Kapitel 3

Optisch parametrische Oszillation

Wie im vorherigen Kapitel bereits erwähnt, führt der Prozess der Differenzfrequenz-Erzeugung zu einer Verstärkung des eingestrahlten 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

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

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

Hierbei ist $g = [\kappa_1 \kappa_2^* - (\Delta k/2)^2]^{1/2}$ und $\kappa_i = \frac{8\pi i \omega_i^2 dE_3}{k_j c^2}$. 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:

$$gL = 1 - R. \tag{3.3}$$

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:

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

$$E_{2}^{*}(0) = \left[E_{2}(0)coshgL + \frac{\kappa_{2}^{*}}{g} \cdot E_{1}^{*}(0)sinhgL\right] \cdot (1 - l_{2}).$$
(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 Vorraussetzung, dass die Gleichungen (3.4a-b) gleichzeitig erfüllt werden müssen, lautet die Schwellwertbedingung:

$$\cosh gL = 1 + \frac{l_1 \cdot l_2}{2 - l_1 - l_2}.$$
(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. $l_1, l_2 \ll 1$. coshgL 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:

$$g^2 L^2 = l_1 \cdot l_2. \tag{3.6}$$

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:

$$g^2 L^2 = 2 \cdot l_1. \tag{3.7}$$

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 abstimmbar, 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 bezüglich 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 eingestrahlten 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 eingestrahlten Feldamplitude $E_1(0)$ unterscheiden. Es gilt

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

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

$$E_1(z) \approx E_1(0). \tag{3.9}$$

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:

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$P_{3,th} = \frac{4\pi c^2 n_1 n_2 (1 - R_1)}{\mu_0 \omega_1 \omega_2 \omega_3 d_{eff}^2 L_C}.$$
(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 eingestrahlten Wellen immer gleich der Kristalllänge ist. Der Effekt einer längeren Wechselwirkungslänge im Kristall wird teilweise durch die weniger starke Fokussierung kompensiert.