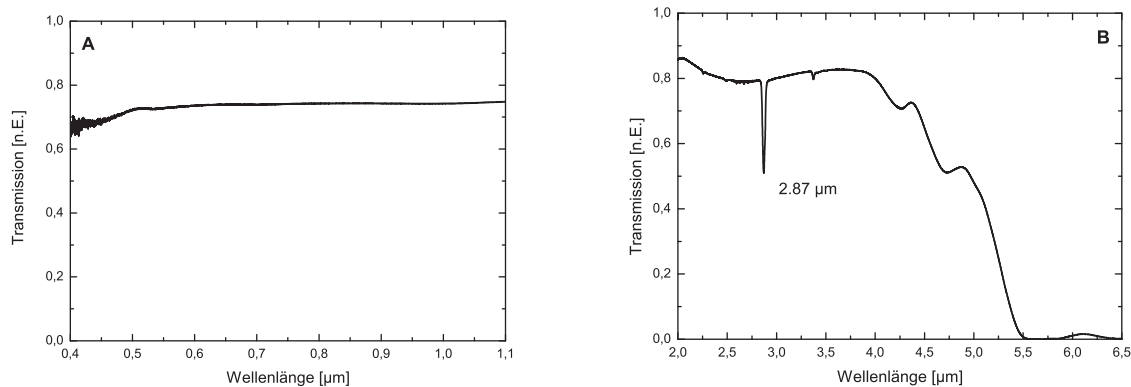


Abbildung 2.10: A: Relative Transmission eines Lithiumniobat-Kristalls im sichtbaren bis nahen Infrarot (0,4 μm - 1,1 μm). B: Relative Transmission eines Lithiumniobat-Kristalls im nahen und mittleren Infrarot (2,0 μm - 6,5 μm). Für Erläuterungen siehe Text.

Einfluss des photorefraktiven Effektes bei LiNbO_3 kann durch Heizen des Kristalls mit Hilfe eines geeigneten Ofens verhindert werden. Der große Transparenzbereich ist ein wichtiger Aspekt, LiNbO_3 als nichtlineares Medium im Experiment zu verwenden. Dadurch ist ein weites Durchstimmen der Wellenlänge gewährleistet, ohne dass Verluste durch Absorptionen im nichtlinearen Medium auftreten werden.

2.4 Parametrische Wechselwirkung mit fokussierter Strahlung

Die parametrische Wechselwirkung wurde bisher lediglich für ebene Wellen beschrieben. Allerdings sind im Experiment große Leistungen nötig, um eine ausreichende Konversion der eingestrahlten Welle zu erzielen. Aus Gleichung (2.77) ist bekannt, dass die konvertierte Leistung proportional zur Eingangsleistung, zur Kristalllänge und zur FOM ist. Die Eingangsleistung ist durch den verwendeten Laser begrenzt. Auch die Kristalllänge ist nicht beliebig erweiterbar und muss zusammen mit der FOM optimiert werden, um die maximale Effizienz zu erzielen. Weiterhin ist die konvertierte Leistung umgekehrt proportional zur Querschnittsfläche der durchlaufenden Welle. Durch eine Fokussierung der Strahlung kann diese Fläche verringert werden, die konvertierte Leistung dadurch erhöht werden. Deshalb sind reale Resonatoren von Lasern oder optisch parametrischen Oszillatoren meist so aufgebaut, dass sich im nichtlinearen Kristall eine Strahltaile bildet.

Allerdings ist bei einer zu starken Fokussierung die Länge des Fokus eventuell kleiner als der Kristall. Aus beiden Effekten muss die optimale Fokussierung bestimmt werden.

Jede Frequenzkomponente des einfallenden Strahls entspricht einer Wellengleichung mit einem Quellterm $\tilde{P}_n$ wie (2.63) und kann geschrieben werden als

$$\nabla^2 \vec{E}_n - \frac{\epsilon}{c} \frac{\partial^2 \vec{E}_n}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{P}_n}{\partial t^2}. \quad (2.109)$$

Das elektrische Feld $\vec{E}_n$ und die Polarisation $\tilde{P}_n$ lauten:

$$\vec{E}_n(\vec{r}, t) = \vec{A}_n(\vec{r}, t) \cdot e^{i(k_n z - \omega_n t)} + c.c. \quad (2.110a)$$

$$\tilde{P}_n(\vec{r}, t) = \vec{p}_n(\vec{r}, t) \cdot e^{i(k'_n z - \omega_n t)} + c.c.. \quad (2.110b)$$

Die beiden Felder stellen keine ebenen Wellen dar, da die komplexen Amplituden $\vec{A}_n$ und $\vec{p}_n$ räumlich variieren können. Außerdem kann der Wellenvektor für beide Wellen unterschiedlich sein. Einsetzen der beiden Gleichungen (2.110a-b) in Gleichung (2.109) liefert

$$2ik_n \frac{\partial \vec{A}_n}{\partial z} + \nabla_T^2 \vec{A}_n = -\frac{4\pi\omega_n^2}{c^2} \cdot \vec{p}_n \cdot e^{i\Delta k z}. \quad (2.111)$$

Hierbei wurde angenommen, dass die Intensität in Richtung der Strahlausbreitung kaum variiert (*slowly varying envelope approximation*, siehe Abschnitt 2.1.4). Außerdem ist der transversale Laplace Operator definiert als $\nabla_T^2 = \partial^2/\partial x^2 + \partial^2/\partial y^2$ in kartesischen Koordinaten, bzw. in Zylinderkoordinaten als $\nabla_T^2 = (1/r)(\partial/\partial r)(r\partial/\partial r) + (1/r)^2(\partial^2/\partial \Phi^2)$. Der Wellenvektor lautet $\Delta k = k'_n - k_n$. Die Lösung dieser Gleichung beschreibt die Ausbreitung einer Welle, die nahezu entlang der z -Achse propagiert und nur kleine Änderungen in x - und y -Richtung erfährt. Gleichung (2.111) wird deshalb paraxiale Wellengleichung genannt.

Exakte Lösungen der paraxialen Wellengleichung mit verschwindendem Quellterm sind Gaußsche Strahlen [66, 67]. Ein Gaußscher Strahl kann geschrieben werden als

$$\begin{aligned} A(r, z) &= A \cdot \frac{w_0}{w(z)} \cdot e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} \cdot e^{\frac{ikr^2}{2R(z)}} \cdot e^{i\Phi(z)} \\ &= \frac{A}{1+i\xi} \cdot e^{-\frac{r^2}{w(z)^2(1+i\xi)}}, \end{aligned}$$

mit dem dimensionslosen Proportionalitätsfaktor

$$\xi = \frac{2z}{b}.$$

b wird als konfokaler Parameter bezeichnet und ist definiert als $b = 2\pi w_0^2/\lambda = kw_0^2$. Die anderen Parameter eines Gaußschen Strahls berechnen sich wie folgt (siehe Abbildung 2.11):

Strahlradius	$w(z) = w_0 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)^{1/2}$	(2.112)
--------------	---	---------

Rayleigh-Länge	$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$	(2.113)
----------------	-----------------------------------	---------

Strahltaille	w_0	(2.114)
--------------	-------	---------

Phasenverschiebung der Wellenfronten	$\Phi(z) = -\arctan\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2}\right)$	(2.115)
--------------------------------------	--	---------

Krümmungsradius der Wellenfronten	$R(z) = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2}\right)$	(2.116)
-----------------------------------	---	---------

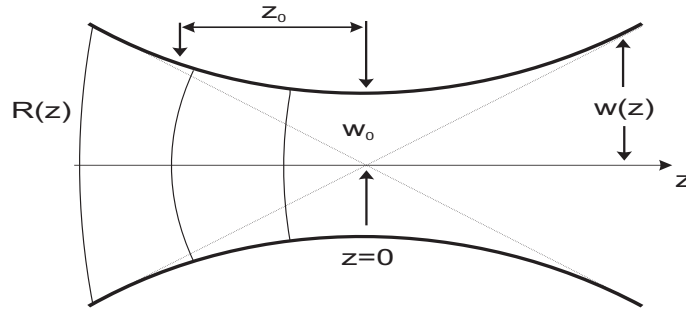


Abbildung 2.11: Änderung des Strahlradius $w(z)$ und des Krümmungsradius $R(z)$ eines Gaußschen Strahles

Der Krümmungsradius ist am Ort der Strahltaille ($z = 0$) und für $z \rightarrow \pm\infty$ unendlich und stimmt dort mit ebenen Wellen überein. Die maximale Krümmung wird am Ort der Rayleigh-Länge erreicht und beträgt dort $w(z_0) = \sqrt{2}w_0$. Die Intensität des Strahls ist dort halb so groß verglichen mit der am Ort der Strahltaille.

Es kann eine optimale Fokussierung gefunden werden, zwischen keiner Fokussierung (ebene Wellen) und maximaler Fokussierung, bei der die Konversionseffizienz maximal wird. Die Optimierung wurde numerisch von Boyd und Kleinman [35] durchgeführt und führt zu folgender Gleichung:

$$P_{2\omega} = \frac{2\omega^2 d_{\text{eff}}^2 k_\omega}{\pi n_1^2 n_2 \epsilon_0 c^3} \cdot L \cdot h_m(B, \xi). \quad (2.117)$$

Der Faktor $h_m(B, \xi)$ wird als *Boyd-Kleinman*-Faktor bezeichnet und beschreibt den Überlapp der fokussierten Welle mit dem nichtlinearen Medium. $B = \rho/2 \cdot \sqrt{Lk_1}$ ist der Doppelbrechungs- oder auch walk-off Parameter mit dem walk-off Winkel ρ (2.42). In Abbildung 2.12 ist die Überlappfunktion $h_m(B, \xi)$ als Funktion des Fokussierungsparameters ξ für verschiedene Werte des walk-off Parameters B dargestellt.

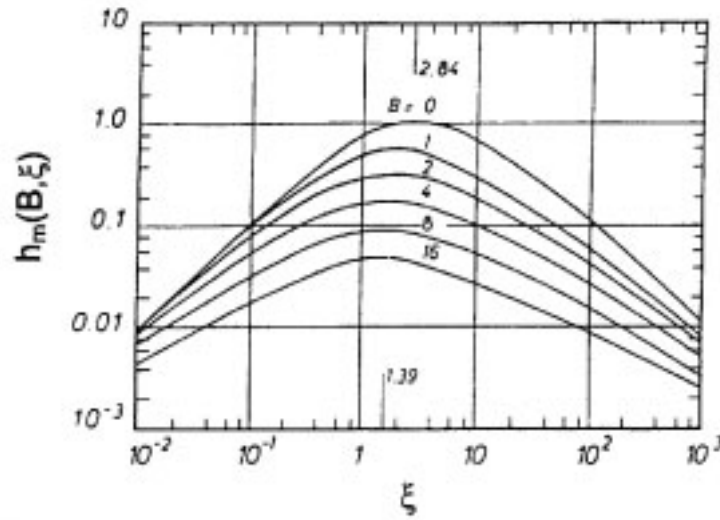


Abbildung 2.12: Überlappfunktion $h_m(B, \xi)$ für Typ1 Phasenanpassung als Funktion des Fokussierungsparameters ξ für verschiedene Werte des walk-off Parameters B [35].

In dieser Arbeit wird, wie bereits erwähnt, ein für die QPM gepolter Kristall verwendet. Bei der QPM ist kein walk-off der Wellen vorhanden (siehe Abschnitt 2.2.2), d.h. $B = 0$. In diesem Fall wird die Konversionseffizienz maximal, wenn die Kristalllänge 2.84 mal so groß ist wie der konfokale Parameter des Gaußschen Strahls. Dieses Verhältnis zwischen der Kristalllänge und dem konfokalen Parameter spielt eine zentrale Rolle beim Design eines geeigneten Resonators für den OPO.

Weiterführende theoretische Betrachtungen über Quellen nichtlinearer Prozesse und Beschreibungen entsprechender Kristalle finden sich in [30, 33, 68, 69].

Kapitel 3

Optisch parametrische Oszillation

Wie im vorherigen Kapitel bereits erwähnt, führt der Prozess der Differenzfrequenz-Erzeugung zu einer Verstärkung des eingestrahnten Feldes. Diese Verstärkung wird als optisch parametrisch bezeichnet. Mit Hilfe dieser Verstärkung ist es möglich, einen sogenannten optisch parametrischen Oszillator (OPO) zu konstruieren. In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen eines OPOs erläutert und Grundlagen zur Berechnung der Schwellpumpleistung und Konversionseffizienz geliefert, um die in den Experimenten erzielten Ergebnisse überprüfen zu können.

3.1 Prinzipielle Funktionsweise

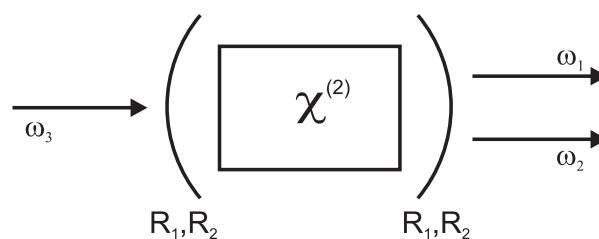


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau eines optisch parametrischen Oszillators. Die beiden Spiegel mit den Reflektivitäten R_1 und R_2 bilden einen Resonator um den Kristall. Die einfallende Pumpstrahlung (ω_3) verstärkt die Signal- (ω_1) und Idlerwelle (ω_2) und es gilt: $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$.

In Abbildung 3.1 ist der schematische Aufbau eines optisch parametrischen Oszillators dargestellt. Sind die Spiegel hochreflektierend für eine der beiden verstärkten Wellen (Signal- oder Idlerwelle), dann handelt es sich um einen einfach-resonanten OPO (SRO). Arbeitet der OPO in der Nähe des Entartungspunktes, wo die Frequenz der Signalwelle

gleich der Frequenz der Idlerwelle ist, dann ist der OPO doppelt-resonant (DRO). Durch Anpassung der Spiegelbeschichtungen auf die Signal- und Idlerwellenlänge kann erreicht werden, dass beide Wellen auch entfernt vom Entartungspunkt oszillieren. Sind die Spiegel für alle drei am Mischprozess beteiligten Wellen beschichtet, dann handelt es sich um einen dreifach-resonanten OPO (TRO).

Zur Berechnung der Verstärkung in einem OPO können die beiden bekannten Amplitudengleichungen (2.78) und (2.79) der DFG verwendet werden. Diese Gleichungen haben die Lösung

$$E_1(z) = \left[E_1(0) \left(\cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gz \right) + \frac{\kappa_1}{g} E_2^*(0) \sinh gz \right] \cdot e^{i\Delta k z/2} \quad (3.1)$$

$$E_2(z) = \left[E_2(0) \left(\cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gz \right) + \frac{\kappa_2}{g} E_1^*(0) \sinh gz \right] \cdot e^{i\Delta k z/2}. \quad (3.2)$$

Hierbei ist $g = [\kappa_1 \kappa_2^* - (\Delta k/2)^2]^{1/2}$ und $\kappa_i = \frac{8\pi i \omega_i^2 d E_3}{k_j c^2}$. Bei perfekter Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) und unter der Annahme, dass die Amplitude des Feldes E_2 verschwindet ($E_2(0) = 0$), können die beiden Gleichungen auf das aus Abschnitt 2.1.4 bekannte Ergebnis reduziert werden. Die Amplituden der beiden Wellen verhalten sich wie in Abbildung 2.4 gezeigt. Je weiter die Wellen entlang der z -Richtung durch den Kristall fortschreiten, desto größer werden die Amplituden. Beide Wellen erfahren eine exponentielle Verstärkung, wobei die Amplitude dem Verstärkungskoeffizienten g gehorcht.

Wird die Schwellwertbedingung betrachtet, lassen sich deutliche Unterschiede zwischen einem SRO und einem DRO herausarbeiten. Die Schwellwertbedingung für die optisch parametrische Oszillation wurde zum ersten Mal durch Giordmaine und Miller [9] formuliert und lautet:

$$gL = 1 - R. \quad (3.3)$$

Diese Bedingung gilt nur für optimale Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) und R ist die Reflektivität der Resonatorspiegel für die Signal- und die Idlerwellenlänge. Allgemeiner, für den Fall beliebiger Reflektivitäten der Resonatorspiegel und unter der Annahme, dass die Felder im Resonator nach jedem Umlauf reproduziert werden, kann diese Beziehung ausgedrückt werden als:

$$E_1(0) = \left[E_1(0) \cosh gL + \frac{\kappa_1}{g} \cdot E_2^*(0) \sinh gL \right] \cdot (1 - l_1) \quad (3.4a)$$

$$E_2^*(0) = \left[E_2(0) \cosh gL + \frac{\kappa_2^*}{g} \cdot E_1^*(0) \sinh gL \right] \cdot (1 - l_2). \quad (3.4b)$$

$l_i = 1 - R_i \cdot e^{-\alpha_i L}$ stellt die Verluste der Amplitude pro Kristalldurchgang dar und α_i ist der Absorptionskoeffizient des Kristalls bei der Frequenz ω_i . Unter der Voraussetzung, dass die Gleichungen (3.4a-b) gleichzeitig erfüllt werden müssen, lautet die Schwellwertbedingung:

$$\cosh gL = 1 + \frac{l_1 \cdot l_2}{2 - l_1 - l_2}. \quad (3.5)$$

In dieser Gleichung stecken die Schwellenbedingungen für den einfach-resonanten und den doppelt-resonanten Fall. Beim DRO werden geringe Verluste für beide Wellen angenommen, d.h. $l_1, l_2 \ll 1$. $\cosh gL$ in Gleichung 3.5 kann in diesem Fall durch $1 + 1/2 \cdot g^2 L^2$ angenähert werden, und die Schwellwertbedingung eines DRO wird zu:

$$g^2 L^2 = l_1 \cdot l_2. \quad (3.6)$$

Bei einem SRO findet für eine der beiden Wellen keine Rückkopplung statt, d.h. $l_2 = 1$. Unter der Annahme, dass die Verluste der zweiten Welle gering sind, also $l_1 \ll 1$, wird die Schwellwertbedingung für einen SRO zu:

$$g^2 L^2 = 2 \cdot l_1. \quad (3.7)$$

Ein Vergleich der beiden Gleichungen 3.6 und 3.7 zeigt, dass die Schwelle eines SRO um den Faktor $(2/l_2)^{1/2}$ größer ist als die Schwelle eines DRO. In Abschnitt 3.2 werden diese Grundlagen neu aufgegriffen und für den Fall eines SRO genauer beschrieben.

Neben der Schwelle unterscheidet sich in einem einfach-resonanten OPO die Modenstruktur von der in einem doppelt-resonanten OPO. Ein wichtiger Aspekt für die Spektroskopie ist hierbei die Durchstimmbarkeit der emittierten Wellenlängen sowie deren Frequenzstabilität. Deshalb werden im Folgenden die beiden Systeme SRO und DRO hinsichtlich dieser beiden Parameter miteinander verglichen.

Im Allgemeinen ist der Abstand der Resonatormoden viel geringer als die Breite der Verstärkungskurve der optisch parametrischen Verstärkung. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Zur Erläuterung, welche der Resonatormoden oszillieren, dienen die beiden Abbildungen 3.3A und 3.3B. Das Maximum des Verstärkungsprofils liegt immer bei $\Delta k = 0$. Im einfach-resonanten Fall (Abbildung 3.3A) findet eine effektive Verstärkung immer nur für die Resonatormode statt, die am dichtesten beim Maximum der Verstärkungskurve liegt. Beginnt der SRO auf der Resonatormode zu oszillieren, die am dichtesten beim Maximum der Verstärkungskurve liegt, wird die Pumpleistung abgebaut. Dadurch werden die Verluste für diese Mode verringert, und für die anderen Moden steht

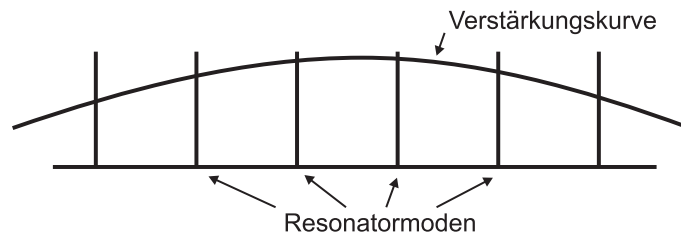


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Verstärkungskurve und der Resonatormoden in einem OPO. Typischerweise liegen mehrere Moden innerhalb des Verstärkungsprofils.

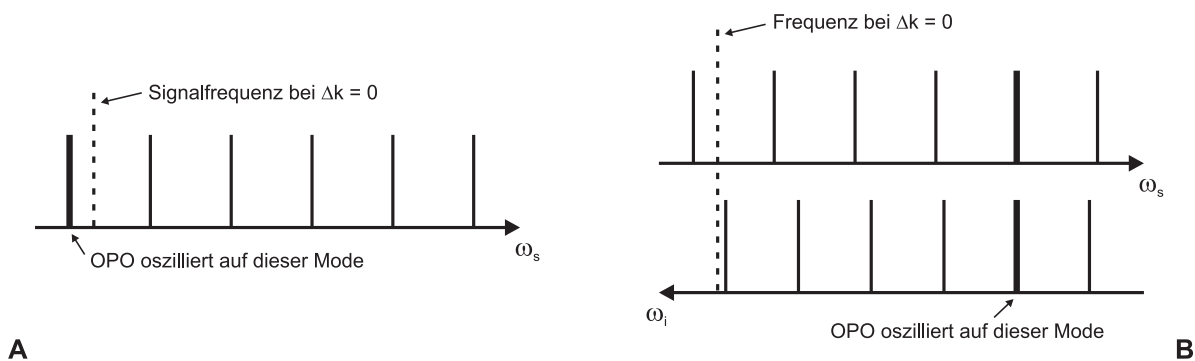


Abbildung 3.3: A: Schematische Darstellung der Modenstruktur in einem SRO. B: Schematische Darstellung der Modenstruktur in einem DRO.

nicht mehr genug Verstärkung zur Verfügung, um die Schwelle zu erreichen. Eine Oszillation ist für diese Resonatormoden nicht mehr möglich. Daher oszilliert ein SRO immer nur auf einer Resonatormode. Störende äußere Einflüsse, wie z.B. mechanische Störungen, wurden hierbei vernachlässigt.

Bei einem DRO ist ein anderes Verhalten festzustellen. In einem DRO werden stets die Moden bevorzugt, bei denen Signal- und Idlermode gleichzeitig oszillieren können. Wie in Abbildung 3.3B gezeigt wird, sind dies nicht unbedingt die Resonatormoden, die am dichtesten beim Maximum des Verstärkungsprofils liegen. Aus diesem Grund sind DROs nicht kontinuierlich abstimmbare, da beim Verschieben der Verstärkungskurve immer wieder günstige Modenpaare gesucht werden und es damit im Allgemeinen zu Modensprüngen kommt. Außerdem können schon kleine Änderungen bei der Pumpfrequenz oder in der Resonatorlänge zu großen Modensprüngen bei der Signal- bzw. Idlerfrequenz führen.

Trotz der höheren Schwelle ist die höhere Frequenzstabilität der SROs gegenüber den DROs ein entscheidender Punkt bei der Wahl eines für die Spektroskopie geeigneten Systems. Für die Experimente wurde deshalb ein SRO ausgewählt, der resonant für die Signalwelle aufgebaut ist. Die damit erzeugte und ausgekoppelte Idlerwelle kann für spektroskopische Untersuchungen verwendet werden. Die nachfolgenden Betrachtungen bezüg-

lich Schwellpumpleistung und Konversionseffizienz wurden daher auf einfach-resonante Systeme eingeschränkt.

3.2 Schwellpumpleistung und Konversionseffizienz eines SRO

Zum Design eines geeigneten SROs ist es wichtig zu erfahren, ob der Pumplaser genügend Leistung liefert, um eine ausreichende Verstärkung zu erreichen. Daher wird in den nun folgenden Abschnitten eine Gleichung zur Berechnung der Schwellpumpleistung eines einfach-resonanten OPOs hergeleitet. Danach folgen analytische Betrachtungen zur Konversionseffizienz eines SRO, um die Unterschiede zwischen wechselwirkender ebener Wellen oder Gaußscher Strahlen zu verdeutlichen.

3.2.1 SRO-Betrieb und Schwellpumpleistung

Die folgenden theoretischen Betrachtungen in diesem Abschnitt beziehen sich rein auf SROs, die resonant für die Signalwelle konzipiert sind.

Zur Bestimmung der Schwelle des SROs kann daher angenommen werden, dass keine Anteile der Amplitude der Idlerwelle $E_2(L_C)$ nach Durchlaufen des Kristalls eine Rückkopplung erfahren. Für die Amplitude der Idlerwelle gilt daher $E_2(0) = 0$. Ferner wird angenommen, dass der Resonator eine hohe Finesse besitzt und damit die Verluste der eingestrahnten bzw. erzeugten Wellen minimal sind. Die Feldamplitude der Signalwelle $E_1(z)$ nach einem Durchgang durch den nichtlinearen Kristall wird sich daher nur unwesentlich von der eingestrahnten Feldamplitude $E_1(0)$ unterscheiden. Es gilt

$$\frac{d}{dz}E_1 \cdot L_C \ll E_1(0) \quad (3.8)$$

mit der Kohärenzlänge L_C (Gleichung (2.90)) und damit

$$E_1(z) \approx E_1(0). \quad (3.9)$$

In der Nähe der Pumpschwelle erfolgt beim Durchlaufen des Kristalls kein Abbau der Pumpwelle. Die Feldstärke der Pumpwelle bleibt daher über die gesamte Kristalllänge nahezu konstant:

$$E_3(z) \approx E_3(0). \quad (3.10)$$

Mit diesen Annahmen kann die erzeugte Amplitude der nichtresonanten Idlerwelle $E_2(L_C)$ berechnet werden zu

$$E_2(L_C) = \left[i \cdot \frac{\omega_2 d_{eff}}{n_2 c_0} \cdot E_1^*(0) \cdot E_3(0) \right] \cdot \int_0^{L_C} e^{i\Delta k z} dz. \quad (3.11)$$

Durch Integration und die Bildung des Quadrats des Absolutwertes ergibt sich daraus

$$|E_2(z)|^2 = \frac{\omega_2^2 d_{eff}^2}{n_2^2 c_0^2} \cdot L_C^2 \cdot |E_1(0)|^2 \cdot |E_3(0)|^2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right). \quad (3.12)$$

Mit der Beziehung $I_2 = \frac{n_2}{2} \cdot c_0 \cdot |E_2|^2$ wird (3.12) zu:

$$I_2(L_C) = \frac{2\omega_2^2 d_{eff}^2}{n_1 n_2 n_3 c_0^3} \cdot L_C^2 \cdot I_1(0) \cdot I_3(0) \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right). \quad (3.13)$$

Aufgrund der Manley-Rowe-Beziehung (2.83) muß die Intensitätsänderung der Idlerwelle $\Delta I_2 = I_2(L_C)$ mit der erzeugten Signalintensität $\Delta I_1 = I_1(L_C)$ durch die folgende Gleichung miteinander verknüpft sein:

$$I_1(L_C) = \frac{\omega_1}{\omega_2} \cdot I_2(L_C). \quad (3.14)$$

Die Verstärkung γ_1 der Intensität der resonanten Signalstrahlung pro Kristalldurchgang kann mit Hilfe von (3.13) und (3.14) berechnet werden zu:

$$\gamma_1 = \frac{\Delta I_1}{I_1(0)} = 2 \cdot \frac{d_{eff}^2}{n_1 n_2 n_3} \cdot L_C^2 \cdot c_0^3 \cdot \omega_1 \omega_2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right) \cdot I_3(0). \quad (3.15)$$

Die parametrische Verstärkung der Signalintensität (3.15) wächst quadratisch mit der Kristalllänge L_C . Die parametrische Verstärkung wird maximal, wenn $\Delta k = 0$ ist. Dann wird der Faktor $\text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right)$ gerade 1.

An der Schwelle des SROs entspricht die Intensitätsverstärkung der Signalstrahlung γ_1 durch die Pumpintensität $I_{3,th}$ gerade den Intensitätsverlusten α_1 pro Resonatorumlauf. Zur Vereinfachung werden als Verluste lediglich die Intensitätsverluste durch den Auskoppelspiegel berücksichtigt. Dessen Reflektivität für die Signalwelle beträgt $R_1 \approx 1$ und es gilt $\alpha_1 = 1 - R_1$. Weiterhin gilt die Beziehung

$$\gamma_1(I_{3,th}) = 1 - R_1. \quad (3.16)$$

Mit Hilfe von (3.16) kann aus (3.15) die Pumpintensität $I_{3,th}$ bestimmt werden, die nötig ist, um die Schwellenbedingung einzuhalten [33]:

$$I_{3,th} = \frac{1 - R_1}{2\omega_1\omega_2 L_C^2} \cdot \frac{n_1 n_2 n_3}{d_{eff}^2} \cdot \frac{1}{c_0^3} \cdot \text{sinc}^{-2} \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right). \quad (3.17)$$

Aus Gleichung (3.17) können grundlegende Zusammenhänge zwischen der Größe der Pumpschwelle eines SRO und seiner Resonatoreigenschaften formuliert werden. Eine kleine Schwelle läßt sich z.B. erreichen, indem für den SRO ein langer Kristall verwendet wird, eine große FOM vorliegt sowie der Resonator eine hohe Finesse besitzt, die Spiegel also hohe Reflektivitäten aufweisen. Durch den reziproken Zusammenhang zwischen der Pumpintensität und den Frequenzen ω_1 und ω_2 , ist die Schwelle kleiner für höhere Signal- und Idlerfrequenzen. Dabei liefert der sinc^{-2} -Faktor die größte Abhängigkeit der Pumpschwelle zur Signal- und Idlerwellenlänge. Die geringste Schwelle für Signal- und Idlerwellenlänge wird dann erreicht, wenn $\Delta k = 0$ ist. Dagegen steigt die Pumpschwelle für Wellenlängen ohne Phasenanpassung an. Daher wird der SRO immer versuchen, so nahe wie möglich bei der Wellenlänge zu oszillieren, für die die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist.

Zur Bestimmung der bisherigen Formeln in diesem Abschnitt galt immer die Annahme, daß die Strahlung als ebene Wellen vorliegt. Im Fall von geringer Fokussierung der Strahlung kann die Leistung in der x-y-Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung als gleichmäßig verteilt angenommen werden. Außerdem können in diesem Querschnitt auch die Phasen als konstant angesehen werden. In diesem Fall ergibt Gleichung (3.17) eine gute Näherung für die Schwellpumpleistung. Allerdings liegt im Experiment zum effizienten Betrieb des SRO eine starke Fokussierung im Kristall vor. Daher müssen die Pump-, Signal- und Idlerwellen als Gaußsche Strahlen betrachtet werden. Sie zeichnen sich durch eine inhomogene Intensitätsverteilung entlang der Ausbreitungsrichtung (z-Richtung) aus, d.h. Intensität und Phasen sind in jeder senkrecht zur Ausbreitungsrichtung stehenden x-y-Ebene verschieden [66]. Eine mathematische Herleitung für den Fall von Gaußschen Strahlen ist in den Arbeiten von Sutherland [33] oder Boyd [70] zu finden. Das Ergebnis dieser Berechnungen für die Schwellpumpleistung lautet:

$$P_{3,th} = \frac{4\pi c^2 n_1 n_2 (1 - R_1)}{\mu_0 \omega_1 \omega_2 \omega_3 d_{eff}^2 L_C}. \quad (3.18)$$

Die Schwellpumpleistung unter Berücksichtigung Gaußscher Strahlung zeigt einen reziproken linearen Zusammenhang mit der Kristalllänge. Der Grund hierfür liegt darin, daß bei der Herleitung von (3.18) angenommen wurde, daß der konfokale Parameter der eingestrahnten Wellen immer gleich der Kristalllänge ist. Der Effekt einer längeren Wechselwirkungslänge im Kristall wird teilweise durch die weniger starke Fokussierung kompensiert.

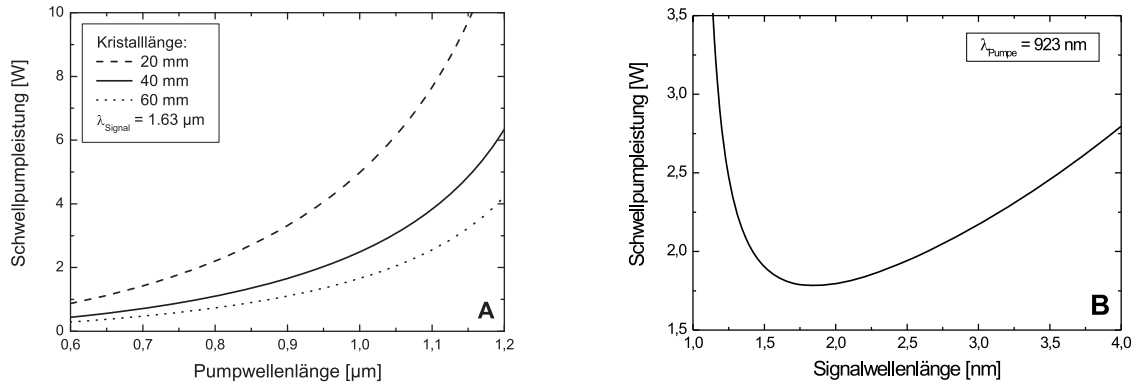


Abbildung 3.4: A: Schwellpumpleistung bei einer Signalwellenlänge von $1.63 \mu\text{m}$ als Funktion der Pumpwellenlänge für drei unterschiedliche Kristalllängen (20 mm, 40 mm und 60 mm). B: Abhängigkeit der Schwellpumpleistung von der Signalwellenlänge bei einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm.

Weiterhin nimmt die Schwelle für Gauß-förmige Strahlen mit zunehmender Pumpfrequenz ω_3 ab. Bei ebenen Wellen findet die Pumpfrequenz dagegen keine Berücksichtigung. Aus einer hohen Pumpfrequenz, also kleinen Pumpwellenlänge, folgt eine kleinere Strahltaille und damit eine höhere Intensität [66].

In Abbildung 3.4A ist die Schwellpumpleistung des SRO als Funktion der Pumpwellenlänge für drei unterschiedliche Kristalllängen (20 mm, 40 mm und 60 mm) aufgetragen. Der nach (3.18) zu erwartende Anstieg der Schwelle mit abnehmender Länge des Kristalls ist deutlich erkennbar. Bei einer Kristalllänge von 20 mm ist bei einer Pumpwellenlänge von 923 nm eine Pumpleistung von mehr als 3 W nötig, um den SRO oberhalb der Schwelle zu betreiben. Dies ist mit den momentan erhältlichen DFB-Dioden nicht realisierbar. Eine Kristalllänge von 60 mm würde zwar die Schwellpumpleistung deutlich verringern (ca. 1 W), allerdings ergaben Berechnungen mit dem Programm *LASCAD* Schwierigkeiten beim Resonatordesign. Es ergaben sich Probleme beim optimalen Überlapp zwischen eingekoppeltem Strahl und Polungskanal im Kristall, sowie der Position des Kristalls im Resonator. Daher wurde eine Länge des Kristalls von 40 mm gewählt und somit ein Kompromiss zwischen Resonatordesign mit gutem Strahlüberlapp mit dem Kristall und einer realisierbaren Schwellpumpleistung von ca. 2 W gefunden.

Für den 40 mm langen Kristall wurde die Schwellpumpleistung in Abhängigkeit der Signalwellenlänge mit Hilfe der Gleichung (3.18) berechnet. In Abbildung 3.4B ist das Ergebnis der Berechnung dargestellt. Bei einer Pumpwellenlänge von 923 nm ergibt sich daraus eine minimale Schwellpumpleistung von ca. 1.8 W bei einer Signalwellenlänge von $1.8 \mu\text{m}$ und damit sehr nahe am Entartungspunkt. Die Kurve in Abbildung 3.4B zeigt einen deutli-

chen Anstieg bei kleineren und größeren Werten der Signalwellenlänge. Der Kristall und die Spiegelbeschichtungen werden daher so gewählt, dass die Signalwellenlänge des SRO möglichst nahe bei $1.8 \mu\text{m}$ liegt, um den Betrieb zu vereinfachen.

3.2.2 Konversionseffizienz eines einfach-resonanten cw-OPOs

Ein effizienter Betrieb ist nur mit Pumpleistungen weit größer als der Schwellpumpleistung möglich. In diesem Fall können die Verluste durch Absorption, Brechung, etc. gegenüber den ausgekoppelten Leistungen an den OPO-Spiegeln vernachlässigt werden. Für höchste Pumpleistungen kann (theoretisch) die gesamte Pumpleistung in Signal- und Idlerleistung umgewandelt werden. Die Konversionseffizienz $\eta = \frac{P_{\text{Signal}} + P_{\text{Idler}}}{P_{\text{Pumpe}}}$ beträgt demnach 100% [33]. In der Praxis allerdings sind die vorhandene Pumpleistung und die nichtlineare Verstärkung des OPO-Kristalls beschränkt, und die damit einhergehenden Verluste können nicht mehr vernachlässigt werden. Die Konversionseffizienz sinkt daher unter 100%. Andere Eigenschaften des OPOs wie z.B. das Spektrum oder die Durchstimmbarkeit hängen sehr stark vom experimentellen Aufbau ab.

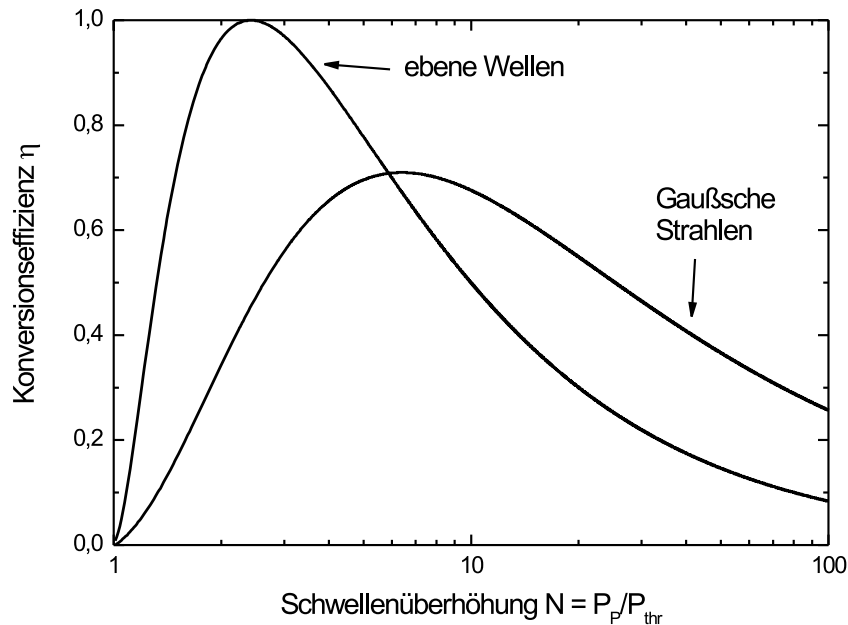


Abbildung 3.5: Konversionseffizienz der Pumpstrahlung eines SRO als Funktion der Schwellenüberhöhung N für ebene Wellen und Gaußsche Strahlen.

Befindet sich der optisch parametrische Oszillator im Gleichgewichtszustand, können Konversionseffizienz und Ausgangsleistung mit Hilfe vereinfachter Modelle berechnet werden. Für den Fall, daß die einfallende Strahlung durch Gaußsche Strahlen beschrieben werden kann, ergibt sich nach dem Modell von Bjorkholm [71] die Konversionseffizienz eines SRO aus dem Integral

$$\eta = 1 - \left[\frac{1}{N} + \int_0^{\ln(N)} e^{-x} \cdot \cos^2 \Gamma(x) dx \right]. \quad (3.19)$$

Die Funktion $\Gamma(x)$ wird durch den Zusammenhang

$$\frac{\sin^2 \Gamma(x)}{\Gamma(x)^2} = \frac{e^x}{N} \quad (3.20)$$

definiert. N wird als Schwellenüberhöhung bezeichnet und ist das Verhältnis aus Pumpleistung und Schwellpumpleistung $N = \frac{P_P}{P_{thr}}$.

Für die analytische Betrachtung der Konversionseffizienz bei Gaußschen Strahlen wurden die Überlegungen von Granot et al. [72] verwendet. Die damit berechnete Abhängigkeit $\eta(N)$ in Abbildung 3.5 liefert eine wichtige Eigenschaft eines SRO. Die Konversionseffizienz unter Verwendung Gaußscher Strahlen kann niemals den optimalen Wert von 100 % erreichen. Nur für ebene Wellen wird eine Konversionseffizienz von 100 % erzielt bei einer Schwellenüberhöhung von $(\frac{\pi}{2})^2$ und unter Annahme eines vollständigen Pumpabbaus [73]. Der maximal mögliche Wert für die Konversionseffizienz unter Verwendung Gaußscher Strahlen beträgt 71 % bei einer Schwellenüberhöhung von $N \approx 6.5$. Eine vollständige Konversion von Gaußschen Strahlen ist nicht möglich, da aufgrund seiner Form die Pumpleistung in den Flügeln des Gaußförmigen Intensitätsprofils zu gering ist, um einen effizienten Beitrag zur Konversion zu liefern. Außerdem findet aufgrund unterschiedlicher Winkelanteile in Gaußschen Strahlen eine Rückkonversion von Signal- und Idlerstrahlung in Pumpstrahlung statt, noch bevor eine Konversion sämtlicher Pumpstrahlung erreicht wird [56].

3.3 Wellenlängenabstimmung von QPM-OPOs

Wie in den Abschnitten 2.2.2 und 2.2.3 beschrieben können die Signal- und Idlerwellenlängen von QPM-OPOs über unterschiedliche Verfahren variiert werden. Für den späteren Einsatz des OPOs für spektroskopische Untersuchungen (Kapitel 6) sowie der elektronischen Stabilisierung der Wellenlänge des OPOs (Kapitel 7) spielt die Durchstimmung der Signal- und Idlerwellenlänge eine zentrale Rolle. Zur Charakterisierung wurde der cw-OPO über eine Änderung der Polungsperiode Λ , der Kristalltemperatur T_K sowie über

eine Änderung der Pumpwellenlänge λ_P grob durchgestimmt. Zur feinen Wellenlängenvariation wurde ein Etalon in den Resonator eingebracht und mit Hilfe einer Stromänderung die Wellenlänge des Pumplasers kontinuierlich variiert. In den folgenden Abschnitten werden diese einzelnen Verfahren vorgestellt und entsprechende Berechnungen gezeigt. Die Berechnungen dienen dazu, verschiedene Designkriterien wie z.B. geeignete Polungsperioden für die periodisch gepolten Kristalle oder die Temperatur des Kristallofens möglichst genau abschätzen zu können. Die Ausführungen bezüglich der feinen Wellenlängenabstimmung folgen dabei den Betrachtungen von Klein [23].

3.3.1 Änderung der Polungsperiode Λ

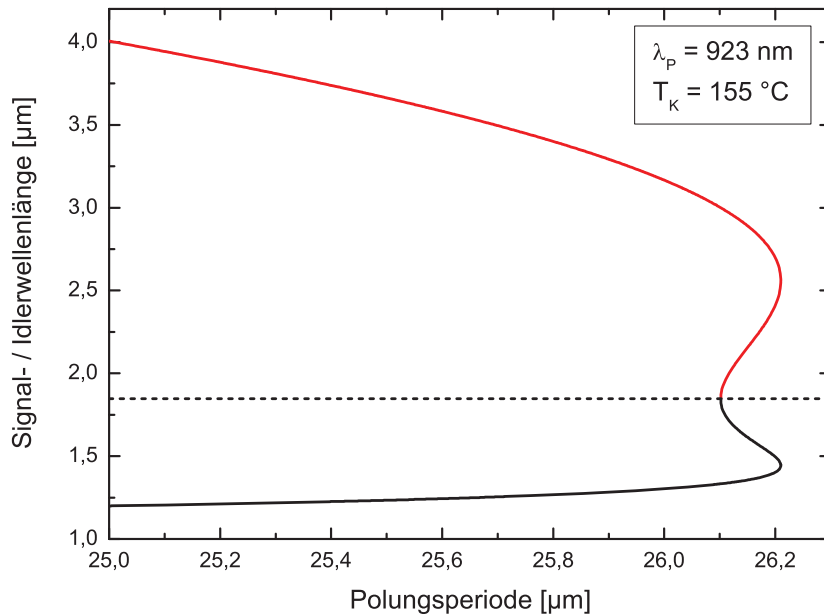


Abbildung 3.6: Signal- und Idlerwellenlänge eines OPOs mit LiNbO₃ für Quasiphasenanpassung als Funktion der Polungsperiode. Die Kurve wurde mit einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm und einer konstanten Kristalltemperatur von 155 °C berechnet.

Zunächst wurde mit Hilfe der Sellmeier-Koeffizienten von Jundt [74] eine Durchstimmkurve der Signal- und Idlerwellenlängen des cw-OPOs als Funktion der Polungsperiode berechnet. Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Um einen möglichst großen Wellenlängenbereich abzudecken, wurden die Pumpwellenlänge von 923 nm

und die Kristalltemperatur von 155 °C als feste Parameter angenommen. Der schwarz gezeichnete Bereich im Diagramm zeigt die Durchstimmkurve der Signalwellenlänge, der rote Teil die entsprechenden Idlerwellenlängen. Die gestrichene Linie verdeutlicht die Lage des Entartungspunktes bei der doppelten Pumpwellenlänge (1.846 μm).

Durch eine Änderung der Polungsperiode zwischen 25.0 μm und 26.2 μm lässt sich die Signal- und Idlerwellenlänge des OPOs um mehrere hundert Nanometer durchstimmen. Allerdings findet dieses Verfahren in der Praxis nur wenig Anwendung, da hierbei die Position des Kristalls im Resonator verändert werden muss, um die einzelnen Polungsperioden zu verwenden. Da der komplette Kristall hierbei im Resonator verschoben werden müsste, ist in der Regel eine Justierung des Resonators notwendig und das Verfahren damit sehr zeitaufwendig. Abhilfe hierfür könnten sogenannte *fan-out gratings* [75] bringen. Dabei sind die Polungsperioden fächerartig im Kristall eingebracht und können stufenlos variiert werden. Dieser Prozess kann allerdings nur langsam umgesetzt werden und bedarf aufgrund der mechanischen Änderung der Kristallposition nach jeder Polungsperiodenänderung einer Optimierung des Resonators. Außerdem handelt es sich hierbei um eine nichtkollineare Phasenanpassung und die bei der Wechselwirkung beteiligten Strahlen laufen aufgrund der Gitterstruktur auseinander. Dadurch verringert sich die Effizienz des Prozesses.

3.3.2 Änderung der Kristalltemperatur T_K

In Abbildung 3.7 sind die Signal- und Idlerwellenlängen eines QPM-OPOs in Abhängigkeit der Kristalltemperatur dargestellt. Die Polungsperiode ist konstant bei 26.0 μm und die Pumpwellenlänge wird fest bei 923 nm angenommen. Eine Änderung der Kristalltemperatur zwischen 15 °C und ungefähr 160 °C führt zu einer Signalwellenlängendurchstimmung von 1.25 μm bis zur Entartungswellenlänge von 1.846 μm (schwarzer Teil der Kurve). Der rote Bereich der dargestellten Kurve zeigt die entsprechenden Idlerwellenlängen zwischen 1.846 μm und 3.56 μm .

Auch diese Art von Durchstimmung der Signal- bzw. Idlerwellenlänge eines QPM-OPOs wird in der Praxis nur selten verwendet. Die Änderung der Kristalltemperatur ist ebenfalls ein sehr langsamer Prozess und je nach verwendetem nichtlinearen Kristall treten bei bestimmten Temperaturen unerwünschte Nebeneffekte auf wie z.B. Photorefraktivität (siehe Kapitel 2.3.1).

3.3.3 Änderung der Pumpwellenlänge λ_P

Die Durchstimmung der Signal- und Idlerwellenlängen eines QPM-OPOs über eine Änderung der Wellenlänge des Pumpsystems ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Diese Art der

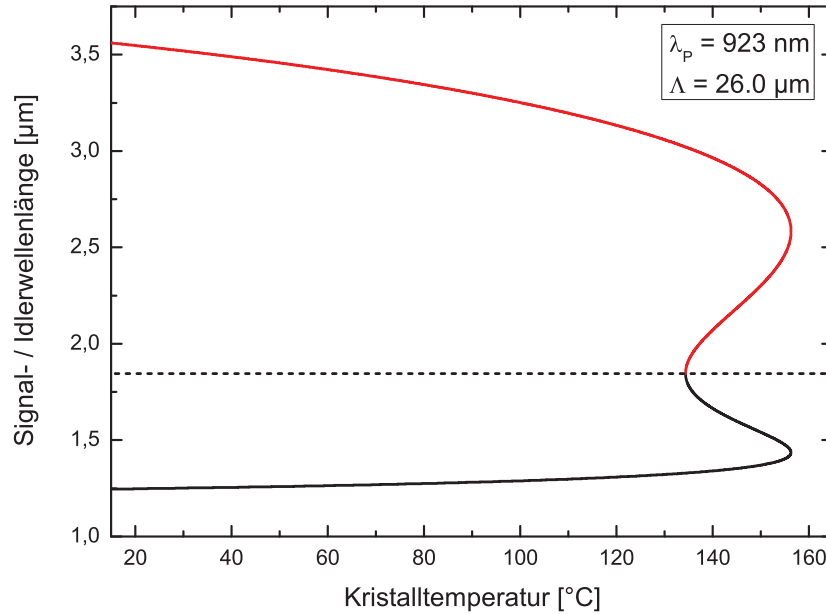


Abbildung 3.7: Signal- und Idlerwellenlänge eines OPOs mit LiNbO₃ für Quasiphasenanpassung als Funktion der Kristalltemperatur. Die Kurve wurde mit einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm und einer festen Polungsperiode von 26,0 μm berechnet.

Durchstimmung ist unkompliziert, schnell und deckt auch für kleine Änderungen der Pumpwellenlänge einen großen Bereich an Signal- und damit Idlerwellenlängen ab. Als Kristalltemperatur wurde 155 °C angenommen und als feste Polungsperiode 26,0 μm eingestellt. Die Pumpwellenlänge wurde zwischen 922,7 nm und 927 nm variiert. Damit kann die Signalwellenlänge (schwarz dargestellt) über einen Bereich von 1,32 μm bis zum Entartungspunkt bei 1,846 μm durchgestimmt werden. Die Idlerwellenlänge entsprechend zwischen 1,846 μm und 3,1 μm .

Diese drei Verfahren wurden im Experiment zur Charakterisierung des OPOs verwendet. Die Berechnungen dienten zur Vorbereitung des Experiments und zur Abschätzung der erforderlichen Resonatoreigenschaften wie z.B. die Spiegelbeschichtungen, die Polungsperioden der Kristalle oder die erforderliche Kristalltemperatur. Natürlich können im Experiment die einzelnen Parameter nicht soweit verändert werden, wie es in den Diagrammen gezeigt wird. Die im Experiment ermittelten Durchstimmkurven werden daher nur Teile dieser berechneten Kurven umfassen.

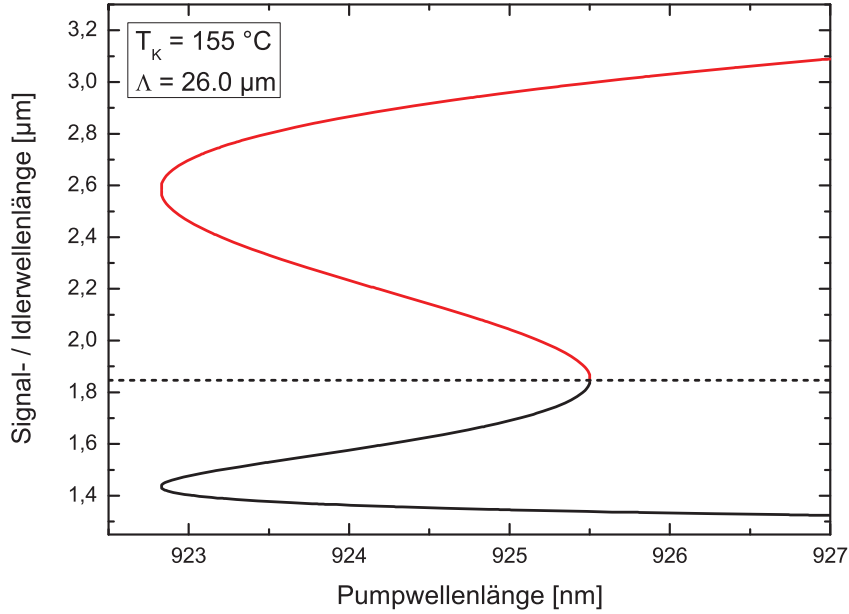


Abbildung 3.8: Signal- und Idlerwellenlänge eines OPOs mit LiNbO₃ für Quasiphasenanpassung in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge. Zur Berechnung der Kurve wurde eine konstante Kristalltemperatur von 155 °C und eine feste Polungsperiode von 26.0 μm angenommen.

3.3.4 Feinabstimmung der OPO-Wellenlängen

Ein OPO oszilliert immer auf dem Signal- und Idlerfrequenz-Paar, welches die geringste Pumpschwelle aufweist. Dies ist dann erfüllt, wenn die Wellenlängen der maximalen parametrischen Verstärkung mit denen der höchsten Resonator-Rückkopplung übereinstimmen.

Wie in Abschnitt 3.2.1 bereits gezeigt, ist die parametrische Verstärkung proportional zu $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L_C}{2}\right)$, wobei Δk vom Brechungsindex des Kristalls für Pump-, Signal- und Idlerwelle abhängt. Im Allgemeinen passt das Signal-/Idlerfrequenz-Paar mit der größten parametrischen Verstärkung ($\Delta k = 0$) nicht zu der bzw. den Eigenfrequenz(en) des OPO Resonators für die resonante(n) Welle(n). Deshalb ergeben sich die genauen Frequenzen der Wellen im OPO durch einen Kompromiss aus parametrischer Verstärkung und resonanter Rückkopplung. Die Konsequenzen aus dieser Bedingung auf die Signal- bzw. Idlerstrahlung werden im nachfolgenden für verschiedene experimentelle Parameter diskutiert.

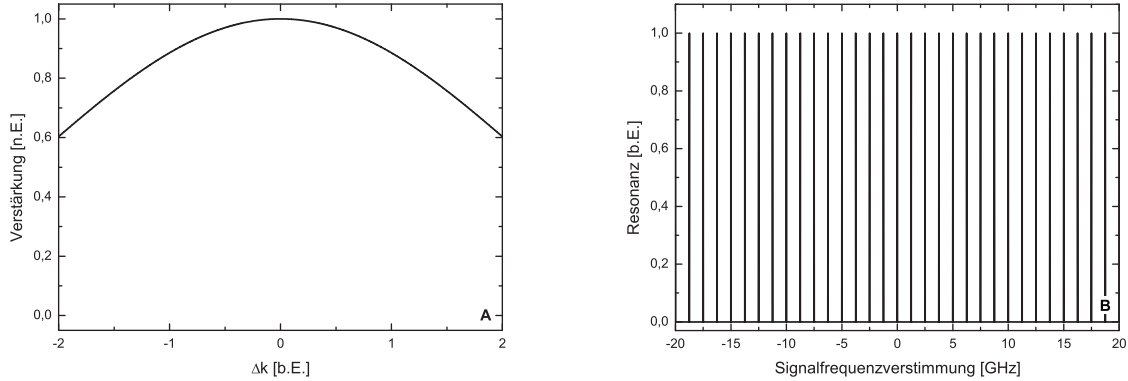


Abbildung 3.9: A: Die parametrische Verstärkung wird maximal bei $\Delta k = 0$. B: Die Resonatorüberhöhung in Abhängigkeit der Signalfrequenz. Die gleich hohen Peaks zeigen die Eigenmoden des OPO Resonators, mit einem jeweiligen Abstand von 1.25 GHz (FSR des Resonators).

Im Folgenden soll eine cw-SRO Konfiguration angenommen werden, bei der nur die Signalwelle resonant in einem Resonator mit hoher Finesse ist. Die Idler- und Pumpwelle werden direkt ausgekoppelt. In diesem Fall muss die oszillierende Signalwelle immer eine Longitudinalwelle des Resonators darstellen. Für die Idlerfrequenz ω_2 gibt es keine weiteren Einschränkungen. Die Finesse des Resonators für die Signalwelle wird über einen genügend weiten Wellenlängenbereich als konstant angenommen. Das Durchstimmverhalten wird deshalb nicht durch Charakteristika wie z.B. der dielektrischen Beschichtungen der Spiegel oder des Kristalls beeinflusst. Um für die nachfolgenden Diagramme Werte zu erhalten, die mit den experimentellen Untersuchungen vergleichbar sind, werden folgende Eigenschaften für den Resonator angenommen:

- Freier Spektralbereich (FSR) des Resonators für die Signalwelle: 1.25 GHz
- Pumpfrequenz: 325 THz (923 nm).

Die parametrische Verstärkung für die Signalfrequenz wird maximal bei $\Delta k = 0$ (Abbildung 3.9A). In Diagramm 3.9B ist die Resonatorüberhöhung als eine Funktion der Signalfrequenz dargestellt. Eine Oszillation ist nur auf einem der gleich hohen Peaks, welche die Eigenmoden des OPO Resonators darstellen, möglich (Modenabstand 1.25 GHz).

Die effektive Verstärkung, die sich aus der parametrischen Verstärkung und der Resonator-Rückkopplung ergibt, ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Sie wird bei der Signalmode maximal, die sich am dichtesten bei der Signalfrequenz mit der größten parametrischen Verstärkung befindet. Dadurch besitzt diese Mode die geringste Schwellpumpleistung, und

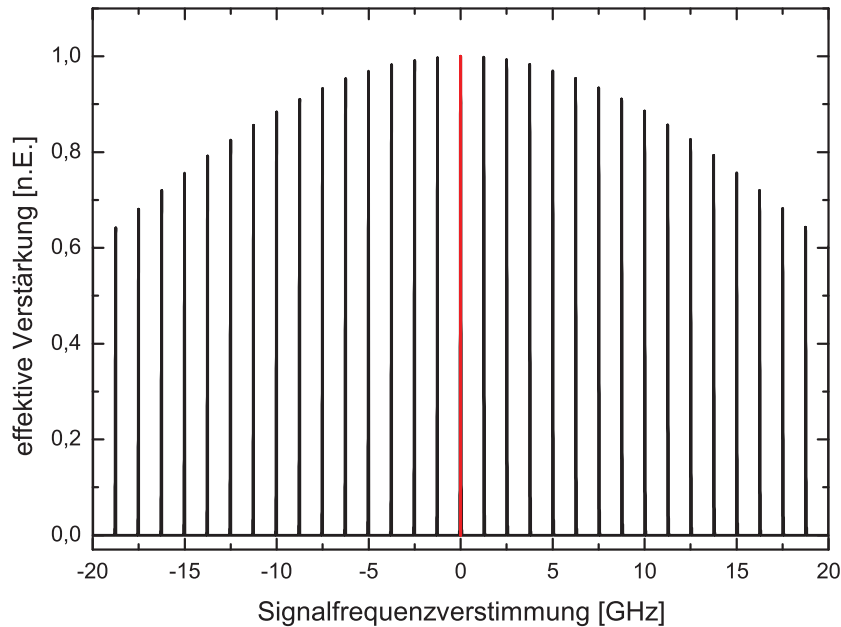


Abbildung 3.10: Diese Abbildung zeigt die effektive Verstärkung als Funktion der Signalfrequenz. Die effektive Verstärkung wird bei der Signalfrequenz, die der Signalfrequenz mit der größten parametrischen Verstärkung am nächsten liegt, maximal (rot dargestellt). Die Schwellpumpleistung ist für diese Mode am kleinsten und der OPO oszilliert auf dieser Frequenz.

der OPO oszilliert auf dieser Frequenz. Eine Variation der verschiedenen OPO Parameter, z.B. Kristalltemperatur, Resonatorlänge oder Pumpfrequenz, resultiert in einer Änderung der Signalfrequenz bei maximaler effektiver Verstärkung (minimale Pumpschwelle) und führt somit zu einer Durchstimmung der OPO Strahlung.

Änderung der Kristalltemperatur

Durch eine Variation der Kristalltemperatur werden dessen Brechungsindizes für die wechselwirkenden Wellen (Pumpe, Signal und Idler) geändert. Dies hat die beiden folgenden Auswirkungen:

1. Die optische Länge des Resonators für die Signalwellenlänge ändert sich, was eine Verschiebung der Resonatormoden entlang der Frequenzachse bewirkt. Dieser Effekt kann im Allgemeinen vernachlässigt werden, da die Frequenzänderung der Resonatormoden viel kleiner als die Verschiebung des Verstärkungsmaximums ist.

2. Die Signalwellenlänge mit der Phasenfehlanpassung Null ($\Delta k = 0$) ändert sich, was zu einer Verschiebung des parametrischen Verstärkungsmaximums entlang der Frequenzachse führt (siehe Diagramm 3.9A).

Bei einer Temperaturänderung des Kristalls oszilliert der OPO zunächst weiterhin auf der ursprünglichen Resonatormode. Durch eine größere Änderung der Temperatur verschiebt sich das Verstärkungsmaximum näher zur angrenzenden Resonatormode und führt zu einem Modensprung über einen FSR (hier: 1.25 GHz) auf die nächste Resonatormode. Wird die Pumpfrequenz dabei konstant gehalten, springt die Idlerfrequenz um den gleichen Betrag (1.25 GHz) in die entgegengesetzte Richtung. Dieser Vorgang wird als *coarse tuning* bezeichnet. Der minimale Abstand zwischen den einzelnen Sprüngen ist durch den FSR des OPOs vorgegeben. Typischerweise kann diese Art des Durchstimmens eines OPOs über mehrere hundert Nanometer durchgeführt werden.

Änderung der Resonatorlänge

Durch die Änderung der Resonatorlänge anstelle einer Verschiebung der parametrischen Verstärkung können die erzeugten Frequenzen durch eine Variation der optischen Länge des Resonators durchgestimmt werden. Diese Längenänderung ist gleichbedeutend mit einer Verschiebung der Resonatormoden relativ zur parametrischen Verstärkungskurve. Der OPO oszilliert weiter auf der Mode, die sich am nächsten zum Verstärkungsmaximum befindet, während die Frequenz dieser Mode kontinuierlich durchgestimmt wird. Die Idlerfrequenz wird ebenfalls (allerdings in der entgegengesetzten Richtung) kontinuierlich verschoben. Schließlich erreicht eine angrenzende, nicht-oszillierende Resonatormode das Verstärkungsmaximum und erzwingt dadurch einen Modensprung des OPOs zurück zu seiner ursprünglichen Signal- bzw. Idlerfrequenz. Bei weiterer Änderung der Resonatorlänge wiederholt sich dieser Vorgang periodisch, wobei der maximale kontinuierlich mögliche Durchstimmbereich der Signal- und Idlerfrequenzen durch den FSR des OPO Resonators vorgegeben ist. Im Experiment wird die Längenänderung durch einen auf einem Piezotubus montierten Resonatorspiegel durchgeführt.

Synchronisation der Kristalltemperatur und der Resonatorlänge

Eine Kombination aus der relativ groben Durchstimmung über die Kristalltemperatur und des feinen Verfahrens über die Resonatorlänge liefert theoretisch eine Möglichkeit, den OPO über seinen kompletten Durchstimmbereich abstimmbaar zu machen. Allerdings ist es sehr schwierig, ein geeignetes Kontrollsystem für die Kristalltemperatur und die Resonatorlänge zu realisieren [76]. Außerdem verlangen verschiedene Anwendungen nach einem kontinuierlichen, modensprungfreien Durchstimmbereich, der mehrere FSRs des

OPOs abdeckt (typischerweise mehrere zehn GHz). Diese Durchstimmung muss zusätzlich innerhalb einer einzelnen Messung durchführbar sein. Um diese beiden Voraussetzungen gemeinsam zu gewährleisten, müssen die beiden Parameter, Kristalltemperatur und Resonatorlänge, miteinander synchronisiert sein. Eine solche Synchronisation stellt allerdings noch eine weit schwierigere Aufgabe dar, als die beiden Parameter einzeln zu kontrollieren [77].

Änderung der Pumpfrequenz

Die größten bisher erzielten Durchstimmungsbereiche für cw-OPOs wurden alle durch kontinuierliche Änderung der Pumpfrequenzen erreicht [78,79]. Bei einer Änderung der Pumpfrequenz um $\Delta\omega_3$, verschiebt sich das Verstärkungsmaximum um eine Differenzfrequenz Ω_1 zu einer neuen Signalfrequenz, wobei $\Delta\omega_3$ und Ω_1 gewöhnlich das gleiche Vorzeichen, aber unterschiedliche Beträge aufweisen. Im Unterschied zu den beiden bisher genannten Durchstimmverfahren erlaubt die Energieerhaltung, dass die Signal- und Idlerfrequenzen um verschiedene Beträge ($\Delta\omega_1$ und $\Delta\omega_2$) durchgestimmt werden können, solange $\Delta\omega_3 = \Delta\omega_1 + \Delta\omega_2$ erfüllt ist.

Genau wie bei der Temperaturdurchstimmung oszilliert die Signalwelle auf der Resonatormode, die am nächsten beim Maximum der parametrischen Verstärkung liegt. Dadurch verschiebt sich die Idlerfrequenz kontinuierlich mit der Pumpfrequenz, bis die Änderung der parametrischen Verstärkung einen Modensprung der Signalfrequenz (entweder nach oben oder nach unten) erzwingt. Für ein vorgegebenes OPO System kann die Änderung des Verstärkungsmaximums $\Delta\omega_1$ in Abhängigkeit der Pumpfrequenzverschiebung $\Delta\omega_3$ berechnet werden. Abhängig von diesem Wert können dabei drei unterschiedliche Durchstimmverhalten charakterisiert werden:

$$\Delta\omega_1(\Delta\omega_3) > \Delta\omega_3$$

Ist die Verschiebung des Verstärkungsmaximums $\Delta\omega_1(\Delta\omega_3)$ größer als die Pumpfrequenzänderung $\Delta\omega_3$, so erfährt die Signalwelle einen Modensprung, bevor die Idlerfrequenz über einen Bereich durchgestimmt werden kann, der dem FSR des Resonators für die Signalwelle entspricht. Es kann hierbei keine komplette Abdeckung des Durchstimmungsbereichs mit der Idler erreicht werden, da periodische Modensprünge der Signalwelle durch die Änderung der Pumpfrequenz hervorgerufen werden.

$\Delta\omega_1(\Delta\omega_3) < \Delta\omega_3$ und gleiches Vorzeichen

Wenn das Verstärkungsmaximum $\Delta\omega_1(\Delta\omega_3)$ weniger verschoben wird als die Pumpfrequenz, aber in der gleichen Richtung, überlappen die zu den verschiedenen Signalmoden korrespondierenden Bereiche kontinuierlicher Idlerdurchstimmung. Hierbei kann eine komplette Abdeckung der Idlerfrequenzen erreicht werden, allerdings unterbrochen durch periodisch auftretende Modensprünge. Diese Modensprünge können bei manchen Anwendungen Probleme darstellen.

 $\Delta\omega_1(\Delta\omega_3) < \Delta\omega_3$ und unterschiedliches Vorzeichen

In manchen Fällen kann eine Erhöhung der Pumpfrequenz eine Verschiebung des Verstärkungsmaximums zu kleineren Signalfrequenzen bewirken. Dies wird auch als *retracing* bezeichnet. Hierbei steigt die Idlerfrequenz monoton mit steigender Pumpfrequenz, wobei kontinuierliche Durchstimmbereiche periodisch durch Modensprünge unterbrochen werden. Der maximale Bereich kontinuierlicher Durchstimmbarkeit der Idlerfrequenz ist gegeben durch das Verhältnis aus der Verschiebung des Verstärkungsmaximums zur Pumpfrequenzänderung ($\text{FSR} \times \frac{\Delta\omega_3}{\Delta\omega_1(\Delta\omega_3)}$). Es kann hierbei keine komplette Frequenzdurchstimmung erzielt werden.

In der Praxis hat sich keines der bisher genannten Verfahren bewährt. Deshalb wird auf frequenzselektive Bauelemente innerhalb des OPO Resonators wie z.B. Etalons zurückgegriffen. Dadurch ist der Schritt, zwei der OPO Parameter miteinander zu synchronisieren, überflüssig. Dieses Verfahren der Wellenlängenabstimmung wird in diesem Abschnitt genauer beschrieben.

Frequenzabstimmung mit resonatorinternem optischen Element

Ist das Etalon entsprechend beschichtet und besitzt es einen viel größeren FSR als der OPO Resonator, ruft es frequenzselektive Verluste bei den longitudinalen Moden des Resonators hervor [80]. Der OPO oszilliert somit auf der am nächsten zum Verstärkungsmaximum liegenden Resonatormode bei gleichzeitig großer Finesse (Abbildung 3.11).

Um das Verhalten bei einer Feinabstimmung eines OPOs mit einem Etalon vorherzusagen, muss zunächst berechnet werden, wie weit das parametrische Verstärkungsmaximum verschoben werden kann, bevor es zu einem Modensprung des OPOs kommt. Es wird angenommen, dass das Etalon verwendet wird, um eine größtmögliche Stabilität der Signalfrequenz des OPOs gegenüber Verschiebungen der parametrischen Verstärkung (z.B. durch Ändern der Pumpfrequenz) zu erzielen. Weiterhin wird angenommen, dass anfänglich die Frequenz des parametrischen Verstärkungsmaximums ω_1 übereinstimmt mit der

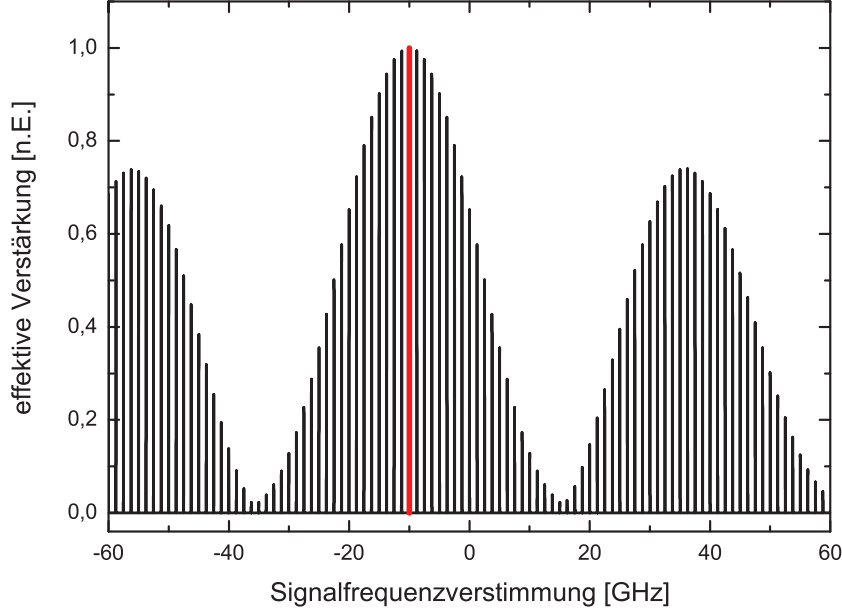


Abbildung 3.11: Diese Abbildung zeigt die effektive Verstärkung als Funktion der Signalfrequenz mit einem resonatorinternen Etalon. Das Etalon besitzt in diesem Beispiel einen FSR von 48 GHz. Die effektive Verstärkung wird bei der Signalmode, die der Signalfrequenz mit der größten parametrischen Verstärkung am nächsten liegt, maximal (rot dargestellt).

Resonatormode bei einem Transmissionsmaximum des Etalons mit der Frequenz ω_1^* . Die Bedingung für maximale Modenstabilität des OPOs ist, dass die Pumpschwelle bei einer bestimmten Signalfrequenz immer kleiner als die der benachbarten Moden ist, selbst wenn das parametrische Verstärkungsmaximum um mehr als die Hälfte des FSR des Etalons verschoben wird. Die Pumpintensität an der Schwelle bei einer Frequenz ω_1 beträgt:

$$I_{3,th} = A \cdot (\alpha_1 + \alpha_{etalon}(\omega_1)) \cdot \text{sinc}^{-2} \left(\frac{\Delta k L_C}{2} \right). \quad (3.21)$$

Faktor A ist unabhängig von der Signalfrequenz (siehe Abschnitt 3.2.1, Gleichung (3.17)). Im zweiten Faktor beschreibt α_1 die Verluste des OPO Resonators ohne Etalon, $\alpha_{etalon}(\omega_1)$ die zusätzlich auftretenden, frequenzselektiven Verluste durch das Etalon. Wird die Frequenz ω_1 des Transmissionsmaximums des Etalons um die Frequenz $\Delta\omega_1 = \omega_1 - \omega_1^*$ verstimmt, ergeben sich die Transmissionsverluste zu [81]:

$$\alpha_{etalon}(\omega_1) = \frac{2R(1 - \cos(\Delta\omega_1/\text{FSR}_{etalon}))}{1 + R^2 - 2R\cos(\Delta\omega_1/\text{FSR}_{etalon})}. \quad (3.22)$$

Der Faktor R beschreibt die Reflektivität der Etalonbeschichtung. Die maximale Stabilität der OPO Signalmode gegenüber einer Verstimmung der parametrischen Verstärkung kann folgendermaßen formuliert werden:

$$I_{3,th}(\omega_1^*) < I_{3,th}(\omega_1^* \pm 2\pi \cdot \text{FSR}_{OPO}) \quad (3.23a)$$

$$\alpha_1 \cdot \text{sinc}^{-2} \left(\frac{\Delta k(\omega_1^*) L_C}{2} \right) < (\alpha_1 + \alpha_{etalon}(\omega_1^* \pm 2\pi \cdot \text{FSR}_{OPO})) \cdot \text{sinc}^{-2} \left(\frac{\Delta k(\omega_1^* \pm 2\pi \cdot \text{FSR}_{OPO}) L_C}{2} \right). \quad (3.23b)$$

Diese Bedingung muss für alle Werte der Frequenz des Verstärkungsmaximums ω_1 im Bereich von $(\omega_1^* - \pi \cdot \text{FSR}_{etalon})$ bis $(\omega_1^* + \pi \cdot \text{FSR}_{etalon})$ erfüllt sein. Um die Gleichungen mit gemessenen Werten aus dem Experiment vergleichen zu können, müssen die sinc^{-2} -Funktionen bei ω_1^* und $(\omega_1^* \pm 2\pi \cdot \text{FSR}_{OPO})$ für jeden Wert von ω_1 berechnet werden.

Unter der Annahme, dass die vorher gezeigten Bedingungen erfüllt sind, kann die phasenangepasste Signalfrequenz ω_1 über einen kompletten FSR des Etalons verschoben werden, bevor die Signalfrequenz des OPO auf den nächsten Resonatormode springt. Dieser Resonatormode stellt ein benachbartes Transmissionsmaximum des Etalons dar. Wird das Verstärkungsmaximum durch eine Änderung der Pumpfrequenz ω_3 verschoben, dann lautet die Bedingung für eine maximale Pumpfrequenzänderung $\Delta\omega_3$ ohne auftretende Modensprünge der Signalwelle folgendermaßen:

$$2\pi \cdot \text{FSR}_{etalon} = \frac{d\omega_1}{d\omega_3} \cdot \Delta\omega_3. \quad (3.24)$$

Der Quotient $\frac{d\omega_1}{d\omega_3}$ ist die Rate, mit der sich die phasenangepasste Signalfrequenz mit der Pumpfrequenz ändert. Der Vorteil, dass ein OPO mit einem resonatorinternem Etalon weniger empfindlich auf Änderungen der parametrischen Verstärkung reagiert, kann ausgenutzt werden, um eine große kontinuierliche Durchstimmbarkeit der nicht-resonanten Idlerwelle zu erzielen.

In diesem Abschnitt wurden verschiedene Verfahren vorgestellt im Hinblick auf ihren Nutzen bezüglich einer kontinuierlichen Frequenzdurchstimmung eines cw-SRO. Eine grobe Wellenlängenänderung von OPOs mit einem periodisch gepolten nichtlinearen Medium kann mit Hilfe der Parameter Polungsperiode, Kristalltemperatur und Pumpwellenlänge

erreicht werden. Durch eine Änderung dieser Einstellungen können die phasenangepasste Signal- und Idlerwellenlänge um mehrere hundert Nanometer verstimmt werden. Für eine feine Abstimmung der OPO Frequenzen ist nicht nur die Phasenanpassung relevant, sondern auch die Resonatormoden des OPOs. Wird ein Etalon als frequenzselektives Bauelement in den Resonator eingebaut und außerdem ein für die nicht-resonante Pumpwelle des SRO kontinuierlich durchstimmbarer Pumplaser verwendet, so stellt dies die am besten geeignete Methode dar.

Kapitel 4

Charakterisierung des MOPA-Systems

4.1 Aufbau und Eigenschaften von Diodenlasern

Bereits kurz nach der Realisierung des ersten Lasers durch Maiman [82] stellten Hall et. al. [22] auch bei Halbleitermaterialien Lasertätigkeit fest. Halbleiterlaser finden zum Beispiel in der digitalen Datenspeicherung und in Laserdruckern Anwendung und sind daher von großem wirtschaftlichen Interesse. Auch in der Telekommunikation, bei medizinischen Anwendungen oder bei der Materialbearbeitung kommen sie zum Einsatz [83]. Im Vergleich zu anderen Lasern zeichnen sich Halbleiterlaser durch ihre kleinen Abmessungen im Mikro- bis Millimeterbereich aus. Die Halbleitertechnologie ermöglicht die Massenproduktion der Halbleiterlaser, wodurch die Herstellung sehr kostengünstig wird. Außerdem können sie direkt elektrisch angeregt werden und besitzen dadurch einen hohen Wirkungsgrad von über 50 %.

Die Anregung des Halbleiterlasers kann dabei auf unterschiedliche Weisen erfolgen. Bei den weit verbreiteten Diodenlasern erfolgt die Anregung elektrisch durch eine Ladungsträgerinjektion in eine p-n-Grenzschicht. Demgegenüber steht die Möglichkeit einer optischen Anregung des Halbleiterlasers durch optisches Pumpen oder den Beschuss mit hochenergetischen Elektronen [83]. Man unterscheidet zwischen Kantenemittern und *Vertical-external-cavity semiconductor Laser* (VECSEL) [84]. Beim Kantenemitter wird die Strahlung an einer oder zwei Kanten abgestrahlt, während bei VECSEL das Licht senkrecht zur Ebene des Halbleiterchips emittiert wird. Da in dieser Arbeit ausschließlich Kantenemitter verwendet wurden, werden im Folgenden die Betrachtungen auf diese Laser beschränkt. Diodenlaser können über den Anregungsstrom mit Frequenzen im GHz-Bereich direkt moduliert werden, was eine Voraussetzung für die Übertragung großer Datenraten über Glasfasern darstellt. Außerdem besitzen Diodenlaser Wellenleiter, die direkt mit Glasfasern zur optischen Nachrichtentechnik gekoppelt werden können. Sie lassen sich wegen

ihrer mit Si-Schaltkreisen vergleichbaren Technologie einfach mit elektronischen Komponenten und Schaltungen, sowie anderen Elementen kombinieren [85]. In dieser Arbeit wurden ausschließlich elektrisch angeregte Halbleiterlaser verwendet und die theoretischen Betrachtungen werden daher auf dieses Gebiet beschränkt.

In den folgenden Abschnitten werden die physikalischen Grundlagen und Eigenschaften dieser Laser vorgestellt. Genauere Betrachtungen finden sich in den Publikationen von F. K. Kneubühl [80], R. Diehl [86] und D. Woll [87].

4.1.1 Halbleiterlaser als Quelle von Laserstrahlung

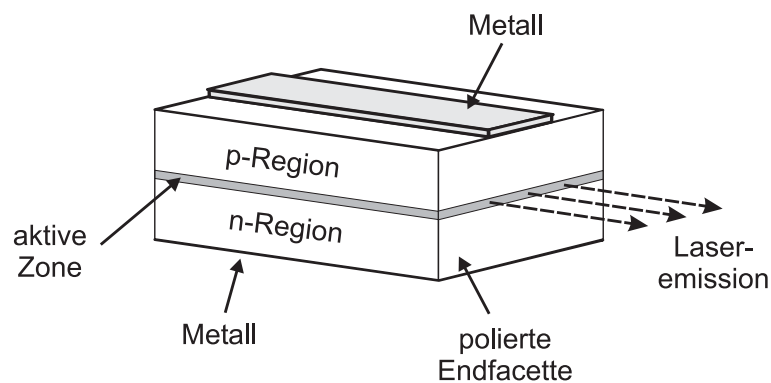


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau eines Hochleistungs-Diodenlasers.

Das optische Verstärkungsmedium eines Halbleiterlasers ist der p-n-Übergang einer Halbleiterdiode. Die für den Laserbetrieb notwendige Besetzungsinversion zwischen zwei Energiezuständen wird hierbei zwischen Elektronen im Leitungs- und Löchern im Valenzband hergestellt. Die Strahlung wird durch eine stimulierte Rekombination von Ladungsträgern verstärkt (siehe Abschnitt 4.1.2). Abbildung 4.1 zeigt den prinzipiellen Aufbau eines Diodenlasers. Der Laserresonator besteht aus den beiden planparallelen Endflächen des Halbleiterchips. Eine dieser Endfacetten ist hochreflektierend beschichtet, während die andere Fläche als Auskoppelspiegel dient und eine Reflektivität zwischen 10 % und 30 % aufweist. Zwischen den beiden Facetten bewegt sich die emittierte Strahlung in einem durch die vertikalen und lateralen Strukturen des Halbleiters vorgegebenen Wellenleiter. Durch die Wahl eines geeigneten Halbleitermaterials kann jede Wellenlänge im Bereich zwischen 300 nm und 4700 nm mit Hochleistungsdiodenlasern erschlossen werden [86,88]. Allerdings ergeben sich hierbei Einschränkungen bezüglich einer kontinuierlichen Durchstimmung der Wellenlänge gegenüber dem Einsatz von OPOs.

Als Halbleitermaterialien werden Verbindungen aus Elementen der dritten und fünften Gruppe des Periodensystems eingesetzt, wie z.B. GaAs, GaAlAs oder InGaAsP. In der

Regel handelt es sich bei solchen Verbindungen aus unterschiedlichen Hauptgruppen um direkte Halbleiter. Im $\vec{k}$ -Raum liegt bei einem direkten Halbleiter das Minimum des Leitungsbandes direkt über dem Maximum des Valenzbandes [89]. Dadurch ist die Emission von Laserstrahlung ohne zusätzliche Wechselwirkung mit Phononen möglich. Bei Silizium handelt es sich z.B. um einen indirekten Halbleiter. Silizium als Lasermaterial würde eine einfache Integration des Diodenlasers in elektrische Schaltkreise ermöglichen. Allerdings ist bei indirekten Halbleitern das Minimum des Leitungsbandes gegenüber dem Maximum des Valenzbandes verschoben und eine Anregung durch Photonen reicht nicht aus, um eine Emission von Laserstrahlung zu gewährleisten. Es ist ein zusätzlicher Impuls nötig, der durch ein Phonon geliefert wird [90]. Dies reduziert jedoch drastisch die Effizienz. Die Übergangswahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination ist um ca. drei Größenordnungen geringer als bei einem direkten Halbleiter [91]. Die während dieser Arbeit verwendeten Dioden waren alle aus InGaAs gefertigt, mit typischen Emissionswellenlängen zwischen 900 nm und 1000 nm.

4.1.2 Vertikale Struktur des p-n-Übergangs

Die Schwelle für eine Laseroszillation wird erreicht, wenn die Verstärkung durch stimulierte Emission gerade die Verluste durch die Spiegel und den Wellenleiter ausgleicht. Hierfür wird eine hohe Ladungsträgerdichte im p-n-Übergang benötigt. Die in diesem und im folgenden Abschnitt beschriebenen Verfahren zur Einengung des Aufenthaltsorts der Ladungsträger ermöglichen eine hohe Ladungsträgerdichte bei vergleichsweise geringem Injektionsstrom.

Der Schwellenstrom ist der Strom, bei der Lasertätigkeit einsetzt und das Spektrum der Spontanemission in ein schmales Spektrum kondensiert [92]. Oberhalb der Schwelle ist die Strahlung wesentlich stärker räumlich gerichtet. Die Verringerung des Schwellenstroms ist Voraussetzung für einen effizienten Betrieb von Diodenlasern. Daher wurden verschiedene Verfahren zur Erhöhung der Ladungsträgerkonzentration innerhalb der aktiven Zone entwickelt. In vertikaler Richtung der Schichtenabfolge wird die Rekombination der Ladungsträger auf eine schmale intrinsische Schicht zwischen dem p- und n-dotierten Bereich eingeschränkt (*carrier confinement* [93]). Dadurch wird ein besserer Überlapp zwischen Rekombinationsgebiet und Strahlungsfeld erreicht, was zu einer Erhöhung der Ladungsträgerdichte in der aktiven Zone führt.

Wird ein p-dotierter Halbleiter mit einem n-dotierten Halbleiter kontaktiert, bildet sich ein Diffusionsstrom von Elektronen aus dem n-dotierten in den p-dotierten Bereich. Umgekehrt diffundieren Löcher vom p-dotierten in den n-dotierten Bereich. Ohne eine äußere Potentialdifferenz führt diese Diffusion der Ladungsträger zu einer Angleichung der Ferminiveaus der unterschiedlich dotierten Halbleiter. Dadurch bildet sich ein gemeinsames

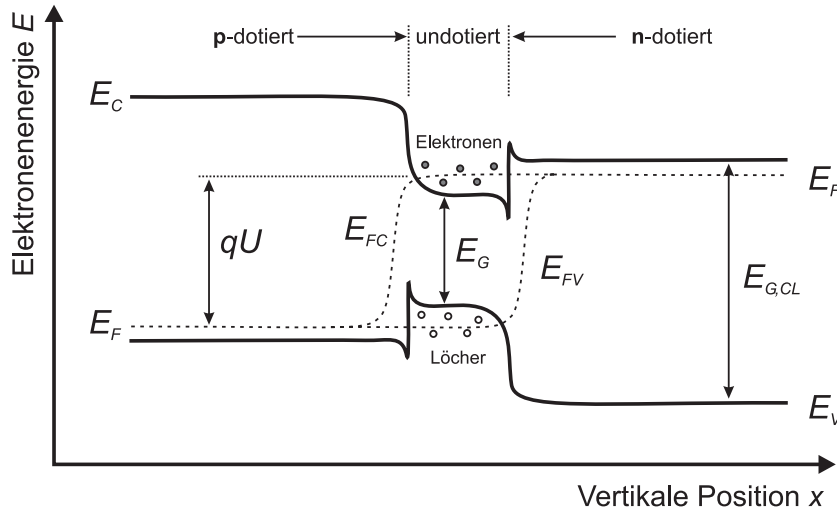


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau einer Doppelheterostruktur eines p-i-n-Übergangs bei Spannung in Vorwärtsrichtung. Die Kanten des Leitungs- (E_C) sowie des Valenzbandes (E_V) sind als durchgezogene Linien gezeichnet. Das Fermi-Niveau E_F spaltet in der undotierten Zone in die beiden quasi-Fermi-Niveaus E_{FC} und E_{FV} auf (gestrichelt dargestellt). Da die quasi-Fermi-Niveaus in der undotierten Zone innerhalb der Bänder liegen, kann eine Besetzungsinversion erzielt werden [93].

Ferminiveau E_F aus [92].

Die Einschränkung der Ladungsträger auf einen kleinen Bereich in vertikaler Richtung, d.h. senkrecht zum p-n-Übergang, wird durch eine Doppelheterostruktur erreicht (siehe Abbildung 4.2). Bei einer Doppelheterostruktur befindet sich zwischen einem p-dotierten und einem n-dotierten Material ein undotiertes (intrinsisch) Medium mit kleinerer Bandlücke $E_G < E_{G,CL}$ [94]. Dadurch bildet sich eine Potentialbarriere sowohl für die Elektronen als auch für die Löcher, was zu einer Erhöhung der Ladungsträgerkonzentration in der undotierten Schicht führt. Typischerweise hat dieser Bereich eine Ausdehnung von $1 \mu\text{m}$. Das undotierte Medium wirkt außerdem als optischer Wellenleiter, da die aktive Zone in der Mitte der Struktur einen höheren Brechungsindex besitzt als die dotierten Bereiche.

Die optische Verstärkung in Diodenlasern wird durch die stimulierte Rekombination von Elektronen und Löchern im p-n-Übergang bei Anlegen einer Spannung in Vorwärtsrichtung geliefert. Durch die Vorwärtsspannung wird zum einen die Potentialbarriere verringert und zum anderen das Fermi-Niveau E_F in zwei Quasi-Fermi-Niveaus E_{FC} und E_{FV} getrennt. Liegen die Quasi-Fermi-Niveaus innerhalb der Bänder, so kann eine Besetzungsinversion erreicht werden. Es ergibt sich ein laseraktiver Bereich, der optische Strahlung durch stimulierte Emission verstärkt. Eine Verstärkung von Strahlung der Wellenlänge λ findet nur statt, wenn deren Photonenenergie $\frac{hc}{\lambda}$ größer als die Energie der Bandlücke des Halbleitermaterials und gleichzeitig kleiner als die Energiedifferenz der beiden Quasi-

Fermi-Niveaus ist. Es muss also folgende Beziehung gelten [95]:

$$E_{FC} - E_{FV} > \frac{hc}{\lambda} > E_G. \quad (4.1)$$

Hierbei ist E_G die Energie der Bandlücke des intrinsischen Halbleiters, h ist die Plancksche Konstante und c die Lichtgeschwindigkeit.

Bei speziellen Halbleiter-Strukturen liegt die Dicke der aktiven Schicht im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge der Elektronen (≤ 30 nm). Durch diese sogenannten Quantenfilm-Strukturen kann der Schwellenstrom um einen Faktor 2 bis 3 weiter reduziert werden [96, 97]. Die injizierten Ladungsträger erfahren dadurch Quanteneffekte ähnlich wie ein Teilchen in einem Potentialtopf. Die Energiezustände des Valenz- und Leitungsbandes sind quantisiert, d.h. es treten diskrete Zustände auf und die Zustandsdichte wird stufenförmig anstelle des normalerweise parabolischen Verlaufs. Bei gleichbleibender Besetzungsdichte für einen bestimmten Zustand wird die Ladungsträgeranzahl noch weiter verringert. Die so gefertigten Halbleiterlaser zeichnen sich durch eine schwächere Temperaturabhängigkeit des Schwellenstroms aus und sind somit auch für hohe cw-Ausgangsleistungen bei Raumtemperatur von Interesse. Diese Halbleiterlaser erreichen hohe Lebensdauern im Bereich von mehr als 10^5 h [80].

4.1.3 Lateraler Aufbau von Halbleiterlasern

In lateraler Richtung kann der Zufluß externer Ladungsträger auf die aktive Zone konzentriert werden, indem die elektrische Kontaktierung auf diesen Bereich eingeschränkt wird (*current confinement* [93]). Daraus ergibt sich eine gewinngeführte Strahlpropagation (*gain guiding* [98]), die die Laseremission im Grundmode ermöglicht. Außerdem kann die optische Mode durch einen Brechungsindexsprung zwischen dem aktiven Wellenleiter und der Umgebung sowohl in lateraler als auch in vertikaler Richtung eingeschränkt werden (*index guiding* oder *optical confinement* [93]). Allerdings ist diese indexgeführte Diodenlaser-Struktur aufwendiger herzustellen. Aufgrund des geringeren Schwellenstroms, der reduzierten Spontanemission und der höheren Strahlqualität besitzt diese Struktur jedoch einige Vorteile.

Die Strahlungsausbreitung muss auf die aktive Zone, parallel zum p-n-Übergang, begrenzt werden, um zum einen die Schwelle zu minimieren und zum anderen eine gute räumliche Strahlqualität zu gewährleisten. Am einfachsten ist dies zu erreichen, indem die Verstärkung klar räumlich begrenzt wird. Dies kann durch einen speziell geformten metallischen Kontakt realisiert werden (siehe Abbildung 4.1). Dieses Verfahren findet bei Einstreifen-Diodenlasern Anwendung. Die emittierte Strahlung zeichnet sich hierbei durch ihre sehr gute Strahlqualität ($M^2 \leq 1,1$) aus. Durch die geringe räumliche Breite von typischerweise

3 μm , verringert sich die Schwelle, und die emittierte Strahlung ist auf einen transversalen Mode beschränkt.

Bei Breitstreifen-Diodenlasern wird durch eine Verbreiterung der aktiven Zone auf mehrere hundert Mikrometer die maximale Ausgangsleistung erheblich gesteigert. Solche Systeme liefern mehrere Watt an cw-Leistung, allerdings führt die Variation des Brechungsindex mit der Intensität bzw. der Ladungsträgerdichte zu einer Ausbildung von Filamenten. Diese Filamentierung verschlechtert die Strahlqualität des Laserstrahls ($M^2 > 20$) [99]. Die emittierte Strahlung ist außerdem spektral sehr breitbandig. Speziell für den Einsatz in der Frequenzkonversion reduziert die Abnahme der räumlichen und spektralen Leistungsdichte die Konversionseffizienz (siehe Kapitel 3.2.2).

Eine Kombination aus beiden Verfahren wird mit einer trapezförmigen Geometrie der aktiven Zone erreicht (siehe Abbildung 4.7). In einer vorgelagerten Einmoden-Wellenleitersektion wird die optische Leistung zunächst erhöht, so dass die Verstärkung im Trapezbereich gesättigt wird. Durch die Führung des Strahlungsfeldes im Einmoden-Wellenleiter und die Anpassung der lateralen Geometrie an die Aufweitung des Strahlungsfeldes im Trapezbereich wird ein nahezu beugungsbegrenzter Strahl emittiert [92].

Die maximale Ausgangsleistung wird begrenzt durch die optische Zerstörschwelle der Austrittsfläche. Dort herrscht bauartbedingt eine verminderte Inversion und dadurch eine erhöhte Absorption. Dies führt zu einer lokalen Erhöhung der Temperatur und damit zu einer Verringerung der Bandlücke. Dadurch wird die Absorption weiter erhöht und der Prozess beginnt, sich selbst zu verstärken. Ab einer bestimmten Leistungsdichte kommt es zu einer Beschädigung der Austrittsfläche [100]. Bei Einstreifen-Diodenlasern, deren aktive Schicht auf wenige Quadratmikrometer begrenzt ist, tritt dieser Effekt bereits bei wenigen hundert Milliwatt auf.

4.1.4 DFB-Diodenlaser

Wie in den vorherigen Abschnitten bereits beschrieben, lässt sich bei Halbleiterlasern die Emission durch die Ausbildung eines genügend engen aktiven Kanals auf den transversalen Grundmode beschränken. Die longitudinale Modenselektion bereitet dagegen größere Schwierigkeiten [80]. Zur Verbesserung der longitudinalen Modenselektion kann eine Gitterstruktur mit einer Gitterperiode $\Lambda = m\lambda_0/2n_{\text{eff}}$ auf dem laseraktiven Bereich eingeätzt werden. λ_0 ist die Emissionswellenlänge und n_{eff} die dazugehörige effektive Brechzahl der Wellenleiterstruktur. m ist eine ganze Zahl mit $m \geq 1$. Diese periodische Struktur mit wechselnder Brechzahl bildet ein eindimensionales Interferenzgitter bzw. Interferenzfilter (Bragg-Reflektor). Die Reflexionen des Laserlichts an den Gitterfurchen ergeben bei konstruktiver Interferenz eine bevorzugte Wellenlänge. Dies wird als *distributed feedback* (DFB) bezeichnet. Eine destruktive Überlagerung der von den Gitterfurchen reflektierten

Teilwellen mit benachbarten Wellenlängen führt zu deren Unterdrückung. Dadurch findet eine Selektion der bevorzugten Wellenlänge bis hin zum Monomodenzbetrieb derartiger DFB-Laser statt [101].

Typischerweise besitzt die periodische Struktur einen Phasensprung in der Hälfte ihrer kompletten Länge. Die Struktur setzt sich im Grunde aus zwei Bragg-Gittern mit periodischer Änderung des Brechungsindex und periodischer Änderung der internen optischen Verstärkung zusammen [102]. Darin bilden sich mehrere axiale Moden aus, wobei typischerweise eine dieser Moden aufgrund des zuvor erwähnten Phasensprungs die meiste Verstärkung erfährt. Daraus ergibt sich bei DFB-Diodenlasern relativ einfach ein einmodiger Betrieb und ein großer freier Spektralbereich. Die Wellenlänge eines DFB-Diodenlasers ist über die Gitterperiode vorgegeben. Die Gitterperiode und damit die Wellenlänge lässt sich über eine Änderung der Temperatur oder des Diodenstroms variieren. Der große freie Spektralbereich gewährleistet eine weite Wellenlängenabstimmbarkeit über meist mehrere Nanometer ohne auftretende Modensprünge. Die Ausgangsleistungen dieser Diodenlaser liegen bei mehreren Zehn Milliwatt [83].

Mathematisch lässt sich die Abhängigkeit der emittierten Wellenlänge zur angelegten Stromstärke folgendermaßen erklären: Die mögliche Emissionsfrequenz eines Resonators lautet:

$$\nu_m = m \cdot \frac{c}{2nL}. \quad (4.2)$$

m ist eine ganze Zahl. Aufgrund der Dispersion des Materials im Diodenlaser ist der Brechungsindex n des Diodenlasers eine Funktion der Oszillationsfrequenz. Der effektive Brechungsindex n_{eff} ist definiert als:

$$n_{\text{eff}} = n + \nu \cdot \frac{dn}{d\nu}. \quad (4.3)$$

Der Frequenzabstand zweier benachbarter Moden m und $m + 1$ ist:

$$\Delta\nu = \frac{c}{2n_{\text{eff}}L}. \quad (4.4)$$

Der Brechungsindex ist außerdem eine Funktion der Ladungsträgerdichte σ_{th} und der optischen Frequenz ν_{th} an der Schwelle [103] und kann geschrieben werden als:

$$n = n_0 + \frac{\partial n}{\partial \nu}(\nu - \nu_{\text{th}}) + \frac{\partial n}{\partial \sigma}(\sigma - \sigma_{\text{th}}). \quad (4.5)$$

σ ist die Ladungsträgerdichte bei der Oszillationsfrequenz und n_0 ist der Brechungsindex des aktiven Materials an der Schwelle.

Die Oszillationsfrequenz an der Schwelle beträgt:

$$\nu_{\text{th}} = m \cdot \frac{c}{2n_0L}. \quad (4.6)$$

Einsetzen der Gleichungen 4.2 und 4.6 in Gleichung 4.5 unter Beachtung von Gleichung 4.3 ergibt eine Beziehung zwischen der Oszillationsfrequenz und der Ladungsträgerdichte und damit des angelegten Stroms [103]:

$$(\nu - \nu_{\text{th}}) = -\frac{\nu_{\text{th}}}{n_{\text{eff}}} \cdot \frac{\partial n}{\partial \sigma} (\sigma - \sigma_{\text{th}}). \quad (4.7)$$

Die Oszillationsfrequenz ist linear proportional zur Ladungsträgerdichte und kann daher bei einem DFB-Diodenlaser durch eine Änderung des Diodenstroms durchgestimmt werden.

4.2 Das MOPA-System

Um Diodenlaser als Pumpquellen für die Frequenzkonversion verwenden zu können, sind hohe Leistungen im Multiwatt-Bereich erforderlich. Um diesen Leistungsbereich zu erschließen, wird die Strahlung aus einem **Master-Oszillator** (MO) in einem trapezförmigen Verstärker (**P**ower-**A**mplifier, PA) verstärkt, wobei die spektralen sowie die räumlichen Eigenschaften der Strahlung erhalten bleiben sollen. Solche Kombinationen von Diodenlaser und Trapez-Verstärker werden daher MOPA-Systeme genannt und liefern mehrere Watt nahezu beugungsbegrenzter und spektral einmodiger Strahlung [104]. Der Einsatz dieser Strahlquellen zur nichtlinearen Frequenzkonversion wurde bereits mehrfach demonstriert [79, 105, 106].

Der größte Vorteil dieser Diodenlaser-Verstärker-Kombinationen gegenüber den oft eingesetzten Diodenlaser-gepumpten Festkörperlasern wie z.B. Nd:YAG- oder Nd:YVO₄-Laser liegt in der weiten Durchstimmbarkeit der Laserwellenlänge. Diodenlaser-gepumpte Festkörperlaser lassen sich kompakt bauen, liefern teilweise noch höhere Ausgangsleistungen, arbeiten allerdings gewöhnlich nur bei bestimmten Wellenlängen. Dies stellt bei einem Einsatz als Pumpquelle zur Durchstimmung eines OPOs einen großen Nachteil dar, da die Durchstimmung nicht über die Pumpwellenlänge erfolgen kann. Dadurch müssen andere Methoden zur Durchstimmung (siehe hierzu auch Kapitel 3.3) verwendet werden. Die Frequenzabstimmung kann zum Beispiel über eine Temperaturänderung des eingesetzten Kristalls durchgeführt werden, was jedoch eine sehr träge Methode darstellt. Bei spektroskopischen Untersuchungen vergrößert sich hierdurch die Messzeit, und es dauert länger, um zu einer anderen Wellenlänge zu wechseln. Dagegen lässt sich die Wellenlänge des in

dieser Arbeit eingesetzten Diodenlasers durch Änderung des Diodenstroms durchstimmen. Dies ermöglicht eine elektronische Durchstimmung eines OPOs.

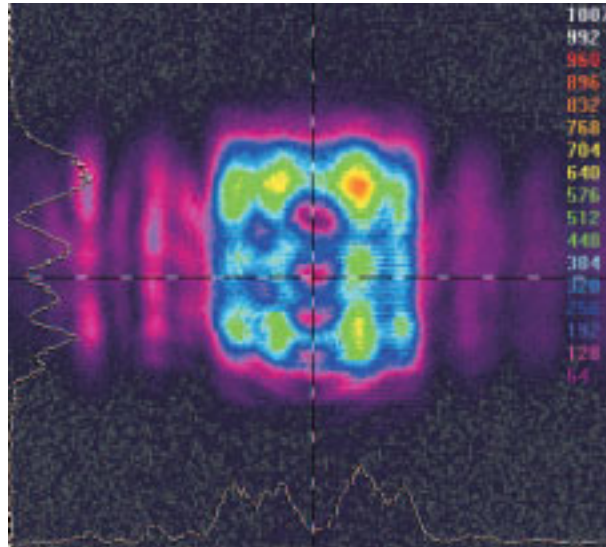


Abbildung 4.3: Mit einer CCD-Kamera aufgenommenes Strahlprofil des MOPA-Systems bei einem DFB-Diodenstrom von 120 mA und einem Trapezverstärkerstrom von 6 A. Die Filamentierung ist deutlich erkennbar. Der quadratische Querschnitt entsteht durch die Kollimierung der MOPA-Strahlung mit einer asphärischen Linse und einer Zylinderlinse.

In Abbildung 4.3 ist das Strahlprofil eines MOPA-Systems dargestellt, das mit dem System aus diesem Experiment identisch ist. Das Strahlprofil wurde mit einer CCD-Kamera aufgenommen, bei einem DFB-Diodenstrom von 120 mA und einer Stromstärke des Trapezverstärkers von 6 A. Die Leistung des MOPA-Systems wurde für die Messung mit Hilfe eines Graufilters auf 20 mW abgeschwächt [46]. Die Filamentierung aufgrund der Brechungsindexabhängigkeit von der Ladungsträgerdichte ist deutlich erkennbar. Die Kollimierung des Strahls erfolgt über eine asphärische Linse und eine Zylinderlinse. Dadurch bildet sich ein annähernd quadratisches Strahlprofil aus.

Auf den folgenden Seiten wird das für die Experimente verwendete Pumplaser-System aus DFB-Diodenlaser und Halbleiter-Verstärker vorgestellt. Um das Potential des Diodenlaser-Verstärker-Systems für die Frequenzkonversion einschätzen zu können, werden zunächst die Leistungskennlinien des verwendeten DFB-Diodenlasers und des Verstärkers diskutiert. Die Wellenlänge und die Leistung des Diodenlaser-Verstärker-Systems müssen ohne Modensprung über eine Variation des Diodenstroms abstimmbare sein. Dadurch kann die Laser- und damit die Pumpwellenlänge des OPOs über den Diodenstrom exakt und kontinuierlich variiert werden. Dies ist die Voraussetzung für die kontinuierliche Durchstimmung der Signal- und Idlerwellenlänge des OPOs. Die Linienbreite der Strahlung stellt

ebenfalls einen wichtigen Parameter für die Frequenzkonversion dar. Deshalb werden in den Absätzen 4.2.5 und 4.2.6 die physikalischen Eigenschaften der Diodenlaser-Verstärker-Kombination dargestellt.

4.2.1 Aufbau des MOPA-Systems

Das Pumplaser-System besteht aus einem zweistufigen Aufbau und ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Ein DFB-Diodenlaser stellt den Master-Oszillator dar. Die Strahlung des DFB-Diodenlasers wird bei einfachem Durchgang durch einen trapezförmigen Halbleiter-Verstärker (Power-Amplifier) verstärkt und liefert Ausgangsleistungen von mehr als 3 W mit sehr guten räumlichen Strahleigenschaften. Der Strahl des DFB-Lasers wird mittels einer Linse (*Thorlabs C230 TM-B*, $f = 4,5 \text{ mm}$, $NA = 0,55$) kollimiert. Der Durchgang der Strahlung durch zwei Isolatoren (*Gsänger, FR 920*) unterdrückt eine Rückkopplung aus dem Trapezverstärker mit einer Gesamtdämpfung von 60 dB. Durch eine weitere Linse (K3) sowie eine Zylinderlinse wird die Strahlung nach dem Trapezverstärker erneut kollimiert. Ein dritter Isolator sorgt für eine Unterdrückung der vom OPO reflektierten Strahlung. Die $\lambda/2$ -Platte dient in Kombination mit dem Eingangspolarisationsstrahlteiler des Isolators zur Abschwächung der in den OPO eingekoppelten Strahlung.

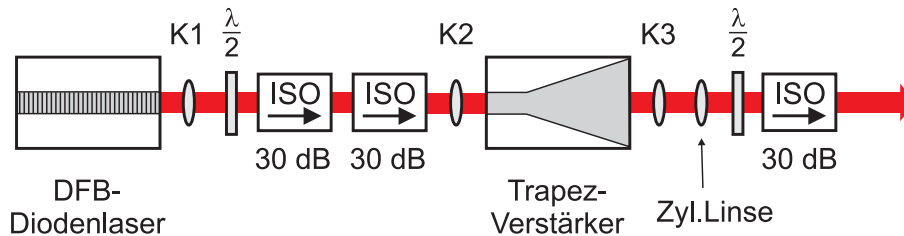


Abbildung 4.4: Experimenteller Aufbau des *Master-Oscillator Power-Amplifier* (MOPA) Systems. Der Strahl des DFB-Diodenlasers wird kollimiert (K1) und über eine weitere Kollimatorlinse (K2) in den Trapezverstärker fokussiert. Zwei Isolatoren (ISO, 60 dB) verhindern hierbei Rückreflexe. Hinter dem Verstärker befindet sich eine weitere Kollimatorlinse (K3), eine Zylinderlinse zur Strahlformung und ein weiterer Isolator (30 dB). Zur Abschwächung der Leistung dient eine $\lambda/2$ -Platte.

4.2.2 Kennlinien des DFB-Diodenlasers

Die Leistungskennlinie in Abbildung 4.5 wurde mit Hilfe eines kalorimetrischen Leistungsmessgeräts (*Melles Griot 13PEM001*) aufgenommen. Die Temperatur des DFB-Lasers wurde mit Hilfe eines Peltierelements und der Temperaturregelung *Thorlabs Temperature Controller TED200* auf 25 °C stabilisiert. Der Schwellenstrom des DFB-Diodenlasers *C2546* liegt bei 46 mA und der differentielle Wirkungsgrad beträgt 0,7 W/A. Die Kennli-

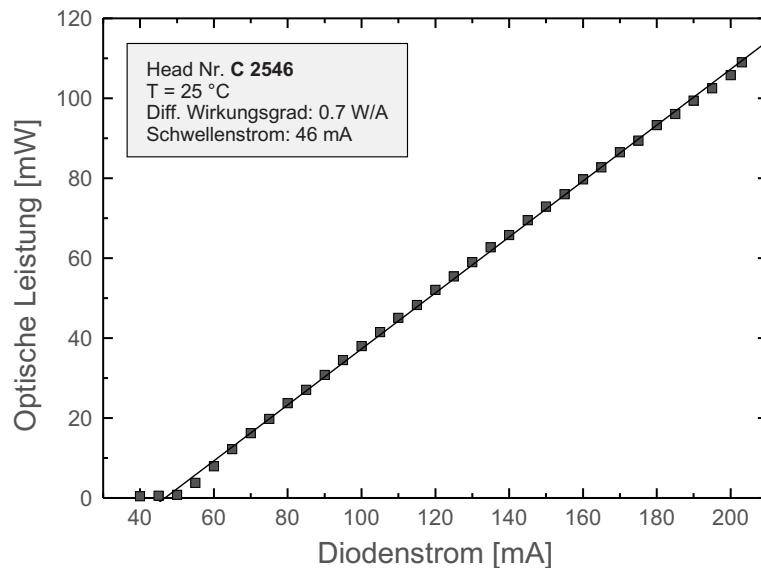


Abbildung 4.5: Leistungskennlinie des DFB-Diodenlasers als Funktion des DFB-Diodenstroms bei einer Temperatur von 25 °C.

nie ist linear, d. h. es tritt keine Sättigung der optischen Ausgangsleistung ein. Weiterhin ist auch kein thermisches *roll-over* zu erkennen. Der DFB-Laser erzeugt bei einem Diodenstrom von 150 mA nach dem Durchgang durch die beiden Isolatoren eine Ausgangsleistung von ca. 50 mW bei einer sehr guten räumlichen Strahlqualität ($M^2 < 1,2$). Die Strahlqualität wurde mit Hilfe eines Strahlanalysesystems (*PC-Beamscope*, Firma Merchantek) aufgezeichnet.

Abbildung 4.6 zeigt die Änderung der DFB-Wellenlänge als Funktion des angelegten Diodenstroms. Durch eine Variation des Diodenstroms zwischen 55 mA und 203 mA lässt sich die DFB-Wellenlänge um 0,29 nm durchstimmen. Dies entspricht einer Änderung um 0,7 GHz/mA. Diese Messung erfolgte bei einer Temperatur des DFB-Diodenlasers von 25 °C. Die Laserwellenlänge wurde über eine Faser in einen optischen Spektrumanalysator mit Doppelgittermonochromator (*ANDO AQ6317B*) eingekoppelt und mit einer Messgenauigkeit von ± 0.01 nm bestimmt.

4.2.3 Aufbau und Eigenschaften des Trapezverstärkers

Durch eine Kollimatorlinse (K2 in Abbildung 4.4) wurde die DFB-Laserstrahlung in einen Trapezverstärker der Firma *FBH* (*Ferdinand-Braun Institut für Höchstfrequenztechnik*)

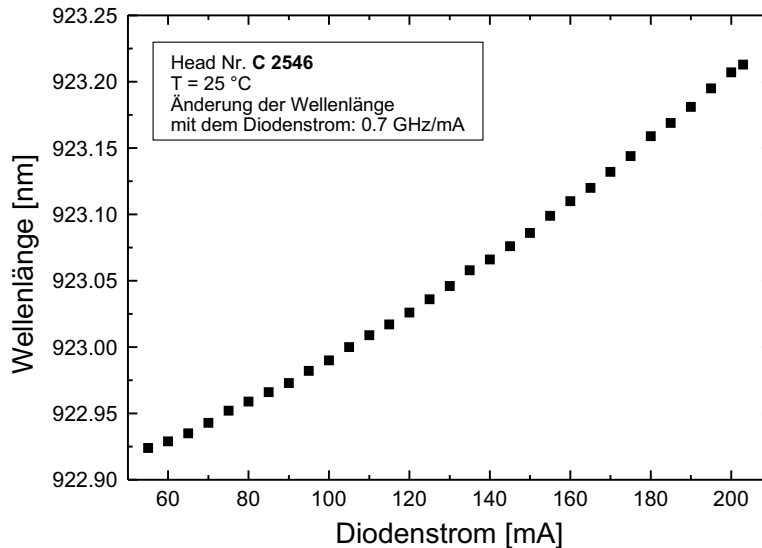


Abbildung 4.6: Änderung der DFB-Wellenlänge als Funktion des DFB-Diodenstroms bei einer Temperatur von 25 °C.

fokussiert. Abbildung 4.7 zeigt eine schematische Darstellung des trapezförmigen Verstärkers. Beide Facetten des Verstärkers sind antireflektierend ($R < 3 \cdot 10^{-4}$) für eine Wellenlänge von 923 nm beschichtet. Der Trapezverstärker besitzt eine Apertur von $200 \mu\text{m}$. Die Länge des Eingangswellenleiters beträgt 0,75 mm und die Gesamtlänge des trapezförmigen Bereichs 2 mm. Der Wellenleiter dient als räumlicher Filter und Vorverstärker der eingestrahlten DFB-Laserstrahlung. Die effiziente Reduktion der Inversion durch die Vorverstärkung des injizierten Lichtfeldes im Wellenleiter und die gute Strahlführung durch die Trapezgeometrie führen dazu, dass die erzeugte spontane Strahlung nur eine geringe Verstärkung erfährt. Dadurch hat die spontane Strahlung einen geringeren Einfluss auf die spektralen Eigenschaften sowie die Leistung der verstärkten DFB-Strahlung [107]. Dies führt zu exzellenten räumlichen Eigenschaften der vom Verstärker abgestrahlten Welle. Ein weiterer Vorteil ist die relativ breite Ausgangsfacette ($200 \mu\text{m}$), welche die Intensität auf der Fläche reduziert und somit die Gefahr einer Beschädigung (*Catastrophical Optical Facet Damage, COFD*) vermindert [23]. Der Anfangsbereich des Wellenleiters weist eine Krümmung von 5° auf, wodurch die Ausbildung eines internen Resonators verhindert wird.

Die Ansteuerung des Verstärkers erfolgt mit Hilfe eines Diodenlaser-Treibers der Firma SDL (*SDL822*). Der Treiber stabilisiert die Temperatur des TA auf 17°C und liefert einen Betriebsstrom von maximal 6 A. Durch eine weitere Linse (K3) wird die vom Verstärker

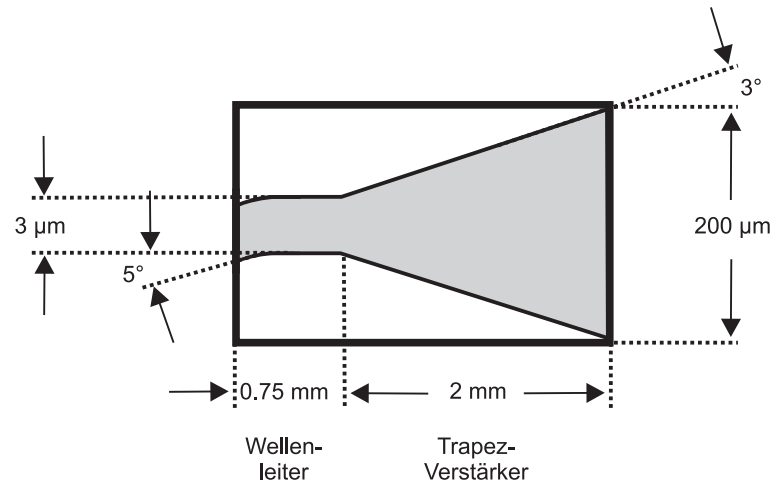


Abbildung 4.7: Schematische Darstellung des Hochleistungs-Diodenlasers mit trapezförmiger Geometrie aus InGaAs. Der Wellenleiter hat eine Länge von $750\ \mu\text{m}$, ist $3\ \mu\text{m}$ breit und weist im Anfangsbereich eine Krümmung von 5° auf. Der trapezförmige Teil des Verstärkers ist 2 mm lang mit einem halben Öffnungswinkel von 3° . Die Apertur beträgt $200\ \mu\text{m}$. Die Kontaktierung bewirkt eine gewinngeführte Strahlpropagation (*gain guiding*) [98].

emittierte Strahlung kollimiert. Eine Zylinderlinse kompensiert den Astigmatismus und eine mögliche Elliptizität der Strahlung. Durch eine $\frac{\lambda}{2}$ -Platte wird die verstärkte Strahlung durch einen weiteren Isolator mit einer Dämpfung von 30 dB und eine sphärische Linse in den OPO eingestrahlt.

4.2.4 Kennlinie des Trapezverstärkers

Die TA-Ausgangsleistung ergibt sich aus zwei verschiedenen Anteilen. Zum einen aus der Leistung der verstärkten Signalstrahlung und zum anderen aus der verstärkten Spontanemission (ASE). Ohne Einstrahlung einer optischen Welle besteht die komplette emittierte Strahlung aus verstärkter Spontanemission. Die spektrale Bandbreite der ASE-Strahlung (typischerweise 10 nm) wird durch die Verstärkungsbandbreite des Halbleiter-Materials und durch mögliche Rückreflektionen an den Facetten limitiert. Ein Verstärker mit minimalen Reflektionen an den Facetten besitzt ein sehr glattes ASE-Spektrum, während bei Reflektionen von mehr als 10^{-4} [107] im Spektrum Strukturen oszillierender Resonatormoden zu sehen sind. Diese Oszillationen erzeugen spektrale Artefakte und reduzieren dadurch den Gewinn der erzeugten Signalstrahlung.

Bei eingestrahelter Leistung konkurrieren die verstärkte Signalleistung und die ASE. Die Leistung der ASE nimmt mit zunehmender Signalleistung ab. Die emittierte Gesamtleistung ergibt sich dann aus der Summe der Signalstrahlung P_S und der spektral breitban-

digen ASE Strahlung P_{AS} [108]:

$$P_T = P_S + P_{AS}. \quad (4.8)$$

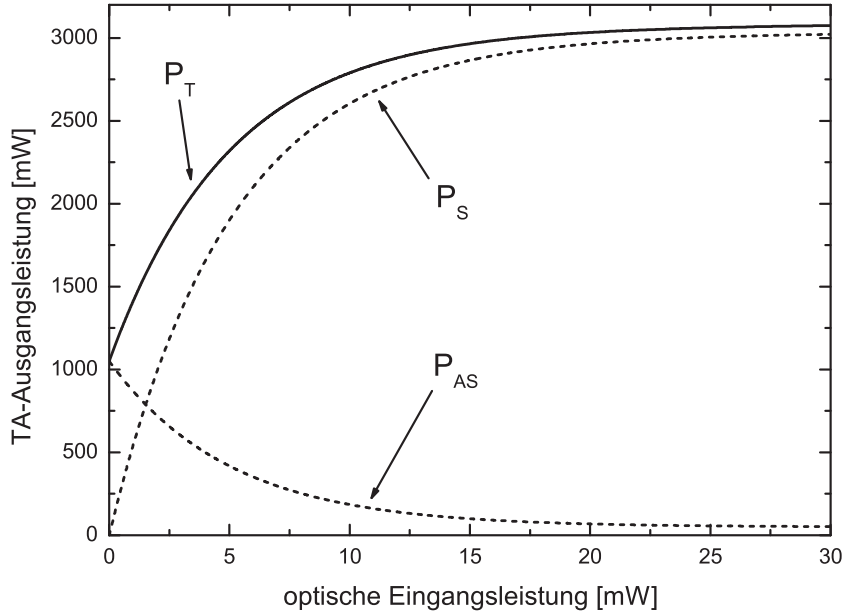


Abbildung 4.8: Ausgangsleistung eines Trapezverstärkers als Funktion der optischen Eingangsleistung [106, 109]. Die berechneten Kurven der Gesamtausgangsleistung P_T , der verstärkten Ausgangsleistung der eingekoppelten Leistung P_S und der Leistung der verstärkten Spontan-Emission P_{AS} sind hier aufgetragen. Die Kurven wurden mit den Gleichungen (4.9) und (4.10) berechnet.

Abbildung 4.8 zeigt exemplarisch berechnete Kurven für die drei verschiedenen Leistungen P_T , P_{AS} und P_S [107, 108]. Das beobachtete Verhalten der vom Trapezverstärker emittierten Strahlung kann durch die folgenden Gleichungen näherungsweise beschrieben werden [109]:

$$P_{AS} = P_{AS}^{noinput} \cdot \exp(-P_{in}/P_{AS}^{sat}) + P_{SE} \quad (4.9)$$

$$P_S = P_S^{max} \cdot (1 - \exp(-P_{in}/P_S^{sat})) + P_{in}. \quad (4.10)$$

Der Faktor $P_{AS}^{noinput}$ in Gleichung (4.9) beschreibt die maximale ASE-Leistung ohne op-

tische Eingangsleistung P_{in} , abzüglich dem Anteil aus spontaner Emission P_{SE} . P_{AS}^{sat} ist die optische Eingangsleistung, die nötig ist, um die ASE um den Faktor $1/e$ zu reduzieren. In Gleichung (4.10) steht P_S^{max} für die maximale Signalleistung des gesättigten Verstärkers. P_S^{sat} ist die optische Eingangsleistung, die zur Sättigung des Verstärkers notwendig ist ($P_S = (1 - e^{-1}) \cdot P_S^{max} \approx 0.63 \cdot P_S^{max}$). P_{in} beschreibt die eingekoppelte optische Leistung.

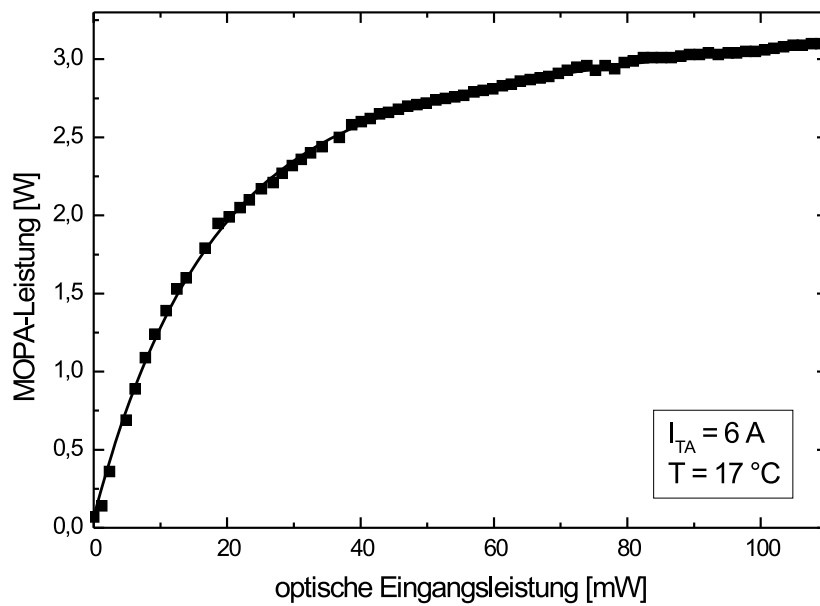


Abbildung 4.9: Leistung des MOPA-Systems in Abhängigkeit von der eingestrahnten Diodenlaserleistung.

In Abbildung 4.9 ist die gemessene Leistungskennlinie des MOPA-Systems als Funktion der eingekoppelten optischen Leistung aus dem DFB-Diodenlaser gezeigt. Die Messwerte wurden mit einem kalorimetrischen Leistungsmessgerät (siehe Abschnitt 4.2.2) aufgenommen. Die Temperatur war 17 °C bei einem Diodenstrom von 6 A. Die gemessenen Werte sind als Punkte dargestellt. Die berechnete Kurve ist durchgezogen eingezeichnet und wurde mit Hilfe der beiden Gleichungen (4.9) und (4.10) an die experimentell ermittelten Werte angepasst. Ohne optische Einkopplung ergibt sich daraus eine emittierte ASE-Leistung des Trapezverstärkers von ungefähr 70 mW. Die tatsächlich erzeugte Gesamtleistung der ASE liegt allerdings weit darüber. Ein Großteil der Strahlung trifft auf die Randbereiche des Trapezverstärkers, da die ASE-Strahlung nicht gerichtet ist. Außerhalb des Trapezbereichs findet jedoch keine Strominjektion und somit auch keine

Verstärkung statt. Darum wird die Strahlung dort absorbiert und in Wärme umgewandelt. Aus Abbildung 4.9 ergibt sich eine maximale emittierte Leistung von mehr als 3,1 W bei einer eingestrahnten optischen Leistung von 109 mW sowie eine Sättigungsleistung von $P_S^{sat} = 17$ mW. Die Eingangsleistung der DFB-Strahlung sollte daher immer größer als 17 mW sein, um das Auftreten von ASE-Strahlung zu vermeiden. Eine Messung mit einem Strahlanalysesystem (*PC-Beamscope*, Firma *Merchantek*) zeigte, dass ein nahezu beugungsbegrenzter Strahl emittiert wird, mit einem M^2 -Wert von kleiner als 1,3. Nach Berücksichtigung der Verluste in der Kollimatorlinse, im Isolator und in der sphärischen Linse stand zum Betrieb des OPOs eine Leistung von knapp 3 W zur Verfügung.

4.2.5 Linienbreite der MOPA-Strahlung

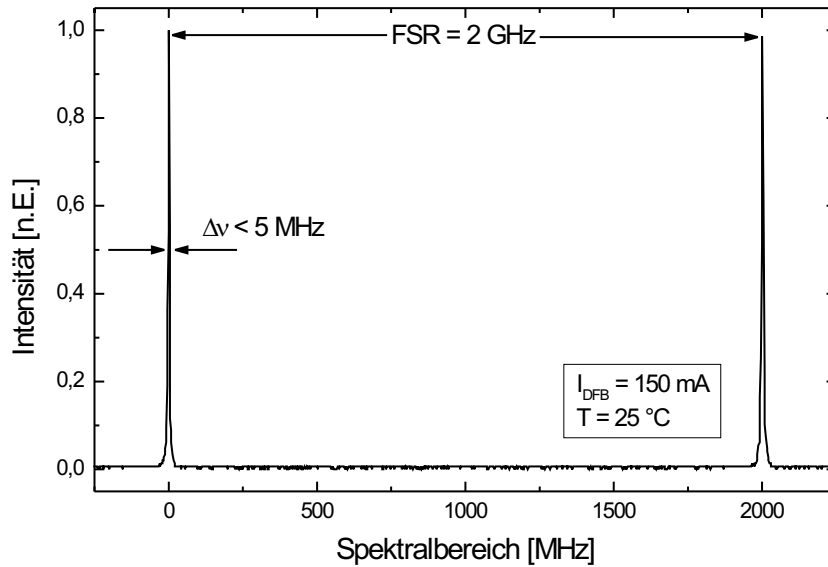


Abbildung 4.10: Linienbreite des MOPA-Systems bei einer Wellenlänge von 923 nm. Das Spektrum zeigt einen einmodigen Betrieb mit einer Bandbreite von weniger als 5 MHz, was dem Auflösungsvermögen des eingesetzten FPIs ($FSR = 2$ GHz, Finesse ca. 400) entspricht.

Da das MOPA-System in dieser Arbeit für die nichtlineare Frequenzkonversion in einem OPO eingesetzt wurde, stellt die Linienbreite einen wichtigen Strahlparameter dar. Das MOPA-System konnte auf einer einzelnen longitudinalen Mode betrieben werden. In Abbildung 4.10 ist das Spektrum des MOPA-Systems bei einer Wellenlänge von 923 nm

dargestellt. Zur Messung dieses Spektrums wurde ein Fabry-Perot-Interferometer (FPI) der Firma *Melles Griot* (13 SAE 026) mit einem freien Spektralbereich (FSR) von 2 GHz und einer Finesse von ca. 400 eingesetzt. Das Spektrum zeigt deutlich den einmodigen Betrieb des Diodenlaser-Verstärker-Aufbaus mit einer Linienbreite von weniger als 5 MHz, was dem Auflösungsvermögen des verwendeten FPIs entspricht.

4.2.6 Kontinuierliche Durchstimmung des MOPA-Systems

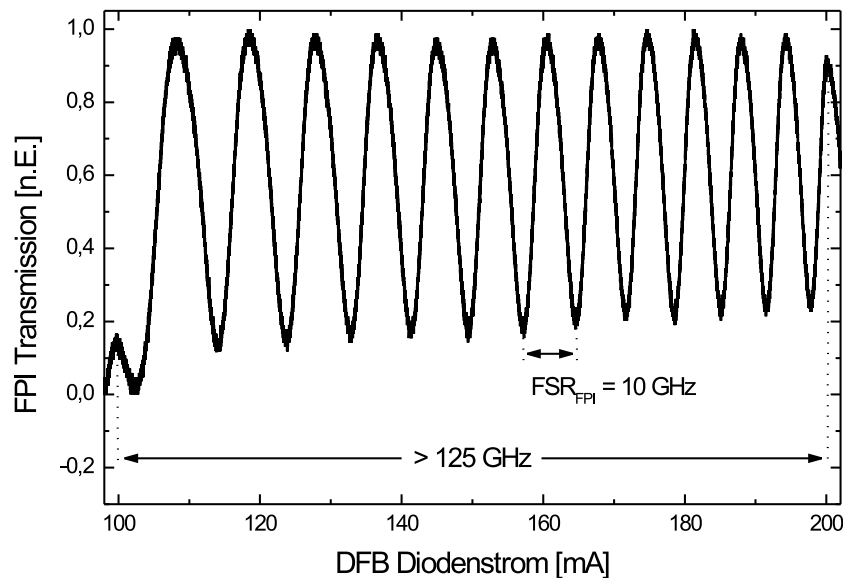


Abbildung 4.11: Kontinuierlicher Durchstimmbereich des MOPA-Systems. Die Leistung der transmittierten MOPA-Strahlung wurde hinter einem FPI ($\text{FSR} = 10 \text{ GHz}$, Finesse ca. 4) aufgezeichnet, während die Wellenlänge des Diodenlasers über eine Diodenstromänderung kontinuierlich durchgestimmt wurde. Es ergab sich ein modensprung-freier kontinuierlicher Durchstimmbereich von mehr als 125 GHz. Der Diodenstrom wurde zwischen 100 mA und 200 mA variiert.

Zur Bestimmung der kontinuierlichen Durchstimmung der Frequenz des MOPA-Systems wurde der Diodenstrom des DFB-Diodenlasers über einen Bereich von 100 mA durchgestimmt. Der gesamte Bereich, über den das Diodenlaser-Verstärker-System kontinuierlich durchgestimmt werden konnte, wurde mit Hilfe eines FPIs mit einer kleinen Finesse von 3,8 und einem freien Spektralbereich von 10 GHz ermittelt. Der Diodenlaserstrom wurde mit einer Frequenz von 20 Hz zwischen 100 mA und 200 mA variiert, was zu einem mo-

densprungfreien, kontinuierlichen Durchstimmbereich des MOPA-Systems von mehr als 125 GHz führte. Die TA-Ausgangsleistung blieb in diesem Diodenstrombereich aufgrund der Gewinnsättigung im TA nahezu konstant. Als Frequenzgenerator kam ein *30 MHz synthesized function generator, Model DS345* der Firma *Stanford Research Systems* zum Einsatz. Das mit einer Silizium-Photodiode detektierte Transmissionssignal des FPIs ist in Abbildung 4.11 gezeigt. Das Transmissionssignal eines FPIs wird durch eine Airy-Funktion beschrieben, deren Maxima einen Abstand eines FSR des FPIs aufweisen. Die nicht-äquidistanten Abstände zwischen den einzelnen Transmissionsmaxima und -minima in Abbildung 4.11 sind vermutlich auf thermische Ursachen aufgrund der Modulation des Diodenstroms zurückzuführen. Durch eine geeignete elektronische Anpassung kann dies allerdings weiter optimiert werden.

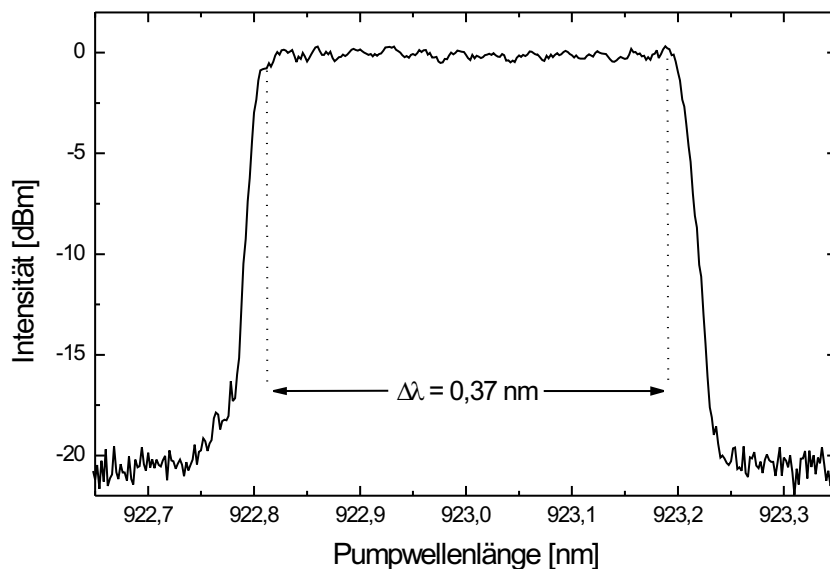


Abbildung 4.12: Kontinuierlicher Durchstimmbereich der Wellenlänge des MOPA-Systems. Die Intensität der MOPA-Strahlung wurde mit Hilfe eines *Optical Spectrum Analyzers* aufgezeichnet und der maximale Wert jeweils gespeichert. Es ergab sich so ein kompletter Wellenlängendurchstimmbereich von 0,37 nm.

Ein Durchstimmbereich von mehr als 125 GHz entspricht bei einer Wellenlänge von 923 nm einem Wellenlängenbereich von über 0,35 nm. Dieser Wert konnte mit einer weiteren Messung verifiziert werden. Dazu wurde die Wellenlänge des MOPA-Systems mit einem optischen Spektrumanalysator (*ANDO AQ6317B*) während der Modulation aufgezeichnet. Das maximale Signal wurde während der Messung jeweils gespeichert. Die daraus

resultierende Messung ist in Abbildung 4.12 dargestellt. Der durchgestimmte Bereich von ungefähr 0,37 nm entspricht im Rahmen der Messgenauigkeit von ± 0.01 nm dem zu erwartenden Ergebnis.

4.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein Diodenlaser-Verstärker-System vorgestellt und im Hinblick auf den Einsatz als Pumpsystem für den in den Experimenten verwendeten OPO vollständig charakterisiert. Als Pumplaser wurde ein zweistufiger Aufbau aus DFB-Diodenlaser und Trapezverstärker eingesetzt. Dieses sogenannte MOPA-System emittiert schmalbandige Strahlung mit einer Bandbreite von kleiner 5 MHz. Bei einer eingestrahnten DFB-Leistung von ca. 50 mW liefert das MOPA-System eine Leistung von mehr als 3 W bei einer Wellenlänge von ungefähr 923 nm. Diese Wellenlänge kann über eine Änderung des DFB-Anregungsstroms um 0,37 nm kontinuierlich variiert werden. Dies entspricht bei einer Zentralwellenlänge von 923 nm einem kontinuierlichen Durchstimmbereich von mehr als 125 GHz. Mit Hilfe dieser Wellenlängenänderung kann der einfach-resonante optisch parametrische Oszillator (siehe Kapitel 5) kontinuierlich durchgestimmt werden. Das MOPA-System eignet sich daher ausgezeichnet als Pumpsystem zur effizienten Frequenzkonversion in einem OPO.

Kapitel 5

Diodenlaser gepumpter cw-SRO

5.1 Experimenteller Aufbau des Diodenlaser gepumpten cw-SRO

Um einen einfach-resonanten Betrieb des cw-OPOs zu gewährleisten, ist ein geeigneter Pumplaser sowie eine geeignete OPO Resonatorkonfiguration von entscheidender Wichtigkeit. Der im Experiment verwendete Aufbau ist in Abbildung 5.1 gezeigt.

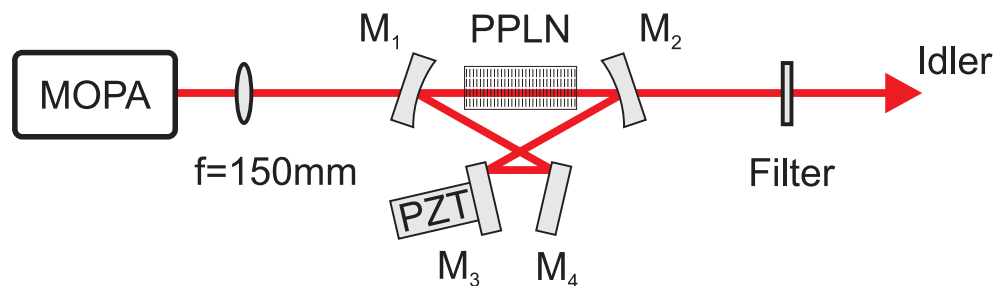


Abbildung 5.1: Experimenteller Aufbau des Diodenlaser gepumpten cw-SRO. Die Pumpstrahlung des MOPA-Systems wird durch eine sphärische Linse ($f = 150 \text{ mm}$) in einen 38 mm langen PPLN-Kristall fokussiert. Alle Spiegel (M_i) sind hochreflektierend für die Signalstrahlung sowie hochtransmittierend für die Pump- und Idlerstrahlung beschichtet. Zur Untersuchung der Idlerstrahlung wird diese hinter Spiegel M_2 mit Hilfe von Filtern von Pump- und Signalstrahlung getrennt.

Der Aufbau sowie die physikalischen Eigenschaften des als Pumplaser verwendeten MOPA-Systems wurden bereits ausführlich in Kapitel 4 beschrieben. Das MOPA-System lieferte mit 3 W optischer Leistung bei sehr guter Strahlqualität genügend Leistung, um den OPO oberhalb seiner Schwelle betreiben zu können. Durch die Möglichkeit, die Wellenlänge des MOPA-Systems modensprungfrei und kontinuierlich über einen großen Wellenlängenbe-

reich durchzustimmen, stellt es ein geeignetes Pumpsystem für einen OPO dar.

Der cw-OPO besteht aus einem Ringresonator mit vier Spiegeln und einem nichtlinearen periodisch-gepolten Lithiumniobat-Kristall (PPLN). Der PPLN-Kristall hat eine Länge von 38 mm und ist 0.5 mm dick. In vertikaler Richtung ist der Kristall 8 mm lang und besitzt vier Bereiche mit Polungsperioden. Die Polungsperioden sind $\Lambda_1 = 26.0 \mu\text{m}$, $\Lambda_2 = 26.2 \mu\text{m}$, $\Lambda_3 = 26.4 \mu\text{m}$ und $\Lambda_4 = 26.6 \mu\text{m}$. Aufgrund des hohen Brechungsindex (siehe Abschnitt 2.3.1) ergeben sich große Verluste durch Reflektion der Strahlung an den Endflächen des Kristalls (Fresnelverluste). Bei einem Brechungsindex von $n = 2.13$ ergeben sich so 13 % Verluste pro Kristalloberfläche. Daher sind beide plan-parallelen Kristallendflächen mit einer Breitband-Antireflexschicht für die Pump- sowie für die Signal- und Idlerstrahlung beschichtet. Für den Wellenlängenbereich zwischen 910 nm und 930 nm ergibt sich damit eine Restreflektion von $< 0.5 \%$. Im Signal- und Idlerwellenlängenbereich von 1600 nm bis 2300 nm beträgt die Restreflektivität der Kristalloberflächen ungefähr 0.6 %. In Abschnitt 2.4 wurde gezeigt, dass die konvertierte Leistung erhöht werden kann durch eine Fokussierung der Strahlung. Zur Ausbildung einer Strahltaile im Kristall wurden gekrümmte Spiegel verwendet. Der Ringresonator besteht aus zwei gekrümmten Spiegeln M_1 und M_2 und zwei planen Spiegeln M_3 und M_4 . Die gekrümmten Spiegel haben jeweils einen Krümmungsradius von -50 mm . Der Abstand zwischen M_1 und M_2 beträgt 79 mm. M_3 und M_4 sind 13 mm voneinander entfernt. Der Einfallswinkel auf allen vier Spiegeln beträgt 13° . Die Parameter des Ring-Resonators wurden von M. E. Klein [23] mit Hilfe des Matrizen-Formalismus aus der Veröffentlichung von Kogelnik [66] berechnet. Daraus errechnet sich ein runder Querschnitt der Fundamentalmode innerhalb des Kristalls, der vollkommen frei von Astigmatismus ist. Außerdem ergibt sich ein konfokaler Parameter von 34 mm bei einer entsprechenden Strahltaile von $60 \mu\text{m}$. Nach Abschnitt 2.4 wird die parametrische Verstärkung maximal, wenn das Verhältnis der Kristalllänge zum konfokalen Parameter gerade $\xi_{B=0} = 2.84$ ist. Mit der gegebenen Kristalllänge von 38 mm beträgt das Verhältnis im Experiment $\xi_{\text{Exp}} = 1.11$. Wie der Vergleich mit Abbildung 2.12 zeigt, ist dies ein ausgezeichneter Wert. Der Aufbau des Resonators liefert damit eine nahezu optimale nichtlineare Wechselwirkung [32, 70].

Der freie Spektralbereich (FSR) des experimentellen Aufbaus wird aus der optischen Länge des nichtlinearen Kristalls ($n \cdot L_c$) und den Abständen zwischen den einzelnen Spiegeln berechnet. Der SRO hat demnach einen FSR von 1.25 GHz. Zur Variation der Resonatorlänge wurde der Spiegel M_3 auf einen Piezo-Tubus (PZT) befestigt. Der Spiegel kann durch Anlegen einer Hochspannung von 500 V kontinuierlich um ca. $2 \mu\text{m}$ verschoben werden.

In Abschnitt 3.2.1 der Theorie wurde eine Schwellpumpleistung von ca. 2 W für den einfach-resonanten Betrieb des OPOs berechnet. Da nur maximal 3 W an Pumpleistung zur Verfügung stehen, ist es schwierig, den OPO so zu justieren, dass er direkt im einfach-

resonanten Zustand startet. Darum wurde der OPO zunächst als doppel-resonanter Aufbau für die Pump- und Signalwelle realisiert. Zur Optimierung des Resonators wurde hinter Spiegel M_2 die transmittierte Strahlung mit einer großflächigen Silizium-Photodiode detektiert und auf einem Oszilloskop dargestellt. Der Resonator kann dabei als ein FPI mit hoher Finesse angesehen werden. Durch Anlegen einer Sägezahnspannung am Piezo wurde die Resonatorlänge periodisch geändert. Dadurch wird in regelmäßigen Abständen Resonanz für die Pump- und Signalwellenlänge hergestellt. Die transmittierten Moden der Strahlung können auf dem Oszilloskop dargestellt und optimiert werden. Dabei ist das Modenverhältnis benachbarter Moden entscheidend, d.h. Ziel der Optimierung ist die Anpassung des Resonators für eine Mode auf Kosten der Nachbarmoden. Eine perfekte Impedanzanpassung wird genau dann erreicht, wenn die Transmission des Einkoppelspiegels M_1 gerade den Verlusten pro Resonatorumlauf entspricht. In diesem Fall wird der Einkoppelspiegel transparent für die Pumpstrahlung, und im Resonator kann eine Pumpüberhöhung stattfinden [110].

Für den doppel-resonanten Betrieb wurde ein Einkoppelspiegel mit einer Transmission von 8 % für die Pumpstrahlung verwendet, d.h. die resonatorinternen Verluste betragen ungefähr 8 %. Die anderen Spiegel waren hoch-reflektierend für die Pumpwellenlänge beschichtet. Auf allen vier Spiegeln war eine hoch-reflektierende Beschichtung für die zu erwartende Signalwellenlänge zwischen 1550 nm und 1750 nm aufgebracht. Die Idlerwellenlänge zwischen 2000 nm und 2300 nm wurde an allen vier Spiegeln komplett transmittiert. Läuft der OPO doppel-resonant, kann die Schwellpumpleistung auf 400 mW reduziert werden.

Durch Wechseln der Spiegel konnte der DRO in einen SRO umgebaut werden. Dabei wurden die Spiegel, beginnend mit Spiegel M_1 , einzeln getauscht und nach jedem Tausch der OPO erneut optimiert. Die Resonatorspiegel für den einfach-resonanten Betrieb auf der Signalwelle des OPOs haben besondere Eigenschaften. Zum einen sind sie durch eine sehr hohe Reflektivität auf der Signalwellenlänge ausgezeichnet. Die Reflektivität beträgt im Wellenlängenbereich zwischen 1560 nm und 1770 nm mehr als 99.8 %. Zum anderen weisen die vier Resonatorspiegel eine hohe Transmission bei der Pumpwellenlänge ($T \approx 99$ % bei 923 nm) sowie im Idlerwellenlängenbereich ($T > 98$ % zwischen 2070 nm und 2200 nm) auf. Die Rückseiten der vier Spiegel sind alle mit einer Antireflexschicht für die drei verschiedenen Wellenlängen beschichtet. Die Auskopplung der Pump- und Idlerstrahlung beträgt pro Resonatorumlauf mehr als 99.9999 %. Für die Signalstrahlung kann mit einem Verlust von ca. 1 % pro Resonatorumlauf gerechnet werden.

5.2 Grundlegende Eigenschaften des SRO

In den folgenden Abschnitten werden die grundlegenden Eigenschaften des SRO dargestellt. Zur Charakterisierung des SRO dient die Messung der Leistungskennlinie, woraus die Schwellpumpleistung bestimmt werden kann. Weiterhin dienen die Idlerleistung in Abhängigkeit der Idlerwellenlänge und eine Stabilitätsmessung der Idlerleistung zur Veranschaulichung der Eigenschaften des SRO. Um das Durchstimmverhalten der Signal- und Idlerwellenlänge des SRO zu untersuchen, wurden Parameter wie Kristalltemperatur, Polungsperiode und Pumpwellenlänge variiert.

5.2.1 Schwellpumpleistung und optische Ausgangsleistung

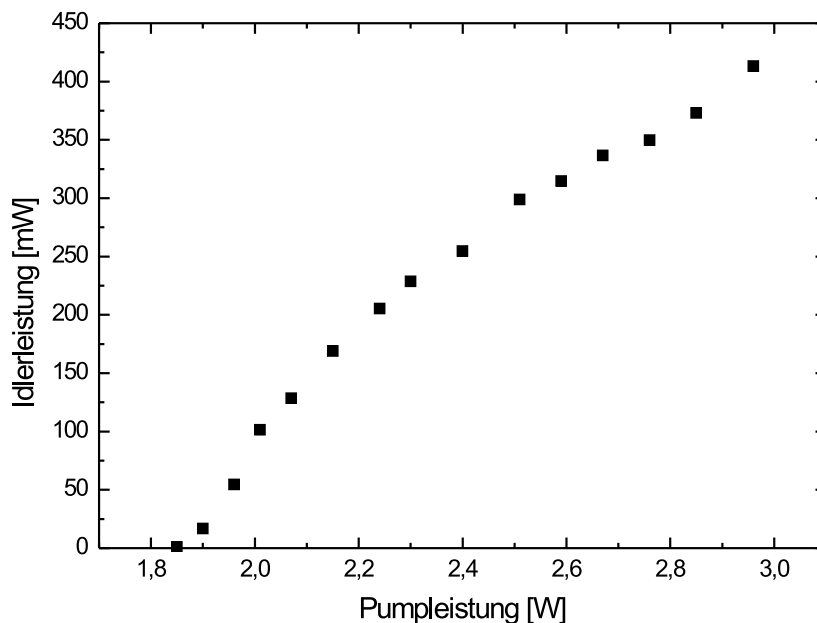


Abbildung 5.2: Ausgangsleistung der Idlerwelle des SRO als Funktion der eingestrahnten Pumpleistung bei einer Wellenlänge von $2.13 \mu\text{m}$. Die Schwellpumpleistung beträgt 1.85 W und die maximale Idlerleistung beträgt 420 mW .

Zur Bestimmung der Schwellpumpleistung wurde die Idlerleistung des SRO als Funktion der Pumpleistung aufgezeichnet. Dabei wurde die Pumpleistung mit Hilfe der $\lambda/2$ -Platte vor dem OPO abgeschwächt und die erzeugte Idlerleistung hinter Spiegel M_2 gemessen. Die gemessenen Daten sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Daraus kann eine Schwellpumpleistung

leistung von 1.85 W bestimmt werden. Aus Gleichung (3.18) für die Schwellpumpleistung eines SRO ergibt sich mit den experimentellen Werten für die Frequenzen der beteiligten Wellen, Gesamtverlusten der Signalstrahlung pro Umlauf von 1 %, einem effektiven nichtlinearen Koeffizienten $d_{\text{eff}} = 17 \text{ pm/V}$ (s. Abschnitt 2.3.1) und einem konfokalen Parameter von 34 mm für Pump- und Signalwelle eine theoretisch zu erwartende Schwellpumpleistung von 1.82 W. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem aus Abbildung 5.2 ermittelten Wert überein. Bei einer maximalen Pumpleistung von 2.95 W erzielt der SRO eine Idlerausgangsleistung von 420 mW. Dies entspricht unter Beachtung der Energieerhaltung bei den vorliegenden Wellenlängen der einzelnen Wellen einer Signalleistung von mehr als 600 mW. Die Gesamtkonversionseffizienz beträgt demnach 35 %.

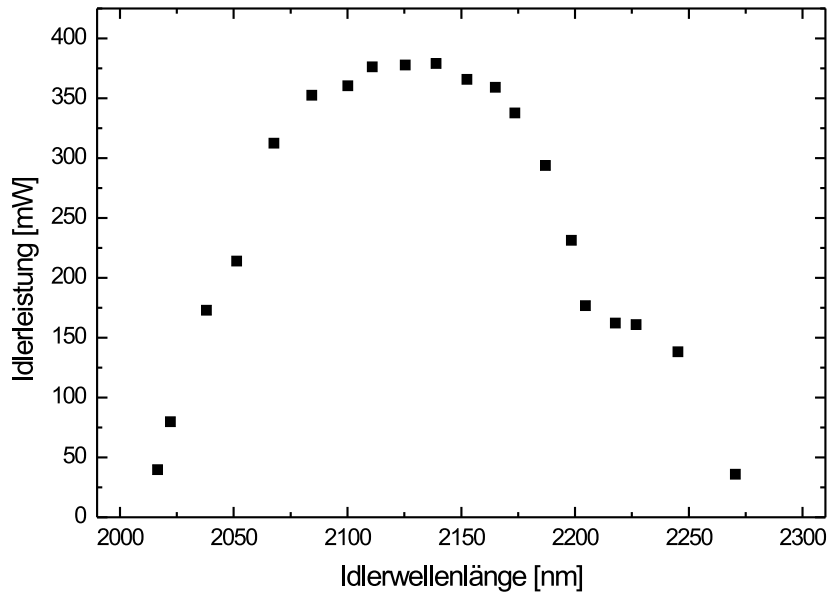


Abbildung 5.3: Idlerleistung des SRO als Funktion der Idlerwellenlänge bei einer Pumpleistung von 3 W und einer Pumpwellenlänge von 923 nm.

In Abbildung 5.3 ist die Idlerleistung in Abhängigkeit der Idlerwellenlänge dargestellt. Die Messung erfolgte bei einer Pumpleistung von 3 W und einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm. Die Änderung der Idlerwellenlänge wurde durch eine Variation der Kristalltemperatur von 150.5 °C bis 160 °C durchgeführt. Dazu wurde eine Temperaturregelung von *Eurotherm* verwendet mit einer Genauigkeit von $\pm 0.1 \text{ °C}$. Das Verhalten der Idlerleistung mit Änderung der Idlerwellenlänge entspricht genau den Beschichtungen der Resonatorspiegel und der AR-Beschichtungen des Kristalls. Über einen relativ breiten

Wellenlängenbereich zwischen 2070 nm und 2150 nm erzielt der SRO Idlerleistungen von mehr als 300 mW, d.h. die Idlerwellenlänge des SRO kann weit durchgestimmt werden, ohne dass merkliche Einbußen in der Leistung erkennbar sind.

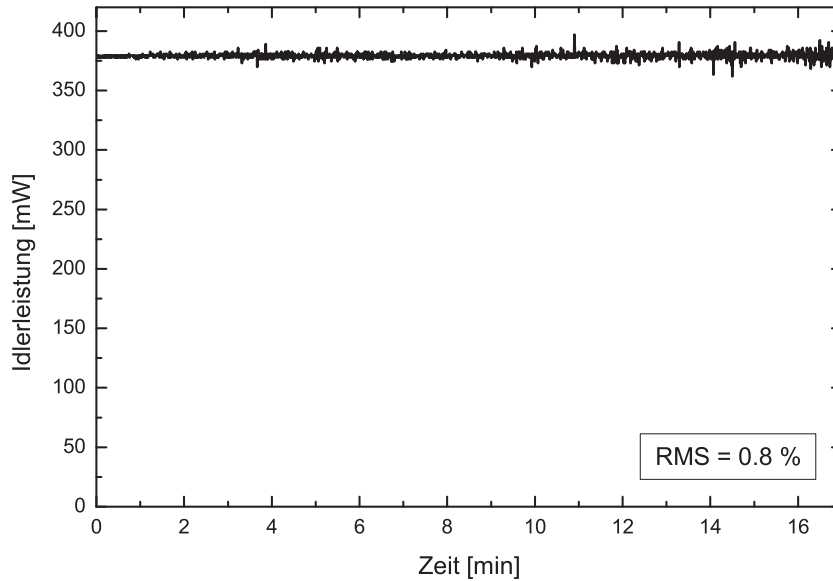


Abbildung 5.4: Ausgangsleistung der Idlerwelle als Funktion der Zeit über eine Dauer von 17 Minuten.

Zur Untersuchung der zeitlichen Stabilität des SRO wurde die Idlerleistung als eine Funktion der Zeit aufgezeichnet. Dazu wurde eine InAs-Photodiode (*Judson Technologies, J12-18C-R250U*) verwendet, die zunächst mit Hilfe eines Leistungsmessgerätes (*Melles Griot 13PEM001*) kalibriert wurde. In Abbildung 5.4 ist die Idlerleistung als Funktion der Zeit über einen Zeitraum von 17 Minuten aufgetragen. Bei einer Pumpleistung von 2.9 W betrug die Idlerleistung im Durchschnitt 376 mW. Das quadratische Mittel der Schwankung (RMS) der Idlerleistung beträgt 0.8 %. Während der Messung wurde die Resonatorlänge nicht nachjustiert. Das in Abbildung 5.4 dargestellte Verhalten stellt ein typisches Merkmal eines einfach-resonanten OPOs dar. Bei DROs bleibt die Ausgangsleistung über einen längeren Zeitraum nur dann konstant, wenn gleichzeitig die Resonatorlänge durch elektronische Maßnahmen stabil gehalten wird.

5.2.2 Wellenlängendurchstimmung

Zum Einsatz des SRO für spezielle spektroskopische Untersuchungen ist eine möglichst weite kontinuierliche Durchstimmung der Wellenlänge notwendig. Um das Durchstimmverhalten des SRO näher charakterisieren zu können, wurden die Signal- und damit auch die Idlerwellenlänge des SRO durch Ändern verschiedener Parameter variiert. Dabei konnte der SRO durch eine Änderung der Kristalltemperatur, der Polungsperiode und der Pumpwellenlänge durchgestimmt werden. Die Ergebnisse der Messungen werden in den folgenden Abschnitten gezeigt.

Wellenlängendurchstimmung über die Kristalltemperatur

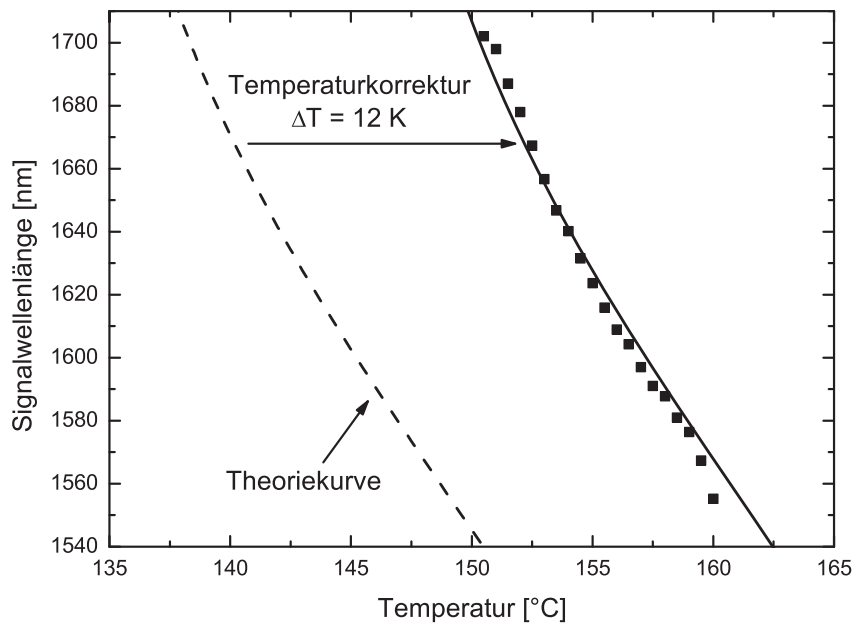


Abbildung 5.5: Signalwellenlänge des SRO in Abhängigkeit der Kristalltemperatur für die Polungsperiode $\Lambda = 26.0 \mu\text{m}$ bei einer Pumpwellenlänge von 923 nm. Anhand der Theoriekurve (nach [74], gestrichene Kurve) kann ein Korrekturwert für die Temperatur von 12 K ermittelt werden. Die Messwerte (Punkte) zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit der korrigierten Theoriekurve (durchgezogene Kurve).

Abbildung 5.5 zeigt die Signalwellenlänge des SRO für die Polungsperiode $\Lambda = 26.0 \mu\text{m}$ in Abhängigkeit der Kristalltemperatur. Der komplette Wellenlängenbereich von $1.55 \mu\text{m}$

bis $1.7\ \mu\text{m}$, für den die Resonatorspiegel beschichtet wurden, kann durch eine Temperaturänderung des Kristalls von $9.5\ ^\circ\text{C}$ zwischen $150.5\ ^\circ\text{C}$ und $160\ ^\circ\text{C}$ abgedeckt werden. Die Idlerwellenlänge kann demnach zwischen $2.02\ \mu\text{m}$ und $2.28\ \mu\text{m}$ variiert werden. Die Pumpwellenlänge war konstant bei $923\ \text{nm}$. Mit Hilfe der Sellmeier-Koeffizienten von H. Jundt [74] wurde eine entsprechende Theoriekurve für die Werte der Polungsperiode $\Lambda = 26.0\ \mu\text{m}$ berechnet (gestrichene Kurve). Sellmeier-Gleichungen beruhen meist auf Näherungen bezüglich der Wellenlänge oder Temperatur. Die Sellmeier-Koeffizienten aus [74] beziehen sich auf einen OPO mit einer Pumpwellenlänge von $1.064\ \mu\text{m}$ und bei Raumtemperatur. Durch die Übertragung der Sellmeier-Gleichungen auf die Parameter dieses Experiments sind daher Abweichungen zu erwarten. Dennoch bieten diese Gleichungen die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten im Vergleich zu anderen bekannten Quellen. Daher wurde aus der Theoriekurve in Abbildung 5.5 ein konstanter Korrekturwert von $12\ \text{K}$ für die Temperatur ermittelt. Dieser Korrekturwert wird in den weiteren Untersuchungen des Durchstimmverhaltens des SRO berücksichtigt.

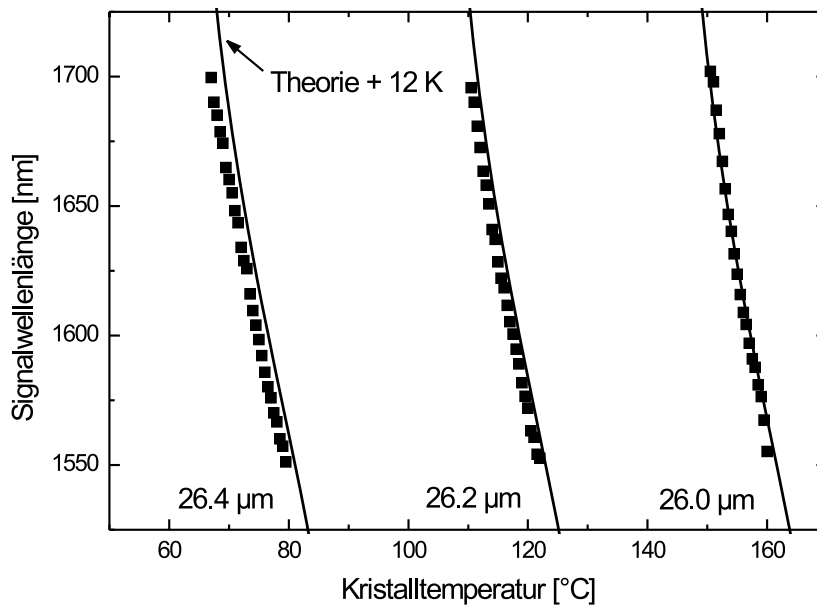


Abbildung 5.6: Signalwellenlänge in Abhängigkeit der Kristalltemperatur für drei verschiedene Polungsperioden ($\Lambda = 26.0\ \mu\text{m}$, $26.2\ \mu\text{m}$ und $26.4\ \mu\text{m}$) bei einer Pumpwellenlänge von $923\ \text{nm}$. Die Theoriekurven (durchgezogene Kurven) wurden mit einem Korrekturwert von $12\ \text{K}$ berechnet. Die Messwerte (Punkte) zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den Theoriekurven.

Mit Hilfe des Korrekturwertes konnten die einzelnen Theoriekurven für alle Polungsperioden berechnet werden. Diese Messungen sind in Abbildung 5.6 gemeinsam dargestellt.

Von rechts nach links sind die Messwerte für die Polungsperioden $26.0\ \mu\text{m}$, $26.2\ \mu\text{m}$ und $26.4\ \mu\text{m}$ zusammen mit den berechneten Theoriekurven gezeigt. Unter Berücksichtigung des Korrekturwertes für die Temperatur zeigen sie alle eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messwerten. Bei einer Polungsperiode von $\Lambda = 26.6\ \mu\text{m}$ konnte der SRO nicht mehr betrieben werden. Für einen effektiven OPO-Betrieb ist laut der theoretischen Überlegungen ein Temperaturbereich von weniger als $40\ ^\circ\text{C}$ notwendig. Bei diesen Temperaturen können in LiNbO_3 Effekte auftreten wie zum Beispiel der photorefraktive Effekt [60]. Der photorefraktive Effekt verringert die Effizienz des OPO-Prozesses bei Temperaturen bereits ab unterhalb $100\ ^\circ\text{C}$ und stellt damit den Hauptgrund dar, warum der SRO bei einer Polungsperiode von $\Lambda = 26.6\ \mu\text{m}$ nicht mehr betrieben werden kann.

Wellenlänge als Funktion der Pumpwellenlänge

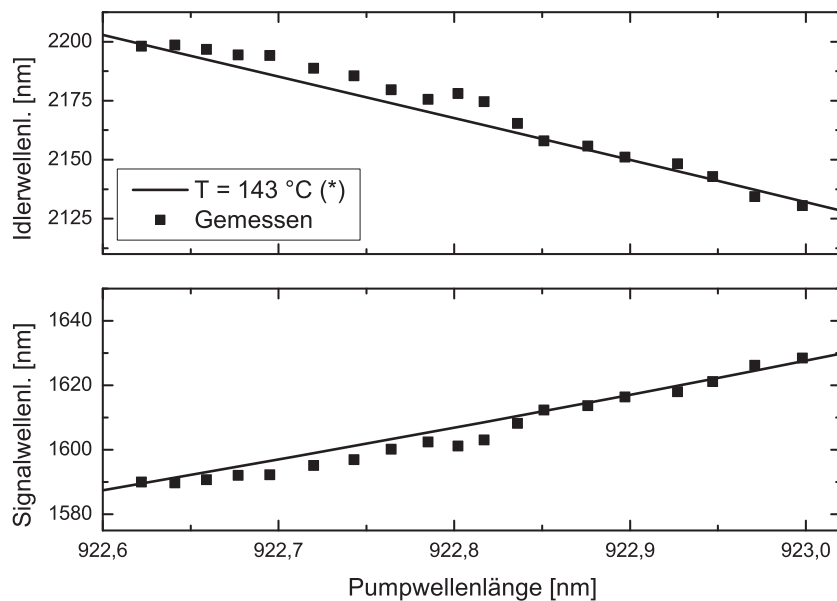


Abbildung 5.7: Signal- und Idlerwellenlänge des SRO als Funktion der Pumpwellenlänge bei einer konstanten Polungsperiode von $\Lambda = 26.0\ \mu\text{m}$ und einer konstanten Kristalltemperatur von $T_K = 155\ ^\circ\text{C}$. (*) Zum Vergleich wurde eine Theoriekurve mit einem Korrekturwert für die Temperatur von $12\ \text{K}$ berechnet (durchgezogene Kurve). Die Messwerte (Punkte) stimmen gut mit der Theoriekurve überein.

Abbildung 5.7 zeigt die Signal- und Idlerwellenlänge des SRO in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge. Die Messung erfolgte bei einer konstanten Polungsperiode von $\Lambda = 26.0\ \mu\text{m}$

und einer konstanten Kristalltemperatur von $T_K = 155\text{ °C}$. Die Pumpwellenlänge wurde durch eine manuelle Änderung des DFB-Diodenstroms eingestellt. Um einen Vergleich mit dem theoretisch zu erwartenden Verlauf der Kurve zu erhalten, wurde die Theoriekurve mit einem Korrekturwert von 12 K berechnet und in das Diagramm eingefügt (durchgezogene Kurve). Die Messwerte (Punkte) liegen in guter Übereinstimmung mit der Theoriekurve. Durch eine Änderung der Pumpwellenlänge um 0.4 nm zwischen 922.6 nm und 923.0 nm kann die Signalwellenlänge zwischen 1.59 μm und 1.63 μm variiert werden. Die Idlerwellenlänge liegt entsprechend zwischen 2.13 μm und 2.2 μm . Durch diese Messung konnte gezeigt werden, dass die Signal- und Idlerwellenlänge des SRO nur durch eine Änderung der Pumpwellenlänge durch Variation des DFB-Diodenstroms variiert werden kann. Diese Art der Wellenlängenänderung wird bei den spektroskopischen Anwendungen des SRO verwendet (Kapitel 6) und anschließend bei der Stabilisierung des gesamten Systems auf eine Moleküllinie genutzt (Kapitel 7).

5.3 Spektrale Eigenschaften des SRO

Die spektrale Breite einer Strahlquelle ist ein wichtiger Faktor für das Auflösungsvermögen bei spektroskopischen Anwendungen. Darum werden zunächst die Spektren der Signal- und Idlerstrahlung untersucht. Der einfach-resonante Betrieb eines SRO weist dabei typische Eigenschaften auf. Diese werden im Folgenden näher charakterisiert und der einfach-resonante Betrieb des SRO damit eindeutig nachgewiesen.

5.3.1 Spektren der Signal- und Idlerstrahlung

In Abbildung 5.8 ist das Spektrum der Signalstrahlung des SRO dargestellt. Die Messung des Spektrums erfolgte mit Hilfe eines selbst konstruierten scanning FPIs. Das FPI wurde dabei mit Hilfe zweier für die Signalwellenlänge hochreflektierender, gekrümmter Spiegel aufgebaut, wobei einer der Spiegel durch einen Piezo-Tubus periodisch verfahren wurde. Die Detektion der transmittierten Signalstrahlung erfolgte mit einer InGaAs-Photodiode (*Hamamatsu, G6854-01*). Der Abstand der beiden Spiegel betrug 100 mm, d.h. das konfokal aufgebaute FPI hatte einen FSR von 750 MHz bei einer Finesse von 75. Die Messung wurde bei einer Signalwellenlänge von 1.63 μm und einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm durchgeführt. Die Kristalltemperatur betrug 155 °C und als Polungsperiode wurde 26.0 μm eingestellt. Die Linienbreite der Signalstrahlung beträgt weniger als 10 MHz und erreicht damit gerade das Auflösungsvermögen des FPI. Damit ist eindeutig der einfach-resonante Betrieb für die Signalstrahlung zu erkennen. Der SRO lief in diesem Betriebszustand über längere Zeit stabil, ohne dass Modensprünge erkennbar waren.

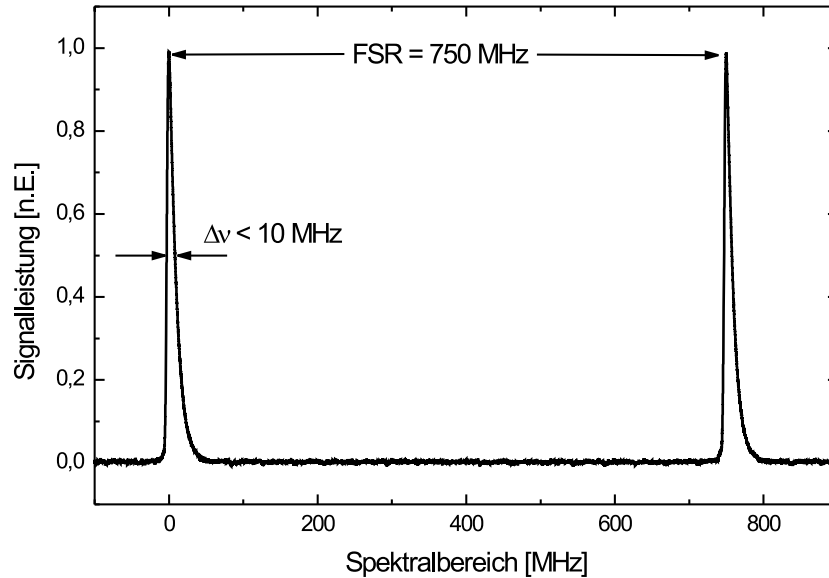


Abbildung 5.8: Messung der spektralen Linienbreite der Signalstrahlung mit Hilfe eines konfokalen scanning FPIs mit hoher Finesse ($F = 75$) und einem FSR von 750 MHz. Die Halbwertsbreite ergibt eine Linienbreite der Signalstrahlung von weniger als 10 MHz, was gerade dem Auflösungsvermögen des FPIs entspricht.

Abbildung 5.9 zeigt die spektrale Bandbreite der Idlerstrahlung. Die Messung wurde mit Hilfe eines selbst aufgebauten FPIs durchgeführt. Das FPI bestand aus zwei planparallelen Spiegeln, die beide hochreflektierend für die Idlerwellenlänge beschichtet waren. Der Abstand beider Spiegel betrug 76 mm und damit war der FSR des planparallelen FPIs gerade 1.97 GHz bei einer hohen Finesse von ca. 200. Die transmittierte Idlerstrahlung wurde mit Hilfe einer InAs-Photodiode (*Judson Technologies, J12-18C-R250U*) aufgezeichnet. Die Messung wurde bei einer Idlerwellenlänge von $2.13 \mu\text{m}$ und einer konstanten Pumpwellenlänge von 923 nm durchgeführt. Die Kristalltemperatur war 155°C und die Polungsperiode war $26.0 \mu\text{m}$. Die Linienbreite der Idlerstrahlung beträgt weniger als 10 MHz, was gerade der Auflösungsgrenze des FPIs entspricht. Der SRO oszilliert demnach auf einer einzelnen longitudinalen Mode der Idlerstrahlung. Dieser einfach-resonante Zustand kann über einen Zeitraum von mehreren Minuten beobachtet werden, ohne daß Modensprünge erkennbar sind.

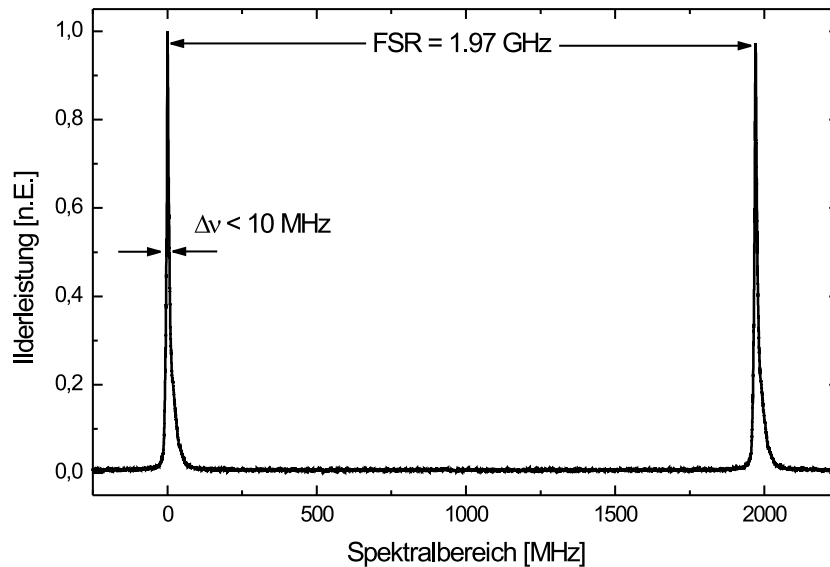


Abbildung 5.9: Die Messung der spektralen Linienbreite der Idlerstrahlung erfolgte mittels eines plan-parallelen FPIs mit einer hohen Finesse von ca. 200 und einem FSR von 1.97 GHz. Die Halbwertsbreite der Idlerstrahlung beträgt weniger als 10 MHz, was gerade dem Limit des Auflösungsvermögens des verwendeten FPIs entspricht.

5.3.2 Einfach-resonanter Betrieb des SRO

In Kapitel 3 wurde gezeigt, dass der einfach-resonante Betrieb eines OPOs gegenüber OPOs, die in doppel- oder dreifach-resonanten Betrieb arbeiten, eine weitaus bessere Stabilität bezüglich der Ausgangsleistung sowie eine größere Durchstimmbarkeit zeigen. Schon kleinere Einflüsse wie zum Beispiel Anteile einer nicht-resonanten Welle, die durch ungeeignete Beschichtungen der Spiegel in den Resonator zurück reflektiert werden, können den einfach-resonanten Betrieb des OPOs stören. Dadurch kann die maximal erreichbare Ausgangsleistung vermindert werden, der Durchstimmbereich kann begrenzt werden oder es kann zu Modensprüngen der resonanten Welle kommen [76,111]. Für spektroskopische Anwendungen ist der Betrieb des OPOs auf einer Resonatormode ohne Modensprünge Voraussetzung, z.B. um eine möglichst hohe Auflösung bei der Vermessung einzelner Moleküllinien zu erzielen.

Zur Überprüfung dieser Eigenschaft wurden die folgenden Charakteristika untersucht, die typisch für einen SRO sind und bei zusätzlich oszillierenden Wellen nicht auftreten würden [23]:

1. Die Signalleistung bleibt konstant, wenn die Resonatorlänge verändert wird.
2. Der komplette freie Spektralbereich des OPO-Resonators kann durchgestimmt werden, ohne dass ein Modensprung der resonanten Welle auftritt.

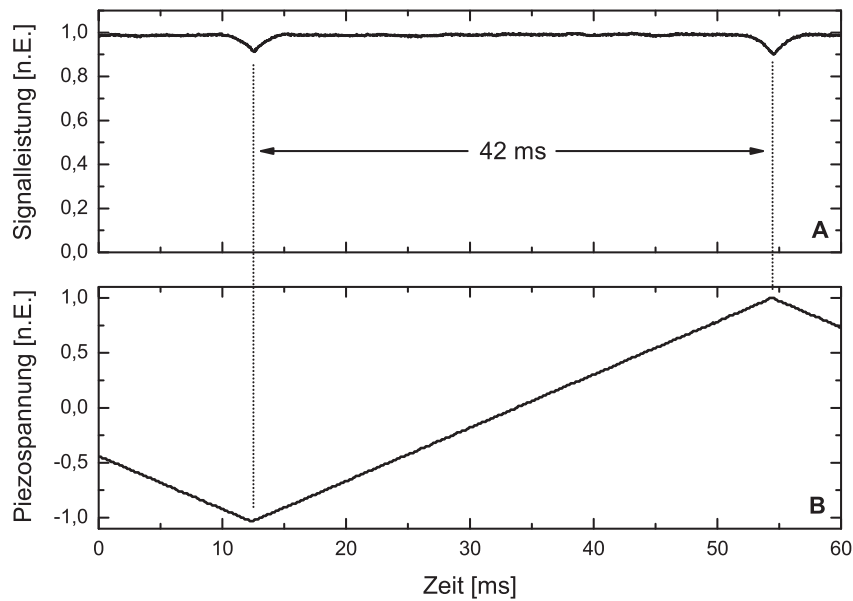


Abbildung 5.10: A: Signalleistung des SRO als Funktion der Dauer der Resonatorlängenänderung. B: Normiertes Piezospannungssignal als Funktion der Modulationszeit. Die Zeitspanne zwischen maximaler und minimaler Ausdehnung des Piezotubus beträgt bei einer Frequenz von 12 Hz ungefähr 42 ms.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in den Abbildungen 5.10 und 5.11 zusammengefasst. Die Resonatorlänge wurde mit Hilfe von Resonatorspiegel M_3 (siehe Abbildung 5.1) verändert. Der Spiegel M_3 sitzt auf einem Piezo-Tubus, der mit einer Frequenz von 12 Hz und einer Spannung von 500 V angesteuert wurde. Hierdurch kann eine kontinuierliche Auslenkung von M_3 um ca. $2\ \mu\text{m}$ erreicht werden. Dabei wurde die Signalleistung mit einer InGaAs-Photodiode (*Hamamatsu, G6854-01*) aufgezeichnet und gleichzeitig das Spektrum der Signalstrahlung mit einem hochreflektierendem FPI beobachtet. Außerdem wurde mit einem zweiten FPI mit einer relativ geringen Finesse die transmittierte Signalleistung aufgezeichnet.

Abbildung 5.10A zeigt die Signalleistung des OPOs bei sich ändernder Resonatorlänge als Funktion der Zeit. In Abbildung 5.10B ist das Signal der modulierten Piezospannung

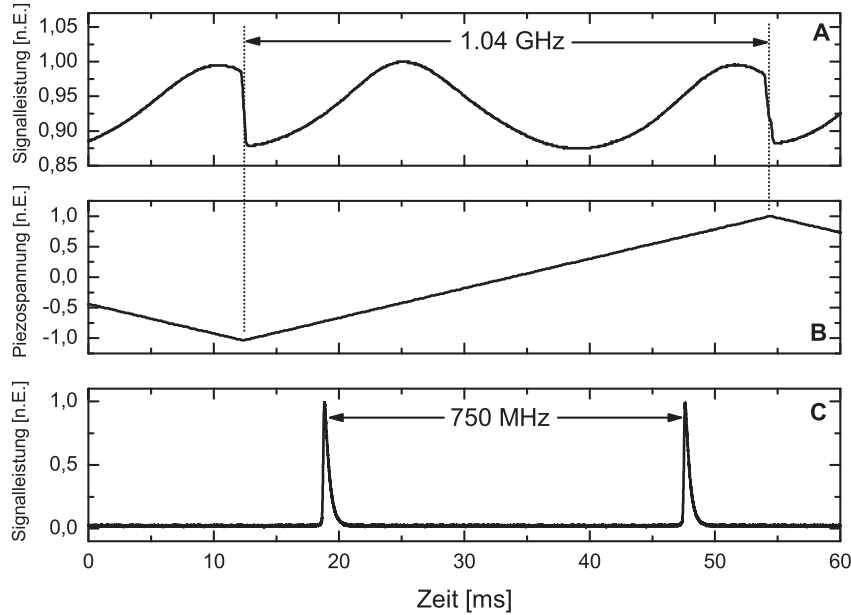


Abbildung 5.11: A: Transmissionssignal der Signalstrahlung hinter einem FPI mit geringer Finesse ($F = 2.5$) und einem FSR von 0.79 GHz während der Resonatorlängenänderung. Der glatte Verlauf der Kurve deutet auf einfach-resonanten Betrieb des SRO hin. B: Normiertes Piezospannungssignal als Funktion der Modulationszeit. C: Spektrum der Signalstrahlung bei Änderung der Resonatorlänge, aufgezeichnet mit einem FPI mit hoher Finesse ($F = 75$ und einem FSR von 750 MHz).

aufgetragen. Diese Modulation wurde mit einem Funktionsgenerator (*30 MHz synthesized function generator, Model DS345, Stanford Research Systems*) durchgeführt. Die Signalleistung bleibt über den gesamten Bereich annähernd konstant. Lediglich in den Bereichen, in denen die maximale Ausdehnung des Piezos erreicht wurde, sind kleine Schwankungen erkennbar. An den Endpunkten der Ausdehnung ist die Auslenkung des Piezos nicht mehr proportional zur angelegten Spannung. Hierdurch kommt es dort zu Schwankungen der Signalleistung. Die Zeit zwischen den beiden Maxima der Ausdehnung des Piezos beträgt bei einer Modulationsfrequenz von 12 Hz ungefähr 42 ms.

In Abbildung 5.11A ist die Transmission eines für die Signalstrahlung resonanten FPIs aufgetragen. Das FPI ist plan-parallel aufgebaut und besitzt eine geringe Finesse ($F = 2.5$), um eventuell auftretende Modensprünge zu detektieren. Der FSR des FPIs betrug 0.79 GHz (Spiegelabstand 190 mm). Die Messkurve zeigt einen glatten Verlauf mit zwei Sprüngen an den Umkehrpunkten der Piezoauslenkung. Bei diesen Sprüngen handelt es sich um Modensprünge der Signalstrahlung. Diese treten erwartungsgemäß beim Errei-

chen einer Resonatorverstimmung um einen freien Spektralbereich des Resonators auf. Der glatte Verlauf des Transmissionssignals zwischen den beiden Modensprüngen ist ein deutlicher Hinweis auf eine Durchstimmung der Signalwelle des OPOs ohne Modensprünge [23]. Dieser Bereich erstreckt sich auf einen Frequenzbereich von 1.04 GHz. Dies entspricht fast dem gesamten freien Spektralbereich des OPOs (1.25 GHz). Abbildung 5.11B zeigt die modulierte Spannung des Piezotubus in normierten Einheiten in Abhängigkeit der Modulationszeit. Die Zeitdauer einer Rampe zwischen minimaler und maximaler Ausdehnung des Piezotubus beträgt ungefähr 42 ms. Abbildung 5.11C zeigt das gleichzeitig aufgenommene Spektrum der Signalstrahlung. Dazu wurde ein konfokales FPI mit einer Finesse von 75 und einem FSR von 750 MHz verwendet. Das FPI hatte eine hohe Finesse, um eventuell oszillierende Nachbarmoden nachweisen zu können. Das dargestellte Transmissionssignal zeigt zwei im Abstand des FSR des FPIs auftretende scharfe Maxima. Die Breite jedes Maximums war geringer als das Auflösungsvermögen des FPIs (< 10 MHz). Der OPO oszilliert daher nur auf einer einzigen longitudinalen Signalmode.

Teil A der Abbildung 5.10 zeigt, dass die Signalleistung des OPOs konstant bleibt, obwohl die Resonatorlänge verändert wird. Dieses Verhalten ist typisch für einfach-resonante OPOs [23]. Weiterhin zeigt Teil B der Abbildung 5.11, dass die Signalwelle des OPOs rein durch eine Änderung der Resonatorlänge über fast den gesamten FSR des OPOs durchstimmbar ist. Hierbei handelt es sich ebenfalls um ein typisches Verhalten von einfach-resonanten OPOs [105]. Die Messungen zeigen, dass der OPO auf einer einzelnen Signalmode mit einer spektralen Breite von weniger als 10 MHz oszilliert und so einen einfach-resonanten Betrieb ermöglicht. Damit sind die Voraussetzungen gegeben, um mit dem System beispielsweise in der Spektroskopie die Breite und Position von Moleküllinien hochauflösend untersuchen zu können. Bereits 2000 wurde ein ähnliches System von M. E. Klein [23] realisiert, allerdings mit der Einschränkung, dass dort aufgrund einer Littmann-Anordnung [112] die Wellenlänge des Pumplasers über drehbare, mechanische Komponenten variiert werden mußte.

5.4 Weite kontinuierliche Durchstimmung der Idlerwellenlänge

In Abschnitt 5.3.2 wurde bereits bei den Untersuchungen der Einmodigkeit des Aufbaus die Signalwelle um fast den gesamten FSR durchgestimmt, ohne dass Modensprünge aufgetreten sind. Um den kontinuierlichen Durchstimmungsbereich des SROs zu erweitern, wurde der Resonator des SRO modifiziert. Dazu wurde zunächst ein unbeschichtetes Etalon aus Quarzglas in den Resonator eingebaut. Das Etalon beschränkt den Betrieb des OPOs auf einen einzelnen Mode der Signalwelle (siehe Abschnitt 3.3.4). Dadurch wird die Signalwel-

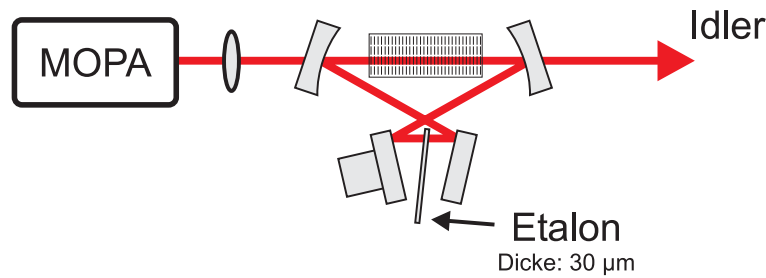


Abbildung 5.12: Zwischen den Spiegeln M_3 und M_4 wurde ein Etalon in den Resonator eingebaut. Das Etalon hat eine Dicke von $30\ \mu\text{m}$ und dient zur Stabilisierung der Signalwellenlänge im einfach-resonanten Betrieb (Erläuterungen hierzu siehe Text).

lenlänge des SROs auf eine feste Wellenlänge stabilisiert. Das Etalon hat eine Dicke von $30\ \mu\text{m}$ und wurde zwischen den Spiegeln M_3 und M_4 integriert (siehe Abbildung 5.12). Es wurde leicht verkippt in den Resonator eingefügt, um Interferenzeffekte zu unterdrücken. Durch das Etalon müssen Fresnelverluste von 4 % pro Oberfläche einkalkuliert werden. Bei einer hohen Finesse des OPO-Resonators genügen die maximalen durch das Etalon zugefügten Gesamtverluste von 8 %, um auftretende Seitenmoden der Signalstrahlung zu unterdrücken. Die Pumpwellenlänge wurde durch eine Stromänderung an der DFB-Diode kontinuierlich verändert. Die Länge des Resonators wurde dagegen während der Untersuchung konstant gehalten. Dadurch wirken sich die Pumpwellenlängenänderungen direkt auf die Idlerwellenlänge des SROs aus, was zu einer kontinuierlichen Durchstimmung führt.

Zunächst wurde die Leistungskennlinie der Idlerwelle als Funktion der eingestrahlt Pumplleistung aufgenommen. Die Messung ist in Abbildung 5.13 dargestellt. Aufgrund der durch das Etalon zusätzlich auftretenden Verluste steigt die Schwelle erwartungsgemäß an. Die Schwellpumpleistung beträgt ungefähr 2.5 W und ist damit deutlich erhöht gegenüber dem Betrieb ohne Etalon (1.85 W, siehe Abschnitt 5.2.1). Bei einer Pumpleistung von 3 W liefert der SRO eine maximale optische Leistung der Idlerstrahlung von mehr als 350 mW.

Das Verhalten der Ausgangsleistung des SROs wurde untersucht, während die Pumpwellenlänge und damit auch die Pumpleistung verändert wurde. Abbildung 5.14A zeigt die Abhängigkeit der Pumpleistung bei einer Änderung des DFB-Diodenstroms. Der DFB-Diodenstrom wurde zwischen 100 mA und 200 mA kontinuierlich variiert. Die Leistung des MOPA-Systems änderte sich dabei zwischen 2.5 W und einem maximalen Wert von 3.1 W. Gleichzeitig wurde mit einem zweiten Leistungsmessgerät die Leistung der Idlerstrahlung aufgezeichnet. In Abbildung 5.14B ist die Leistung der Idlerstrahlung als Funktion des DFB-Diodenstroms aufgetragen. Die Leistung der Idlerstrahlung variierte zwischen einem minimalen Wert von 200 mW bis zu einem maximalen Wert von ungefähr 320 mW. Abbildung 5.14C zeigt das Verhältnis aus abgestrahlter Idlerleistung zur einge-

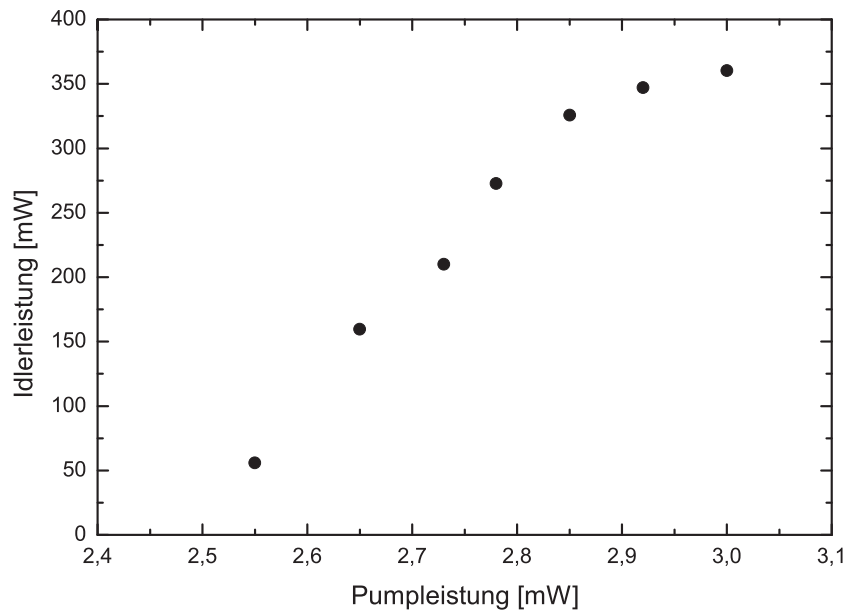


Abbildung 5.13: Idlerleistung als Funktion der Pumpleistung des SRO mit eingebautem Etalon. Die Schwellpumpleistung erhöht sich auf ungefähr 2.5 W gegenüber dem Betrieb ohne Etalon und die maximale Idlerleistung des SRO beträgt mehr als 350 mW.

koppelten Pumpleistung als Funktion des DFB-Diodenstroms. Der relativ glatte Verlauf der Kurve und der dadurch bedingte gleichbleibende Betrag des Verhältnisses der beiden betrachteten Parameter weist auf eine nahezu konstante Effizienz der konvertierten Strahlung über den gesamten untersuchten Strombereich zwischen 100 mA und 200 mA hin.

Um den SRO kontinuierlich durchzustimmen, wurde der DFB-Diodenstrom mit Hilfe eines Funktionsgenerators (*30 MHz Synthesized Function Generator, Model DS345, Stanford Research Systems*) kontinuierlich variiert. Der Funktionsgenerator lieferte ein Sägezahnsignal mit einer Frequenz von 2 Hz. Die Untersuchung erfolgte mit Hilfe eines plan-parallel aufgebauten FPIs mit einem FSR von 10.6 GHz. Das FPI hatte eine relativ geringe Finesse von ungefähr 9, um möglicherweise auftretende Modensprünge nachzuweisen. Abbildung 5.15A zeigt das normierte Transmissionssignal des FPIs als Funktion des DFB-Diodenstroms. Das Transmissionssignal in Form einer Airy-Funktion zeigt über den gesamten Durchstimmbereich zwischen 100 mA und 200 mA keine Modensprünge. Durch Abzählen der Maxima bzw. Minima ergibt sich daraus ein modensprungfreier, kontinuierlich durchstimmbarer Idlerwellenlängenbereich von 88.4 GHz. Die Krümmung der gemessenen Kurve ist konform zur Krümmung der Effizienz der Idlerstrahlung (in Dia-

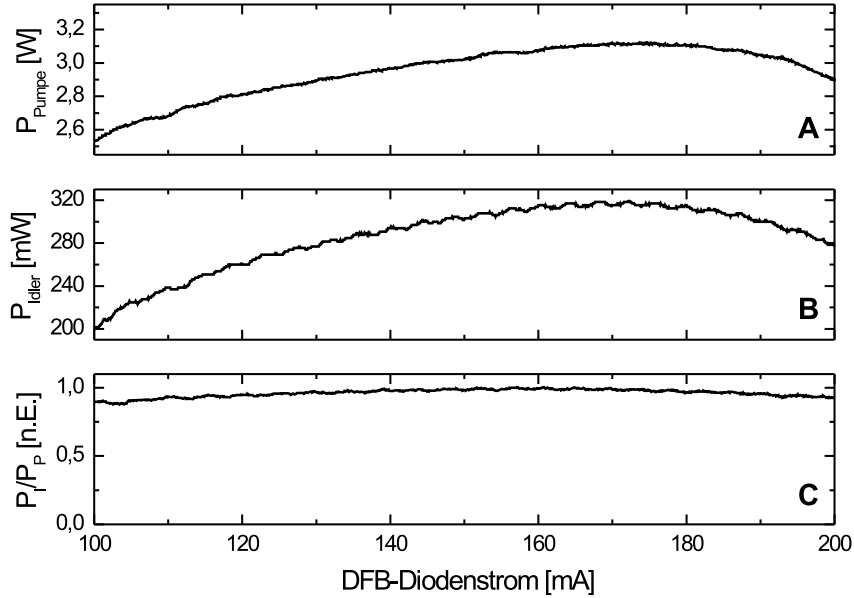


Abbildung 5.14: A: Pumpleistung des MOPA-Systems als Funktion des DFB-Diodenstroms bei einem konstanten Verstärkerstrom von 6 A. B: Idlerleistung in Abhängigkeit des DFB-Diodenstroms. C: Verhältnis der Idlerleistung zur Pumpleistung als Funktion des DFB-Diodenstroms. Bei einer Änderung des DFB-Diodenstroms zwischen 100 mA und 200 mA bleibt die Effizienz der konvertierten Strahlung nahezu konstant.

gramm 5.15B dargestellt). Während der Messung wurde das Verhalten der Signalstrahlung ständig mit einem FPI mit hoher Finesse überprüft. Dabei wurden keine Modensprünge festgestellt, die Signalwellenlänge war konstant $1.63 \mu\text{m}$.

Mit einem Brechungsindex von $n = 1.492$ beträgt der FSR des Etalons $3.35 \cdot 10^{12}$ Hz. Die Änderung der Pumpfrequenz beträgt $7 \cdot 10^{10}$ Hz (0.2 nm) bei einer zentralen Pumpwellenlänge von 923 nm. Die Signalfrequenzänderung beträgt nach Abschnitt 5.2.2 damit $2.4 \cdot 10^{12}$ Hz (21 nm) bei einer zentralen Signalwellenlänge von $1.63 \mu\text{m}$. Als Lösung der Phasenanpassungsbedingung (2.97) ergibt sich damit für die Änderungsrate der phasenangepassten Signalfrequenz ω_1 als Funktion der Pumpfrequenz ω_3 ein Faktor von $\frac{d\omega_1}{d\omega_3} \approx 34$. Dieser Faktor kann mit Gleichung (3.24) verwendet werden, um den maximal möglichen, kontinuierlichen Durchstimmbereich des SROs zu berechnen, bevor ein Modensprung auftritt. Aus dem FSR des Etalons und der Änderungsrate von 34 ergibt sich daraus ein maximal möglicher, kontinuierlicher Durchstimmbereich der Idlerfrequenz von $\Delta\omega_3 = 98.5$ GHz.

Der gemessene kontinuierlich durchstimbare Wellenlängenbereich von 88.4 GHz liegt

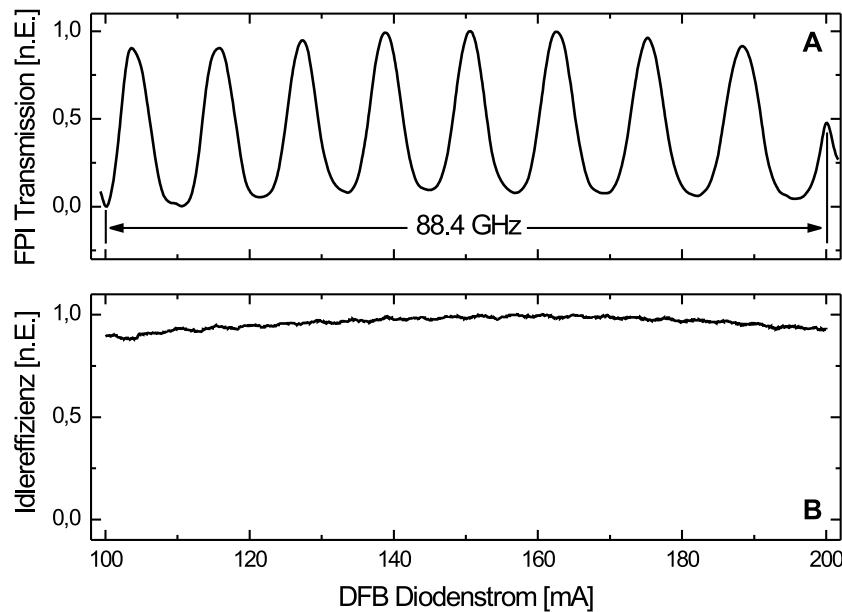


Abbildung 5.15: A: Transmissionssignal hinter einem FPI mit einer Finesse von 9 und einem FSR von 10.6 GHz. Der glatte Signalverlauf ohne erkennbare Modensprünge weist auf eine kontinuierliche Durchstimmbarkeit über 88.4 GHz hin. B: Das Verhältnis der Pump- zur Idlerleistung als Funktion des DFB-Diodenstroms. Die Abhängigkeit des Signals vom DFB-Diodenstrom ist zwischen 100 mA und 200 mA konform mit der Änderung des Transmissionssignals aus Abbildung 5.15A.

sehr nahe am theoretisch zu erwartenden Wert von 98.5 GHz. Der maximale bisher erzielte Durchstimmbereich eines Diodenlaser gepumpten einfach-reonanten cw-OPO lag bei 56 GHz [23]. Allerdings wurden bei diesem System die Pumpwellenlängen und -leistung durch eine Variation des Spiegels der Littmann-Anordnung verändert. Das System der vorliegenden Arbeit verzichtet hierbei völlig auf Änderungen an mechanischen Komponenten, und die Idlerwellenlänge wird rein elektronisch durchgestimmt. Dabei konnte der maximale Durchstimmbereich um mehr als den Faktor 1.5 vergrößert werden, obwohl die Pumpwellenlängenvariation um fast den Faktor 2 verringert ist.

In der Praxis ermöglicht der weite Durchstimmbereich von mehr als 88 GHz bei spektroskopischen Anwendungen die Aufnahme mehrerer Moleküllinien mit nur einer Wellenlängenänderung. Die rein elektronische Abstimmung und damit der Verzicht auf eine Veränderung mechanischer Komponenten, hat dabei den Vorteil, dass mögliche mechanische Schwankungen von Anfang an ausgeschlossen werden können. Außerdem ist eine elektronische Durchstimmung des Diodenstroms unkompliziert und es lässt sich ein kompakter,

einfach integrierbarer Aufbau des Systems realisieren. Eine Stabilisierung der Wellenlänge des Diodenlasers durch einen konstanten Diodenstrom bzw. durch Nachführen des Diodenstroms ist einfacher durchführbar als die Stabilisierung mechanischer Komponenten wie z.B. die Position des Spiegels der Littmann-Anordnung oder die aktive Stabilisierung von Resonatorspiegeln.

5.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde zunächst der Diodenlaser gepumpte einfach-resonante cw-OPO charakterisiert. Die maximale Ausgangsleistung der Idlerstrahlung betrug im Fall ohne eingebautes Etalon knapp 420 mW bei einer Schwellpumpleistung von 1.85 W. Durch geeignete Spiegelbeschichtungen und ein geeignetes Resonatordesign wurde ein einfach-resonanter Betrieb für die Signalstrahlung erreicht mit einer Linienbreite von weniger als 10 MHz. Die Idlerstrahlung lief ebenfalls auf nur einer Mode mit einer Linienbreite von weniger als 10 MHz. Bei beiden Messungen wurde jeweils das Auflösungsvermögen des eingesetzten FPIs erreicht.

Die Signal- und Idlerwellenlängen ließen sich über verschiedene Verfahren durchstimmen. Dabei wurden jeweils einer der Parameter Kristalltemperatur, Polungsperiode oder Pumpwellenlänge variiert, während die anderen konstant gehalten wurden. Bei der Variation der Kristalltemperatur und der Polungsperiode konnte jeweils der komplette Beschichtungsbereich der Resonatorspiegel verwendet werden (Signalwellenlänge zwischen $1.55\ \mu\text{m}$ und $1.7\ \mu\text{m}$, Idlerwellenlänge zwischen $2.02\ \mu\text{m}$ und $2.28\ \mu\text{m}$). Die Kristalltemperatur wurde zwischen $150.5\ ^\circ\text{C}$ und $160\ ^\circ\text{C}$ variiert und die Polungsperioden zwischen $26.0\ \mu\text{m}$ und $26.4\ \mu\text{m}$. Bei der Pumpwellenlängenvariation konnte die Signalwellenlänge von $1.59\ \mu\text{m}$ bis $1.63\ \mu\text{m}$ (Idlerwellenlänge entsprechend von $2.13\ \mu\text{m}$ bis $2.2\ \mu\text{m}$) durchgestimmt werden. Die Begrenzung wird hierbei durch den eingeschränkten Änderungsbereich der Pumpwellenlänge vorgegeben. Bei allen Messungen zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung der Messergebnisse mit den theoretisch zu erwartenden Werten.

Der einfach-resonante Betrieb des OPO wurde durch verschiedene Messungen belegt. Dabei wurde zum einen die Signalleistung bei sich ändernder Resonatorlänge untersucht sowie zeitgleich das Transmissionssignal der Signalstrahlung hinter einem FPI mit geringer Finesse aufgezeichnet. Aus beiden Untersuchungen ergab sich eindeutig ein einfach-resonanter Betrieb des SRO.

Abschließend wurde die weite kontinuierliche Durchstimmbarkeit des Systems untersucht. Dabei wurde die Pumpwellenlänge mit Hilfe einer Änderung der DFB-Diodenstroms variiert. Durch den Einbau eines $30\ \mu\text{m}$ dicken Etalons wurde die Signalwelle auf einer Frequenz festgehalten und die Änderung der Pumpfrequenz direkt auf die Idlerwellenlän-

ge übertragen. Die Idlerfrequenz konnte damit um 88.4 GHz durchgestimmt werden, was den größten bisher erzielten Durchstimmbereich eines Diodenlaser gepumpten einfach-resonanten cw-OPOs darstellt.

Die Wellenlängendurchstimmung des in dieser Arbeit vorgestellten Aufbaus ist nicht mehr abhängig von der Änderung mechanischer Komponenten, sondern erfolgt rein elektronisch. Damit wurde ein modensprungfrei durchstimmbarer cw-SRO realisiert, dessen Idlerwellenlänge rein elektronisch abstimmbar ist und dessen Ausgangsleistung über einen weiten Durchstimmbereich nahezu konstant bleibt. Der SRO oszilliert dabei zu jeder Zeit auf nur einer longitudinalen Resonatormode. Die emittierte Idlerstrahlung hat während der Durchstimmung eine spektrale Linienbreite von maximal 10 MHz und befindet sich damit im Bereich kommerziell erhältlicher Diodenlaser, die für die Spektroskopie verwendet werden. Diese Vorbetrachtungen verdeutlichen das Potential dieses Systems zum Beispiel bei spektroskopischen Anwendungen wie Spurengasanalysen, da es in Spektralbereichen arbeitet, für die noch keine kompakten und elektronisch abstimmbaren, kommerziellen Systeme erhältlich sind. Zur Demonstration werden im folgenden Kapitel mit Hilfe des SRO spektroskopische Untersuchungen an einer Gasprobe durchgeführt.

Kapitel 6

Spektroskopische Anwendung des cw-SRO

6.1 Kontinuierlich abstimmbare cw-OPOs und spektroskopische Anwendungen

Im mittleren IR-Bereich (MIR) besitzen nahezu alle Moleküle Rotations- und Schwingungsübergänge aus deren Grundzustand [113]. Deshalb ist dieser Wellenlängenbereich besonders interessant für spektroskopische Anwendungen. Die Frequenzabstände sowie die Intensitäten der Übergänge sind dabei typisch für die entsprechenden Moleküle. Dadurch können sie verwendet werden, um Substanzen in Verbindungen zu identifizieren und deren Anteile zu quantifizieren.

Der Einsatz von Strahlquellen für die Spektroskopie im MIR stellt besondere Anforderungen an diese Systeme. Eine ideale Strahlquelle für die Spektroskopie sollte sich durch folgende Eigenschaften auszeichnen [1]:

- Ausreichend hohe optische Leistungen und eine hohe Strahlqualität, um eventuell auftretendes elektronisches Rauschen zu überwiegen und damit ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis zu garantieren.
- Linienbreiten, die weitaus geringer als die Breite von molekularen Absorptionslinien sind, um damit eine größtmögliche Auflösung zu erzielen.
- Einfache Wellenlängenabstimmbarkeit, um die je nach Molekül variierende erforderliche Absorptionsfrequenz einstellen zu können.

- Geringe Temperatur- und Stromschwankungen der Laseransteuerung, um eine hohe Wellenlängenstabilität zu erzielen.
- Langzeitstabilität der Wellenlänge und der räumlichen Ausgangscharakteristik.
- Schnelle Wellenlängenabstimmbarkeit, die ein schnelles Ansprechverhalten auf sich ändernde experimentelle Bedingungen ermöglicht.
- Kompakter und robuster Aufbau, um den Einsatz in kommerziellen Produkten zu gewährleisten.

Die Herausforderung, diese Eigenschaften gemeinsam zu erfüllen, ist groß und bei kommerziell eingesetzten Laserstrahlquellen im MIR im Allgemeinen nicht erfüllbar. Einige dieser Eigenschaften sind dabei wichtiger für die optimale Effizienz einer Messung wie andere. Die Liste soll daher nur als Richtlinie für die weiteren Betrachtungen in den folgenden Abschnitten dienen.

Kontinuierlich emittierende Laserstrahlquellen zum Einsatz in der Spektroskopie im MIR lassen sich grob in zwei Klassen unterteilen. Zum einen Strahlquellen, die direkt abstimmbare MIR-Strahlung erzeugen, z.B. durch Gasentladung, Halbleiterlaser und Festkörper- oder Faserlaser. Zum anderen wird Strahlung durch Frequenzkonversion bei nichtlinearen optisch parametrischen Prozessen erzeugt, z.B. DFG oder OPO. Die folgenden Betrachtungen werden auf die zweite Klasse beschränkt. Dazu werden einige geeignete Lasersysteme diskutiert, die als potentielle Pumpquellen für die optisch parametrische Frequenzkonversion dienen. Sie emittieren zwar nicht direkt im MIR, arbeiten aber in Wellenlängenbereichen vom Sichtbaren bis in das nahe Infrarot (NIR). Mit Hilfe der Frequenzkonversion kann die Emissionswellenlänge in den MIR umgewandelt werden. Durch geeignete Maßnahmen lassen sich dabei ihre spektroskopischen Eigenschaften (wie z.B. Linienbreite, Durchstimmbarkeit etc.) beibehalten und ebenfalls in den MIR transferieren [1].

External cavity diode lasers (ECDL):

Einen vielversprechenden Ansatz als Strahlquellen zur Frequenzkonversion bieten Diodenlaser mit externem Resonator (*external cavity diode lasers, ECDL*). Der externe Resonator schränkt das normalerweise breite Verstärkungsspektrum des Diodenlasers ein und selektiert eine bestimmte Wellenlänge. Es wurden unterschiedliche Bauformen realisiert und die Frequenz konnte über einen Bereich von mehr als 1000 GHz modesprungfrei abgestimmt werden [114–117]. Allerdings beruht bei diesen Systemen die Frequenzänderung auf mechanischen Bewegungen eines Gitters bzw. Spiegels. Dies kann in Umgebungen mit Erschütterungen oder sonstigen Störungen zu ungewollten Frequenzschwankungen des

Pumpsystems führen und damit zu Schwankungen der Frequenz der im Konversionsprozess erzeugten Strahlung. Eingesetzt werden diese Laserstrahlquellen im Bereich zwischen $0.65\ \mu\text{m}$ und $1.655\ \mu\text{m}$ mit Leistungen im Milliwatt-Bereich.

Difference frequency generation (DFG):

Die DFG ist in Kapitel 2.1.4 ausführlich beschrieben. Bei diesem nichtlinearen Prozess wird aus einer Pump- und einer Signalwelle mit unterschiedlicher Frequenz in einem nichtlinearen Material eine Welle (Idlerstrahlung) mit der Differenzfrequenz erzeugt. Mit der DFG werden typische Leistungen im Bereich von Nano- bis Microwatt erzielt. Die Konversionseffizienz bei DFG Prozessen liegt typischerweise im Bereich von $0.002 - 0.05\ \% \text{ W}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ [118]. Die maximale optische Leistung, die auf diesem Weg erzielt wurde, liegt bei $1\ \text{mW}$ [119] und ist damit in vielen Fällen nicht ausreichend für eine hochpräzise und hochauflösende Messung. Speziell bei Messungen im Bezug auf Mischungsverhältnisse oder Konzentrationsangaben im ppb (*parts per billion*, $1 : 10^9$) Bereich sind durch die geringen MIR-Leistungen lange Messdauern notwendig [120].

Abstimmbare, kontinuierlich emittierende OPOs:

Einfach resonante, kontinuierlich emittierende OPOs sind in der Spektroskopie von besonderem Interesse aufgrund ihrer einfachen Abstimbarkeit der Wellenlänge durch beispielsweise die Änderung der Resonatorlänge oder der Wellenlänge der Pumpstrahlung. Für den Betrieb solcher Strahlquellen wurden bisher Diodenlaser [23, 105], Festkörperlaser [120–124] und Diodenlaser in Kombination mit Faserverstärkern [125–129] eingesetzt. Festkörperlaser bieten eine exzellente Strahlqualität verbunden mit einer hohen Ausgangsleistung. Allerdings bestehen die meisten dieser Pumpquellen aus mit Seltenen Erden dotierten Kristallen (YAG oder YVO_4) und lassen nur bei ganz bestimmten Wellenlängen einen effizienten Betrieb zu, bei gleichzeitig guter Strahlqualität und ausreichend hoher Leistung. Die Wellenlängenabstimmung wird bei diesen Systemen meist durch eine Temperaturänderung des Laserkristalls durchgeführt, was einen sehr langsamen Prozess darstellt. Außerdem ist der Durchstimmbereich aufgrund der geringen Verstärkungsbandbreite von Festkörperlaser auf einige GHz beschränkt. Die Aufnahme mehrerer nebeneinander liegender Absorptionslinien in einer Messung ist daher, je nach Linienabstand, meist nur begrenzt oder gar nicht durchführbar. Bei Diodenlasern in Kombination mit Faserverstärkern wird die Frequenz meist durch eine Änderung der Resonatorlänge des OPOs durchgestimmt oder über eine Änderung der Polungsperiode im nichtlinearen Medium durch Verschieben des Kristalls variiert. Diese Verfahren sind mechanische Prozesse, die empfindlich auf äußere Einflüsse wie z.B. Erschütterungen oder Temperaturschwankungen

reagieren. Durch die Bewegung mechanischer Komponenten im Resonator ist eine exakte Durchstimmung der Wellenlänge schwieriger, da schon kleine mechanische Störungen für Frequenzänderungen sorgen können. Die Eigenschaft, dass die Emissionswellenlänge eines Diodenlasers vom Diodenstrom abhängt (siehe Kapitel 4.1.4), verdeutlicht ihr Potential als Alternative zu den Pumplasern der bisher diskutierten Systeme.

Ein direkt durch einen Diodenlaser gepumpter, kontinuierlich emittierender einfach-resonanter OPO wurde bisher lediglich einmal realisiert [105]. Die Frequenz dieses SROs wurde zwar über einen Bereich von 56 GHz kontinuierlich durchgestimmt, allerdings war das System in der Littmann-Anordnung aufgebaut und die Abstimmung der Wellenlänge erfolgte auch hier mechanisch über die Drehung eines Spiegels.

Das System in dieser Arbeit liefert mit mehr als 88 GHz dagegen einen größeren Durchstimmungsbereich der Idlerfrequenz, wobei die Wellenlänge der Idlerwelle lediglich durch eine Variation des Diodenstroms der DFB-Diode erfolgt. Der Pumplaser ist somit komplett unabhängig von äußeren mechanischen Einflüssen und der OPO kann aufgrund der elektronischen Ansteuerung sehr einfach durchgestimmt und stabilisiert werden. Der Durchstimmungsbereich kann leicht durch die Verwendung anderer Polungsperioden im Kristall oder anderer Materialien auf weitere Bereiche ausgedehnt werden. Durch die schmale Linienbreite, die hohe Leistung und den großen kontinuierlichen Durchstimmungsbereich ohne Modensprünge lassen sich mit diesem System Absorptionslinien mit hoher Auflösung vermessen. Mehrere nebeneinander liegende Absorptionslinien können ebenfalls hochauflösend in einer Messung gleichzeitig aufgezeichnet werden.

Um die Verwendungsmöglichkeit des in dieser Arbeit vorgestellten SROs für die Molekülspektroskopie zu demonstrieren, wurden exemplarisch Messungen an einer Probe durchgeführt. Dabei wurden Absorptionmessungen an einer mit Distickstoffmonoxid (N_2O oder Lachgas) befüllten Gaszelle realisiert. Es konnte so die Linienbreite einer Moleküllinie mit einer hohen Auflösung vermessen werden (siehe Kapitel 6.4) sowie in einer einzigen Messung mehrere nebeneinanderliegende Absorptionslinien aus einer Rotations-Schwingungsbande bei 4733 cm^{-1} gleichzeitig und hochauflösend aufgezeichnet werden (siehe Kapitel 6.5).

6.2 Experimenteller Aufbau

In Abbildung 6.1 ist der experimentelle Aufbau des SRO für die Absorptionsexperimente dargestellt. Der Aufbau gleicht dabei der aus Kapitel 5.1 bekannten Anordnung. Der SRO wird mit einem Etalon zwischen den Spiegeln M3 und M4 betrieben, um eine kontinuierliche Durchstimmung der Idlerwellenlänge bei konstanter Signalwellenlänge zu gewährleisten. Die Idlerstrahlung wurde hinter dem SRO mit Hilfe halbtransparenter Spiegel

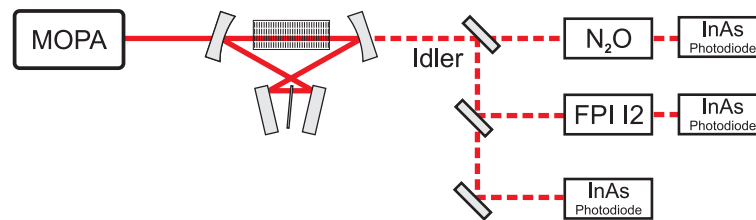


Abbildung 6.1: Modifizierter Aufbau zur Messung von Absorptionsspektren von N_2O .

in drei Teilstrahlen aufgeteilt. Die Spiegel waren für die jeweiligen emittierten Wellen beschichtet und trennten die Idlerstrahlung von der Pump- und Signalstrahlung. Einer der Teilstrahlen durchläuft zunächst eine Gaszelle mit der Probe und trifft anschließend auf eine Photodiode, die die Transmission der Idlerstrahlung detektiert. Als Probe wurde 50 mbar N_2O bei Raumtemperatur verwendet. Die Gaszelle ist 20 cm lang und wurde in einem kleinen Winkel in den Strahlengang eingefügt, um Etalonneffekte an den beiden unbeschichteten Glasfenstern zu unterdrücken. Der zweite Teilstrahl durchläuft ein FPI (*FPI I2*) und trifft anschließend ebenfalls auf eine Photodiode, die das transmittierte Idlersignal aufzeichnet. Das FPI hatte eine Finesse von 4 und einen FSR von 8 GHz. Durch die geringe Finesse des FPI sind eventuell auftretende Modensprünge direkt erkennbar. Durch das FPI ist es möglich, den Durchstimmbereich des SROs aufzuzeichnen, um die Linienbreite und -abstände messen zu können. Der dritte Teilstrahl wird direkt mit einer Photodiode aufgezeichnet und dient als Referenzsignal. Zur Vergleichbarkeit der drei Signale waren die drei Photodioden vom gleichen Typ (*Judson Technologies, J12-18C-R250U*). Das Material der Photodioden war InAs.

Der Kristall wurde auf 155 °C geheizt und die Idlerwellenlänge betrug ca. 2.1 μm . Zur Bestimmung der Idlerwellenlänge wurde die im Resonator erzeugte Summenwellenlänge verwendet. Die Summenwellenlänge wird parasitär durch QPM höherer Ordnung erzeugt und ergibt sich aus der Kombination aus Pumpwelle und Signalwelle. Sie liegt daher bei diesem System im sichtbaren Wellenlängenbereich bei ca. 590 nm. Der Prozess wird analog zur DFG mit *Summenfrequenz-Erzeugung* (SFG) bezeichnet. Die Summenwellenlänge wurde mit einem Spektrometer der Firma *Ocean Optics (HR4000)* mit einer Auflösung von 0.6 nm im sichtbaren Spektralbereich gemessen. Aus der gemessenen Wellenlänge der erzeugten Summenstrahlung kann die Idlerwellenlänge berechnet werden.

6.3 Rotations-Schwingungsspektrum von N_2O

Distickstoffmonoxid ist ein farbloses, diamagnetisches Gas mit einem schwachen, süßlichen Geruch und lässt sich leicht zu einer Flüssigkeit verdichten. Da es eine schwach betäubende Wirkung zeigt, findet es in verflüssigtem Zustand als Analgetikum in der Me-

dizin Anwendung. Aber auch in anderen Bereichen wie bei Lebensmitteln als Treibgas für z.B. Sahnespender wird es eingesetzt [130]. Bei N_2O handelt es sich um ein dreiatomiges ($N = 3$) Molekül mit einer molaren Masse von 44.01 g/mol [131]. Die Strukturformel von N_2O ist in Abbildung 6.2 dargestellt.



Abbildung 6.2: Strukturformel von N_2O .

N_2O ist ein lineares Molekül und besitzt daher nur zwei Freiheitsgrade der Rotation. Darum bleiben genau 4 Freiheitsgrade ($3 \cdot N - 5$) für die Schwingung des Moleküls übrig [132]. Moleküle absorbieren im Infraroten aufgrund von Schwingungs-Rotationsübergängen. Die Energiezustände, die die Rotation oder Schwingung des Moleküls beschreiben, sind für dreiatomige Moleküle sehr komplex zu definieren. Eine analytische Beschreibung würde weit über den Rahmen dieser Arbeit hinausgehen. Zum Verständnis der experimentellen Ergebnisse genügt es, das Auftreten von Schwingungs-Rotations-Spektren zu erklären und die Nomenklatur von Schwingungszuständen von Molekülen zu erläutern. Für diese Betrachtungen genügt es, die Eigenschaften zweiatomiger Moleküle zu betrachten. Diese Betrachtungen können dann zum Verständnis der weiteren experimentellen Untersuchungen ebenso auf dreiatomige Moleküle, in diesem Fall N_2O , angewendet werden.

Rotation zweiatomiger Moleküle

Ein zweiatomiges Molekül kann um seinen Schwerpunkt rotieren und wird als *starrer Rotator* bezeichnet. Das Molekül besitzt eine Rotationsenergie von

$$E_{\text{rot}} = \frac{1}{2} \theta \omega^2 = \frac{\vec{J}^2}{2\theta}. \quad (6.1)$$

θ beschreibt das Trägheitsmoment des Moleküls bezüglich der Rotationsachse. $|\vec{J}| = \theta \cdot \omega$ ist der entsprechende Drehimpulsbeitrag. Das Betragsquadrat des Drehimpulses darf nur diskrete Werte annehmen [133]. Es gilt daher:

$$\vec{J}^2 = J(J+1) \cdot \hbar^2 \quad (6.2)$$

mit den Quantenzahlen $J = 0, 1, 2, \dots$. Die Rotationsenergie im Gleichgewichtszustand lautet damit:

$$E_{\text{rot}} = \frac{J(J+1)\hbar^2}{2 \cdot \theta}. \quad (6.3)$$

Die Abstände zwischen den diskreten Werten der Rotationsenergie sind:

$$\Delta E_{rot} = E_{rot}(J+1) - E_{rot}(J) = \frac{(J+1) \cdot \hbar^2}{\theta}. \quad (6.4)$$

Die Abstände nehmen linear mit J zu. Die Rotationsenergien zweiatomiger Moleküle liegen im Bereich von $(10^{-6} - 10^{-2}) \cdot J(J+1)$ eV. Die Rotationsübergänge befinden sich im Wellenlängenbereich der Mikrowellen zwischen 10^{-5} m und 10^{-1} m [132]. In der Spektroskopie ist es üblich, Termwerte von Energieniveaus ($F(J) = E(J)/hc$) anzugeben:

$$F(J) = \frac{J(J+1) \cdot \hbar^2}{2hc \cdot \theta} = J(J+1) \cdot B \quad (6.5)$$

mit der Rotationskonstanten $B = \hbar/4\pi c \cdot \theta$. Historisch bedingt werden die Termwerte $F(J)$ in cm^{-1} (Wellenzahlen) angegeben.

Wird eine elektromagnetische Welle von Molekülen absorbiert, entsprechen den Übergängen zwischen den Rotationsniveaus J und $(J+1)$ Absorptionsfrequenzen $\nu_{rot} = (E(J+1) - E(J))/\hbar$. In Wellenzahleneinheiten lauten die Absorptionsfrequenzen:

$$\bar{\nu}_{rot}(J) = B \cdot 2 \cdot (J+1). \quad (6.6)$$

Nur Moleküle mit einem permanenten Dipolmoment können Strahlung auf reinen Rotationsübergängen absorbieren. Homonukleare zweiatomige Moleküle haben daher kein reines Rotationsspektrum. Effekte wie die Zentrifugalaufweitung oder der Einfluss der Elektronenbewegung ändern die Termwerte [132]. Bei der Zentrifugalaufweitung wird durch die Rotation des Moleküls der Kernabstand vergrößert und dadurch das Trägheitsmoment erhöht. Die Rotationsenergie wird dann bei gleichem Drehimpuls kleiner. Die Elektronenbewegung hat Einfluss auf den Gesamtdrehimpuls $\vec{J}$ des Moleküls.

Schwingung zweiatomiger Moleküle

Befindet sich ein Molekül nicht in Rotation, sondern nur in Schwingung, dann ist seine Rotationsquantenzahl $J = 0$. Eine Zentrifugalkraft ist nicht vorhanden, und die Energie der Schwingungsniveaus kann geschrieben werden als:

$$E_{vib}(v) = \hbar\omega \left(v + \frac{1}{2} \right) - \frac{\hbar^2\omega^2}{4E_D} \left(v + \frac{1}{2} \right)^2. \quad (6.7)$$

v ist die Schwingungsquantenzahl und E_D beschreibt die Dissoziationsenergie des Moleküls. Die Abstände benachbarter Schwingungsniveaus sind:

$$\Delta E(v) = E(v+1) - E(v) = \hbar\omega \left(1 - \frac{\hbar\omega}{2E_D}(v+1)\right). \quad (6.8)$$

Die Abstände nehmen entsprechend mit wachsender Schwingungsquantenzahl v ab, bleiben aber bis zum Erreichen der Dissoziationsenergie E_D endlich.

Schwingungs-Rotationsübergänge zweiatomiger Moleküle

Im Allgemeinen befinden sich Moleküle gleichzeitig sowohl in einem Rotations- als auch in einem Schwingungszustand. Die Schwingungsfrequenz ist dabei um ein oder zwei Größenordnungen höher als die Rotationsfrequenz. Der Kernabstand ändert sich daher während der Rotation dauernd. Der Drehimpuls $\vec{J} = \theta \cdot \omega$ eines freien Moleküls ist zeitlich konstant. Allerdings ändert sich aufgrund der Schwingung der Abstand der Kerne R und dadurch das Trägheitsmoment $\theta = M \cdot R^2$ periodisch. Die Rotationsfrequenz ω_{rot} schwankt daher mit der Schwingungsfrequenz ω_{vib} und die Rotationsenergie (6.3) ist abhängig vom Kernabstand R . Die Gesamtenergie des Systems $E = E_{rot} + E_{vib} + E_{pot}$ muss konstant bleiben. Daher findet über die gesamte Zeit ein Austausch der Energie zwischen Rotation, Schwingung und potentieller Energie statt [132].

Wenn die Übergangswahrscheinlichkeit eines Übergangs zwischen zwei Molekülzuständen, $E_i(n_i, \Lambda_i, v_i, J_i) \mapsto E_k(n_k, \Lambda_k, v_k, J_k)$, ungleich Null ist, kann Strahlung absorbiert oder emittiert werden. n_x ist die Hauptquantenzahl des Zustandes x und Λ_x ist die Projektionsquantenzahl der elektronischen Bahndrehimpulse. Die Übergangswahrscheinlichkeit ist proportional zum Quadrat des Übergangsdipolmoments (auch *Dipolmatrixelement* genannt). Mit Hilfe der Matrixelemente der Übergänge können die relativen Intensitäten der entsprechenden Spektrallinien berechnet werden. Das Dipolmatrixelement eines Übergangs zwischen zwei Zuständen mit den Wellenfunktionen $\psi(\vec{r}, \vec{R}) = \psi_{el}(\vec{r}, R) \cdot \chi_N(\vec{R})$ lautet [132]:

$$\vec{M}_{ik} = \int \psi_{iel}^* \cdot \chi_{iN}^*(\vec{p}_{el} + \vec{p}_N) \psi_{kel} \cdot \chi_{kN} d\tau_{el} d\tau_N. \quad (6.9)$$

χ_N ist die Kernwellenfunktion und $\vec{p} = \vec{p}_{el} + \vec{p}_N = -e \cdot \sum \vec{r}_i + Z_1 e \vec{R}_1 + Z_2 e \vec{R}_2$ ist der Dipoloperator, der von den Elektronen- und Kernkoordinaten abhängt. Findet der Übergang innerhalb des gleichen elektronischen Zustandes statt, dann ist $\psi_{iel} = \psi_{kel}$. Diese Übergänge bilden für gleiche Schwingungsquantenzahlen ($v_i = v_k$) ein Rotationsspektrum im Mikrowellenbereich. Wenn $v_i \neq v_k$, dann bilden sie ein Schwingungs-Rotations-Spektrum im IR-Bereich (2 - 10 μm).

Nun gilt es, homonukleare und heteronukleare Moleküle zu unterscheiden. Bei homonuklearen Molekülen ist $Z_1 = Z_2$ und es gilt $M_1 = M_2$. Damit sind die Abstände der Kerne

$\vec{R}_1 = -\vec{R}_2$ und $\vec{p} = 0$. Damit wird das Dipolmatrixelement (6.9) $\vec{M}_{ik} = 0$, d.h. bei homonuklearen Molekülen finden in Dipolnäherung keine Schwingungs-Rotationsübergänge innerhalb des gleichen elektronischen Zustandes statt.

Bei heteronuklearen Molekülen kann das Matrixelement (6.9) in zwei Faktoren zerlegt werden. Mit Hilfe der Kernwellenfunktion $\chi_N(R, \vartheta, \varphi) = S(R) \cdot Y_J^M(\vartheta, \varphi)$ lautet das Matrixelement [132]:

$$\vec{M}_{ik} = e \cdot \frac{M_2 Z_1 - M_1 Z_2}{M_1 + M_2} \cdot \int S_{v_i}(R) \cdot S_{v_k}(R) \cdot R^3 dR \cdot \int Y_{J_i}^{M_i} \cdot Y_{J_k}^{M_k} \frac{\vec{p}_N}{|\vec{p}_N|} \cdot \sin\vartheta \sin\varphi d\varphi. \quad (6.10)$$

$S(R)$ ist die Schwingungswellenfunktion und Y_J^M ist die Wellenfunktion, die die Rotation beschreibt. Für das erste Integral kann im Fall eines harmonischen Potentials die Auswahlregel $\Delta v = v_i - v_k = 0, \pm 1$ angewendet werden. Es gibt damit nur Übergänge innerhalb des gleichen Schwingungsniveaus (reine Rotationsübergänge) oder Schwingungs-Rotationsübergänge zwischen benachbarten Niveaus. Bei einem anharmonischen Potential sind auch Übergänge mit höheren Schwingungsquantenzahlen möglich ($\Delta v = 2, 3, 4, \dots$), allerdings ist die Wahrscheinlichkeit gering und die Intensität der Spektrallinien nimmt mit zunehmender Schwingungsquantenzahl ab.

Da das absorbierte oder emittierte Photon einen Drehimpuls $1 \cdot \hbar$ hat, der vom Molekül bei der Absorption aufgenommen wird bzw. bei der Emission abgegeben wird, gilt die Auswahlregel für die Rotationsquantenzahl $\Delta J = J_i - J_k = \pm 1$. In anderen Fällen ist das zweite Integral in Gleichung (6.10) immer Null. Jeder Rotationszustand kombiniert demnach nur mit seinen beiden benachbarten Zuständen unter Emission oder Absorption von Strahlung. Entsprechend dieser Auswahlregel gibt es bei gleichzeitiger Änderung des Schwingungszustandes zwei Möglichkeiten:

$$\Delta J = +1 \quad \text{R-Linien}$$

$$\Delta J = -1 \quad \text{P-Linien.}$$

Alle Rotationslinien eines Schwingungsüberganges bilden zusammen eine Schwingungsbande, auch Schwingungszweig genannt. Die einzelnen Linien werden durch die Wellenzahlen beschrieben:

$$\begin{aligned} \bar{\nu}(v', J' \leftrightarrow v'', J'') &= \bar{\nu}_0 + B'_v J'(J' + 1) - D'_v J'^2(J' + 1)^2 \\ &\quad - (B''_v J''(J'' + 1) - D''_v J''^2(J'' + 1)^2), \end{aligned} \quad (6.11)$$

mit den Rotationskonstanten B und D . Dabei wurden, wie in der Molekülphysik üblich, die Quantenzahlen des oberen Zustandes mit einem Strich gekennzeichnet (v', J'), die des unteren Zustandes mit zwei Strichen (v'', J''). $\bar{\nu}_0$ heißt Bandenursprung oder Nulllinie. Der R-Zweig erstreckt sich auf der höherfrequenten Seite des Bandenursprungs, der P-Zweig erstreckt sich entlang der kleineren Wellenzahlen.

Rotation mehratomiger Moleküle

Der einzige Unterschied eines rotierenden, mehratomigen, linearen Moleküls zum starren Rotator ist, dass das Trägheitsmoment θ in (6.5) durch die Summe der Trägheitsmomente ersetzt werden muss [134]:

$$\theta = \sum_{i=1}^N m_i r_i^2. \quad (6.12)$$

m_i sind die Massen der N Atome und r_i ihre Abstände zum Schwerpunkt. Das Rotationsspektrum mehratomiger, linearer Moleküle hat die gleiche Struktur (6.6) wie das des zweiatomigen Rotators. Bedingt durch das deutlich größere Trägheitsmoment mehratomiger Moleküle und die damit verbundene kleinere Rotationskonstante B liegt das Rotationsspektrum im noch längerwelligen IR-Spektralbereich.

Schwingungen mehratomiger Moleküle

Zur Beschreibung der in dieser Arbeit verwendeten Nomenklatur der gemessenen Schwingungszustände werden diese Betrachtungen ebenfalls auf mehratomige Moleküle erweitert. Die gesamte Schwingungsenergie muss durch die Summe der einzelnen Normalschwingungen mit den Frequenzen ω_i ausgedrückt werden und lautet:

$$E_{vib} = \sum_i \hbar \omega_i \cdot \left(v_i + \frac{d_i}{2} \right). \quad (6.13)$$

v_i ist die Zahl der Schwingungsquanten der i -ten Normalschwingung und d_i ist der Entartungsgrad, der beispielsweise zweifach entartete Schwingungen doppelt aufsummiert. Der Schwingungszustand des Moleküls wird durch den Ausdruck $(v_1, v_2, \dots, v_n)$ beschrieben. Die Zahl der Schwingungsquanten beschreibt die Anzahl der angeregten Schwingungen des Moleküls.

Bei linearen dreiatomigen Molekülen wie z.B. N_2O tritt eine Besonderheit auf. Die Knickschwingung des Moleküls ist entartet und es ergibt sich eine Kreisbewegung um die Molekülachse. Diese Kreisbewegung kann zu einem Drehimpuls der Kernbewegung für die

einzelnen Kerne führen, ohne dass sich das gesamte Kerngerüst wirklich dreht [132]. Der Schwingungsdrehimpuls wird durch einen Wert n , der zum Schwingungsquant v_2 gehört, beschrieben. Der Schwingungszustand eines dreiatomigen, linearen Moleküls lässt sich daher als (v_1, v_2, n, v_3) schreiben, wobei n in Einheiten von $\hbar$ angegeben wird.

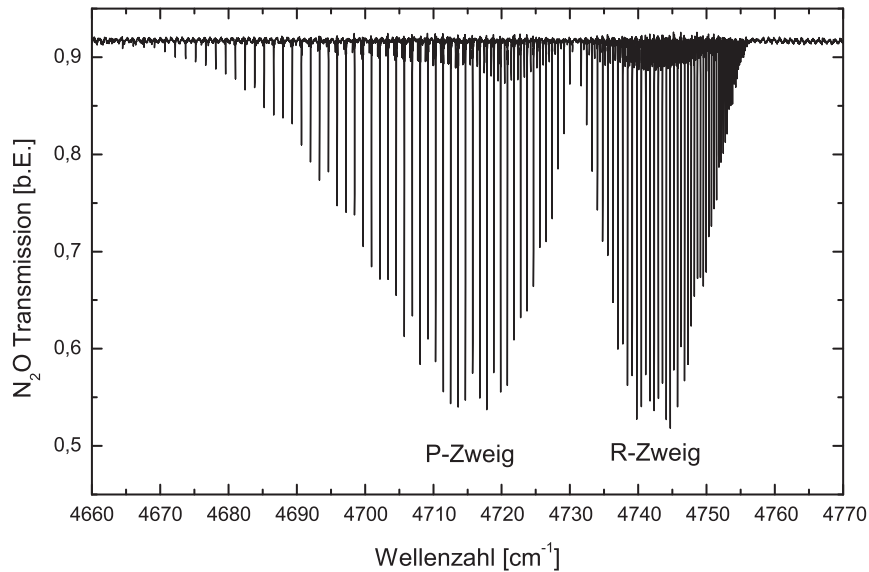


Abbildung 6.3: Mit einem FTIR Spektrometer aufgezeichnete Bande des Rotations-Schwingungs-Spektrums von N_2O mit dem Bandenursprung bei ungefähr 4733 cm^{-1} .

Ein Beispiel für einen Übergang und die daraus resultierende Schwingungsbande ist in Abbildung 6.3 dargestellt. Sie zeigt die Messung eines Schwingungs-Rotationsübergangs in N_2O mit einem FTIR (*Bruker FTIR 120*). Der Bandenursprung liegt bei ungefähr 4733 cm^{-1} und die beiden Zweige mit den unterschiedlichen Drehimpulsen $\Delta J = \pm 1$ sind deutlich erkennbar. Der Abstand der Spektrallinien nimmt mit zunehmender Wellenzahl ab. Die Bande entspricht dem Übergang von $(0,0,0,0)$ nach $(2,0,0,1)$ [113] und dient den folgenden Absorptionsmessungen des SROs zum Vergleich.

Ausgehend von den zurückliegenden Betrachtungen bedeutet die Bezeichnung des Übergangs, dass die symmetrische Streckschwingung mit zwei, die Knickschwingung mit keinem (damit auch kein Schwingungsdrehimpuls) und die asymmetrische Streckschwingung mit einem Quant angeregt ist. Den einzelnen Schwingungsquanten können Frequenzen und somit Photonenenergien zugeordnet werden. Für N_2O gelten beispielsweise folgende Frequenzen (Photonenenergien): $\nu_1 = 1284.9\text{ cm}^{-1}$ (159.3 meV), $\nu_2 = 588.77\text{ cm}^{-1}$ (73 meV), $\nu_3 = 2223.76\text{ cm}^{-1}$ (275.7 meV). Die Wahrscheinlichkeit einer Anregung nimmt

mit zunehmender Photonenenergie ab.

6.4 Hochauflösende Aufnahme einer einzelnen Moleküllinie

Mit Hilfe der kontinuierlichen Durchstimmung der Idlerwellenlänge wurde zunächst eine einzelne Moleküllinie von N_2O gemessen. Abbildung 6.4 zeigt die Transmission der Idlerstrahlung hinter der Gaszelle als Funktion der Idlerfrequenz. Die schwarz dargestellten Punkte zeigen die gemessenen Transmissionswerte, die auf die Intensität normiert wurden. Die durchgezogene Kurve zeigt die Fitkurve, die mit Hilfe eines Voigt-Linienprofils [135] an die Messwerte angepasst wurde. Als Voigt-Profil wird die Faltung eines Lorentzprofils (z.B. wegen der Dopplerverbreiterung) und eines Gaußprofils (z.B. durch die Druckverbreiterung) bezeichnet [136]. Die Dopplerverbreiterung beruht auf einer Verschiebung der Mittenfrequenz des vom Molekül in Richtung $\vec{k}$ emittierten Lichts aufgrund des Doppler-Effektes. Die Druckverbreiterung (auch Stoßverbreiterung genannt) ergibt sich aus der Wechselwirkung der einzelnen Atome untereinander und hängt vom Druck des Gasgemisches ab. Die Fitkurve stimmt sehr gut mit den gemessenen Werten überein. Während der Messung wurde die Idlerwellenlänge kontinuierlich um 8 GHz durchgestimmt.

Das gemessene Absorptionsprofil kann einer Rotationslinie im R-Zweig des (0,0,0,0) - (2,0,0,1) Übergangs bei $2.103 \mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}) [137, 138] zugeordnet werden. Bei dieser Frequenz ergibt die Dopplerverbreiterung von N_2O bei Raumtemperatur mit der Molmasse von 44.01 g/mol einen Wert von 259 MHz [136]. Unter Berücksichtigung dieser Dopplerverbreiterung ergibt sich aus der Fitkurve eine Druckverbreiterung von 295 MHz bzw. ein Druckverbreiterungskoeffizient von 5.9 MHz/mbar . Die gesamte Linienbreite beträgt 454 MHz . Für die transmittierte Intensität gilt das Lambert-Beersche Absorptionsgesetz [139]:

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\alpha x}. \quad (6.14)$$

Die Transmission $T(x)$ ergibt sich aus dem Verhältnis der durch die Probe transmittierten Intensität $I(x)$ zu der eingestrahlten Intensität I_0 :

$$T(x) = \frac{I(x)}{I_0} = 0.42.$$

Daraus und aus der Wechselwirkungslänge von $x = 20 \text{ cm}$ kann der Absorptionskoeffizient berechnet werden:

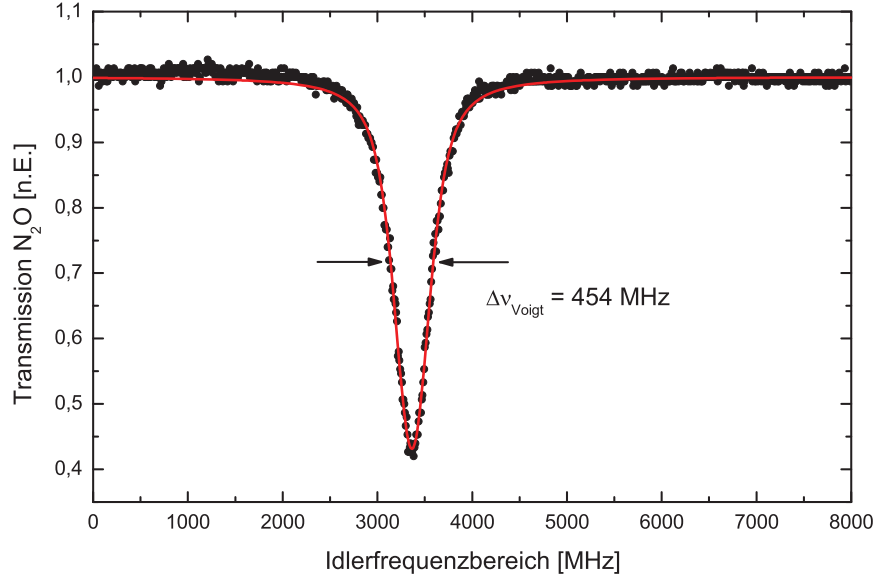


Abbildung 6.4: Absorptionsmessung einer Moleküllinie von N_2O bei einer Idlerstrahlung von $2.103 \mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}) in Abhängigkeit der Idlerfrequenz. Das Diagramm zeigt das Transmissionssignal der Idlerstrahlung hinter einer 20 cm langen Gaszelle, die mit 50 mbar N_2O gefüllt war. Die Messpunkte sind schwarz dargestellt, die rote Kurve zeigt die theoretische Näherung in Form eines Voigt-Linienprofils. Aus der berechneten Dopplerverbreiterung bei Raumtemperatur von 259 MHz und der durch den Fit ermittelten Druckverbreiterung von 295 MHz ergibt sich die gesamte Linienbreite zu 454 MHz, was sehr gut mit der theoretisch zu erwartenden Breite übereinstimmt. Der Absorptionskoeffizient beträgt $4.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$.

$$\alpha = -\frac{\ln(T(x))}{x} = 4.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}. \quad (6.15)$$

Der Druckverbreiterungskoeffizient sowie der ermittelte Absorptionskoeffizient stimmen sehr gut mit aus der Literatur bekannten Werten überein (6 MHz/mbar [23], $\alpha = 5.2 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ [140]).

Die Messung zeigt eindeutig, dass der über den DFB-Diodenstrom abstimmbare, Diodenlaser gepumpte SRO sehr gut dazu geeignet ist, das Absorptionsprofil einer einzelnen Rotationslinie eines Moleküls hochauflösend zu vermessen. Dabei konnte sowohl der Druckverbreiterungskoeffizient wie auch der Absorptionskoeffizient bestimmt werden. Beide ermittelten Werte zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit aus der Literatur bekannten Ergebnissen.

6.5 Hochauflösende Messung mehrerer nebeneinander liegender Moleküllinien

Neben dem Einsatz zur Vermessung einer einzelnen Moleküllinie des SRO kann der weite Durchstimmbereich verwendet werden, mehrere nebeneinanderliegende Absorptionslinien in einer einzigen Messung gleichzeitig und mit hoher Auflösung aufzunehmen. Diese Messung wird im Folgenden näher erläutert.

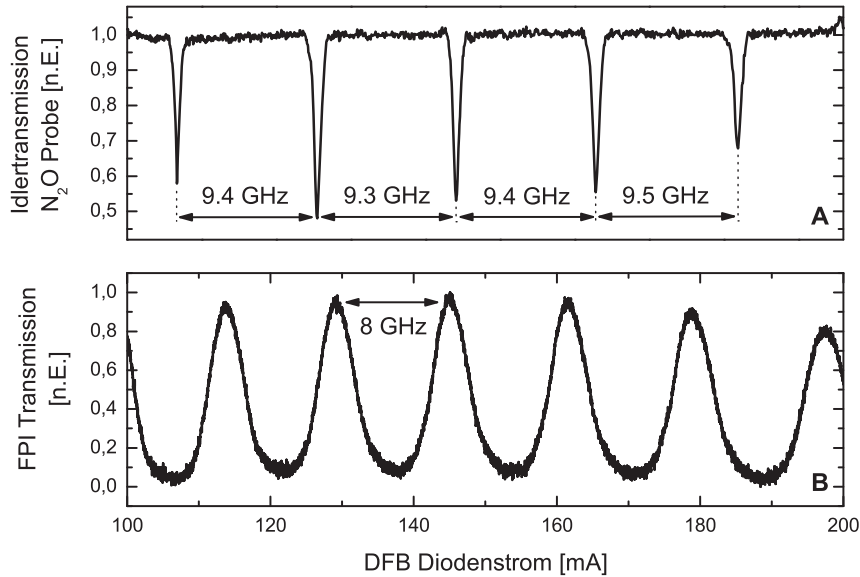


Abbildung 6.5: A: Während einer kontinuierlichen Durchstimmung der Idlerwellenlänge um 48 GHz aufgezeichnete fünf nebeneinanderliegende Moleküllinien von N_2O . B: Transmissionssignal durch ein FPI mit einer Finesse von 4 und einem FSR von 8 GHz als Funktion des DFB-Diodenstroms.

In Abbildung 6.5A ist eine Messung von fünf aufeinander folgenden Absorptionslinien aus dem R-Zweig von N_2O zu sehen. Um den Frequenzabstand der einzelnen Linien zu ermitteln, wurde gleichzeitig das Transmissionssignal durch ein FPI gemessen. Dieses Transmissionssignal ist in Abbildung 6.5B dargestellt. Die Finesse des FPI betrug 4 und sein FSR war 8 GHz. Der DFB-Diodenstrom wurde dabei zwischen 100 mA und 200 mA variiert. Durch Abzählen der Transmissionsmaxima kann ein kontinuierlicher Durchstimmbereich der Idlerstrahlung von 48 GHz ermittelt werden. Unter Verwendung dieser Maxima als Kalibrierung betragen die gemessenen Frequenzabstände in Abbildung 6.5A zwischen 9,3 GHz und 9,5 GHz. Diese Werte liegen in sehr guter Übereinstimmung mit veröffent-

lichten Werten von 9 GHz [141]. Ein vom Aufbau her vergleichbares System lieferte hier gemessene Frequenzabstände zwischen 20.6 GHz und 20.9 GHz [23]. Diese Werte sind doppelt so groß wie die veröffentlichten Frequenzabstände und weichen dadurch deutlich von den aus der Literatur erwarteten Linienabständen ab.

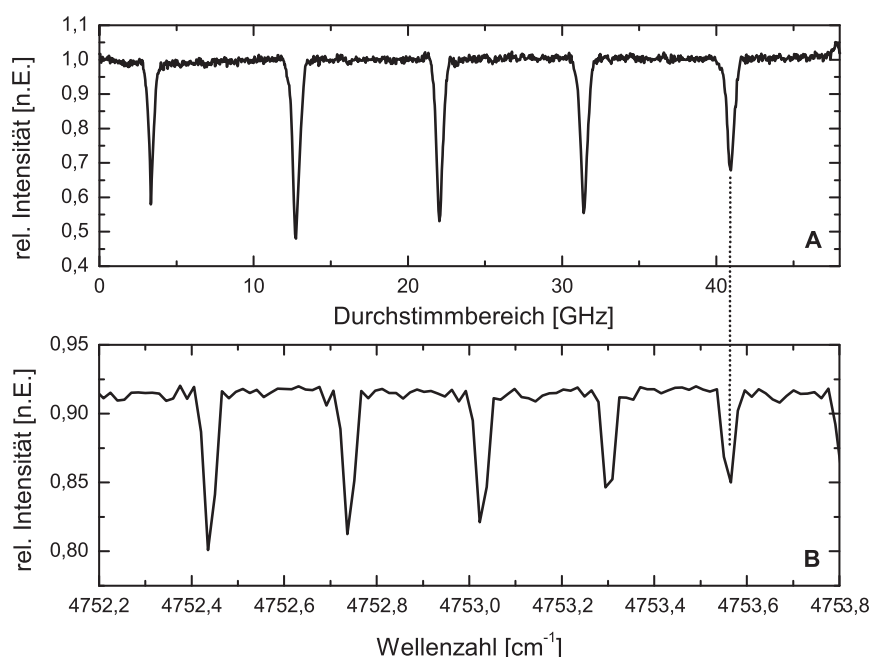


Abbildung 6.6: A: Fünf aufeinander folgende Absorptionslinien von N_2O , die durch eine Variation der Idlerfrequenz um 48 GHz in einer Messung hochauflösend aufgezeichnet wurden. B: Ausschnittsvergrößerung des Wellenzahlenbereichs zwischen 4752.2 cm^{-1} und 4753.8 cm^{-1} aus der FTIR-Messung (siehe Abbildung 6.3) zur Einordnung der in Diagramm 6.6A gezeigten Moleküllinien.

Da die in dieser Arbeit gemessenen Werte nahezu identisch mit den aus Veröffentlichungen bekannten Frequenzen sind und die Messung mit hoher Auflösung durchgeführt wurde, können die Positionen der einzelnen Spektrallinien eindeutig zugeordnet werden. Dazu wurde ein Ausschnitt der FTIR-Messung im entsprechenden Wellenzahlenbereich vergrößert dargestellt und die aufgezeichneten Absorptionslinien von N_2O in der Bande eingeordnet. Dabei wurde der Bereich zwischen 4752.2 cm^{-1} und 4753.8 cm^{-1} gewählt. Abbildung 6.6A zeigt noch einmal die gemessenen Absorptionsmaxima aus der zuvor beschriebenen Messung. Der vergrößerte Ausschnitt der FTIR-Messung ist in Abbildung 6.6B gezeigt. Die Idlerleistung betrug während dieser Messung durchgehend ungefähr 200 mW. Die Wellenlänge der Summenwelle aus Pump- und Signalstrahlung betrug $\lambda_{\text{SFG}} = 591.2 \text{ nm}$,

was einer Idlerwellenlänge von $2.1036 \mu\text{m}$ oder 4753.8 cm^{-1} entspricht. Dieser Wert wurde als Ausgangspunkt der Durchstimmung angenommen. Allerdings liegt der Fehler der Summenfrequenzwellenlänge aufgrund des verwendeten Spektrometers in diesem Wertebereich bei 0.6 nm , was in Wellenzahleneinheiten ungefähr 15 cm^{-1} entspricht und damit sehr groß ist. Trotzdem ist eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messungen erkennbar und die Linienabstände entsprechen sehr gut den Abständen, die sich aus dem FTIR-Spektrum ergeben. Die Positionen der einzelnen Absorptionslinien lassen sich wegen der geringen Linienbreite bei einer gleichzeitigen großen Anzahl an Messpunkten im Maximum (ca. 100 Messpunkte pro Maximum) mit einer höheren Präzision zuordnen als beim FTIR (ca. 3 Messpunkte pro Maximum).

Diese Messung beweist eindeutig, dass das System des kontinuierlich abstimmbaren SRO sehr gut dazu geeignet ist, in einer einzigen Messung mehrere nebeneinanderliegende Moleküllinien von N_2O gleichzeitig und hochauflösend aufzunehmen. Weiterhin lassen sich aufgrund der deutlich höheren Auflösung die Positionen der Absorptionsmaxima mit größerer Genauigkeit Wellenzahlen zuordnen, als dies mit dem FTIR möglich ist. Die Zuordnung der Spektrallinien wurde unter Zuhilfenahme einer Messung mit dem FTIR durchgeführt. Mit einem Spektrometer für die Idlerwellenlänge, dessen Auflösung hoch genug ist, könnten die Spektrallinien direkt den entsprechenden Frequenzen zugeordnet werden.

6.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde das enorme Potential des über den DFB-Diodenstrom kontinuierlich abstimmbaren, Diodenlaser gepumpten SRO anhand von spektroskopischen Untersuchungen am Molekül N_2O demonstriert. Bei allen Messungen betrug die Idlerleistung ungefähr 200 mW , die Kristalltemperatur betrug $155 \text{ }^\circ\text{C}$ und als Polungsperiode wurde $26.0 \mu\text{s}$ eingestellt.

Zunächst wurde die kontinuierliche Abstimmung der Idlerwellenlänge des SRO verwendet, um das Profil einer Absorptionslinie von N_2O mit hoher Auflösung sehr genau zu vermessen. Die gemessene Linie konnte einer Rotationsschwingung im R-Zweig des $(0,0,0,0) - (2,0,0,1)$ Übergangs bei $2.103 \mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}) zugeordnet werden. Die gemessene Linienbreite von 454 MHz sowie der Absorptionskoeffizient von $4.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ stimmen sehr gut mit aus der Literatur bekannten Werten überein.

Mit Hilfe einer einzigen Durchstimmung der Idlerfrequenz über 48 GHz wurden fünf nebeneinanderliegende Absorptionslinien von N_2O aufgezeichnet. Die Auflösung der Messung war dabei mit ca. 100 Messpunkten pro Absorptionslinie sehr hoch. Eine Kalibrierung mit Hilfe eines zuvor aufgenommenen FTIR-Spektrums des Übergangs $(0,0,0,0) - (2,0,0,1)$ in N_2O zeigte eine gute Übereinstimmung der Absorptionsfrequenzen. Die ge-

messenen Linienabstände liegen mit 9.3 GHz bis 9.5 GHz sehr nahe an Werten, die aus der Literatur bekannt sind.

Gerade der Vergleich mit der FTIR-Messung macht die Hauptvorteile des hier untersuchten Systems mehr als deutlich. Braucht ein FTIR normalerweise aus Platzgründen einen kompletten Laborraum, so zeichnet sich der SRO auch gegenüber den herkömmlich eingesetzten Diodenlaser gepumpten Festkörpersystemen oder faserverstärkten Lasern durch seine Kompaktheit aus. Das System kann auf kleiner Fläche aufgebaut werden und ist somit äußerst kompakt und flexibel. Die Messung der Absorptionslinien mit dem SRO besteht aus einer deutlich größeren Anzahl an Messpunkten und erreicht daher eine erheblich höhere Auflösung als die Messung mit dem FTIR. Außerdem ist die Durchstimmung der Idlerwellenlänge durch eine Änderung des DFB-Diodenstroms ein weiterer Vorteil, da keine mechanischen Komponenten verändert werden müssen wie bei anderen auf diesem Sektor vorgestellten Systemen, z.B. in der Arbeit von M. E. Klein [23, 105]. Durch die einfache Erweiterung des Wellenlängenbereichs mit Hilfe einer Variation der Polungsperioden des Kristalls stellt der SRO außerdem eine Alternative zu kommerziell eingesetzten Diodenlasern dar. Der SRO kann die Lücken im Spektralbereich ausfüllen, die noch nicht durch Diodenlaser erschlossen wurden.

Für andere Anwendungen (z.B. Laserkühlung, hochpräzise Frequenzmessung, etc.) ist ein System mit einer möglichst stabilen Emissionswellenlänge Voraussetzung. Die eben untersuchte elektronische Durchstimmung der Wellenlänge ermöglicht es, das System mit Hilfe des Diodenstroms stabilisieren zu können. Als Referenz hierzu dient die zuvor aufgezeichnete Moleküllinie. Diese Stabilisierung wird im nächsten Kapitel ausführlich vorgestellt.

Kapitel 7

Elektronische Stabilisierung des cw-SRO

Die Frequenz eines optisch parametrischen Oszillators hängt empfindlich von verschiedenen Einflüssen ab. Die Messung der Frequenz erfolgt innerhalb einer gewissen Zeitspanne. Einflüsse, die innerhalb der Messdauer die Frequenz der Strahlung beeinflussen, vergrößern die Linienbreite der Strahlung. Insbesondere die Resonatorlänge ist dabei ein kritischer Parameter. Vibrationen der Resonatorspiegel, aber auch Brechungsindexänderungen aufgrund einer Änderung der Ladungsträgerdichte in einem Halbleiterlaser bewirken eine Änderung der optischen Weglänge. Ist der Einfluss der Störungen länger als die Messdauer, erfolgt ein Drift der Frequenz der Strahlung zwischen zwei Messungen. Zu diesen langsameren Einflüssen zählen beispielsweise Dichtefluktuationen in der Luft oder dem Verstärkermedium oder thermische Schwankungen.

Um die abgestrahlte Frequenz stabil zu halten, ist daher in der Regel eine aktive Regulierung (*Stabilisierung*) des Resonators notwendig. Dazu benutzt man Referenzen, die eine deutlich stabilere Frequenz aufweisen als der freilaufende Resonator. Eine solche Referenz kann beispielsweise ein passiv stabiler Resonator oder ein atomarer oder molekularer Übergang sein (siehe Kapitel 6). Das Ziel weiterer Arbeiten bestand daher darin, den in den vorherigen Kapiteln beschriebenen und charakterisierten SRO auf das Maximum einer Absorptionslinie zu stabilisieren. Als Anwendungen von solchen stabilisierten SROs sind verschiedene Verfahren denkbar, wie z.B. in der Spektroskopie, für Atom- oder Ionenfallen und zur Kühlung von Atomen und Ionen [24], bei Bose-Einstein Kondensaten [142], zur Interferometrie oder zur Raman Spektroskopie bzw. Mikroskopie [143].

Um möglichen störenden Einflüssen wie mechanischen Schwingungen entgegenzuwirken, sollte der Vorgang der Stabilisierung rein elektronisch durchführbar sein. Nur durch kleine Änderungen des DFB-Diodenstroms soll die Wellenlänge des Pumplasers so verändert

werden, dass der SRO immer auf einer genau definierten Wellenlänge emittiert. Diese Wellenlänge ist durch die Moleküllinie eindeutig vorgegeben. Auf diese Weise ergibt sich ein einfach aufgebautes System mit einer klar definierten und stabilen Emissionswellenlänge. Die emittierte Wellenlänge ist durch eine Änderung des Pumpstroms frei wählbar und somit unabhängig von der Variation mechanischer Komponenten. Die Frequenz der Welle wird dabei lediglich durch den verwendeten nichtlinearen Kristall und dessen Transmissionsbereich eingeschränkt. Durch die Wahl weiterer geeigneter Kristalle lässt sich dieser Bereich auf einfache Weise erweitern.

7.1 Verfahren zur Stabilisierung

Um die Frequenz eines Lasers oder eines damit gepumpten OPOs zu stabilisieren, ist es notwendig, zunächst die Frequenz zu messen und auftretende Frequenzänderungen zu detektieren und anschließend zu korrigieren. Dazu wird ein Fehlersignal verwendet, welches möglichst monoton sein sollte und einen Nulldurchgang bei der Resonanzfrequenz besitzen sollte. Dieser Nulldurchgang erlaubt es der verwendeten Elektronik, zu erkennen, ob die Frequenz des OPOs oberhalb oder unterhalb der Resonanzfrequenz liegt, um sie entsprechend zu korrigieren. Es gibt mehrere Methoden zur Generierung eines Fehlersignals, von denen vor allem das Hänsch-Couillaud-Verfahren [144], die Pound-Drever-Hall-Technik [145] und die Lock-In Technik in der Praxis zum Einsatz kommen. Die einzelnen Verfahren werden in den folgenden Abschnitten näher erläutert.

Hänsch-Couillaud-Verfahren

Beim Hänsch-Couillaud-Verfahren wird ein polarisationsabhängiger Effekt zur Erzeugung eines dispersiven Fehlersignals verwendet. Grundlage ist ein Element im Resonator, welches unterschiedlich hohe Verluste für die beiden senkrecht zueinander stehenden Polarisationssebenen bedingt. Dies kann z.B. mit Hilfe einer Glasplatte im Brewsterwinkel, eines doppelbrechenden Kristalls oder eines Polarisators durchgeführt werden. Die beiden Polarisationsrichtungen weisen aufgrund der unterschiedlichen Verluste stark verschiedene Finesse auf. Darum wird idealerweise die nichtresonante Polarisation am Einkoppelspiegel des Resonators reflektiert. Die resonante Polarisation hingegen erfährt in Abhängigkeit der Resonatorlänge eine Phasenänderung. Darum erleiden sie unterschiedliche Phasenverschiebungen, solange die Frequenz des Lasers nicht mit der Eigenfrequenz des optischen Resonators übereinstimmt. Die Phase der eingestrahlten Welle wird direkt durch die nicht-resonante Polarisation definiert.

Die linear polarisierte Pumpstrahlung wird vor dem Resonator um wenige Grad aus der korrekten Polarisationsrichtung rotiert. Ist die Resonatorlänge exakt eingestellt, dann

bleibt die resonante Polarisationskomponente mit dem nichtresonanten Polarisationsanteil in Phase, und die Strahlung ist auch hinter dem Resonator linear polarisiert. Dieser Polarisationszustand wird mit dem Hänsch-Couillaud-Detektor gemessen. Dabei durchläuft der Teststrahl hinter einem der Resonatorspiegel eine $\lambda/4$ -Platte. Danach wird der Teststrahl mit Hilfe eines Polarisationsstrahlteilers (PBS) zerlegt und auf zwei Photodioden verteilt. Diese beiden Signale werden subtrahiert und daraus das Fehlersignal generiert. Das Fehlersignal ist gerade dann Null, wenn der Teststrahl hinter dem Resonator seine lineare Polarisation beibehalten hat. In allen anderen Fällen ist der Teststrahl vor und hinter der $\lambda/4$ -Platte elliptisch polarisiert und das Fehlersignal damit von Null verschieden.

Ein Vorteil des Hänsch-Couillaud-Verfahrens liegt in seinem relativ einfachen und kostengünstigen Aufbau, da hierbei keinerlei Modulationstechniken erforderlich sind. Als Nachteil ist allerdings das zusätzlich erforderliche polarisationabhängige Element zu nennen, wie z.B. ein Kristall, dessen doppelbrechende Eigenschaft mit einer Temperaturänderung variiert wird. Durch diese Änderung der Temperatur kann allerdings auch das Fehlersignal verfälscht werden. Im Extremfall kann diese Abweichung des Fehlersignals so groß werden, dass keine stabile Regelung mehr möglich ist. Außerdem ist der Einfluss technischen Rauschens sehr hoch bei kleinen Fourierfrequenzen. Dies kann mit Hilfe der Pound-Drever-Hall Technik vermieden werden.

Pound-Drever-Hall-Verfahren

Bei der Pound-Drever-Hall Technik kommt eine Phasenmodulation der Strahlung zum Einsatz [146, 147]. Dabei wird der Welle mit der Frequenz ω_0 zwei Seitenbänder mit den Frequenzen $\omega_0 \pm \Omega_m$ aufgeprägt. Da die beiden Seitenbänder um 180° verschoben sind, kompensieren sich ihre Schwebungssignale mit dem Träger gegenseitig. Der Abstand Ω_m der Seitenbänder wird größer als die Resonanzbreite des Resonators gewählt. Daher wird das Licht am Einkoppelspiegel des optischen Resonators reflektiert. Der Träger und die Seitenbänder erfahren bei der Reflektion in der Nähe der Resonanz Änderungen ihrer Amplituden und Phasen. Die Phaseninformationen des reflektierten und aus dem Resonator transmittierten Lichts spiegeln sich bei der Pound-Drever-Hall-Technik in unterschiedlichen Frequenzen wider.

Um das reflektierte Licht zu analysieren, muss es vom einfallenden Licht getrennt werden. Dazu wird entweder ein optischer Isolator oder eine Kombination aus PBS und $\lambda/4$ -Platte verwendet. Der zweifache Durchgang durch die $\lambda/4$ -Platte bewirkt eine Rotation der Polarisationssebene um 90° . Damit werden die beiden Teilstrahlen am PBS voneinander getrennt. Durch das einfallende Licht wird an einer Photodiode ein Photostrom ausgelöst und außerdem treten Schwebungssignale zwischen der Trägerfrequenz und den Seitenbändern mit der Frequenz Ω_m auf. Der Photostrom enthält Anteile, die mit der

Phase der Modulationsfrequenz oszillieren, sowie Anteile, die um 90° phasenverschoben dazu sind. Bei dem unverschobenen Anteil handelt es sich um das Signal, welches durch die Absorption einer der Frequenzkomponenten verursacht wird. Es ist daher in Phase mit der Modulation. Die Phasenverschiebung zwischen dem am Resonator reflektierten Licht und dem aus dem Resonatorinneren austretenden Licht einer der Frequenzkomponenten nahe der Resonanz führt zu dem phasenverschobenen Anteil.

Nahe der Resonanzfrequenz verschwindet die Reflektion der Trägerfrequenz und ein Teil der eingekoppelten Strahlung wird wieder aus dem Resonator emittiert. Allerdings weist die Phase des Signals dort eine starke Abhängigkeit von der Resonatorlänge auf. Daraus ergibt sich im Fehlersignal der steile Nulldurchgang, der sehr gut für eine Stabilisierung geeignet ist. Der Fangbereich der Regelung wird nur durch die gewählte Modulationsfrequenz limitiert und das Fehlersignal erlaubt eine große Regelbandbreite. Der Nachteil dieser Regelung liegt in der Notwendigkeit, das Signal zu modulieren. Bei einem Diodenlaser kann dies jedoch sehr einfach über den Diodenstrom erfolgen, wogegen bei Festkörper- oder Farbstofflasern externe Modulatoren nötig sind.

Lock-In-Verfahren

Das Lock-In-Verfahren ist vergleichbar mit der Pound-Drever-Hall Technik, allerdings werden bei der Pound-Drever-Hall Technik wesentlich kleinere Modulationsfrequenzen verwendet. Das Lock-In-Verfahren wird meist dort eingesetzt, wo schlechte Signal-Rausch-Verhältnisse zu erwarten sind. Das zu regelnde Signal, wie z.B. die Laserfrequenz oder die Resonatorlänge, wird mit einer Frequenz im Kilohertz-Bereich moduliert. Ein Referenzsignal wird anschließend mit diesem modulierten Signal multipliziert. Dieses multiplizierte Signal wird dann mit Hilfe eines Tiefpassfilters gemittelt. Das resultierende Lock-In Signal ist die erste Ableitung des gemessenen Eingangssignals nach der zu variierenden physikalischen Größe und dient als Fehlersignal. In diesem Experiment sind die zu regelnden Größen die optische Ausgangsleistung und die Laserfrequenz des SRO.

Die verwendete elektronische Stabilisierung (*LaseLock*) wurde von der Firma *TEM Messtechnik* entwickelt. Die Stabilisierung arbeitet mit der Lock-In Technik. Zur Messung dienen das Absorptionssignal A und ein Referenzsignal B. Das Absorptionssignal ist das transmittierte Signal hinter einer Gaszelle. Als Referenzsignal dient das vor der Gaszelle detektierte Signal. In der elektronischen Stabilisierung wird durch Bildung des Quotienten aus dem Differenzsignal A-B und dem Referenzsignal B ein normiertes Absorptionssignal generiert. Diesem Signal wird ein hochfrequentes, sinusförmiges Modulationssignal aufgeprägt. Durch Ableiten nach der optischen Frequenz wird aus diesem Signal ($\frac{A-B}{B}$) ein Fehlersignal erzeugt, mit einem Nulldurchgang am Ort der maximalen Absorption und einem Maximum und einem Minimum an den Flanken des Absorptionssignals. Das Fehler-

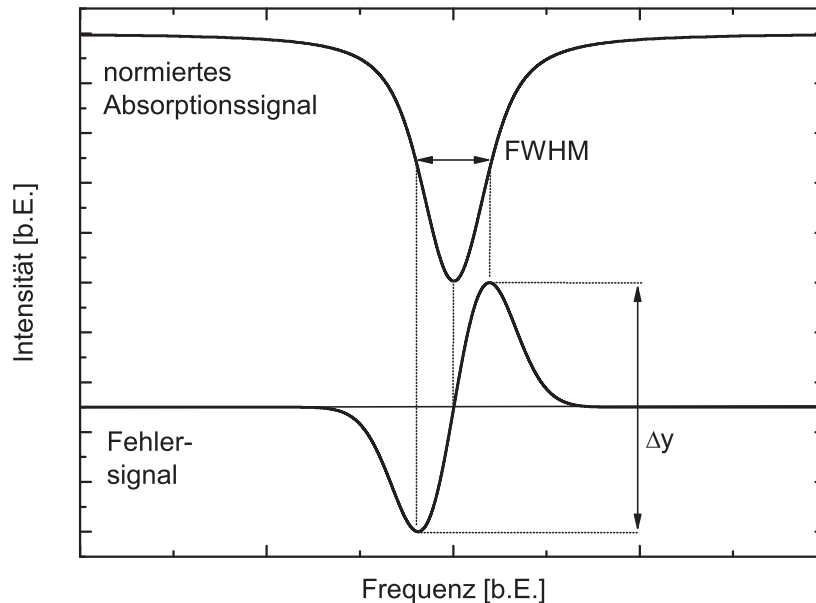


Abbildung 7.1: Im oberen Bereich der Abbildung ist ein normiertes Absorptionssignal dargestellt. Durch Ableitung des Absorptionssignals wird ein Fehlersignal erzeugt. Das Fehlersignal ist im unteren Bereich des Diagramms gezeigt. Das Maximum des Absorptionssignals generiert einen Nulldurchgang im Fehlersignal und die beiden Flanken des Absorptionssignals erzeugen jeweils ein Minimum und ein Maximum im Fehlersignal.

signal wird dabei durch Einstellen der Modulationsamplitude und -phase optimiert. Diese beiden Signale sind in Abbildung 7.1 dargestellt. Im oberen Bereich der Abbildung ist ein typisches normiertes Absorptionssignal zu sehen, im unteren Bereich das entsprechende Fehlersignal, welches sich gerade aus der Ableitung des Absorptionssignals ergibt. Die eingezeichnete Differenz Δy zwischen den beiden Extrempunkten im Fehlersignal entspricht der Linienbreite des Absorptionssignals (FWHM).

7.2 Stabilisierung der Resonatorlänge des cw-SRO

Abbildung 7.2 zeigt schematisch den Aufbau des SRO mit angeschlossener Elektronik zur Stabilisierung des OPO-Resonators auf maximale Ausgangsleistung. Die aus dem OPO emittierte Idlerstrahlung wird mit Hilfe einer InAs-Photodiode (*Judson Technologies, J12-18C-R250U*) A detektiert und an den Eingang der elektronischen Stabilisierung angeschlossen. Der Ausgang der Elektronik liefert eine Hochspannung bis 500 V zum An-

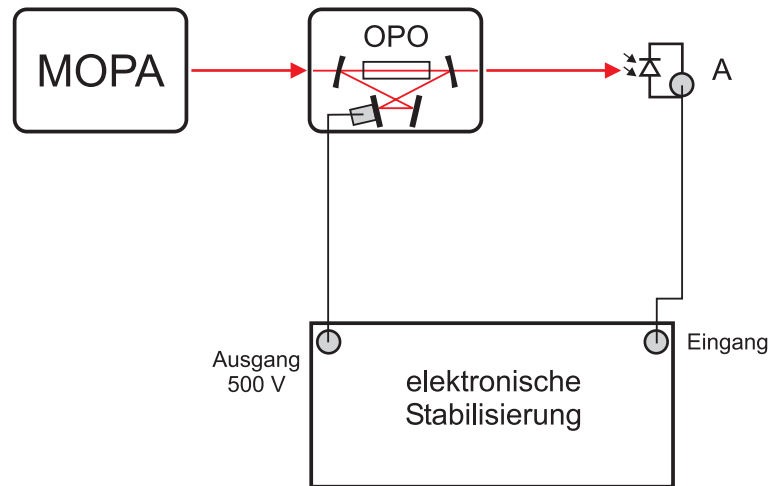


Abbildung 7.2: Schematische Darstellung der Schaltung bei der Stabilisierung des SRO-Resonators auf die maximale Ausgangsleistung. Die Idlerleistung wird mit der Photodiode A detektiert und in den Eingang der elektronischen Stabilisierung eingekoppelt. Der Ausgang liefert eine maximale Spannung von 500 V zum Betreiben des Piezos an Spiegel M3 (siehe Abbildung 5.1).

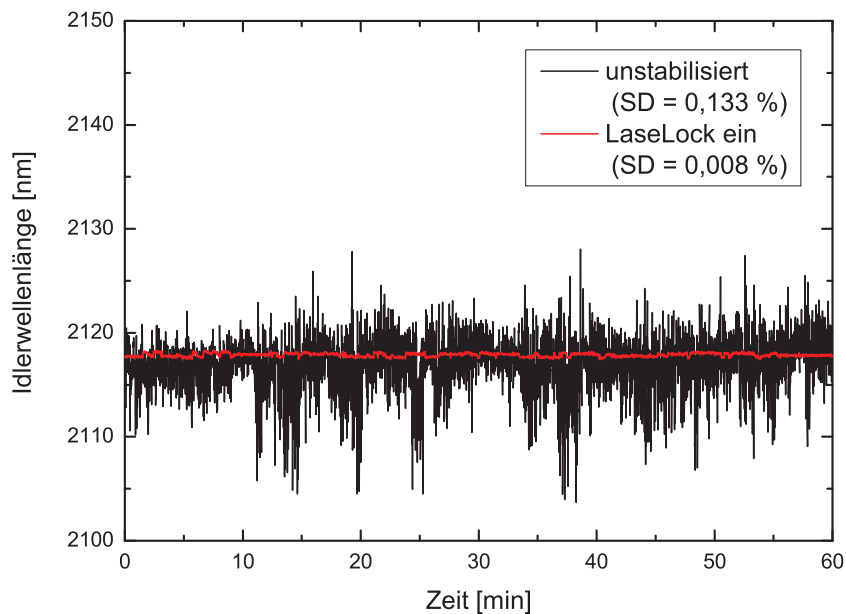


Abbildung 7.3: Zeitlicher Verlauf der Idlerwellenlänge bei unstabiler Resonatorlänge (schwarze Messkurve) und bei stabiler Resonatorlänge (rote Messkurve).

steuern des Piezotubus, auf dem der Spiegel M3 befestigt ist (vergleiche Abbildung 5.1). Die emittierte Idlerwellenlänge diene als Maß für einen in der Länge stabilisierten Resonator. In Abbildung 7.3 ist die Idlerwellenlänge als Funktion der Zeit aufgetragen. Beide Messungen erfolgten über einen Zeitraum von 60 Minuten. Die Idlerwellenlänge wurde nicht direkt gemessen, sondern wurde, wie bereits in Abschnitt 6.2 beschrieben, aus der detektierten SFG-Wellenlänge berechnet. Die schwarze Messkurve zeigt die Messung bei unstabilisierter Resonatorlänge. Die Idlerwellenlänge schwankt im Fall des unstabilisierten Resonators um mehr als 20 nm bei einer zentralen Wellenlänge von 2.117 μm . Die Standardabweichung bei dieser Messung beträgt 0.133 %.

Durch Aktivierung der aktiven Regelung der Resonatorlänge konnte dieses Verhalten deutlich verbessert werden. Die rote Messkurve zeigt die gemessenen Werte bei aktiver Regelung. Die Standardabweichung beträgt für diese Messung 0.008 % und ist um den Faktor 16.6 verbessert gegenüber dem unstabilisierten Fall. Die Schwankungen der Idlerwellenlänge betragen demnach immer noch ± 1.5 nm, oder in Frequenzen ausgedrückt ca. 100 GHz. Dieser Wert ist für bestimmte Anwendungen in der Spektroskopie ungeeignet. Geht es um die Untersuchung von Linienabständen oder der Vermessung einzelner Absorptionslinien, reicht die Wellenlängenstabilität des Resonators aus. Dies wurde in Kapitel 6 anhand zweier hochauflösender Messungen an Absorptionslinien von N₂O gezeigt. Für andere Anwendungen wie beispielsweise die Laserkühlung oder hochpräzise Frequenzmessung werden weitaus höhere Frequenzstabilitäten im Bereich weniger MHz benötigt. Die Linienabstände bei N₂O beispielsweise betragen bei einer Wellenlänge von 2.103 μm ca. 9 GHz. Eine Schwankung der Idlerfrequenz um 100 GHz bedeutet daher einen Sprung über mehrere nebeneinander liegende Linien. Um eine höhere Stabilität der Idlerfrequenz des SRO im Bereich von MHz zu erzielen, wurde ein anderes Verfahren verwendet.

7.3 Stabilisierung der Idlerwellenlänge des cw-SRO auf einen Schwingungs-Rotationsübergang von N₂O

In Abbildung 7.4 ist der schematische Aufbau des SRO bei der Stabilisierung der Idlerfrequenz auf eine Moleküllinie dargestellt. Die Idlerstrahlung wird mit Hilfe eines Strahlteilers (ST) in zwei Teilstrahlen zerlegt. Als Strahlteiler dient hierbei ein unbeschichtetes Glasplättchen aus Quarzglas mit einer Dicke von 30 μm . Einer der Teilstrahlen durchläuft die 20 cm lange, mit 50 mbar N₂O gefüllte Gaszelle und wird mit der Photodiode A detektiert. Der zweite Teilstrahl dient als Referenzstrahl und trifft direkt auf Photodiode B. Beide Photodioden bestehen aus InAs (*Judson Technologies, J12-18C-R250U*) und sind mit den Eingängen der Elektronik verbunden. Aus dem Transmissionssignal der Gaszelle und dem Referenzsignal wird in der Elektronik ein normiertes Absorptionssignal erzeugt.

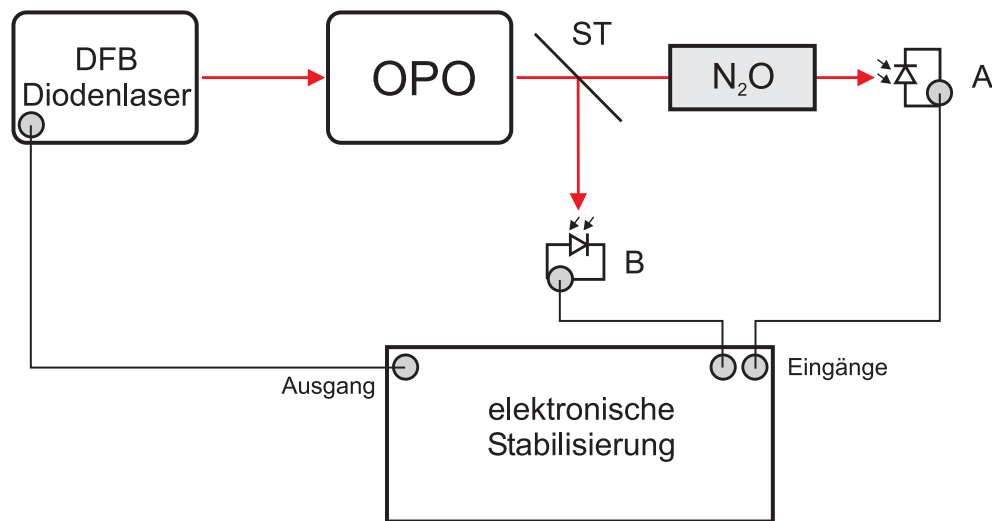


Abbildung 7.4: Schaltung zur Stabilisierung des SRO auf eine Moleküllinie. Die Idlerstrahlung wird durch einen Strahlteiler (ST) in zwei Teilstrahlen zerlegt, wobei ein Teil der Welle nach Durchlaufen einer Gaszelle (befüllt mit N_2O) mit der Photodiode A detektiert wird. Der zweite Teil der Idlerstrahlung dient als Referenzsignal und wird mit der Photodiode B aufgenommen. Beide Anteile werden an die Eingänge der elektronischen Stabilisierung angeschlossen. Über den Ausgang wird der Strom des DFB-Diodenlasers moduliert. Dadurch wird das im Gerät erzeugte Fehlersignal minimiert und der SRO auf das Maximum der Absorptionslinie stabilisiert.

Die Elektronik ist so konstruiert, dass sie Absorptionsmaxima bzw. -minima erkennt und durch Ableiten des Absorptionssignals ein Fehlersignal generiert. Der Nulldurchgang des Fehlersignals entspricht der Position der Absorptionslinie.

Abbildung 7.5 zeigt das aus dem detektierten Absorptionssignal durch Ableiten generierte Fehlersignal. Die Aufnahme entstand während der Justage der Regelung, wobei der DFB-Diodenstrom über einen Bereich von einigen mA gescannt wurde. Das aufgeprägte, sinusförmige Modulationssignal des DFB-Diodenstroms im Bereich von mehreren kHz ist deutlich erkennbar. Die Abbildung zeigt einen zeitlichen Ausschnitt aus dem Fehlersignal von 5 ms. Die Spannungsdifferenz zwischen den beiden Extrempunkten kann der Linienbreite der Absorptionslinie zugeordnet werden. Eine Spannung von 3.4 V entspricht demnach einem Frequenzabstand von 454 MHz. Dieser Wert wird bei der nun folgenden aktiven Stabilisierung des SRO auf eine Moleküllinie verwendet, um die Genauigkeit der Regelung überprüfen zu können. Während der aktiven Stabilisierung hingegen wird der Diodenstrom derart geregelt, dass das Fehlersignal im Idealfall Null bleibt. Die zu regelnde Frequenz des SRO wird dadurch auf dem Maximum der Absorptionslinie stabilisiert.

In Abbildung 7.6 ist die Frequenzstabilität der Idlerwelle über eine Zeitspanne von 84 Minuten dargestellt. Zur Normierung des Frequenzbereichs der Stabilität der Idlerwellenlänge wurde die Messung der Spannungsdifferenz aus Abbildung 7.5 verwendet. Die beiden

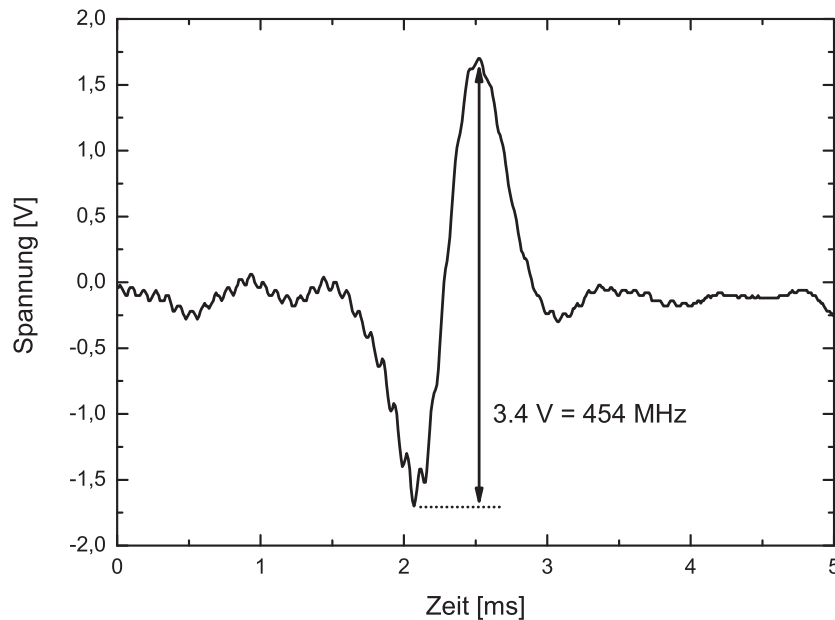


Abbildung 7.5: Aus dem Absorptionssignal durch Ableiten generiertes Fehlersignal. Die Spannungsdifferenz von 3.4 V entspricht der Linienbreite der Absorptionslinie von 454 MHz. Deutlich erkennbar ist die aufgeprägte, sinusförmige Modulation auf dem DFB-Diodenstrom.

ingezeichneten gestrichelten Linien sind im Frequenzabstand von 454 MHz eingezeichnet und stellen die Linienbreite der Absorptionslinie dar. Die durchgezogene Linie veranschaulicht das gemessene Fehlersignal bei aktivierter Laserstabilisierung. Die dadurch erzielte Stabilität der Idlerstrahlung liefert einen Wert von ± 30 MHz um das Absorptionsmaximum (Frequenz = 0). Die Standardabweichung dieser Messung liegt bei 0.02 %. Die Frequenzstabilität der Idlerwelle ist damit um den Faktor 15 geringer als die Breite der in Kapitel 6 gezeigten und vermessenen Moleküllinie von N_2O .

Im Fehlersignal sind einzelne Werte zu erkennen, die kurzzeitig über diesen Frequenzbereich von ± 30 MHz hinausgehen. An diesen Messpunkten hat die Stabilisierungselektronik das Signalmaximum verloren und befand sich auf den Flanken der Absorptionslinie. Die kurze Zeitspanne jeder dieser Messpunkte zeigt, dass die Elektronik in der Lage ist, eventuelle Frequenzänderungen, die beispielsweise durch thermische oder mechanische Schwankungen hervorgerufen wurden, zu erkennen und den SRO sofort wieder zu stabilisieren.

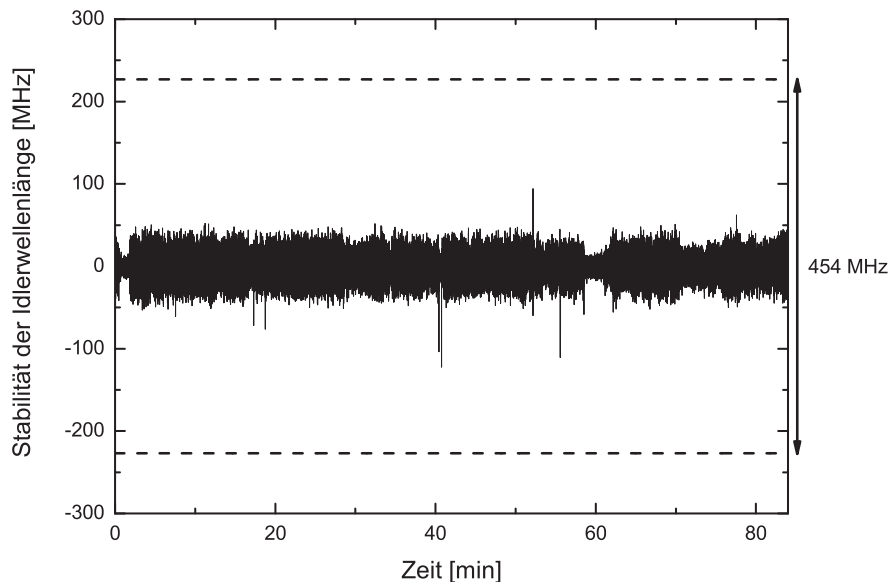


Abbildung 7.6: Stabilität der Idlerwellenlänge in MHz als Funktion der Zeit. Die Normierung des Stabilitätsbereichs erfolgte mit Hilfe der aus Abbildung 7.5 gemessenen Spannungsdifferenz. Die beiden gestrichelten Linien befinden sich im Abstand von 454 MHz voneinander und stellen die Linienbreite der Absorptionslinie dar. Die Stabilität der Idlerwellenlänge beträgt über den gesamten Bereich ungefähr ± 30 MHz bei einer Standardabweichung von 0.02 %.

7.4 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden die Methoden zur Stabilisierung des SRO erläutert und die dazu verwendete Elektronik vorgestellt. Der SRO wurde dazu auf zwei verschiedene Arten stabilisiert. Zuerst wurde mit Hilfe eines auf einem Piezotubus befestigten Spiegels die Stabilisierung der Resonatorlänge des SRO demonstriert. Es stellte sich heraus, dass die optische Ausgangsleistung aufgrund zu großer Schwankungen als Kriterium für die Elektronik ungeeignet war. Als Maß für die Stabilität der Resonatorlänge diente die bei dem Frequenzkonversionsprozess generierte Summenfrequenz aus Pump- und Signalfrequenz. Aus dieser SFG-Strahlung kann die emittierte Idlerfrequenz berechnet werden. Die Stabilität der Idlerwellenlänge konnte auf diese Art um den Faktor 20 gegenüber dem unstabilisierten Fall verbessert werden. Die Standardabweichung der Idlerwellenlänge betrug 0.008 %, was einer Schwankung von ± 1.5 nm (ca. 100 GHz) entspricht.

Für bestimmte Anwendungen wie beispielsweise die Laserkühlung oder in Atom- und Ionenfallen ist eine Schwankung der Frequenz der Strahlung im Gigahertzbereich unge-

eignet. Je nach untersuchter Substanz liegen bereits mehrere Absorptionslinien in diesem Intervall. Eine Stabilität der Frequenz im Bereich weniger MHz ist hierzu notwendig.

Um die Schwankungen der Idlerwellenlänge zu minimieren, wurde der SRO auf eine Moleküllinie stabilisiert. Dazu wurde das Transmissionssignal einer mit N_2O gefüllten Gaszelle verwendet. Die Logikeinheit der Elektronik ist in der Lage, mit Hilfe der Lock-In Technik Resonanzmaxima zu erkennen. Die damit erreichte Stabilität der Idlerstrahlung liegt bei einem Wert von ± 30 MHz. Bei einer gemessenen Linienbreite von mehr als 400 MHz (siehe Abschnitt 6.4) ist das Auflösungsvermögen groß genug, um das System erfolgreich für spektroskopische Anwendungen einsetzen zu können. Die Stabilität der Idlerfrequenz ist damit um den Faktor 15 geringer als die Breite der Moleküllinie von N_2O und liegt im Bereich der Frequenzstabilität kommerzieller Diodenlaser, die für die Spektroskopie verwendet werden. Die weite Durchstimmung der Wellenlänge erlaubt es zudem, je nach Einsatzgebiet, verschiedene Frequenzen auszuwählen und den SRO auf diese zu stabilisieren. Damit werden Frequenzbereiche erschlossen, die noch nicht durch kommerziell erhältliche Systeme abgedeckt werden.

Zu Beginn von Kapitel 6 sind Eigenschaften aufgeführt, die eine ideale Strahlquelle für die Verwendung in der Spektroskopie aufweisen sollte [1]. Nachdem in den vorherigen Kapiteln bereits der kompakte Aufbau, die hohe Ausgangsleistung, die Einmodigkeit der emittierten Strahlung sowie die weite Durchstimmbarkeit der Wellenlänge diskutiert wurden, ist in diesem Kapitel die hohe Frequenzstabilität der Idlerwelle vorgestellt worden. Ein Vergleich dieser Eigenschaften mit den Anforderungen an eine ideale Strahlquelle zeigt große Übereinstimmungen in nahezu allen Punkten. Das hier vorgestellte System stellt damit eine geeignete Alternative zu bereits vorhandenen kontinuierlich emittierenden OPOs in der Spektroskopie dar.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Die Zielsetzung dieser Arbeit war die Entwicklung einer kompakten und leicht integrierbaren Strahlquelle, die je nach Anwendungsbereich unterschiedliche Anforderungen erfüllt. Anwendungen in der Spektroskopie stellen ganz besondere Herausforderungen an die verwendeten Strahlquellen. Hierbei wird eine möglichst weit abstimmbare Wellenlänge benötigt, um während einer einzigen Messung mehrere Moleküllinien aufnehmen zu können. Die Strahlung muss zusätzlich eine möglichst schmale Linienbreite aufweisen, um eine hohe Auflösung der Messung zu garantieren. Wird das System beispielsweise für die Laserkühlung oder in Atom- und Ionenfallen verwendet, sind die Herausforderungen an die Strahlquelle anders gerichtet. Zwar muss die Linienbreite ebenfalls schmalbandig sein, zusätzlich jedoch muss die Frequenz der emittierten Strahlung möglichst stabil sein.

Dazu wurde in der vorliegenden Arbeit zunächst ein Diodenlaser gepumpter, einfachresonanter kontinuierlich emittierender OPO (SRO) realisiert, dessen Frequenz rein elektronisch durch eine Stromänderung des als Pumplaser verwendeten DFB-Diodenlasers abgestimmt werden kann. Die Frequenz dieses weit abstimmbaren Systems wurde danach mit Hilfe einer aktiven Regelung des Diodenstroms auf das Maximum einer Moleküllinie stabilisiert.

Um die geforderten Eigenschaften einzelner Anwendungen gleichzeitig zu erfüllen, muss das Pumpsystem des SRO bestimmte Voraussetzungen aufweisen. Die Pumpstrahlung muss schmalbandig und zudem weit durchstimmbaar sein. Die Leistung der Pumpstrahlung muss außerdem hoch genug sein, um die Schwellpumpleistung des SRO zu übertreffen. Als Pumplaser wurde eine Oszillator-Verstärker-Kombination aus DFB-Diodenlaser und Trapezverstärker verwendet. Dieses als MOPA bezeichnete System lieferte mit einer Ausgangsleistung von 3 W bei einer Wellenlänge von 923 nm in einem nahezu beugungsbegrenztem Strahl ausreichend Pumpleistung zum Betrieb des SRO. Die emittierte Strahlung des MOPA-Systems hatte eine Linienbreite von weniger als 5 MHz. Die Wel-

lenlänge des MOPA-Systems kann mit Hilfe einer DFB-Diodenstromänderung um mehr als 125 GHz (≈ 0.35 nm) modensprungfrei durchgestimmt werden. Die Ausgangsleistung bleibt dabei nahezu konstant. Damit sind die Voraussetzungen erfüllt, um die Signal- und Idlerwellenlängen des SRO variieren zu können, ohne eine Leistungsänderung der emittierten Wellen herbeizuführen.

Der eigentliche Aufbau des SRO ist vergleichbar mit dem System aus der Arbeit von M. E. Klein [23]. Dieses Konzept wurde für diese Arbeit neu aufgegriffen und das Pumpsystem durch den DFB-Diodenlaser und Trapezverstärker ersetzt. Als nichtlineares Medium wurde ein für die QPM gepolter Kristall aus LiNbO_3 gewählt, der aufgrund seines hohen effektiven nichtlinearen Koeffizienten eine hohe Konversionseffizienz erwarten lässt. Um bei einem nahezu optimalen Verhältnis zwischen konfokalem Parameter des Resonators und Kristalllänge eine möglichst hohe Konversion der Strahlung zu erzielen, wurde ein 40 mm langer Kristall gewählt. Der SRO ist einfach-resonant für die Signalwelle aufgebaut mit einer Schwellpumpleistung von 1.85 W und einer maximalen Ausgangsleistung von 420 mW. Die Leistung der erzeugten Strahlung in einem einfach-resonanten Resonator ist unabhängig von der Resonatorlänge. Die Resonatorlänge konnte durch einen Resonatorspiegel variiert werden, der auf einem Piezotubus befestigt war. Während der Resonatorlängenänderung wurde die Leistung der emittierten Strahlung und gleichzeitig ihr Spektrum aufgezeichnet. Durch diese Messung konnte der einmodige Betrieb des SRO eindeutig nachgewiesen werden. Die Linienbreite der erzeugten Signal- und Idlerwellen betrug jeweils weniger als 10 MHz. Die Messungen haben gezeigt, dass die spektralen Eigenschaften der Pumpstrahlung auf die Signal- und Idlerstrahlung übertragen werden konnten.

Durch die Variation der Kristalltemperatur und der Polungsperiode wurde eine grobe Durchstimmung der Signal- und Idlerwellenlänge durchgeführt. Dabei konnte die Signalwellenlänge zwischen $1.55\text{ }\mu\text{m}$ und $1.7\text{ }\mu\text{m}$ variiert werden, die Idlerwellenlänge entsprechend zwischen $2.02\text{ }\mu\text{m}$ und $2.28\text{ }\mu\text{m}$. Die Grenzen des Durchstimmbereichs waren dabei durch die Spiegelbeschichtungen vorgegeben. Eine Feinabstimmung der Idlerwellenlänge erfolgte durch eine Änderung der Pumpwellenlänge. Dazu wurde die Signalwellenlänge mit Hilfe eines im Resonator integrierten Etalons mit einer Dicke von $30\text{ }\mu\text{m}$ stabil gehalten. Die Schwellpumpleistung stieg aufgrund der zusätzlichen Verluste durch das Etalon auf 2.5 W an. Die Pumpwellenlänge wurde durch die Änderung des DFB-Diodenstroms durchgeführt. Hierbei konnte mit einer Stromänderung zwischen 100 mA und 200 mA die Idlerwellenlänge kontinuierlich und modensprungfrei um 88.4 GHz (≈ 1.3 nm bei einer Wellenlänge von $2.1\text{ }\mu\text{m}$) durchgestimmt werden. Die Konversionseffizienz blieb während der kompletten Durchstimmung nahezu konstant und die Leistung der emittierten Idlerstrahlung betrug über den gesamten Durchstimmbereich mehr als 200 mW. Die Eigenschaften des Systems von M. E. Klein konnten durch den SRO aus dieser Arbeit vollständig repro-

duziert und im Fall der Wellenlängendurchstimmung sogar übertroffen werden. Speziell die Art der Wellenlängendurchstimmung des SRO ist dabei hervorzuheben. Die Wellenlängenänderung des in dieser Arbeit beschriebenen SRO geschieht rein elektronisch und die Pumpwellenlänge ist dadurch resistent gegen störende äußere Einflüsse wie z.B. mechanische Schwingungen des Tisches. Der Durchstimmbereich der Idlerwellenlänge konnte um den Faktor 1.5 auf mehr als 88 GHz erhöht werden und ist damit, soweit bekannt, der größte Wellenlängendurchstimmbereich, der mit einem direkt durch einen Diodenlaser gepumpten SRO erzielt wurde. Der Durchstimmbereich des SRO aus dieser Arbeit war lediglich durch das Kristallmaterial und die verwendeten Polungsperioden eingeschränkt.

Zur Demonstration des SROs wurde er in zwei unterschiedlichen Anwendungen eingesetzt. Zum einen wurde der weite Durchstimmbereich der Wellenlänge verwendet, um nebeneinander liegende Moleküllinien aufzuzeichnen. Als Probegas diente Distickstoffmonoxid (N_2O). Die Idlerstrahlung wurde hierzu in eine 20 cm lange, mit 50 mbar N_2O gefüllte Gaszelle eingestrahlt und anschließend das Transmissionssignal detektiert. Dadurch konnte zunächst eine einzelne Moleküllinie hochauflösend aufgezeichnet werden. Die Idlerwellenlänge wurde für diese Messung um 8 GHz durchgestimmt und das gemessene Absorptionsprofil konnte einer Rotationslinie im R-Zweig des $(0,0,0,0) - (2,0,0,1)$ Übergangs bei $2.103 \mu\text{m}$ (4754 cm^{-1}) zugeordnet werden. Die gemessenen Werte zeigten eine sehr gute Übereinstimmung mit einem theoretisch zu erwartenden Voigt-Profil. Der daraus berechnete Druckverbreiterungskoeffizient von 5.9 MHz/mbar und der Absorptionskoeffizient von $4.3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ stimmen sehr gut mit aus der Literatur bekannten Werten überein. Durch die geringe Abweichung der gemessenen Werte von den bekannten Werten konnte das Potential des SRO zur hochauflösenden Aufnahme und Vermessung einzelner Moleküllinien eindeutig belegt werden.

Durch den großen Durchstimmbereich der Idlerwellenlänge können mehrere nebeneinander liegende Absorptionslinien gleichzeitig aufgezeichnet werden. Für die Verwendung eines Systems zur Spurengasanalyse ist dies ein zentraler Punkt. Zudem erfolgt die Messung mit einer hohen Auflösung, so dass die Linien eindeutig Frequenzen zugeordnet werden können und sich so die Zusammensetzung einer Probe charakterisieren lässt. In einer weiteren Messung wurde deshalb durch eine Diodenstromänderung eine elektronische Idlerwellenlängenabstimmung von 48 GHz durchgeführt. Hierbei konnten gleichzeitig fünf nebeneinander liegende Absorptionslinien hochauflösend aufgezeichnet werden. Die Abweichung beim Abstand der Linien von Werten, die aus der Literatur bekannt sind, beträgt weniger als 5 %. Die Messung wurde außerdem mit einer FTIR-Messung verglichen und zeigt aufgrund der größeren Auflösung eine deutlich höhere Genauigkeit bei der Bestimmung der Linienpositionen. Gerade diese Messung zeigt das große Potential des SRO zum Einsatz bei spektroskopischen Untersuchungen. Der SRO ist deutlich kompakter wie ein FTIR. Zusätzlich wird die Wellenlänge der Strahlung durchgestimmt, ohne mechanische

Komponenten zu verwenden.

Die hohe Auflösung durch die geringe Linienbreite der Idlerstrahlung kann weiterhin verwendet werden, um eine aktive Stabilisierung der Wellenlänge des SRO zu realisieren. Dabei wurde die Möglichkeit, die Idlerwellenlänge des SRO elektronisch durchzustimmen, ausgenutzt. Mit Hilfe der Lock-In-Technik wurde dazu aus dem Absorptionssignal von N_2O ein Fehlersignal generiert und die Pumpwellenlänge so gesteuert, dass die daraus erzeugte Idlerwellenlänge auf dem Maximum eines Absorptionssignals stabilisiert wird. Hiermit wurde in dieser Arbeit erstmals ein Diodenlaser gepumpter cw-SRO mit Hilfe einer Diodenstromanpassung der DFB-Diodenlaser auf eine Moleküllinie stabilisiert. Die dadurch erreichte Frequenzstabilität von ± 30 MHz liegt im Größenbereich kommerziell erhältlicher DFB-Diodenlaser. Allerdings ist bei kommerziellen Produkten meist der kontinuierlich abstimmbare Wellenlängenbereich stark eingeschränkt [6, 7].

Das System dieser Arbeit stellt eine kompakte, weit abstimmbare, effiziente, leicht integrierbare und stabile Strahlquelle dar, die die Lücken im Spektralbereich schließt, die durch kommerzielle Strahlquellen nicht abgedeckt werden. Die Verwendungsmöglichkeit des SRO wurde in der Molekülspektroskopie demonstriert, und die Frequenzstabilität ermöglicht den Einsatz in der Laserkühlung sowie für hochpräzise Frequenzmessungen bei Wellenlängen, die noch nicht durch kommerzielle Diodenlaser erschlossen wurden.

Literaturverzeichnis

- [1] TITTEL, F. K., D. RICHTER und A. FRIED: *Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy*. In: SOROKINA, I. T. und K. L. VODOPYANOV (Herausgeber): *Solid-state mid-infrared laser sources*. Springer-Verlag, Berlin, 2003.
- [2] PETROV, K. P., R. F. CURL und F. K. TITTEL: *Compact laser difference-frequency spectrometer for multicomponent trace gas detection*. Appl. Phys. B, 66:531–538, 1998.
- [3] KÜHNEMANN, F., K. SCHNEIDER, A. HECKER, A. A. E. MARTIS, W. URBAN, S. SCHILLER und J. MLYNEK: *Photoacoustic trace-gas detection using a cw single-frequency parametric oscillator*. Appl. Phys. B, 66:741–745, 1998.
- [4] SIGRIST, M. W.: *Trace gas monitoring by laser photoacoustic spectroscopy and related techniques (plenary)*. Rev. Sci. Instrum., 74(1):486–490, 2003.
- [5] NICOLAS, J. C., A. N. BARANOV, Y. CUMINAL, Y. ROUILLARD und C. ALIBERT: *Tunable diode laser absorption spectroscopy of carbon monoxide around 2.35 μm* . Appl. Opt., 37:7906–7911, 1998.
- [6] WIEMAN, C. E. und L. HOLLBERG: *Using diode lasers for atomic physics*. Rev. Sci. Instrum., 62(1):1–20, 1990.
- [7] KRAFT, S., A. DENINGER, C. TRÜCK, J. FORTAGH, F. LISON und C. ZIMMERMANN: *Rubidium spectroscopy at 778-800 nm with a distributed feedback laser diode*. Laser Phys. Lett., 2(2):71–76, 2005.
- [8] FRANKEN, P. A., A. E. HILL, C. W. PETERS und G. WEINREICH: *Generation of optical harmonics*. Phys. Rev. Lett., 7(4):118, 1961.
- [9] GIORDMAINE, J. A. und R. C. MILLER: *Tunable coherent parametric oscillation in LiNbO_3 at optical frequencies*. Phys. Rev. Lett., 14:973–976, 1965.

- [10] BOSENBERG, W. R., A. DROBSHOFF, J. I. ALEXANDER, L. E. MYERS und R. L. BYER: *Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled LiNbO₃*. Opt. Lett., 21(10):713, 1996.
- [11] BATCHKO, R. G., D. R. WEISE, T. PLETTNER, G. D. MILLER, M. FEJER und R. L. BYER: *Continuous-wave 532-nm-pumped singly resonant optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate*. Opt. Lett., 23(3):168, 1998.
- [12] KLEIN, M. E., D.-H. LEE, J.-P. MEYN, K.-J. BOLLER und R. WALLENSTEIN: *Singly resonant continuous-wave optical parametric oscillator pumped by a diode laser*. Opt. Lett., 24(16):1142, 1999.
- [13] ARISHOLM, G.: *Quantum noise initiation and macroscopic fluctuations in optical parametric oscillators*. J. Opt. Soc. Am. B, 16(1):117, 1999.
- [14] LEFORT, L., K. PUECH, S. D. BUTTERWORTH, Y. P. SVIRKO und D. C. HANNA: *Generation of femtosecond pulses from order-of-magnitude pulse compression in a synchronously pumped optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate*. Opt. Lett., 24(1):28, 1999.
- [15] HAAG, P.: *Untersuchung und Charakterisierung eines synchron gepumpten fs- und ps-OPO aus periodisch gepoltem MgO-dotiertem LiNbO₃*. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 2002.
- [16] GIBSON, G. M., M. H. DUNN und M. J. PADGETT: *Application of a continuously tunable, cw optical parametric oscillator for high-resolution spectroscopy*. Opt. Lett., 23(1):40–42, 1998.
- [17] KOVALCHUK, E. V., D. DEKORSY, A. I. LVOVSKY, C. BRAXMAIER, J. MLYNEK und A. PETERS: *High-resolution Doppler-free molecular spectroscopy with a continuous-wave optical parametric oscillator*. Opt. Lett., 26(18):1430–1432, 2001.
- [18] HERPEN, M. VAN, S. TE LINTEL HEKKERT, S. E. BISSON und F. J. M. HARREN: *Wide single-mode tuning of a 3.0 - 3.8 μ m, 700 mW, continuous-wave Nd:YAG-pumped optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate*. Opt. Lett., 27(8):640–642, 2002.
- [19] POPP, A., F. MÜLLER, F. KÜHNEMANN, S. SCHILLER, G. VON BASUM, H. DAHNKE, P. HERING und M. MÜRTZ: *Ultra-sensitive mid-infrared cavity leak-out spectroscopy using a cw optical parametric oscillator*. Appl. Phys. B, 75:751–754, 2002.
- [20] NATHAN, M. I., W. D. DUMKE, G. BURNS, JR. F. H. DILL und G. J. 'LASHER: *Stimulated emission of radiation from GaAs junctions*. Appl. Phys. Lett., 1:62–64, 1962.

- [21] HOLONYAK, JR. N. und S. F. BEVACQUA: *Coherent (visible) light emission from $Ga(As_{1-x}P_x)$ junctions*. Appl. Phys. Lett., 1:82–88, 1962.
- [22] HALL, R. N., G. E. FENNER, J. D. KINGSLEY, T. J. SOLTYS und R. O. CARLSON: *Coherent light emission from GaAs junctions*. Phys. Rev. Lett., 9(9):366–369, 1962.
- [23] KLEIN, M. E.: *Wavelength tunable, diode laser pumped optical parametric oscillators based on quasi-phase-matching*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2000.
- [24] PHILLIPS, W. D.: *Laser cooling and trapping of neutral atoms*. Reviews of Modern Physics, 3(70):721–741, 1998.
- [25] BOYD, ROBERT W.: *Nonlinear optics*. Academic Press, New York, 2008.
- [26] ZERNIKE, F. und J. E. MIDWINTER: *Applied nonlinear optics*. John Wiley & Sons, New York, 1973.
- [27] YARIV, A.: *Quantum Electronics*. John Wiley & Sons, New York, 1989.
- [28] MILLER, R. C.: *Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals*. Appl. Phys. Lett., 5:17–19, 1964.
- [29] KLEINMAN, D. A.: *Nonlinear dielectric polarization on optical media*. Phys. Rev., 126:1977, 1962.
- [30] DMITRIEV, V. G., G. G. GURZADYAN und D. N. NIKOGOSYAN: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*. Springer-Verlag, Berlin, 1999.
- [31] HARRIS, S. E., M. K. OSHMAN und R. L. BYER: *Observation of tunable optical parametric fluorescence*. Phys. Rev. Lett., 18(18):732 – 734, 1967.
- [32] BYER, R. L. und S. E. HARRIS: *Power and bandwidth of spontaneous parametric emission*. Phys. Rev., 168(3):1064 – 1068, 1968.
- [33] SUTHERLAND, R. L.: *Handbook of Nonlinear Optics*. Marcel Dekker, 1996.
- [34] LOUISELL, W. H., A. YARIV und A. E. SIEGMAN: *Quantum fluctuations and noise in parametric processes*. Phys. Rev., 124(6):1646–1654, 1961.
- [35] KLEINMAN, D. A.: *Theory of optical parametric noise*. Phys. Rev., 174(3):1027–1041, 1968.
- [36] SHEN, Y. R.: *The principles of nonlinear optics*. John Wiley & Sons, New York, 1984.

- [37] SCHUBERT, M. und B. WILHELMI: *Nonlinear optics and quantum electronics*. John Wiley & Sons, New York, 1st Auflage, 1976.
- [38] MANLEY, J. M. und H. E. ROWE: *General energy in nonlinear reactances*. Proc. IRE, 47:2115, 1959.
- [39] MARZENELL, S.: *Untersuchung und Charakterisierung von Femtosekunden optisch parametrischen Oszillatoren im nahen und mittleren infraroten Spektralbereich*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2001.
- [40] MIDWINTER, J. E. und J. WARNER: *The effects of phase matching method and of uniaxial crystal symmetry on the polar distribution of second-order non-linear optical polarization*. Brit. J. Appl. Phys., 16:1135, 1965.
- [41] ARMSTRONG, J. A., N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING und P. S. PERSHAN: *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev., 127:1918, 1962.
- [42] HANNA, D. C. und W. A. CLARKSON: *Periodically poled materials for nonlinear optics*. In: D. M. FINLAYSON, B. D. SINCLAIR und P. OSBORNE (Herausgeber): *Advances in Lasers and Applications*, Seiten 141–180. Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 1999.
- [43] RAHM, M.: *Numerische Modellierung, experimenteller Aufbau und optische Charakterisierung eines spektral weit abstimmbaren, einfrequenten optisch parametrischen Generators mit Self-Injection Seeding*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2006.
- [44] RÜBEL, F.: *Resonatorinterne Frequenzkonversion von fs-Lichtimpulsen in den sichtbaren Spektralbereich mit sektioniert periodisch gepolten stöchiometrischem MgO:LiNbO₃*. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 2007.
- [45] FEJER, M. M., G. A. NAGEL, D. H. JUNDT und R. L. BYER: *Quasi-phasematched second harmonic generation: Tuning and tolerances*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 28(11):2631–2654, 1992.
- [46] ZASKE, S.: *Aufbau eines Diodenlaser-gepumpten cw-OPO für die Anwendung bei der Frequenzkonversion einzelner Photonen*. Diplomarbeit, Universität des Saarlandes, 2007.
- [47] KÖHLER, B.: *Erzeugung von Pikosekundenlichtimpulsen hoher mittlerer Leistung im ultravioletten und infraroten Spektralbereich durch Frequenzkonversion eines cw-modengekoppelten Nd:YVO₄-Oszillator-Verstärkersystems*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2001.

- [48] MYERS, L. E., R. C. ECKARDT, M. M. FEJER, R. L. BYER, W. R. BOSENBERG und J. W. PIERCE: *Quasi-phase-matched optical parametric oscillators in bulk periodically poled LiNbO₃*. J. Opt. Soc. Am. B, 12:2102–2116, 1995.
- [49] MEYN, J. P. und M. M. FEJER: *Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate*. Opt. Lett., 22:1214–1216, 1997.
- [50] BOSENBERG, W. R., J. I. ALEXANDER, L. E. MYERS und R. W. WALLACE: *2.5-W, continuous-wave, solid-state laser source*. Opt. Lett., 23(3):207–209, 1998.
- [51] RÜBEL, F., P. HAAG und J. A. L'HUILLIER: *Synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillator with integrated sum frequency generation*. Appl. Phys. Lett., 92(1), 2008.
- [52] HERRMANN, H. und W. SOHLER: *Difference-frequency generation of tunable, coherent mid-infrared radiation in Ti:LiNbO₃ channel waveguides*. J. Opt. Soc. Am. B, 5(2):278–284, 1988.
- [53] ARBORE, M. A., O. MARCO und M. M. FEJER: *Pulse compression during second-harmonic generation in aperiodic quasi-phasematching gratings*. Opt. Lett., 22(12):865–867, 1997.
- [54] WEIS, R. S. und T. K. GAYLORD: *Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure*. Appl. Phys. A, 37(4):191–203, 1985.
- [55] ZELT, S.: *Erzeugung und Charakterisierung von periodischer Domäneninversion im optisch nichtlinearen Kristall MgO:LiNbO₃*. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 1999.
- [56] ANDRES, T.: *Kontinuierlich modengekoppelte optisch parametrische Oszillatoren basierend auf kongruentem MgO dotiertem Lithiumniobat mit Quasi-Phasen Anpassung*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2003.
- [57] KITTEL, C.: *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg-Verlag, 2005.
- [58] ROBERTS, D. A.: *Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinear optical crystals: a plea for standardization of nomenclature and conventions*. J. Quantum Electron., 28:2057–2074, 1992.
- [59] MYERS, L. E. und W. R. BOSENBERG: *Periodically poled lithium niobate and quasi-phase-matched optical parametric oscillators*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 33(10):1663–1672, 1997.

- [60] ASHKIN, A., G. D. BOYD, J. M. DZIEDZIC, R. G. SMITH, A. A. BALLMAN, J. J. LEVINSTEIN und K. NASSAU: *Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO_3 and LiTaO_3* . Appl. Phys. Lett., 9(72), 1966.
- [61] HE, G. S. und S. H. LIU: *Physics of nonlinear optics*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 1999.
- [62] SWEENEY, K. L. und L. E. HALLIBURTON: *Oxygen vacancies in lithium niobate*. Appl. Phys. Lett., 43:336–338, 1983.
- [63] BERBEN, D., K. BUSE, S. WEVERING, P. HERTH, M. IMLAU und T. WOIKE: *Lifetime of small polarons in iron-doped lithium-niobate crystals*. J. Appl. Phys., 87:1034–1041, 2000.
- [64] BATCHKO, R., G. MILLER, A. ALEXANDROVSKI, M. FEJER und R. BYER: *Limitations of high-power visible wavelength periodically poled lithium niobate devices due to green-induced infrared absorption and thermal lensing*. Technical Digest. Summaries of Papers presented at the Conference on Lasers and Electro-Optics. Conference Edition, Seiten 75–76, 1998.
- [65] KONG, YONGFA, WANLIN ZHANG, XIAOJUN CHEN, JINGJUN XU und GUANGYIN ZHANG: *OH^- absorption spectra of pure lithium niobate crystals*. J. Phys.: Condens. Matter, 11:2139–2143, 1999.
- [66] KOGELNIK, H. und T. LI: *Laser beams and resonators*. Appl. Opt., 5(10):1550–1567, 1966.
- [67] MILONNI, P. W. und J. H. EBERLY: *Lasers*. John Wiley & Sons, New York, 1988.
- [68] EBRAHIMZADEH, M. und A. I. FERGUSON: *Novel nonlinear crystals*. In: *Principles and applications of nonlinear optical materials*, Seiten 99–142. Chapman and Hall, London, 1993.
- [69] TANG, C. L.: *Nonlinear optics*. In: *Handbook of optics*, Seiten 38.3–38.26. McGraw-Hill, New York, 1995.
- [70] BOYD, G. D. und D. A. KLEINMAN: *Parametric interaction of focused gaussian light beams*. J. of Appl. Phys., 39(8):3597–3639, 1968.
- [71] BJORKHOLM, JOHN E.: *Some effects of Spatially Nonuniform Pumping in Pulsed Optical Parametric Oscillators*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 7(3):109–118, 1971.

- [72] GRANOT, ER'EL, SHAUL PEARL und MICHAEL M. TILLEMANN: *Analytical solution for a singly resonant optical parametric oscillator*. J. Opt. Soc. Am. B, 17(3):381–386, 2000.
- [73] BEY, PAUL P. und CHUNG L. TANG: *Plane-Wave Theory of Parametric Oscillator and Coupled Oscillator-Upconverter*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 8(3):361–369, 1971.
- [74] JUNDT, D. H.: *Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate*. Opt. Lett., 22(20):1553–1555, 1997.
- [75] POWERS, P. E., T. J. KULP und S. E. BISSON: *Continuous tuning of a continuous-wave periodically poled lithium niobate optical parametric oscillator by use of a fan-out grating design*. Opt. Lett., 23(3):159–161, 1998.
- [76] FALK, J.: *Instabilities in doubly resonant parametric oscillators: A theoretical analysis*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 7(6):230–235, 1971.
- [77] ECKARDT, R. C., C. D. NABORS, W. J. KOZLOVSKY und R. L. BYER: *Optical parametric oscillator frequency tuning and control*. J. Opt. Soc. Am. B, 8(3):646–667, 1991.
- [78] TURNBULL, G. A., D. MCGLOIN, I. D. LINDSAY, M. EBRAHIMZADEH und M. H. DUNN: *Extended mode-hop-free tuning by use of a dual-cavity, pump-enhanced optical parametric oscillator*. Opt. Lett., 25:341–343, 2000.
- [79] KLEIN, M. E., C. K. LAUE, D.-H. LEE, K.-J. BOLLER und R. WALLENSTEIN: *Diode-pumped singly resonant continuous-wave optical parametric oscillator with wide continuous tuning of the near-infrared idler wave*. Opt. Lett., 25(7):490–492, 2000.
- [80] KNEUBÜHL, F. K. und M. W. SIGRIST: *Laser*. Teubner Studienbücher, 1995.
- [81] DEMTRÖDER, W.: *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*. Springer-Verlag, Berlin, 1998.
- [82] MAIMAN, P. H.: *Stimulated optical radiation in ruby*. Nature, 187:493–494, 1960.
- [83] EICHLER, J. und H. J. EICHLER: *Laser: Bauformen, Strahlführung, Anwendungen*, Kapitel 10, Seiten 177–209. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
- [84] TROPPER, A. C., H. D. FOREMAN, A. GARNACHE, K. G. WILCOX und S. H. HOOGLAND: *Vertical-external-cavity semiconductor lasers*. J. Phys. D: Appl. phys., 37(9):75–85, 2004.

-
- [85] SVELTO, O.: *Principles of Lasers*. Plenum Press, New York and London, 4th Auflage, 1998.
 - [86] DIEHL, R.: *High-power diode lasers: fundamentals, technology, applications*. Springer-Verlag, Berlin, 2000.
 - [87] WOLL, D.: *Compact sources of visible radiation based on novel high-power diode-laser systems and nonlinear crystals with quasi-phase-matching*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2001.
 - [88] COLDREN, L. A. und S. W. CORZINE: *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*. John Wiley & Sons, New York, 1995.
 - [89] GRUNDMANN, MARIUS: *The Physics of Semiconductors: An Introduction including Device and Nanophysics*. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
 - [90] YU, P. Y. und M. CARDONA: *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties*. Springer-Verlag, Berlin, 2005.
 - [91] GROTE, N.: *Halbleiter-Injektionslaser*. Physik in unserer Zeit, 8:19, 1977.
 - [92] FUCHS, H.: *Spektral hochaufgelöste Untersuchung von Pikosekundenimpulsen aus modengekoppelten Hochleistungsdiodenlaser Oszillator-Verstärker-Systemen mit der Methode des Frequency Resolved Optical Gating*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2005.
 - [93] UNGER, P.: *Introduction to power diode lasers*. In: DIEHL, R. (Herausgeber): *High-power diode lasers: fundamentals, technology, applications*, Seiten 1–53. Springer-Verlag, Berlin, 2000.
 - [94] EBELING, K. J.: *Integrierte Optoelektronik*. Springer-Verlag, Berlin, 1992.
 - [95] FOUCKHARDT, H.: *Photonik*. Teubner Studienbücher, 1994.
 - [96] ZORY, P. S.: *Quantum Well Lasers*. Academic Press, New York, 1993.
 - [97] MAKINO, T.: *Analytical formulas for the optical gain of quantum wells*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 32(3):493–501, 1996.
 - [98] DRUTEN, N. J. VAN, S. S. R. OEMRAWSINGH, Y. LIEN, M. P. VAN DEXTER und J. P. WOERDMAN: *Observation of transverse modes in a microchip laser with combined gain and index guiding*. J. Opt. Soc. Am. B, 18(12):1793–1804, 2001.
 - [99] PFAHLER, C.: *Diodenlaser hoher Brillanz auf Basis der III-V-Antimonide*. Doktorarbeit, Albert-Ludwigs-Universität, Freiburg i. Br., 2006.

- [100] TANG, W. C., H. J. ROSEN, P. VETTIGER und D. J. WEBB: *Raman microprobe study of the time development of AlGaAs single quantum well laser facet temperature on route to catastrophic breakdown*. Appl. Phys. Lett., 58(6):557–559, 1991.
- [101] KOGELNIK, H. und C. V. SHANK: *Coupled-wave theory of distributed feedback lasers*. J. of Appl. Phys., 43(5):2327–2335, 1971.
- [102] YARIV, A. und M. NAKAMURA: *Periodic structures for integrated optics*. IEEE Journal of Quantum Electronics, QE-13(4):233–253, 1977.
- [103] OHTSUBO, J.: *Semiconductor Lasers: Stability, Instability and Chaos*. Springer-Verlag, Berlin, 2007.
- [104] BEIER, B., D. WOLL, M. SCHEIDT, K.-J. BOLLER und R. WALLENSTEIN: *Second harmonic generation of the output of an AlGaAs diode oscillator amplifier system in critically phase matched LiB_3O_5 and $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$* . Appl. Phys. Lett., 71(3):315–317, 1997.
- [105] KLEIN, M. E., D.-H. LEE, J.-P. MEYN, B. BEIER, K.-J. BOLLER und R. WALLENSTEIN: *Diode-pumped continuous-wave widely tunable optical parametric oscillator based on periodically poled lithium tantalate*. Opt. Lett., 23(11):831–833, 1998.
- [106] WOLL, D., B. BEIER, K.-J. BOLLER, R. WALLENSTEIN, M. HAGBERG und S. O'BRIEN: *1 W of blue 465-nm radiation generated by frequency doubling of the output of a high-power diode laser in critically phase-matched LiB_3O_5* . Opt. Lett., 24(10):691–693, 1999.
- [107] GEHRIG, E.: *Raumzeitliche Dynamik von Hochleistungshalbleiterlasern unter kohärenter Strahlinjektion*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 2000.
- [108] GEHRIG, E., O. HESS, C. SEIBERT, D. WOLL und R. WALLENSTEIN: *Amplification and wave-mixing of induced and spontaneous emission in semiconductor laser amplifiers*. J. of Appl. Phys., 40(11):4637–4641, 2001.
- [109] BEIER, B.: *Physikalische Eigenschaften moderner Hochleistungsdiodenlaser mit effizienter externer Frequenzkonversion in den sichtbaren Spektralbereich*. Doktorarbeit, Universität Kaiserslautern, 1999.
- [110] ASHKIN, A., G. D. BOYD und J. M. DZIEDZIC: *Resonant optical second harmonic generation and mixing*. IEEE Journal of Quantum Electronics, QE-2:109, 1966.
- [111] ARISHOLM, G. und K. STENERSEN: *Optical parametric oscillator with non-ideal mirrors and single- and multi-mode pump beams*. Optics Express, 4(5):183–192, 1999.

- [112] LIU, K. und M. G. LITTMAN: *Novel geometry for single-mode scanning of tunable lasers*. Opt. Lett., 6(3):117–118, 1981.
- [113] HERZBERG, GERHARD: *Molecular Spectra and Molecular Structure: II. Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules*. Krieger Publishing Company, Malabar, Florida, 1991.
- [114] SCHREMER, A. T. und C. L. TANG: *External-cavity semiconductor laser with 1000 GHz continuous piezoelectric tuning range*. IEEE Photon. Technol. Lett., 2:3–5, 1990.
- [115] WANDT, D., M. LASCHEK, K. PRZYKLENK, A. TÜNNERMANN und H. WELLING: *External cavity laser diode with 40 nm continuous tuning range around 825 nm*. Opt. Commun., 130:81–84, 1996.
- [116] KIGUCHI, T., A. UEMATSU, M. KITANO und H. OGURA: *Grating external cavity lasers with broad tunable range and narrow spectral linewidth for high-resolution spectroscopy*. Jap. J. Appl. Phys., 35:5890–5895, 1996.
- [117] PEZESHKI, B.: *New approaches to laser tuning*. Opt. Photon. News, 12:34–38, 2001.
- [118] TOPFER, T., K. P. PETROV, Y. MINE, D. JUNDT, R. F. CURL und F. K. TITTEL: *Room-temperature mid-infrared laser sensor for trace gas detection*. Appl. Opt., 36(30):8042–8049, 1997.
- [119] RICHTER, D., D. G. LANCASTER und F. K. TITTEL: *Development of an automated diode-laser-based multicomponent gas sensor*. Appl. Opt., 39(24):4444–4450, 2000.
- [120] NGAI, A. K. Y., S. T. PERSIJN, F. J. M. HARREN, H. VERBRAAK und H. LINN-ARTZ: *Selective trace gas detection of complex molecules with a continuous wave optical parametric oscillator using a planar jet expansion*. Appl. Phys. Lett., 90(81109), 2007.
- [121] HERPEN, M. M. J. W. VAN, S. E. BISSON und F. J. M. HARREN: *Continuous-wave operation of a single-frequency optical parametric oscillator at 4–5 μm based on periodically poled LiNbO_3* . Opt. Lett., 28(24):2497–2499, 2003.
- [122] HERPEN, M. M. J. W. VAN, S. E. BISSON, A. K. Y. NGAI und F. J. M. HARREN: *Combined wide pump tuning and high power of a continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator*. Appl. Phys. B, 78:281–286, 2004.
- [123] STOTHARD, D. J. M., I. D. LINDSAY und M. H. DUNN: *Continuous-wave pump-enhanced optical parametric oscillator with ring resonator for wide and continuous tuning of single-frequency radiation*. Optics Express, 12(3):502–511, 2004.

- [124] SAMANTA, G. K., G. R. FAYAZ und M. EBRAHIMZADEH: *1.59 W, single-frequency, continuous-wave optical parametric oscillator based on MgO:sPPLT*. Opt. Lett., 32(17):2623–2625, 2007.
- [125] GROSS, P., M. E. KLEIN, T. WALDE, K.-J. BOLLER, M. AUERBACH, P. WESSELS und C. FALLNICH: *Fiber-laser-pumped continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator*. Opt. Lett., 27(6):418–420, 2002.
- [126] STRÖSSNER, U., J.-P. MEYN, R. WALLENSTEIN, P. URENSKI, A. ARIE, G. ROSENMAN, J. MLYNEK, S. SCHILLER und A. PETERS: *Single-frequency continuous-wave optical parametric oscillator system with an ultrawide tuning range of 550 to 2830 nm*. J. Opt. Soc. Am. B, 19(6):1419–1424, 2002.
- [127] LINDSAY, I. D., B. ADHIMOOLAM, P. GROSS, M. E. KLEIN und K.-J. BOLLER: *110 GHz rapid, continuous tuning from an optical parametric oscillator pumped by a fiber-amplified DBR diode laser*. Optics Express, 13(4):1234–1239, 2005.
- [128] HENDERSON, A. und R. STAFFORD: *Low threshold, singly-resonant CW OPO pumped by an all-fiber pump source*. Optics Express, 14(2):767–772, 2006.
- [129] DENZER, W., G. HANCOCK, A. HUTCHINSON, M. MUNDAY, R. PEVERALL und G. A. D. RITCHIE: *Mid-infrared generation and spectroscopy with a PPLN ridge waveguide*. Appl. Phys. B, 86:437–442, 2007.
- [130] HOLLEMAN, A. F. und E. WIBERG: *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*. Walter de Gruyter Verlag, Berlin, 1976.
- [131] MORTIMER, CHARLES E.: *Chemie: Das Basiswissen der Chemie*. Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1986.
- [132] DEMTRÖDER, W.: *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, Berlin, 2005.
- [133] HAKEN, H. und H. C. WOLF: *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag, Berlin, 1993.
- [134] HÄNSEL, H. und W. NEUMANN: *Physik: Moleküle und Festkörper*. Spektrum Akademischer Verlag, 1996.
- [135] OLIVERO, J. J. und R. L. LONGBOTHUM: *Empirical fits to the Voigt line width: A brief review*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 17(233-236):12–98, 1977.
- [136] DEMTRÖDER, W.: *Molekülphysik: Theoretische Grundlagen und experimentelle Methoden*. Oldenbourg-Verlag, 2003.

- [137] AMIOT, C. und G. GUELACHVILI: *Vibration-rotation bands of $^{14}\text{N}_2^{16}\text{O}$: 1.2-micron–3.3-micron region*. J. Mol. Spectrosc., 51(3):475–491, 1974.
- [138] TOTH, R. A.: *Line-frequency measurements and analysis of N_2O between 900 and 4700 cm^{-1}* . Appl. Opt., 30(36):5289–5315, 1991.
- [139] DEMTRÖDER, W.: *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
- [140] ROTHMAN, L. S., R. L. HAWKINS, R. B. WATTSON und R. R. GAMACHE: *Energy levels, intensities, and linewidths of atmospheric carbon dioxide bands*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 48(5-6):537–566, 1992.
- [141] POLLOCK, C. R., F. R. PETERSEN, D. A. JENNINGS, J. S. WELLS und A. G. MAKI: *Absolute frequency measurements of the $00^0 2-00^0 0$, $20^0 1-00^0 0$, and $12^0 1-00^0 0$ bands of N_2O by heterodyne spectroscopy*. J. Mol. Spectrosc., 107(1):62–71, 1984.
- [142] BONGS, K., J. REICHEL und K. SENGSTOCK: *Bose-Einstein-Kondensation: Das ideale Quantenlabor*. Physik in unserer Zeit, 34(4):168–176, 2003.
- [143] ETCHEGOIN, P. G. und E. C. LE RU: *A perspective on single molecule SERS: current status and future challenges*. Physical Chemistry Chemical Physics, 10(40):6079–6089, 2008.
- [144] HÄNSCH, T. W. und B. COUILLAUD: *Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity*. Opt. Commun., 35:441–444, 1980.
- [145] DREVER, R. W. P., J. L. HALL, F. V. KOWALSKI, J. HOUGH, G. M. FORD, A. J. MUNLEY und H. WARD: *Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator*. Appl. Phys. B, 31(2):97–105, 1983.
- [146] BJORKLUND, G. C., M. D. LEVENSON, W. LENTH und C. ORTIZ: *Frequency Modulation (FM) Spectroscopy: Theory of Lineshapes and Signal-to-Noise Analysis*. Appl. Phys. B, 32(3):145–152, 1983.
- [147] BLACK, E. D.: *An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization*. Am. J. Phys., 69(1):79–87, 2001.

Danksagung

Herrn PROF. DR. RICHARD WALLENSTEIN danke ich für die interessante Aufgabenstellung, die Förderung und die ständige Gesprächsbereitschaft während dieser Arbeit.

Herrn PROF. DR. RENÉ BEIGANG danke ich für die ständige Diskussionsbereitschaft und seinem Interesse für den Fortschritt der vorliegenden Arbeit.

Bei DR. HABIL. JOHANNES L'HUILLIER, FELIX RÜBEL, THORSTEN ULM und FLORIAN HARDT möchte ich mich für die kritische Durchsicht dieser Arbeit bedanken.

Herzlich danken möchte ich FELIX RÜBEL, THORSTEN ULM, FLORIAN HARDT, TOBIAS TRAUB, DR. HARRY FUCHS, DR. THORSTEN ANDRES, DR. JOCHEN KLEINBAUER und allen ehemaligen und aktuellen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für die zahlreichen Diskussionen und für die ausgesprochen nette Büroatmosphäre.

Den Technikern PETER BOHNERT und PETER FROHNHÖFER sowie den Elektronikern KARL KÖHL und HERRMANN KRENZ danke ich für ihre Unterstützung und Hilfe bei technischen und elektronischen Problemen.

Herrn DR. DIRK WOLL und Herrn DR. MARVIN KLEIN möchte ich danken für die Hilfe bei der Einarbeitung in die Materie.

Meinen Eltern, ROSEL und FRIEDRICH HAAG, möchte ich für die Unterstützung und Hilfe während des ganzen Studiums der Physik danken.

Nicht zuletzt möchte ich mich bei MIRIAM bedanken, die mir ständig zur Seite gestanden hat und mir auch in *schwierigen Zeiten* stets Ihre volle Unterstützung geschenkt hat.

Lebenslauf

PERSÖNLICHE DATEN

Name		Peter Haag
geboren am	17.08.1972	in Kaiserslautern
Nationalität		deutsch
Familienstand		ledig

SCHULBILDUNG

	09/1978 - 07/1982	Grundschule in Weilerbach
	09/1982 - 06/1992	Hohenstaufen-Gymnasium in Kaiserslautern
Abschluss		Allgemeine Hochschulreife

WEHRDIENST

	10/1992 - 09/1993	Signalgast beim 7. Minensuchgeschwader der Bundesmarine in Neustadt/Holstein
--	-------------------	--

HOCHSCHULAUSBILDUNG

Abschluss	10/1993 - 03/2002	Studium der Physik an der Universität Kaiserslautern
		Diplom-Physiker
	05/2002 - 09/2004	Promotionsstudium an der Universität Kaiserslautern
	seit 10/2004	Promotion an der Technischen Universität Kaiserslautern

BERUFLICHE TÄTIGKEITEN

08/1997 - 09/2000	wissenschaftliche Hilfskraft am Lehrstuhl Fertigungstechnik und Betriebsorganisation - FBK der Universität Kaiserslautern
03/1998 - 07/1998	Fa. Schott Glas in Mainz, Organisationstelle Technologieentwicklung Schichten
05/2002 - 04/2007	wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Technischen Universität Kaiserslautern
05/2007 - 06/2009	Fa. GWU-Lasertechnik Vertriebsges. mbH in Erftstadt

