

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](http://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 electrical 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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  to 1.7  $\mu\text{m}$  (signal) and 2.02  $\mu\text{m}$  to 2.28  $\mu\text{m}$  (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  $2.103 \mu\text{m}$  ( $4754 \text{ cm}^{-1}$ ). 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 electrical 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  $1 \mu\text{m}$  and  $5 \mu\text{m}$  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 einfrequenz 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  $\mu\text{m}$ . 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  $1.55 \mu\text{m}$  und  $1.7 \mu\text{m}$  (Signalwelle) und  $2.02 \mu\text{m}$  und  $2.28 \mu\text{m}$  (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  $5.9 \text{ MHz/mbar}$  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  $2.103 \mu\text{m}$  ( $4754 \text{ cm}^{-1}$ ) 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 abstimbar ist, und durch seine Eigenschaften wie spektrale Breite, Durchstimbarkeit, 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  $1 \mu\text{m}$  und  $5 \mu\text{m}$  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:LiNbO<sub>3</sub>*, 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:LiNbO<sub>3</sub>*, 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:LiNbO<sub>3</sub>*, 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

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>5</b>
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
<b>3</b>	<b>Optisch parametrische Oszillation</b>	<b>45</b>
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 $\Lambda$ . . . . .	55
3.3.2	Änderung der Kristalltemperatur $T_K$ . . . . .	56
3.3.3	Änderung der Pumpwellenlänge $\lambda_P$ . . . . .	56
3.3.4	Feinabstimmung der OPO-Wellenlängen . . . . .	58

<b>4</b>	<b>Charakterisierung des MOPA-Systems</b>	<b>67</b>
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
<b>5</b>	<b>Diodenlaser gepumpter cw-SRO</b>	<b>87</b>
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
<b>6</b>	<b>Spektroskopische Anwendung des cw-SRO</b>	<b>109</b>
6.1	Kontinuierlich abstimmbare cw-OPOs und spektroskopische Anwendungen	109
6.2	Experimenteller Aufbau . . . . .	112
6.3	Rotations-Schwingungsspektrum von N <sub>2</sub> O . . . . .	113
6.4	Hochauflösende Aufnahme einer einzelnen Moleküllinie . . . . .	120
6.5	Hochauflösende Messung mehrerer nebeneinander liegender Moleküllinien .	122
6.6	Zusammenfassung . . . . .	124
<b>7</b>	<b>Elektronische Stabilisierung des cw-SRO</b>	<b>127</b>
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 <sub>2</sub> 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 ( $\text{CO}_2$ ), Distickstoffmonoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ), Methan ( $\text{CH}_4$ ), Schwefelhexafluorid ( $\text{SF}_6$ ) 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  $\text{CO}_2$ , Kohlenmonoxid ( $\text{CO}$ ), Schwefeloxide ( $\text{SO}_x$ ) und Stickoxide ( $\text{NO}_x$ ), um nur einige zu nennen. Diese chemischen Substanzen können mit Hilfe ihrer Moleküllinien eindeutig bestimmt werden. Dazu werden Absorptionmessungen 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 Absorptionmessungen 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  $\mu\text{m}$  und 5  $\mu\text{m}$  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 abstimmbare 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 Pump laser 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 Polarisation 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  $\text{LiNbO}_3$  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  $\omega$ , dann schwingt das Elektron ebenfalls mit der Frequenz  $\omega$  um den Ladungsschwerpunkt  $x = 0$ . Die Polarisation ändert sich ebenfalls mit der Frequenz  $\omega$  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