



# 1 Kapitel Einleitung

Das praktisch genutzte Spektrum elektromagnetischer Wellen reicht von den Gammastrahlen mit Wellenlängen im Pikometerbereich bis hin zu den Radiowellen mit Wellenlängen, die mehrere tausend Kilometer erreichen können. Viele Spektralbereiche sind direkt mit Prozessen innerhalb der uns umgebenden Atome, Moleküle und Körper verknüpft: Gammastrahlen entstehen beim Übergang zwischen den Energiezuständen von Atomkernen, Röntgenstrahlung bis Infrarotwellen bei Zustandsübergängen innerhalb der Elektronenhülle von Atomen, mittel- und ferninfrarote Wellen entsprechen Molekülschwingungen und Mikro- bzw. Radiowellen werden durch Molekülrotationen hervorgerufen. Hierbei sind die Beziehungen wechselseitig, das heißt, wenn eine Quelle für die entsprechende Strahlung verfügbar ist, kann auch die entsprechende Reaktion des Materials gezielt angeregt werden.

Ein spektroskopisch interessanter Bereich ist der ferninfrarote, im folgenden Terahertz-Bereich genannt, welcher oft mit Frequenzen zwischen 0,1 THz und 10 THz beziehungsweise Wellenlängen von 3 mm bis 30  $\mu\text{m}$  definiert wird. Anhand von Transmissions- oder Absorptionsspektren lassen sich dort Sprengstoffe [1], Drogen [2], DNA [3] und sogar ganze biologische Zellen [4] identifizieren. Um Resonanzen in Gasen aufzulösen, werden Dauerstrich-THz-Quellen mit Linienbreiten von wenigen MHz benötigt [5, 6]. Für astronomische Beobachtungen im THz-Bereich, welche unter anderem wichtige Informationen über die Materialzusammensetzung galaktischer Objekte liefern [7], sind leistungstarke und schmalbandige THz-Lokaloszillatoren nötig [8].

Die Erzeugung kohärenter Strahlung im THz-Bereich ist noch immer eine Herausforderung, und es gibt keine kontinuierlich emittierende Quelle, die eine weite Durchstimmbarkeit mit hoher Leistung, schmaler Linienbreite und einem guten Strahlprofil vereint. THz-Wellen können mit optisch gepumpten Molekül-Lasern [9] erzeugt werden, allerdings sind diese Laser nicht durchstimmbar. Quantenkaskadenlaser können bis zu 100 GHz durchstimmbare [10] THz-Wellen mit Leistungen im Milliwattbereich [11] erzeugen, allerdings weisen sie ein sehr schlechtes Strahlprofil auf [12] und müssen meist kryogen gekühlt werden. Ähnliche Eigenschaften gelten für komplett elektronische Frequenzmultiplikator-Ketten, bei denen die Ausgangsleistung für Frequenzen oberhalb 1 THz aber nur im  $\mu\text{W}$ -Bereich liegt [13], weshalb sie hauptsächlich bis zu einigen 100 GHz Verwendung finden.

Zu den durchstimmbaren THz-Quellen zählen Freie-Elektronen-Laser [14]. Diese sind jedoch hallenfüllende Aufbauten und emittieren unter den Strahlenschutz fallende Sekundärstrahlung. Die am weitesten verbreitete Quelle für durchstimmbare Dauerstrich-THz-Wellen basiert auf Photomischung: Hier wird ein photoleitender



Schalter mit der Schwebung zweier infraroter Laser angesteuert und mit dem geschalteten Strom eine Antenne gespeist, welche die THz-Welle mit der Differenzfrequenz der beiden Infrarotlaser abstrahlt. Die Linienbreite ist nicht größer als die der verwendeten Laser, und um 1 THz sind Leistungen im  $\mu\text{W}$ -Bereich möglich [15] - zu höheren Frequenzen fällt die erreichbare Leistung aufgrund der RC-Zeitkonstante des Photoschalters und der endlichen Lebensdauer der Leitungselektronen im Photoschalter typischerweise mit über 10 dB pro Oktave ab [16]. In den letzten 15 Jahren konnte die Ausgangsleistung der Photomischer oberhalb von 1 THz bedingt durch die prinzipiellen Beschränkungen der elektronischen Erzeugung nicht signifikant erhöht werden [8, 15].

Eine Lichtquelle, welche keinen elektronischen Beschränkungen unterliegt, ist der optisch parametrische Oszillator (OPO) [17], welcher bereits 1965 von GIORDMAINE et al. experimentell realisiert wurde [18]. Ein OPO basiert auf nichtlinear-optischer Frequenzmischung und konvertiert die Photonen eines Pumplasers zu längerwelligem Signal- und Idlerlicht. Die Durchstimbarkeit unterliegt keinen prinzipiellen Grenzen, standardmäßig werden beugungsbegrenzte Strahlqualitäten erreicht, und die Linienbreite der erzeugten Wellen kann wenige kHz betragen [19]. Aus diesen Gründen haben sich optisch parametrische Oszillatoren vor allem als Spektroskopiequelle im infraroten Spektralbereich durchgesetzt [20, 21], wo die benötigten optisch-nichtlinearen Materialien eine hohe Transparenz aufweisen.

Da ihre Durchstimbarkeit nicht fundamental begrenzt ist, können OPOs auch im THz-Bereich eingesetzt werden. Im gepulsten Regime wurden parametrische Oszillatoren basierend auf Lithiumniobat [22] und in Kombination mit einer nichtlinearen Differenzfrequenzmischung in Galliumarsenid [23] demonstriert. SOWADE et al. haben 2009 einen Dauerstrich-parametrischen Oszillator mit einer Leistung von mehreren  $\mu\text{W}$  bei Frequenzen über 1 THz gezeigt [24]. Dabei diente die Signalwelle eines mittelinfraroten parametrischen Oszillators als Pumpwelle für eine sekundäre parametrische Oszillation mit der Idlerwelle im THz-Bereich. Da sich die beiden parametrischen Prozesse einen Kristall und einen Resonator teilen, ist der Durchstimmbereich der THz-Welle allerdings auf 1,3 THz bis 1,7 THz begrenzt.

In der vorliegenden Arbeit werden kontinuierlich emittierende parametrische Oszillatoren auf ihre Eignung als weit durchstimmbare Quellen für die THz-Spektroskopie untersucht. Dabei kommen zwei verschiedene Konzepte zum Einsatz, welche miteinander verglichen werden: Direkte Erzeugung als Idlerwelle eines parametrischen Oszillators ("THz-OPO") sowie Erzeugung mit Differenzfrequenzmischung der Signal- und Idlerwelle eines optisch parametrischen OPOs („THz-DFG“ für englisch Difference Frequency Generation).

Bisher wurde zur nichtlinear-optischen Erzeugung von Dauerstrich-THz-Wellen meist Lithiumniobat eingesetzt, welches einen sehr großen nichtlinearen Koeffizienten aber auch hohe Absorption im THz-Bereich besitzt. Der in der vorliegenden Arbeit vorgestellte THz-OPO basiert ebenfalls auf diesem Material, allerdings wird die beim Konzept von SOWADE et al. [24] nötige Kaskadierung zweier parametrischer Oszillationen vermieden, indem der festfrequente Pumplaser resonant überhöht wird,

um so die hohe Pumpschwelle zu überschreiten. Zunächst werden Durchstimmbarkeit und Ausgangsleistung sowie Strahlqualität und Polarisation der erzeugten THz-Welle untersucht. Außerdem werden die prinzipiellen Grenzen dieses Konzepts, welche durch das Überschreiten der Pumpschwelle gegeben sind, diskutiert.

Ein weiteres, für die nichtlineare Optik im THz-Bereich vielversprechendes Material ist Galliumarsenid, welches im Vergleich zu Lithiumniobat einen etwas niedrigeren nichtlinearen Koeffizienten, aber auch eine viel geringere Absorption aufweist. Im Jahr 2001 haben EYRES et al. ein epitaktisches Verfahren veröffentlicht [25], welches die Herstellung von periodisch orientiertem Galliumarsenid mit Abmessungen und optischen Qualitäten erlaubt, wie sie für die nichtlineare Optik mit kontinuierlichen Wellen benötigt werden. SCHAAR et al. konnten basierend auf diesem Material die gepulste Erzeugung von THz-Wellen um 2,8 THz mit Durchschnittsleistungen um 1 mW nachweisen [23]. In der vorliegenden Arbeit wird erstmals die Erzeugung von Dauerstrich-THz-Wellen auf Basis von Galliumarsenid untersucht. Dazu werden zwei infrarote Wellen mit einem Frequenzabstand im THz-Bereich in Galliumarsenid zur eigentlichen THz-Welle gemischt. Diese THz-Differenzfrequenzmischung hat keine Pumpschwelle, und die Durchstimmbarkeit sowie Ausgangsleistung sind hauptsächlich von den beiden einlaufenden infraroten Wellen abhängig. Die infraroten Wellen sind in der vorliegenden Arbeit die Signal- und Idlerwelle eines doppelresonanten, optisch-parametrischer Oszillators, welcher nahe am Degenerationspunkt betrieben wird. Dieses Konzept wird hinsichtlich Ausgangsleistung, Durchstimmbarkeit und Strahleigenschaften mit dem Lithiumniobat-basierten THz-OPO sowie anderen bereits bekannten Quellen für Dauerstrich-THz-Wellen verglichen.



# 2 Kapitel Grundlagen

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, mit nichtlinear-optischen Prozessen ferninfrarote Wellen zu erzeugen. Dafür kommen optisch-parametrische Oszillatoren zum Einsatz, welche die Terahertzwellen entweder direkt oder über eine nachfolgende Differenzfrequenzmischung der generierten Signal- und Idlerwelle erzeugen. In diesem Kapitel werden die Grundlagen der optisch-parametrischen Verstärkung und Oszillation behandelt. Außerdem werden in den Kristallen auftretende thermische Effekte quantitativ analysiert.

## 2.1 Optisch-Parametrische Verstärkung

Die Ausbreitung einer elektrischen Welle mit der Feldamplitude  $\mathcal{E}$  führt in einem dielektrischen Medium zu einer Schwingungsanregung der Elektronen, welche wiederum als Quelle für eine neu emittierte Welle wirkt. Die Antwort des Materials auf die einfallende Welle wird allgemein durch die elektrische Polarisierung  $\mathcal{P}$  beschrieben:

$$\mathcal{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \mathcal{E} + \chi^{(2)} \mathcal{E}^2 + \chi^{(3)} \mathcal{E}^3 + \dots). \quad (2.1)$$

Hierbei ist  $\epsilon_0$  die Vakuumpermittivität und  $\chi$  der elektrische Suszeptibilitätstensor. Bei großen Feldstärken  $\mathcal{E}$  müssen auch höhere Ordnungen der elektrischen Suszeptibilität berücksichtigt werden, weil die Polarisierung des Materials dem elektrischen Feld nicht beliebig weit linear folgen kann. Da die Polarisierung dann auch Produktterme in höherer Ordnung des Felds beinhaltet, kann  $\mathcal{P}$  auch Frequenzkomponenten enthalten, die in  $\mathcal{E}$  noch nicht vorhanden sind. Für die Frequenzkonversion in dieser Arbeit ist ausschließlich die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung  $\chi^{(2)}$  relevant, und Terme höherer Ordnung können vernachlässigt werden:

$$\mathcal{P}_{\text{NL}} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}^2 = 2d\epsilon_0 \mathcal{E}^2. \quad (2.2)$$

Der nichtlineare Koeffizient  $d$  ist dabei die in der Praxis angegebene und oft tabellierte Größe für die optische Nichtlinearität zweiter Ordnung des Materials.

Nimmt man an, dass das elektrische Feld aus drei Frequenzkomponenten mit der Beziehung

$$\nu_p = \nu_s + \nu_i \quad (2.3)$$