

# Kapitel 1

## Einleitung

Zahlreiche Anwendungen im Bereich der Spektroskopie, Photochemie, Photobiologie sowie der Ferndiagnostik von Umweltschadstoffen in Luft (LIDAR) erfordern spektral über einen weiten Bereich abstimmbare, gepulste kohärente Strahlung geringer spektraler Linienbreite. Als effiziente Strahlquellen zur Erzeugung abstimmbarer Strahlung haben sich optisch parametrische Oszillatoren (OPO) bewährt [1]. Ein häufig verwendetes Verfahren zur Reduzierung der spektralen Linienbreite der OPO-Strahlung stellt das Einfügen frequenzselektiver Elemente in den Resonator dar [2, 3]. Diese Methode besitzt den Nachteil, dass Streuung, Reflexion und Absorption von Strahlung an den optischen Elementen zu einer substantiellen Verringerung der verfügbaren Ausgangsleistung führen. Ein weitaus effizienteres Verfahren zur Einengung der spektralen Emission eines OPO beschreibt die Methode des Injection Seeding [4, 5, 6]. Dabei führt die Einkopplung spektral schmalbandiger Strahlung in den nichtlinearen Kristall zu einer spektralen Kondensation des OPO-Spektrums. Zur Erzeugung spektral einmodiger Strahlung mit hoher zeitlicher Stabilität muss die Resonatorlänge aufgrund thermischer Drifts aktiv auf die Frequenz der Seedstrahlung stabilisiert werden. Zusätzlich muss die Resonatorlänge während der Wellenlängenabstimmung ständig angepasst werden, um den spektralen Überlapp zwischen der Resonatormode und der Mode der Seedstrahlung aufrechtzuerhalten.

Das Verfahren des Injection Seeding kann durch Verwendung eines optisch parametrischen Generators (OPG) wesentlich vereinfacht werden. Wegen des kontinuierlichen Spektrums eines OPG ist eine aktive Moden-Stabilisierung nicht notwendig. Während aufgrund der hohen erforderlichen Impulsspitzenintensitäten zunächst nur effiziente OPGs im Ultrakurzpulsbereich verwirklicht werden konnten [7, 8, 9, 10], ermöglichen die technologischen Fortschritte bei der Herstellung periodisch strukturierter Kri-

stalle zur Quasi-Phasen Anpassung die Erzielung hoher OPG-Ausgangsleistungen bei Impulslängen einiger Nanosekunden [11, 12, 13, 14, 15].

In Referenz [16] wurde ein ns-OPG beschrieben, dessen Signal- und Idlerwellenlänge bei einer Impulsrepetitionsrate von 10 kHz von Impuls zu Impuls abgestimmt werden konnten. Eine vollständige spektrale Kontrolle sowohl der Linienbreite als auch der Emissionswellenlänge des OPG wurde dabei durch Injection Seeding mit einem Distributed-Feedback-Diodenlaser erreicht. Auf dem gleichen Prinzip beruht ein von Reichardt et al. verwirklichtes portables, frequenzstabilisiertes OPG-System zur Detektion von Undichtigkeiten in Gasleitungen [17]. Ein prinzipieller Nachteil dieser Systeme ist die geringe Abstimmbandbreite aufgrund der begrenzten Wellenlängenabstimmbarkeit technologisch herstellbarer Seedlaser.

Eine elegante Methode zur Erzeugung spektral weit abstimmbarer, spektral schmalbandiger gepulster Strahlung stellt das Verfahren des Self-Injection Seeding dar [18]. Beim Self-Injection Seeding wird ein geringer Prozentsatz der Energie der erzeugten Lichtimpulse spektral gefiltert und nach Durchlaufen einer Verzögerungsstrecke zeitgenau mit den nachfolgenden Impulsen überlagert. Durch Verzögerung der Seedimpulse mit Hilfe einer Single-Mode-Faser und anschließende Rückkopplung konnte bereits die weite Wellenlängenabstimmung gewinn-modulierter Halbleiter-Laser mit Impulsrepetitionsraten im Bereich einiger GHz demonstriert werden [19, 20, 21, 22, 23, 24].

Eine Übertragung dieser Methode auf einen OPG mit Impulslängen im Bereich einiger Nanosekunden ist aufgrund der geringeren Impulsrepetitionsraten im Bereich einiger Kilohertz und der daraus resultierenden langen Verzögerungsstrecken nicht trivial. Die zeitgenaue Superposition der Seedimpulse mit den nachfolgenden Pumpimpulsen stellt zudem hohe Anforderungen an die zeitliche Impuls-zu-Impuls-Stabilität des verwendeten Pumplasers. Eine erfolgreiche Demonstration eines ns-OPG mit Self-Injection Seeding würde die Möglichkeit zur Erzeugung leistungsstarker, weit abstimmbarer kohärenter Strahlung geringer Linienbreite in neuen Spektralbereichen eröffnen. Ein primäres Ziel dieser Arbeit war daher die erstmalige Realisierung eines spektral weit abstimmbaren ns-OPG geringer spektraler Linienbreite mit Self-Injection Seeding durch Strahlungsrückkopplung mit einer Standard-Single-Mode-Faser.

Die Implementierung der Methode des Self-Injection Seeding in neuartigen Strahlquellen erfordert darüberhinaus ein tiefgehendes Verständnis des Einflusses des Self-Injection Seeding auf den parametrischen Verstärkungsprozess. Die Wechselwirkung von Wellen in optisch nichtlinearen Medien wurde bereits 1962 von Bloembergen theoretisch dargestellt [25]. Die Beschreibung optisch nichtlinearer Phänomene ergibt sich aus der Lösung der verallgemeinerten, nichtlinearen Schrödinger-Gleichung. Eine ana-

---

lytische Lösung der Gleichung ist jedoch nur unter der Annahme einschränkender Näherungen möglich und führt häufig zu unbefriedigenden Resultaten [26, 27, 28].

Die Lösung der verallgemeinerten, nichtlinearen Schrödinger-Gleichung für gepulste, spektral breitbandige optisch parametrische Generation unter Berücksichtigung des Pumpabbaus ist nur numerisch möglich. Zur adäquaten Beschreibung des Einflusses von Injection Seeding auf die charakteristischen Eigenschaften des OPG ist es notwendig, die quantenmechanischen Eigenschaften der Rauschfelder von Signal- und Idlerwelle zu berücksichtigen. Fix und Wallenstein beschreiben in Referenz [29] ein halbklassisches Modell eines ns-OPO, bei welchem die Nullpunktsfluktuationen der Signal- und Idlermoden quantenmechanisch beschrieben werden und die Pumpwelle aufgrund der hohen Impulsenergie klassisch behandelt wird. Das numerische Modell unterliegt der Einschränkung ebener Wellen bei streng monochromatischer Pumpstrahlung und erlaubt eine näherungsweise Vorhersage der spektralen Eigenschaften eines OPO mit und ohne Injection Seeding.

Ein umfassenderes, drei-dimensionales Modell eines ns-OPO unter Berücksichtigung longitudinal multimodiger Pumpstrahlung, Dispersion, Doppelbrechung und transversaler Strahleigenschaften wurde 1999 von Arisholm vorgestellt [30]. Arisholm verwendete das Modell zur Simulation der spektralen und räumlichen Fluktuationen eines ns-OPO. Exakt dieses Modell wurde später von Smith zur ein-dimensionalen Simulation des Einflusses von Injection Seeding auf das Spektrum eines ns-OPO unter der Annahme ebener Wellen verwendet [31].

Bei der numerischen Beschreibung von ns-OPOs muss wegen der geringen Linibreite des generierten Signalspektrums lediglich eine geringe Anzahl von Moden berücksichtigt werden. Eine besondere Schwierigkeit bei der Simulation eines ns-OPG im Vergleich zum ns-OPO liegt in der Tatsache, dass ein OPG aufgrund der fehlenden Rückkopplung ein sehr viel breiteres Emissionsspektrum besitzt als ein OPO. Aufgrund des Nyquist-Theorems der Fourier-Transformation bedarf es deshalb einer hohen zeitlichen Auflösung des ns-Impulses und damit einer hohen Zahl von Zeitgitterpunkten. Darüberhinaus ist die spektrale OPG-Emission kontinuierlich, so dass zur Beschreibung der spektralen OPG-Eigenschaften zusätzlich eine hohe Frequenzauflösung erforderlich ist. Dadurch wird die Anzahl benötigter Zeitgitterpunkte zusätzlich erhöht. Numerische Berechnungen bzgl. des Einflusses von Injection Seeding auf die charakteristischen Eigenschaften eines OPG sind in der Literatur bisher nicht zu finden. Ein weiteres Ziel dieser Arbeit war daher die Entwicklung eines geeigneten numerischen Modells zur Simulation des Einflusses von Self-Injection Seeding auf die spektralen und zeitlichen Eigenschaften eines ns-OPG sowie auf die OPG-Ausgangsleistung.



# Kapitel 2

## Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen der nichtlinearen Optik skizziert, wie sie in [32], [33], [34] und [35] in ausführlicherer Darstellung nachzulesen sind. Nach einem kurzen Exkurs in die Faseroptik werden am Ende des Kapitels die Materialeigenschaften von kongruentem  $\text{LiNbO}_3$  zusammengestellt.

### 2.1 Nichtlineare Wechselwirkung in verlustfreien, dispersiven Medien

In diesem Abschnitt wird die verallgemeinerte, nichtlineare Schrödinger-Gleichung hergeleitet. Sie dient als Ausgangspunkt zur Beschreibung vielfältiger optisch nichtlinearer Phänomene. Insbesondere werden in diesem Abschnitt die Eigenschaften der optisch parametrischen Verstärkung und der Quasi-Phasenanpassung näher erläutert. In diesem Zusammenhang werden die Nullpunktsfluktuationen der elektromagnetischen Felder sowie die Methode des Injection Seeding diskutiert.

#### 2.1.1 Verallgemeinerte, nichtlineare Schrödinger-Gleichung und parametrische Verstärkung

In der nichtlinearen Optik werden Phänomene untersucht, bei denen sich die optischen Eigenschaften eines Materials bei der Anwesenheit von intensivem Licht ändern. Zur quantitativen Erfassung der optischen Nichtlinearität dient die induzierte Polarisation. Zeit- und ortsabhängige elektromagnetische Felder  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  erzeugen in einem Medium eine induzierte Polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t)$ , die sich im allgemeinen als Taylorentwicklung nach

der elektrischen Feldstärke darstellen läßt:

$$\begin{aligned}\vec{P}(\vec{r}, t) &= \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)}(\vec{r}, t) * \vec{E}(\vec{r}, t) + \chi^{(2)}(\vec{r}, t) * \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) + \dots \right) \\ &= \vec{P}^L(\vec{r}, t) + \left( \vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) \right)\end{aligned}\quad (2.1)$$

Hierbei bezeichnen  $\varepsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante im Vakuum,  $\chi^{(j)}$  den Suszeptibilitätstensor  $j$ -ter Ordnung und der Operator  $*$  das mehrdimensionale Faltungsintegral. Der erste Term auf der rechten Seite von (2.1),  $\vec{P}^L$ , beschreibt die lineare Antwort eines Mediums auf die Einstrahlung einer elektromagnetischen Welle, während  $\vec{P}^{NL}$  die nichtlineare Wechselwirkung intensiver elektromagnetischer Wellen beschreibt. Dabei dient die nichtlineare Suszeptibilität 2. Ordnung  $\chi^{(2)}$  zur Beschreibung sogenannter Drei-Wellen-Mischprozesse, wie z. B. Frequenzverdopplung, optische Gleichrichtung und parametrische Verstärkung. Durch  $\chi^{(3)}$  wird die Vier-Wellenmischung, aus welcher z. B. Frequenzverdreifachung und intensitätsabhängiger Brechungsindex resultieren, ausgedrückt.

Die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in optisch nichtlinearen Medien wird durch die Maxwell-Gleichungen beschrieben. Für homogene nichtleitende und nichtmagnetische Medien gilt [36]:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.2)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}(\vec{r}, t) \quad (2.4)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}(\vec{r}, t) \quad (2.5)$$

Dabei bezeichnen  $\vec{D}$  die dielektrische Verschiebungsdichte,  $\vec{B}$  die magnetische Flußdichte und  $\vec{H}$  die magnetische Feldstärke.

Außerdem gelten folgende Materialgleichungen:

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{H}(\vec{r}, t) \quad (2.6)$$

$$\begin{aligned}\vec{D}(\vec{r}, t) &= \varepsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}(\vec{r}, t) \\ &= \varepsilon_0 \vec{D}^L(\vec{r}, t) + \vec{P}^{NL}(\vec{r}, t)\end{aligned}\quad (2.7)$$

$$\text{mit} \quad \begin{cases} \vec{D}^L(\vec{r}, t) = \varepsilon^L(\vec{r}, t) * \vec{E}(\vec{r}, t) \\ \varepsilon^L(\vec{r}, t) = 1 + \chi^{(1)}(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.8)$$

wobei Gl. (2.1) angewendet wurde. In den Gleichungen (2.6), (2.7) und (2.8) bezeichnen  $\mu_0$  die magnetische Permeabilitätskonstante,  $\vec{D}^L$  die lineare dielektrische Verschiebungsdichte und  $\epsilon^L$  die lineare relative Dielektrizität.

Durch Bildung von  $\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t))$  in Gleichung (2.4) erhält man mit Hilfe der Gleichungen (2.5), (2.6) und (2.7) und  $\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = 0$  die Wellengleichung für nichtleitende, nichtmagnetische Medien:

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{D}^L}{\partial t^2}(\vec{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}(\vec{r}, t) \quad (2.9)$$

Geht man davon aus, dass sich die Polarisation der elektromagnetischen Wellen während der Propagation durch das nichtlineare Medium nicht ändert, so können die vektoriellen Größen durch Skalare ersetzt werden. Wählt man als Ausbreitungsrichtung der elektromagnetischen Wellen die z-Richtung und definiert man

$$E(\vec{r}, t) = \epsilon(\vec{r}, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)} \quad (2.10)$$

so erhält man als Fourier-Darstellungen der zeitlich oszillierenden Größen:

$$E(\vec{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int E(\vec{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad \text{mit} \quad E(\vec{r}, \omega) = e^{ik_s z} \epsilon(\vec{r}, \omega - \omega_s) \quad (2.11)$$

$$D^L(\vec{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int D^L(\vec{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad \text{mit} \quad D^L(\vec{r}, \omega) = \epsilon(\vec{r}, \omega) E(\vec{r}, \omega) \quad (2.12)$$

$$P^{NL}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int P^{NL}(\vec{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (2.13)$$

Für verlustfreie Medien ( $\epsilon^* = \epsilon$ ) erhält man durch Einsetzen der Gleichungen (2.11), (2.12) und (2.13) in Gl. (2.9) die Darstellung der Wellengleichung im Frequenzraum:

$$\left[ \vec{\nabla}_T^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_s \frac{\partial}{\partial z} + (k^2(\vec{r}, \omega) - k_s^2) \right] \epsilon(\vec{r}, \omega - \omega_s) = -\mu_0 \omega^2 P^{NL}(\vec{r}, \omega) e^{-ik_s z} \quad (2.14)$$

$$\text{wobei} \quad k^2(\vec{r}, \omega) = \epsilon(\vec{r}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} = n^2(\vec{r}, \omega) \frac{\omega^2}{c^2} \quad \text{mit} \quad n(\vec{r}, \omega) = \sqrt{\epsilon(\vec{r}, \omega)} \quad (2.15)$$

Dabei bezeichnen  $n(\vec{r}, \omega)$  den linearen Brechungsindex und  $c$  die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Zur physikalischen Interpretation von Gl. (2.14) ist es sinnvoll,  $k(\vec{r}, \omega)$  in einer Taylorreihe um die Frequenz  $\omega_s$  zu entwickeln:

$$\begin{aligned} k(\vec{r}, \omega) &= k(\vec{r}, \omega_s) + \left. \frac{\partial k}{\partial \omega}(\vec{r}, \omega) \right|_{\omega=\omega_s} + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}(\vec{r}, \omega) \right|_{\omega=\omega_s} (\omega - \omega_s)^2 + \dots \\ &= k_s + k_1(\omega - \omega_s) + D \quad \text{mit} \quad D = \sum_{m=2}^{\infty} \frac{1}{m!} k_m(\omega - \omega_s)^m \end{aligned} \quad (2.16)$$

Führt man die Ableitungen bis zur zweiten Ordnung in Gl. (2.16) unter Verwendung von Gl. (2.15) explizit durch, so erhält man:

$$k_1 = \frac{1}{c} \left[ n(\vec{r}, \omega) + \omega \frac{\partial n}{\partial \omega}(\vec{r}, \omega) \right] = \frac{1}{v_g} \quad (2.17)$$

$$k_2 = \frac{1}{c} \left[ 2 \frac{\partial n}{\partial \omega}(\vec{r}, \omega) + \omega \frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2}(\vec{r}, \omega) \right] = -\frac{1}{v_g^2} \frac{\partial v_g}{\partial \omega} \quad (2.18)$$

$k_1$  entspricht also dem Kehrwert der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  und  $k_2$  der Gruppengeschwindigkeitsdispersion. Durch Multiplikation von Gl. (2.14) mit  $e^{-i(\omega - \omega_s)t}$  und Integration über  $d(\omega - \omega_s)$  erhält man mit

$$P^{NL}(\vec{r}, t) = p^{NL}(\vec{r}, t) e^{i[(k_p - k_i)z - (\omega_p - \omega_i)t]} \quad (2.19)$$

$$\text{wobei } \omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (\text{Energieerhaltung}) \quad (2.20)$$

und den Variablentransformationen

$$z' = z \quad \text{und} \quad \tau = t - k_m z \quad (2.21)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z'} - k_m \frac{\partial}{\partial \tau} \quad \text{und} \quad \frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \tau} \quad (2.22)$$

die verallgemeinerte, nichtlineare Schrödinger-Gleichung für verlustfreie, nichtleitende und nichtmagnetische dispersive Medien im sogenannten retardierten Zeitsystem [37]:

$$\left[ \vec{\nabla}_T^2 + \frac{\partial^2}{\partial z'^2} - 2k_m \frac{\partial}{\partial z'} \frac{\partial}{\partial \tau} + k_m^2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} + 2ik_s \left( \frac{\partial}{\partial z'} + (k_1 - k_m) \frac{\partial}{\partial \tau} \right) + 2k_s D + 2ik_1 D \frac{\partial}{\partial \tau} - k_1^2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} \right] \epsilon(x, y, z', \tau) = \mu_0 \left[ \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - 2i\omega_s \frac{\partial}{\partial \tau} - \omega_s^2 \right] p^{NL}(x, y, z', \tau) e^{i\Delta k z} \quad (2.23)$$

mit

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i \quad (2.24)$$

$$D = \sum_{m=2}^{\infty} \frac{1}{m!} k_m \left( i \frac{\partial}{\partial t} \right)^m \quad (2.25)$$

wobei

$$k_m^{-1} = v_m: \text{ beliebige Referenz-Gruppengeschwindigkeit} \quad (2.26)$$