

**Erzeugung und Charakterisierung von abstimmbaren VUV- und MIR-
Femtosekunden-Lichtimpulsen mittels Drei-Photonen parametrischer
Prozesse in nichtlinearen Kristallen**

von

Dipl.-Phys. Fabian Rotermund
aus Seoul/Korea

dem Fachbereich 4 (Physik)
der Technischen Universität Berlin
zur Verleihung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
- Dr. rer. nat. -
genehmigte Dissertation

Promotionsausschuß:

Vorsitzender: Prof. Dr. W. Richter

Berichter: Prof. Dr. H. Weber

Berichter: Prof. Dr. A. Penzkofer

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 17. Juli 2000

Berlin 2000

D 83

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen nichtlinearer Frequenzumwandlungsprozesse	7
2.1. Nichtlineare Wechselwirkung von Licht mit Materie.....	7
2.2. Gekoppelte Wellengleichungen für Drei-Photonen Prozesse.....	9
2.3. Phasenanpassung in doppelbrechenden nichtlinearen Kristallen.....	17
2.3.1. Einachsige Kristalle.....	18
2.3.2. Zweiachsige Kristalle.....	22
2.4. Periodisch gepolte Kristalle: QPM-(„quasi phase matching“-)Struktur.....	24
2.5. Bandbreite der Phasenanpassung.....	29
2.6. Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse.....	32
2.7. Fazit.....	44
3. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse um 200 nm und im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich	46
3.1. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse bei 82 MHz durch Generation der vierten Harmonischen eines kontinuierlich modensynchronisierten Ti:Saphirlasers.....	46
3.1.1. Kristallauswahl und wichtige Kristallparameter.....	47
3.1.2. Experimentelle Anordnung.....	52
3.1.3. Ergebnisse und Diskussion.....	55
3.2. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse bei 1 kHz im VUV-Spektralbereich durch Summenfrequenzmischung (SFG) an einem Ti:Saphir-Verstärkersystem.....	61
3.2.1. Vergleich der VUV-Kristalle.....	61
3.2.2. Experimentelle Anordnung.....	69
3.2.3. Ergebnisse und Diskussion.....	71

4. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse im mittleren Infrarot (MIR) durch optisch parametrische Generation und Verstärkung (OPG/OPA)	80
4.1. Geseedete optisch parametrische Verstärkung zur Erzeugung von fs-Lichtimpulsen im Bereich von 3 - 4 μm	82
4.1.1. Eigenschaften von nichtlinearen MIR-Kristallen, geeignet für das Pumpen um 800 nm.....	82
4.1.2. Nanosekunden-Mikrolaser bei 1064 nm als Seedquelle für MgO:LiNbO ₃ (MLN)-OPA.....	86
4.1.2.1. Experimentelle Anordnung.....	87
4.1.2.2. Ergebnisse und Diskussion bei kollinearer Wechselwirkung.....	89
4.1.2.3. Nichtkollineare Phasenanpassung.....	98
4.1.3. Gepulste Laserdiode um 1064 nm als Seedquelle für MLN-OPA.....	104
4.1.4. Erzeugung von Lichtimpulsen mit 5 optischen Perioden um 3 μm in MLN.....	110
4.1.5. Geseedete OPA mit einem periodisch gepolten KTP-Kristall (PPKTP).....	113
4.2. Kaskadierte optisch parametrische Generation in ZnGeP ₂ (ZGP) zur Erzeugung von fs-Lichtimpulsen bis 10 μm	120
4.2.1. Eigenschaften von ZGP	121
4.2.2. Experimentelle Anordnung zur ZGP-OPG.....	124
4.2.3. Optisch parametrische Generation in ZGP	125
4.2.4. Messung der nichtlinearen Absorption in ZGP	128
4.2.5. Bestimmung des nichtlinearen Brechungsindex mit der z-Scan-Technik	131
4.3. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse im MIR bis 10 μm durch optisch parametrische Verstärkung an einem Cr:Forsterit-Verstärkersystem	134
4.3.1 Eigenschaften von AgGaS ₂ und HgGa ₂ S ₄	135
4.3.2. Experimentelle Anordnung.....	138
4.3.3. Ergebnisse und Diskussion.....	139
5. Zusammenfassung	144
6. Literaturverzeichnis	147

A. Veröffentlichungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit	155
B. Lebenslauf	156
C. Danksagung	157

1. Einleitung

Die Entwicklung von Laserquellen intensiver ultrakurzer und durchstimmbarer Lichtimpulse sowohl im ultravioletten (UV) und vakuum-ultravioletten (VUV) als auch im mittleren infraroten (MIR) Spektralbereich ist für zahlreiche Anwendungen von großer Bedeutung. Da fs- oder ps-Lichtimpulse in diesen Spektralbereichen aufgrund eines fehlenden aktiven Mediums und/oder fehlender Modenkopplungstechniken bisher nicht durch Laser erzeugt werden können, ist man auf Frequenzumwandlung angewiesen. Die optisch parametrischen Prozesse zweiter Ordnung wie Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG), Summenfrequenzerzeugung (SFG), Differenzfrequenzerzeugung (DFG) sowie optisch parametrische Generation und Verstärkung (OPG/OPA)* sind nichtlineare optische Methoden zur Frequenzkonversion, die in Festkörper-Materialien (Kristallen) realisiert werden können. Im Vergleich zu einem Laser finden die oben erwähnten Prozesse ohne Besetzungsinversion statt, sie sind instantan und deshalb intensitätsabhängig. Die Umwandlungseffizienzen bei der Frequenzkonversion sind dabei oft weit über 10 % und damit höher als die Effizienz vieler Laser. Speziell OPG und OPA bieten außerdem Abstimbarkeit der Wellenlänge, die mit einem Laser nicht denkbar wäre. Die instantane Natur der parametrischen Prozesse zweiter Ordnung ist ein wichtiger Vorteil für Anwendungen, da die erzeugten ultrakurzen Lichtimpulse bei neuen Wellenlängen automatisch und ohne Jitter zu den ursprünglichen Lichtimpulsen zeitlich synchronisiert sind.

Untersuchungen der Dynamik photochemischer Reaktionen von Molekülen und Clustern im UV- und VUV-Spektralbereich verschafft uns weitere Einblicke in molekulare Wechselwirkungsmechanismen in angeregten Zuständen. Zur Untersuchung der schnellen Ionisations-, Fragmentations- sowie Dissoziationsprozesse in Molekülen und Clustern werden ultrakurze Lichtimpulse benötigt, da solche Prozesse oft auf dem fs-Zeitskala ablaufen. Die Erzeugung abstimmbarer fs-Impulse in diesem Spektralbereich durch parametrische Frequenzumwandlung ermöglicht damit einen enormen Fortschritt für die Untersuchung der Reaktionsdynamik durch spektroskopische Methoden mit hoher zeitlicher Auflösung.

Der MIR-Spektralbereich ist für verschiedene Anwendungen aus der Umwelt- und Medizintechnik, wie z. B. zur Erfassung transients chemischer Spezies, wichtig. In der Materialforschung ist die Verfügbarkeit ultrakurzer Lichtimpulse eine Voraussetzung zur

* die Abkürzungen OPG und OPA werden in dieser Arbeit sowohl für eine optisch parametrische Generation bzw. Verstärkung als auch für einen optisch parametrischen Generator bzw. Verstärker verwendet.

Charakterisierung nichtlinearer optischer Materialien und ultraschneller Bauelemente wie Modulatoren und Detektoren für das MIR. Weitere Anwendungen, wie das optische Radar oder die Prozeßüberwachung sind in der Zukunft denkbar. Im Bereich der Forschung wie in der zeitaufgelösten Spektroskopie ermöglicht die ultrakurze Impulsdauer Anregungs- und Abtastmeßverfahren höchster Zeitauflösung. Wellenlängen um 3 μm und etwas länger sind vor allem für die nichtlineare Spektroskopie zur Untersuchung von Schwingungen in zahlreichen physikalischen, chemischen und biologischen Systemen von großer Bedeutung, da die Grundswingungsmoden der OH-, CH-, NH- und SH-Bindungen in diesem Spektralbereich liegen. Da die Absorptionswirkungsquerschnitte der MIR-Übergänge generell viel kleiner als die im sichtbaren (VIS) Bereich sind, wird hohe Einzelimpulsenergie, die nur mit intensiven ultrakurzen Lichtimpulsen erzeugt werden kann, für signifikante Besetzungsänderungen benötigt.

Neueste Entwicklungen nichtlinearer optischer Verfahren und Materialien im UV- und VUV-Spektralbereich haben gezeigt, daß die „all-solid-state“ Lösungen, die auf den Nichtlinearitäten zweiter Ordnung in Kristallen basieren, eine bevorzugte Möglichkeit bieten, um ultrakurze Lichtimpulse unterhalb von 200 nm zu erzeugen. Nichtlineare Prozesse zweiter Ordnung in optischen Kristallen ermöglichen im Vergleich zu nichtlinearen Prozessen höherer Ordnung in Gasen (wie z. B. nicht-resonante [GKS92] oder nah-resonante [GGS94, TMM93, BQS95] Vierwellen-Differenzfrequenzerzeugung) nicht nur höhere Effizienzen bei geringerem experimentellem Aufwand, sondern sie können auch zu extrem niedrigen Energien skaliert werden und außerdem können die zeitlichen und spektralen Eigenschaften der erzeugten Lichtimpulse relativ zuverlässig vorausgesagt werden.

Bei früheren Aktivitäten zur Erzeugung von Sub-Pikosekunden Impulsen in nichtlinearen Kristallen unterhalb von 200 nm stand hauptsächlich die Erzeugung von Seedimpulsen für den ArF-Laserverstärker bei niedriger Repetitionsrate (<10 Hz) im Vordergrund [SsS89, RKN92]. Diese Experimente wurden an Farbstofflasersystemen durchgeführt und die Umwandlungseffizienzen waren hier sehr niedrig aufgrund nicht-phasenangepaßter Frequenzkonversion und niedriger verfügbarer Energien der bei Frequenzumwandlung beteiligten Impulse.

Die Situation hat sich aber seitdem durch kommerziell erhältliche leistungsfähige fs-Festkörperlasersysteme drastisch verbessert. Das meist verwendete fs-Festkörperlasersystem basiert auf dem Ti:Saphir-Kristall. Besondere Eigenschaften dieses Kristalls sind sein breites Emissionsspektrum und die fehlende Absorption von den angeregten Zuständen. Sein

gesamter Emissionsbereich um 800 nm läßt sich zur Erzeugung von fs-Impulsen nutzen. Die große spektrale Bandbreite bietet die Möglichkeit, mittels verschiedener Modensynchronisationsmethoden ultrakurze Lichtimpulse zu generieren. Je nach Folgefrequenzen und Einzelimpulsenergien unterscheidet man bei den abstimmbaren fs-Ti:Saphir-Laserquellen zwischen den hochrepetierenden Oszillatoren mit Repetitionsraten im Bereich von 100 MHz und Verstärkersystemen, die bei einigen Hz bis zu 250 kHz laufen.

Die Erzeugung der vierten Harmonischen eines regenerativen fs-Ti:Saphir-Verstärkers bei 1 kHz in β -BaB₂O₄ (BBO), die Wellenlängen im Spektralbereich um 200 nm ermöglicht, wurde erstmals im Jahr 1993 am Max-Born-Institut demonstriert [KRK96]. Die Wellenlänge ließ sich dabei zwischen 200 nm und 189 nm variieren. Die bei 193.5 nm erzeugten fs-Lichtimpulse wurden auch zum Seeden eines fs-ArF-Verstärkers verwendet [RKO94].

Neben der Einsatzmöglichkeit der vierten Harmonischen eines z. B. mit 1 kHz getakteten regenerativen Ti:Saphir-Verstärkers mit μ J-Energien für Pump- und Abtast-Messungen zur Untersuchung der Dynamik von Ionisations- und Fragmentationsprozessen in kleinen Molekülen und Clustern in der Gasphase [RFS96] werden auch hochrepetierende fs-Lichtimpulse im gleichen Spektralbereich zur Untersuchung der Dynamik von Adsorbaten an Metalloberflächen benötigt. Die Kombination von kurzer Impulsdauer und angemessen hoher Photonenenergie erlaubt, durch Ein-Photonen-Prozesse Photoelektronen aus Metalloberflächen zu entfernen. Im Vergleich zu den Mehr-Photonen-Prozessen, die bei langwelligen Anregungsimpulsen stattfinden, reduziert sich die Zerstörungsgefahr der Adsorbate, da bei Ein-Photonen-Prozessen weniger Energie im Laserimpuls nötig ist [JKE98]. Die kleine Einzelimpulsenergie bei dem hochrepetierenden fs-Lasersystem im Vergleich zu einem Verstärkersystem wird durch die hohe Repetitionsrate, welche hoher mittlerer Leistung entspricht, kompensiert.

Die Wellenlänge der vierten Harmonischen eines Ti:Saphir-Lasersystems ist durch die Transmission und die Phasenanaßbarkeit des verwendeten Kristalls (BBO) bis ≈ 6.5 eV begrenzt. Eine Methode um noch kürzere Wellenlängen zu erreichen, ist die anschließende SFG mit einem Impuls im nahen infraroten (NIR) Spektralbereich. Die kürzeste Wellenlänge, die mit solcher SFG in LiB₃O₅ (LBO) bisher erreicht wurde, lag bei 172.3 nm [SRP94].

Der Einsatz ultrakurzer Lichtimpulse bei der Frequenzumwandlung kann zwar durch ihre hohen Spitzenintensitäten zu großer Umwandlungseffizienz führen, aber die wesentliche Beschränkung der Wechselwirkungslänge ist in diesem Fall das zeitliche Auseinanderlaufen der wechselwirkenden Lichtimpulse durch verschiedene Gruppengeschwindigkeiten in den

nichtlinearen optischen Kristallen. Daher sollten speziell im fs-Regime nur kurze Kristalle benutzt werden, wobei der Transparenzbereich der Kristalle bis zur äußersten VUV-Grenze ausgenutzt und unerwünschte nichtlineare Effekte höherer Ordnungen minimiert werden können.

Für die Ausdehnung abstimmbarer ultrakurzer Lichtimpulse in den infraroten Spektralbereich wurden in den letzten Jahren beträchtliche Fortschritte gemacht. Voraussetzung dafür war wieder die rasche Entwicklung neuer fs- bzw. ps-Laserpumpquellen und neuer nichtlinear optischer Materialien. Zum Beispiel wurden mit dem auf BBO basierten OPG bzw. OPA hohe Umwandlungseffizienz bzw. $>1 \mu\text{J}$ Impulsenergie erzielt, wobei ein fs-Ti:Saphir-Verstärkersystem als Pumpquelle diente [PSK94]. Solche OPA's bzw. OPG's werden in Verbindung mit SHG und SFG im VIS- und NIR-Spektralbereich betrieben und sind zur Zeit als fs- oder ps-Version kommerziell erhältlich. Auch hier limitiert das zeitliche Auseinanderlaufen der verschiedenen Impulse die Wechselwirkungslänge und die erreichbare Umwandlungseffizienz. Die Optimierung und Weiterentwicklung von OPG's und OPA's mit dem Ziel, die Gruppengeschwindigkeiten anzupassen, erreichte durch die Erzeugung optischer Lichtimpulse mit Impulsdauern unter 15 fs [CND97, SKt98] den Höhepunkt. Die obere Transparenzgrenze der verwendeten BBO-Kristalle limitiert leider die erreichbaren Wellenlängen bis auf $\approx 2.6 \mu\text{m}$. Anschließende DFG konnte den Spektralbereich bis etwa $10 \mu\text{m}$ abdecken [SPW94, RmS96, GbR98]. Die Ausgangsenergien betragen aber wegen der niedrigen Umwandlungseffizienz bei DFG maximal 100 nJ für Repetitionsraten im kHz-Bereich.

Im Gegensatz zum NIR-Spektralbereich konnte im mittleren Infrarot fs-OPG bisher nicht demonstriert werden. OPA's, die eine niedrigere Pumpschwelle besitzen, wurden in verschiedenen Kristallen [HCX95, PvN95, EWB97, GGH97, PNS97, Pnf96, KjW96] im Spektralbereich bis $\approx 5 \mu\text{m}$ realisiert. Die direkte Erzeugung abstimmbarer Lichtimpulse oberhalb von $5 \mu\text{m}$ ist durch das Pumpen mit einem fs- bzw. ps-Ti:Saphir-Verstärkersystem auch mit OPA nicht möglich, da die dort transparenten Materialien Zwei-Photonen-Absorption zeigen, wenn sie um 800 nm gepumpt werden [HLZ93].

Hauptziel der vorliegenden Arbeit ist in erster Linie die Untersuchung von neuen nichtlinearen Materialien und die Entwicklung neuartiger Schemata zur parametrischen Erzeugung von fs-Lichtimpulsen im UV-Spektralbereich um 200 nm, im VUV-Spektralbereich weiter nach unten bis $\approx 160 \text{ nm}$ und im MIR-Spektralbereich bis $\approx 10 \mu\text{m}$. Es wird dabei viel Wert auf die Abstimbarkeit und die gleichzeitige Verfügbarkeit von fs-

Lichtimpulsen bei mehreren Wellenlängen gelegt, was wichtig für Anwendungen ist. Kompaktheit durch Verwendung von Festkörper-Lasersystemen und kristallinen nichtlinearen Materialien ist auch eine wichtige Anforderung für die Zuverlässigkeit und Reproduzierbarkeit.

Nach der Einleitung werden im zweiten Kapitel die theoretischen Grundlagen für parametrische Frequenzumwandlungsprozesse zweiter Ordnung dargestellt. Die gekoppelten Wellengleichungen für Drei-Photonen-Prozesse wie SFG, DFG und OPG/OPA werden aus den Maxwell-Gleichungen hergeleitet. Die wichtigen Phasenanpassungsbedingungen zur Frequenzumwandlung werden sowohl für konventionelle doppelbrechende als auch für periodisch gepolte Kristalle erläutert. Viel Wert wird dabei auf die verwendeten Näherungen, Konventionen und Begriffe gelegt. Vor allem werden die Besonderheiten für Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse, wie z. B. die Anpassung der Gruppengeschwindigkeiten, ausführlich behandelt.

Im dritten Kapitel werden zwei Gruppen von Experimenten für die Erzeugung abstimmbarer fs-Lichtimpulse um 200 nm und im VUV-Spektralbereich vorgestellt. Zuerst wird die Frequenzvervierfachung eines fs-Ti:Saphir-Oszillators durch SFG zwischen der dritten Harmonischen und der Grundwelle untersucht und analysiert. Diese SFG ermöglicht es, fs-Lichtimpulse unterhalb von 200 nm zu erzeugen, während die direkte Verdopplung der zweiten Harmonischen nur bis 204.8 nm möglich ist. Erstmals wird hier die generierte vierte Harmonische sowohl zeitlich als auch spektral charakterisiert.

Um abstimmbare fs-Lichtimpulse weiter in den VUV-Spektralbereich zu transformieren, wird SFG zwischen der vierten Harmonischen eines fs-Ti:Saphir-Verstärkers und dem NIR-Impuls aus einem OPG in verschiedenen Kristallen durchgeführt. VUV-Materialien, zum Teil neu entwickelt und zum ersten Mal in dieser Arbeit im fs-Regime eingesetzt, werden verglichen und die erzeugten abstimmbaren VUV-Impulse bis 166 nm werden spektral charakterisiert.

Das vierte Kapitel ist dem MIR-Spektralbereich gewidmet. Hier werden sowohl verschiedene Ausführungen geseedeter OPA's als auch OPG für die Erzeugung abstimmbarer fs-Lichtimpulse mit μJ -Einzelimpulsenergie im MIR-Spektralbereich bis $10\ \mu\text{m}$ dargestellt. Zuerst werden OPA- und OPG-Experimente am fs-Ti:Saphir-Verstärkersystem beschrieben und anschließend OPA am fs-Cr:Forsterit-Regenerativverstärker. In beiden Fällen beträgt die Folgefrequenz 1 kHz.

Eine kollineare OPA-Ausführung mit einem ns-Laser als Seedquelle wird für abstimmbare fs-Lichtimpulserzeugung zwischen 2.9 und $3.9\ \mu\text{m}$ eingesetzt. Die Auswahl des nichtlinearen

Kristalls erfolgt unter Berücksichtigung der optimalen Anpassung der Gruppengeschwindigkeiten beim Pumpen um 800 nm. Um die Laufzeitunterschiede zwischen den wechselwirkenden Impulsen klein zu halten, wird hier auch die nichtkollineare Wechselwirkung untersucht, welche durch Verlängerung der Wechselwirkungslänge die Erzeugung intensiverer und kürzerer MIR-Lichtimpulse ermöglicht.

Auch die extrem niedrige mittlere bzw. Spitzenleistung einer gepulsten Laserdiode ist ausreichend, um einen fs-OPA zu seeden und anschließend hohe Ausgangsenergien zu produzieren. Die Abstimmbarkeit der generierten fs-Impulse läßt sich in diesem Experiment durch Änderung der Seedwellenlänge (durch Temperaturabstimmung der Laserdiode) unabhängig von der Pumpwellenlänge erreichen.

Es wird weiter demonstriert, daß extrem kurze Lichtimpulse um 3 μm , die nur einigen optischen Perioden entsprechen, mit kurzen Proben erzeugt werden können. Hier dient als Pumpquelle ein Multi-Pass-Ti:Saphir-Verstärkersystem bei 1 kHz.

In der vorliegenden Arbeit wird zum ersten Mal ein periodisch gepolter nichtlinearer Kristall als OPA-Material verwendet, der die höchste Umwandlungseffizienz beim Pumpen um 800 nm erlaubt.

Um abstimmbare fs-Lichtimpulse oberhalb von 5 μm mit Ti:Saphir-Pumpquellen zu erzeugen, wird in dieser Arbeit kaskadierte OPG realisiert. Hier werden nicht nur die optimale Parameter für die OPG untersucht, sondern auch wichtige Eigenschaften des verwendeten Kristalls, wie nichtlineare Absorption und Kerr-Koeffizient, werden experimentell bestimmt.

Im letzten Abschnitt des vierten Kapitels wird erstmals ein fs-OPA, basierend auf einem 1 kHz Cr:Forsterit-Verstärkersystem demonstriert. Diese fs-Pumpquelle bietet sich als eine Alternative im NIR-Spektralbereich bei 1.25 μm an und ermöglicht damit, abstimmbare fs-MIR-Lichtimpulse oberhalb von 5 μm direkt durch OPA zu erzeugen. Hier werden die Eigenschaften der verwendeten Kristalle verglichen und die experimentell erzeugten fs-Lichtimpulse bis 9 μm zeitlich und spektral charakterisiert.

Zum Schluß stellt das fünfte Kapitel eine kurze Zusammenfassung der in der vorliegenden Arbeit erreichten Ergebnisse zusammen.

2. Grundlagen nichtlinearer Frequenzumwandlungsprozesse

In den ersten Abschnitten dieses Kapitels werde ich mich auf die wichtigsten allgemeinen Grundlagen für parametrische Prozesse zweiter Ordnung beschränken. Für eine weitergehende Behandlung der nichtlinearen Optik sei hier nur auf [Srl96, HjW84, Brw92] verwiesen. Die Besonderheiten, die bei der Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse auftreten, werden anschließend im Abschnitt 2.6 diskutiert.

2.1. Nichtlineare Wechselwirkung von Licht mit Materie

Es ist allgemein bekannt, daß nichtlineare optische Effekte für die Frequenzumwandlung angewandt werden können. Die nichtlinearen Prozesse zweiter Ordnung sind die meist verbreitete Methode. Auch die in der vorliegenden Arbeit zur Frequenzkonversion ultrakurzer Lichtimpulse verwendeten SFG, DFG und OPG/OPA gehören dazu.

In der klassischen Optik wird angenommen, daß ein linearer Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld \vec{E} und der davon im Medium induzierten Polarisation \vec{P} besteht. Diese Beziehung wird beschrieben (in SI-Einheiten) durch:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}, \quad (2.1)$$

wobei ϵ_0 die elektrische Feldkonstante und $\chi^{(1)}$ die lineare Suszeptibilität ist.

Bei hohen Intensitäten bzw. hohen Feldstärken des Lichtes, wie sie u. a. in Ultrakurzpulslasern auftreten, verliert die obige lineare Beziehung ihre Gültigkeit, d.h. man kommt in einen Bereich, für den der Zusammenhang von \vec{E} -Feld und Polarisation durch einen nichtlinearen Anteil \vec{P}_{NL} ergänzt werden muß.

Für Felder, deren Feldstärke unterhalb der Zerstörungsschwelle des Mediums liegt, läßt sich die Polarisation als eine Taylor-Entwicklung nach dem \vec{E} -Feld schreiben. Die Polarisation enthält sowohl den linearen Term als auch die nichtlinearen höheren Ordnungen. In der allgemeinen mathematischen Behandlung wird die Polarisation unter Vernachlässigung räumlicher Dispersion beschrieben durch:

$$\begin{aligned}
\vec{P}(t) &= \vec{P}_L(t) + \vec{P}_{NL}(t) \\
&= \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \chi^{(1)}(t; t_1) \vec{E}(t_1) dt_1 + \varepsilon_0 \int \int_{-\infty}^t \chi^{(2)}(t; t_1, t_2) \vec{E}(t_1) \vec{E}(t_2) dt_1 dt_2 \\
&\quad + \varepsilon_0 \int \int \int_{-\infty}^t \chi^{(3)}(t; t_1, t_2, t_3) \vec{E}(t_1) \vec{E}(t_2) \vec{E}(t_3) dt_1 dt_2 dt_3 \dots
\end{aligned} \tag{2.2}$$

$\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ sind die nichtlinearen Suszeptibilitäten zweiter und dritter Ordnung. Die Suszeptibilitäten $\chi^{(k)}$ stellen Tensoren der $(k+1)$ -ten Ordnung dar, die die Vektorkomponenten des elektrischen Feldes \vec{E} mit der Polarisation \vec{P} verbinden.

Die integrale Form beschreibt den Einfluß der elektrischen Felder zu früheren Zeiten, während sich die obere Integralgrenze t aus der Tatsache, daß die Antwort des Mediums dem Kausalitätsprinzip folgt, ergibt. Die Gedächtnisfunktion hängt im wesentlichen von den eingestrahlenen Frequenzen sowie den Übergangsfrequenzen und Relaxationszeiten des Mediums ab.

In der folgenden Betrachtung wird angenommen, daß die Frequenzen der wechselwirkenden Wellen nicht mit den Resonanzen des Mediums zusammenfallen und die zeitliche Entwicklung der Polarisation (Antwort des Mediums) instantan dem elektrischen Feld folgt (nichtresonante Wechselwirkung). Diese Annahme beinhaltet, daß das Medium verlustfrei und dispersionsfrei ist. In diesem Fall können die Suszeptibilitäten als konstant angesehen werden. Die Polarisation läßt sich dann schreiben als:

$$\begin{aligned}
\vec{P} &= \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \\
&= \varepsilon_0 (\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots) \\
&= \sum_{n=1} \vec{P}^{(n)}
\end{aligned} \tag{2.3}$$

Bei Wechselwirkung intensiver Lichtwellen in nichtlinearen optischen Medien ohne Inversionszentrum wie z. B. in doppelbrechenden Kristallen treten $\chi^{(2)}$ -Prozesse („Drei-Photonen-Prozesse“) als nichtlineare Effekte niedrigster Ordnung auf. Während der Ausbreitung von zwei monochromatischen Wellen der Frequenzen ω_1 und ω_2 wird durch den $\chi^{(2)}$ -Prozeß eine neue Welle bei ω_3 erzeugt. Man spricht von SFG, wenn ω_3 durch die Beziehung $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$ mit der Konvention $\omega_1 < \omega_2 < \omega_3$ ($\lambda_1 > \lambda_2 > \lambda_3$) gegeben ist. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG), die durch $\omega_3 = 2\omega_1$ beschrieben wird, ist ein Spezialfall von SFG ($\omega_1 = \omega_2$). Wenn mit der gleichen Konvention zwei Wellen der Frequenzen

ω_3 und ω_2 (bzw. ω_1) eingestrahlt werden und eine neue Welle $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ bzw. $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ erzeugt wird, spricht man von DFG.

Als OPG bezeichnet man den Prozeß, bei dem durch eine in das nichtlineare Medium eingestrahlte intensive Pumpwelle bei ω_3 zwei neue Wellen bei ω_1 und ω_2 (Idler- und Signalwelle) erzeugt werden. Strahlt man zusätzlich zur Pumpwelle ω_3 noch eine der entstehenden Wellen ω_1 oder ω_2 in den Kristall ein, spricht man von OPA. Von der theoretischen Behandlung her gibt es allerdings keinen Unterschied zwischen DFG und geseedeter OPA. Der wesentliche Unterschied zwischen DFG und OPA liegt in der Verstärkung der zusätzlich zur Pumpwelle eingestrahlten Welle bei ω_2 . Im Fall von DFG ist diese Welle am Anfang und Ende des Kristalls nahezu gleich stark, d. h. die Verstärkung bei ω_2 liegt etwa bei 1, während diese Verstärkung bei ungesättigter OPA leicht mehrere Größenordnungen erreichen kann. Außerdem ist die höchste eingestrahlte Leistung bei OPA immer bei ω_3 , während dies bei DFG nicht zwingend der Fall ist.

Im Gegensatz zu OPA benötigt ein OPG sehr hohe Pumpintensitäten, die nur mit kurzen Impulsen (zwischen ns- und fs-Impulsdauer) erreichbar sind, oder/und einen Resonator. Im letzteren Fall spricht man von einem optisch parametrischen Oszillator (OPO). Man unterscheidet weiterhin zwischen cw- und ns-OPO's, in denen die resonante Welle (normalerweise bei ω_2) während des Pumpens mehrere Umläufe macht, und ps- oder fs-OPO's, für die man eine hochrepetierende Pumpquelle, auf deren Länge die Resonatorlänge des OPOs genau angepaßt werden muß, braucht. Dies wird dann synchron gepumpter OPO (SPOPO) genannt.

2.2. Gekoppelte Wellengleichungen für Drei-Photonen Prozesse

Die Theorie der nichtlinearen optischen Phänomene basiert grundsätzlich auf den Maxwell-Gleichungen. Aus diesen Gleichungen kann die folgende Wellengleichung zur Beschreibung der Ausbreitung der elektromagnetischen Welle in einem nicht leitenden und nicht magnetischen Medium hergeleitet werden:

$$\operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (2.4)$$

Hier ist c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Durch Umstellung unter Berücksichtigung von (2.3) erhält man:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_L}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.5)$$

Das reelle elektrische Feld \vec{E} wird häufig durch die Überlagerung wechselwirkender quasimonochromatischer und quasiebener Wellen dargestellt. Das Gesamtfeld läßt sich dann schreiben als:

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{A}_n(\vec{r}, t) \exp[i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)] + c.c. \\ &= \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + c.c. = \sum_n \vec{A}(\omega_n) e^{i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)} + c.c. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Mit dieser Darstellung werden auch die in Raum und Zeit langsam veränderlichen komplexen Amplituden $\vec{A}_n(\vec{r}, t) \equiv \vec{A}(\omega_n)$ (langsam verglichen mit den schnell oszillierenden Exponenten) eingeführt. $c.c.$ bedeutet das Komplex-Konjugierte. \vec{k}_n [mit $k_n = \omega_n n(\omega_n) / c$] sind die Wellenvektoren bei den Trägerfrequenzen ω_n . In $\vec{E}(\omega_n)$ und $\vec{A}(\omega_n)$ ist ω_n als Parameter und nicht als Argument zu verstehen.

Die induzierte Polarisation ist auch eine reelle Größe und wird in analoger Weise dargestellt:

$$\begin{aligned} \vec{P}(\vec{r}, t) &= \sum_n \vec{P}_n(\vec{r}, t) \exp[i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)] + c.c. \\ &= \sum_n \vec{P}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + c.c. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Die Komponenten des Tensors dritter Ordnung $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m)$ werden als Konstanten der Proportionalität zwischen den kartesischen Komponenten ijk der Polarisation $\vec{P}^{(2)}$ und dem Produkt der Feldamplituden $\vec{E}(\omega_n)$ definiert:

$$P_i^{(2)}(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(mn)} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m) \quad (2.8)$$

Die Summierung (m,n) bedeutet, daß $\omega_n + \omega_m$ dabei konstant bleiben soll, obwohl ω_n und ω_m variiert werden.

Wird das gesamte Feld in verschiedene Frequenzkomponenten entwickelt, besteht die nichtlineare Polarisation zweiter Ordnung aus mehreren Termen, die bei verschiedenen kombinierten Frequenzen oszillieren. Wenn das gesamte elektrische Feld beispielsweise aus zwei Wellen mit ω_1 und ω_2 besteht, hat die nichtlineare Polarisation zweiter Ordnung verschiedene Terme bei $2\omega_1, 2\omega_2, \omega_1+\omega_2, \omega_1-\omega_2$ und Null (optisches Gleichfeld). $\chi^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m)$ wird dann oft als $\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_2, \omega_1)$ oder $\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ bezeichnet.

Für den Fall $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (SFG) ergibt sich die i -te kartesische Komponente der komplexen Polarisationsamplitude aus:

$$P_i^{(2)}(\omega_3) = \epsilon_0 D \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (2.9)$$

mit $D = 1$ für $\omega_1 = \omega_2$

$= 2$ für $\omega_1 \neq \omega_2$

Hier wurde die intrinsische Permutationssymmetrie benutzt, um die Summierung über (m,n) durchzuführen. Diese Permutationssymmetrie besagt, daß die nichtlineare Polarisation $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m)$ bei Vertauschung des Indizespaars j,n und k,m unverändert bleiben muß. Es handelt sich hier um eine allgemein gültige Grundeigenschaft der nichtlinearen Suszeptibilitäten, die aus deren Definition (2.8) leicht nachvollziehbar ist.

Die Annahme eines verlustfreien Mediums führt mit (2.9) zu reellen $\chi^{(2)}$ -Komponenten und zu der sogenannten vollen Permutationssymmetrie: alle drei Frequenzen können also vertauscht werden, wenn die entsprechenden kartesischen Indizes gleichzeitig umgetauscht werden. Die angenommene instantane Antwort des Mediums (nichtresonante Wechselwirkung) führt weiterhin zur Frequenzunabhängigkeit der $\chi^{(2)}$ -Komponenten („Kleinmann-Symmetrie“). Sie beschreibt, daß die Indizes ijk unter den bisherigen Annahmen ohne jegliche Permutationen der Frequenzen ohne weiteres ausgetauscht werden können.

In der Praxis wird wegen der intrinsischen Symmetrie anstelle des $\chi_{ijk}^{(2)}$ -Tensors häufig der reduzierte d_{ij} -Tensor verwendet. Er ergibt sich aus dem Tensor d_{ijk} , der durch:

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (2.10)$$

definiert ist. Bei den Indizes entspricht $i=1$ der X-Achse, $i=2$ der Y- und $i=3$ der Z-Achse, wobei die X-, Y- und Z-Achsen die dielektrischen Hauptachsen des Mediums (des Kristalls) bezeichnen. Die intrinsische Symmetrie erlaubt d_{ijk} durch d_{il} zu ersetzen, wo $l=1$ für XX, 2 für YY, 3 für ZZ, 4 für YZ ($\equiv ZY$), 5 für XZ ($\equiv ZX$) und 6 für XY ($\equiv YX$) steht. Die Gesamtzahl der Komponenten des Nichtlinearitätstensors d_{il} ist 18. Sie lassen sich weiter durch die Kleinmann-Symmetrie auf 10 reduzieren. Jede weitere Symmetrie des Mediums reduziert die Anzahl der nichtverschwindenden und voneinander unabhängigen d_{il} -Komponenten weiter.

Im allgemeinen wird der nichtlineare Koeffizient d_{ijk} bzw. d_{il} eines optischen Kristalls bei einer bestimmten Wellenlänge bestimmt und ist aufgrund der Dispersion abhängig von der Wellenlänge. Um die Größenordnung der Nichtlinearität in einem breiten Spektralbereich vorhersagen zu können, wird die sogenannte „Miller’sche Regel“ [Mrc64] verwendet. Nach dieser Regel hängt der nichtlineare Koeffizient nur von einem frequenzunabhängigen Tensor dritter Ordnung Δ_{ijk} und den linearen Suszeptibilitäten, die die Frequenzabhängigkeit enthalten, ab. Er ist gegeben durch:

$$d_{ijk}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \Delta_{ijk} \chi^{(1)}(\omega_1) \chi^{(1)}(\omega_2) \chi^{(1)}(\omega_3) \quad \text{mit} \quad \chi^{(1)}(\omega_n) = n^2(\omega_n) - 1 \quad (2.11)$$

wobei Δ_{ijk} für alle Kristalle ohne Inversionszentrum eine nahezu konstante Größe ($\approx 0.3 \text{ pm/V}$ [BCd90]) ist. Diese Relation wird häufig zur Abschätzung der nichtlinearen Koeffizienten eines Kristalls für gewünschte Wellenlängen verwendet.

Für die Vereinfachung der Wellengleichung wird weiter angenommen, daß die Wellen sich in z-Richtung ausbreiten ($\vec{k}_n \vec{r} \equiv k_n z$), wodurch die Änderung des Feldes in x- und y-Richtung vernachlässigt werden kann. Eine weitere Vereinfachung ergibt sich durch die Näherung der langsam veränderlichen Amplituden, die besagt, daß sich die komplexe Einhüllende über die räumliche bzw. zeitliche Periode des Feldes in Betrag und Phase sehr langsam ändert. Es gilt daher:

$$\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} \bar{A}_n(z, t) \right| \ll \left| k_n \frac{\partial}{\partial z} \bar{A}_n(z, t) \right|, \quad \left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} \bar{A}_n(z, t) \right| \ll \left| \omega_n \frac{\partial}{\partial t} \bar{A}_n(z, t) \right| \quad (2.12)$$

Ähnliche Beziehungen gelten analog für die langsam veränderliche komplexe Amplitude der Polarisation. Damit läßt sich die Wellengleichung zweiter Ordnung (2.5) auf eine Wellengleichung erster Ordnung reduzieren.

Zur besseren Übersichtlichkeit wird vorerst auch die Doppelbrechung vernachlässigt und die Skalarennäherung verwendet, d. h. $A_n(z, t)$ werden weiter die entsprechenden Komponenten (x oder y) der linear polarisierten Felder $\bar{A}_n(z, t)$ darstellen. Das Laborsystem xyz ist nicht mit dem Kristallachsensystem XYZ zu verwechseln.

Die Verwendung der bisher erwähnten Annahmen führt schließlich zu den gekoppelten Grundgleichungen, die das zeitliche und räumliche Verhalten der miteinander wechselwirkenden Felder bei Drei-Photonen-Prozessen darstellen. Im Falle von $\chi^{(2)}$ -Frequenzumwandlungsprozessen mit kollinearere Ausbreitung der wechselwirkenden Wellen lassen sich die gekoppelten Wellengleichungen wie folgt darstellen:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) A_1(z, t) &= i \frac{2\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} A_3(z, t) A_2^*(z, t) e^{-i\Delta k z} \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_2}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) A_2(z, t) &= i \frac{2\omega_2 d_{\text{eff}}}{n_2 c} A_3(z, t) A_1^*(z, t) e^{-i\Delta k z} \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_3}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) A_3(z, t) &= i \frac{2\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} A_1(z, t) A_2(z, t) e^{i\Delta k z} \end{aligned} \quad (2.13)$$

wobei c/n_n die zugehörigen Phasengeschwindigkeiten mit den Brechungsindizes der Felder $n_n = n(\omega_n)$ sind. Die Brechungsindizes $n = n(\lambda)$ für die optischen Kristalle lassen sich mit den entsprechenden Sellmeier-Gleichungen unter Berücksichtigung der Polarisation berechnen. d_{eff} ist eine skalare Größe, die aus der Summierung über jk (in d_{ijk}) bzw. l (in d_{il}) resultiert. Ihre Einführung ist nur bei fixierten Ausbreitungs- und Polarisationsrichtungen möglich, da hier noch der Übergang von XYZ zu xyz berücksichtigt wird. Explizite Formeln für d_{eff} für die verschiedenen Kristallklassen, die von der Kristallsymmetrie abhängig sind, sind in [DGN97] zu finden.

Die physikalische Größe Δk in (2.13) beschreibt die Phasenfehlanspassung zwischen der treibenden Polarisation und der erzeugten Welle und wird bei kollinearere Wechselwirkung durch $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ definiert. $\Delta k = 0$ bedeutet, daß die erzeugte Welle (z. B. bei SFG) mit der

nichtlinearen Polarisation in einer festen Phasenbeziehung bleibt. In diesem Fall nimmt die Amplitude A_3 bzw. die Intensität mit z linear bzw. quadratisch zu, wenn man kleine Umwandlungseffizienz, also konstante Felder A_1 und A_2 („fixed-field“-Fall) annimmt.

Die perfekte Phasenanpassung $\Delta k=0$ läßt sich aber in der Realität aufgrund der Dispersion nicht ohne weiteres erfüllen. Im stationären „fixed-field“-Fall ist die Amplitude bei der Summenfrequenz ω_3 am Ausgang des nichtlinearen Mediums ($z=L$) durch die Integration der dritten Gleichung von (2.13) (ohne den Term $\partial/\partial t \dots$) von $z=0$ bis $z=L$ gegeben:

$$A_3(z=L) = i \frac{2\omega_3 d_{\text{eff}} A_1(z=0) A_2(z=0)}{n_3 c} \int_0^L e^{i\Delta k z} dz = \frac{2\omega_3 d_{\text{eff}} A_1(0) A_2(0)}{n_3 c} \left(\frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right) \quad (2.14)$$

Die Intensitäten der Felder n können über die zugehörigen Amplituden A_n dargestellt werden durch:

$$I_n(z) = 2\epsilon_0 n_n c |A_n(z)|^2 \quad (2.15)$$

Mit (2.14) und (2.15) erhält man für die Intensität bei ω_3 :

$$I_3(L) = \frac{8\epsilon_0 \omega_3^2 d_{\text{eff}}^2 |A_1(0)|^2 |A_2(0)|^2}{n_3 c} \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2 \quad (2.16)$$

$$\text{mit } \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2 = 2L^2 \frac{(1 - \cos \Delta k L)}{(\Delta k L)^2} = L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \equiv L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$$

Die Umwandlungseffizienz ist definiert durch:

$$\eta_e = \frac{I_3(L)}{I_1(0)} = \frac{8\pi^2 d_{\text{eff}}^2 L^2 I_2(0)}{\epsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (2.17)$$

Die Umwandlungseffizienz ist bezogen auf die schwächere Intensität der beiden eingestrahlten Wellen, d. h. in (2.17) wurde $I_1(0) \ll I_2(0)$ angenommen. Wenn die Intensitäten der einfallenden wechselwirkenden Wellen nahezu gleich sind, wird die Effizienz bestimmt durch:

$$\eta_e = \frac{I_3(L)}{\sqrt{I_1(0)I_2(0)}} \quad (2.18)$$

Die $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ -Abhängigkeit in (2.17) reflektiert den Einfluß der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten der wechselwirkenden Wellen. Die Bandbreite der Phasenanpassung (FWHM) wird in dieser Näherung durch die Stellen, bei denen die sinc^2 -Funktion den Wert 0.5 besitzt, also:

$$\Delta k = 0.886\pi L^{-1} \quad (2.19)$$

definiert. Die Hälfte der Entfernung, bei der die Funktion $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ auf Null abfällt, wird als Kohärenzlänge L_c (mit $L_c = \pi / \Delta k$) bezeichnet. Sie bedeutet die maximal zulässige Länge, in der die neue gewünschte Frequenz durch die Wechselwirkung der zwei eingestrahlten Wellen z. B. bei SFG erzeugt wird. Die Energie der erzeugten Welle erreicht den maximalen Wert und danach kehrt sich das Vorzeichen der Amplitudenänderung aufgrund der veränderten Phasenlage (Phasenverschiebung um π) durch die verschiedenen Phasengeschwindigkeiten im Medium um, und die Energie der erzeugten Welle wird rückgewandelt. Nach $2L_c$ fällt die Energie der erzeugten Welle auf Null zurück. Folglich fließt die Energie zwischen den wechselwirkenden Wellen innerhalb jeder Kohärenzlänge hin und zurück, d.h. man hat über die Gesamtlänge des Kristalls ein oszillatorisches Verhalten.

Wenn spezielle Maßnahmen zur Phasenanpassung getroffen werden, wie sie in folgenden Abschnitten ausführlich diskutiert werden, kann die Umwandlung bei $\Delta k=0$ erheblich werden. Dann ist die „fixed-field“-Näherung nicht mehr gültig. Für ebene Wellen lassen sich trotzdem analytische Formeln für die Umwandlungseffizienz ableiten [Srl96]. Im einfachsten Fall von SHG ($\omega_1=\omega_2$) kann die Effizienz durch:

$$\eta_e = \frac{I_3(L)}{I_1(0)} = \tanh^2\left(\frac{L}{L_{\text{NL}}}\right) \quad \text{mit} \quad L_{\text{NL}} = \frac{1}{4\pi d_{\text{eff}}} \sqrt{\frac{2\varepsilon_0 n_1^2 n_3 c \lambda_1^2}{I_1(0)}} \quad (2.20)$$

als sogenannte nichtlineare Wechselwirkungslänge, dargestellt werden. Mit perfekt phasengepaßter SHG erreicht man bei $L=L_{\text{NL}}$ eine Effizienz $\eta_e=58\%$.

Zum Vergleich mit SFG wird in folgender OPA in der stationären „fixed-field“-Näherung betrachtet. Der Hauptunterschied zwischen SFG und OPA liegt darin, daß es sich im ersten Fall um die Energieübertragung von den zwei eingestrahlten Wellen zur erzeugten Welle ω_3 handelt, während OPA ein Verstärkungsprozeß ist. Es werden bei OPA z. B. eine intensive Pumpwelle ω_3 und eine schwache Signalwelle ω_2 in einen nichtlinearen Kristall eingestrahlt. Dabei wird die Signalwelle verstärkt und eine neue Idlerwelle bei der Differenzfrequenz $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ erzeugt. In diesem Prozeß ist es nicht möglich, die Entwicklung der Signal- oder Idlerwelle einzeln zu beschreiben. Man muß die Kopplung zwischen den beiden Wellen betrachten.

Aus den Lösungen der gekoppelten Gleichungen (2.13) in der „fixed-field“-Näherung [$I_3(z) = I_3(0)$] ist ersichtlich, daß die Verstärkung der Signal- und Idlerwelle exponentiell ansteigt. Die Ausgangsintensitäten sind gegeben durch:

$$\begin{aligned} I_1(z) &= I_2(0) \frac{\omega_1}{\omega_2} \sinh^2(gz) \\ I_2(z) &= I_2(0) \cosh^2(gz) \end{aligned} \quad (2.21)$$

Hier ist g durch $g = [g_0^2 - (\Delta k / 2)^2]^{1/2}$ definiert und g_0 bezeichnet den parametrischen Verstärkungskoeffizienten bei perfekter Phasenanpassung mit $g_0 = 2\sqrt{2}\pi d_{\text{eff}} [I_3(0) / \varepsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_1 \lambda_2]^{1/2}$. Dieser Koeffizient ist mit der entsprechenden nichtlinearen Wechselwirkungslänge L_{NL} über $g_0 = (L_{\text{NL}})^{-1}$ verbunden.

Für $gz \gg 1$ ergibt sich aus (2.21) nach Entwicklung der \cosh^2 -Funktion:

$$G_0 = I_2(z)/I_2(0) = 0.25 \exp(2gz) \quad (2.22)$$

für die parametrische Verstärkung der Signalwelle.

Die maximale parametrische Verstärkung wird für $\Delta k = 0$ erreicht. Die Phasenfehlanspassung Δk , für die die Verstärkung auf die Hälfte des maximalen Wertes fällt, ergibt sich aus folgender Beziehung:

$$\frac{1}{2} = \frac{\exp(2[g_0^2 - (\Delta k / 2)^2]^{1/2} L)}{\exp(2g_0 L)} \quad (2.23)$$

also,

$$\Delta k \approx 2 \left(\frac{\ln 2g_0}{L} \right)^{1/2} \quad (2.24)$$

Für $L > L_{NL}$ erwartet man aber starke Energieübertragung zwischen den wechselwirkenden Wellen und der Abbau der Pumpintensität muß berücksichtigt werden. Die obigen Beziehungen verlieren daher ihre Gültigkeit. Die Lösungen der gekoppelten Differentialgleichungen (2.13) mit $\Delta k = 0$ und $I_1(0) = 0$ sind in diesem Fall näherungsweise durch Jacobi'sche elliptische Funktion (sn) gegeben [ZHS95].

Es ist an dieser Stelle zu bemerken, daß OPG's im Gegensatz zu OPA's nicht mit (2.13) beschrieben werden können, da in diesem Fall $A_1(0) = A_2(0) = 0$ ist. In OPG's wird der parametrische Prozeß durch die spontane parametrische Fluoreszenz, also einen quantenmechanischen Effekt, initiiert, der in (2.13) nicht enthalten ist. Deshalb benötigen OPG's generell höhere Pumpintensitäten als OPA's. Trotzdem werden die Gleichungen (2.13) auch oft zur Simulation von OPG's benutzt, indem man annimmt, daß eine extrem schwache Welle bei ω_2 (oder ω_1) vorhanden ist.

2.3. Phasenanpassung in doppelbrechenden nichtlinearen Kristallen

Die Phasenanpassung kann entweder kollinear (skalare Phasenanpassung) oder nichtkollinear (vektorielle Phasenanpassung) erreicht werden. Für die kollineare Drei-Wellen-Wechselwirkung wird die Phasenanpassung beschrieben durch:

$$k_3 = k_2 + k_1 \quad \text{oder} \quad \omega_3 n_3 = \omega_2 n_2 + \omega_1 n_1 \quad (2.25)$$

In isotropen sowie anisotropen Kristallen ist die Beziehung (2.25) mit gleich polarisierten wechselwirkenden Wellen aufgrund der normalen Dispersion nicht erfüllbar. Die Phasenanpassungsbedingung kann nur bei anisotropen Kristallen durch Wechselwirkung verschieden polarisierter Wellen erfüllt werden.

In dieser Arbeit wird die Phasenanpassung in doppelbrechenden Kristallen hauptsächlich durch Selektion der Ausbreitungsrichtung z in bezug auf das XYZ Koordinatensystem

realisiert. Bei fixierter Ausbreitungsrichtung kann die Phasen Anpassung aber auch durch Änderung der Temperatur erreicht werden.

2.3.1. Einachsige Kristalle

In einachsigen Kristallen gibt es eine Vorzugsrichtung, die optische Achse genannt wird. Die Ebene, die von der optischen Achse (Z-Achse) und dem \vec{k} -Vektor gebildet wird, wird als Hauptebene bezeichnet. Der \vec{k} -Vektor weist dabei in Richtung der Ausbreitung der Welle (z). Der senkrecht zur Hauptebene polarisierte Strahl heißt ordentlicher Strahl (o-Strahl), während der als außerordentlicher Strahl (e-Strahl) bezeichnete Strahl in der Hauptebene polarisiert ist. Der Brechungsindex n_o vom o-Strahl hängt im Gegensatz zu dem vom e-Strahl nicht von der Ausbreitungsrichtung ab. Die Differenz der Brechungsindizes für den ordentlichen und den außerordentlichen Strahl bezeichnet man als Doppelbrechung Δn . Sie verschwindet entlang der optischen Achse Z und ist maximal senkrecht zu dieser Achse. Der Brechungsindex der außerordentlichen Welle läßt sich generell als Funktion des polaren Winkels θ zwischen der optischen Achse Z und dem \vec{k} -Vektor darstellen. Er hängt nicht vom azimuthalen Winkel φ , der den Winkel zwischen der Projektion des \vec{k} -Vektors auf der XY-Ebene und der X-Achse bezeichnet, ab. φ beeinflusst daher nur d_{eff} .

Der Brechungsindex der außerordentlichen Welle $n^e(\theta)$ läßt sich durch folgende Gleichung bestimmen [DGN97]:

$$n^e(\theta) = n_o \sqrt{\frac{1 + \tan^2 \theta}{1 + \left(\frac{n_o}{n_e}\right)^2 \tan^2 \theta}} \quad (2.26)$$

wobei n_o und $n_e = n^e(90^\circ)$ die Hauptwerte sind. Ein Kristall ist optisch negativ, wenn $n_o > n_e$ gilt und optisch positiv, wenn $n_o < n_e$.

Eine wichtige Größe, die die Konversionseffizienz bei nichtlinearen Prozessen beeinflusst, ist der sogenannte „Doppelbrechungs-“ bzw. „Walk-off-Winkel“ ρ . Wenn sich ein außerordentlicher Strahl in einem einachsigen Kristall ausbreitet, stimmen die Richtungen des Energieflusses \vec{V} („Poynting-Vektor“) und des \vec{k} -Vektors im allgemeinen nicht überein. Der Winkel ρ zwischen dem \vec{k} -Vektor und dem Vektor \vec{V} ist für einachsige Kristalle gegeben durch:

$$\rho(\theta) = \pm \arctan \left[\left(\frac{n_o}{n_e} \right)^2 \tan \theta \right] \mp \theta \quad (2.27)$$

wobei das obere Vorzeichen in der Gleichung sich auf einen optisch negativen Kristall bezieht und das untere auf einen optisch positiven. Für optisch negative Kristalle ist die Abweichung von \vec{V} zu größerem und für optisch positive Kristalle zu kleinerem polaren Winkel gegenüber \vec{k} .

Reale Strahlen werden sehr oft als Gauß'sche Bündel betrachtet, wobei die radiale Verteilung durch $w(z) = w_0 [1 + (z/z_R)^2]^{1/2}$ beschrieben wird. $w(z)$ ist der Radius ($1/e^2$ -Radius) des Bündels, $w_0 = w(0)$ die Taille und $z_R = \pi w_0^2 / \lambda$ die sogenannte Rayleigh-Länge. Wenn ein derartiger Strahl in der Luft auf den Kristall fokussiert wird, laufen bei $\rho \neq 0$ die o- und e-Strahlen nach einer Länge $L_\rho = \sqrt{\pi} w_0 / \tan \rho$, die räumliche Walk-off-Länge oder Aperturlänge genannt wird, auseinander. Dieser unerwünschte Effekt ist bei stark fokussierten Strahlen und längeren Kristallen deutlicher ausgeprägt.

Um die Phasenanpassung für Drei-Wellen-Prozesse erreichen zu können, werden verschieden polarisierte Wellen verwendet. Die Phasenanpassung ist durch sogenannte Typ I- oder Typ II-Wechselwirkung möglich. Wenn die zwei Wellen bei den kleineren Frequenzen ω_1 und ω_2 gleiche Polarisation besitzen und die dritte Welle bei ω_3 dazu senkrecht polarisiert ist, dann spricht man von der Typ I-Phasenanpassung. So wird z. B. bei SFG in einem optisch negativen Kristall durch die Wechselwirkung der zwei eingestrahnten ordentlichen Strahlen ein außerordentlicher Strahl erzeugt (ooe-Phasenanpassung) und in optisch positiven Kristallen entsteht ein ordentlicher Strahl durch die Wechselwirkung von zwei außerordentlichen (eoo-Phasenanpassung). Die gleiche Konvention gilt genauso für DFG oder OPA, wobei die Reihenfolge der Polarisation (o,e) immer $\lambda_1 > \lambda_2 > \lambda_3$ folgt.

Für die kollineare Typ I-ooe-Phasenanpassung in einachsigen Kristallen gilt die folgende Beziehung:

$$n_{o1} + n_{o2} = n_3^e(\theta_{PM}) \quad \text{oder} \quad k_{o1} + k_{o2} = k_{e3}(\theta_{PM}) \quad (2.28)$$

wobei θ_{PM} der Phasenanpassungswinkel ist.

Diese Art der Phasenanpassung in einem negativ einachsigen Kristall wird in Abb. 2.1 schematisch dargestellt. Hier wird die Phasenanpassungsrichtung mit einer Gerade durch den Schnittpunkt A zwischen dem Kreis, der dem Wert von $k_{o1}+k_{o2}$ entspricht, und der Ellipse $k_{e3}(\theta)$ verdeutlicht.

Unter Typ II-Phasenanpassung versteht man, wenn die zwei Wellen bei den niedrigeren Frequenzen ω_1 und ω_2 zueinander senkrecht polarisiert sind. In einem optisch negativen Kristall bedeutet dies eoe-Wechselwirkung oder oee-Wechselwirkung. In einem positiven Kristall hat man dagegen oeo- bzw. eoo-(Typ II)-Wechselwirkung.

Der Phasenanpassungswinkel θ_{PM} lässt sich durch die Sellmeier-Gleichungen für $n_o(\lambda)$ und $n_e(\lambda)$ mit Hilfe der Formel (2.26) berechnen.

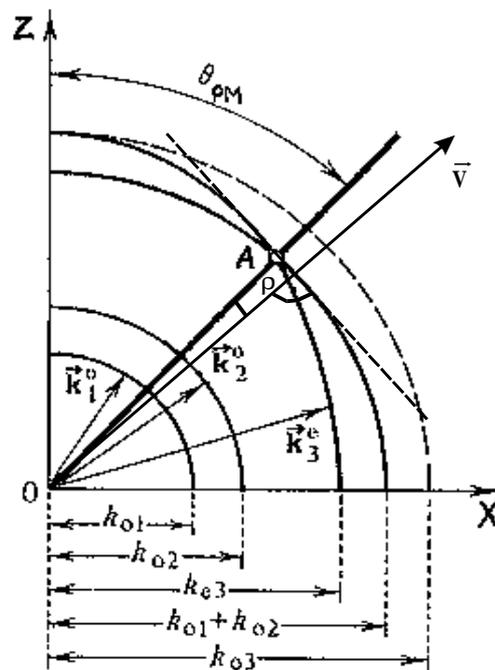


Abb. 2.1: Kollineare Typ I-ooe-Phasenanpassung in einem negativ einachsigen Kristall, dargestellt in der XZ-Ebene.

Eine andere Möglichkeit der Phasenanpassung ist durch Temperaturänderung von Kristallen, in denen die ordentliche und außerordentliche Brechzahlen stark und unterschiedlich von der Temperatur beeinflusst werden, gegeben. Der Phasenanpassungswinkel kann dann z. B. bei SFG mit gegebener ω_3 in einem Spektralbereich für ω_1 bzw. ω_2 (und nicht nur für zwei fixierte Werte) $\theta_{PM}=90^\circ$ betragen. Diese Art der Phasenanpassung nennt man nichtkritische Phasenanpassung, während die Phasenanpassung mit $\theta_{PM}\neq 90^\circ$ als kritische Phasenanpassung bezeichnet wird. Bei nichtkritischer Phasenanpassung ist der Doppelbrechungswinkel ρ gleich

Null, d. h. man kann sehr lange Kristalle verwenden um hohe Umwandlungsraten zu erreichen.

Neben der bisher betrachteten kollinearen Wechselwirkung kann die Phasenanpassung auch nichtkollinear (vektoriell) erreicht werden. Der räumliche Walk-off-Effekt läßt sich auf diese Weise beeinflussen (z. B. läßt sich L_p verlängern) und die Trennung der wechselwirkenden Wellen ist im Vergleich mit kollinearer Phasenanpassung viel einfacher durch rein geometrische Anordnungen, ohne optische Filter oder dichroitische Spiegel möglich.

In Abb. 2.2 werden die Ausbreitungsrichtungen der wechselwirkenden Wellen im negativ einachsigen Typ I-Kristall (ooe-Wechselwirkung) schematisch dargestellt. Der Strahl bei ω_3 hat eine außerordentliche Polarisation und der Phasenanpassungswinkel θ ist definiert als Winkel zwischen dem Wellenvektor \vec{k}_3 und der optischen Achse Z. In Abb. 2.2 ist nur der Fall gezeigt, bei dem sich die Welle bei ω_2 unter einem Winkel $<\theta$ ausbreitet. Im umgekehrten Fall bedeutet es nach den in der Abbildung eingeführten Konventionen, daß sowohl der interne Winkel β zwischen den Wellenvektoren \vec{k}_3 und \vec{k}_2 als auch der interne Winkel α zwischen \vec{k}_1 und \vec{k}_3 negative Vorzeichen besitzen.

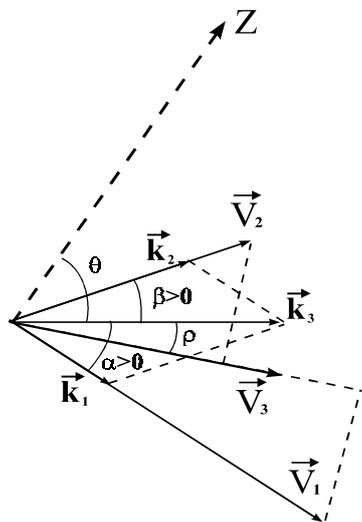


Abb. 2.2: Orientierungen von Wellenvektoren \vec{k} und Energieflußvektoren \vec{V} bei einer nichtkollinearen ooe-Typ I-Phasenanpassung in einem negativ einachsigen Kristall. \vec{k}_1 und \vec{k}_2 liegen in der Hauptebene. β ist der Winkel zwischen \vec{k}_3 und \vec{k}_2 und α zwischen \vec{k}_1 und \vec{k}_3 . Hier werden die Konventionen für die Winkel α und β eingeführt, so daß sie positiv sind, wenn der Winkel zwischen dem \vec{k}_2 -Vektor und der optischen Achse Z kleiner als der Phasenanpassungswinkel θ ist.

Die vektorielle Gleichung der Phasenanpassung, $\vec{k}_3 = \vec{k}_2 + \vec{k}_1$ dient als Basis für die Berechnung des Phasenanpassungswinkels θ für einen gegebenen Winkel β aus einfachen geometrischen Betrachtungen:

$$\begin{aligned} (k_{o1})^2 &= k_{o2}^2 + k_{e3}^2 - 2k_{o2}k_{e3} \cos \beta \\ (k_{o2})^2 &= k_{o1}^2 + k_{e3}^2 - 2k_{o1}k_{e3} \cos \alpha \end{aligned} \quad \text{mit } k_{o1} = \frac{n_{o1}\omega_1}{c}; k_{o2} = \frac{n_{o2}\omega_2}{c}; k_{e3} = \frac{n_3^e(\theta)\omega_3}{c} \quad (2.29)$$

Mit $\gamma = \omega_1/\omega_3$ erhält man:

$$(\gamma n_{o1})^2 = [(1-\gamma)n_{o2}]^2 + [n_3^e(\theta)]^2 - 2n_{o2}n_3^e(\theta)(1-\gamma) \cos \beta \quad (2.30)$$

Hier ist $n_3^e(\theta)$ durch (2.26) definiert. Aus (2.30) läßt sich bei einem bestimmten β der Phasenanpassungswinkel θ berechnen. Mit diesem Winkel θ kann man nun den Winkel α aus folgender Gleichung [s. (2.29)] erhalten:

$$[(1-\gamma)n_{o2}]^2 = (\gamma n_{o1})^2 + [n_3^e(\theta)]^2 - 2\gamma n_{o1}n_3^e(\theta)(1-\gamma) \cos \alpha \quad (2.31)$$

Die Gl. (2.30) ist im Bezug auf β symmetrisch und daher führt die Änderung des Vorzeichens von β zur Änderung des Vorzeichens von α bei gleichem Phasenanpassungswinkel θ .

2.3.2. Zweiachsige Kristalle

Für die zweiachsigen Kristalle stellt die Abhängigkeit der Brechungsindizes von Ausbreitungsrichtung und Polarisation des Lichtes eine kompliziertere Funktion als die für einachsige Kristalle dar. Ähnlich wie in einachsigen Kristallen ist die Ausbreitung der Lichtwelle durch den polaren Winkel θ und den azimuthalen φ definiert. Die Brechungsindizes werden hier in Bezug auf die X-, Y- und Z-Hauptachsen angegeben und es gibt drei wellenlängenabhängige Sellmeier-Gleichungen für die Berechnung der Brechungsindizes n_X , n_Y und n_Z (Hauptwerte bei Ausbreitung entlang der entsprechenden Achse), statt zwei für n_o und n_e wie bei einachsigen Kristallen.

Für die Lichtausbreitung entlang der optischen Achsen ist der Brechungsindex unabhängig von der Polarisation. In optisch zweiachsigen Kristallen existieren, wie der Name schon sagt,

zwei optische Achsen, die nach Konvention in der XZ-Ebene liegen. Daraus folgt, daß entweder $n_X < n_Y < n_Z$ oder $n_X > n_Y > n_Z$ erfüllt ist. Die optischen Achsen bilden mit der Z-Achse jeweils einen Winkel ϑ_Z , der bei $n_X < n_Y < n_Z$ durch die folgende Gleichung beschrieben wird:

$$\sin \vartheta_Z = \frac{n_Z}{n_Y} \left(\frac{n_Y^2 - n_X^2}{n_Z^2 - n_X^2} \right)^{1/2} \quad (2.32)$$

Die optischen Achsen liegen symmetrisch zur Z-Achse, was mittels der Abb. 2.3 verdeutlicht wird.

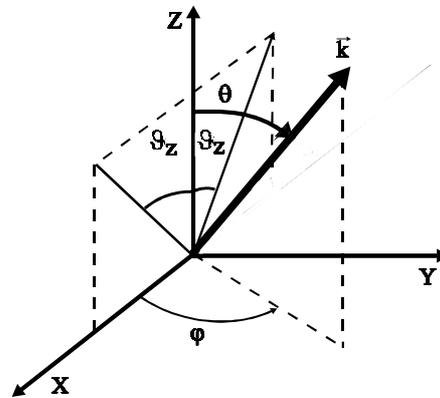


Abb. 2.3: Darstellung der Wellenausbreitung für einen zweiachsigen Kristall

In den Hauptebenen XY, XZ oder YZ sind zweiachsige Kristalle ähnlich wie einachsige zu betrachten und eine analytische Behandlung ist möglich. Zum besseren Verständnis wird ein zweiachsiger Kristall mit $n_X < n_Y < n_Z$, z. B. in der XY-Ebene mit einem negativ einachsigen Kristall [s. (2.26)] verglichen, wobei $n_0 = n_Z$ gilt und $n^e(\varphi)$ ähnlicherweise gegeben ist durch:

$$n^e(\varphi) = n_Y \frac{(1 + \tan^2 \varphi)^{1/2}}{\left[1 + \left(\frac{n_Y}{n_X} \right)^2 \tan^2 \varphi \right]^{1/2}} \quad (2.33)$$

Für die Bestimmung des Walk-off-Winkels in den Hauptebenen läßt sich die Relation (2.27) für einachsige Kristalle als erste Näherung verwenden. Eine detaillierte Beschreibung der

weiteren möglichen Phasen Anpassungsfälle in den Hauptebenen von zweiachsigen Kristallen findet man in [DGN97].

Es sei bemerkt, daß man alle möglichen Typen der Phasen Anpassung für die Wellenausbreitung in den drei Hauptebenen betrachten sollte, da die effektive Nichtlinearität für die verschiedenen Phasen Anpassungen unterschiedliche Werte aufweist. Für die Phasen Anpassung im allgemeinen Fall ist eine Lichtausbreitung unter beliebigen Winkeln θ und ϕ erwünscht. Die Berechnung kann dann aber nur numerisch erfolgen.

Weiterhin sind bei zweiachsigen Kristallen grundsätzlich die kristallographischen Achsen a , b und c von den dielektrischen Hauptachsen X , Y und Z zu unterscheiden. In einachsigen Kristallen ist Z die optische Achse und n_o und n_e werden in dem XYZ-System definiert. Bei d_{eff} -Formeln für einachsige Kristalle muß man aufpassen, da die Wahl der X - und Y -Achsen gewissermaßen willkürlich ist, und d_{il} verschiedene Bedeutungen haben. Die d_{il} -Tensorkomponenten in zweiachsigen Kristallen werden traditionell in der kristallographischen Darstellung (abc -Darstellung) bestimmt, obwohl die effektive Nichtlinearität d_{eff} und die Sellmeier-Gleichungen in der XYZ-Darstellung angegeben sind. Dies bedeutet, daß man z. B. mit d_{31} eigentlich d_{caa} bezeichnet, mit d_{32} d_{cbb} etc.. Im allgemeinen gibt es 6 Möglichkeiten, die XYZ- und abc -Achsen (unter Konvention von rechter-Hand-Systemen) zu verbinden. Wenn diese Relation bekannt ist, kann man die d_{il} -Werte im XYZ-System durch die Literaturwerte für d_{il} im abc -System erhalten. Formeln für d_{eff} im XYZ-System mit d_{il} im abc -System sind aber zur Erleichterung auch direkt in der Literatur [DGN97] angegeben.

2.4. Periodisch gepolte Kristalle: QPM-(„quasi phase matching“)-Struktur

Bei der durch Doppelbrechung realisierten Phasen Anpassung ist die nichtkritische (90°) Phasen Anpassung nur in Einzelfällen möglich, für die d_{eff} wegen der festgelegten Kombination der Polarisierungen der wechselwirkenden Strahlen limitiert und manchmal sogar gleich Null ist.

Mit Quasi-Phasen Anpassung kann man nichtkritische Phasen Anpassung in einem viel größeren Spektralbereich realisieren und dabei höhere d_{eff} erreichen. Da die Polarisation frei wählbar ist, kann man außerdem höhere nichtlineare Koeffizienten ausnutzen, die bei Phasen Anpassung durch Doppelbrechung überhaupt nicht ins Spiel kommen. QPM ermöglicht sogar effiziente Frequenzumwandlung in sonst nicht-phases Anpassbaren und sogar in nicht doppelbrechenden Kristallen. Bei doppelbrechenden Kristallen kann QPM zu wenig Δn aber

auch zu viel Δn korrigieren, um einen bestimmten Drei-Wellen-Prozeß unkritisch phasenanzupassen.

In quasiphasenangepaßten Kristallen wird der nichtlineare Koeffizient mit einer bestimmten Periode moduliert, um die akkumulierte Phasenfehlanspassung auszugleichen. Ohne Phasenanspassung überlagern sich die Beiträge des konvertierten Strahls mit bestimmter Periodizität abwechselnd konstruktiv und destruktiv (siehe Abs. 2.2). Bei QPM wird die Kristallstruktur jeweils nach einer bestimmten Länge um 180° gedreht, so daß nur konstruktive Akkumulation des konvertierten Strahls möglich ist.

Die Abbildung 2.4 zeigt einen Vergleich der erzeugten SHG-Leistung mit perfekter Phasenanspassung ($\Delta k=0$), mit QPM und im nicht-phasenangepaßten Fall ($\Delta k \neq 0$). QPM ist keine perfekte Phasenanspassung. Diese Art der Phasenanspassung kann anhand der gekoppelten Wellengleichung erklärt werden. Die erzeugte Welle bei SFG (stationärer Fall) ist z. B. laut (2.13) gegeben durch:

$$\frac{\partial A_3(z)}{\partial z} \propto d_{\text{eff}} A_1(z) A_2(z) e^{i\Delta k z} \quad (2.34)$$

Dabei ist d_{eff} eine Größe mit einem bestimmten Vorzeichen, die sich auf die Kristallstruktur bezieht. Die Strukturrotation um 180° bedeutet nun $-d_{\text{eff}} = d_{\text{eff}} \exp(i\pi)$ statt d_{eff} (Änderung des Vorzeichens) und addiert somit eine Phasenverschiebung von π zum Phasenterm $\Delta k z$. Das bedeutet, wenn die relative Phasenverschiebung der wechselwirkenden Wellen π (nach einer Kohärenzlänge L_c) erreicht, kann die Phasenfehlanspassung durch Strukturumorientierung (Vorzeichenumkehrung von d_{eff}) ausgeglichen werden, so daß die parametrische Umwandlung in der gewünschten Richtung weiterläuft.

QPM ist zwar weniger effizient als perfekte Phasenanspassung, diese Situation kann aber durch einen größeren nichtlinearen Koeffizienten korrigiert werden. Dazu wird die Kristallausrichtung so gewählt, daß diesmal, im Gegensatz zur konventionellen doppelbrechenden Phasenanspassung, für die nur bestimmte Elemente der nichtlinearen Suszeptibilität zweiter Ordnung genutzt werden können, das größte Element des $\chi^{(2)}$ -Tensors wirksam wird. In Abb. 2.5 wird der Verlauf der Strahlen in einem periodisch gepolten QPM-Kristall schematisch dargestellt.

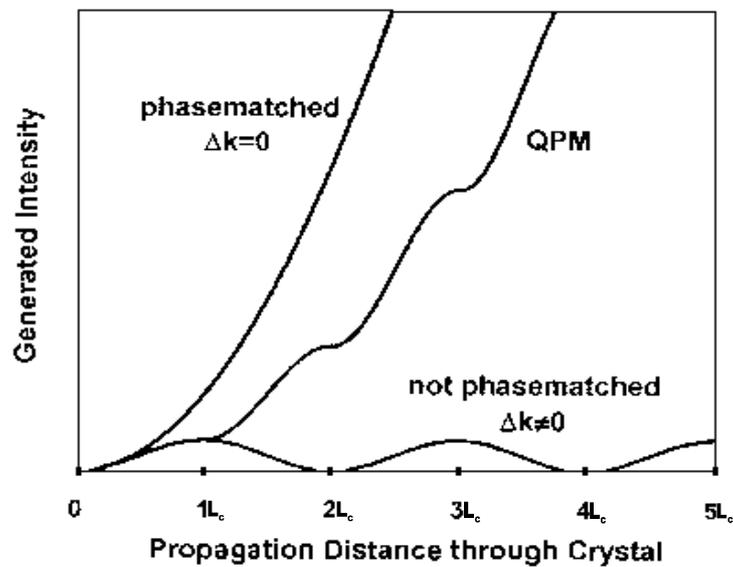


Abb. 2.4: Quasi-phasenangepaßte SHG mit periodischen Domänen im Vergleich zu perfekter Phasenanpassung ($\Delta k=0$) und dem nicht-phasenangepaßten Fall ($\Delta k \neq 0$) [FSb99].

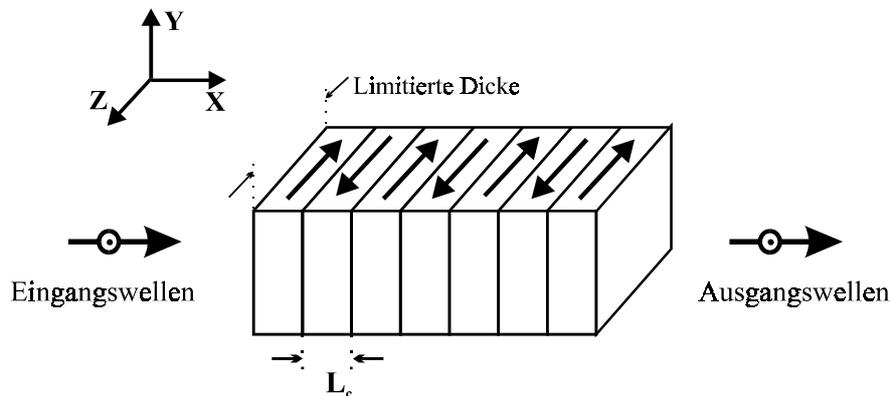


Abb. 2.5: Schematische Darstellung eines periodisch gepolten Kristalls (QPM-Struktur) mit der Kohärenzlänge L_c . Alle Strahlen sind dabei Z-polarisiert. Die Ausbreitung ist entlang $z \equiv X$.

Der effektive nichtlineare Koeffizient für die QPM-Wechselwirkung wird dargestellt durch:

$$d_Q = d_{\text{eff}} G_m \quad (2.35)$$

Wenn der nichtlineare Koeffizient mit dem periodischen Vorzeichenwechsel moduliert ist, lautet der Fourier-Koeffizient G_m wie folgt:

$$G_m = \frac{2}{m\pi} \sin(m\pi D_c) \quad (2.36)$$

wobei der Faktor („duty cycle“) $D_c=l/\Lambda_g$ mit der Länge einer umgedrehten Domäne l und der Gitterperiode der Modulation Λ_g verknüpft ist. m bedeutet die Ordnung der QPM-Wechselwirkung. Die Kristallstruktur bei QPM ist im Prinzip nicht nur auf die Modulation mit einer Einzelperiode ($m=1$) beschränkt. Höhere Ordnungen, mehrfache Gitterperioden sowie aperiodische Gitter etc. bieten zusätzliche Möglichkeiten, so daß man in einer QPM-Probe mehrere nichtlineare Drei-Photonen-Prozesse gleichzeitig realisieren kann. In folgenden wird nur die QPM erster Ordnung betrachtet, da in der vorliegenden Arbeit nur diese Ordnung der QPM ausgenutzt wird.

Der effektive nichtlineare Koeffizient für QPM ist am größten für den Prozeß erster Ordnung ($m=1$), wenn $D_c=50\%$ ist. Es gilt für den nichtlinearen Koeffizienten:

$$d_Q = \frac{2}{\pi} d_{\text{eff}} \quad (2.37)$$

Beispielsweise wird beim LiNbO_3 -Kristall der größte nichtlineare Koeffizient d_{33} wirksam, wenn alle Eingangs- und Ausgangswellen bei Ausbreitung im Kristall parallel zur Z-Achse polarisiert sind (Abb. 2.5). Dieser nichtlineare Koeffizient ist etwa sechsmal größer als der nichtlineare Koeffizient d_{31} , der sonst im LiNbO_3 -Kristall zu d_{eff} beiträgt. Das bedeutet, daß die QPM mit allen zur Z-Achse parallel polarisierten Wellen im Vergleich zur doppelbrechenden Phasenanpassung in LiNbO_3 mindestens 15 mal $[(d_{33}/d_{31})^2(2/\pi)^2 \approx 15]$ effizienter ist. Mit anderen Worten wird die QPM-Effizienzkurve steiler als die Kurve, die der konventionellen Phasenanpassung entspricht, im Gegensatz zu Abb. 2.4, für die für QPM und konventionelle Phasenanpassung der gleiche nichtlineare Koeffizient angenommen wurde.

Die Phasenfehlanspassung Δk_Q wird durch folgende Gleichung dargestellt:

$$\Delta k_Q = 2\pi \left(\frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_3}{\lambda_3} + \frac{1}{\Lambda_g} \right) = k_1 + k_2 - k_3 + \frac{2\pi}{\Lambda_g} \quad (2.38)$$

wobei die Gitterperiode Λ_g der doppelten Kohärenzlänge $2L_c$ entspricht (s. Abb. 2.5). Sie ist gegeben durch:

$$\Lambda_g = 2L_c = \frac{2\pi}{|k_1 + k_2 - k_3|} \quad (2.39)$$

Analog zu den konventionellen doppelbrechenden Kristallen können die Umwandlungseffizienzen bei QPM in der „fixed-field“-Näherung durch die $\text{sinc}^2(\Delta k_Q L/2)$ -Abhängigkeit dargestellt werden. Die Phasenanpassung ist bei $\Delta k_Q=0$ erreicht.

Die ersten drei Terme von Δk_Q in (2.38) sind identisch zur konventionellen Phasenanpassungsbedingung. Der letzte Term, der Gittervektor, bietet einen zusätzlich wählbaren Parameter (Periode), mit dem der Kristall strukturiert wird. Bei einer festgelegten Periode könnte man die Phasenanpassungsbedingung in (2.38) durch Temperaturänderung über die ersten drei Terme fein beeinflussen.

Zur Herstellung von quasi-phasenanpaßbaren Proben sind vor allem ferroelektrische Materialien wie LiNbO_3 , KNbO_3 , KTiOPO_4 und deren Isomorphe, oder LiTaO_3 , das kaum doppelbrechend ist, gut geeignet, da sich hier das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten mit der Umkehrung der ferroelektrischen Domänenpolarität ändert [MEF95, MIB97, FSb99]. Ferroelektrizität kann als Phasenübergang betrachtet werden, da solche Materialien unter einer bestimmten kritischen Temperatur (Curie-Temperatur T_C) aufgrund der Verschiebung von Ionen relativ zur neutralen Stellung Polarisation erzeugen [Kit86]. In Abhängigkeit von der Richtung der Verschiebung kann die Polarisation unterschiedliche Polaritätswerte besitzen und ein Bereich mit einer bestimmten Polarität wird dann als eine Domäne bezeichnet. In gewöhnlichen QPM-Ferroelektrika sind Polaritäten angrenzender Domänen um 180° gedreht orientiert. Andere Orientierungen sind aber auch möglich, wie 90° -Domänen in KNbO_3 . Piezoelektrizität und Pyroelektrizität sind ähnliche Phänomene, aber der entscheidende Vorteil der Ferroelektrizität liegt darin, daß die Polarität einer Domäne durch Anlegen eines elektrischen Feldes gedreht werden kann.

Die am häufigsten angewandte Methode zur Herstellung des periodischen Domänengitters basiert auf der Photolithographie, die oft bei der Produktion von integrierten Halbleiterelementen verwendet wird. Zuerst wird eine dünne Metallschicht mit gewünschter Strukturperiode auf die Kristalloberfläche gebracht. Durch das sogenannte „electric field poling“-Verfahren, bei dem kurzzeitig definierte Hochspannungsfelder an den Kristall angelegt werden (z. B. $> 21 \text{ kV/mm}$ entlang der Z-Achse für das Polen eines LiNbO_3 -Kristalls), wird die Periodenstruktur dauerhaft auf die inneren Kristalldomänen übertragen.

Bestimmte Halbleiter-Materialien wie GaAs und ZnSe besitzen hohe Nichtlinearität und gute thermische Eigenschaften, aber es fehlt ihnen an Doppelbrechung für die konventionelle Phasenanpassung und sie sind nicht ferroelektrisch. Für den MIR-Spektralbereich haben diese Materialien aber eine größere Kohärenzlänge, die typischerweise bei etwa 100 μm liegt. Hier ist es möglich, verdrehte Kristallplatten abwechselnd aufeinander zu stapeln, um eine bestimmte periodische Struktur zu bilden und damit QPM zu erreichen. Die sogenannte „diffusion-bonding“-Methode, bei der dieser Stapel von Platten bei hoher Temperatur und Druck verschmolzen wird, ermöglicht es, einen monolithischen Kristall zu formen. GaAs-Stapel mit 45 Schichten wurden mittels dieses Verfahrens realisiert und erfolgreich für QPM eingesetzt [LBL98].

Neben den bisher dargestellten Herstellungsmethoden gibt es eine neuartige Methode zur periodischen Strukturierung nichtlinearer Materialien. Mithilfe von Ablationen durch fokussierte Strahlung kurzer Lichtimpulse kann die gewünschte Periodenstruktur direkt in die Oberfläche eingeritzt werden. Der Übergang zur Domänenstruktur geschieht auch hier durch Anlegen elektrischer Hochspannungsfelder. Die Domänengrenzen lassen sich nach der Polung durch selektive Ätzverfahren sichtbar machen.

2.5. Bandbreite der Phasenanpassung

Im Experiment kann die Bedingung $\Delta k=0$ bei Frequenzumwandlung sowohl bei QPM als auch bei konventioneller Phasenanpassung nur näherungsweise erreicht werden, da die reale Situation vom idealen Fall weit entfernt ist. Die Strahlen sind divergent und/oder nichtmonochromatisch. Die Temperatur des Kristalls bleibt auch nicht konstant. $\Delta k \neq 0$ bedeutet eine Abnahme der Umwandlungseffizienz. Die sogenannten Winkel- ($\Delta\theta$), Spektral- ($\Delta\nu$) sowie Temperaturakzeptanz (ΔT) entsprechen jeweils der maximal zulässigen Divergenz und Spektralbreite der wechselwirkenden Wellen sowie Temperaturinstabilität. Δk kann in erster Näherung als eine lineare Funktion von T , θ und ν darstellt werden:

$$\Delta k(T, \theta, \nu) \cong \frac{\partial(\Delta k)}{\partial T} \Delta T + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \theta} \Delta \theta + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \nu} \Delta \nu \quad (2.40)$$

Die partiellen Ableitungen setzen dabei voraus, daß die zwei anderen Argumente jeweils konstant bleiben. Diese Beziehung ermöglicht mit Δk aus (2.19) die Berechnung von Δv , ΔT sowie $\Delta \theta$ für SFG und DFG in der „fixed-field“-Näherung:

$$\begin{aligned}\Delta v &= 1.772 \frac{\pi}{L} \left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial v} \right)_{v_{\text{PM}}}^{-1} \\ \Delta T &= 1.772 \frac{\pi}{L} \left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial T} \right)_{T_{\text{PM}}}^{-1} \\ \Delta \theta &= 1.772 \frac{\pi}{L} \left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial \theta} \right)_{\theta_{\text{PM}}}^{-1}\end{aligned}\tag{2.41}$$

Der Index PM bezeichnet die Phasenanpassung und θ ist der kritische Winkel (in zweiachsigen Kristallen kann dies auch φ sein). Die analytischen Formeln zur Berechnung der Bandbreiten für den Fall geringer Umwandlung findet man in [DGN97]. Sie basieren auf (temperaturabhängigen) Sellmeier-Gleichungen und (2.41). Für die Berechnung von Δv wird dabei angenommen, daß zumindest einer der eingestahlten Strahlen schmalbandig, also nahezu monochromatisch ist.

Nichtkritische Phasenanpassung ($\theta_{\text{PM}}=90^\circ$) ist im Vergleich zur kritischen immer vorteilhaft, da sie neben dem verschwindenden räumlichen Walk-off auch weniger von der Strahldivergenz beeinflusst wird. Hier kann die erste Ableitung von Δk nach θ vernachlässigt werden [s. (2.40)] und nur der kleinere Beitrag der zweiten Ableitung trägt zur Berechnung der Bandbreite bei, was größere Winkelakzeptanz bedeutet. Die Winkelakzeptanz in einer Ebene senkrecht zur Hauptebene ist wesentlich größer (unkritischer Winkel) und wird normalerweise nicht betrachtet.

Die Beziehung (2.41) gilt auch analog für QPM, anstelle von Δk ist in die Gleichungen Δk_Q einzusetzen. Da das Gitter hier nur „nichtlinear“ ist, werden die Eigenschaften (2.41), die nur von $\chi^{(1)}$ abhängig sind, eigentlich nicht beeinflusst. An dieser Stelle wird nochmals betont, daß QPM im allgemeinen nichtkritisch ist.

Es ist speziell auf die L^{-1} -Abhängigkeit in (2.41) hinzuweisen [bei nichtkritischer Phasenanpassung ist $\Delta \theta$ schwächer ($\sim L^{-1/2}$) abhängig]. Das bedeutet, daß man, um die Akzeptanzen zu erhöhen, die Kristalllänge möglichst kurz wählen sollte, was aber die Umwandlungseffizienz reduziert. Große $\Delta \theta$ erlaubt starke Fokussierung und große ΔT erlaubt den Betrieb ohne spezielle Maßnahmen zur Temperaturstabilisierung. Andererseits bedeutet

ein großer Wert von $\Delta\theta$, daß die Abstimmung nicht so flexibel (bei Änderung der Wellenlängen muß der Winkel bzw. der Kristallschnitt stark geändert werden) ist; eine große ΔT bedeutet, daß Phasenanpassung durch Änderung der Temperatur sehr limitiert ist. Auf die spektrale Bandbreite $\Delta\nu$ kommen wir im nächsten Abschnitt zurück, da diese Bandbreite insbesondere bei der Konversion kurzer Impulse von besonderer Bedeutung ist und durch nichtkollineare Wechselwirkung erhöht werden kann.

Analog zu (2.41) können Bandbreiten bei OPA eingeführt werden, die sich auf die Verstärkung und nicht die Umwandlung beziehen. Aus (2.24) erhält man in der „fixed-field“-Näherung z. B.:

$$\Delta\nu \approx 4\sqrt{\frac{\ln 2}{L} \frac{g}{\left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial\nu}\right)^{-1}}}_{\nu_{\text{PM}}} \quad (2.42)$$

Hier spricht man nicht von spektraler Akzeptanz, sondern viel mehr von spektraler Bandbreite, da (2.42) unter der Annahme, daß die Pumpwelle monochromatisch ist, die spektrale Bandbreite der Signal- und Idlerwellen in OPA's bzw. OPG's bestimmt. In diesem Fall berücksichtigt man aber nur die dispersiven Eigenschaften von $\chi^{(1)}$ im Kristall (siehe nächsten Abschnitt). Der Einfluß der endlichen Bandbreite der Pumpstrahlung kann wie folgt berücksichtigt werden. Aus (2.42) ist ersichtlich, daß $\Delta\nu$ von g abhängt, wobei g eine Funktion der Pumpintensität I_3 mit $g \sim (I_3)^{1/2}$ ist. Man kann die Pumpintensität κI_3 als die Intensität, bei der die Verstärkung auf die Hälfte der Verstärkung bei I_3 zurückfällt, definieren. Das bedeutet:

$$G_0(\kappa I_3) = 0.5G_0(I_3) \quad (2.43)$$

Der Beitrag zu der spektralen Bandbreite der Signal- und Idlerwellen aus der endlichen spektralen Breite der Pumpstrahlung wird dann durch $\Delta\nu_3$ bestimmt, wobei $\nu_3 - \Delta\nu_3/2$ und $\nu_3 + \Delta\nu_3/2$ im Frequenzbereich κI_3 entsprechen.

Die Divergenz des Pumpstrahls kann in einem OPG/OPA zusätzlich zur spektralen Verbreiterung führen. Für einen Konuswinkel Ω des Pumpstrahls ergibt sich eine zusätzliche spektrale Breite von [BBr79]:

$$\Delta v_{\Omega} \approx \left(\frac{dv}{d\theta} \right) \frac{2\Omega}{n_3} \approx \frac{2\Omega\rho}{\lambda_3} \left(\frac{\partial(\Delta k)}{\partial v} \right)_{v_{PM}}^{-1} \quad (2.44)$$

wobei θ (oder φ) der kritische Winkel ist. Diese Art von spektraler Verbreiterung läßt sich erheblich reduzieren, wenn der Pumpstrahl kollimiert ist.

Die off-axiale Wechselwirkung innerhalb eines Pumpvolumens kann auch die Bandbreiten der erzeugten Signal- und Idlerwellen vergrößern, da vektorielle, also leicht nichtkollineare Phasenanpassung von verschiedenen Frequenzen möglich ist. Die spektrale Verbreiterung durch nichtkollineare Wechselwirkung kann normalerweise durch Verwendung mehrerer Stufen unterdrückt werden, indem nur die kollineare Strahlung von der nächsten Stufe weiter verstärkt wird.

Die Bandbreite hängt auch von der Signalwellenlänge ab. In der Nähe des Entartungspunktes, wo die Signal- und Idlerwellenlänge gleich sind, ist die Bandbreite bei Typ I-Wechselwirkung merklich größer. Daher vermeidet man diesen Punkt bei OPG's; bei OPA's kann dagegen die Bandbreite um diesen Punkt durch die Seedwelle kontrolliert werden.

Für praktische Fälle ist es normalerweise ausreichend, von allen möglichen Beiträgen zur spektralen Bandbreite bei OPA's/OPG's den größten abzuschätzen.

2.6. Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse

In der bisherigen Betrachtung der parametrischen Frequenzumwandlungsprozesse sind wir zumindest von einer monochromatischen Welle ausgegangen. Man hat aber bei Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse (ps oder fs) mit drei breitbandigen Wellen zu tun, deren spektrale Breiten über Fouriertransformation mit den jeweiligen Impulsdauern verknüpft sind. Im allgemeinen wird das zeitliche Verhalten eines optischen Impulses durch die Intensität $I(z, t)$ [s. (2.15)] und die Phase $\varphi(z, t)$ von $A(z, t)$ bestimmt. Die spektrale Breite des Impulses wird sowohl von $I(z, t)$ als auch von $\varphi(z, t)$ beeinflusst. Zwischen der Impulsdauer T (FWHM) von $I(z, t)$ und der spektralen Halbwertsbreite Δv_L (FWHM) von $|A(z, v)|^2$ mit $A(z, v)$ als Fourier-Transformation von $A(z, t)$ existiert eine Ungleichheit von $\Delta v_L T \geq C$ (mit $C=0.441$ für Gauß- und 0.316 für sech²-Impuls). Der Faktor C gibt an, wie kurz die Impulsdauer bei einer gegebenen spektralen Halbwertsbreite sein kann, wenn $\varphi(z, t) = \varphi(z)$ ist, d. h. wenn keine Phasenmodulation präsent ist. Wenn Δv_L nur durch das

Profil der Intensität bestimmt wird, spricht man von einem Fourier-limitierten Impuls ($\Delta\nu_L T = C$). Impulse mit gewissen Phasenstörungen sind nicht Bandbreite-limitiert und zeigen größere Fourierprodukte als C.

Vorteile bei Drei-Photonen-Prozessen mit ultrakurzen Lichtimpulsen sind vor allem, daß man höhere Spitzenintensität bei reduzierter mittlerer Intensität zur Frequenzumwandlung verwenden kann als bei längeren Impulsen bzw. kontinuierlichen Laserstrahlen, bei denen oft thermische Probleme auftreten. Die Zerstörungsschwelle hängt normalerweise von der Energiedichte ab und nimmt deshalb generell mit zunehmender Impulsdauer ab. Auf den ersten Blick ermöglicht also die hohe Spitzenintensität von fs-Impulsen eine effiziente Frequenzumwandlung. Im fs-Regime müssen aber spezifische Forderungen an die Impuls- und Kristallparameter gestellt werden, um die Verletzung der Phasenanpassungsbedingung aufgrund der breiten Spektren möglichst zu vermeiden und zeitlich und spektral saubere Impulse (Fourier-Limitierung) möglichst effizient zu erzeugen.

Die Theorie der parametrischen Prozesse mit ultrakurzen Lichtimpulsen ist viel komplizierter und umfangreicher als die bisher dargestellte Theorie für quasimonochromatische Wellen. Hier dürfen neben dem Abbau der Eingangsimpulsenergien andere Effekte, die mit den Dispersionseigenschaften des nichtlinearen Mediums zusammenhängen, nicht mehr vernachlässigt werden. Zusätzlich müssen sämtliche spektrale Verbreiterungsmechanismen berücksichtigt werden. Alle Effekte kann man dabei nicht gleichzeitig, sondern nur getrennt betrachten. Es existiert keine allgemeine analytische Lösung der gekoppelten Differentialgleichungen und daher müssen diese Gleichungen numerisch gelöst werden [BPM89, KdX98].

Im folgenden werden einige wichtige charakteristische Längen, die im fs-Regime eine wichtige Rolle spielen, erläutert. Sie müssen bei der Kristallauswahl berücksichtigt werden, um unerwünschte Effekte zu vermeiden.

Die lineare Polarisation, die mit dem Brechungsindex über $n(\omega)$ bzw. $n(\lambda)$ verknüpft ist, ist in erster Näherung für die Dispersion von Licht in Materie verantwortlich. Im allgemeinen wird die nichtlineare Polarisation nur als kleine Störung zur gesamten induzierten Polarisation ($|\vec{P}_{NL}| \ll |\vec{P}_L|$) angesehen und die Dispersion der nichtlinearen Suszeptibilitäten höherer Ordnungen wird daher vernachlässigt. Die Beziehung $k = \omega n(\omega)/c$ beschreibt die lineare Dispersion. Im allgemeinen läßt sich k um die Trägerfrequenz ω_0 in eine Taylorreihe entwickeln:

$$k(\omega) = k_n + \left(\frac{dk}{d\omega} \right)_{\omega_n} (\omega - \omega_n) + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2k}{d\omega^2} \right)_{\omega_n} (\omega - \omega_n)^2 + \dots \quad (2.45)$$

Die einzelnen Koeffizienten in dieser Entwicklung stellen wichtige physikalische Größen dar. Aus der ersten Ableitung können die Gruppengeschwindigkeiten v_n , mit den sich die verschiedenen Impulse im Medium aufgrund der Dispersion ausbreiten, mit folgender Beziehung berechnet werden:

$$v_n = \left(\frac{\partial \omega}{\partial k} \right)_{\omega_n} = c \left(\frac{\partial \omega}{\partial (n\omega)} \right)_{\omega_n} = c \left[n_n + \omega_n \left(\frac{\partial n}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} \right]^{-1} \quad (2.46)$$

Die zweite Ableitung, die als Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) bezeichnet wird, beschreibt das Auseinanderlaufen eines Wellenpakets aufgrund der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten der einzelnen Frequenzkomponenten:

$$k_n'' \equiv \left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_n} = \frac{2}{c} \left(\frac{\partial n}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} + \frac{\omega_n}{c} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_n} = \frac{\lambda_n^3}{2\pi c^2} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \right)_{\lambda_n} \quad (2.47)$$

Es ist anschaulich klar, daß das zeitliche Auseinanderlaufen der wechselwirkenden Impulse aufgrund unterschiedlicher Gruppengeschwindigkeiten durch verschiedene Trägerfrequenzen und Polarisierungen in nichtlinearen Medien zu einer erheblichen Beeinträchtigung der Umwandlungseffizienz und zu einer Veränderung des zeitlichen Profils der erzeugten Wellen führt.

Unter der sogenannten „Wechselwirkungslänge L_{GVM} “ versteht man die Ausbreitungslänge, nach der die wechselwirkenden Impulse voneinander getrennt sind. L_{GVM} zwischen zwei Impulsen wird gegeben durch:

$$L_{GVM} = \frac{T}{|1/v_n - 1/v_m|} = \frac{T}{|\Delta_{nm}|} \quad (2.48)$$

Hier ist T die Impulsdauer des längeren Impulses und $\Delta_{nm}=1/v_n-1/v_m$ beschreibt den Laufzeitunterschied pro Längeneinheit zwischen den zwei Impulsen. Δ_{nm} wird

Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung (GVM) genannt. Mit $L\Delta_{nm}$ kann man die relative Zeitverschiebung zweier Impulse nach einem Kristall mit der Länge L berechnen.

Am einfachsten ist der Einfluß von L_{GVM} auf die Dauer des erzeugten Impulses bei Typ I-SHG oder entarteten OPG bzw. OPA zu verstehen, da es nur einen GVM-Parameter gibt. Für $L \leq L_{GVM}$ erfährt die Impulsdauer der generierten Impulse dem eingestrahlten Impuls gegenüber keine wesentliche Verlängerung. Diese Bedingung muß daher zur Erzeugung ultrakurzer Lichtimpulse berücksichtigt werden. Für $L > L_{GVM}$ reduziert sich der zeitliche Überlapp zwischen den wechselwirkenden Impulsen, wodurch man neben der Impulsverlängerung nur wenig an Umwandlungseffizienz gewinnt. Eine geringere GVM ermöglicht Verwendung längerer Kristalle ohne wesentliche Impulsverbreiterung im fs-Regime.

Die Wechselwirkungslänge in einem nichtlinearen Kristall kann durch die Verringerung der GVM vergrößert werden. Dies läßt sich z. B. durch nichtkollineare Wechselwirkung realisieren (Abs. 3.1). Die Gruppengeschwindigkeit der Welle bei ω_3 ist durch $v_3 = (d\omega_3/dk_3)\cos\rho$ gegeben (Abb. 2.2) und die Komponenten der Gruppengeschwindigkeiten bei ω_2 und ω_1 in Richtung des Energieflusses bei ω_3 sind jeweils durch $v_2 = (d\omega_2/dk_2)\cos(\beta+\rho)$ und $v_1 = (d\omega_1/dk_1)\cos(\alpha-\rho)$ gegeben. Hier kann man durch Variation des relativen Winkels (z. B. β in Abb. 2.2) der wechselwirkenden Impulse die Laufzeitunterschiede verringern und schließlich Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen den Impulsen erreichen. Diese Gruppengeschwindigkeitsanpassung sollte im fs-Regime neben der Phasenanpassung gut erfüllt sein.

Wie bereits erwähnt, wird nur die Dispersion von $\chi^{(1)}$ berücksichtigt. Dies entspricht einer Berücksichtigung der Integralform in dem ersten Term an der rechten Seite von (2.2). Aus (2.2) wird klar, daß es im linearen Fall einfacher ist, die Dispersion im Frequenzbereich zu betrachten, da das Faltungsintegral dort einem einfachen Produkt entspricht, genau wie in (2.3) angenommen. Wenn man in der Wellengleichung (2.5) \vec{P}_{NL} vernachlässigt, kann \vec{P}_L zuerst im Frequenzbereich durch eine Taylorentwicklung von $\chi^{(1)}(\omega)$ dargestellt werden:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \chi_n^{(1)} + \left[\frac{d\chi^{(1)}}{d\omega} \right]_{\omega=\omega_n} (\omega - \omega_n) + \frac{1}{2} \left[\frac{d^2\chi^{(1)}}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_n} (\omega - \omega_n)^2 + \text{höhere Ordnungen} \quad (2.49)$$

Die Multiplikation mit $(\omega - \omega_n)$ entspricht im Zeitbereich aber d/dt , d^2/dt^2 etc. für die langsamen Amplituden. In dem mitlaufenden Koordinatensystem $\xi = z$ und $\eta = t - z/v_n$ und mit der Näherung der langsam veränderlichen komplexen Amplituden ergibt sich, nachdem die

$\chi^{(1)}$ -Ableitungen durch k -Ableitungen dargestellt werden, daß in (2.13) $\frac{n_n}{c} \frac{\partial}{\partial t}$ durch

$\frac{1}{v_n} \frac{\partial}{\partial \eta} + \frac{i}{2} k_n'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2}$ ersetzt werden muß. Wenn das Koordinatensystem z. B. mit dem Impuls

bei ω_3 (Pumpimpuls bei OPA oder OPG) verbunden wird, erhält man statt (2.13) folgendes Differentialgleichungssystem:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial \xi} + \Delta_{13} \frac{\partial}{\partial \eta} + i \frac{1}{2} k_1'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \right) A_1(\xi, \eta) &= i \frac{2\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} A_3(\xi, \eta) A_2^*(\xi, \eta) e^{-i\Delta k \xi} \\ \left(\frac{\partial}{\partial \xi} + \Delta_{23} \frac{\partial}{\partial \eta} + i \frac{1}{2} k_2'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \right) A_2(\xi, \eta) &= i \frac{2\omega_2 d_{\text{eff}}}{n_2 c} A_3(\xi, \eta) A_1^*(\xi, \eta) e^{-i\Delta k \xi} \\ \left(\frac{\partial}{\partial \xi} + i \frac{1}{2} k_3'' \frac{\partial^2}{\partial \eta^2} \right) A_3(\xi, \eta) &= i \frac{2\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} A_1(\xi, \eta) A_2(\xi, \eta) e^{i\Delta k \xi} \end{aligned} \quad (2.50)$$

Wenn GVD vorhanden ist [also $k_n'' \neq 0$ in (2.50)], ändert sich die Einhüllende jedes einzelnen Impulses aus (2.50) bei der Ausbreitung im Medium aufgrund verschiedener Geschwindigkeiten für Frequenzkomponenten innerhalb der einzelnen Impulsspektren. Am einfachsten ist dieser Effekt unter Vernachlässigung der Nichtlinearität d_{eff} zu sehen. Dann verdoppelt sich die Impulsdauer eines Gauß'schen Impulses, definiert durch $A(\xi = 0, \eta) = A_0 \exp(-2 \ln 2 \eta^2 / T_0^2)$, mit T_0 als FWHM für $I(\xi = 0, \eta) \propto |A(\xi = 0, \eta)|^2$, nach einer Ausbreitungslänge von $(\sqrt{3} / 4 \ln 2) L_{\text{GVD}} \approx 0.6 L_{\text{GVD}}$ [RWb89], wobei gilt

$$L_{\text{GVD}} = T_0^2 / k_n'' \quad (2.51)$$

Im allgemeinen kann man für den Fall von $L \ll L_{\text{GVD}}$ bei Fourier-limitierten Lichtimpulsen die GVD-Terme in (2.50) vernachlässigen.

Eine besonders wichtige Aufgabe im fs-Regime ist die Bandbreitenkontrolle der erzeugten Impulse oder das Erreichen ausreichender spektraler Akzeptanz. Die Bandbreiten sind bei ultrakurzen Impulsen neben der Kristalllänge vor allem durch die GVM, die die effektive Wechselwirkungslänge des parametrischen Prozesses limitiert, bestimmt.

In der „fixed-field“-Näherung erhält man aus (2.41) für die spektrale Akzeptanz bei SFG und DFG:

$$\Delta\nu = \frac{0.886}{L|\Delta_{nm}|} \quad (2.52)$$

sowie aus (2.42) und (2.44) für die Bandbreite bei OPA und OPG,

$$\Delta\nu = \frac{0.53(g/L)^{1/2}}{|\Delta_{12}|} \quad \text{bzw.} \quad \Delta\nu_{\Omega} = 2\Omega\rho / \lambda_3 |\Delta_{12}| \quad (2.53)$$

d. h. $\Delta\nu$ ist direkt mit den GVM-Parametern Δ_{nm} verknüpft. Da es sich in (2.52) um 3 (oder 2 unabhängige) GVM-Parameter handelt, ist es klar, daß im Fall ultrakurzer Lichtimpulse diese Formel (mit Ausnahme der Entartung bei $\omega_1=\omega_2$) nicht sehr hilfreich ist. GVM's erschweren enorm die analytische Behandlung der gekoppelten Gleichungen (2.50) sogar bei $k_n'' = 0$. Eine Lösung außerhalb der „fixed-field“-Näherung ist nur im Fall von SHG durch Annahme einer speziellen Impulsform (Lorentz-Impuls) analytisch gelungen [ACD68]. Im allgemeinen erfordert die Berücksichtigung der GVM bei parametrischer Wechselwirkung eine numerische Simulation.

Bei (2.53) ist nochmals zu erwähnen, daß diese Formel unter Vernachlässigung der Bandbreite des Pumpimpulses abgeleitet wurde. Die spektrale Bandbreite $\Delta\nu$ bei OPG/OPA hängt zusätzlich von der parametrischen Verstärkung (bzw. Pumpintensität) ab. Wie bereits im Abschnitt 2.5 erläutert, beeinflußt dadurch die Pumpintensität die Bandbreite erheblich. Bei hohen Spitzenintensitäten, die mit ultrakurzen Impulsen leicht zu erreichen sind, erhält man eine größere Bandbreite.

Wie bereits erwähnt, können die spektralen Bandbreiten der Signal- und Idlerimpulse bei OPG aufgrund nichtkollinearer Wechselwirkung und Strahldivergenz oder Nähe an dem Entartungspunkt extrem groß werden [s. (2.53)]. Dagegen kann bei OPA mit Schmalband-Seeding die Bandbreite der erzeugten Impulse durch die Bandbreite des Seedimpulses kontrolliert und bestimmt werden. Wenn $L < L_{GVM}$ gilt, erfahren die Impulse keine zeitliche Verlängerung, während die spektrale Bandbreite durch den eingestrahnten Seedimpuls (bei Signal- oder Idlerwellenlänge) limitiert wird. Schließlich können gleiche Bandbreiten wie die des Pumpimpulses erzeugt werden. Wenn $L > L_{GVM}$ ist, wird nach (2.53) die Bandbreite limitiert und die Impulse werden verlängert. Ähnliche Argumente gelten bei SFG und DFG.

OPA ist eine alternative Methode zu DFG, ermöglicht aber wesentlich höhere Ausgangsenergien als DFG. Bei OPA kann bei hohen Pumpintensitäten und geringer GVM das sogenannte „temporal gain narrowing“ auftreten, als Folge dessen können die erzeugten Impulse verkürzt werden. Unter Annahme Gauß'scher Pumpimpulsform und Entartung ergibt sich für $L_{NL} \ll L$ und $L_{GVM} > L$ eine Verkürzung $T/T_0 \approx 1.4(gL)^{-1/2}$ [ACD68]. Andererseits ist die Verkürzung aber durch die GVM auf $T \approx \sqrt{T_0 L_{NL} |\Delta_{13}|}$ beschränkt. Der Mechanismus ist ähnlich wie bei der wohl bekannten $\sqrt{2}$ -Verkürzung bei SHG, die für $L \ll L_{GVM}$ und L_{NL} für Gauß'sche Impulsform aufgrund der Intensitätsabhängigkeit auftritt. In einem OPA ist dieser Mechanismus aber viel stärker ausgeprägt.

Generell ist es also vorteilhaft, bei der Frequenzumwandlung ultrakurzer Lichtimpulse kurze Kristalle ($L < L_{GVM}$) und hohe Intensitäten zu benutzen. Die Intensitäten können dabei wegen der höheren Zerstörungsschwelle für kurze Lichtimpulse deutlich höher als für ns- bzw. μ s-Impulse sein. Dabei ist zu beachten, daß einige nichtlineare Effekte dritter Ordnung ($\chi^{(3)}$ -Prozesse) bei Einstrahlung intensiver ultrakurzer Lichtimpulse zusätzlich auftreten können. Effekte wie Zwei-Photonen-Absorption, Selbst- und Kreuzphasenmodulation sowie Selbstfokussierung und induzierte Fokussierung führen zur Reduzierung der Umwandlungseffizienz und zur spektralen Verbreiterung sowie Störung und Modulation der Impulse. Diese Effekte sind daher in den meisten Fällen unerwünscht. Um solche Effekte zu berücksichtigen, müssen die gekoppelten Differentialgleichungen (2.50) dementsprechend weiter modifiziert werden. Als Beispiel wird der Fall von SHG (ohne GVM, GVD und mit $\Delta k=0$) betrachtet. Die Gleichungen enthalten zusätzliche Terme, welche nichtlineare Prozesse dritter Ordnung beschreiben:

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_1}{\partial \xi} &= i \frac{2\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} A_1^* A_3 + i \frac{3\omega_1 \chi^{(3)}}{2n_1 c} A_1 \left(|A_1|^2 + 2|A_3|^2 \right) \\ \frac{\partial A_3}{\partial \xi} &= i \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} A_1^2 + i \frac{3\omega_3 \chi^{(3)}}{2n_3 c} A_3 \left(|A_3|^2 + 2|A_1|^2 \right) \end{aligned} \quad (2.54)$$

Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt den gewöhnlichen SHG-Prozeß, während der zweite die $\chi^{(3)}$ -Prozesse darstellt. Die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ läßt sich schreiben als $\chi^{(3)} = \chi_{\text{Re}}^{(3)} + i\chi_{\text{Im}}^{(3)}$. Der Realteil $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$ beschreibt Einfluß auf die Phase, während der imaginäre Teil für die nichtlineare Absorption (Zwei-Photonen-Absorption) verantwortlich ist.

Die Gl. (2.54) gelten für ebene Wellen und in diesem Fall beschreibt $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$ Selbstphasenmodulation (bei einem Impuls) bzw. die Kreuzphasenmodulation (induzierte Phasenmodulation auf den schwächeren durch den stärkeren Impuls). Zur Vereinfachung wird hier weiter nur die Selbstphasenmodulation betrachtet, d. h. die SHG wird in (2.54), indem man $d_{\text{eff}}=0$ annimmt, vernachlässigt. Außerdem wird hier die Tensornatur von $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$ vernachlässigt. Diese Näherung ist durch die Tatsache begründet, daß experimentelle Messungen der einzelnen Tensorkomponenten von $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$ in nichtlinearen, doppelbrechenden Kristallen nicht vorhanden sind; normalerweise wird nur eine Kombination von solchen Komponenten gemessen und zwar bei einer bestimmten Frequenz. Die Vernachlässigung der Frequenzabhängigkeit in $\chi_{\text{Re}}^{(3)}$ ist deshalb auch sinnvoll und wurde bereits früher angenommen. Ähnliche Argumente gelten auch für die spätere Betrachtung von $\chi_{\text{Im}}^{(3)}$.

Wenn sich ein intensiver ultrakurzer Lichtimpuls in einem nichtlinearen Medium ausbreitet, wird dabei ein zeitlich veränderlicher intensitätsabhängiger Brechungsindex induziert. Wenn die Intensität zeitabhängig ist, ist die selbstinduzierte Phase auch zeitabhängig. Der Kerr-Koeffizient n_1 wird folgendermaßen definiert:

$$n(\eta) = n_0 + n_1 I(\eta) \quad (2.55)$$

Für einen Impuls erhält man aus (2.54) $n_1 = 3\chi_{\text{Re}}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega) / 4\epsilon_0 c n_0^2$. Dabei bezeichnet hier n_0 den linearen Brechungsindex (bisher n bzw. n_n). n_1 bedingt eine Phasenverschiebung $\Delta\phi(\eta)$ beim Durchgang eines Impulses mit Trägerfrequenz ω_0 durch das Medium der Länge L von:

$$\Delta\phi(\eta) = \frac{\omega_0}{c} n_1 I(\eta) L \quad (2.56)$$

Die Phasenverschiebung in der langsam veränderlichen Impulseinhüllenden modifiziert die instantane Frequenz, die sich jetzt als $\omega(\eta) = \omega_0 + \Delta\omega(\eta)$ mit $\Delta\omega(\eta) = -(d/d\eta)\Delta\phi(\eta)$ schreiben läßt. Die Frequenzverschiebung ergibt sich aus:

$$\Delta\omega(\eta) = -\frac{\omega_0 n_1 L}{c} \frac{dI(\eta)}{d\eta} \quad (2.57)$$

Auf der ansteigenden Flanke des Impulses [$dI(\eta)/d\eta > 0$] werden die Frequenzen bei $n_1 > 0$ rotverschoben, während sie auf der fallenden Flanke [$dI(\eta)/d\eta < 0$] blauverschoben sind. Es entsteht daraus eine im allgemeinen Fall nichtlineare Frequenzverschiebung um ω_0 (Chirp), welche eine Verbreiterung des Spektrums verursacht.

Die spektrale Verbreiterung durch Selbst-(oder Kreuz-)Phasenmodulation reduziert die Umwandlungseffizienz in SFG oder DFG, da jeder Prozeß eine bestimmte spektrale Akzeptanz besitzt. In OPG/OPA kann die spektrale Verbreiterung des Pumpimpulses zu spektraler Verbreiterung der Signal- und Idlerimpulse führen (s. vorherigen Abschnitt). Eine größere spektrale Halbwertsbreite als $\Delta\nu_L = C/T$ führt auch zu stärkerem Einfluß der GVD, da Frequenzkomponenten innerhalb des Spektrums weiter voneinander entfernt sind. Das sind aber die einfachsten Effekte, die die Umwandlungseffizienz bei parametrischen Prozessen beeinflussen. Viel komplizierter zu analysieren ist die nichtlineare Phasenfehlانpassung in Drei-Photonen-Prozessen, die auch zu einer Reduzierung der Umwandlungseffizienz führen kann [DRE96].

Im Extremfall kann die Selbstphasenmodulation zu Kontinuum (Weißlichterzeugung) führen. In dieser Arbeit wird die Bestimmung von n_1 eines nichtlinearen Kristalls mittels der sogenannten z-Scan-Methode durchgeführt. Eine ausführliche Beschreibung dazu findet man in [SSW90]. Hier beschränken wir uns auf den Fall $\chi_{lm}^{(3)} = 0$. Bei dieser Methode wird die Transmissionsänderung durch eine kleine Blende, die nach der Probe im Fernfeld steht, gemessen, während die Probe entlang der z-Richtung (Ausbreitungsrichtung) eines fokussierten Gauß'schen Strahls durch den Fokus verschoben wird. Befindet sich eine Probe mit einer positiven n_1 weit entfernt vom Fokus, bleibt die Transmission durch die Blende wegen der niedrigen Intensität konstant. Mit der Verschiebung der Probe in die Nähe vom Fokus $z < 0$ (vor dem Fokus) nimmt die Intensität stark zu und die Intensitätsabhängigkeit der Brechzahl bewirkt einen positiven Linseneffekt. Dadurch verschiebt sich der Fokus in Richtung zu $z < 0$ und man erhält dann durch die Blende niedrigere Transmission aufgrund größerer Strahldivergenz als bei gewöhnlichem Fall. Bei $z > 0$ (nach dem Fokus) führt der positive Linseneffekt zur kleineren Divergenz, welche erhöhte Transmission bedeutet. Für Proben mit einer negativen n_1 ist der Verlauf der Transmission genau umgekehrt.

Zur Anpassung der gemessenen Daten wird der folgende Ausdruck für die Transmission τ verwendet, der im Grenzfall einer kleinen nichtlinearen Phasenänderung für eine kurze Probe ($L \ll n_0 z_R$) gilt [SSW90]:

$$\tau = 1 - \frac{4 \langle \Delta \Phi \rangle \zeta}{(\zeta^2 + 9)(\zeta^2 + 1)} \quad (2.58)$$

wobei $\langle \Delta \Phi \rangle$ eine über die Zeit integrierte axiale Phasenänderung bedeutet und $\zeta = z/z_R$ die normierte Translationskoordinate ist. Aus den Fit-Parametern können die mittlere Phasenänderung $\langle \Delta \Phi \rangle$ und die Rayleigh-Länge z_R hergeleitet werden. Eine grobe Abschätzung für $\langle \Delta \Phi \rangle$ liefert auch $\langle \Delta \Phi \rangle = 2.47 \Delta \tau_{p,v} (1-S)^{-1/4}$ [SSW90], wobei $\Delta \tau_{p,v}$ den Unterschied zwischen der maximalen und minimalen Transmission bedeutet und S die lineare Transmission durch die Blende bezeichnet. Die gefittete Länge z_R kann mit einer unabhängigen Messung der Gauß'schen Taille w_0 verglichen werden.

Die Kerr-Nichtlinearität ist gegeben durch:

$$n_1 = a \frac{\lambda w_0^2 T \langle \Delta \Phi \rangle}{L_{\text{eff}} \mathcal{E}_i} \quad (2.59)$$

Dabei ist \mathcal{E}_i die einfallende Impulsenergie \mathcal{E}_0 mit der Korrektur für die Reflexion auf der Eintrittsoberfläche R, also $\mathcal{E}_i = (1-R) \mathcal{E}_0$. Für kurze Proben ist die effektive Länge durch $L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha L)] / \alpha$ definiert mit dem linearen Absorptionskoeffizienten α . Die Konstante a ist 0.43 für sech^2 -Impulse und 0.38 für Gauß'sche Impulse [Sri96]. Für den Fall $L > n_0 z_R$ muß für L_{eff} neben der linearen Absorption auch die Abweichung von der Näherung für kurze Proben berücksichtigt werden. L_{eff} läßt sich dann durch folgende Beziehung darstellen [SEm97, SHS91, SSH91]:

$$L_{\text{eff}} = 2.706 n_0 z_R \frac{[(L / n_0 z_R + 1)^{1.44} - 1]}{[(L / n_0 z_R + 1)^{1.44} + 3.924]} \frac{[1 - \exp(-\alpha L)]}{\alpha L} \quad (2.60)$$

Man kann dann mit (2.59) n_1 für eine bestimmte Wellenlänge berechnen.

Die Zwei-Photonen-Absorption verursacht bei Frequenzkonversion zusätzliche Verluste und die Umwandlungseffizienz reduziert sich. Durch diese Zwei-Photonen-Absorption entsteht ein Übergang aus dem Grundzustand eines Mediums in den nächst höher liegenden angeregten Zustand durch gleichzeitige Absorption von zwei Photonen. Die zwei Photonen können entweder aus einem einzigen Laserimpuls stammen (gleiche Frequenz) oder aus zwei verschiedenen Impulsen bei zwei verschiedenen Frequenzen. Im folgenden wird nur der erste Fall betrachtet, da die Zwei-Photonen-Absorption bei parametrischen Prozessen in OPA und OPG hauptsächlich bei der intensivsten (Pump-)Welle eine Rolle spielt. Wenn sich Licht der Intensität I in einem Medium in z -Richtung ausbreitet, ist die Abnahme beim Durchgang durch das Medium beschrieben durch:

$$\frac{dI}{d\xi} = \alpha I - \beta_{\text{TP}} I^2 \quad (2.61)$$

Aus (2.54) erhält man den nichtlinearen Absorptionskoeffizienten $\beta_{\text{TP}} = 3\pi\chi_{\text{Im}}^{(3)}(-\omega; \omega, \omega, -\omega) / \epsilon_0 c n_0^2 \lambda$.

Für die experimentelle Bestimmung von β_{TP} wird zuerst die Netto-Transmission des einfallenden Lichtes durch das Medium unter Berücksichtigung der Fresnel-Reflexion auf den Oberflächen gemessen. Eine Integration über das räumliche Strahlprofil liefert für Gauß'sche Bündel [Srl96]:

$$\tau = \frac{(1-R)^2 \exp(-\alpha L)}{q_0} \ln(1+q_0) \quad (2.62)$$

mit $q_0 = \beta_{\text{TP}} (1-R) I_0 L_{\text{eff}}$ und $L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha L)] / \alpha$

wobei I_0 die einfallende axiale Spitzenintensität ist.

Für ultrakurze Lichtimpulse setzt man voraus, daß die Integrationszeit des Detektors im Vergleich zur Impulsdauer lang ist. Daher wird die Integrationsgrenze auf $\pm\infty$ gesetzt. Dann ergibt sich bei Gauß'scher zeitlicher Verteilung der Impulsintensität für die Transmission:

$$\tau = \frac{\mathcal{E}_t}{\mathcal{E}_0} = \frac{(1-R)^2 \exp(-\alpha L)}{\sqrt{\pi} q_0} \int_{-\infty}^{\infty} \ln[1 + q_0 \exp(-\eta'^2)] d\eta' \quad (2.63)$$

wobei \mathbf{E}_0 und \mathbf{E}_t die einfallenden und transmittierten Energien sind und $\eta' = 2\sqrt{\ln 2} \eta / T$ mit T als FWHM normiert ist. Wenn $q_0 < 1$ erfüllt ist, kann (2.63) in einer Summenform vereinfacht dargestellt werden:

$$\tau = (1 - R)^2 \exp(-\alpha L) \sum_{m=0}^{\infty} (-1)^m \frac{(q_0)^m}{(m+1)^{3/2}} \quad (2.64)$$

Durch die Gleichungen (2.63) und (2.64) können die experimentell bestimmten intensitätsabhängigen Transmissionen gefittet werden, wodurch die Bestimmung von β_{TP} möglich ist.

Die Gl. (2.54) sind für ebene Wellen gültig, und räumliche Effekte in der transversalen Richtung bleiben unberücksichtigt. $\chi_{Re}^{(3)}$ und n_I führen aber auch zu Modifizierung des transversalen Strahlprofils. Selbstfokussierung, Defokussierung und Kanalisierung gehören dazu. Gerade diese Effekte werden bei der z-Scan-Methode zur Messung von n_I verwendet. Bei relativ kurzen Proben findet aber keine wesentliche Veränderung des Strahlprofils innerhalb der Probe statt. Im allgemeinen Fall (langes Medium) dagegen kann man eine kritische Leistung für das sogenannte Selbsttrapping oder die Selbstkanalisierung ($n_I > 0$) als:

$$P_{cr} = \frac{\lambda^2}{8\pi n_0 n_I} \quad (2.65)$$

definieren. Wenn diese Leistung überschritten wird, findet Selbstfokussierung statt und zwar nach einer charakteristischen Länge [Srl96]:

$$L_{SF} = \frac{\pi w_0^2 / \lambda}{(P / P_{cr} - 1)^{1/2}} \quad (2.66)$$

Die Formeln (2.65) und (2.66) sind für Gauß'sche Bündel und kontinuierliche Wellen in der sogenannten paraxialen Näherung gültig. Im nichtstationären Fall ist die analytische Betrachtung viel komplizierter, gerade dann sind diese Effekte aber stärker ausgeprägt, da sie instantan passieren und von der Impulsintensität abhängig sind. Selbstfokussierung kann zu katastrophaler Erhöhung der Intensität führen und letztendlich den Kristall zerstören. Die

Erhöhung der Intensität führt aber sofort zu Selbstphasenmodulation und der Impuls wird durch die GVD verlängert. Damit kann in bestimmten Fällen die katastrophale Selbstfokussierung vermieden werden [CPv92]. Als Kriterium für alle n_1 -Effekte wird oft das sogenannte B-Integral verwendet:

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 \int_0^L I_0(\xi, \eta) d\xi \quad (2.67)$$

Die Bedingung $B \leq 3-5$ muß für die axiale Spitzenintensität $I_0(\eta = 0) \equiv I_m$ erfüllt werden, um mögliche nichtlineare Verzerrungseffekte durch n_1 zu vermeiden.

2.7. Fazit

Unter Berücksichtigung der bisher erläuterten Effekte werden die nichtlinearen Kristalle für die Frequenzumwandlung im fs-Regime mittels parametrischer Prozesse zweiter Ordnung ausgewählt. Die Kristalle sollten folgende Anforderungen erfüllen:

- phasenanpaßbar im gewünschten Spektralbereich,
- hohe effektive Nichtlinearität,
- hohe optische und chemische Belastbarkeit (nicht hygroskopisch),
- hohe Transmission aller an der Erzeugung beteiligter Impulse,
- geringes räumliches Auseinanderlaufen der Strahlen aufgrund der Doppelbrechung,
- keine Zwei-Photonen-Absorption und kleine Kerr-Nichtlinearität,
- große Winkelakzeptanz und mögliche Abstimmung durch die Temperatur,
- günstige (geringe) GVM.

Reale Strahlen sind Gauß'sche Bündel, bei denen die radiale und z-Verteilung der Intensität durch die sogenannte effektive fokale Länge $L_F = \pi z_R$ berücksichtigt werden kann. Außerdem ist immer mit geringen Verlusten durch Absorption in den Kristallen zu rechnen. Diese Verluste, L_F und L_p können gleichzeitig theoretisch berücksichtigt werden und es existieren analytische Formeln für die Umwandlungseffizienz in der „fixed-field“-Näherung bei SFG bzw. DFG [Srl96]. Wenn aber nur die radiale Verteilung eine Rolle spielt (d.h. $L_F \gg L$) und die Verluste sowie die Doppelbrechung vernachlässigt werden können, kann man die Formeln (2.17) und (2.20) trivial verallgemeinern, in dem man über die radiale Verteilung der

Intensität integriert und die Effizienzen η_e durch die Leistungen $P = \iint_{x,y} I \, dx dy$ bzw. durch die Energien $\mathcal{E} = \int P \, d\eta$ definiert. Die Bedingung $L_F \gg L$ kann im fs-Regime durch Anwendung von unfokussierten Strahlen oder kurzen Kristallen meist erfüllt werden.

Eine hohe Zerstörungsschwelle des Kristalls ist im fs-Betrieb sehr erwünscht, da die Spitzenintensitäten in OPA's und OPG's oft über 100 GW/cm^2 hinausgehen. Im allgemeinen werden im fs-Regime wegen der GVM kurze Kristalle verwendet, wodurch man auch hohe Transmission und reduzierte Zwei-Photonen-Absorption und einen geringeren Einfluß des Kerr-Effektes erwartet. Um der Zwei-Photonen-Absorption, die durch intensive ultrakurze Impulse hervorgerufen wird, möglichst zu entgehen, ist die Auswahl eines Kristalls mit geeigneter Bandkante besonders wichtig.

Eine extrem wichtige Voraussetzung für die hohe Umwandlungseffizienz im fs-Regime ist aber vor allem eine geringe GVM, da manche der bisher genannten Forderungen nicht immer erfüllt werden können, aber zum Teil durch größere L_{GVM} ausgeglichen werden können. Große GVM limitiert die Kristalllänge und bei gegebener d_{eff} kann diese nur mit erhöhter Intensität kompensiert werden, was zu unerwünschten intensitätsabhängigen Prozessen führen kann. Die kleine GVM führt weiterhin zu großen spektralen Akzeptanzen und Bandbreiten, welche Impulsverkürzung ermöglichen. Diese Situation ist erwünscht, aber die Bandbreite muß trotzdem kontrollierbar bleiben, da andererseits immer die Erzeugung von Fourier-limitierten Impulsen gestrebt wird, weil dann für Anwendungen eine optimale Kombination der zeitlichen und spektralen Auflösung zur Verfügung steht.

Bei der Auswahl der Kristalle ist auch die hohe effektive Nichtlinearität d_{eff} wichtig, die von der Phasenanpassungskonfiguration (Polarisationen, Ausbreitungsrichtung) abhängig ist. In Drei-Photonen-Prozessen kann normalerweise die GVD gegenüber der GVM vernachlässigt werden ($L_{\text{GVD}} \gg L_{\text{GVM}}$). Nichtkritische Phasenanpassung ist immer erwünscht, da die Winkelakzeptanz dann wesentlich größer wird und $L_p = \infty$ gilt.

Eine Temperaturabstimmung (wenn möglich) ist auch bequemer, da sich die Strahlrichtungen bei der Abstimmung nicht verändern.

3. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse um 200 nm und im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich

3.1. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse bei 82 MHz durch Generation der vierten Harmonischen (FHG) eines kontinuierlich modensynchronisierten Ti:Saphirlasers

Modensynchronisierte Ti:Saphirlaser bieten heutzutage in Zusammenhang mit nichtlinearer Frequenzkonversion in optischen Kristallen die einzige Möglichkeit kurze Lichtimpulse um 200 nm mit einer Repetitionsrate im 100 MHz-Bereich zu erzeugen. Mit der Farbstofflasertechnologie, die in den 80-er Jahren verbreitet war, konnten ultrakurze Lichtimpulse bei 210 nm (dritte Harmonische, TH) nur für diagnostische Zwecke (Charakterisierung der zweiten Harmonischen, SH) generiert werden. Es konnte weder eine meßbare mittlere Leistung, noch die Impulsparameter der TH in diesen Experimenten berichtet werden [EWC88]. Arbeiten aus den 90-er Jahren, in denen die Erzeugung der vierten Harmonischen (FH) um 200 nm beschrieben wurde, basieren hauptsächlich auf ps-Ti:Saphirlasern, da dies dank der geringeren Einflüsse der GVM und des zeitlichen Überlaps in den verschiedenen Konversionsstufen wesentlich einfacher als im fs-Regime ist. Obwohl die Ausgangsleistung in diesen Arbeiten einige mW bei einer Repetitionsrate von 82 MHz betrug, konnte die Impulsdauer nicht vermessen werden [NaB91, NaB92]. In der einzigen uns bekannten Publikation im fs-Regime wurde andererseits nur eine Wellenlänge von 205 nm berichtet: Die Ausgangsleistung war aber nicht meßbar und die Impulscharakterisierung entsprechend nicht möglich [RCH94].

In der vorliegenden Arbeit wird zum ersten mal die Erzeugung abstimmbarer fs-Lichtimpulse mit mW mittlerer Leistung im Spektralbereich um 200 nm durch Generation der vierten Harmonischen (FHG) eines hochrepetierenden fs-Ti:Saphirlasers in BBO dargestellt. Die Phasenanpassung wird dabei durch Drehen des Kristalls (kritische Phasenanpassung) erreicht. Erstmals werden anhand der Messungen von Spektren und Impulsdauern die zeitlichen und spektralen Eigenschaften der generierten fs-Lichtimpulse um 200 nm charakterisiert.

3.1.1. Kristallauswahl und wichtige Kristallparameter

Obwohl die untere Transparenzgrenze vieler nichtlinearer Kristalle im Spektralbereich unterhalb von 200 nm liegt (Tab. 3.1), existieren aufgrund der Phasenanpaßbarkeit nur wenige Kristalle, die für die FHG eines Ti:Saphirlasers in Frage kommen.

Außer bei einigen nichtlinearen Kristallen wie z. B. BBO, SBBO ($\text{Sr}_2\text{Be}_2\text{B}_2\text{O}_7$) und KBBF ($\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$), bei denen die minimale FHG-Wellenlänge durch die UV-Absorptionskante bestimmt wird, ist die Doppelbrechung die wichtigste Größe, die die minimal erreichbare SHG- und FHG-Wellenlänge bestimmt. Da die Typ I-Phasenanpassung immer die SFG kürzerer Wellenlängen als Typ II-Phasenanpassung erlaubt, werden in Tab. 3.1 nur d_{eff} 's der jeweiligen Kristalle für diesen Wechselwirkungstyp aufgelistet. Die Eigenschaften der Kristalle SBBO und KBBF sind nicht in Tab. 3.1 dargestellt, da diese Materialien wegen großer technischer Schwierigkeiten bei der Züchtung und Oberflächenbearbeitung noch nicht in ausreichender Qualität verfügbar sind. Näheres zu diesen zwei Kristallen findet man in der Arbeit von C. Chen et. al. [CWX95]. Ansonsten sind alle andere Borat-Kristalle, für die die Sellmeier-Gleichungen bekannt sind und die unterhalb 200 nm transparent sind, in der Tab. 3.1 zusammengefaßt. Außer CBO sind alle Kristalle aus der Tabelle kommerziell verfügbar.

Die minimale SHG-Wellenlänge in Tab. 3.1 ist für die Typ I-Frequenzverdopplung bestimmt und die minimale FHG-Wellenlänge für die Typ I-Mischung zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen. Die Berechnung der minimalen SFG-Wellenlänge setzt keine Beziehung zwischen λ_1 und λ_2 voraus, und λ_3 wird durch die Doppelbrechung bzw. die beiden Absorptionskanten bestimmt, wobei in KDP und ADP die IR-Kante und in den Borat-Kristallen die UV-Kante entscheidend ist. Die Relation zwischen den dielektrischen (XYZ) und den kristallographischen (abc) Achsen für zweiachsige Kristalle ist auch in Tab. 3.1 definiert, wobei d_{eff} in der XYZ-Darstellung, die d-Tensorkomponenten aber in der abc-Darstellung angegeben sind.

Nichtlineare Kristalle, Achsen, Klasse	Transparenzbereich [μm]	Effektive Nichtlinearität d_{eff} (Typ-I Wechselwirkung) [Referenz für Sellmeier Koeff.]	Nichtlineare Koeffizient [pm/V]	Minimale SHG, FHG und SFG Wellenlängen, erreichbar bei
KDP (KH_2PO_4) negativ-einachsige, $\bar{4}2\text{m}$	0.174-1.57	$d_{\text{ooe}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$ [BGA82]	$d_{36}=0.39$	258.5 nm 228.3 nm 181 nm $\theta=90^\circ, \varphi=45^\circ, d_{\text{eff}}=d_{\text{max}}$
ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$) negativ-einachsige, $\bar{4}2\text{m}$	0.18-1.53	$d_{\text{ooe}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$ [Zer64]	$d_{36}=0.47$	262.3 nm 233.4 nm 190 nm $\theta=90^\circ, \varphi=45^\circ, d_{\text{eff}}=d_{\text{max}}$
BBO ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$) negativ-einachsige, 3m	0.189-3.5	$d_{\text{ooe}}=d_{31}\sin\theta-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$ [Kat86]	$d_{22}=(+/-)2.3$ $d_{31}=(-/+)0.16$	204.8 nm 189 nm 189 nm $\theta=90^\circ, \varphi=30^\circ, d_{\text{eff}}=d_{31}$
LBO (LiB_3O_5) zweiachsige, mm2 a,b,c:X,Z,-Y; $n_x < n_y < n_z$	0.160-3.2	$d_{\text{ooe}}=d_{32}\cos\varphi$ (X-Y) [Kat94]	$d_{32}=0.85$	277 nm 242.5 nm 160 nm $\theta=90^\circ, \varphi=90^\circ, d_{\text{eff}}=0.$
CBO (CsB_3O_5) zweiachsige, 222 a,b,c:Y,Z,X; $n_x < n_y < n_z$	0.167-3.0	$d_{\text{eeo}}=d_{14}\sin 2\theta$ (Y-Z) [Kat95]	$d_{14}=1.08$	272.8 nm 236.3 nm 167 nm $\theta=90^\circ, \varphi=90^\circ, d_{\text{eff}}=0.$
CLBO ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$) negativ-einachsige, $\bar{4}2\text{m}$	0.18-2.75	$d_{\text{ooe}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$ [UnK97], [UYK99]	$d_{36}=0.86$	236.7 nm 211.7 nm 180 nm $\theta=90^\circ, \varphi=45^\circ, d_{\text{eff}}=d_{\text{max}}$
KB5 ($\text{KB}_5\text{O}_8 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) zweiachsige, mm2 a,b,c:Z,-Y,X; $n_x < n_y < n_z$	0.162-1.5	$d_{\text{ooe}}=d_{31}\sin\varphi$ (X-Y) $d_{\text{eeo}}=d_{31}\sin^2\theta+d_{32}\cos^2\theta$ (Y-Z) [UnK96]	$d_{31}=0.04$ $d_{32}=0.003$	217 nm 194.8 nm 162 nm $\theta=90^\circ, \varphi=90^\circ, d_{\text{eff}}=d_{\text{max}}$
LB4 ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) negativ-einachsige, 4mm	0.16-3.3	$d_{\text{ooe}}=d_{31}\sin\theta$ [SKU98]	$d_{31}=0.15$	243.8 nm 218.3 nm 160 nm $\theta=90^\circ, d_{\text{eff}}=d_{\text{max}}$

Tab. 3.1: Eigenschaften nichtlinearer Kristalle, die um 200 nm transparent und phasenangepaßt sind.

Geeignete Kristalle für die Generation der zweiten (SHG) und dritten (THG) Harmonischen

Mit den weit verbreiteten nichtlinearen Kristallen KDP, BBO, LBO und LiIO_3 kann effiziente Phasenanpassung für die SHG eines Ti:Saphirlasers erreicht werden. Tab. 3.2 zeigt die Kristallparameter für Typ I-Phasenanpassung in diesen Kristallen bei einer Grundwelle von $\lambda_\omega = \lambda_1 = \lambda_2 = 800$ nm. Die Typ I-Wechselwirkung in KDP, BBO und LBO weist eine größere d_{eff} als die Typ II-Wechselwirkung auf. LiIO_3 -Kristall, der aufgrund seiner Symmetrie nichtverschwindende d_{eff} nur für oo-e Wechselwirkung besitzt, zeigt von den vier Kristallen die größte effektive Nichtlinearität ($d_{\text{eff}} = d_{31} \sin\theta$ mit $d_{31} = 4.4$ pm/V). Sie kann aber nicht die wesentlich größere GVM (gegenüber BBO) kompensieren. LBO hat eine noch geringere GVM als BBO, was für fs-Anwendungen zum Teil die kleinere Nichtlinearität kompensiert. Mit optimierten Kristalllängen sind also beide, BBO und LBO, für fs-SHG bei 800 nm bestens geeignet. LBO hat aber speziell bei unverstärkten Lichtimpulsen den Vorteil, daß die größere Winkelakzeptanz (s. Tab. 3.2) wesentlich stärkere Fokussierung erlaubt. Dazu kommt der kleinere ρ -Wert, der nicht nur zu einem schwächer ausgeprägten Einfluß des räumlichen Walk-off auf die Wechselwirkungslänge führt, sondern auch ein rundes SH-Strahlprofil ermöglicht. Obwohl für KDP die GVM am geringsten ist, kann dieser Kristall wegen seiner geringeren d_{eff} nicht mit BBO und LBO konkurrieren. LiIO_3 andererseits ist wegen der Zerstörungsgefahr nicht für stark fokussierte fs-Impulse bei 800 nm geeignet, da hier z. B. Zwei-Photonen-Absorption bei $\lambda_{2\omega} = \lambda_3 = 400$ nm stattfinden kann. Unsere Entscheidung für die SHG mit LBO steht im Gegensatz zur Anwendung von BBO mit verstärkten fs-Ti:Saphir-Laserimpulsen in [RKN93]. Bei unverstärkten fs-Impulsen, für die eine starke Fokussierung unvermeidbar ist, spielt aber die Winkelakzeptanz und das Strahlprofil (besonders wenn weitere Frequenzkonversion erfolgt) eine wesentlich größere Rolle.

SHG $\lambda_\omega = 800$ nm / Kristalltyp	KDP	BBO	LBO	LiIO_3
θ bzw. φ [°]	44	29	31.7	42
$\Delta_{31} = \Delta_{32}$ [fs/mm]	81	193	124	500
d_{eff} [pm/V]	0.27	2.1	0.72	2.9
$\Delta\theta_L$ bzw. $\Delta\varphi_L$ [°mm]	0.46	0.18	0.77	0.16
ρ [°]	1.69	3.87	0.94	4.98

Tab. 3.2: Geeignete Kristalle für SHG eines Ti:Saphirlasers durchstimmbare um 800 nm.

Für die Generation der dritten Harmonischen (THG) bei 800 nm kann man KDP, BBO und LBO (LiIO_3 ist nicht mehr transparent) verwenden (s. Tab. 3.3). Nur in BBO sind aber beide (oo-e und eo-e) Wechselwirkungstypen möglich, wobei $d_{\text{oe}}=d_{22}\cos^2\theta\cos3\varphi$ ist. Letztere hat den Vorteil, daß die Polarisation der SH-Welle nach der SHG-Stufe nicht zusätzlich gedreht werden müßte. Dieses Schema wurde mit verstärkten fs-Laserimpulsen früher realisiert [RKN93]. Mit unverstärkten Impulsen ist die höhere d_{eff} und die kleinere GVM bei Typ I-Wechselwirkung in BBO eine entscheidende Voraussetzung für eine höhere Umwandlungseffizienz. Die Typ I-Wechselwirkung in KDP und LBO weist zwar kleinere GVM auf, dies kann aber nicht die wesentlich geringere Nichtlinearität d_{eff} kompensieren. Die Wechselwirkungslänge bei der THG wird hauptsächlich durch Δ_{21} bestimmt und räumliche Effekte (Walk-off) haben einen schwächeren Einfluß, da die optimalen Kristalllängen aufgrund der größeren GVM wesentlich kürzer sind als die bei SHG.

THG $\lambda_0=800$ nm / Kristalltyp	KDP	BBO I	BBO II	LBO
θ bzw. φ [°]	66.7	44.2	55.4	77.8
Δ_{21} [fs/mm]	167	327	609	211
Δ_{31} [fs/mm]	373	737	875	449
d_{eff} [pm/V]	0.36	1.76	0.74	0.18

Tab. 3.3: Geeignete Kristalle für THG eines Ti:Saphirlasers durchstimmbare um 800 nm, hier $\lambda_1=\lambda_0$, $\lambda_2=\lambda_{2\omega}$, $\lambda_3=\lambda_{3\omega}$.

Geeignete Kristalle für die Generation der vierten Harmonischen (FHG)

Wie bereits erwähnt, ist die direkte Verdopplung der zweiten Harmonischen (also SHG von SHG) bis 204.8 nm (Tab. 3.1) in Typ I-BBO möglich. In diesem Fall, der bei $\theta=90^\circ$ auftritt, ist $d_{\text{eff}}=d_{31}=0.16$ pm/V \ll $d_{22}=2.3$ pm/V. Die Frequenzvervierfachung durch SFG zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen erlaubt nicht nur die FHG von Wellenlängen kürzer als 204.8 nm, sondern die entsprechende d_{eff} ist auch wesentlich größer (Tab. 3.4). So ergibt sich z. B. bei der SHG von der SHG für eine FHG-Wellenlänge von 205 nm $\theta=87^\circ$, was nur einer $d_{\text{eff}}=0.28$ pm/V entspricht. Auch wenn man berücksichtigt, daß unterschiedliche Leistungen in beiden Fällen zur Verfügung stehen würden, ist der Unterschied zur SFG enorm (vgl. Tab. 3.4).

Der gleiche Typ I SFG-Prozeß ist in noch einem anderen kommerziell verfügbaren Kristall aus Tab. 3.1 phasenangepaßt: KB5-Kristall, der aufgrund der tiefer liegenden Bandkante

kleinere GVM als BBO aufweist. Allerdings ist aber die d_{eff} in KB5 wesentlich kleiner als in BBO und zusätzlich ist dieses Material auch deutlich hygroskopischer. Deshalb gibt es zu BBO für die FHG eigentlich keine Alternative.

FHG $\lambda_{\omega}=800$ nm / Kristalltyp	BBO	KB5
θ [°]	64.8	73.5
Δ_{21} [fs/mm]	1150	539
Δ_{31} [fs/mm]	2050	952
d_{eff} [pm/V]	1.12	0.04

Tab. 3.4: Geeignete Kristalle für FHG eines Ti:Saphirlasers um 800 nm durch SFG, hier $\lambda_1=\lambda_{\omega}$, $\lambda_2=\lambda_{3\omega}$, $\lambda_3=\lambda_{4\omega}$. Bei KB5 ist die Wechselwirkung in der YZ-Ebene (ee-o) ausgewählt, da die oo-e Phasen Anpassung in der XY-Ebene kleinere Durchstimmbarkeit bei einem festen Kristallschnitt bedingt.

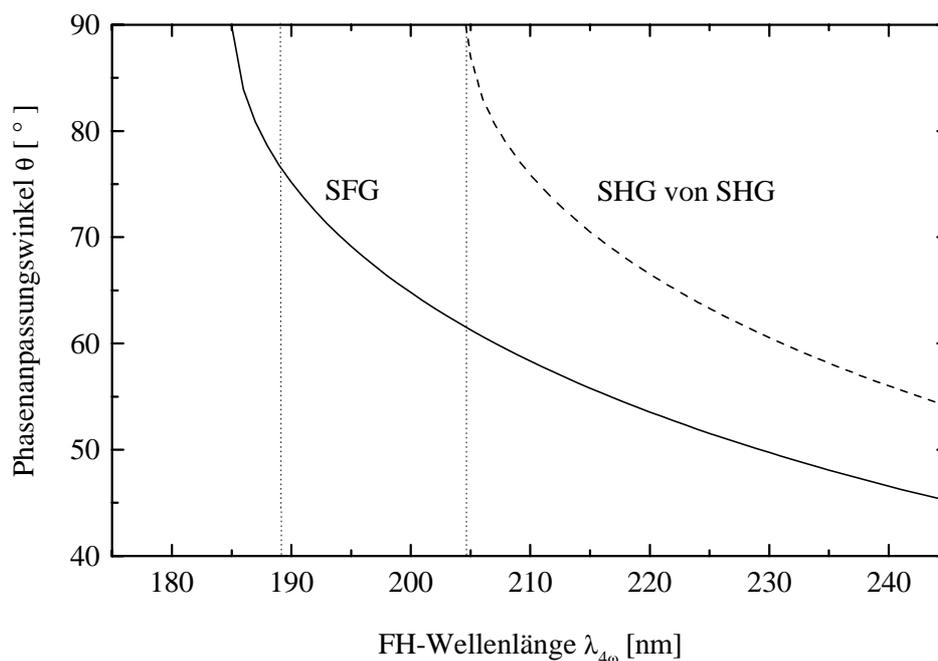


Abb. 3.1: Phasen Anpassungskurven für die direkte Verdopplung der zweiten Harmonischen (SHG von SHG) und für die SFG zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen in BBO, Typ I-(oo-e)-Wechselwirkung. (.....: die minimal erreichbaren FH-Wellenlängen).

Im Prinzip ist die FHG durch SFG in BBO bis zu 185 nm phasen anpaßbar. Die Absorptionskante des BBO-Kristalls limitiert aber die FH-Wellenlänge auf 189 nm. Anhand der Abb. 3.1 werden die möglichen Phasen Anpassungen in beiden Prozessen nochmals verglichen. Es muß beachtet werden, daß der FHG-Kristall zur Erzeugung von sub-200 fs-

Lichtimpulsen aufgrund des relativ großen Unterschiedes der Gruppengeschwindigkeiten zwischen den eingestrahlten Lichtimpulsen möglichst kurz gewählt werden muß. In Abb. 3.2 sind die GVM's für die Typ I-Wechselwirkung zwischen den einzelnen Impulsen bei FHG durch SFG in BBO in Abhängigkeit von der FH-Wellenlänge dargestellt.

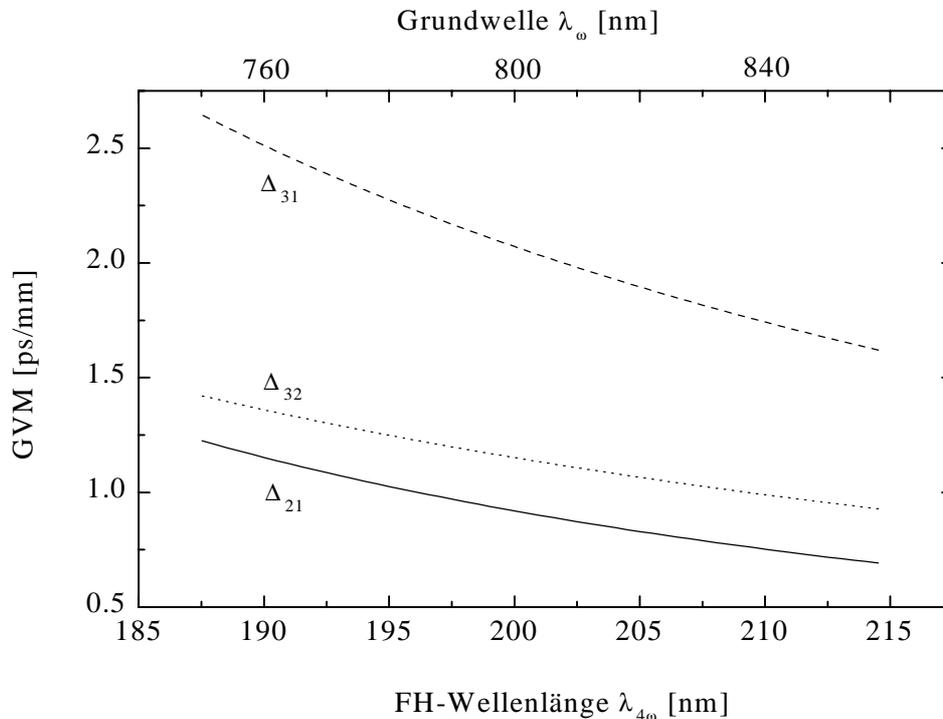


Abb. 3.2: GVM zwischen den drei wechselwirkenden Impulsen bei der FHG durch SFG in Typ I-BBO, aufgetragen in Abhängigkeit von der erzeugten FH-Wellenlänge.

In den nächsten Abschnitten werden die experimentelle Anordnung und die Ergebnisse präsentiert, wobei der Schwerpunkt auf der Erzeugung der abstimmbaren FH mit BBO liegt.

3.1.2. Experimentelle Anordnung

Der in unseren Experimenten verwendete Ti:Saphirlaser ist ein kommerzieller modensynchronisierter Laser von Spectra-Physics („Tsunami“) mit einer maximalen mittleren Ausgangsleistung von 2 W bei einer Repetitionsrate von 82 MHz. Er hat einen Abstimmbereich zwischen 760 und 845 nm mit einer Impulsdauer von 85 fs für sech²-Impulsform. Das Impulsdauer/Bandbreiteprodukt von $T_{\omega}\Delta\nu\approx 0.32$ entspricht nahezu fourierlimitierten Impulsen.

Um optimale Umwandlungseffizienzen bei den Frequenzmischungen zu erzielen, ist es erforderlich, daß sich die miteinander wechselwirkenden Lichtimpulse sowohl zeitlich als auch räumlich exakt überlappen. Im Vergleich zu verstärkten Lasersystemen [RKN93] ist die

FHG bei einem 82 MHz fs-Laser wesentlich schwerer zu realisieren, weil die Strahlen stark in die Kristalle fokussiert werden müssen, um vergleichbare Intensitäten und damit Umwandlungseffizienzen zu erreichen.

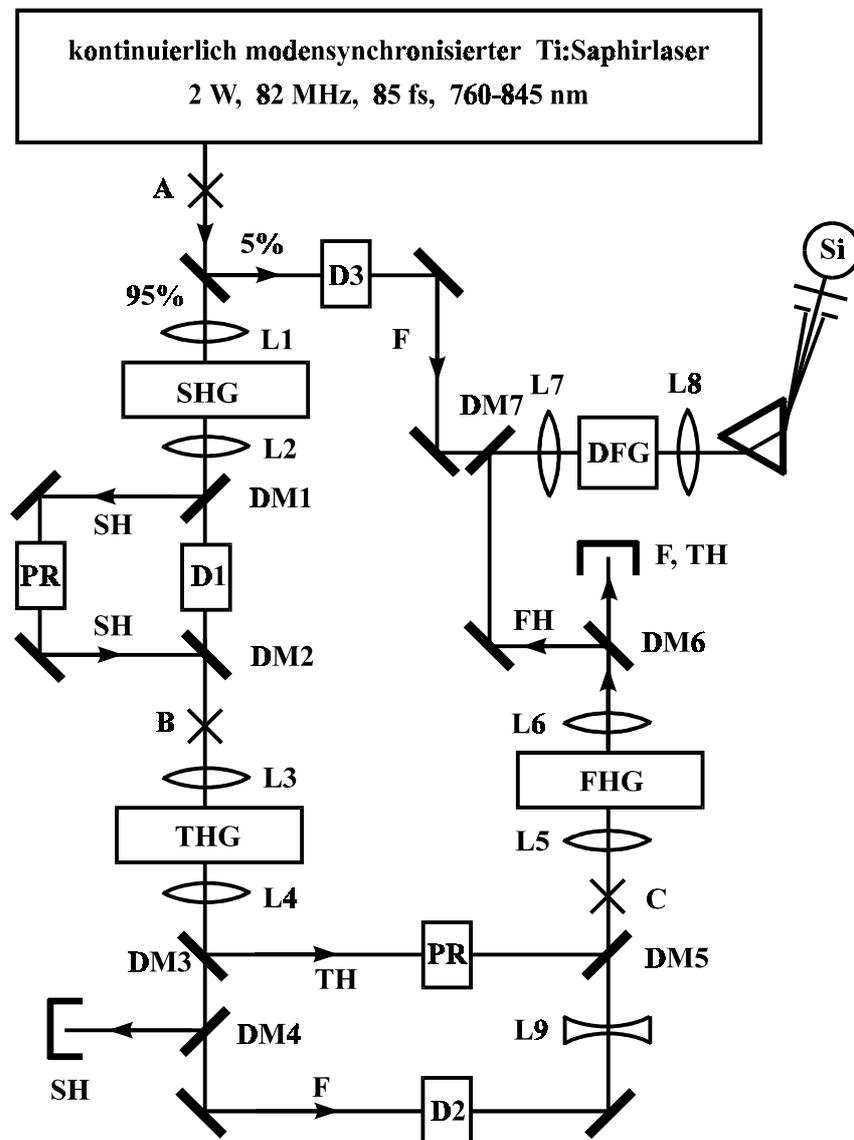


Abb. 3.3: Experimenteller Aufbau zur FHG eines hochrepetierenden fs-Ti:Saphirlasers. **F**: Grundwelle, **SHG**: Frequenzverdopplung in LBO ($L=1.5$ mm, $\varphi=32^\circ$), **THG**: Frequenzverdreifung in BBO ($L=0.3$ mm, $\theta=44.3^\circ$), **FHG**: Frequenzvervierfachung in BBO ($L=0.1$ oder 0.3 mm, $\theta=65^\circ$), **DFG**: Differenzfrequenzerzeugung in BBO zur Messung der Impulsdauer der vierten Harmonischen ($L=0.04$ mm, $\theta=65^\circ$), **D1-D3**: Verzögerungsstrecken, **PR**: Drehung der Polarisation, **DM1-DM7**: dichroitische Spiegel, **Si**: Si-Photodiode ohne Fenster, **L1-L9**: Linsen mit Brennweiten von $f_{L1}=4$ cm, $f_{L2}=8$ cm, $f_{L3}=6$ cm, $f_{L4}-f_{L8}=5$ cm, $f_{L9}=-20$ cm, **A-C**: Meßorte der mittleren Leistungen. Alle Kristalle sind Typ I, d. h. $\varphi=30^\circ$ in BBO und $\theta=90^\circ$ in LBO.

Um die durchstimmbare FH um 200 nm mittels kaskadierter SFG zu erzeugen, wird zuerst die Erzeugung der zweiten und dritten Harmonischen benötigt. Der gesamte experimentelle Aufbau ist in Abb. 3.3 gezeigt.

Die Grundwelle (F) aus dem Ti:Saphir-Oszillator ist senkrecht zur Tischebene polarisiert und wird mit einem Achromaten L1 in den ersten SHG-Kristall (LBO) für die Frequenzverdopplung fokussiert. Die erzeugte zweite Harmonische ist somit horizontal zur Tischebene bzw. senkrecht zur verbleibenden Grundwelle polarisiert. Nach Rekollimierung beider Strahlen mittels eines zweiten Achromaten L2 werden die Grundwelle und die zweite Harmonische mit einem dichroitischen Spiegel DM1, der die zweite Harmonische reflektiert und die Grundwelle transmittiert, getrennt.

Die Polarisation der zweiten Harmonischen wird mithilfe von vier Spiegeln (PR) um 90° , also parallel zur Grundwelle gedreht. Die zweite Harmonische wird dann am nächsten dichroitischen Spiegel DM2 mit der Grundwelle vereinigt, so daß kollineare Typ I-Wechselwirkung zur nächsten Frequenzmischung (THG) möglich ist. Mittels der ersten Verzögerungsstrecke D1 kann eine optimale zeitliche Überlappung zwischen der Grundwelle und der zweiten Harmonischen im THG-Kristall erreicht werden.

Die beiden Strahlen werden dann mittels eines weiteren Achromaten L3 in den THG-Kristall fokussiert. Danach werden die verbleibenden Grundwelle F und SH sowie die generierte TH mit einer UV-Quarzlinse L4 wieder rekollimiert. Der dichroitische Spiegel DM3 reflektiert nur die dritte Harmonische. Die zweite Harmonische wird an dem nächsten dichroitischen Spiegel DM4 reflektiert, so daß nur die Grundwelle über die Verzögerungsstrecke D2 laufen kann. Durch die Drehung der Polarisation der dritten Harmonischen nach dem gleichen Prinzip, wie nach der SHG, hat der TH-Strahl für die FHG die gleiche Polarisation wie die Grundwelle.

Bevor die Grundwelle F und die dritte Harmonische TH mit einer UV-Quarzlinse L5 in den FHG-Kristall fokussiert werden, wird der Strahlquerschnitt der Grundwelle mit einer negativen Linse L9 aufgeweitet, um die unterschiedlichen Durchmesser und Fokusslängen beider Strahlen anzupassen. Diese Korrektur trägt zur Erhöhung der Umwandlungseffizienz bei.

Generell sind alle Kristallängen in Abb. 3.3 länger als die entsprechenden GVM-Wechselwirkungslängen, bestimmt durch Formel (2.48). Der Grund dafür ist, daß in jedem weiteren Schritt mit der Grundwelle gemischt wird, die sich ihrerseits selbst durch die hohe Umwandlungseffizienzen in jeder Stufe verlängern hat. Für die SHG z. B. kann man mit Formel (2.48) eine GVM-Wechselwirkungslänge von $L_{GVM} \approx 0.7 \text{ mm}$ bei $\lambda_\omega = 800 \text{ nm}$

abschätzen. $L=1.5 \text{ mm} > L_{\text{GVM}}$ führt hier zu längeren SH-Impulsen und erhöht gleichzeitig die Umwandlungseffizienz, was auch eine Verlängerung der Grundwelle verursacht. Damit hat man bessere Voraussetzungen für die nächste Stufe geschaffen, da für die optimale THG die Anzahl der SH-Photonen möglichst genauso groß wie die Zahl der F-Photonen sein müßte. Im allgemeinen kann man also sagen, daß die kürzere Impulsdauer für das Erreichen einer höheren Umwandlungseffizienz geopfert werden muß. Räumliche Walk-off-Effekte dürfen in keiner Stufe eine Rolle spielen, da die entsprechende Walk-off-Wechselwirkungslänge größer als L ist.

Die vierte Harmonische FH wird mit einer weiteren UV-Quarzlinse L6 rekollimiert und anschließend von der Grundwelle und der dritten Harmonischen über einen dichroitischen Spiegel DM6 getrennt. Um die Impulsdauer der durchstimmbaren vierten Harmonischen mittels DFG mit der Grundwelle messen zu können, wird die vierte Harmonische mit einem Teil der Grundwelle, der vor der SHG-Stufe ausgekoppelt wird, gemischt (Abb. 3.3). Die zeitliche Synchronisation zwischen den beiden Impulsen wird über die Verzögerungsstrecke D3 erreicht. Hier wird wieder die Typ I-Wechselwirkung, die dem inversen Prozeß der FHG entspricht, benutzt. Als DFG-Kristall dient ein 40 μm kurzer BBO, der auf ein Quarzsubstrat geklebt ist.

Nach der DFG wird das Kreuzkorrelationssignal, dessen Wellenlänge der TH entspricht, rekollimiert und mit einem UV-Prisma von den restlichen Strahlen getrennt. Vor der Detektion des DFG-Signals mit einer Si-Photodiode über Lock-In-Technik werden zusätzlich mit geeigneten Farbglasfiltern die unerwünschten Wellenlängen unterdrückt.

Zur Messung der spektralen Eigenschaften wird die vierte Harmonische vor DM7 mit einem Metallspiegel ausgekoppelt. Die Spektren werden mit einem 0.2-m VUV-Monochromator (McPherson, Modell 234/302) mit einem abbildenden Gitter (1200 Linien/mm) aufgenommen. Als Detektor wird eine UV-empfindliche CCD-Matrix mit Vielkanalanalysator (OMA; Spectroscopy Instruments, Modell ST-130/TE-CCD-576) eingesetzt. Die spektrale Auflösung hierbei beträgt 0.06 nm pro Kanal.

3.1.3. Ergebnisse und Diskussion

Die mittlere Ausgangsleistung der Grundwelle aus dem Ti:Saphir-Oszillator betrug 1.9 W (Meßpunkt A, Abb. 3.3). Davon wurde etwa 5 % für die spätere DFG zur FH-Impulsdauermessung ausgekoppelt. Die maximale mittlere Leistung der generierten zweiten Harmonischen von 625 mW wurde nach Rekollimation der Strahlen vor der THG-Stufe gemessen (Meßpunkt B, Abb. 3.3).

Die gemessene Leistung der zweiten Harmonischen entspricht einer Umwandlungseffizienz von $>30\%$. Die mittlere Leistung der verbleibenden Grundwelle und ihre Impulsdauer (Autokorrelationsmessung) nach diesem Umwandlungsprozeß betragen 825 mW und 100 fs. Die Verbreiterung der Impulsdauer der Grundwelle ist auf die relativ hohe Umwandlungseffizienz und nicht auf die GVD zurückzuführen. Die mit Formel (2.51) berechnete GVD-Impulsverlängerung beträgt nur 3.7 fs (bei 800 nm).

Die SH-Impulsdauer konnte mittels einer Kreuzkorrelationsmessung im THG-Prozeß bestimmt werden. Gemessen wurde dabei die mittlere TH-Leistung als Funktion der Verzögerung zwischen der Grundwelle und der zweiten Harmonischen. Die aufgenommene Kurve zeigte eine Halbwertsbreite (FWHM) von 220 fs. Bei der Berechnung der SH-Impulsdauer muß man beachten, daß die Kreuzkorrelationsfunktion sowohl mit der Länge der wechselwirkenden Impulse als auch mit den GVM-Parametern verknüpft ist [BLS93]. In unserer Impulsdauermessung durch Kreuzkorrelation im THG-Prozeß spielt die GVM Δ_{21} eine wichtige Rolle. Der Wert von $L\Delta_{21}$, der dem Laufzeitunterschied zwischen den zwei eingestrahnten Impulsen am Ende des THG-Kristalls der Länge L entspricht, betrug nur 93 fs. Die Impulsdauer der zweiten Harmonischen von $T_{2\omega}=179$ fs wurde durch Entfaltung [BLS93] unter Vernachlässigung der Sättigung (die Kreuzkorrelationsfunktion war von der Umwandlungsrate im THG-Prozeß ziemlich unempfindlich) berechnet. Dieser Wert stimmt gut mit dem Laufzeitunterschied am Ende des verwendeten SHG-Kristalls von $L\Delta_{31}=L\Delta_{32}=174$ fs überein. Hier ist $v_1=v_2$ die Gruppengeschwindigkeit der Grundwelle und v_3 die der zweiten Harmonischen.

Die maximale mittlere Leistung der dritten Harmonischen lag bei $P_{3\omega}=150$ mW, was einer Umwandlungseffizienz von $>25\%$ bezogen auf die SH-Leistung entspricht. Die Leistung der verbliebenen Grundwelle betrug 450 mW und die durch Autokorrelationstechnik bestimmte Impulsdauer 115 fs. Ähnlich wie die vorherige Impulsdauermessung der zweiten Harmonischen wurde die der dritten Harmonischen durch die Kreuzkorrelationsmessung im FHG-Prozeß unter Vernachlässigung der Sättigung bestimmt. Die Kreuzkorrelationskurve zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen zeigte eine FWHM von 260 fs. Die Entfaltung mit $T_{\omega}=115$ fs und $L\Delta_{21}=108$ fs (GVM-Unterschied beim FHG-Prozeß) liefert eine Impulsdauer von $T_{3\omega}=210$ fs. Dieser Wert stimmt wiederum ziemlich genau mit dem Laufzeitunterschied $L\Delta_{31}$ im THG-Kristall überein. Es erwies sich, daß hier der dominierende Parameter, der die TH-Impulsdauer bestimmt, die GVM zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen ist. Dieses Ergebnis ist nicht überraschend, da die Wechselwirkungslänge zwischen der Grundwelle und der zweiten Harmonischen im THG-

Kristall nach der Relation von $T_{2\omega}/\Delta_{21}=0.55$ mm ($T_{\omega}<T_{2\omega}$) größer ist als die eingesetzte Kristalllänge. Damit ist die durch diese GVM verursachte Impulsverbreiterung sehr klein.

Für die Erzeugung der vierten Harmonischen standen zwei BBO-Kristalle unterschiedlicher Länge (0.1 und 0.3 mm) zur Verfügung. Der Durchmesser der beiden fokussierten Strahlen wurde im Brennpunkt, in dem sich der FHG-Kristall befindet, gemessen und betrug etwa 40 μ m. Die Abstimmbarkeit der vierten Harmonischen, die durch die Wellenlängenänderung des Ti:Saphirlasers erfolgte, wurde mit dem 0.1 mm kurzen BBO-Kristall demonstriert. Die erreichte kürzeste Wellenlänge lag bei 193.7 nm. Die vierte Harmonische ließ sich zwischen 193.7 nm und 211 nm abstimmen. Die maximale mittlere Leistung wurde bei $\lambda_{4\omega}=205$ nm gemessen und betrug $P_{4\omega}=6$ mW.

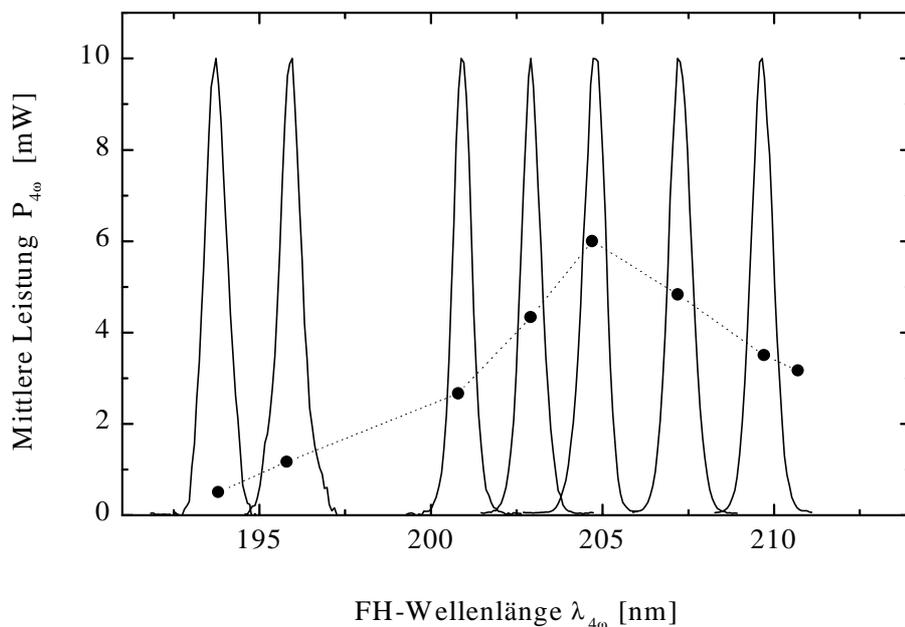


Abb. 3.4: Spektren der generierten vierten Harmonischen mit dem 0.1 mm-BBO und die entsprechende mittlere Leistung (punktierte Linie).

Abb. 3.4 zeigt die FH-Spektren und die gemessene mittlere Leistung mit dem 0.1 mm kurzen BBO-Kristall. Es ist zu sehen, daß die gemessene Leistung oberhalb 205 nm abnimmt, obwohl d_{eff} in BBO eigentlich mit steigender Wellenlänge zunehmen sollte. Die Ursache dafür liegt an der abfallenden mittleren Leistung des Ti:Saphir-Oszillators oberhalb von 820 nm. Die abnehmende FH-Leistung auf der kurzwelligen Seite des Abstimmbereiches ist sowohl auf die Abnahme der d_{eff} für die THG- und FHG-Prozesse als auch auf die Absorption von

BBO unterhalb von 200 nm zurückzuführen. Die maximale Umwandlungseffizienz mit dem 0.1 mm BBO betrug $\eta_{4\omega} = P_{4\omega} / (P_{\omega} P_{3\omega})^{-1/2} = 3\%$.

In Abb. 3.5 wird eine Kreuzkorrelationskurve, die mittels DFG im 40 μm BBO aufgenommen wurde, gezeigt. Da das zeitliche Verhalten des DFG-Signals im gesamten Abstimmbereich nahezu gleich blieb, wurden die weiteren Untersuchungen bei der Wellenlänge $\lambda_{4\omega} = 204\text{ nm}$ durchgeführt, für die man nahezu die maximale FH-Leistung erhalten hat. Zur Berechnung der Impulsdauer wurde die Kreuzkorrelationskurve aus Abb. 3.5 mit den Parametern $T_{\omega} = 85\text{ fs}$ und $L\Delta_{31} = 77\text{ fs}$ (mit $\Delta_{31} = 1925\text{ fs/mm}$ und $L = 40\text{ }\mu\text{m}$), die für den DFG-Prozess gültig sind, entfaltet.

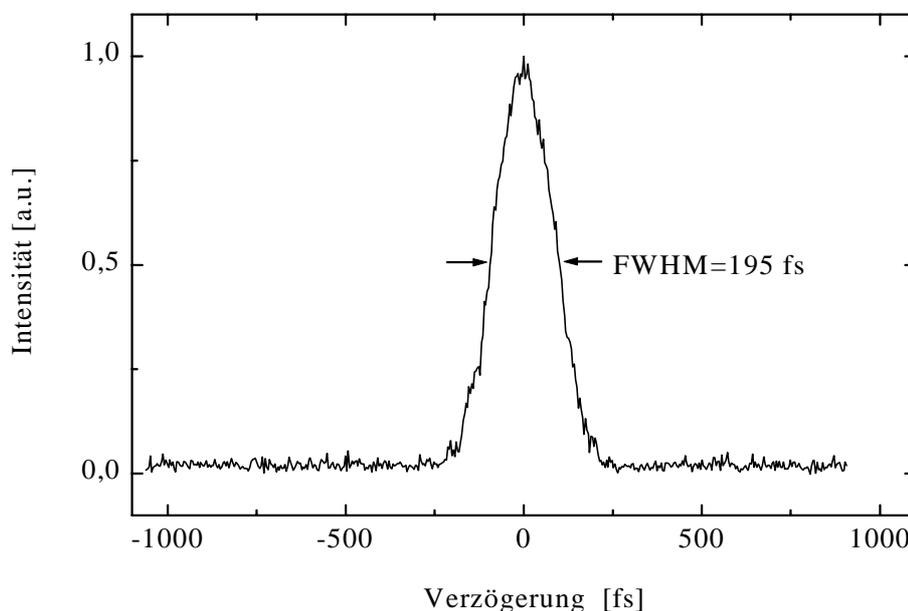


Abb. 3.5: Kreuzkorrelationskurve zur Impulsdauermessung zwischen der zu charakterisierenden vierten Harmonischen bei 204 nm und dem Referenzstrahl bei der Grundwelle, hier wurde der 0.1 mm BBO als FHG-Kristall verwendet.

Die Impulsform der generierten vierten Harmonischen ist im wesentlichen durch die Impulsform der Grundwelle und durch den Laufzeitunterschied zwischen der Grundwelle und der vierten Harmonischen $L\Delta_{31} = 192.5\text{ fs}$ im FHG-Kristall bestimmt. Die Impulsform der dritten Harmonischen kann vernachlässigt werden, da die Impulsdauer $T_{3\omega}$ im FHG-Prozess wesentlich breiter ist als die der Grundwelle. Die auf diese Weise abgeschätzte FH-Impulsdauer betrug 165 fs und die gemessene Halbwertsbreite des entsprechenden Spektrums (FWHM) $\Delta\lambda = 0.64\text{ nm}$.

Das experimentell bestimmte Impulsdauer/Bandbreiteprodukt von $\Delta\nu T_{4\omega} \approx 0.7$ liegt 40 % über dem für fourierlimitierte Impulse. Einerseits kann die Überschreitung der Bandbreitenbegrenzung auf die Ungenauigkeiten der Sellmeier-Koeffizienten für die Bestimmung der GVM-Parameter in den FHG- und DFG-Prozessen zurückgeführt werden, was die Entfaltungsprozeduren beeinflusst. Die Zuverlässigkeit der derzeit meist verwendeten Sellmeier-Gleichungen für BBO läßt für die Bestimmung der Brechzahlen unterhalb 205 nm laut [Kat86] nach. Andererseits sind die eingestrahlte Grundwelle und die dritte Harmonische nicht ganz bandbreitenbegrenzt. Daher sind die genauen Impulsformen der beiden Strahlen bei der FHG nicht exakt bekannt. In diesem Sinne ist die gemessene FH-Impulsdauer $T_{4\omega} = 165$ fs als obere Grenze der möglichen erreichbaren Impulsdauer anzusehen.

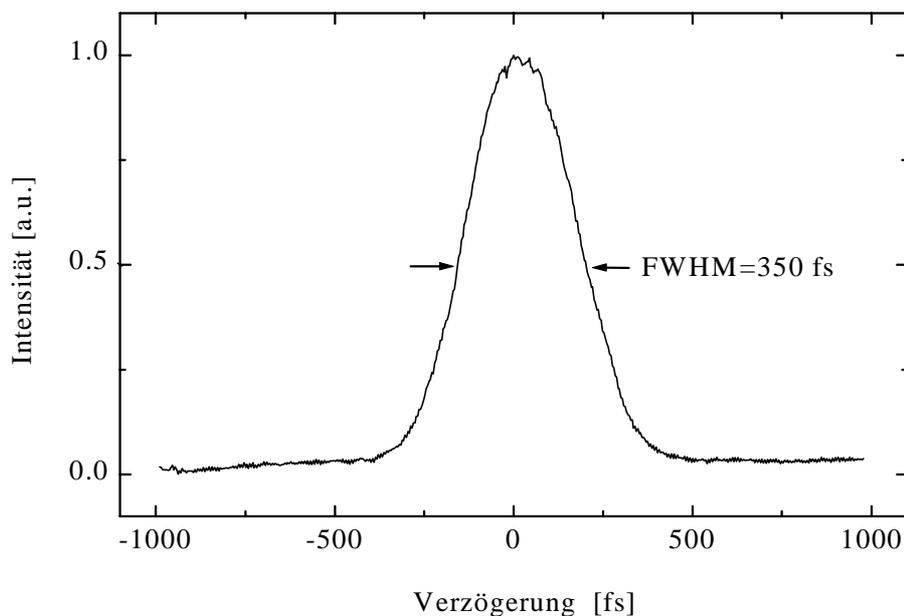


Abb. 3.6: Kreuzkorrelationskurve zwischen der vierten Harmonischen bei 204.5 nm und dem Referenzstrahl bei der Grundwelle, hier wurde der 0.3 mm BBO als FHG-Kristall verwendet.

Um die Umwandlungseffizienz und somit die mittlere Leistung der vierten Harmonischen zu erhöhen, wurde auch der 0.3 mm lange BBO-Kristall für FHG eingesetzt, wobei $T_{4\omega}$ sich aufgrund der größeren Laufzeitdifferenz verbreitert hat. Abb. 3.6 zeigt die aufgenommene Kreuzkorrelationskurve für diese Messung und Abb. 3.7 das entsprechende Spektrum. Die maximale mittlere Leistung betrug 15 mW, was einer Umwandlungseffizienz von 8 % entspricht. Die Entfaltung der Kreuzkorrelationskurve liefert eine Impulsdauer von $T_{4\omega} = 340$ fs. Sie ist gegenüber der Impulsdauer der im 0.1 mm BBO generierten vierten Harmonischen nur doppel so lang, obwohl die Kristalllänge verdreifacht wurde. Diese

nichtproportionale Impulsverbreiterung ergibt sich, da in diesem FHG-Prozeß $L_{\Delta 21}$ bereits größer als $T_{3\omega}$ und T_{ω} ist. Mit anderen Worten, die GVM-Wechselwirkungslänge der eingestrahlten Impulse ist bereits kürzer als die eigentliche Kristalllänge. Die Verwendung eines noch längeren BBO-Kristalls für den FHG-Prozeß ist dadurch beschränkt und deshalb nicht sinnvoll. Außerdem nimmt die Transmission der FH durch den Kristall bei kürzeren Wellenlängen mit zunehmender Länge stark ab und damit auch die Umwandlungseffizienz.

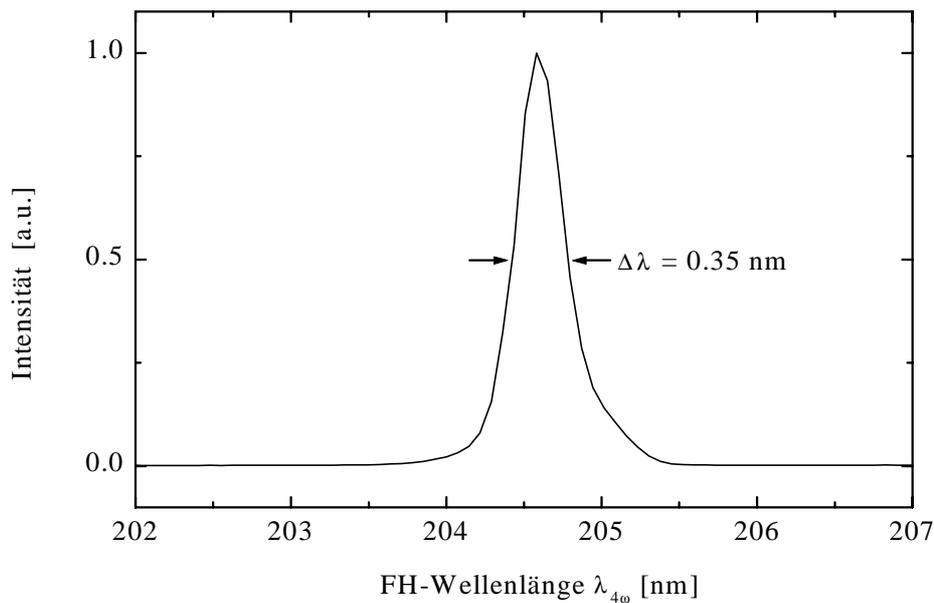


Abb. 3.7: FH-Spektrum bei 204.5 nm mit 0.3 mm BBO als FHG-Kristall.

Es wurde hier gezeigt, daß die Erzeugung von fs-Impulsen im Spektralbereich um 200 nm durch die Frequenzvervierfachung eines hochrepetierenden Ti:Saphirlasers bei 82 MHz realisiert werden kann. Die 165 fs-Impulse, die mit einem 0.1 mm kurzen BBO erzeugt wurden, ermöglichen zeitaufgelöste Pump- und Abtast-Experimente mit der vierten Harmonischen und der Grundwelle und einer Auflösung von <200 fs. Auch kombinierte SH-FH Experimente (zeitliche Auflösung <270 fs) und TH-FH Experimente (zeitliche Auflösung <300 fs) sind möglich. Die entsprechenden Abschätzungen basieren auf den FWHM's der Kreuzkorrelationskurven.

3.2. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse bei 1 kHz im VUV-Spektralbereich durch Summenfrequenzmischung (SFG) an einem Ti:Saphir-Verstärkersystem

Wie in der Einleitung bereits erwähnt, wurde FHG durch SFG bis zur Transparenzgrenze (189 nm) von BBO mit verstärkten fs-Ti:Saphir-Laserimpulsen schon früher demonstriert [RKN93]. Dank zahlreicher Weiterentwicklungen von Borat-Kristallen gibt es nun einige neue Vertreter aus dieser Familie, die die Erzeugung abstimmbarer fs-Lichtimpulse im VUV-Spektralbereich unterhalb von 189 nm ermöglichen. Im Vergleich zum LBO-Kristall, der für die SFG unterhalb von 187 nm in [SRP94] vor einigen Jahren eingesetzt wurde, besitzen andere Borat-Kristalle bessere Eigenschaften für die Erzeugung von fs-Lichtimpulsen in diesem Spektralbereich.

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse zur SFG mit der vierten Harmonischen eines regenerativen Ti:Saphir-Verstärkers und einem dazu synchron erzeugten NIR-Impuls in den neu entwickelten Kristallen LB4 und CLBO sowie in KB5 (siehe Tab. 3.1) dargestellt. Die verwendeten Kristalle werden dabei charakterisiert. Zu den Ergebnissen gehört u. a. die kürzeste Wellenlänge, die experimentell durch SFG in nichtlinearen Kristallen bisher erreicht wurde.

3.2.1. Vergleich der VUV-Kristalle

Wichtige Voraussetzungen nichtlinearer optischer Kristalle zur Erzeugung von VUV-Lichtimpulsen sind in erster Linie möglichst tiefe Transparenzgrenze und Phasenanpaßbarkeit im VUV-Spektralbereich (s. Tab. 3.1). Wie bereits erwähnt, erlaubt die Typ I-Wechselwirkung bei SFG die Phasenanpassung für kürzere VUV-Wellenlängen als die Typ II. Obwohl einige der ersten nichtlinearen Kristalle, KDP und ADP, unterhalb von 190 nm transparent sind, wurden sie bisher nie zur Erzeugung ultrakurzer Lichtimpulse in diesem Spektralbereich verwendet, außer in einer nicht-phasenangepaßten Anordnung [SSf89]. Nach der Entdeckung von LBO ist es klar, daß diese Materialien keine Vorteile besitzen (vgl. Tab. 3.1) [SRP94]: so weist LBO z. B. höhere Nichtlinearität, größere Doppelbrechung und eine bessere VUV-Transparenz als KDP und ADP auf.

Prinzipiell können mit allen Borat-Kristallen aus Tab. 3.1 durch SFG mit einem UV- und einem IR-Impuls VUV-Wellenlängen bis zur VUV-Bandkante erreicht werden, da eine Phasenanpassung bis zu dieser unteren Grenze mit IR-Wellenlängen, die immer noch im Transparenzbereich der Kristalle liegen, möglich ist. Die minimal erreichbare SFG-

Wellenlänge, die in Tab. 3.1 aufgelistet ist, wird bei $\theta=90^\circ$ für einachsige Kristalle und entlang der Y-Achse ($\theta=90^\circ$, $\varphi=90^\circ$) für zweiachsige Kristalle erzielt, wobei diese Orientierung der Ausbreitungsrichtung der Lichtimpulse entspricht.

Nicht alle prinzipiell möglichen VUV-Wellenlängen sind aber durch SFG mit der vierten Harmonischen eines Ti:Saphir-Lasersystems zugänglich, da die minimale FH-Wellenlänge 189 nm beträgt. Diese zusätzliche Beschränkung erfordert präzise Auswertung der Phasen Anpassungseigenschaften für die einzelnen Borat-Kristalle. Die Nachteile bei der VUV-Impulserzeugung in LBO und CBO liegen in der verschwindenden d_{eff} , wenn sich die wechselwirkenden Impulse entlang der Y-Achse ausbreiten (Tab. 3.1). Bei längeren VUV-Wellenlängen, für die die SFG durch kritische Phasen Anpassung erreicht wird, könnte CBO aufgrund der größeren d_{eff} zwar eine höhere Umwandlungseffizienz liefern als LBO, aber es ist bisher unklar, ob dieses Material mit nichtkritischer SFG ($\theta=90^\circ$, $\varphi=90^\circ$) kürzere VUV-Wellenlängen als LBO liefern kann. Es ist aus Tab. 3.1 zu entnehmen, daß die beiden Kristalle sehr ähnliche Eigenschaften besitzen und daher alle in LBO phasen Anpassbaren SFG-Wellenlängen auch in CBO erzeugt werden können.

Im Gegensatz zu CBO und LBO zeigt CLBO im 90° -Limit eine maximale d_{eff} und kann somit für die effiziente Frequenzumwandlung unterhalb von 190 nm verwendet werden. Die untere UV-Absorptionskante liegt in diesem Material laut Messungen an 4 mm langen Proben [MKN95] bei 180 nm. In CLBO wird also die kürzeste durch SFG erreichbare VUV-Wellenlänge nicht durch die Doppelbrechung bzw. Phasen Anpassung bestimmt, sondern durch die Bandkante des Kristalls. Die Kristalle KB5 und LB4 können ihrerseits auch unter Berücksichtigung der Beschränkung durch die kürzeste FH-Wellenlänge von Ti:Saphir-Lasersystemen in nichtkritischer 90° -Anordnung unterhalb 190 nm mit maximierter d_{eff} verwendet werden (Tab. 3.1).

In Abb. 3.8 wird verdeutlicht, daß die Doppelbrechung von LB4 größer als die von LBO ist, aber kleiner als die von KB5. Die Kurven zeigen, daß LB4 für die Phasen Anpassung zur Erzeugung der gleichen SFG-Wellenlänge eine etwas längere NIR-Wellenlänge benötigt als KB5, aber eine kürzere als LBO. Da in unserem Experiment der OPG, der Signal- und Idlerimpulse in diesem NIR-Wellenlängenbereich erzeugt, um 800 nm gepumpt wird, kann man aus dem Bild schließen, daß die vierte Harmonische in LBO und LB4 mit dem langwelligen Impuls (Idler) aus dem OPG gemischt wird und in KB5 mit dem kurzwelligen Impuls (Signal), um VUV-Impulse bei der gleichen Wellenlänge durch SFG zu erzeugen. Die Verfügbarkeit der NIR-Impulse wird im nächsten Abschnitt behandelt. Es sei angemerkt, daß die nichtkritische Phasen Anpassung für die SFG nur durch voneinander unabhängig

durchstimmbare NIR-Impulse bei λ_1 und FH-Impulse bei λ_2 erreichbar ist. Das linke und rechte Ende aller Kurven in Abb. 3.8 wird durch die UV-Absorptionskante limitiert. In keinem der drei Kristalle kann aber die untere VUV-Grenze von ≈ 160 nm durch SFG mit der FH eines Ti:Saphir-Lasersystems (λ_2) erreicht werden. Deshalb ist für die minimale erreichbare VUV-Wellenlänge die Doppelbrechung entscheidend und in diesem Sinne ist KB5 besser als LB4 und LB4 besser als LBO.

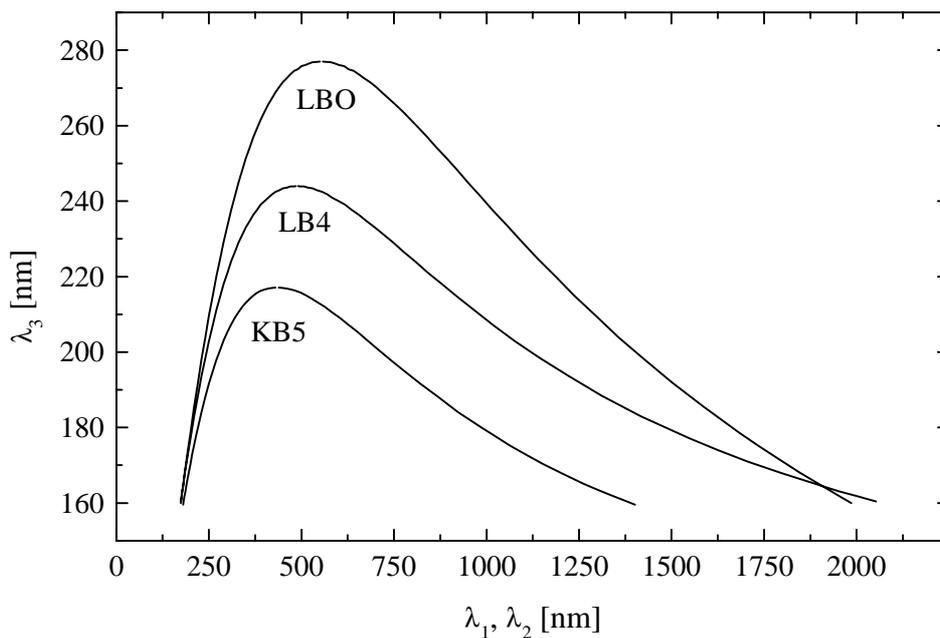


Abb. 3.8: Nichtkritische (90°) Typ I-Phasen Anpassung für SFG in LBO, LB4 und KB5 mit $\lambda_1 > \lambda_2 > \lambda_3$ und $1/\lambda_3 = 1/\lambda_1 + 1/\lambda_2$. Der Fall von $\lambda_1 = \lambda_2$ entspricht SHG (s. Tab. 3.1).

Die kritische Phasen Anpassung durch Änderung des Kristallwinkels in LBO, CLBO und LB4 ist in Abb. 3.9 gezeigt. Die angegebenen λ_2 -Werte entsprechen den typischen FH-Wellenlängen, die am Ti:Saphir-Lasersystem erzeugt werden können. Die untere VUV-Wellenlängengrenze in LBO und LB4 wird in der Tat durch die Verfügbarkeit der FH-Wellenlänge bestimmt, in CLBO durch die Bandkante. Die obere Grenze für die SFG-Wellenlänge in Abb. 3.9 wird für alle drei Kristalle durch die entsprechenden IR-Absorptionskanten bestimmt.

Aus Abb. 3.9 ist ersichtlich, daß auch in kritischer Phasen Anpassung LB4 kürzere VUV-Wellenlängen als LBO liefern kann. Das gilt auch für CLBO in seinem ganzen Abstimmbereich. Obwohl $\theta = 90^\circ$ in CLBO nur für $\lambda_2 = 205$ nm (in dieser Abbildung) erreichbar ist, hat die wesentlich größere Doppelbrechung von CLBO relativ zu LBO einen

anderen wichtigen Vorteil für unsere spezifische Anwendung: um die gleiche VUV-Wellenlänge durch SFG zu generieren, wird im Fall von CLBO eine längere FH-Wellenlänge benötigt, die erfahrungsgemäß mit höherer Effizienz erzeugt werden kann (vgl. Abb. 3.4, links).

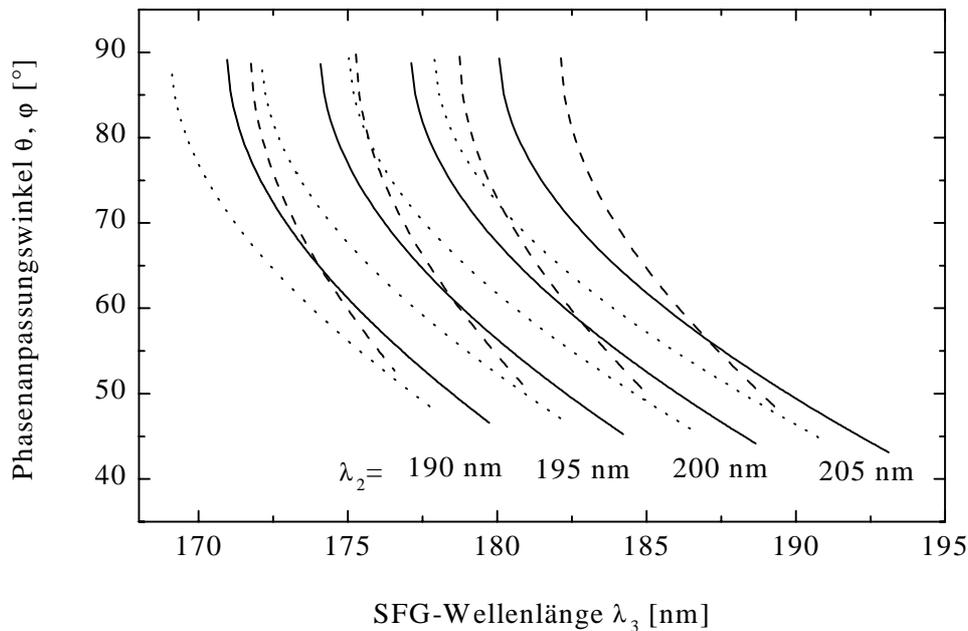


Abb. 3.9: Kritische Phasenanpassung durch Winkeländerung für VUV-SFG in LBO (gestrichelte Linien), LB4 (durchgezogene Linien) und CLBO (punktierte Linien) für 4 verschiedenen FH-Wellenlängen λ_2 . Die Winkelabstimmung wird in LBO durch Änderung vom azimuthalen Winkel φ in der XY-Ebene, und in LB4 und CLBO durch Änderung vom polaren Winkel θ erreicht.

Die GVM für KB5 bei nichtkritischer Phasenanpassung ist in Abb. 3.10 zu sehen. Die für kritische Phasenanpassung in LB4 und CLBO berechnete GVM ist in den Abb. 3.11–12 dargestellt, wobei diese GVM-Kurven genau den Abstimmbereichen aus Abb. 3.9 entsprechen. Die SFG-Kristalllänge sollte nicht wesentlich über der Wechselwirkungslänge T/Δ_{21} zwischen dem FH- und dem IR-Impuls liegen, da man dadurch an Umwandlungseffizienz nicht mehr gewinnen kann. Kürzere Proben bieten gleichzeitig die Möglichkeit, die Kristalle bis zu ihrer UV-Absorptionskante zu benutzen. Bei einer ausgewählten Kristalllänge wird die eigentliche Impulsdauer des erzeugten VUV-Impulses auch durch seine Gruppengeschwindigkeitsverzögerung relativ zu den FH- und IR-Impulsen beeinflusst.

Für Typ I-Wechselwirkung in LB4, KB5 und CLBO wird laut Tab. 3.1 d_{eff} in der nichtkritischen Konfiguration maximal, im Gegensatz zu LBO (und CBO), für die d_{eff}

verschwindet. SFG kann in KB5 mit Typ I-Wechselwirkung sowohl in der XY-Ebene (oo-e) als auch in der YZ-Ebene (ee-o) erreicht werden (Tab. 3.1), aber für die Abstimbarkeit ist die Ausbreitung in der YZ-Ebene günstiger, weil eine kleinere Änderung des kritischen Winkels θ nötig ist. Beide Konfigurationen verschmelzen entlang der Y-Achse mit identischen Polarisationen aller Wellenlängen. Wie bereits erwähnt, kann mit CLBO die 90°-Phasen Anpassung im VUV-Bereich wegen der unteren Transparenzgrenze nicht immer erreicht werden. Deshalb ist es möglich, die effektive Nichtlinearität von CLBO in bestimmten Fällen durch Typ II-Wechselwirkung ($d_{\text{eff}} = \sin 2\theta \cos 2\phi$) zu erhöhen. Generell ist die Nichtlinearität in CLBO wesentlich größer als in LB4, und in LB4 wesentlich größer als in KB5 (Tab. 3.1).

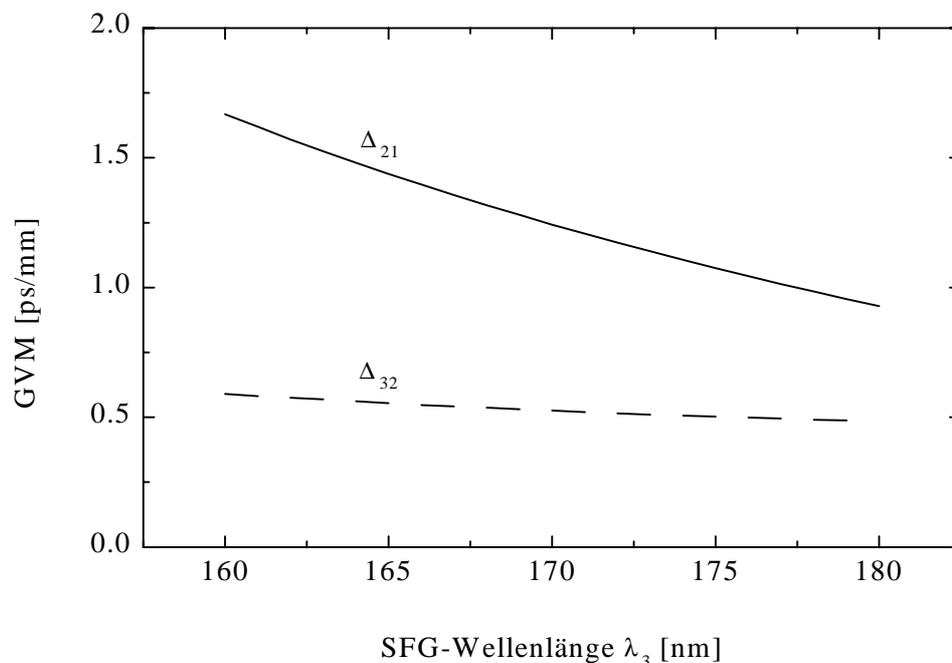


Abb. 3.10: GVM für nichtkritische VUV-SFG ($\theta=90^\circ$, $\phi=90^\circ$) in KB5.

LB4 ist ein neu entwickeltes Material aus der Borat-Familie. Große Proben mit guter Homogenität der Brechungsindizes und mit geringen Delokalisationen wurden vor kurzem mit dem Czochralski-Verfahren (nicht anwendbar für die restlichen Borat-Kristalle) erfolgreich gezüchtet. Der nichtlineare Koeffizient von LB4 wurde in [FCT91] bestimmt. Frequenzumwandlung in diesem Material wie die SHG eines Nd:YAG-Lasers (1064 nm) wurden demonstriert. Eine detaillierte Beschreibung dazu ist in [KJC94] zu finden. Vor kurzer Zeit hat man herausgefunden, daß LB4 auch für die Erzeugung der vierten und fünften

Harmonischen eines Nd:YAG-Lasers gut geeignet ist [KSS97]. Im Vergleich zu den anderen Borat-Kristallen ist LB4 am wenigsten hygroskopisch, wodurch ein problemloser Einsatz an Luft möglich ist.

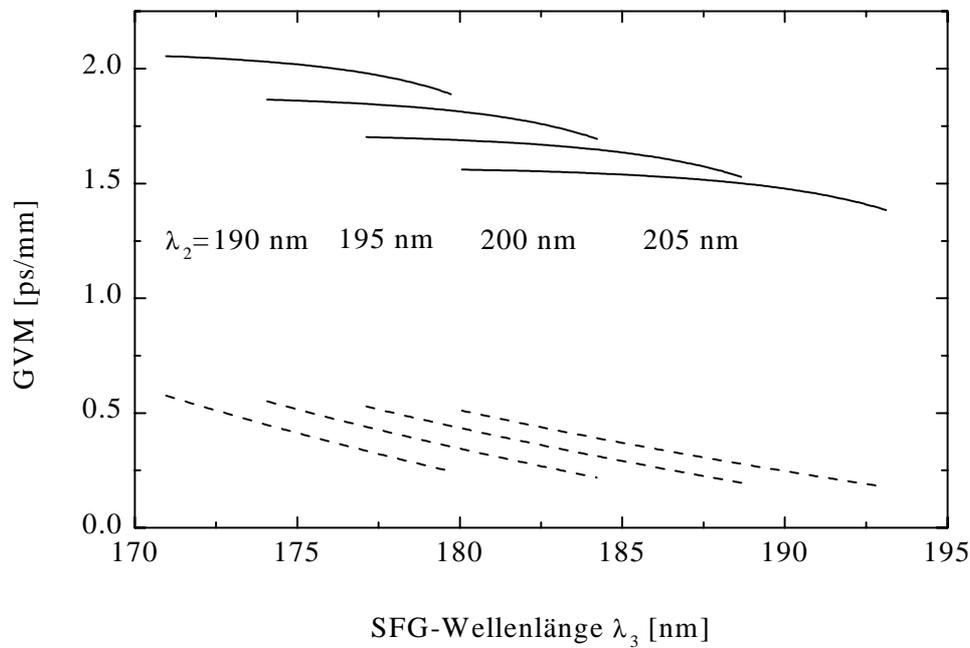


Abb. 3.11: GVM für SFG in LB4: Δ_{21} (durchgezogene Linien) und Δ_{32} (gestrichelte Linien). λ_2 bezeichnet vier FH-Wellenlängen, die mit Ti:Saphir-Lasersystemen erzeugt werden können.

KB5 ist ein schon seit langem bekanntes Material aus der Borat-Gruppe. Obwohl die mikroskopische Nichtlinearität in diesem Material relativ groß ist, kommen leider aufgrund der Kristallsymmetrie nur sehr kleine Koeffizienten zur Wirkung, die die makroskopische d_{eff} bestimmen [Cct93]. Der Kristall ist weich und hygroskopisch. Verbesserte Sellmeier-Gleichungen für KB5, die mit ns-SFG-Experimenten bis zu 177.4 nm (die bisher kürzeste Wellenlänge mit diesem Material) gut übereinstimmen, wurden vor kurzem publiziert [UnK96].

Das Hauptinteresse bei der Entwicklung von CLBO, der 1995 erfolgreich gezüchtet wurde, liegt in der Generation der dritten, vierten und fünften Harmonischen von Nd:YAG-Lasern [MKN95], [ZMS96], [KKF00] und in der Realisierung eines Festkörperlaserersatzes für ArF-Laser um 193 nm [DSO99]. Die kürzeste bisher demonstrierte VUV-Wellenlänge durch ns-SFG in CLBO war 185 nm [UnK97]. CLBO ist auch hygroskopisch, was sich besonders schlecht beim Polieren von kurzen Proben auswirkt. Außerdem zeigt er gewisse Verspannung in der Kristallstruktur und die Tendenz zu platzen. Deshalb ist es bis heute sehr schwierig,

CLBO kommerziell sowohl in guter Qualität als auch in einer kurzen Probe geschnitten zu erhalten.

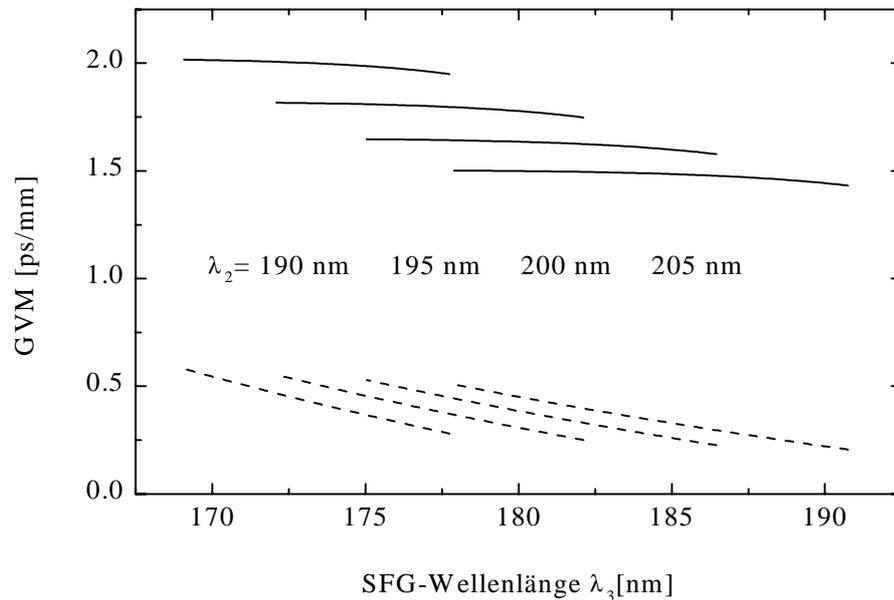


Abb. 3.12: GVM für SFG in CLBO: Δ_{21} (durchgezogene Linien) und Δ_{32} (gestrichelte Linien). λ_2 wie in Abb. 3.11.

Die Parameter der vorhandenen Borat-Proben sind in Tab. 3.5 zusammengefaßt. Mit der KB5 Probe konnte aufgrund des nichtkritischen Schnitts und der mechanischen Halterung nur schwach abweichend von der Y-Ausbreitungsrichtung experimentiert werden.

Kristall	LB4	KB5	CLBO (a)	CLBO (b)	LBO
Länge [mm]	0.107	0.5	0.15	1	0.2
Apertur [mm]	10x10	5x5	4x5	6x8	5x5
Schnitt	$\theta=80^\circ$	$\theta=90^\circ$, $\varphi=90^\circ$	$\theta=55^\circ$, $\varphi=45^\circ$	$\theta=55^\circ$, $\varphi=45^\circ$	$\theta=90^\circ$, $\varphi=80^\circ$
Herkunft	Mitsubishi Mat. Corp., Japan	Photox, aus China	Kogakugiken, Japan	EKSMA, Lithauen	CASIX, China

Tab. 3.5: Parameter der zur Verfügung stehenden Borat-Kristalle für VUV-SFG.

In Abb. 3.13 wird die Transmission der in dieser Arbeit verwendeten LB4 Probe gezeigt. Diese kurze unbeschichtete Probe ist noch unterhalb von 160 nm transparent.

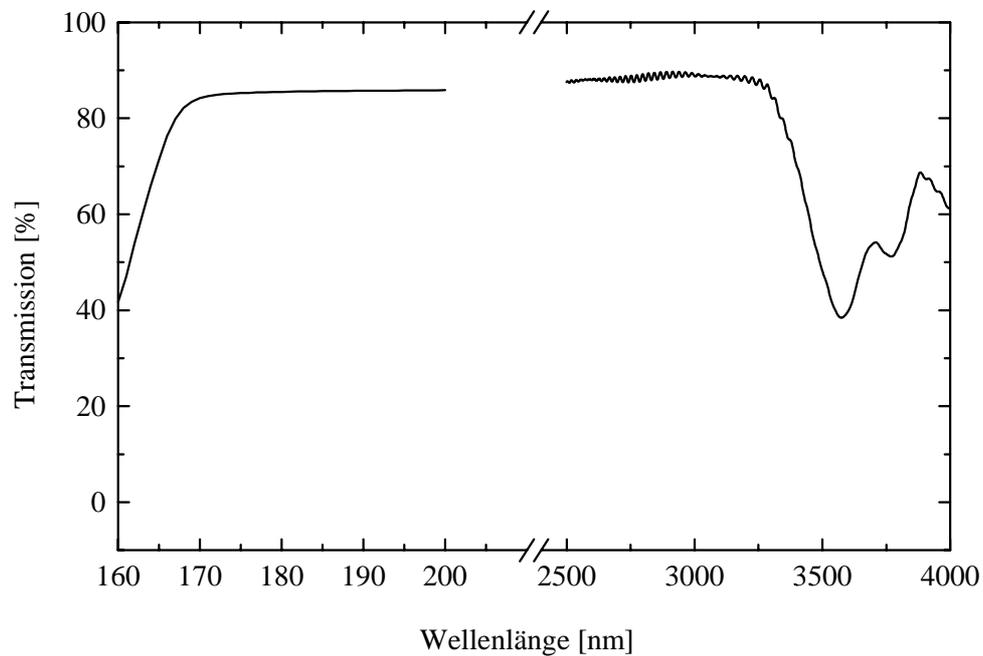


Abb. 3.13: VUV- und MIR-Transmission der LB4-Probe. Die Transmission ist mit unpolarisiertem Licht bis 160 nm gemessen.

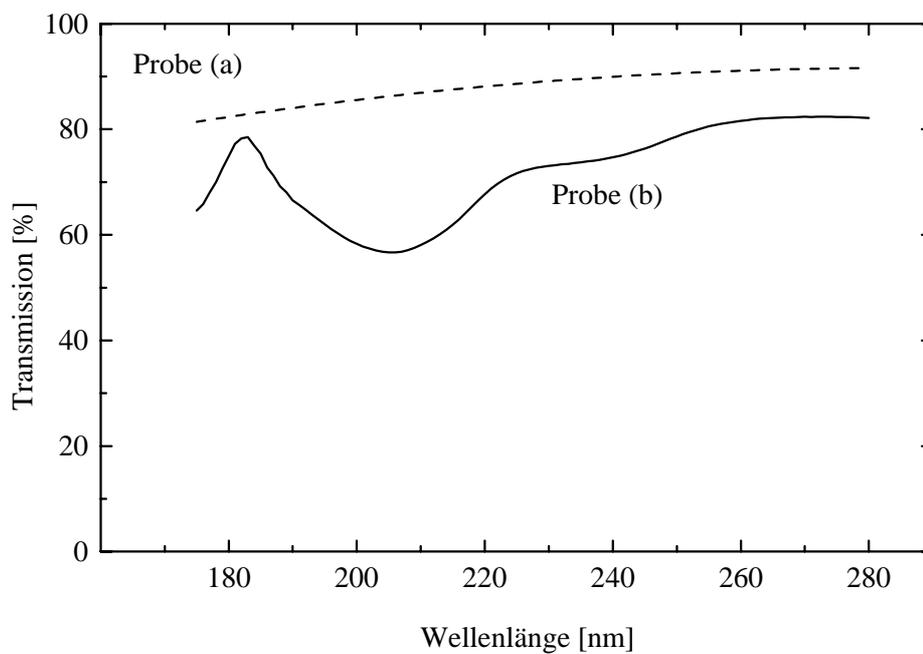


Abb. 3.14: UV-Transmission von CLBO, gemessen mit unpolarisiertem Licht. Die Probe (a) ist 0.15 mm lang und die Probe (b) ist 1 mm lang.

In unserem Experiment wurden zwei CLBO-Kristalle unterschiedlicher Länge verwendet. Die kurze unbeschichtete Probe, CLBO (a), zeigte keine Verschlechterung der Oberflächenqualität nach kurzem Kontakt mit Luft. Die zweite längere Probe, CLBO (b), war auch unbeschichtet und in einem versiegelten Gehäuse mit zwei 2 mm dicken MgF_2 -Fenstern montiert.

Die UV-Transmission der verwendeten CLBO-Proben ist in Abb. 3.14 gezeigt. Diese Messung war leider nur bis 175 nm möglich, aber man würde aus der Abbildung erwarten, daß ein kurzer CLBO-Kristall mindestens bis zu 170 nm transparent wäre. Das ist ein überraschendes Ergebnis, wenn man mit der bisher angenommenen Grenze von 180 nm vergleicht [MKN95]. Dies zeigt, daß das VUV-Potential dieses Materials wahrscheinlich auch von der Kristallqualität abhängig ist.

In den folgenden zwei Abschnitten wird die Erzeugung durchstimmbarer fs-VUV-Impulse durch SFG in den oben erwähnten Borat-Proben dargestellt. Die experimentelle Anordnung wird beschrieben und die Ergebnisse diskutiert. Neben den zu untersuchenden Proben von LB4, KB5 und CLBO stand auch ein LBO-Kristall als Referenz zur Verfügung (s. Tab. 3.5).

3.2.2. Experimentelle Anordnung

Die vierte Harmonische eines regenerativen Ti:Saphir-Verstärkers wird benutzt, um fs-Lichtimpulse weiter im kurzwelligeren VUV-Spektralbereich durch SFG zu erzeugen. Dazu mischt man die FH mit dem Ausgangsimpuls aus einem OPG, der mit dem gleichen Ti:Saphir-Verstärker gepumpt wird, um problemlos zeitliche Synchronisation zu gewährleisten (Abb. 3.15).

Für das Experiment stand uns ein kommerzieller Ti:Saphir-Oszillator mit einem regenerativen Verstärker (TRA-1000, CLARK) zur Verfügung. Dieses 1 kHz System liefert Einzelimpulsenergien bis zu 600 μJ bei einer Impulsdauer von 100 fs. Die Wellenlänge ist zwischen 756 und 840 nm durchstimmbar. Das Verstärkersystem ist zusätzlich mit einem Kontinuum-geseedeten OPG (IR-OPA, CLARK), gepumpt mit der Grundwelle, ausgestattet, der zur Erzeugung von fs-Impulsen im NIR-Spektralbereich eingesetzt wird. Letzterer basiert auf Typ II-Wechselwirkung in BBO. Daher lassen sich die erzeugten Signal- und Idlerimpulse leicht mit einem Polarisator trennen. Die generierten Idlerimpulse haben typischerweise eine Impulsdauer von 140 fs und eine maximale Einzelimpulsenergie von 30 μJ . Die Signalimpulse mit einer maximalen Einzelimpulsenergie von 40 μJ sind etwa 120 fs lang. Die NIR-Wellenlänge kann zwischen 1.15 und 2.5 μm (Idler zwischen 1.6 und 2.5 μm , Signal zwischen 1.15 und 1.6 μm) variiert werden, wobei die Abstimmbarkeit geringfügig von der

Pumpwellenlänge abhängt. Es wurde je nach verwendetem Kristall, entweder Idler- oder Signalimpuls mit der FH gemischt.

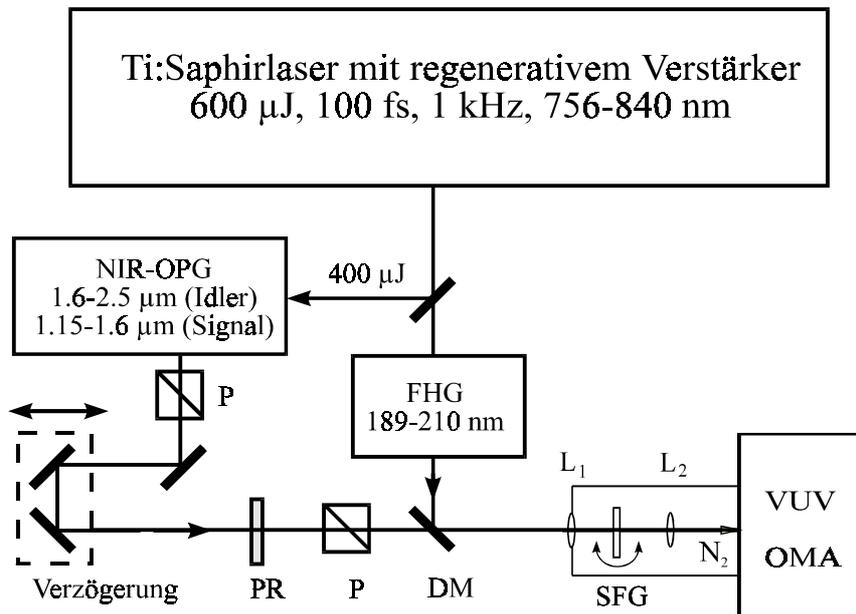


Abb. 3.15: Experimenteller Aufbau zur VUV-SFG. **PR**: Polarisationsdreher, **P**: Polarisator, **DM**: 45°-Spiegel für 193 nm, **L1, L2**: MgF₂-Linsen mit $f=10$ cm, **VUV-OMA**: VUV optischer Mehrkanalanalysator.

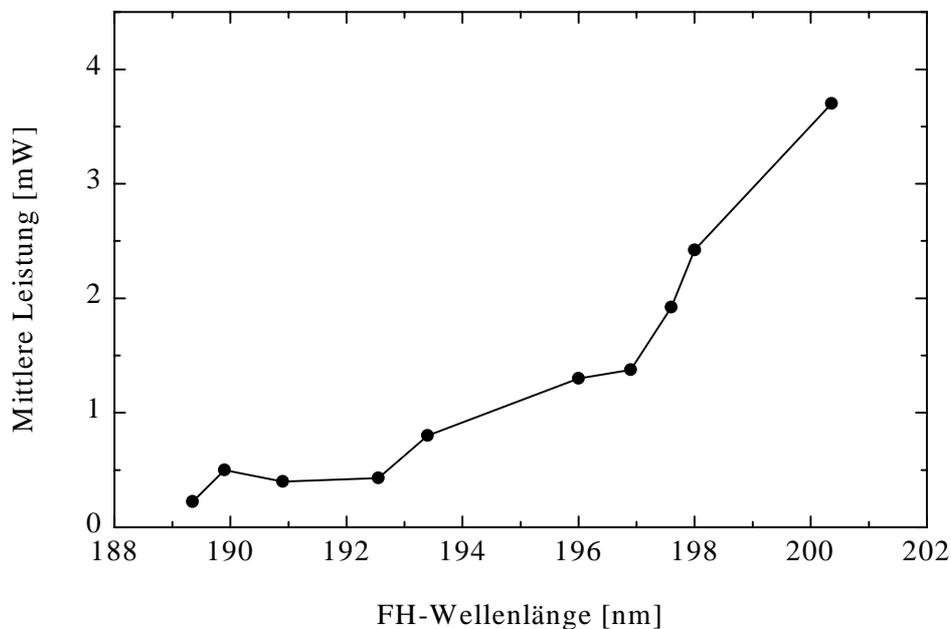


Abb. 3.16: Messung der mittleren Leistung der vierten Harmonischen in BBO, erzeugt am 1 kHz-Ti:Saphir-Verstärkersystem mit einer Eingangsimpulsenergie von 200 μ J bei der Grundwelle.

Die Frequenzvervierfachung am verstärkten Ti:Saphir-System ist in [RKN93] detailliert beschrieben. Die Vorgehensweise ist sehr ähnlich wie bei der SFG des fs-Ti:Saphir-Oszillators, die im Abs. 3.1.2 beschrieben wurde, aber ohne separate Fokussierung in den einzelnen Stufen. Es wird hier auch aufeinanderfolgend SHG, SFG und SFG in drei BBO-Kristallen benutzt. Die erzielte Impulsdauer der FH (≈ 140 fs) ist etwa gleich der des Idlerimpulses. Die Abbildung 3.16 zeigt die Wellenlängenabhängigkeit der mittleren Leistung der vierten Harmonischen aus [RKN93].

Nach Einstellung gleicher Polarisationen wird die vierte Harmonische für kollineare SFG mit dem Idler- oder Signalimpuls rekombiniert. Der für VUV-SFG verwendete Kristall ist in eine isolierte Kammer eingebaut, die mit Stickstoff (N_2) gespült wird. Er befindet sich vor dem Brennpunkt einer MgF_2 -Linse (L1), um eine mögliche Zerstörung durch zu hohe Intensitäten zu vermeiden. Die fokussierende Linse L1 dient gleichzeitig als Eintrittsfenster und die zweite Linse L2 bildet das erzeugte VUV-Licht auf den Spalt des 0.2 m-VUV-Monochromators ab (s. Abs. 3.1.2). Der Monochromator hat ein MgF_2 -Fenster vor dem Eintrittsspalt und ist evakuiert.

Da die Idler- bzw. Signalimpulsenergie wesentlich größer als die FH-Impulsenergie ist, wird die Umwandlungseffizienz hier auf die Energie der vierten Harmonischen bezogen und als $\eta_{SFG} = \mathcal{E}_3 / \mathcal{E}_2$ definiert, wobei \mathcal{E}_3 und \mathcal{E}_2 jeweils der Impulsenergie des erzeugten VUV-Impulses und der vierten Harmonischen entsprechen.

Eine Messung der absoluten VUV-Energie und damit eine Bestimmung der Umwandlungseffizienz in diesem Spektralbereich ist keine leichte Aufgabe. Für die eigentliche Energiemessung wurde eine Si-Photodiode ohne Fenster verwendet, die mit einem pyroelektrischen Meßkopf bei der vierten Harmonischen (190 nm) kalibriert wurde. Die Trennung der VUV- von der FH-Wellenlänge erfolgte über ein Suprasil-Prisma. Der Einfluß der Luftabsorption wurde durch Änderung der Weglänge für die VUV-Strahlung in Luft zum Detektor bestimmt. Die absolute Energiemessung mußte aus Platzgründen bei 184 nm, wo die Luftabsorption einen wesentlich kleineren Einfluß hat, ohne die Stickstoff-gespülte Kammer durchgeführt werden. Dann wurde die abgeschätzte Umwandlungseffizienz für kürzere Wellenlängen umgerechnet. Die Meßgeometrie blieb während des Experimentes unverändert. Bei der Umrechnung wird in erster Linie die Änderung des Phasen Anpassungswinkels berücksichtigt, da die Intensität des Idler- bzw. Signalimpulses nahezu konstant bleibt. Die Korrektur der Umwandlungseffizienz bei Wellenlängenänderung ist nur bei geringen Umwandlungsraten (z. B. $< 10\%$), für die die Sättigung keine Rolle spielt, begründet. Bei höheren Umwandlungseffizienzen kann die VUV-Impulsenergie viel einfacher durch

Messung des Abbaus der FH-Impulsenergie hinter dem SFG-Kristall mit dem pyroelektrischen Detektor, abgeschätzt werden. In diesem Fall spielt die Luftabsorption im VUV keine Rolle, da der SFG-Impuls nicht detektiert wird.

3.2.3. Ergebnisse und Diskussion

Da die bekannten Sellmeier-Gleichungen für LB4 nur auf Brechzahlmessungen bis 185 nm basieren [SKU98], wäre es interessant in diesem Material zuerst die Gültigkeit der berechneten Phasenanpassung im VUV-Spektralbereich zu überprüfen. Wie in Tab. 3.6 gezeigt, wurde in LB4 eine ziemlich gute Übereinstimmung zwischen den nach [SKU98] berechneten Phasenanpassungswinkeln und den experimentell bestimmten Werten erhalten. Die Abweichungen werden nur für $\theta > 80^\circ$ größer. Diese Tatsache ist darauf zurückzuführen, daß sich die Genauigkeit der experimentellen Winkelmessung bei Annäherung an die nichtkritische Phasenanpassung ($\theta = 90^\circ$) verschlechtert, da man es bei fs-Experimenten mit breitbandiger Strahlung zu tun hat. Unter Berücksichtigung dieses Verhaltens läßt sich feststellen, daß die Sellmeier-Gleichungen [SKU98] auch im VUV-Spektralbereich ausreichend genau sind.

λ_2 [nm]	λ_3 [nm]	$\theta_{\text{theo.}}$ [°]	$\theta_{\text{gem.}}$ [°]
205	183.8	65.6	66.1
200.5	180	69	69.5
198.3	177.5	74.3	75.8
195.7	175.26	78.3	80.4
192.9	173	83.5	89.8
190.4	171.5	82.4	≈ 90
189.5	171	82.5	≈ 90
189.14	170.75	81.7	≈ 90

Tab. 3.6: Berechnete ($\theta_{\text{theo.}}$) und gemessene ($\theta_{\text{gem.}}$) Phasenanpassungswinkel für SFG in LB4 im VUV-Spektralbereich, hier $1/\lambda_3 = 1/\lambda_1 + 1/\lambda_2$ wie üblich.

Es wurde auch die theoretisch berechnete Winkelakzeptanz mit dem experimentell bestimmten Wert für die Phasenanpassung bei $\lambda_3 = 180$ nm (s. Tab. 3.6) verglichen. Die experimentell gemessene Halbwertsbreite (FWHM) von $\Delta\theta = 2.7^\circ$ (interner Akzeptanzwinkel) stimmt gut mit den berechneten 2° überein, obwohl es sich im fs-Regime um Impulse mit relativ großer spektraler Breite handelt.

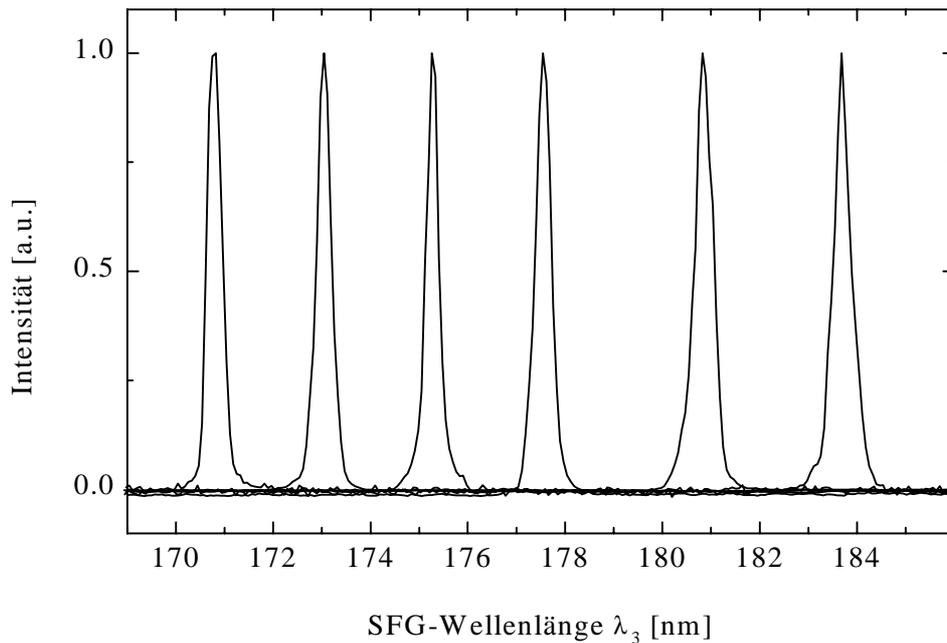


Abb. 3.17: Spektren der durch SFG in LB4 erzeugten VUV-Impulse. Die Wellenlänge λ_3 läßt sich hier zwischen 170.75 und 184 nm variieren.

Abb. 3.17 zeigt die mit LB4 experimentell erreichte Abstimmbarkeit im VUV-Spektralbereich. Die Vorhersage der minimal erreichbaren VUV-Wellenlänge (≈ 170 nm) in LB4, die sich mit den Sellmeier-Gleichungen aus [SKU98] bei der kürzesten verfügbaren FH-Wellenlänge (189 nm) berechnen läßt, hat sich als richtig erwiesen. Die gemessene spektrale Halbwertsbreite der VUV-Impulse betrug im gesamten Abstimmbereich etwa 0.5 nm. Unter der Annahme eines Impulsdauer/Bandbreiteproduktes von 0.5 (wie für den FH-Impuls gemessen), ist eine Impulsdauer der VUV-Impulse von etwa 100 fs zu erwarten. Diese Abschätzung zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Simulation des SFG-Prozesses mit einer Impulsdauer von 140 fs, die sowohl für die vierte Harmonische als auch für den NIR-Impuls angenommen wurde. Die $\approx \sqrt{2}$ -fache Impulsverkürzung ist damit zu erklären, daß die GVM-Wechselwirkungslänge in LB4, die durch Δ_{21} bestimmt wird (Abb. 3.11) vergleichbar mit der eingesetzten Kristalllänge ist.

Ein weiterer Hinweis für die Verkürzung der Eingangsimpulsdauer in LB4 ist in Abb. 3.18 zu sehen, in der die VUV-Impulsenergie als Funktion der Verzögerung zwischen der vierten Harmonischen und dem Idlerimpuls für zwei verschiedene VUV-Wellenlängen gezeigt wird (Quadrate). Das Fehlen eines Plateaus in diesen zwei Kurven bestätigt wiederum, daß die tatsächliche Wechselwirkungslänge nicht wesentlich kürzer als die eingesetzte Kristalllänge sein kann. Die gemessene Halbwertsbreite der Kurve für $\lambda_3=180$ nm beträgt 220 fs und

stimmt sehr gut mit einer numerischen Simulation des SFG-Prozesses in LB4 für angenommene 140 fs-lange FH- und Iderimpulse durch Gl. (2.50) überein.

Die Kurve für $\lambda_3=170.75$ nm in Abb. 3.18 wurde an der unteren Grenze der erreichbaren VUV- bzw. FH-Wellenlänge aufgenommen. In diesem Fall ist die Halbwertsbreite der Kreuzkorrelationsfunktion mit 280 fs größer als die für $\lambda_3=180$ nm, was auf die zunehmende GVM zwischen dem wechselwirkenden FH- und NIR-Impuls und auf die Impulsverlängerung der vierten Harmonischen an der Grenze der BBO-Transmission zurückzuführen ist.

LB4 konnte direkt mit dem Referenzkristall LBO unter der Berücksichtigung und Korrektur der verschiedenen Kristalllänge verglichen werden [s. Formel (2.17)]. Unter den gleichen experimentellen Voraussetzungen zeigt LBO nur oberhalb von 180 nm eine höhere Umwandlungseffizienz. Bei kürzeren VUV-Wellenlängen ist die SFG in LB4 effizienter.

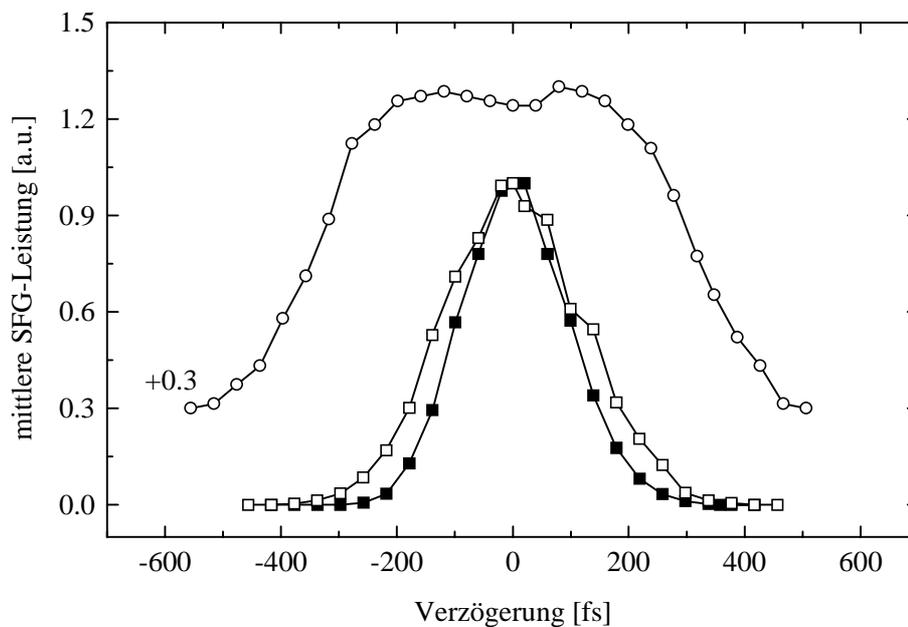


Abb. 3.18: Relative mittlere Leistung der durch SFG erzeugten VUV-Impulse in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen den FH- und NIR-Impulsen. LB4, $\lambda_3=180$ nm (gefüllte Quadrate); LB4, $\lambda_3=170.75$ nm (Quadrate ohne Füllung); KB5, $\lambda_3=171.75$ nm (Kreise). Die axiale FH-Spitzenintensität beträgt für diese Messungen <7 GW/cm².

Es sei kurz erwähnt, daß man in LBO in Übereinstimmung mit früheren Messungen [SRP94] nur VUV-Wellenlängen bis zu 172.7 nm erhalten konnte, obwohl die minimal erreichbare Wellenlänge laut Abschätzung (Abb. 3.9) 171 nm beträgt. Es ließ sich feststellen, daß die Ursache dafür in dem zu geringen Phasenanpassungswinkel φ , den die Sellmeier-Gleichungen für LBO [Kat94] vorhersagen, liegt. In dieser Arbeit wurde z. B. eine Abweichung von 5° bei

$\lambda_3=176.4$ nm und $\lambda_2=195.3$ nm gemessen. In anderen Arbeiten mit LBO [BBW91, WXC92] wurden auch experimentell größere Phasenanpassungswinkel ϕ (um 2° – 6°) im Bereich zwischen 195 und 188 nm bestimmt.

Das bedeutet, daß die derzeit genauesten Sellmeier-Gleichungen für LBO im VUV-Bereich noch weiter verbessert werden müssen. Zusätzlich wurde bei uns eine klare spektrale Verschiebung der erzeugten VUV-Impulse in LBO zu längeren Wellenlängen beobachtet. Dieses Verhalten läßt sich dadurch erklären, daß nur ein Teil der spektralen Komponenten der FH- und Idlerimpulse zur Frequenzumwandlung beiträgt. Die spektrale Verschiebung hat ihre Ursache in der verschwindenden d_{eff} in LBO im 90° -Grenzfall (Tab. 3.1).

Die maximale effektive Nichtlinearität d_{eff} bei der 90° -Phasenanpassung in LB4 und die größere Doppelbrechung sind die Hauptvorteile, die LB4 für die Erzeugung von VUV-Impulsen unterhalb von 180 nm zu einem bevorzugten Material machen.

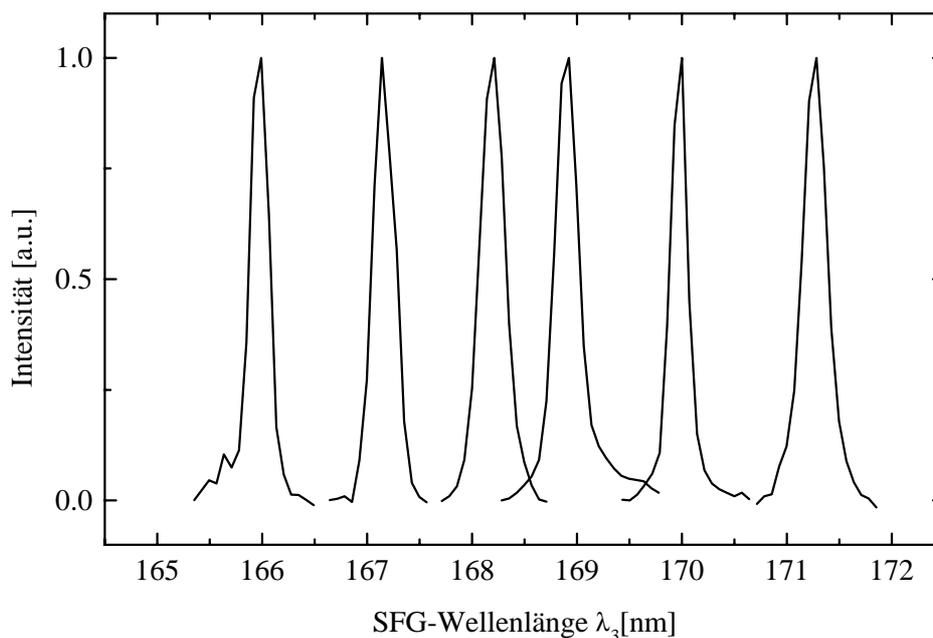


Abb. 3.19: Spektren der durch SFG in KB5 erzeugten VUV-Impulse. Die Wellenlänge λ_3 läßt sich hier zwischen 166 und 172 nm variieren.

Bei der VUV-Wellenlänge von $\lambda_3 \approx 171$ nm und 90° -Phasenanpassung wurde für LB4 bei einer einfallenden Idlerenergie von 30 μJ eine Effizienz von $\eta_{\text{SFG}}=6\%$ abgeschätzt. Mit den verfügbaren Energien bei der vierten Harmonischen (Abb. 3.16) konnten wir also im VUV-Spektralbereich mit LB4 fs-Impulse mit Spitzenleistungen (Energien) von 2.4 MW (240 nJ), 1.2 MW (120 nJ) und 0.3 MW (30 nJ) jeweils für 180 nm, 175 nm und 171 nm erzeugen.

Um die SFG-Wellenlänge noch weiter in die tiefere VUV-Region zu verschieben, wurde der KB5-Kristall verwendet. Dieser war für nichtkritische Impulsausbreitung entlang der Y-Achse fest montiert. Wie in Abb. 3.19 gezeigt, konnten damit VUV-Impulse bis zu einer Wellenlänge von 166 nm erzeugt werden. Für die experimentell bestimmten FH- und VUV-Wellenlängen, die der 90°-Phasenanpassung entsprechen, war die Abweichung der theoretischen Abschätzung für den Winkel sowohl mit den Sellmeier-Gleichungen [UnK96] als auch mit der empirisch bestimmten Relation aus [SDb78] kleiner als 1°.

An dieser Stelle wird darauf hingewiesen, daß unser Experiment die erste Demonstration eines „all-solid-state“ Lasersystems ist, welches jemals so tief im VUV-Spektralbereich betrieben wurde. Diese Aussage bezieht sich nicht nur auf Kurzpulslasersysteme: man kann sagen, daß die fs-Impulsdauer und die damit verbundene hohe Intensität uns den zusätzlichen Vorteil verschafft hat, sehr kurze Kristallproben mit geringen Absorptionsverlusten und ohne zu große Belastung durch die hohe mittlere Leistung untersuchen zu können.

Die gemessene spektrale Halbwertsbreite in Abb. 3.19 entspricht, unter Annahmen ähnlich wie bei LB4 mit einem Impulsdauer/Bandbreiteprodukt von 0.5, einer VUV-Impulsdauer zwischen 200 und 220 fs. Dieser Wert zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem GVM-Verhalten (Abb. 3.10). Die GVM-Wechselwirkungslänge für die KB5-Probe ist kleiner als die eigentliche Kristalllänge. Dadurch entsteht ein Plateau in der Abhängigkeit der mittleren SFG-Leistung, wenn man diese als Funktion der Verzögerung zwischen der vierten Harmonischen und dem Signalimpuls aufträgt (Abb. 3.18, Kreise). Das Fehlen der asymmetrischen Kurvenform ist ein Beweis dafür, daß sowohl Zwei-Photonen-Absorption bei der verwendeten Intensität als auch lineare Absorption vernachlässigt werden können.

In KB5 wurde eine Umwandlungseffizienz von $\eta_{\text{SFG}}=2\%$ bei einer Signalimpulsenergie von 40 μJ abgeschätzt. Damit betrug die VUV-Spitzenleistung (Energie) $>0.4\text{ MW}$ ($>80\text{ nJ}$) bei 170 nm und $>0.05\text{ MW}$ ($>10\text{ nJ}$) bei 166 nm. Bei $\lambda_3=170\text{ nm}$ ist die mit KB5 erzeugte Energie größer als für LB4. Dies ist allein auf die längere FH-Wellenlänge (höhere FH-Leistung, s. Abb. 3.16) zurückzuführen, die durch die größere Doppelbrechung von KB5 phasenangepaßt ist (Abb. 3.8). Es ist an dieser Stelle zu bemerken, daß die zitierten η_{SFG} -Werte in LB4 und KB5 beim gleichen Durchmesser (170 μm) des Idler- bzw. Signalstrahls abgeschätzt wurden.

Weiterhin wurde die Erzeugung von VUV-Lichtimpulsen durch SFG in CLBO untersucht. Der mit CLBO (a) experimentell bestimmte Phasenanpassungswinkel θ zeigte eine gute Übereinstimmung mit den berechneten Werten (Abb. 3.9). Die Abweichungen bei $\lambda_3=180\text{ nm}$ und $\lambda_2=200\text{ nm}$ waren kleiner als 1° und liegen innerhalb der Meßgenauigkeit. Bei kürzeren

Wellenlängen wurden um 3° - 5° größere Winkel, verglichen zur theoretischen Abschätzung beobachtet, was immer noch als befriedigend bezeichnet werden kann, da die verwendeten Sellmeier-Gleichungen für CLBO [Kat86] nur bis 190 nm spezifiziert sind.

In CLBO waren solche kurzen VUV-Wellenlängen wie bei LB4 und KB5 nicht zu erwarten, die Anwendung dieses Materials bei längeren VUV-Wellenlängen ist aber sehr interessant, da seine Nichtlinearität wesentlich höher ist (Tab. 3.1). Damit ließ sich effiziente SFG mit CLBO (a) zwischen 175 und 180 nm demonstrieren (Abb. 3.20).

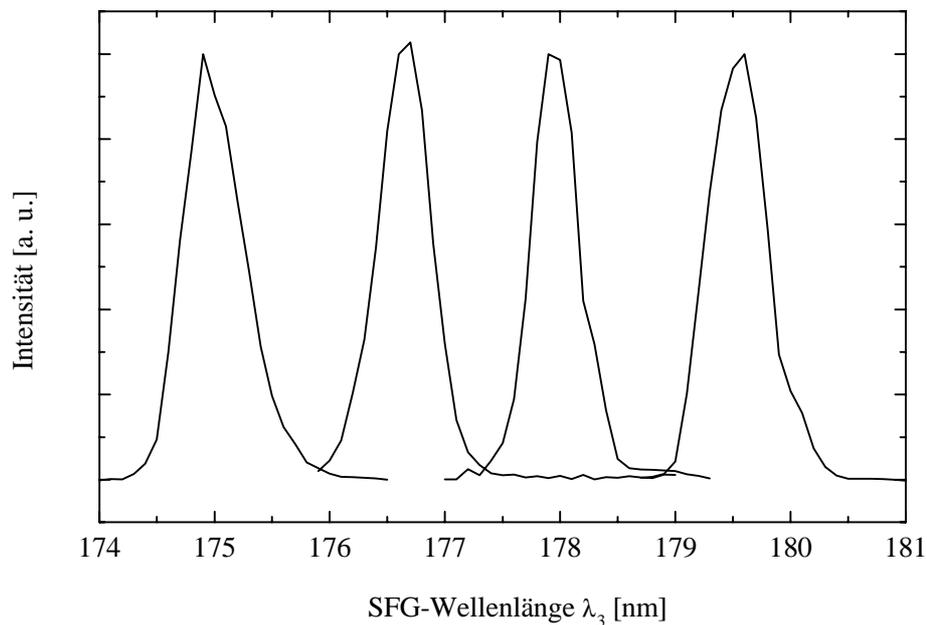


Abb. 3.20: Spektren der durch SFG in CLBO (a) erzeugten VUV-Impulse.

Bei unserem Kristallschnitt (Tab. 3.5) war die notwendige FH-Wellenlänge für den VUV-Abstimmbereich zwischen 196 und 200 nm, d.h. in diesem Fall stand uns mehr Energie bei der vierten Harmonischen zur Verfügung (s. Abb. 3.16). Mit einer Idlerimpulsenergie von $30 \mu\text{J}$ konnten wir eine Umwandlungseffizienz von $\eta_{\text{SFG}}=40\%$ erreichen und zwar bei einem Idlerstrahldurchmesser, der etwa 3-mal größer als im Fall von LB4 war. Damit ergeben sich Energien im Abstimmbereich zwischen $0.8 \mu\text{J}$ (175 nm) und $1.6 \mu\text{J}$ (180 nm) je nach dem wie hoch die FH-Energie ist. Das sind die höchsten Energien für fs-Impulse im sub-180 nm-Spektralbereich, die jemals mit einem „all-solid-state“ Lasersystem generiert werden konnten. Die Verbesserung gegenüber früheren Ergebnissen mit LBO [SRP94] ist etwa 5-fach.

Die Abhängigkeit der VUV-Impulsenergie von der relativen Zeitverzögerung zwischen den zwei eingestrahnten Impulsen bei λ_1 und λ_2 ist in Abb. 3.21 zu sehen. Die GVM multipliziert

mit der Kristalllänge $L\Delta_{12}$, betrug hier 245 fs in dem 0.15 mm kurzen CLBO (a), und 1636 fs in dem 1 mm langen CLBO (b) sowie 338 fs im 0.2 mm LBO-Referenzkristall. Die Halbwertsbreite der Kurve für CLBO (a) beträgt 360 fs. Dies entspricht ungefähr dem durch die GVM und Kristalllänge theoretisch abgeschätzten Wert. Das spricht wiederum dafür, daß die Sellmeier-Gleichungen zuverlässig genug sind, um die VUV-Impulslänge durch SFG-Simulation [Gl. (2.50)] abzuschätzen. Letzteres ergibt eine Größenordnung von 100 fs für die Impulsdauer, was gut mit der Berechnung aus der spektralen Breite (wieder unter Annahme eines Fourierproduktes von 0.5) übereinstimmt. Damit ergibt sich eine Spitzenleistung im oben erwähnten Spektralbereich zwischen 8 und 16 MW.

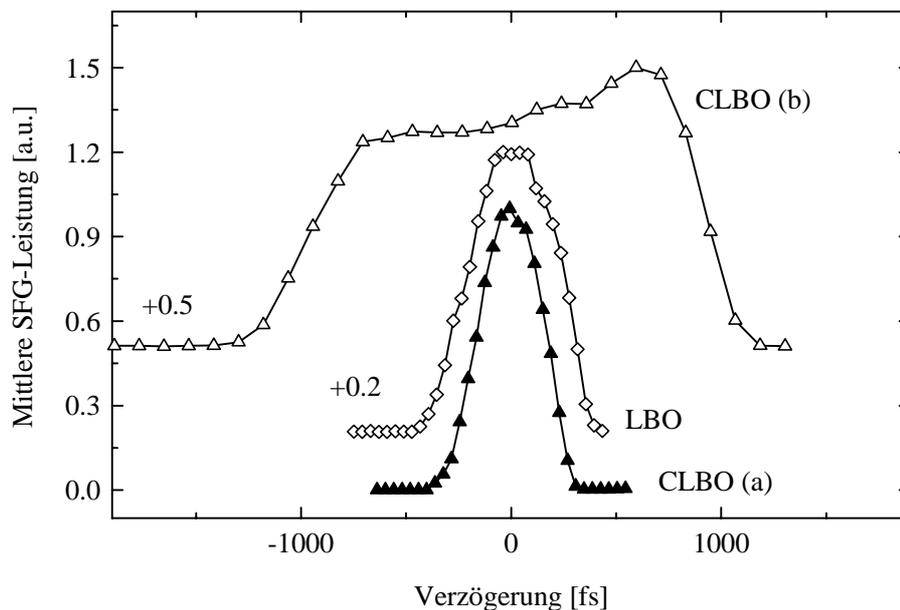


Abb. 3.21: Relative mittlere Leistung der durch SFG erzeugten VUV-Impulse für $\lambda_3=180$ nm und $\lambda_2=200$ nm in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen den FH- und Idlerimpulsen in CLBO (a) und (b) und in LBO. Die axiale FH-Spitzenintensität beträgt hier 250 GW/cm^2 und ist wesentlich höher als in Abb. 3.18 und als der optimale Wert (etwa 50 GW/cm^2) für effiziente SFG in CLBO (a).

Wie aus Abb. 3.21 ersichtlich ist, entsteht in dem etwas längeren LBO bereits ein leichtes Plateau. Dieser GVM-Effekt ist noch viel deutlicher bei dem 1 mm langen CLBO (b). Die zunehmende VUV-Energie im Verzögerungsbereich, für den die Wechselwirkung zwischen den FH- und Idlerimpulsen im vorderen Teil des Kristalls stattfindet, ist ein Zeichen dafür, daß die lineare und die nichtlineare Absorption bei λ_2 eine größere Rolle spielt als die bei λ_3 . Bei der FH-Spitzenintensität, die in Abb 3.21 verwendet wurde, betrug die Transmission von CLBO (a) 50 % und die von CLBO (b) nur 10 %.

Durch Änderung der FH-Intensität konnte man einen Zwei-Photonen-Absorptionskoeffizienten von $\beta_{TP}=1.2\pm 0.2$ cm/GW für CLBO bei 200 nm abschätzen. Dabei wurde sowohl das zeitliche als auch das räumliche Strahlprofil berücksichtigt [Gl. (2.63)]. Bei Spitzenintensitäten unterhalb 50 GW/cm² war die nichtlineare Absorption vernachlässigbar. Die Probe CLBO (a) zeigte keinerlei Zerstörung bis 250 GW/cm² im UV-Spektralbereich ($\lambda_2=200$ nm) und bis 600 GW/cm² im NIR ($\lambda_1=1800$ nm). Diese Werte liegen mehr als eine Größenordnung über den Schwellen der sogenannten „bulk“-Zerstörung, die bereits mit ns-Impulsen bei 266 nm (6.4 GW/cm²) und 1064 nm (29 GW/cm²) beobachtet wurden [YKM99]. Bei der Probe CLBO (b), die von einem anderen Hersteller geliefert worden war (Tab. 3.5), wurde jedoch diese Art der Zerstörung beobachtet. Deshalb wurde dieser Kristall nicht weiter untersucht.

Die in diesem Abschnitt dargestellten Ergebnisse zeigen nicht nur die Möglichkeit zur Erzeugung von durchstimmbarer VUV-Strahlung mit einem „all-solid-state“ Lasersystem unterhalb von 190 nm, sondern demonstrieren auch die Möglichkeit, fs-Impulse mit einer Impulsdauer von <200 fs bei einer hohen Spitzenleistung in diesem Spektralbereich zu erzeugen. Diese Impulse können mit den anderen Impulsen, die aus dem gleichen regenerativen Verstärker und dem OPG bei anderen Wellenlängen vorhanden sind, für zeitaufgelöste Pump- und Abtast-Experimente im VUV-Spektralbereich verwendet werden.

Die SFG-Methode zur VUV-Impulserzeugung durch die vierte Harmonische kann ohne weiteres auf einen hochrepetierenden Ti:Saphir-Oszillator übertragen werden. Die effiziente Frequenzvervierfachung an solchem System wurde in Abs. 3.1 behandelt. Der OPG am 1 kHz System müßte dann durch einen SPOPO ersetzt werden.

4. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse im mittleren Infrarot (MIR) durch optisch parametrische Generation und Verstärkung (OPG/OPA)

Die direkte Erzeugung ultrakurzer Lichtimpulse im MIR-Spektralbereich durch Modensynchronisation von Lasern ist bis heute nicht möglich, während es im VIS- und NIR-Spektralbereich zahlreiche fs-Lasersysteme gibt. Parametrische Umwandlungsprozesse wie DFG, OPG und OPA sind derzeit die effizientesten Methoden für die Erzeugung von fs-MIR-Impulsen, ausgehend von fs-Lasersystemen im VIS- oder NIR-Spektralbereich.

Die Erzeugung abstimmbarer ultrakurzer Lichtimpulse mit μJ -Energie im infraroten Spektralbereich wurde bisher meistens mit auf BBO basierten OPA's und OPG's gezeigt [PSK94], wobei fs-Ti:Saphir-Verstärkersysteme mit Repetitionsraten zwischen 0.01 und 250 kHz als Pumpquelle benutzt wurden. Diese parametrischen Verstärker bzw. Generatoren werden im VIS- und NIR-Spektralbereich betrieben und sind kommerziell erhältlich (s. Kap. 3). Die obere Transparenzgrenze von BBO limitiert aber leider die erreichbare Idlerwellenlänge auf maximal $\approx 2.6 \mu\text{m}$ [NSM94].

Auch für die Wellenlängentransformation ins MIR ist es wünschenswert, Ti:Saphir-Verstärkersysteme anzuwenden, da sie derzeit die zuverlässigste Quelle von intensiven fs-Pumpimpulsen sind. Im Gegensatz zum NIR-Spektralbereich konnten im MIR fs-OPG's bisher nicht demonstriert werden. Energien $>1 \mu\text{J}$ konnten nur mit geseedeten OPA's mit Kristallen wie KTiOPO_4 (KTP) [HCX95, PvN95, EWB97, GGH97], dessen Isomorphen RbTiOAsO_4 (RTA) und KTiOAsO_4 (KTA) [PNS97], sowie KNbO_3 (KNB) [PNf96, KjW96] generiert werden. Signal- oder Idlerimpulse aus einem NIR-OPG [EWB97, GGH97], selektierte fs-Impulse aus einem SPOPO [HCX95], ein fs-Kontinuum [KjW96] und externe ns-Impulse [PvN95, PNf96, PNS97] dienten dabei als Seedimpulse.

Die direkte Erzeugung abstimmbarer fs-Lichtimpulse oberhalb von $5 \mu\text{m}$ ist mit einem Ti:Saphir-Verstärkersystem und OPA nicht möglich, da die dort transparenten nichtlinearen Kristalle wie ZnGeP_2 , AgGaS_2 , AgGaSe_2 und GaSe starke Zwei-Photonen-Absorption [HLZ93] oder Restabsorption der Pumpwelle aufweisen, wenn sie um 800 nm gepumpt werden, oder weil die Phasenanpassung für diese Pumpwellenlänge nicht zu realisieren ist. Aus diesem Grund hat man früher kaskadierte Frequenzumwandlungsprozesse wie OPG im NIR und dann anschließend DFG verwendet. Die typischen Ausgangsenergien für DFG in

AgGaS₂ sind allerdings nur etwa 100 nJ für OPG's, die von einem regenerativen Ti:Saphir-Verstärker bei Repetitionsraten von 1–250 kHz gepumpt wurden [SPW94, RmS96, GbR98]. Hochrepetierende (≈ 100 MHz) fs-MIR-Quellen können generell nur wesentlich niedrigere Einzelimpulsenergien liefern. Mit SPOPO's, die durch fs-Ti:Saphirlaser gepumpt werden, konnten bisher je nach Material die folgenden MIR-Wellenlängen erreicht werden: 4 μm mit CsTiOAsO₄ (CTA) [HCC95], 4 μm mit KTP [MAJ95], 4 μm mit KTA [MRE97], 3.65 μm mit RTA [PTC94] und 5.2 μm mit KNB [SWT96]. Die Idlerimpulsenergie in diesen Experimenten war typischerweise <0.1 nJ. Die erhöhte parametrische Verstärkung in periodisch gepolten Materialien hat die Impulsenergie um eine Größenordnung erhöht und die Grenzen etwas weiter nach oben verschoben: so konnten Wellenlängen bis 4.5 μm in periodisch gepoltem RTA [RPE97] und 5.4 μm [BTA97] bzw. 6.8 μm [LBR99] in periodisch gepoltem LiNbO₃ (LNB) erreicht werden. Kaskadierte Anordnungen wie fs-Ti:Saphir-Pumplaser/CTA-SPOPO/AgGaSe₂-SPOPO [MBW99] sind sogar bis 8 μm abstimmbaar, aber die Energie im MIR oberhalb von 5 μm war <0.1 nJ.

Hochrepetierende (≈ 100 MHz) fs-Laser können auch mit DFG kombiniert werden, um fs-MIR-Impulse zu generieren. So wurden z. B. in [DBM95] die zwei Wellenlängen eines speziellen fs-Ti:Saphirlasers in AgGaS₂ gemischt, um MIR-Impulse bis 12.5 μm zu erzeugen (maximale Impulsenergie <0.1 pJ). Aufgrund der geringeren GVM ist es besser, die DFG im NIR durchzuführen, wobei der Ti:Saphir-Oszillator zuerst einen fs-SPOPO pumpt und dann Signal- und Idlerwelle gemischt werden. So hat man DFG in LiIO₃ und AgGaS₂ bis 5.5 μm [LKR94], in AgGaS₂ und GaSe bis 14.5 μm bzw. 18 μm [EsS98], sowie in AgGaSe₂ bis 18 μm [FWH97] demonstriert. Die höchsten Einzelimpulsenergien betragen dabei etwa 20 pJ mit GaSe um 8.5 μm [EsS98]. Um fs-MIR-Impulse durch DFG zu erzeugen, reicht es, wenn nur einer der eingestrahnten Impulse fs-Impulsdauer hat. So konnte z. B. ≈ 10 pJ Impulsenergie bis 4 μm durch DFG in LNB mit fs-Impulsen aus einem Ti:Saphir-Oszillator und ps-Impulsen eines Nd:YLF-Lasers bei 1053 nm, dessen zweite Harmonische den Ti:Saphirlaser pumpte, erzeugt werden [EBK94]. Die Impulsdauer betrug 200 fs.

In diesem Kapitel wird die Erzeugung intensiver und durchstimmbarer fs-Lichtimpulse im MIR auf der Basis von Ti:Saphir- bzw. Cr:Forsterit-Verstärkern dargestellt. Die kommerziell verfügbaren, um 800 nm abstimmbaren fs-Ti:Saphir-Verstärker sind heutzutage die am weitesten verbreitete Quelle von energiereichen ($\mathcal{E} > 0.1$ mJ) fs-Lichtimpulsen. Der regenerative Cr:Forsterit-Verstärker ist eine einzigartige fs-Quelle im NIR ($\lambda \approx 1.25$ μm , $\mathcal{E} > 0.1$ mJ), die vor kurzem am Max-Born-Institut entwickelt wurde [SZP99].

4.1. Geseedete optisch parametrische Verstärkung zur Erzeugung von fs-Lichtimpulsen im Bereich von 3 – 4 μm

Das Hauptziel der in diesem Abschnitt präsentierten Experimente war es, abstimmbare fs-Laserquellen mit $>1 \mu\text{J}$ Einzelimpulsenergie im Spektralbereich zwischen 3 und 4 μm , gepumpt um 800 nm, zu entwickeln. Es wurde Wert darauf gelegt, diese MIR-Laserquellen mit den geeigneten Materialien und Seedquellen möglichst kompakt aufzubauen.

Die hier verwendete Methode war das schmalbandige Seeden (mit einem ns-Impuls) eines OPAs. Das Seeden reduziert vor allem die Pumpschwelle im Vergleich zu OPG. Es wurde bereits früher demonstriert, daß geseedete OPA's selbst in einstufiger Ausführung gute spektrale Qualität und nahezu Fourier-limitierte Impulse generieren können [PvN95, PNf96].

4.1.1. Eigenschaften von nichtlinearen MIR-Kristallen, geeignet für das Pumpen um 800 nm

Um intensive fs-Lichtimpulse im MIR-Spektralbereich zwischen 3 und 4 μm direkt mit einem einzigen parametrischen Prozeß zu erzeugen, werden in erster Linie angemessene Pumpquellen und nichtlineare Kristalle gesucht. Dabei bietet ein Ti:Saphir-Verstärkersystem, das fs-Impulse mit sehr hoher Puls zu Puls-Stabilität und Reproduzierbarkeit bei kHz-Repetitionsraten produziert, sehr gute Möglichkeiten für das Pumpen um 800 nm, wobei die Abstimmung durch die Pumpwellenlänge λ_3 möglich ist. Leider ist BBO, der im vorigen Kapitel bereits verwendet wurde, für Wellenlängen $>2.6 \mu\text{m}$ nicht geeignet, da die Transmission dieses Kristalls bereits ab 2.1 μm [NSM94] deutlich abnimmt.

Die Tabelle 4.1 zeigt die wichtigsten Eigenschaften der kommerziell verfügbaren Kristalle, die oberhalb von 3 μm transparent sind. Die Transparenzgrenzen in der Tabelle entsprechen dem „0“-Niveau. Diese Werte sind nur Orientierungswerte, da die exakten Kanten von der Polarisation des Lichtes und auch von der Qualität der Proben (Reinheitsgrad) abhängig sind. Die Daten in der Tabelle stammen hauptsächlich aus [DGN97]. Für die KTP-Isomorphe (KTA, RTA, CTA und RTP) wurde die relative Messung des nichtlinearen Koeffizienten d_{32} aus [CCG94] mit einer Kalibrierung durch die neueste Abschätzung von d_{24} für KTP aus [BFM94] verwendet. Die Formeln für d_{eff} sind nur für die Wechselwirkung mit der höchsten Nichtlinearität. Daten über die Zerstörungsschwellen sind nicht in der Tabelle aufgeführt, da sie aufgrund Messungen bei sehr unterschiedlichen Wellenlängen und Impulsdauern schwer miteinander vergleichbar sind [DGN97].

Nichtlineare Kristalle, Achsen, Klasse	Transparenzbereich [μm]	Effektive Nichtlinearität d_{eff}	Nichtlinearer Koeffizient [pm/V]
KTP (KTiOPO₄) zweiachsig, mm2 a,b,c:X,Y,Z; $n_X < n_Y < n_Z$	0.35-4.5	$d_{\text{oeo}} = d_{24} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{24} = 2.65$
RTP (RbTiOPO₄) zweiachsig, mm2 a,b,c:X,Y,Z; $n_X < n_Y < n_Z$	0.35-4.5	$d_{\text{oeo}} = d_{24} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{24} = 2.47$
KTA (KTiOAsO₄) zweiachsig, mm2 a,b,c:X,Y,Z; $n_X < n_Y < n_Z$	0.35-5.3	$d_{\text{oeo}} = d_{24} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{24} = 2.53$
RTA (RbTiOAsO₄) zweiachsig, mm2 a,b,c:X,Y,Z; $n_X < n_Y < n_Z$	0.35-5.3	$d_{\text{oeo}} = d_{24} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{24} = 2.29$
CTA (CsTiOAsO₄) zweiachsig, mm2 a,b,c:X,Y,Z; $n_X < n_Y < n_Z$	0.35-5.3	$d_{\text{oeo}} = d_{24} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{24} = 2.05$
LiIO₃ negativ-einachsig, 6	0.28-6	$d_{\text{oeo}} = d_{31} \sin\theta$	$d_{31} = 4.4$
LNB (LiNbO₃) negativ-einachsig, 3m	0.35-5.5	$d_{\text{oeo}} = d_{31} \sin\theta - d_{22} \cos\theta \sin 3\varphi$	$d_{31} = -4.64$ $d_{22} = 2.46$
KNB (KNbO₃) zweiachsig, mm2 a,b,c:-Y,X,Z; $n_X > n_Y > n_Z$	0.39-5.6	$d_{\text{oeo}} = d_{31} \sin\theta$ in XZ für $\theta > \vartheta_Z$	$d_{31} = -11.9$

Tab. 4.1: Potentielle Kandidaten für OPA im Spektralbereich 3 – 4 μm mit Ti:Saphirlaserpumpen.

LiIO₃ ist gut transparent im MIR (s. Abb. 4.1), aber hat eine für OPA-Anwendungen zu niedrige Zerstörungsschwelle. KTP hat eine höhere Zerstörungsschwelle, aber zeigt, wenn um 800 nm gepumpt wird, erst bei Idlerwellenlängen ($>3.5 \mu\text{m}$), wo der Kristall bereits stark absorbiert, günstiges GVM-Verhalten für das fs-Regime (Abb. 4.1 und 4.2). Das gilt auch für RbTiOPO₄ (RTP). Darüber hinaus sind die Umwandlungseffizienz und Verstärkung in allen KTP-Isomorphen aufgrund niedriger Nichtlinearität (s. Tab. 4.1) kleiner als in KNB [HCX95, Pvn95, EWB97, GGH97, PNS97]. KNB zeigt seinerseits zwar gute GVM- und Transmissionseigenschaften um 4 μm , aber man hat eine deutliche Abnahme der erzeugten Idlerenergie unterhalb 3.7 μm beobachtet, die durch ungünstiges GVM-Verhalten in diesem Spektralbereich beim Pumpen um 800 nm (Abb. 4.2) verursacht wird [PNf96, KjW96].

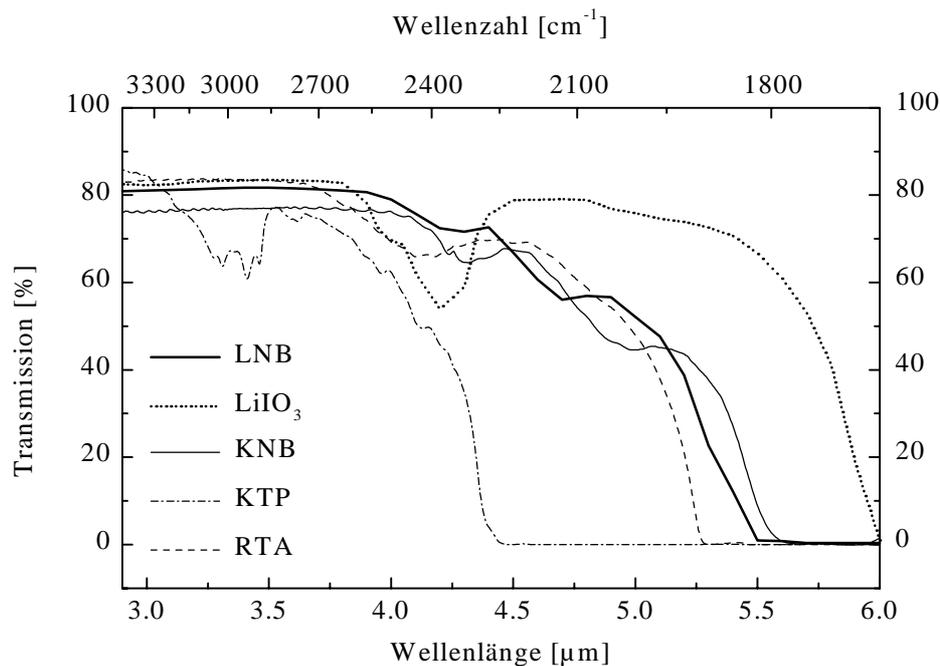


Abb. 4.1: MIR-Transmissionskurven einiger nichtlinearen Kristalle (alle 4 mm lang), gemessen mit unpolarisiertem Licht. Die Transmission von KTA und CTA ist nicht von RTA zu unterscheiden, RTP verhält sich sehr ähnlich wie KTP und MLN wie LNB.

In dieser Arbeit wurden LiNbO₃-Kristalle mit einer MgO-Dotierung (MLN) verwendet. Für die Auswahl dieses Materials für OPA gab es mehrere Gründe: Die Dotierung mit MgO reduziert die photorefraktive Effekte (Änderung der Brechzahl sowie Entstehung von Farbzentren bei hoher Leistung), was sonst in LNB nur mit erhöhter Temperatur erreicht werden kann [BGT84]. Mit 7 % Dotierung waren bereits im ps-Regime gute Ergebnisse publiziert [LSt96] und entsprechend angepasste Sellmeier-Koeffizienten lagen vor [LTT96]. Für 5 % Dotierung sind die aktuellen Sellmeier-Koeffizienten in [ZSJ97] zu finden. Die obere Transparenzkante in MLN liegt bei $\approx 5.5 \mu\text{m}$ und ist somit langwelliger als in KTP (Tab. 4.1). Zusätzlich zeigt MLN keine Absorptionslinie bei $3.3 \mu\text{m}$, welche ein typisches Problem in KTP darstellt [PNS97]. Die effektive Nichtlinearität von MLN für Typ I-Wechselwirkung ist gegeben wie bei LNB durch $d_{\text{oe}} = d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin 3\varphi$ und für Typ II-Wechselwirkung durch $d_{\text{coe}} = d_{\text{oce}} = d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\varphi$. Die beiden nichtlinearen Koeffizienten d_{31} und d_{22} besitzen entgegengesetzte Vorzeichen. Für die effizientere Typ I-Wechselwirkung wird d_{oe} maximal bei einem azimuthalen Winkel von $\varphi = 30^\circ$ oder -90° . Der nichtlineare Koeffizient d_{31} wurde bisher nur bei MLN mit 5 % Dotierung gemessen [EMF90]. Der gemessene Wert $d_{31}(1064 \mu\text{m}) = -4.7 \text{ pm/V}$ zeigt aber kaum Abweichung von dem des nicht-dotierten Kristalls

(s. Tab. 4.1) und daher kann man die beiden nichtlinearen Koeffizienten d_{31} und d_{22} aus Tab. 4.1 für unsere MLN-Proben trotz einer anderen Dotierung verwenden.

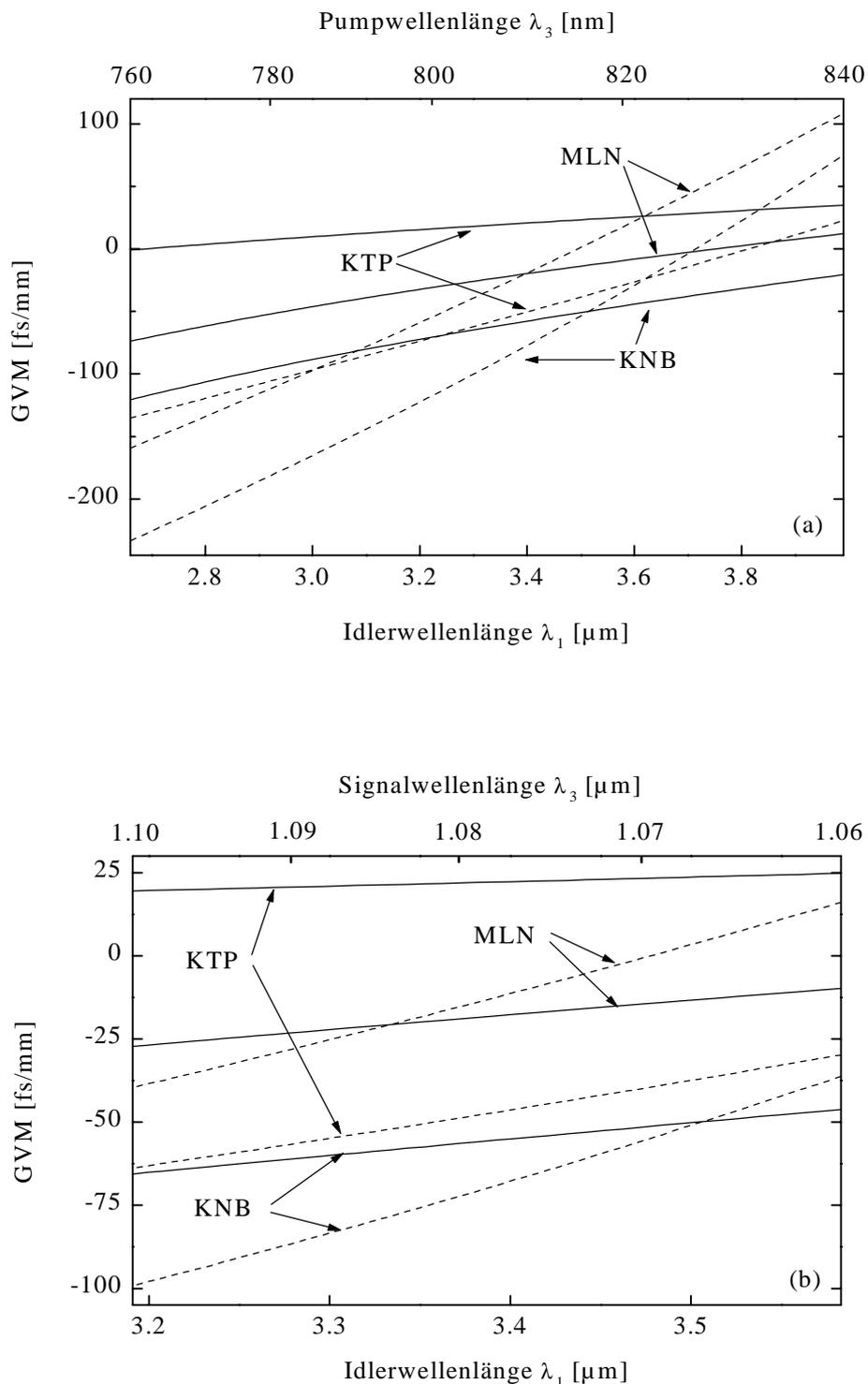


Abb. 4.2: GVM in MLN, KNB und KTP: Δ_{13} (gestrichelte Linien) und Δ_{23} (durchgezogene Linien). (a) Signalwellenlänge ist fest ($\lambda_2 = 1.064 \mu\text{m}$) und Pumpwellenlänge wird variiert. (b) Pumpwellenlänge ist fest ($\lambda_3 = 818 \text{ nm}$) und Signalwellenlänge wird variiert. Die Sellmeier-Koeffizienten für MLN sind aus [LTT96] für 7 % Dotierung, für KNB aus [GHg94] und für KTP aus [CCG94].

Das sogenannte "figure of merit" (FOM) für OPA wird hier als $FOM = d_{\text{eff}}(n_1 n_2 n_3)^{-1/2}$ [s. Gl. (2.21)] definiert. Man erhält damit einen Vergleich von $FOM(\text{KNB}):FOM(\text{MLN}):FOM(\text{KTP}) \approx 1:0.6:0.4$, wenn man einen OPA um 800 nm pumpt. Obwohl MLN ein geringeres FOM als KNB hat, kann man aus der Darstellung in Abb. 4.2 erkennen, daß MLN nahezu im gesamten interessanten Spektralbereich aufgrund der geringeren GVM für OPA-Anwendung das bessere Material zu sein scheint. Die exponentielle parametrische Verstärkung für die Signal- und Idlerwelle hängt linear sowohl von dem FOM des Kristalls als auch von der entsprechenden L_{GVM} ab. Diese Tatsache führt dazu, daß die kleinere GVM von MLN das niedrigere FOM, verglichen mit KNB, kompensieren kann. Diese geringe GVM bedeutet, daß man einerseits im fs-Regime etwas längere Kristalle verwenden kann, um höhere parametrische Verstärkung und somit höhere Umwandlungseffizienz ohne wesentliche Impulsverbreiterung zu erreichen, und andererseits sollte es möglich sein, extrem kurze Lichtimpulse mit kurzen MLN-Proben durch OPA zu erzeugen.

Für unsere Experimente standen MLN-Proben mit Längen von 1, 2, 4, 10 und 20 mm (7 % Dotierung, CASIX, China) und zwei 8 mm langen Proben (5 % Dotierung, CASTECH, China) zur Verfügung. Alle Proben waren unbeschichtet mit $\theta=46^\circ$, $\varphi=30^\circ$ Schnitt.

Es sei angemerkt, daß im betrachteten MIR-Spektralbereich die große spektrale Bandbreite von MLN mit quasi-wellenlängenunabhängiger Phasenanpassung verbunden ist (quasi nichtkritische Phasenanpassung). Für geseedete fs-OPA's, wie es bei uns der Fall ist, ist die große Bandbreite ein wichtiger Vorteil, da hier die gesamte Bandbreite des Pumpimpulses herunter transformiert werden kann und zusätzlich eine Impulsverkürzung stattfinden kann. Die spektrale Kontrolle erfolgt dabei durch den Seedimpuls, der schmalbandig sein muß. Die berechnete Winkelabhängigkeit der Phasenanpassung wird in einem späteren Abschnitt 4.1.2.2 zusammen mit den gemessenen Idlerenergiewerten dargestellt.

Neben den MLN-Proben standen auch KTP-Proben mit periodischer Struktur (PPKTP) zur Verfügung, um erstmals mit diesem Material OPA im MIR-Spektralbereich um 3 μm zu demonstrieren. Dies wird aber in einem späteren Abschnitt ausführlich behandelt.

4.1.2. Nanosekunden-Mikrolaser bei 1064 nm als Seedquelle für MgO:LiNbO₃ (MLN)-OPA

Nanosekunden-Lichtimpulse sind am besten zum Seeden geeignet, da sie einerseits ausreichende Intensität (im Vergleich zu kontinuierlichen Lasern) liefern können. Andererseits sind ns-Impulse einfacher zu generieren und zeitlich zu synchronisieren als fs-

oder ps-Lichtimpulse. Ein aktiv gütegeschalteter (Q-switched) Laser bei einer fixierten Wellenlänge (z. B. Nd:YAG-Laser) ist die einfachste Variante. In diesem Experiment wird ein dioden-gepumpter Mikrolaser als Seedquelle verwendet. Das Modell PML 1000 (cw gepumpter Nd:YVO₄-Laser, Energy Compression Research) emittiert über 90 % seiner Energie in der TEM₀₀-Gauß'sche Mode mit einer Puls zu Puls-Reproduzierbarkeit von besser als 2 %. Die Einzelimpulsenergie bei 1064 nm beträgt 8 μ J und die aktive Güteschaltung durch LASS („light-activated silicon switch“, getriggert durch eine gepulste Laserdiode) erlaubt eine Impulsdauer von etwa 1 ns. Das entspricht einer Spitzenleistung von 8 kW, die ausreichend für Seeding von einem fs-OPA sein sollte [PvN95, PNF96].

Die mittlere Leistung bei einer Repetitionsrate von 1 kHz beträgt nur 8 mW. Dadurch erreicht man eine niedrige thermische Belastung für den OPA-Kristall sowie für die verwendeten spektralen Filter. Die Impulsdauer von 1 ns ist speziell für unsere Anwendung extrem gut geeignet, da sich solche Impulse noch ohne großen Aufwand mit einem fs-Impulszug elektronisch synchronisieren lassen. Die Kombination 1 ns und aktives Q-switching macht diesen Laser einzigartig.

4.1.2.1. Experimentelle Anordnung

Zuerst wurden einstufige fs-OPA-Experimente mit ns-Seeding mit MLN in kollinear Geometrie durchgeführt. Als Pumpquelle stand das gleiche 1 kHz Ti:Saphir-Verstärkersystem, das im VUV-Experiment (Abs. 3.2.2) verwendet wurde, zur Verfügung. Ein detailliertes Schema des experimentellen Aufbaus ist in Abb. 4.3 gezeigt.

Voraussetzung für eine hinreichend gute elektronische Synchronisation ist, daß der gütegeschaltete Impuls einen im Verhältnis zur Impulsdauer kleinen zeitlichen Jitter besitzt. Dazu wurde der Jitter mit einem Impulsgenerator als Trigger (Stanford Research DG 535) vermessen, wobei der Generator selbst einen intrinsischen Jitter von 50 ps (rms) aufweist. Die Abb. 4.4 und 4.5 zeigen eine Einzelschuß-Aufnahme und eine 2 s lang laufende Aufnahme von 2000 Seed-Impulsen bei 1 kHz, aufgezeichnet mit einer Ge-Photodiode (Response: 100 ps FWHM). Die Gesamtresponse des Systems Photodiode/Oszilloskop (HP547XX) betrug ca. 450 ps (FWHM). Der Jitter kann mit etwa 300 ps abgeschätzt werden.

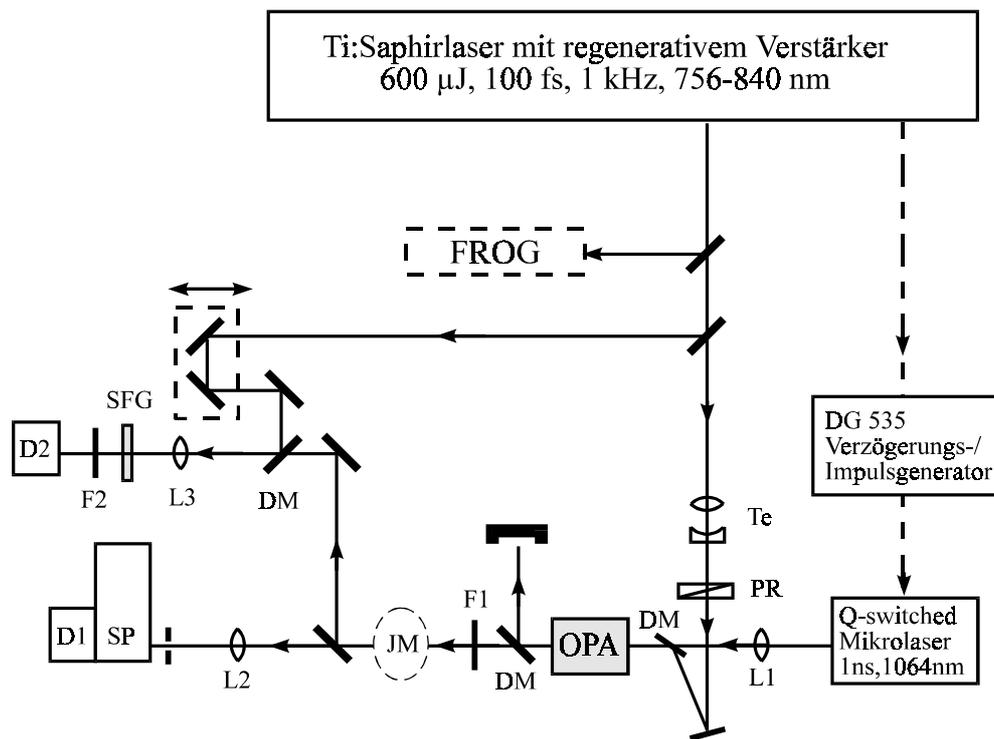


Abb. 4.3: fs-OPA mit ns-Seeding durch einen Q-switched Mikrolaser in kollinearier Geometrie. **FROG** („Frequency-resolved optical gating“): Diagnostik-Modul, **OPA**: MLN-Kristall, **SFG**: Summenfrequenzerzeugung zur Impulsdauermessung durch Kreuzkorrelation, **Te**: Teleskop, **PR**: Polarisationsdreher, **SP**: Monochromator, **D1**: PbSe-Photodiode, **D2**: Si-Photodiode, **JM**: Joule-Meter, **DM**: 800 nm, 45°-Laserspiegel auf CaF₂-Substrat, **L1**: 12 cm AR-beschichtete Linse, **L2**: 5 cm BaF₂-Linse, **L3**: 25 cm BaF₂-Linse, **F1**: Ge-Filter, **F2**: Interferenzfilter.

Um die notwendige Pumpintensität zu erreichen, wird der Pumpstrahl durch ein Teleskop auf einen Gauß'schen Durchmesser von 2.3 mm kollimiert. In dieser Anordnung spielt die Strahldivergenz im Kristall keine Rolle. Die hier verwendete axiale Spitzenpumpintensität I_{3m} betrug maximal 130 GW/cm^2 (einfallend). Der Polarisationsdreher PR dreht zur richtigen Polarisation für die Typ I-Wechselwirkung. Der Seedstrahl bei der Signalwellenlänge wird mit einer Linse L1 zu einem etwas kleineren Durchmesser (1.6 mm) kollimiert. Beide Strahldurchmesser bleiben während der ganzen Messung konstant.

Der Pumpimpuls wird mit dem Seedimpuls durch einen dichroitischen Spiegel kollinear kombiniert und anschließend nach einstufiger OPA mithilfe eines dichroitischen Spiegels und einem Filter diskriminiert, um die erzeugten Idlerimpulse zu charakterisieren. Es ist zu erwähnen, daß für unseren Kristallschnitt mit $\theta=46^\circ$ der berechnete räumliche Walk-off-Winkel $\rho=1.6^\circ$ beträgt und daher im Experiment kaum Einfluß auf Umwandlungseffizienz hat, da hier der gewählte Strahlquerschnitt des Pumpimpulses genügend groß war; es ergibt sich $L_\rho \approx 73 \text{ mm} \gg L$.

Die spektralen Eigenschaften der Idlerimpulse werden mit einem 0.5-m Monochromator (150-Linien/mm-Gitter, geblazed bei $4\ \mu\text{m}$) in Kombination mit einer PbSe-Diode charakterisiert.

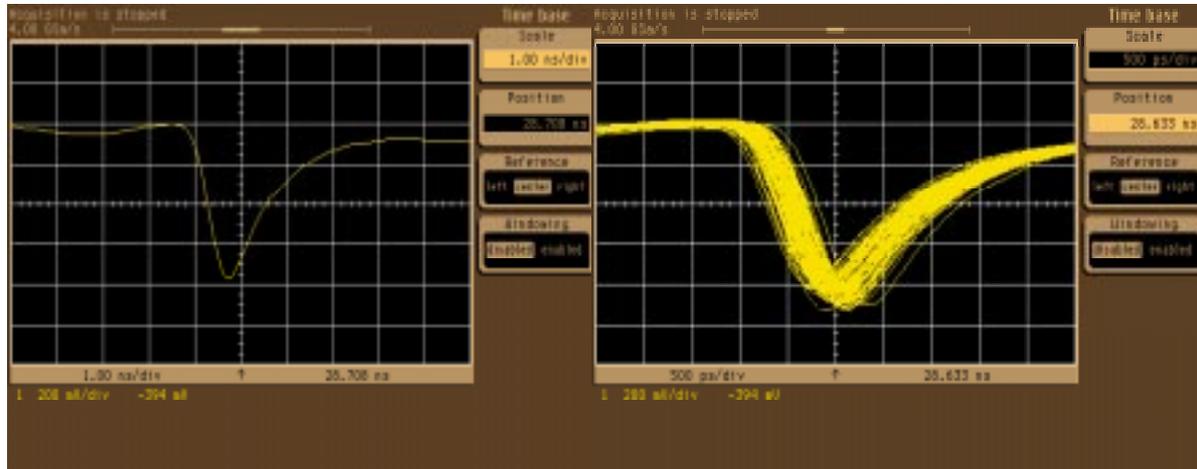


Abb. 4.4: Single-shot Q-switched Seedimpuls (Zeitskala 1 ns/div).

Abb. 4.5: 2 Sekunden-lange Aufnahme mit einer Zeitskala von 500 ps/div.

Zur Bestimmung des zeitlichen Verhaltens werden Kreuzkorrelationsmessungen durchgeführt, indem die Summenfrequenz zwischen den generierten Idlerimpulsen und einem Referenzimpuls bei der Ti:Saphir-Laserwellenlänge in einem 0.3 mm langen LiIO_3 -Kristall erzeugt wird. Die GVM zwischen diesen eingestrahelten Impulsen beträgt $\Delta_{21} \approx 220\ \text{fs/mm}$ in LiIO_3 und hat daher nur einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Breite der aufgenommenen Korrelationsfunktionen.

4.1.2.2. Ergebnisse und Diskussion bei kollinearer Wechselwirkung

Die in diesem Abschnitt beschriebenen Experimente werden mit den 4, 10 und 20 mm MLN-Kristallen durchgeführt. Die Abbildung 4.6 zeigt die Ergebnisse mit der 10 mm langen MLN-Probe. Die Abhängigkeit der Idlerenergie entspricht qualitativ dem GVM-Verhalten für MLN aus Abb. 4.2a und wird im Bereich oberhalb von $3.7\ \mu\text{m}$ durch die Kristallabsorption nur schwach beeinflusst (Abb. 4.1). Im Maximum der Energiekurve wurde die höchste Umwandlungseffizienz (Signal + Idler) von 30 % (40 % mit Berücksichtigung der Fresnel-Verluste an den Kristalloberflächen) mit diesem einstufigen OPA erreicht. Das ist wesentlich mehr als bisher z. B. mit KTP [PvN95] oder KNB [PNf96] demonstriert wurde.

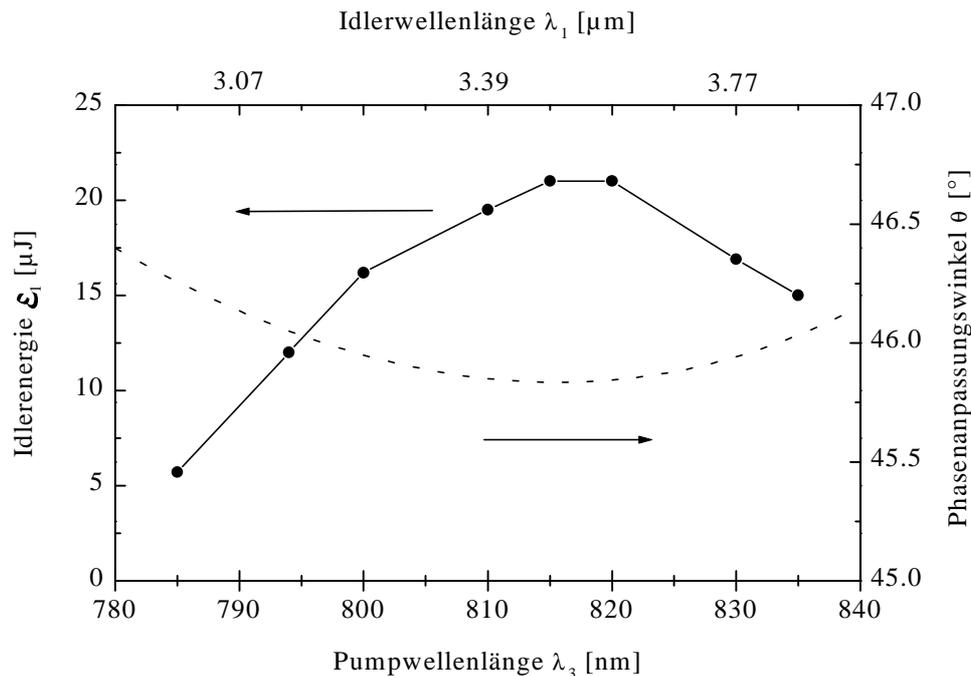


Abb. 4.6: Idlerenergie \mathcal{E}_1 in Abhängigkeit von der Pump- (Idler)wellenlänge für den 10 mm langen MLN. I_{3m} beträgt etwa 130 GW/cm^2 bei $T_3=100 \text{ fs}$. Die gestrichelte Kurve zeigt die kleinen Veränderungen der Winkelphasenanpassung, die für diesen Abstimmbereich notwendig sind.

Im allgemeinen hängen die erreichte Idlerenergie und Umwandlungseffizienz nicht nur von der Wechselwirkungslänge ab, sondern werden auch durch Konkurrenzprozesse beeinflusst. Bei den verwendeten Pumpintensitäten wird die parametrische Verstärkung bereits bei 10 mm Kristalllänge gesättigt (siehe die 100 fs-Kurven in Abb. 4.7).

Bei der maximalen Spitzenpumpintensität I_{3m} von 130 GW/cm^2 konnte keine optisch sichtbare Zerstörung oder Bildung von Farbzentren im Material beobachtet werden. Mit dem 10 mm MLN-Kristall konnte aber ein ungesedeter parametrischer Konus beobachtet werden. Dieser Konkurrenzprozeß konnte völlig unterdrückt werden, sobald der fs-OPA geseedet wurde.

Die nichtlinearen Verluste für den Pumpstrahl (gemessen durch die Kristalltransmission) waren in dem 10 mm langen Kristall bei einer Pumpwellenlänge von $\lambda_3=785 \text{ nm}$ und $I_{3m}=75 \text{ GW/cm}^2$ fast doppelt so groß (etwa 8 %) als bei 815 bzw. 835 nm, was mit Zwei-Photonen-Absorption erklärt werden kann. Die Bandkante von MLN ist nicht genau bekannt, aber die lineare Absorption für den außerordentlichen Strahl beginnt etwa bei 390 nm.

Im Falle des 20 mm langen Kristalls wurden bei $I_{3m}>100 \text{ GW/cm}^2$ im gesamten Wellenlängenbereich auch andere nichtlineare Konkurrenzprozesse, wie Weißlichterzeugung und Selbstfokussierung beobachtet, die zu Verlusten der Pumpleistung und damit der

Idlerenergie führten. Im Gegensatz zu dem 10 mm langen Kristall konnte im 20 mm MLN-Kristall ungeseedete parametrische Verstärkung auch mit ps-Pumpimpulsen beobachtet werden.

Sowohl bei 4 mm als auch bei 10 mm langen Kristallen lag die Idlerenergie mit ps-Pumpimpulsen immer unter den Werten, die mit $T_3=100$ fs erreicht wurden, d.h. die erhöhte Wechselwirkungslänge konnte die reduzierte Pumpintensität nicht kompensieren.

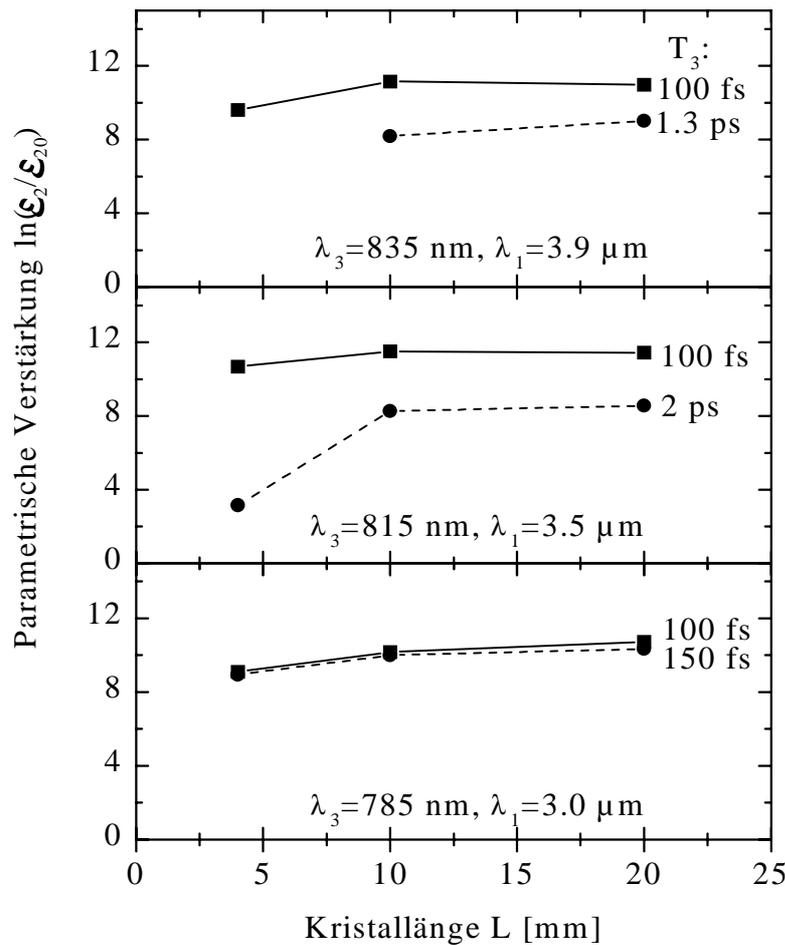


Abb. 4.7: Abgeschätzte exponentielle parametrische Verstärkung bei $\lambda_2=1064$ nm für drei Pump- (bzw. Idler-)Wellenlängen in Abhängigkeit von der Kristalllänge (4, 10 und 20 mm). Die längere Pumpimpulsdauer wurde durch Justage des Kompressors im regenerativen Verstärker erreicht und so ausgewählt, daß die Idlerenergie immer für den 20 mm langen MLN-Kristall maximiert wurde. Mit dem 4 mm MLN konnte keine parametrische Verstärkung bei $\lambda_1=3.9$ μ m und Pumpen mit ps-Impulsen beobachtet werden. \mathcal{E}_2 wurde durch die gemessene Idlerenergie mit $\mathcal{E}_2 = (\omega_2 / \omega_1)\mathcal{E}_1$ ausgerechnet. Es ist zu beachten, daß die Seedenergie über $\mathcal{E}_{20} \approx T_3 \cdot P_{2m}$ (Spitzenseedleistung $P_{2m}=7.5$ kW vor dem Kristall) von der Pumpimpulsdauer T_3 abhängt.

Der 20 mm lange MLN liefert sowohl im Bereich von großen GVM's (d. h. λ_3 um 835 nm) als auch bei geringerem Unterschied der Gruppengeschwindigkeiten weniger Idlerenergie mit fs-Pumpimpulsen (siehe Abb. 4.7).

Der 4 mm lange MLN-Kristall erlaubt generell nur eine geringere Umwandlung, d.h. aus den in Abb. 4.7 dargestellten Messungen (Sättigung) kann man schließen, daß bei einer axialen Spitzenpumpintensität I_{3m} oberhalb von etwa 100 GW/cm^2 Kristallängen etwas kürzer als 10 mm optimal für den gesamten Abstimmbereich nutzbar sind.

Aus Messungen der nichtlinearen Verluste für die Pumpimpulse in Abhängigkeit von der Wellenlänge, Pumpintensität und -impulsdauer konnte man eine optimale Kristalllänge von etwa 8 mm bei $T_3=100 \text{ fs}$ und $I_{3m}=130 \text{ GW/cm}^2$ abschätzen.

Die folgende Tabelle 4.2 zeigt einen Vergleich der Ergebnisse (Idlerenergie) mit dem 4 mm MLN-Kristall und mit einer KNB-Vergleichsprobe (gleiche Länge, $\theta=48.9^\circ$, $\varphi=0^\circ$, siehe Tab. 4.1) unter identischen Pump- und Seedbedingungen. Die Pumpenergiedichte beträgt immer 13 mJ/cm^2 . Die zwei ausgewählten Wellenlängen entsprechen ungefähr dem optimalen Regime von MLN bzw. KNB aufgrund der minimalen GVM's. Man sieht, daß MLN bei $\lambda_1=3.5 \mu\text{m}$ mit fs-Pumpimpulsen ungefähr die gleiche Idlerenergie liefert wie KNB bei $\lambda_1=3.9 \mu\text{m}$ obwohl der nichtlineare Koeffizient von MLN etwa zweimal kleiner ist (s. Tab. 4.1). Das ist durch die geringeren GVM's in MLN zu erklären (Abb. 4.2a).

	$\lambda_3=815 \text{ nm}, \lambda_1=3.5 \mu\text{m}$	$\lambda_3=835 \text{ nm}, \lambda_1=3.9 \mu\text{m}$
T_3	100 fs	100 fs
MLN	8 μJ	2.3 μJ
KNB	6.2 μJ	9 μJ

Tab. 4.2: Vergleich der erzeugten Idlerenergie in 4 mm langen MLN und KNB.

Die räumlich integrierte parametrische Verstärkung weist im Falle des 10 mm langen MLN-Kristalls aufgrund der Sättigung nur eine geringe Abweichung von der linearen Abhängigkeit (Abb. 4.8) als Funktion der Quadratwurzel der Pumpintensität auf. Diese Abhängigkeit in der „fixed-field“-Näherung wurde im Abschnitt 2.2 erläutert.

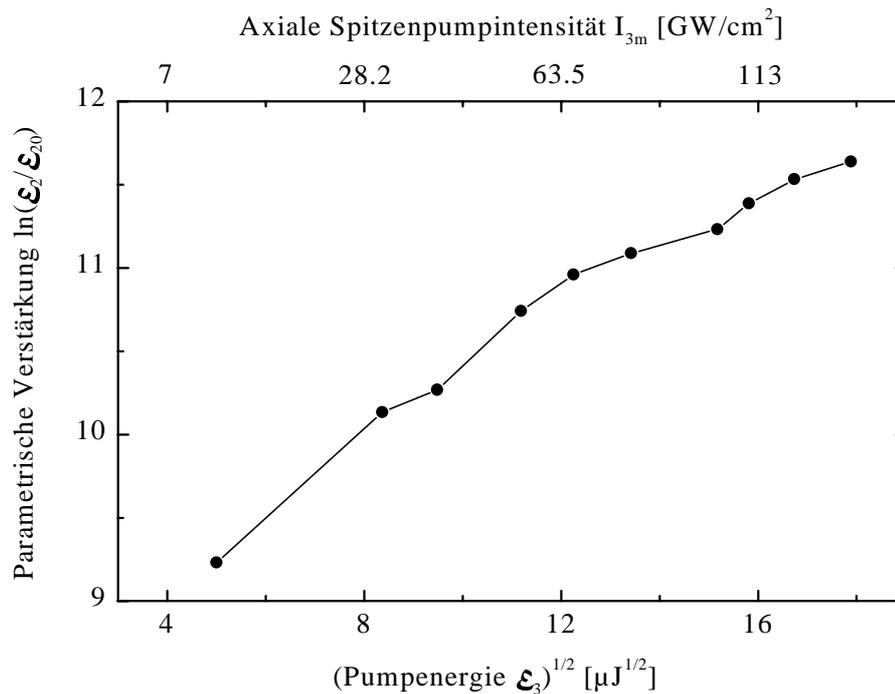


Abb. 4.8: Exponentielle parametrische Verstärkung im 10 mm langen MLN Kristall bei $\lambda_2=1064$ nm, $T_3=100$ fs und $\lambda_3=818$ nm ($\lambda_1=3.54$ μm). Die Skalierung der Abszisse erlaubt einen direkten Vergleich mit der Theorie, wenn GVM und Sättigung vernachlässigt werden können, da in diesem Fall für ebene Wellen $\epsilon_2 / \epsilon_{20} = 0.25\exp(2g_0L)$ gilt (s. Abs. 2.2).

Die Abbildung 4.9 zeigt, daß eine Spitzenseedleistung von nur 10 mW für die Erzeugung von >1 μJ fs-MIR-Impulsen völlig ausreicht. Dies bedeutet, daß die Seedschwelle durch die bessere Seedstrahlqualität und größere Wechselwirkungslänge in MLN um drei Größenordnungen im Vergleich zu den früheren Ergebnissen mit KNB reduziert werden konnte [PNf96]. Im Kleinsignallimit (links in Abb. 4.9) beträgt die ungesättigte parametrische Verstärkung G_0 bei der Signalwellenlänge etwa $5 \cdot 10^9$, was nur eine Größenordnung weniger als die Verstärkung ist, die für parametrische Generation aus dem Quantenrauschen notwendig wäre [MMT86]. Die Sättigung (rechts in Abb. 4.9) stabilisiert die Fluktuationen in der Ausgangsenergie und daher konnte bei höheren Umwandlungsraten eine hervorragende Puls zu Puls-Stabilität von 2 % beobachtet werden, die vergleichbar mit der Reproduzierbarkeit der Pumpimpulse ist. Die entsprechende Langzeitstabilität war besser als 8 %.

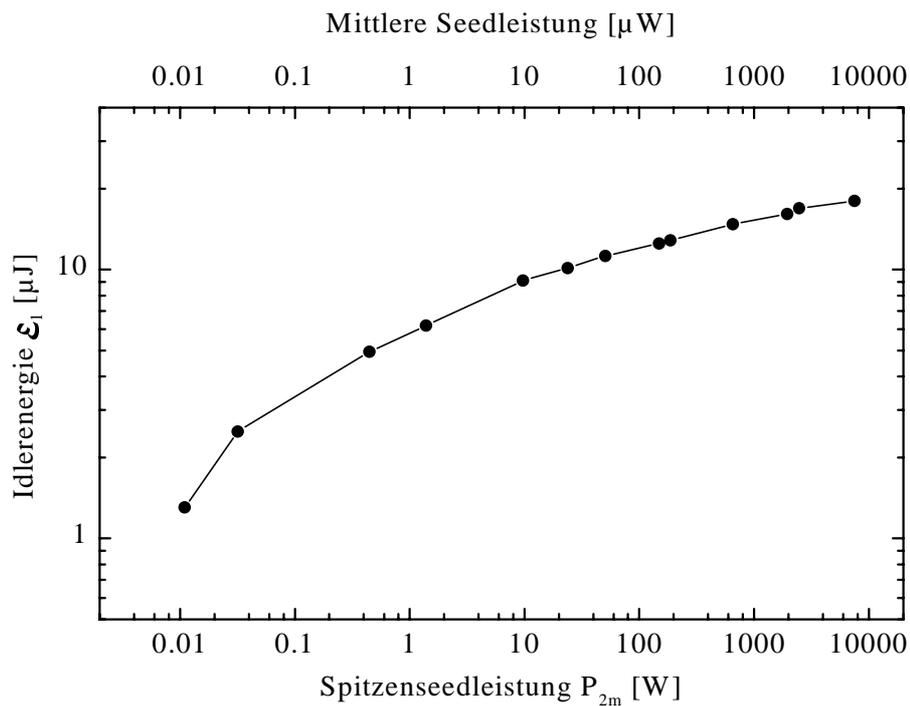


Abb. 4.9: Sättigungsverhalten des 10 mm MLN-OPA bei $T_3=100$ fs, $\lambda_3=818$ nm ($\lambda_1=3.54$ μ m) und $I_{3m}=130$ GW/cm². Für diese Messung wurde die Seedleistung durch kalibrierte NG-Glasfilter reduziert.

Den Einfluß der Sättigung konnte man auch durch den Vergleich zwischen OPA und SFG mit den zwei gleichen eingestrahlenen Wellenlängen demonstrieren. Bei SFG können nicht mehr Photonen bei 1064 nm umgewandelt werden als diejenigen, die sich in einem ≈ 100 fs langen Pumpimpulsfenster befinden. In Abb. 4.10 wird gezeigt, daß die SFG-Kurve eine Halbwertsbreite von 1.08 ns hat, was ziemlich genau der Seedimpulsbreite entspricht. Die OPA-Kurve dagegen hat eine Breite von 5 ns, was durch Sättigung erklärt werden kann. Die starke Asymmetrie dieser Kurve hat ihre Erklärung darin, daß der gütegeschaltete Seedimpuls nur an der Vorderflanke steil ist und eine langsame Rückflanke hat, die aber mit einer Photodiode aufgrund der niedrigen Intensität nicht gut zu sehen ist (Abb. 4.4 und 4.5). Die Fluktuationen des OPA-Ausgangssignals (Idlerenergie) sind aufgrund des Jitters des Mikrolasers (Abb. 4.4 und 4.5) bei einer Impulssequenz, bei der das Maximum des Seedimpulses erst nach dem Pumpimpuls kommt (rechte Seite der OPA-Kurve in Abb. 4.10) wesentlich größer. Die Idlerenergie wird viel stabiler, wenn man mit der hinteren Flanke des Seedpulses seedet (linke Seite dieser Kurve).

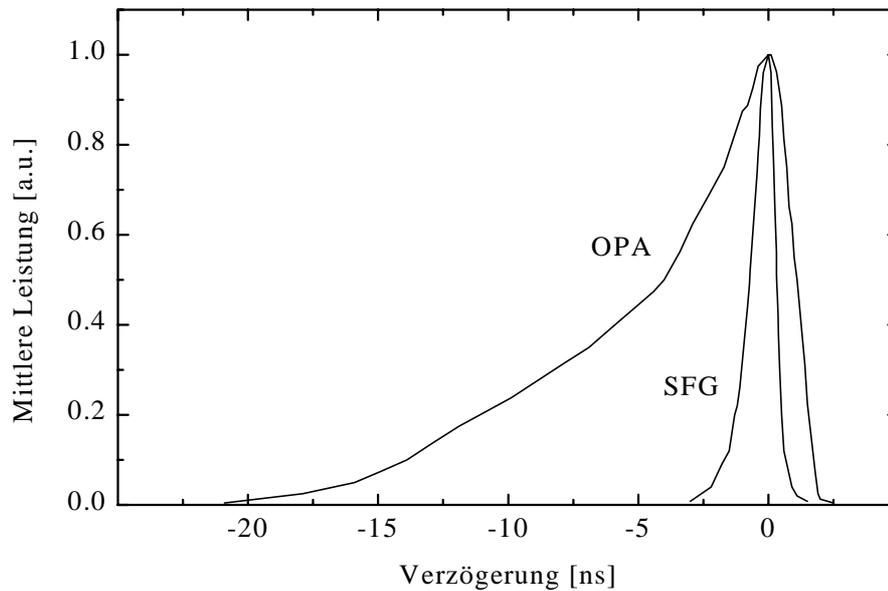


Abb. 4.10: Idlerenergie aus dem OPA mit dem 10 mm MLN-Kristall, gemessen als mittlere Leistung und SFG-Signal mit einem 4 mm langen BBO Kristall ($\theta=20^\circ$ Schnitt für Typ I-Wechselwirkung) in Abhängigkeit von der elektronischen Verzögerung zwischen Pump- und Seedimpulsen. In beiden Fällen ist $\lambda_3=818$ nm und $T_3=100$ fs.

Die Divergenz der erzeugten MIR-Strahlung wurde für den 10 mm langen MLN-Kristall vermessen. Bei $\mathcal{E}_3=300$ μ J, $T_3=100$ fs und $\lambda_3=815$ nm, d. h. im Maximum der Umwandlungseffizienz (Abb. 4.6), ergab sich $2\theta_{1/e}=0.5^\circ=8.7$ mrad bzw. ein räumlicher Winkel $\Omega_{1/e}=\pi(2\theta_{1/e})^2=6\cdot 10^{-5}$ sr. Zur Ermittlung der Beugunglimitierung der erzeugten Impulse wurde der M^2 -Parameter (Abweichung von der TEM₀₀ Gauß'schen Mode) nach Fokussierung mit einer 10 cm CaF₂-Linse bestimmt. Bei einem Wert von $M^2\approx 6$ ergab sich eine fokale Intensität von 75 GW/cm² im Maximum der Durchstimmbarkeitskurve (Abb. 4.6).

Bei der geseedeten OPA in MLN ist die Pumpwellenlänge von 818 nm für den Vergleich der Ergebnisse der drei verschiedenen Kristalllängen sehr interessant, da bei dieser Wellenlänge die zwei GVM-Parameter (siehe Abb. 4.2a) sehr klein sind (nur etwa 10 fs/mm) und außerdem verschiedene Vorzeichen haben. Letzteres bedeutet laut numerischer Berechnungen in [DPS93], daß die exponentielle parametrische Verstärkung $\ln(\mathcal{E}_2 / \mathcal{E}_{20})$ sich immer noch linear proportional zur Kristalllänge L verhält, obwohl sie weniger als die Kleinsignalverstärkung bei $L_{\text{GVM}} \gg L$ ist.

Die Impulsverkürzung, die bei $\lambda_1=3.54$ μ m ($\lambda_3=818$ nm) beobachtet wurde, kann durch den in Abs. 2.6 erwähnten Kompressionsmechanismus („temporal gain narrowing“) erklärt werden

[ACD68]. Wie in [PvN96] gezeigt wurde, kann man durch Einführung einer räumlich gemittelten Pumpintensität mit 50 % des maximalen Wertes ($0.5 \cdot I_{3m}$) den theoretischen Ausdruck für ebene Wellen [Gl. (2.22)] näherungsweise auch für Gauß'sche Bündel verwenden und somit die Kompression abschätzen.

In unserem Experiment zeigt der 10 mm lange MLN-Kristall keine wesentliche Impulsverlängerung gegenüber dem 4 mm langen MLN-Kristall, während sich die Idlerenergie um den Faktor 3 erhöht. Dieses Verhalten bleibt auch bei einer reduzierten Pumpintensität (um den Faktor 2) oder bei Verlängerung der Pumpimpulsdauer bis 200 fs erhalten. Bei $T_3=100$ fs und $I_{3m}=130$ GW/cm² war die Halbwertsbreite der mit LiIO₃ gemessenen Kreuzkorrelationskurve ≈ 200 fs bei den 4 mm und 10 mm langen MLN-Kristallen und verlängerte sich auf 270 fs mit dem 20 mm langen MLN-Kristall. Letzteres ist schwer zu interpretieren, da bei diesem Kristall auch nichtlinear optische Konkurrenzprozesse eine Rolle spielen. Im Prinzip zeigt der Vergleich zwischen den 4 mm und 10 mm langen Kristallen, daß das „temporal gain narrowing“ die Impulsverbreiterung durch GVM gerade kompensiert.

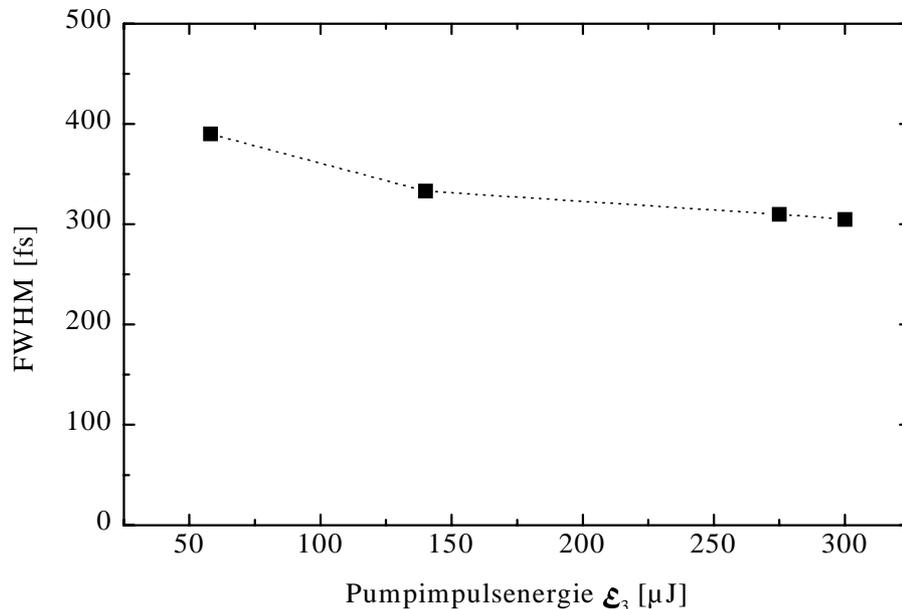


Abb. 4.11: Kreuzkorrelationsbreite (FWHM) in Abhängigkeit von der Pumpimpulsenergie für den 10 mm langen MLN-Kristall als OPA. Der Idler und ein kleiner Teil der Pumpstrahlung bei 818 nm wurden gemischt (SFG). Die Pumpimpulsdauer $T_3=180$ fs entspricht $I_{3m}=72$ GW/cm² bei $\epsilon_3=300$ μ J. Die entfaltete Idlerimpulslänge T_1 variiert dabei von 340 fs bis 237 fs mit zunehmender Pumpimpulsenergie und die Idlerimpulsenergie ϵ_1 steigt von 1.5 μ J auf 20 μ J.

Die von der Pumpleistung und damit vom parametrischen Gain abhängige Impulsverkürzung der erzeugten Idlerimpulse konnte mit dem 10 mm langen MLN-Kristall nur bei verlängerten Pumpimpulsen deutlich beobachtet werden (Abb. 4.11), da in diesem Fall der nichtlineare Kompressionsmechanismus aufgrund größerer Wechselwirkungslänge effizienter ist [ACD68]. Sättigung hatte bei $T_3=180$ fs als Impulsverlängerungsmechanismus keine Bedeutung. Diese Annahme wurde durch Abschwächen der Seedleistung bis auf 2.5 % verifiziert. Die experimentell bestimmte Impulsverkürzung bis auf 70 % in Abb. 4.11 ist in sehr guter Übereinstimmung mit der analytischen Abschätzung, die mit einer $(\mathcal{E}_3)^{1/4}$ -Abhängigkeit ($0.5 \cdot I_{3m}$ angenommen) zu einer Kompression auf 67 % des maximalen Wertes von T_1 in Abb. 4.11 führt.

Typische Werte der Idlerimpulsdauer (FWHM) bei der höchsten Umwandlungseffizienz im Maximum der Durchstimmbarkeitskurve (Abb. 4.6) sind $T_1=160$ fs (Abb. 4.12). Daraus ergibt sich unter der Annahme einer Gauß'schen Impulsform ein Impulsdauer/Bandbreite-Produkt von 0.53, welches etwa dem des Pumpimpulses entspricht. Die Idlerimpulse mit dem 4 mm langen MLN-Kristall waren dagegen mit einem Fourier-Produkt von 0.9 in diesem Spektralbereich nicht bandbreitebegrenzt.

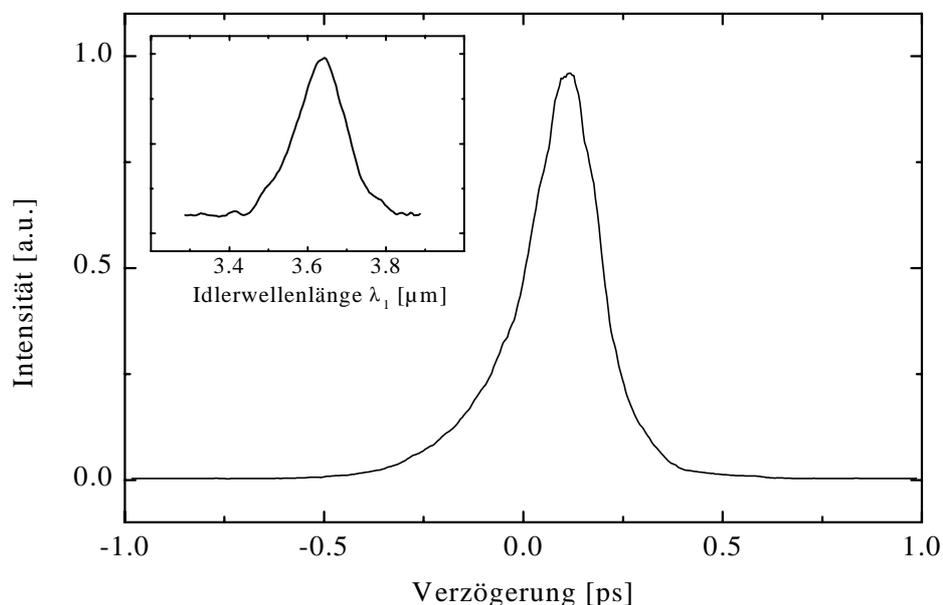


Abb. 4.12: Kreuzkorrelationssignal, erzeugt durch SFG vom Idlerimpuls aus dem 10 mm langen MLN-OPA mit den Pumpparametern $T_3=100$ fs, $\mathcal{E}_3=300$ μJ und das entsprechende Spektrum.

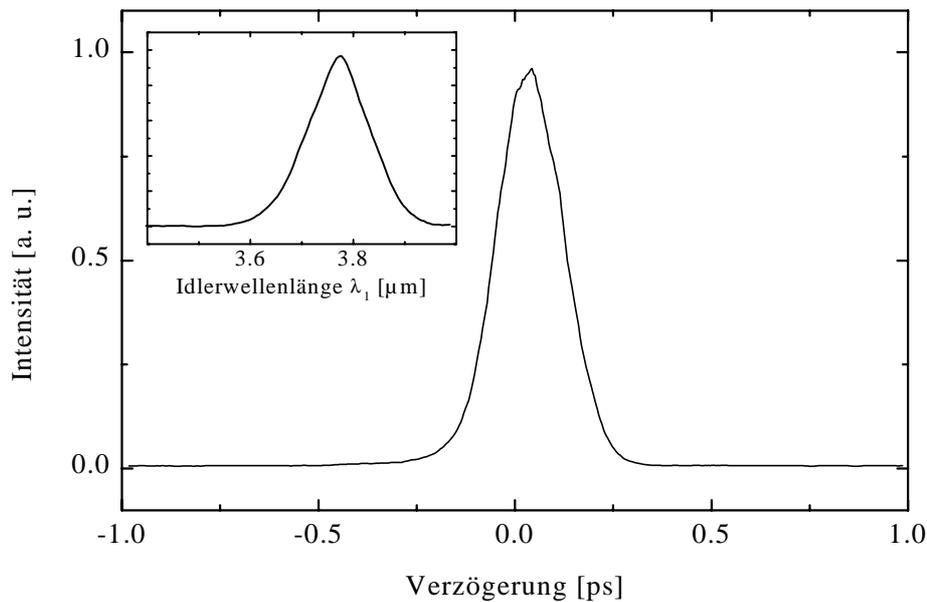


Abb. 4.13: Kreuzkorrelationssignal, erzeugt durch SFG vom Idlerimpuls ($\mathcal{E}_1=1.5 \mu\text{J}$) aus dem 4 mm langen MLN-OPA mit den Pumpparametern $T_3=120 \text{ fs}$, $\mathcal{E}_3=310 \mu\text{J}$ und das entsprechende Spektrum.

Bei kürzeren Idlerwellenlängen wurde die Idlerimpulsdauer T_1 aufgrund der größeren GVM (Abb. 4.2a) bei allen Proben länger. Solche Verbreiterung konnte mit den 10 mm und 20 mm MLN-Kristallen auch bei längeren Wellenlängen beobachtet werden. Da T_1 hier generell größer war, ist auch das „temporal gain narrowing“ deutlicher ausgeprägt. So konnte beispielsweise die Idlerimpulslänge bei dem 10 mm MLN mit $T_3=120 \text{ fs}$ und $\lambda_3=835 \text{ nm}$ von 370 fs auf 180 fs komprimiert werden, indem \mathcal{E}_3 von 145 μJ auf 310 μJ erhöht wurde.

Es soll noch erwähnt werden, daß bei dieser Messung die kürzesten Idlerimpulse mit dem 4 mm langen MLN bei längeren Wellenlängen (rechte Seite von Abb. 4.6) erzeugt werden konnten (Abb. 4.13). Die Idlerimpulsdauer von $T_1=140 \text{ fs}$ entspricht in diesem Fall einem Fourier-Produkt von 0.45.

4.1.2.3. Nichtkollineare Phasen Anpassung

Bereits in den ersten OPG-Experimenten mit fs-Pumpimpulsen ($\lambda_3=620 \text{ nm}$) konnte man den charakteristischen parametrischen Konus beobachten [JBN91], der durch höhere parametrische Verstärkung für nichtkollineare Wechselwirkung erklärt werden kann [DPS93]. Diese höhere Verstärkung ist grundsätzlich auf niedrigere GVM zurückzuführen.

Nichtkollineares Pumpen bei fs-OPG und -OPA, welches hohe Umwandlungseffizienz und kürzere Impulsdauer von Signal und Idler ermöglicht, wurde seitdem mehrmals mit dem

BBO-Kristall bei Pumpwellenlängen um 400 nm (die zweite Harmonische eines fs-Ti:Saphir-Verstärkers), wo die GVM eine größere Rolle spielt, demonstriert [DAF95, KKR95]. Eine besondere Eigenschaft von BBO ist, daß man bei einem bestimmten nichtkollinearen Phasenanpassungswinkel extrem große Bandbreiten erhalten kann [GCD95] und damit Impulsverkürzung erreichen kann. Dies wurde in [CDN97, SKt98] experimentell verifiziert, wobei die generierte Impulsdauer im VIS-Bereich um 10 fs lag.

Um das Potential nichtkollinearer Wechselwirkung im MIR-Spektralbereich abzuschätzen, wurde zuerst die Gruppengeschwindigkeitsanpassung in MLN (7 % Dotierung) numerisch berechnet.

Unsere Berechnung nach Abs. 2.3.1 wurde durch die Winkelgröße von β zwischen -4° und 4° begrenzt, um die externen Winkel in experimentell realistischen Grenzen zu halten. Diese Begrenzung spielt aber in unserem Fall keine wichtige Rolle, da das Intervall für die Pumpwellenlänge, für das die Gruppengeschwindigkeitsanpassung simultan mit der Phasenanpassung erreicht werden kann, bei kürzeren Pumpwellenlängen schmaler wird und schließlich verschwindet (Abb. 4.15).

Als Kriterium für die Phasenanpassung wurde $|\Delta_{32}|, |\Delta_{31}| < 20$ fs/mm angenommen. Die Abb. 4.14 zeigt den berechneten Bereich des Phasenanpassungswinkels θ , der diese Relation erfüllt. Es ist ersichtlich, daß der Winkel θ in diesem Fall stets größer ist, als der bei kollinearer Wechselwirkung (vgl. mit Abb. 4.6).

In den Abb. 4.15–4.17 werden anschließend die entsprechenden Werte der internen Winkel α und β (siehe Abb. 2.2) und des Doppelbrechungswinkels ρ dargestellt.

Es zeigt sich auch ein ähnliches Verhalten (vgl. Abb. 4.14–4.17), wenn umgekehrt bei einer festen Pumpwellenlänge die Signalwellenlänge variiert wird. Die Asymmetrie in Abb. 4.15 und 4.16 hinsichtlich des Vorzeichens von β und α ist nur auf die Doppelbrechung zurückzuführen. Es sei angemerkt, daß sich der Unterschied in den räumlichen Walk-off-Längen für Signal- und Pumpwelle (durch den Ausdruck $\beta+\rho$ bestimmt) und für Idler- und Pumpwelle (bestimmt durch $\alpha-\rho$) gemäß der in Abb. 4.15 und 4.16 dargestellten Resultate durch die Doppelbrechung (Anwesenheit des Doppelbrechungswinkels ρ) verringert.

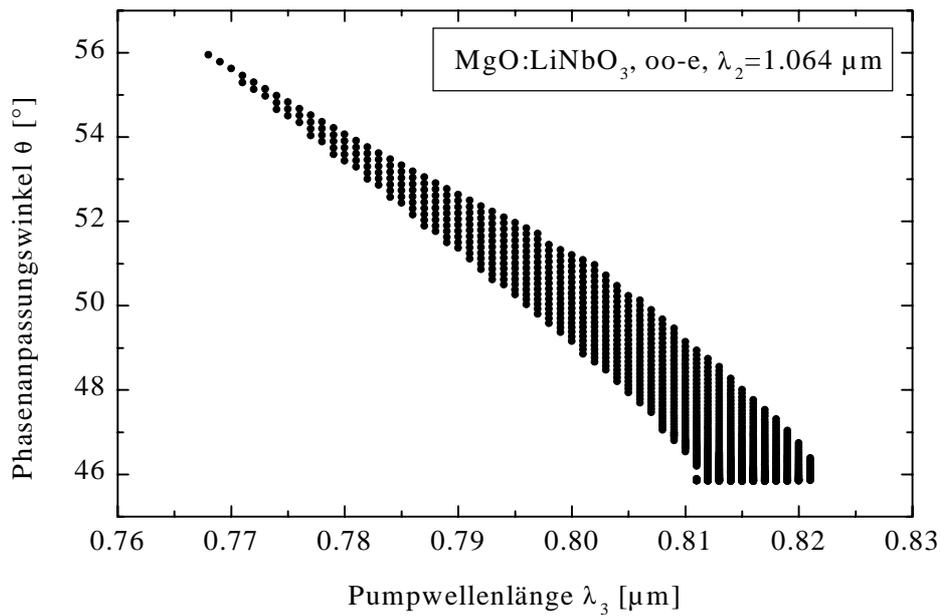


Abb. 4.14: Phasenabstimmungswinkel θ in Typ I-MLN für feste Signalwellenlänge bei $\lambda_2=1.064$ μm , dabei wird die Pumpwellenlänge λ_3 variiert. Die markierte Fläche bedeutet Gruppengeschwindigkeitsanpassung. Die bei der Berechnung verwendeten Sellmeier-Koeffizienten sind für MLN mit 7 % Dotierung [LTT96].

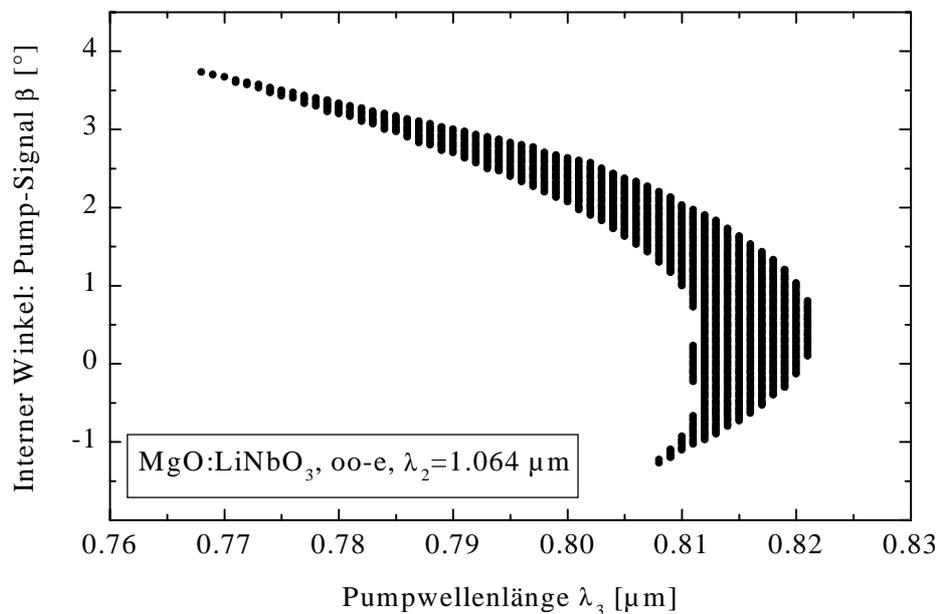


Abb. 4.15: Interner Winkel zwischen den Wellenvektoren von Pump- und Signalimpulsen β als Funktion der Pumpwellenlänge λ_3 unter gleichen Bedingungen wie in Abb. 4.14.

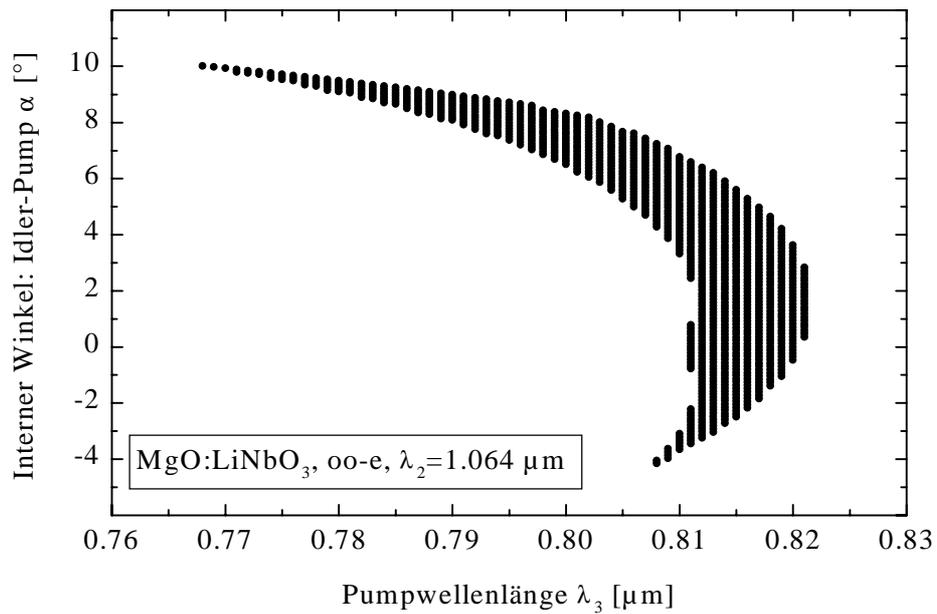


Abb. 4.16: Interner Winkel zwischen den Wellenvektoren von Idler- und Pumpimpulsen α als Funktion der Pumpwellenlänge λ_3 unter gleichen Bedingungen wie in Abb. 4.14.

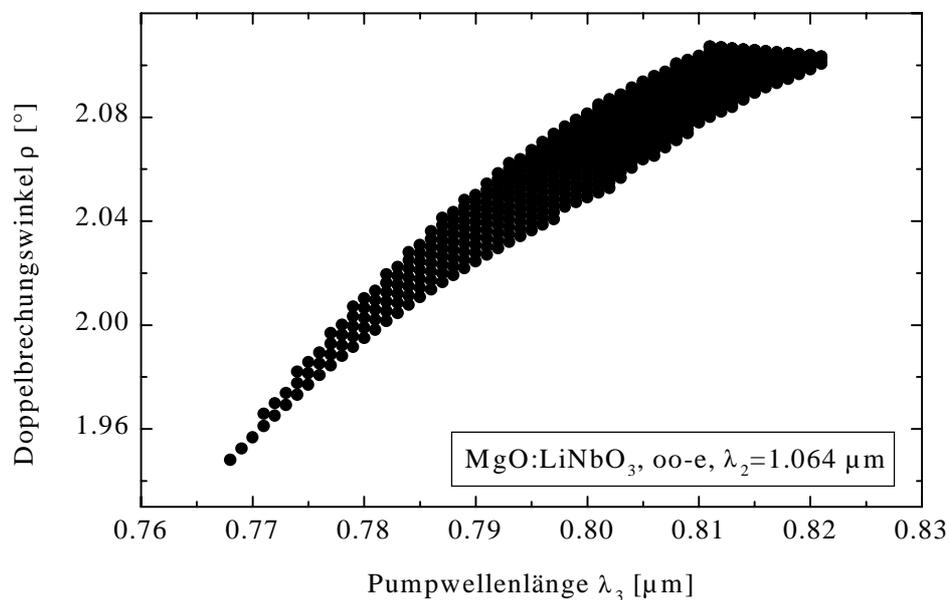


Abb. 4.17: Doppelbrechungswinkel ρ für die außerordentlich polarisierte Pumpwelle für gleiche Parameter wie in Abb. 4.14.

Die experimentelle Anordnung für nichtkollineare OPA wird hier nicht gezeigt, da sie sich vom kollinearen Fall wenig unterscheidet. Hier wurde nur für die nichtkollineare

Phasenanpassung der Pumpstrahl unter einem bestimmten Winkel mit dem Seedstrahl geneigt im OPA-Kristall überlappt.

Zuerst haben wir bei einer Pumpenergie von $\mathcal{E}_3=240 \mu\text{J}$, welche einer axialen Spitzenpumpintensität von $I_{3m}=104 \text{ GW/cm}^2$ entspricht, die Umwandlungseffizienz, die in nichtkollinearer Ausführung erreicht wurde, mit der des kollinearen Falls verglichen. Die Apertur der 8 mm langen MLN-Probe war $8 \times 4 \text{ mm}^2$. Bei $\lambda_3=792 \text{ nm}$ ($\lambda_1 \approx 3.1 \mu\text{m}$) konnte eine Idlerenergie von $\mathcal{E}_1=11.1 \mu\text{J}$ gemessen werden, während die kollineare Geometrie $\mathcal{E}_1=7.4 \mu\text{J}$ lieferte. Die entsprechende interne Umwandlungseffizienz betrug 24 % im nichtkollinearen und 16 % im kollinearen Fall. Die Energie-Fluktuationen der erzeugten Idlerimpulse waren in beiden Fällen etwa gleich. Zusätzlich konnte man bei $\lambda_3=792 \text{ nm}$ mit negativen Werten von α und β in nichtkollinearer Wechselwirkung fast die gleiche Idlerenergie erhalten. Als nächstes wurde λ_3 zu kürzeren Wellenlängen nach 783 nm verschoben. Hier konnte bereits asymmetrisches Verhalten in Bezug auf α und β beobachtet werden (s. Abb. 4.15–16). Dabei wurde eine Idlerenergie von $\mathcal{E}_1=9.7 \mu\text{J}$ bei $\lambda_1=2.96 \mu\text{m}$ für den in Abb. 2.2 dargestellten Fall (α und β positiv) und $\mathcal{E}_1=7.1 \mu\text{J}$ für den anderen Fall (α und β negativ) erreicht. Die Fluktuationen lagen in beiden Fällen bei etwa 5 %. In kollinearer Wechselwirkung wurde bei dieser Pumpwellenlänge eine Idlerenergie von nur $4 \mu\text{J}$ mit Fluktuationen von $\approx 15 \%$ gemessen.

Es konnte festgestellt werden, daß die Umwandlungseffizienz auch im nichtkollinearen Fall, trotz höherer Verstärkung, verglichen mit der kollinearen Ausführung, mit abnehmender Pumpwellenlänge deutlich abfällt. Dieses Verhalten kann nicht mit d_{eff} erklärt werden, sondern ist mehr auf die Verkürzung der räumlichen (durch Zunahme von α und β) und zeitlichen (s. Gl. 2.48) Wechselwirkungslänge zurückzuführen.

Die Abbildung 4.18 zeigt die aufgenommene Kreuzkorrelationskurve mit dem entsprechenden Idlerspektrum im Falle der nichtkollinearen parametrischen Wechselwirkung mit $\lambda_3=783 \text{ nm}$. Aus der Halbwertsbreite ergab sich nach Entfaltung (Gauß'sche Impulsform) eine Impulsdauer von $T_1=125 \text{ fs}$. Die spektrale Halbwertsbreite der erzeugten Impulse führt dann zu einem Impulsdauer/Bandbreite-Produkt von 0.6. Die Abbildung 4.19 zeigt, daß für kollineare Wechselwirkung bei gleicher Pumpwellenlänge eine längere Impulsdauer ($T_1=180 \text{ fs}$) gemessen wurde, was man aufgrund der größeren GVM auch erwartet.

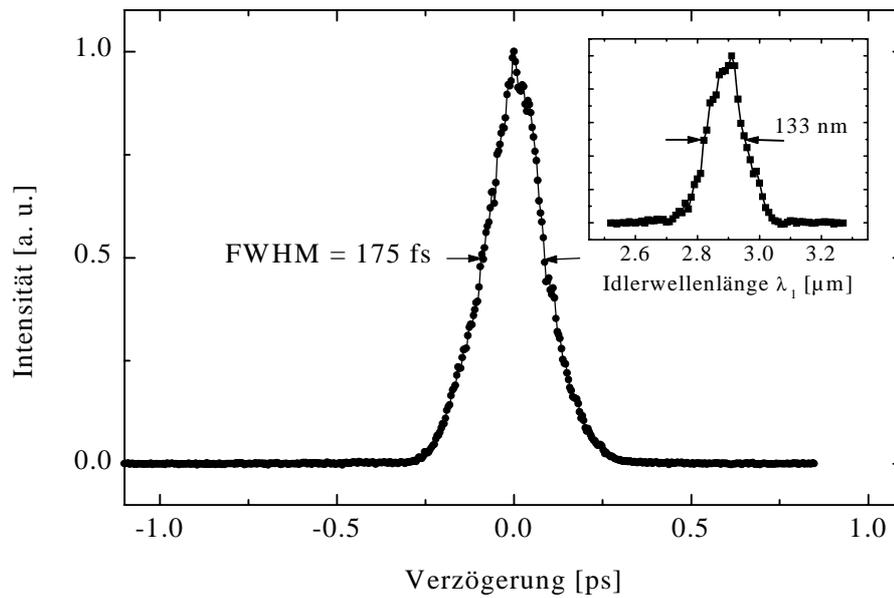


Abb. 4.18: Kreuzkorrelationskurve für den durch nichtkollineare parametrische Verstärkung mit $I_{3m}=104 \text{ GW/cm}^2$ erzeugten Idlerimpuls und das entsprechende Idlerspektrum (inneres Bild).

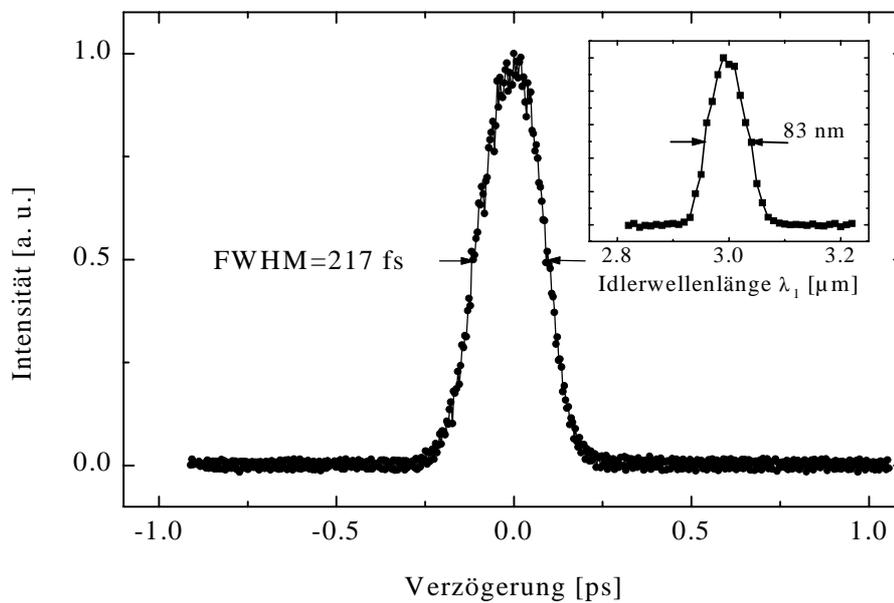


Abb. 4.19: Kreuzkorrelationskurve für den durch kollineare parametrische Verstärkung erzeugten Idlerimpuls und das entsprechende Idlerspektrum (inneres Bild) für gleiche Pumpimpulsparameter wie in Abb. 4.18.

Die nichtlineare Wechselwirkung führt also nicht nur zur erhöhten Umwandlungseffizienz, sondern ermöglicht gleichzeitig die Erzeugung von kürzeren MIR-Lichtimpulsen.

4.1.3. Gepulste Laserdiode um 1064 nm als Seedquelle für MLN-OPA

Wie bereits aus der Messung des Sättigungsverhaltens beim ns-geseedeten OPA-Experiment (Abb. 4.9 in Abs. 4.1.2.2) bekannt ist, reichen extrem niedrige Leistungen völlig aus, um den MLN-OPA bei der Signalwellenlänge zu seeden und damit μJ -Idlerimpulsenergien zu erzeugen. Im Vergleich zu dem bisher eingesetzten gütegeschalteten Mikrolaser bietet eine gepulste Laserdiode die ideale Lösung hinsichtlich Kompaktheit und Kostenaufwand. Ein weiterer Vorteil hierbei liegt in der potentiellen Durchstimmbarkeit der Laserdiode bei der Seedwellenlänge, womit die Idlerwellenlänge unabhängig von der Pumpwellenlänge variiert werden kann. Was die GVM in MLN betrifft, kann man ein ähnliches Verhalten bei Änderung der Seedwellenlänge λ_2 und fester Pumpwellenlänge λ_3 erkennen (Abb. 4.2b), wie im bisherigen Fall fester Seedwellenlänge (Abb. 4.2a).

Im Jahr 1984 wurde erstmals eine Stickstoff-gekühlte PbS-Laserdiode, die 800 ns lange Impulse um $4\ \mu\text{m}$ emittierte, als Seedquelle bei der Idlerwellenlänge in einem LNB-OPA mit ps-Pumpen eingesetzt [BZK84]. In der vorliegenden Arbeit ist es erstmals im fs-Regime gelungen, einen OPA mit Laserdioden-Seeding auf der Signalwellenlänge um $\lambda_2=1064\ \text{nm}$ zu betreiben.

Verglichen mit dem der vorherigen Messungen mit ns-Seeding (Abb. 4.3), unterscheidet sich der Aufbau für dieses Experiment durch die Seedquelle und eine zusätzliche OPA-Stufe. Er ist in Abb. 4.20 dargestellt. Die Pumpwellenlänge wurde bei diesem Experiment bei $\lambda_3=818\ \text{nm}$ festgehalten. Es wurde eine gepulste InGaAs-Laserdiode (EG&G Canada, Model C86120E-10), die bei Raumtemperatur um $1064\ \text{nm}$ emittiert, als Seedlaser verwendet. Die Wellenlänge der Laserdiode lässt sich durch Temperaturänderung des eingebauten Thermoelements von 10 bis zu 120°C , zwischen 1.06 und $1.1\ \mu\text{m}$ abstimmen. Die Temperatur wird durch einen eingebauten Thermistor kontrolliert.

Die allgemein bekannte Problematik bei den Laserdioden ist die unterschiedliche Divergenz des emittierten Laserstrahls in den beiden Ebenen und die dadurch entstehende erschwerte Kollimation. Die Einkopplung in eine Glasfaser ist eine häufig benutzte und technologisch gut beherrschte Methode, um ein rundes Strahlprofil zu erzeugen.

Die in diesem Experiment eingesetzte Laserdiode mit einer maximalen Spitzenleistung von $2\ \text{W}$ wird in eine $100\text{-}\mu\text{m}/140\text{-}\mu\text{m}$ (Kern-/Manteldurchmesser) dicke Multimode-Glasfaser eingekoppelt. Am Faserausgang erhält man eine Spitzenleistung von $>1\ \text{W}$ ohne definierte

Polarisation. Die gemessene spektrale Halbwertsbreite (FWHM) um 1060 nm lag bei 6.3 nm. Dies entspricht, in Wellenzahlen umgerechnet, etwa einem Drittel der Bandbreite des Pumpimpulses. Daher kann dieser Fall immer noch als schmalbandiges Seeding betrachtet werden. Die Laserdiode liefert 50 ns lange nahezu rechteckige Lichtimpulse bei 1 kHz Repetitionsrate mit vernachlässigbarem Jitter. Dies entspricht einer mittleren Leistung von $50 \mu\text{W}$, wobei nur ein Teil davon zum Seeden des OPAs verwendet werden kann, da die Phasenanpassung im MLN-Kristall nur für eine feste lineare Polarisation gegeben ist. Die Impulsdauer der Laserdiode hat hier keinen Einfluß auf die Spitzenleistung und wurde daher so gewählt, daß möglichst niedrige aber mit einer Infrarot-Sichtkarte noch gut detektierbare Leistung erreicht wird.

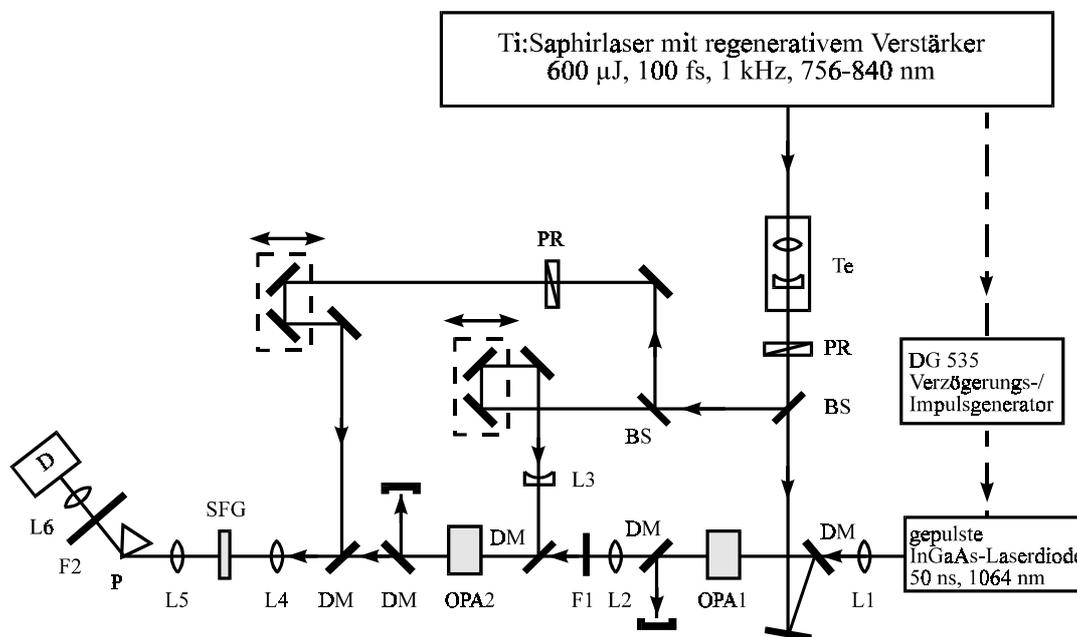


Abb. 4.20: fs-OPA mit gepulster Laserdiode als Seedlaser, **OPA1**, **OPA2**: MLN-Kristalle, **SFG**: Summenfrequenzmischung in LiIO_3 , **Te**: Teleskop, **PR**: Polarisationsdreher, **BS**: Strahlteiler, **D**: Si-Photodiode, **DM**: 800 nm , 45° Laserspiegel auf CaF_2 -Substrat, **L1**: Kollimationsoptik (ein $10\times$ -Mikroskopobjektiv mit $\text{NA} = 0.25$ und eine 12.5 cm Quarzlinse), **L2**, **L4**, **L5**: BaF_2 -Linsen, **L3**: -100 cm Quarzlinse, **L6**: 5 cm Quarzlinse, **F1**: Langpaß-Ge-Filter, **F2**: Interferenzfilter, **P**: Quarzprisma. In einstufiger Ausführung wird nur OPA1 benutzt.

Der Seedlaserstrahl wurde mit einem Mikroskopobjektiv kollimiert und anschließend mit einer weiteren Linse in den MLN-Kristall fokussiert. Nach Kollimation wurde der Pumpstrahl mithilfe eines Strahlteilers in zwei Strahlen aufgeteilt. Die beiden Strahlen dienen jeweils die zwei OPA-Stufen zu pumpen. Der kleinere Teil wurde benutzt, die Vorverstärker-Stufe OPA1 mit stärkerer Fokussierung zu pumpen, um die meiste Energie zum Pumpen der

Nachverstärker-Stufe OPA2 zu behalten. Im einstufigen Betrieb wurde nur die erste Stufe OPA1 mit höherer Pumpenergie und größerem Strahlquerschnitt verwendet.

In der einstufigen OPA-Ausführung haben wir zuerst die 10 mm MLN-Probe als OPA1 eingesetzt. Bei einer axialen Spitzenpumpintensität von $I_{3m}=65 \text{ GW/cm}^2$, was einer Pumpimpulsenergie von $\mathcal{E}_3=265 \text{ }\mu\text{J}$ bei einer Impulsdauer von $T_3=100 \text{ fs}$ entspricht, wurden Idlerimpulsenergien von $\mathcal{E}_1=5 \text{ }\mu\text{J}$ bei $\lambda_1=3.5 \text{ }\mu\text{m}$ erzeugt. Dieser Wert stimmt mit der Voraussage aus der Messung der Kleinsignalverstärkung (Abb. 4.9) sehr gut überein und die interne Umwandlungseffizienz betrug dabei 11 %. Die Puls zu Puls-Fluktuationen waren vergleichbar mit denen beim ns-Mikrolaserseeding ($<2 \%$), obwohl die Sättigung, die im allgemeinen die Ausgangsenergie stabilisiert, hier nicht erreicht wurde. Der Grund für die gute Stabilität liegt daran, daß der zeitliche Überlap des Seedimpulses mit dem Pumpimpuls in diesem Fall, aufgrund der Breite (50 ns) und Form (rechteckig) des Seedimpulses, weniger kritisch war. Die gemessene Kreuzkorrelationskurve und das entsprechende Spektrum des Idlerimpulses sind in Abb. 4.21 zu sehen. Die generierten Idlerimpulse mit einer Impulsdauer von $T_1=130 \text{ fs}$ sind wiederum nahezu bandbreitebegrenzt (Fourier-Produkt $\Delta\nu_{L1}T_1\approx 0.5$).

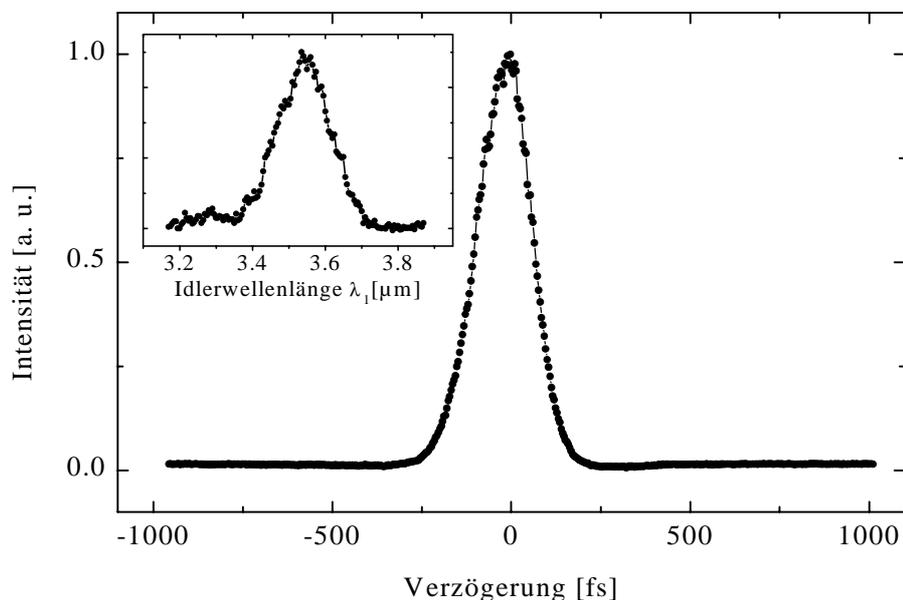


Abb. 4.21: Kreuzkorrelationskurve für den Idlerimpuls, erzeugt durch SFG und das entsprechende Idlerspektrum aus dem 10 mm langen MLN-OPA mit Laserdioden-Seeding bei $\mathcal{E}_3=265 \text{ }\mu\text{J}$ und $T_3=100 \text{ fs}$. Die Entfaltung mit Gauß'scher Impulsform liefert $T_1=130 \text{ fs}$.

Die Änderung der Seedwellenlänge durch Temperaturabstimmung liefert ähnliche Eigenschaften für die im Spektralbereich zwischen 3.5 und 3.6 μm erzeugten Idlerimpulse. Die Idlerenergie mit dem einstufigen OPA und einem 8 mm langen MLN-Kristall zeigt etwa den gleichen Wert wie im Fall von 10 mm MLN, aber es ergibt sich eine etwas kürzere Idlerimpulsdauer.

Es ist noch zu erwähnen, daß in diesem Experiment neben den Idlerimpulsen zusätzlich fs-Signalimpulse auf dem ns-Seedimpulsuntergrund entstehen. Die mittlere Leistung dieser Impulse bei $\lambda_2=1060$ nm betrug >15 mW mit $T_2=140$ fs, was einer Einzelimpulsenergie von $\mathcal{E}_2 > 15$ μJ entspricht. Da diese Leistung etwa drei Größenordnungen höher ist als die mittlere Leistung vom ns-Untergrund, können die verstärkten fs-Impulse bei der Signalwellenlänge direkt für geeignete Anwendungen eingesetzt werden bzw. leicht charakterisiert werden (Abb. 4.22).

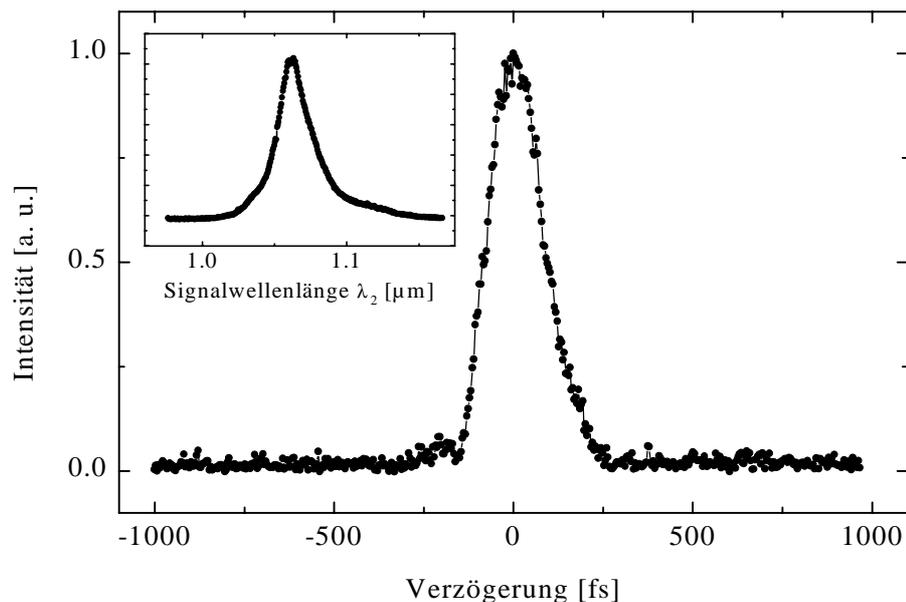


Abb. 4.22: Kreuzkorrelationskurve für den Signalimpuls, erzeugt durch SFG und das entsprechende Signalspektrum aus dem einstufigen 10 mm-MLN-OPA mit Laserdioden-Seeding bei $\mathcal{E}_3=265$ μJ und $T_3=100$ fs. Die Entfaltung mit Gauß'scher Impulsform liefert $T_2=140$ fs mit $\Delta v_{L2}T_2 \approx 0.9$.

Die Erzeugung von energiereichen fs-Lichtimpulsen um 1060 nm ist keine leichte Aufgabe, so liegt z.B. die kürzeste erzeugbare Wellenlänge der Signalimpulse aus einem auf BBO basierenden und um 800 nm gepumpten OPA bzw. OPG bei ≈ 1.15 μm , da sich die Idlerimpulse dann bereits im Absorptionsgebiet des Kristalls befinden und dies zu einer drastischen Reduzierung der Umwandlungseffizienz beim parametrischen Prozeß führt.

Um die Ausgangsenergie und Umwandlungseffizienz zu erhöhen, wurde ein zweistufiger OPA aufgebaut. Hier wurden zwei 8 mm lange MLN-Kristalle mit voneinander unabhängig einstellbaren Pumpintensitäten verwendet. Zur Minimierung des räumlichen Walk-off-Effektes wurden die Kristalle mit entgegengesetzter Orientierung montiert. Mit einer Pumpimpulsenergie von 70 μJ , Strahldurchmesser von 2.3 mm und $T_3=110$ fs betrug die axiale Spitzenpumpintensität in OPA1 etwa $I_{3m}=30$ GW/cm^2 . Die nach der ersten Stufe erzeugte Idlerenergie konnte leider mit unserem pyroelektrischen Energiemesser, der mit einem elektronischen Verstärker nur bis 1 nJ sensitiv ist, nicht gemessen werden. Diese niedrige Idlerenergie war aber ausreichend für fs-Seeding der zweiten OPA-Stufe. Der nach der ersten Stufe auf dem ns-Untergrund entstehende fs-Signalimpuls konnte dabei mit einem Langpaß-Ge-Filter unterdrückt werden, während der Pumpimpuls mit dem neuen Seedimpuls bei der Idlerwellenlänge nach zeitlicher Synchronisation über eine Verzögerungsstrecke wieder kollinear kombiniert wurde. Der Durchmesser des Pumpstrahls am Ort des OPA2 wurde mit einer negativen Linse von 2.3 auf 3.2 mm vergrößert.

Bei einer Pumpintensität von $I_{3m}=70$ GW/cm^2 ($\mathcal{E}_3=320$ μJ , $T_3=110$ fs) wurde eine Idlerenergie von $\mathcal{E}_1=15$ μJ um $\lambda_1=3.6$ μm gemessen, dies entspricht einer internen Umwandlungseffizienz von 27 % in der zweiten Stufe. Die Puls zu Puls-Fluktuationen lagen wiederum in der Größenordnung der des Pumpimpulses (≈ 2 %).

In Abb. 4.23a und b (durchgezogene Kurven) sind die durch SFG gemessene Kreuzkorrelationskurve und das entsprechende Idlerspektrum gezeigt. Nach der zweiten Stufe konnte $T_1=160$ fs gemessen werden. Dies führt zu einem nahezu bandbreite-limitierten Idlerimpuls mit einem Fourier-Produkt von ≈ 0.6 . Man konnte auch höhere Idlerenergie (>20 μJ) erhalten, aber nur auf Kosten einer schlechteren zeitlichen und räumlichen Qualität des generierten Impulses.

In dieser Konfiguration stellte sich heraus, daß der Anteil der Idlerenergie, der in der ersten Stufe durch ungeseedete parametrische Verstärkung entstand und durch die ns-Seeding nicht völlig unterdrückt wurde, zum Seeden der zweiten Stufe beigetragen hat. Es konnte beobachtet werden, daß die Idlerenergie in dieser zweistufigen Ausführung nur auf 30 % des maximalen Wertes abfällt, wenn die Seed-Laserdiode geblockt wird. Die gestrichelten Kurven in Abb. 4.23a und b zeigen die Kreuzkorrelationskurve und das Spektrum vom Idlerimpuls, welche ohne Seeding von OPA1 nach der zweiten Stufe OPA2 aufgenommen wurden. Offensichtlich liefert dieser Fall längere Impulsdauern und strukturierte Spektren. Dieses komplexe Verhalten und die Entstehung einer zweiten spektralen Komponente bei einer kürzeren Wellenlänge sind auf off-axiale parametrische Verstärkung in OPA1, welche durch

geringere GVM bevorzugt wird, zurückzuführen. Tatsächlich zeigen die theoretischen Berechnungen der nichtkollinearen Wechselwirkung in MLN, wie schon in Abs. 4.1.2.3 berichtet, daß die off-axiale Ausbreitung von Signal- und Idlerimpulsen bei einer festen Pumpwellenlänge zu Gruppengeschwindigkeitsanpassung bei kürzerer Idler- bzw. längerer Signalwellenlänge im Vergleich zur kollinearen Wechselwirkung (siehe Abb. 4.23b) führt.

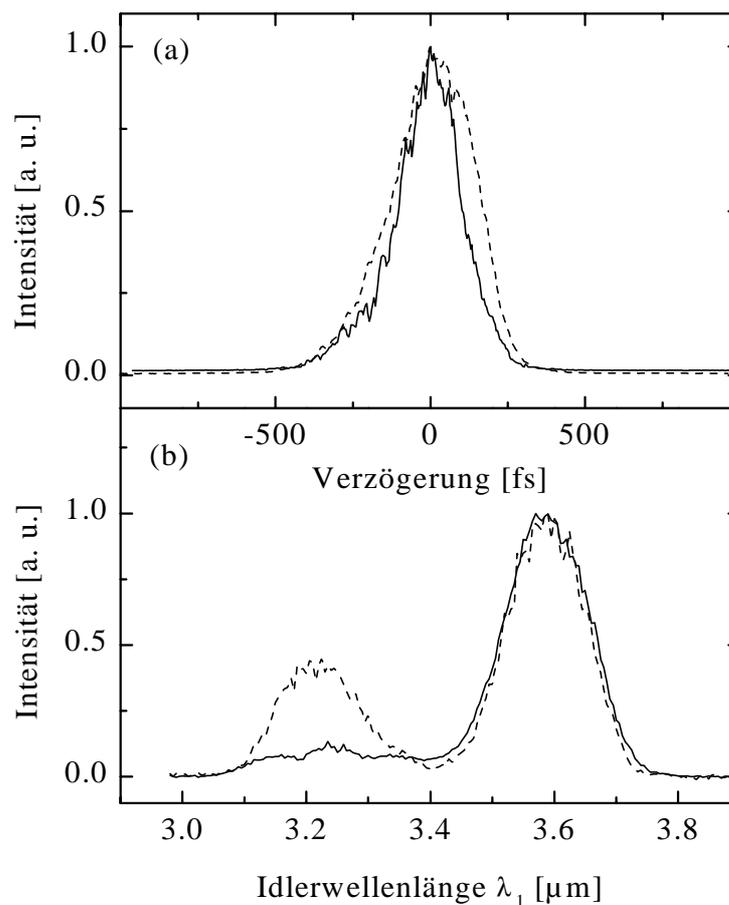


Abb. 4.23: (a) Kreuzkorrelationskurven und (b) entsprechende Spektren der Idlerimpulse, erzeugt mit dem zweistufigen OPA mit zwei 8 mm langen MLN-Kristallen. Durchgezogene Kurven zeigen den Fall, wenn OPA1 mit der Laserdiode geseedet wird und die gestrichelten Kurven sind für ungeseedeten OPA1.

Um die oben geschilderten Probleme zu vermeiden und nahezu Fourier-limitierte Idlerimpulse zu erhalten, wurden die relative Verzögerung zwischen den beiden Stufen, die Pumpintensität und die räumliche Überlappung zwischen Pump- und Seedimpuls optimiert. Damit konnte man mit Laserdioden-Seeding nach OPA2 den unerwünschten ungeseedeten Anteil bis auf 15 % der gemessenen Idlerenergie reduzieren.

Wie in der einstufigen Ausführung, erhält man auch in dieser zweistufigen Konfiguration intensive fs-Lichtimpulse bei der Signalwellenlänge. Die mittlere Leistung beträgt >45 mW bei einer Impulsdauer von $T_2=140$ fs, was einer Einzelimpulsenergie von $\mathcal{E}_2>45$ μ J entspricht und daher sehr nützlich für Anwendungen sein kann. Die Kreuzkorrelationskurve und das entsprechende Signalspektrum sind in Abb. 4.24 dargestellt.

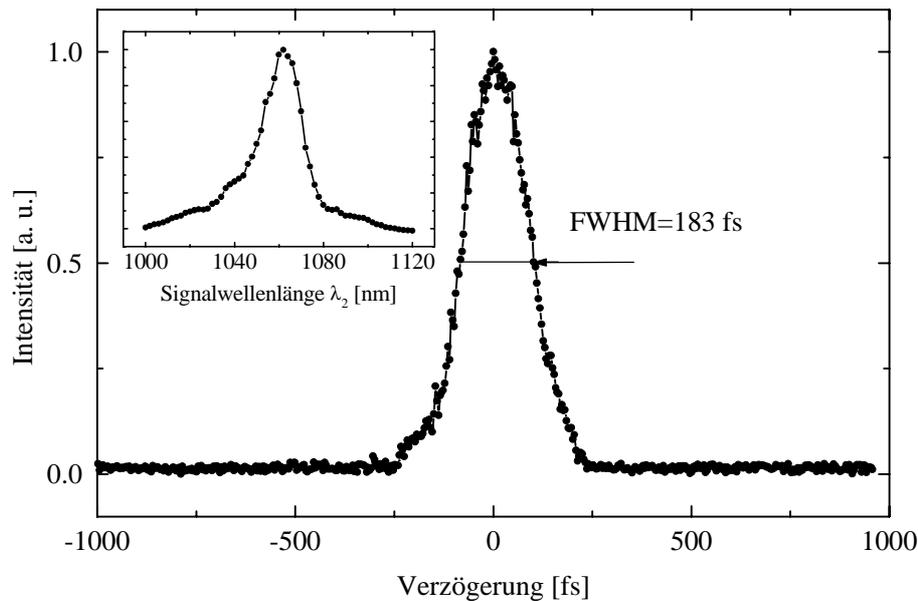


Abb. 4.24: Kreuzkorrelationskurve für den Signalimpuls, erzeugt durch SFG und das entsprechende Signalspektrum aus dem zweistufigen MLN-OPA mit Laserdioden-Seeding. Die Entfaltung mit Gauß'scher Impulsform liefert $T_2=140$ fs mit $\Delta v_{1,2}T_2\approx 0.8$.

4.1.4. Erzeugung von Lichtimpulsen mit 5 optischen Perioden um 3 μ m in MLN

In diesem Abschnitt werden die Vorteile des MLN-Kristalls zur Erzeugung von extrem kurzen Lichtimpulsen im MIR-Spektralbereich ausgenutzt. Die geringe GVM in MLN (Abb. 4.2a) ist eine Voraussetzung für die Erzeugung von hohen Energien durch Verwendung längerer Proben, sie ermöglicht aber auch die Erzeugung von extrem kurzen MIR-Lichtimpulsen durch Pumpen mit kürzeren Pumpimpulsen bei 800 nm und Verwendung von kurzen MLN-Proben. Für dieses Experiment (Abb. 4.25) wurde ein Ti-Saphir-Multipass-Verstärkersystem (OMEGA PRO, Femtosecond Productions GmbH) [SCL97], das bei 1 kHz Impulse mit $\mathcal{E}_3=900$ μ J und $T_3=28$ fs um $\lambda_3=795$ nm liefert, als Pumpquelle eingesetzt. Um die Impulsverbreiterung bei der parametrischen Frequenzumwandlung möglichst klein zu halten, wurde mit zwei kurzen (1 und 2 mm) MLN-Proben experimentiert. Eine Doppelpass-Konfiguration war notwendig, um die Umwandlungseffizienz mit der 1 mm Probe zu erhöhen

und damit μJ -Energien im MIR zu erhalten. Sowohl für das eingesetzte Teleskop als auch für die weitere zeitliche und spektrale Charakterisierung der erzeugten Impulse wurden reflektierende Optiken verwendet. Der gütegeschaltete ns-Mikrolaser diente als Seedquelle.

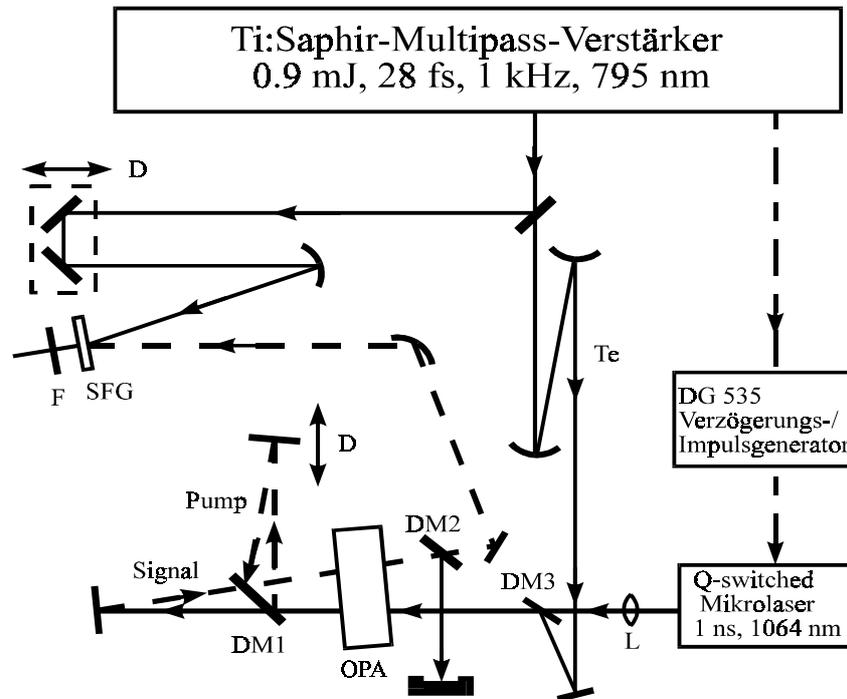


Abb. 4.25: Experimenteller Aufbau. **OPA**: MLN, **Te**: Teleskop, **F**: Interferenzfilter, **DM1**: 45° -Spiegel für 800 nm auf BK7-Substrat, **DM2-DM3**: 45° -Spiegel für 800 nm auf CaF_2 -Substrat, **L**: 12 cm AR-beschichtete Kollimationslinse, **D**: Verzögerungsstrecke. Die gestrichelten Linien zeigen den Strahlverlauf für die Doppelpaß-Konfiguration in der nichtkritischen Ebene des OPA-Kristalls.

Zur Messung der Impulsdauer wurde durch SFG in einem nur $50\ \mu\text{m}$ langen BBO-Kristall die Kreuzkorrelationskurve aufgenommen. Bei geeigneter Wahl der Phasenanpassung (eo-e, Typ II-Wechselwirkung), wodurch eine extrem kleine GVM zwischen den beiden einfallenden Impulsen möglich ist, kann der Einfluß der Meßkristalldispersion vernachlässigt werden. Δ_{21} zwischen dem Referenzimpuls bei 795 nm und dem Idlerimpuls um $3\ \mu\text{m}$ beträgt hier nur $20\ \text{fs}/\text{mm}$, d. h. es ergibt sich einen Laufzeitunterschied von nur $\approx 1\ \text{fs}$.

Für den ersten Durchgang des 1 mm MLN-Kristalls betrug die axiale Spitzenpumpintensität etwa $I_{3m}=250\ \text{GW}/\text{cm}^2$ mit $\mathcal{E}_3=800\ \mu\text{J}$ und $T_3=28\ \text{fs}$. Bei dieser Pumpintensität beobachteten wir keinerlei optische Zerstörung, obwohl unerwünschte nichtlineare Prozesse wie Weißlichterzeugung und off-axiale parametrische Generation auftraten, die wahrscheinlich durch "hot-spots" innerhalb des Pumpstrahls und den nicht perfekten Überlapp mit dem Seedstrahl initiiert wurden. Diese Effekte konnten durch Seeding nicht vollkommen

unterdrückt werden. Dies führt zwangsläufig zu Verlusten der Pumpenergie und somit zur Reduzierung der Umwandlungseffizienz beim OPA.

Während des ersten Durchgangs entstehen sowohl Idlerimpulse als auch verstärkte fs-Signalimpulse auf dem 1 ns-Untergrund des Seedlasers. Die gemessene Idlerenergie betrug $\mathcal{E}_1=20$ nJ bei einer Impulsdauer von $T_1=42$ fs. Die Idlerimpulse werden durch zweimaliges Durchlaufen des Spiegelsubstrats von DM1 unterdrückt, da dieser bei $3\ \mu\text{m}$ stark absorbiert. Die beim ersten Durchgang durch den MLN Kristall entstehenden Signalimpulse haben eine Impulsdauer von $T_2\approx 50$ fs und verlängern sich dann aufgrund der GVD im Spiegelsubstrat von DM1 auf etwa 55 fs. Sie dienen als Seedimpulse für den zweiten Durchgang des MLN-OPA. Die kollineare Rekombination mit dem verbleibenden Teil der Pumpimpulse geschieht nach der Kompensation der zeitlichen Verzögerung durch die Verzögerungsstrecke D (Abb. 4.25). Die Pumpimpulsdauer ist aufgrund der GVD im MLN-Kristall während des ersten Durchgangs auch ein wenig verbreitert und beträgt $T_3=33$ fs, was einer axialen Spitzenpumpintensität von $I_{3m}=160\ \text{GW}/\text{cm}^2$ für den zweiten Durchgang entspricht.

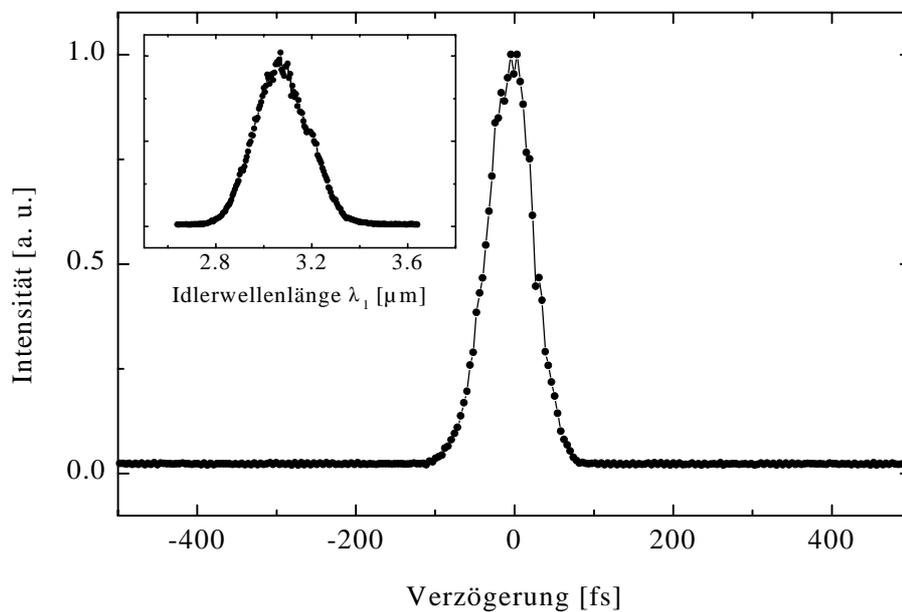


Abb. 4.26: Kreuzkorrelationskurve für den Idlerimpuls, erzeugt durch SFG und das entsprechende Idlerspektrum aus dem 1 mm MLN-OPA mit $T_3=28$ fs and $\mathcal{E}_3=800\ \mu\text{J}$ in Doppelpaß-Konfiguration. Die entfaltete Idlerimpulsdauer ist $T_1=50$ fs.

Die Energie der erzeugten Idlerimpulse nach dem zweiten Durchgang beträgt $\mathcal{E}_1 = 2 \mu\text{J}$ bei $\lambda_1 \approx 3 \mu\text{m}$ mit Puls zu Puls-Fluktuationen von $\approx 5\%$. Die Entfaltung der gemessenen Kreuzkorrelationskurve aus Abb. 4.26 unter der Annahme einer Gauß'scher Impulsform führt zu einer Impulsdauer von $T_1 = 50 \text{ fs}$.

Dies ist der kürzeste Laserimpuls im MIR-Spektralbereich mit μJ -Energie, der jemals mit einem OPA erzeugt wurde. Hinsichtlich der Anzahl der optischen Perioden kann sich unser Ergebnis (5 optische Perioden) mit den besten Ergebnissen, die man bisher im VIS- und NIR-Spektralbereich erreicht hat [CND97, SKt98], gut vergleichen. Obwohl die generierten Idlerimpulse aufgrund der nichtverschwindenden GVM im MLN-Kristall gegenüber dem Pumpimpuls ein wenig verlängert sind, konnte man trotzdem mit dem gemessenen Spektrum (innere Kurve der Abb. 4.26) ein Impulsdauer/Bandbreite-Produkt von $\Delta\nu_{\text{LI}} T_1 = 0.41$ erhalten. Sowohl höhere Umwandlungseffizienzen als auch kürzere MIR-Impulse könnten erzeugt werden, wenn der Pumpimpuls bzw. der Idlerimpuls langwelliger wäre (vgl. Abb. 4.2a). In unserem Experiment war diese Möglichkeit leider durch die fehlende Durchstimbarkeit des Multipass-Ti:Saphir-Verstärkersystems beschränkt, aber durch die Verwendung eines sub-30 fs regenerativen Verstärkers [NDK97] als Pumpquelle läßt sich dies eventuell in der Zukunft realisieren.

4.1.5. Geseedete OPA mit einem periodisch gepolten KTP-Kristall (PPKTP)

Quasi-phasenanpaßbare nichtlineare Materialien bieten Möglichkeiten, eine höhere effektive Nichtlinearität (d_{eff}) als die in phasenanpaßbaren konventionellen doppelbrechenden Kristallen zur Frequenzumwandlung zu nutzen. Dieser Vorteil ist nicht nur für die deutliche Erhöhung der Umwandlungseffizienz mit cw- oder ns-Lasersystemen von großer Bedeutung, wo sich die Limitierung auf den d_{eff} -Wert und die Verfügbarkeit nichtkritischer Phasenanpassung bezieht, sondern auch in Ultrakurzpuls-(ps- und fs-)-Lasersystemen, für die die limitierte Wechselwirkungslänge L_{GVM} mit einer höheren d_{eff} kompensiert werden kann.

Aufgrund der limitierten Dicke von periodisch gepolten Materialien (z. B. $\approx 0.5 \text{ mm}$ in LNB) und deren Zerstörungsschwelle wurde die Erzeugung von fs-MIR-Lichtimpulsen bisher nur durch die Anwendung in SPOPO's demonstriert [RPE97, BTA97, LBR99]. Die maximalen Ausgangsenergien liegen hier, wie bereits erwähnt, im nJ-Bereich. Es gibt bisher nur eine Arbeit, bei der ein periodisch gepolter 0.5 mm dicker LNB in OPG verwendet wurde: erzeugt wurden damit Impulse mit 100 nJ Energie und 300 fs Impulsdauer bei einer Idlerwellenlänge bis $3 \mu\text{m}$ [GAF97], wobei ein frequenzverdoppelter Er-Faserverstärker bei 777 nm als Pumpquelle diente.

In diesem Abschnitt werden erste Experimente mit einem geseedeten PPKTP-OPA, der durch den fs-Ti:Saphir-Verstärker gepumpt wird, vorgestellt. In diesem Experiment wurde der KTP-Kristall gewählt, da er einerseits eine höhere Zerstörungsschwelle besitzt und andererseits einen schwächeren photorefraktiven Effekt als LNB zeigt. Zusätzlich benötigt KTP niedrigere elektrische Felder beim Polen, wodurch eine Herstellung dickerer PPKTP-Proben möglich ist. Die effektive Nichtlinearität im PPKTP erster Ordnung für alle Polarisierungen parallel zur Z-Achse ist gegeben durch $d_Q = (2/\pi)d_{33}$. Mit $d_{33} = 10.7$ pm/V [DGN97] ergibt sich $d_Q = 6.8$ pm/V, was höher als in herkömmlichen KTP- und LNB-Kristallen ist (Tab. 4.1). Für unser Experiment wurde PPKTP mit einer Inversionsperiode der Domänen von $\Lambda_g = 27.5$ μm verwendet, was nach Berechnung mit der Sellmeier-Gleichung von Kato [Kat91] einer Quasi-Phasenanpassung bei $\lambda_1 = 3$ μm mit Pumpwellenlänge λ_3 bei 786 nm entspricht (Abb. 4.27).

Am Royal Institute of Technology (Schweden) wurde ein flux-gezüchteter KTP-Kristall mit Abmessungen von 10, 5 und 1.23 mm entlang der X, Y und Z-Achsen mit der „electric field poling“-Methode (Abs. 2.4) bei Raumtemperatur gepolt [KLf97]. Der gepolte Kristall wurde dann halbiert und zu einer 4 mm Länge entlang X poliert. Die gute Homogenität und die Periode (mit einer Genauigkeit von ≈ 0.1 μm) konnten wir durch Erzeugung der zweiten Harmonischen in höheren Ordnungen (7-ten bis 10-ten) am cw-Ti:Saphirlaser bestätigen. Dabei wurde nach [WPL98] eine andere Sellmeier-Gleichung [FHH87], die besser für den VIS-Spektralbereich geeignet ist, benutzt.

Der experimentelle Aufbau ist nahezu identisch wie in Abb. 4.3 und unterscheidet sich nur dadurch, daß die hier verwendete Probe in einem Ofen eingebaut ist. Die Temperaturbandbreite in KTP ist extrem groß und die Erhöhung der Temperatur bei diesem Experiment dient nur dazu, die Entstehung von Farbzentren („gray tracks“) in KTP zu vermeiden. Die Dicke des PPKTP-Kristalls (1.23 mm entlang der Z-Achse) begrenzt die maximal verwendbare Pumpimpulsenergie (< 100 μJ), um nichtlineare Effekte höherer Ordnung und eine Zerstörung zu vermeiden. Die Gauß'schen Strahldurchmesser am Ort der PPKTP-Probe betragen jeweils 0.8 mm für den Pumpstrahl und 0.7 mm für den Seedstrahl. Das Beschneiden des Pumpstrahls aufgrund der kleinen Apertur führt zu einem Verlust von ≈ 10 % zusätzlich zu den Fresnel-Reflexionen.

Als Referenzprobe wurde ein 3 mm langer KTP-Kristall (Crystal Associates, USA, „high temperature solution“-Züchtungsmethode) benutzt. Er ist unter $\theta = 38.4^\circ$ (s. Tab. 4.1) geschnitten, womit sich $d_{\text{eff}} = 1.65$ pm/V ergibt. Dieser Wert ist etwa viermal niedriger als d_Q in PPKTP. Die GVM der Referenzprobe zwischen 3 und 4 μm ist aber im allgemeinen kleiner

als in PPKTP. Außer dieser Referenzprobe standen uns zusätzlich nicht-gepolte aber sonst absolut identische Proben vom „flux“-gezüchteten Material zur Verfügung.

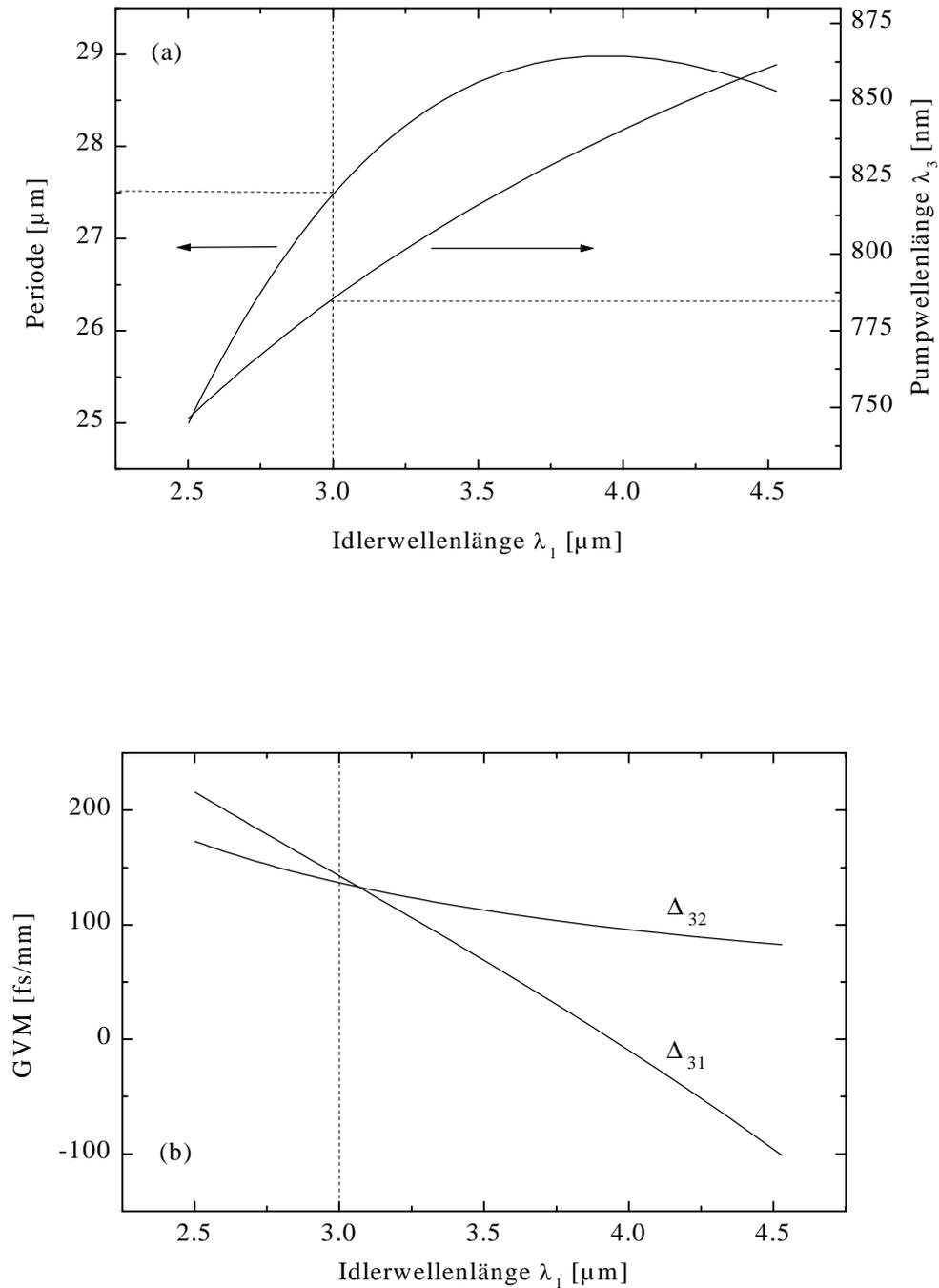


Abb. 4.27: (a) Berechnete Durchstimmbarkeit eines OPA mit PPKTP bei fester Signalwellenlänge $\lambda_2=1064$ nm und (b) GVM zwischen Idler-, bzw. Signal- und Pumpimpuls. Die Werte für die vorhandene Probe sind durch die gestrichelten Linien gezeigt.

Als erstes wurde die Abhängigkeit der erzeugten Idlerenergie im geseedeten PPKTP-OPA von der Pumpwellenlänge λ_3 untersucht. Das Optimum lag bei längeren Wellenlängen, als aus der theoretischen Berechnung zu erwarten war (s. Abb. 4.27). Wie in Abb. 4.28 verdeutlicht, konnte die höchste Umwandlungseffizienz bei sehr geringen spektralen Modulationen um $\lambda_3=830$ nm beobachtet werden. Offensichtlich kann der parametrische Verstärker bei längeren Pump- und Idlerwellenlängen als erwartet aufgrund niedriger GVM (Abb. 4.27b) eine höhere Verstärkung liefern. Die mit (2.41) berechnete spektrale Akzeptanz war 22.3 nm um 830 nm, welche mit der Abhängigkeit der Idlerenergie (Abb. 4.28) unter Berücksichtigung des Sättigungseffektes, der bei höheren Umwandlungsraten auftritt, gut übereinstimmt. Wir konnten eine maximale interne Umwandlungseffizienz von 40 % erreichen. Das ist vergleichbar mit den Ergebnissen aus Abs. 4.1.2.2, aber bei wesentlich kleinerer Pumpimpulsenergie. Die Puls zu Puls-Fluktuationen lagen bei etwa 2 %, was der Stabilität des Pumpimpulszuges entspricht.

Die Idlerimpulsdauer bei $3.8 \mu\text{m}$ wurde aus dem Gauß'schen Fit der gemessenen Kreuzkorrelationskurve auf 210 fs abgeschätzt (Abb. 4.29). Dies entspricht den Erwartungen aus den berechneten GVM's (Abb. 4.27b). Bei dieser Wellenlänge und 120°C überschreitet das Fourier-Produkt von $\Delta\nu_{L1}T_1=0.6$ nur um 20 % den Wert für den Pumpimpuls.

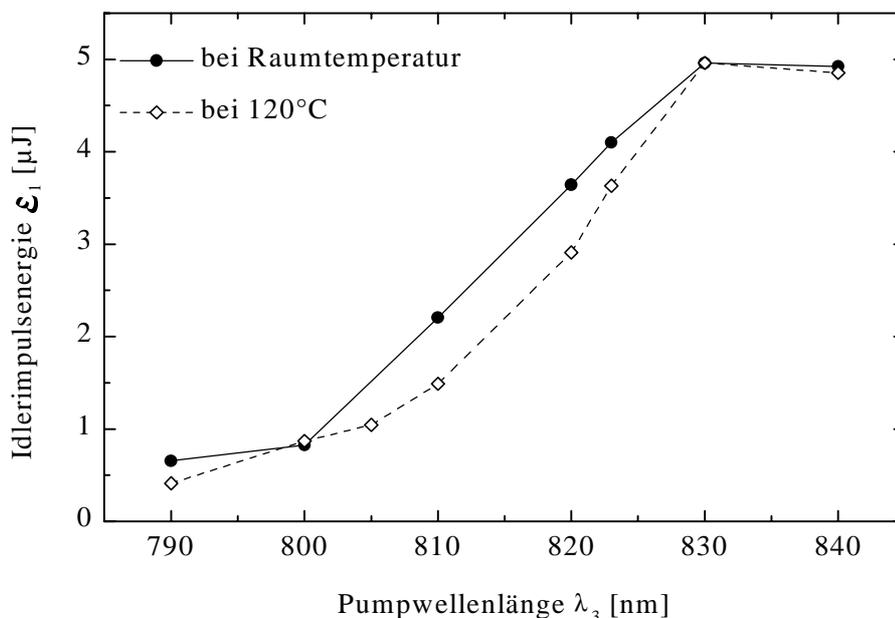


Abb. 4.28: Erzeugte Idlerimpulsenergie mit dem PPKTP-OPA für $I_{3m}=90 \text{ GW}/\text{cm}^2$, was einer Pumpenergie von $75 \mu\text{J}$ bei $T_3=80 \text{ fs}$ entspricht.

Die Abweichung der optimalen Pumpwellenlänge von den Berechnungen (Abb. 4.27a) liegt nicht allein an der hohen parametrischen Verstärkung, die auf abnehmende GVM bei längeren Wellenlängen zurückzuführen ist, sondern auch an der begrenzten Genauigkeit der Sellmeier-Koeffizienten im MIR-Spektralbereich [Kat91]. Für die ungefähr gleichen Wellenlängen wurde bei einem SPOPO derselbe Effekt beobachtet [KKA98]. Mit einer vor kurzem publizierten Sellmeier-Gleichung [FAS99], die eine Verbesserung im MIR-Spektralbereich für n_z darstellt, konnte ausgerechnet werden, daß die Inversionsperiode der in diesem Experiment verwendeten Probe einer Idlerwellenlänge von $\lambda_1=3.42 \mu\text{m}$ entsprechen sollte.

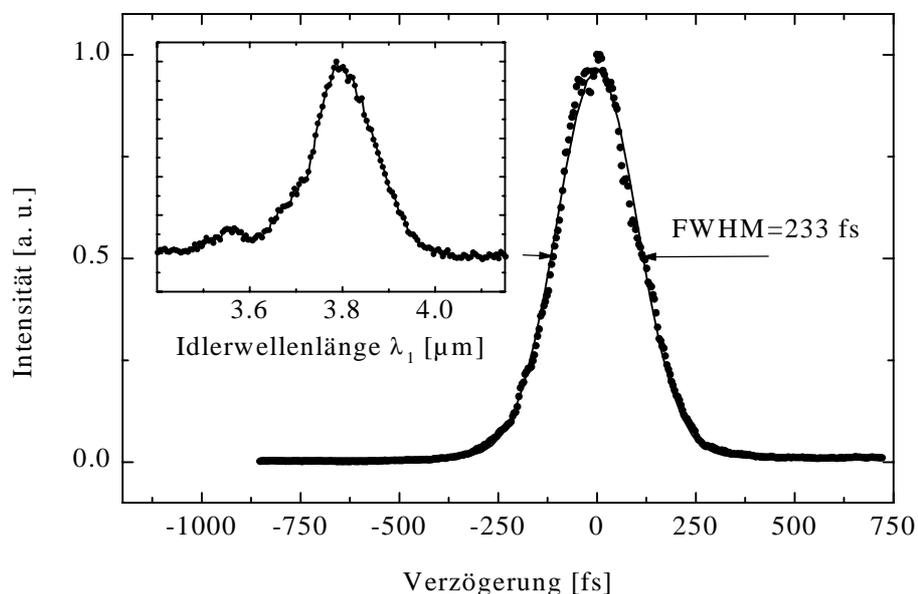


Abb. 4.29: Kreuzkorrelationskurve für den generierten Idlerimpuls mit Gauß'schem Fit. Das innere Bild zeigt das entsprechende Idlerspektrum. Die Kristalltemperatur betrug hier 120°C und die Pumpparameter waren wie in Abb. 4.28.

Mit gleicher Pumpintensität und im Maximum der Kurve in Abb. 4.28 konnte in der KTP-Referenzprobe gerade die parametrische Schwelle beobachtet werden. Diese Probe zeigt eine viel niedrigere parametrische Schwelle um $\lambda_3=790 \text{ nm}$ als um 830 nm , was mit den unterschiedlichen GVM-Parametern erklärt werden kann. Obwohl wir bei dieser Probe mit $\lambda_3=790 \text{ nm}$ und gleicher Pumpintensität von $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ eine kürzere Idlerimpulsdauer von $T_1=90 \text{ fs}$ mit $\Delta v_{L1}T_1=0.7$ messen konnten, betrug die gemessene Idlerimpulsenergie nur $0.5 \mu\text{J}$ bei wesentlich stärkeren Fluktuationen von $\approx 30 \%$.

Es besteht nun die Möglichkeit, die Ergebnisse der PPKTP-OPA mit den in Abs. 4.1.2.2 beschriebenen OPA-Experimenten mit gleichlangen MLN- und KNB-Kristallen grob unter

ähnlichen Bedingungen zu vergleichen. Für diese beiden Kristalle konnte bei $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ und optimaler Pumpwellenlänge ($\lambda_3 \approx 815 \text{ nm}$ für MLN und $\lambda_3 \approx 835 \text{ nm}$ für KNB, siehe Tab. 4.2) eine maximale interne Umwandlungseffizienz von bis zu 15 % abgeschätzt werden. Zwischen 830 und 840 nm konnte in PPKTP zusätzlich zur OPA für λ_3 eine effiziente Frequenzverdopplung von Pump- und Signalimpuls beobachtet werden. Ohne Seeding konnte man bei allen Pumpwellenlängen in Abb. 4.28 einen noch stärkeren Abbau der Pumpenergie durch SHG feststellen. Die mittlere Leistung der zweiten Harmonischen betrug 7-8 mW bei $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ und $\mathcal{E}_3=75 \text{ }\mu\text{J}$. Bei $I_{3m}<20 \text{ GW/cm}^2$ wurde nachgewiesen, daß die scharfe Spitze im aufgenommenen Spektrum der zweiten Harmonischen auf QPM neunter Ordnung in PPKTP zurückzuführen ist: Diese scharfe Spitze besaß $\approx 50 \%$ der Fläche des Spektrums der zweiten Harmonischen. Der nichtphasenangepaßte Untergrund war etwa 6-7 mal spektral breiter. Nur die Spitze hat sich bewegt, wenn die Temperatur verändert wurde und umgekehrt, wenn die Pumpwellenlänge bei konstanter Temperatur variiert wurde, hat sich nur der Untergrund spektral verschoben. Das Spektrum der zweiten Harmonischen verbreiterte sich bei zunehmender Intensität asymmetrisch zur langwelligen Seite hin und schließlich konnten wir bei $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ eine weitere Spitze im Spektrum, die als QPM achter Ordnung identifiziert wurde, beobachten. Das Spektrum der Pumpwelle nach dem PPKTP-Kristall, obwohl im letzten Fall um etwa 50% verbreitert, war dagegen nicht struktuiert (wenn der OPA geseedet wurde, gab es wegen dem Energieabbau diese Verbreiterung auch nicht, d. h. die Selbstphasenmodulation spielte hier keine Rolle).

Für beliebige Polarisation der einfallenden Pumpwelle war die zweite Harmonische stets parallel zur Z-Achse polarisiert. Das bedeutet, daß in diesem Prozeß nur der d_{33} -Koeffizient eine Rolle spielt. Bei hoher SHG-Effizienz konnte auch eine Reduzierung der Transmission in PPKTP beobachtet werden. Die gesamte Transmission (zweite Harmonische und Grundwelle nach der Probe) betrug 55 % bei $\lambda_3=790 \text{ nm}$, $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ und Z-Polarisation des Pumpstrahls, obwohl die berechnete Transmission unter Berücksichtigung von Fresnel-Reflexionen und Apertur-Effekten bei etwa 75 % liegen sollte. Diese Absorptionsverluste stiegen zwar mit zunehmender Intensität an, werden aber bei $\lambda_3=830 \text{ nm}$ und erhöhter Temperatur der PPKTP-Probe (120°C) vernachlässigbar klein. Die Verluste verschwanden auch für Y-polarisierte Pumpimpulse bzw. im „flux“-gezüchteten aber nicht-periodisch gepolten KTP, wo die Umwandlung in die zweite Harmonische ohne Phasenanpassung sehr schwach war.

In einem separaten Experiment wurde die Transmission bei der Pumpwelle mit einem cw-Ti:Saphirlaser bzw. bei der zweiten Harmonischen (aus dem gleichen Laser, aber

modensynchronisiert mit der Impulsdauer von 180 fs und der mittleren Leistung von 120 mW bei 82 MHz) vermessen. Es konnte festgestellt werden, daß nur Absorption bei der zweiten Harmonischen die totale Transmission im OPA-Experiment beeinflussen kann. Die mit dem Ti:Saphirlaser gemessene Restabsorption in PPKTP betrug bei 395 nm für Z-polarisiertes Licht 25 %. Die „gray tracks“ im Kristall, die bei Raumtemperatur durch die Anwesenheit der intensiven zweiten Harmonischen im OPA-Experiment entstehen, erhöhten diese Absorption zusätzlich um 10 %. Diese Art von anisotroper Absorption in KTP (sowohl Restabsorption als auch von den Farbzentren) nimmt generell mit zunehmender Wellenlänge ab [MMS97, BRF99]. Die Zunahme der Absorption durch die Bildung der Farbzentren läßt sich durch Zwei-Photonen-Absorption (Grundwelle + zweite Harmonische) erklären [MMS97].

Nach unserer Beobachtung entstehen die „gray tracks“ in PPKTP beim Raumtemperaturbetrieb innerhalb weniger Minuten, wenn der Kristall bei 790 nm mit $I_{3m}=90 \text{ GW/cm}^2$ gepumpt wird. Die Lebensdauer dieser Farbzentren beträgt ca. 10 Stunden, danach verschwinden sie.

Es ist zu bemerken, daß der PPKTP-OPA trotz Entstehung von „gray tracks“ ohne jegliche Zeichen von optischen Schäden weiter bei Raumtemperatur betrieben werden kann. Abgesehen davon, daß diese Farbzentren in PPKTP bei 120°C nicht beobachtet wurden, hängen die erzielten Resultate in Hinblick auf die Wellenlänge und die maximal erreichbare Idlerimpulsenergie wenig von der Kristalltemperatur ab, wie in Abb. 4.28 dargestellt ist.

In der KTP-Referenzprobe von Crystal Associates konnten weder „gray tracks“ noch Anomalien in der Transmission festgestellt werden. Eine Aussage, ob die unterschiedliche Züchtungstechnologie für OPA-Anwendungen vom Vorteil ist, kann aber nicht gemacht werden, da in dieser Probe die SHG bei beliebiger Polarisation des Pumpstrahls sehr schwach war. Da generell festgestellt werden konnte, daß die „gray tracks“ nur die zweite Harmonische absorbieren, ist auch diese Problematik für die zukünftige Optimierung nicht von primärer Bedeutung. Die Hauptlimitierung kommt in diesem Experiment durch die Energieabbau der Pumpwelle durch SHG. Ein Weg, dies zu unterdrücken und die Ergebnisse energetisch zu skalieren, wäre die Anwendung von noch dickeren PPKTP-Proben, deren Herstellung (z. B. bis 3 mm) vor kurzem demonstriert wurde [HPK00].

4.2. Kaskadierte optisch parametrische Generation in ZnGeP₂ (ZGP) zur Erzeugung von fs-Lichtimpulsen bis 10 μm

Wie bereits beschrieben, gibt es zahlreiche Möglichkeiten, durch direktes Pumpen mit einem Ti:Saphir-Verstärkersystem abstimmbare fs-MIR-Lichtimpulse zu erzeugen. Dabei verhindert aber vor allem die obere Transparenzkante (Tab. 4.1) der verwendeten Kristalle wie KTP, KNB und MLN die direkte Erzeugung von Lichtimpulsen oberhalb von 5 μm . Folglich mußte man bisher zur Erzeugung von energiereichen fs-MIR-Impulsen oberhalb von 5 μm meistens kaskadierte DFG [SPW94, RmS96, GbR98] wählen.

Kaskadierte optisch parametrische Generation (OPG) braucht aber im Gegenteil zu DFG nur einen Pumpimpuls und kann aufgrund der höheren Pumpintensitäten effizienter als DFG sein. In diesem Abschnitt wird ein fs-OPG beschrieben, der durch den Idlerimpuls eines auf BBO basierenden NIR-OPGs gepumpt wird. Geeignete kommerziell verfügbare Kristalle für das Pumpen um $\lambda_3=2 \mu\text{m}$ sind in Tab. 4.3 aufgelistet. Das wichtigste Kriterium bei der Auswahl ist die Nichtlinearität, die bei OPG, für die der parametrische Prozeß aus dem Quantenrauschen initiiert wird, eine enorme Rolle spielt. Alle Kristalle aus Tab. 4.3 können wegen der Zwei-Photonen-Absorption um 800 nm nicht direkt durch ein Ti:Saphir-Verstärkersystem gepumpt werden. Das Verstärkersystem pumpt jetzt also einen NIR-OPG. Der abstimmbare Idlerimpuls ist als Pumpimpuls für diese Materialien geeignet, da seine Wellenlänge weit von der Bandkante entfernt ist.

Nichtlineare Kristalle, Klasse	Transparenzbereich [μm]	Effektive Nichtlinearität d_{eff}	Nichtlinearer Koeffizient [pm/V]
ZnGeP ₂ (ZGP) positiv-einachsig, $\bar{4}2\text{m}$	0.74-12	$d_{\text{eoo}}=d_{36}\sin 2\theta\cos 2\varphi$ $d_{\text{oeo}}=d_{\text{eoo}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$	$d_{36}=75$
AgGaSe ₂ negativ-einachsig, $\bar{4}2\text{m}$	0.71-19	$d_{\text{ooe}}=d_{36}\sin 2\theta\cos 2\varphi$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oee}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$	$d_{36}=32$
GaSe negativ-einachsig, $\bar{6}2\text{m}$	0.62-20	$d_{\text{ooe}}=d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oee}}=d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$d_{22}=54$
CdSe positiv-einachsig, 6mm	0.75-25	$d_{\text{eoo}}=0$ $d_{\text{oeo}}=d_{\text{eoo}}=d_{31}\sin\theta$	$d_{22}=-18$

Tab. 4.3: Potentielle Kandidaten für OPG im Spektralbereich 3 – 10 μm mit Pumpen um 2 μm .

Bei $\lambda_3 \approx 2 \mu\text{m}$ ist CdSe erst für $\lambda_1 > 9 \mu\text{m}$ phasenangepaßtbar. CdSe sowie AgGaSe₂ haben wesentlich kleinere Nichtlinearitäten als ZnGeP₂ (ZGP). Das einzige Material, das mit ZGP für diese Anwendung konkurrieren könnte, wäre GaSe. GaSe besitzt aber leider keine Vorteile in Bezug auf die GVM-Parameter. Außerdem ist man bei GaSe technisch begrenzt, da er nicht geschnitten, sondern nur senkrecht zur Z-Achse gespalten werden kann. Wir haben deshalb unser Experiment mit ZGP durchgeführt, dessen Eigenschaften im nächsten Abschnitt näher diskutiert werden.

4.2.1. Eigenschaften von ZGP

ZGP ist ein positiv einachsiger Kristall, der bis 12 μm transparent ist. Sein Bandgap liegt bei 620 nm (2 eV), aber Restabsorption unbekannter Herkunft beschränkt die Anwendung im VIS- und NIR-Spektralbereich. Er besitzt die höchste Nichtlinearität (Tab. 4.3) von allen kommerziell verfügbaren doppelbrechenden nichtlinearen Kristallen.

Bei den ersten Arbeiten zum ZGP-OPG diente ein Er:Cr:YSGG- ($\lambda_3 = 2.8 \mu\text{m}$) oder ein Er:YAG-Laser (2.94 μm) als ps-Pumpquelle. In beiden Fällen war die Pumpimpulsdauer etwa 100 ps [VkV95, VCv97]. Vor kurzem wurden mit einem ZGP-OPG in kaskadierter Ausführung 1 ps lange Idlerimpulse im MIR erzeugt. Dieser OPG wurde dabei mit Idlerimpulsen zwischen 2.9 und 3.5 μm aus einem geseedeten MLN-OPA gepumpt [PTS97]. In allen bisherigen Experimenten mit ZGP war die untere Grenze der Pumpwellenlänge ($\approx 2.5 \mu\text{m}$) durch die oben erwähnte anormale NIR-Absorption im Kristall gegeben [SBP97].

Für das in dieser Arbeit durchgeführte Experiment standen unbeschichtete ZGP-Proben exklusiver Qualität mit Kristallschnitten von $\theta = 52.5^\circ$, 55° und 67° zur Verfügung. Der azimuthale Winkel ϕ betrug 0° in allen Proben für die Typ I-Wechselwirkung.

Alle drei ZGP-Proben haben eine Apertur von $6 \times 6 \text{ mm}^2$ und sind 2 mm lang. Sie sind aus einem „boule“, der bei Sanders, Lockheed Martin Company (USA) durch die sogenannte „horizontal gradient freeze“-Methode [SPt97] gezüchtet wurde, geschnitten. Sie zeigen eine außergewöhnlich niedrige Restabsorption im NIR (Abb. 4.30), $\alpha < 0.05 \text{ cm}^{-1}$, bei 2.05 μm [SBP97]. Die Absorptionsverluste für $\lambda_3 = 2.05 \mu\text{m}$ gingen in unserem Fall nicht über 1 % hinaus. Diese hohe Probenqualität wurde neuerdings auch bei einem mit einem Ho:YLF-Laser ($\lambda_3 = 2.05 \mu\text{m}$) gepumpten ns-MIR-OPO durch höhere Ausgangsenergien bzw. Umwandlungseffizienz bestätigt [SBP97].

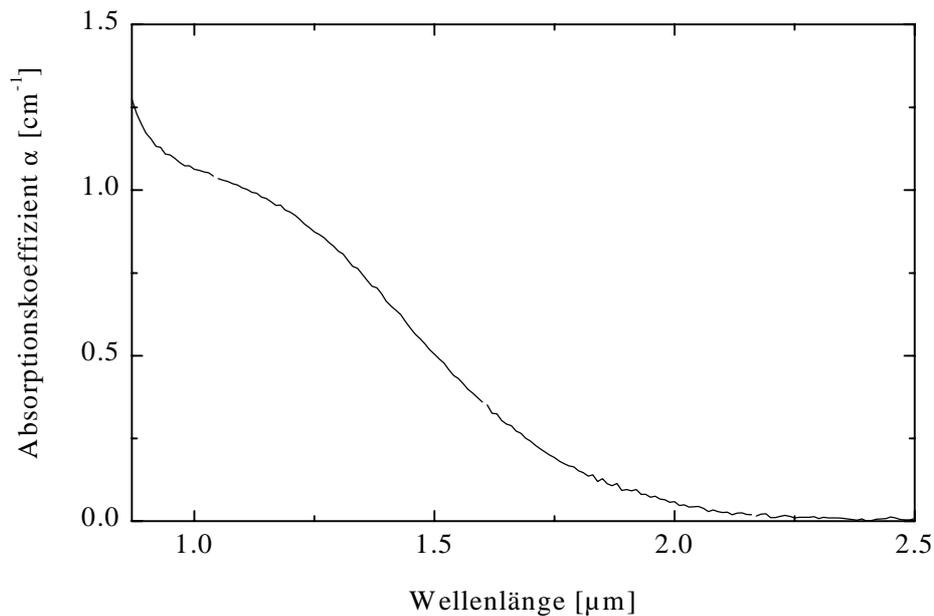


Abb. 4.30: Absorptionskurve der ZGP-Probe mit Schnitt von $\theta=55^\circ$ mit unpolarisiertem Licht im NIR-Spektralbereich.

Die in Abb. 4.30 gezeigten relativ niedrigen Absorptionsverluste im NIR-Spektralbereich bieten die Möglichkeit, ZGP mit einem kommerziellen BBO-OPG (siehe Abs. 3.2.2) im NIR-Spektralbereich bei Wellenlängen größer als $1.5 \mu\text{m}$ zu pumpen, dort spielt die Zwei-Photonen-Absorption kaum eine Rolle.

Im Prinzip läßt sich in ZGP sowohl die Typ I- als auch die Typ II-Wechselwirkung realisieren, wobei d_{eff} sich in beiden Fällen nicht wesentlich voneinander unterscheidet. Die Typ II-Wechselwirkung ist im $>1 \text{ ps}$ -Regime vorteilhaft, da sie viel schmalere und nahezu wellenlängenunabhängige spektrale Bandbreiten liefert. Im Gegensatz dazu ist dies aber nicht der Fall, wenn man mit fs-Impulsen arbeitet. Hier wird die optimale Kristalllänge durch die GVM-Parameter und nicht durch die Verfügbarkeit größerer Proben bestimmt. Wenn man die Pumpwellenlänge auf die kurzwellige Seite verschiebt, nimmt die GVM generell zu. Hier kann die Bandbreite der erzeugten fs-Impulse bei Typ I-Wechselwirkung genau wie bei Typ II-Wechselwirkung durch die GVM limitiert werden. Zusätzlich bietet Typ I-Wechselwirkung eine größere Durchstimbarkeit und eine niedrigere Pumpschwelle, die durch die parametrische Verstärkung und die GVM bestimmt wird. Die niedrige Pumpschwelle ist im fs-Bereich ganz wichtig, da es sich meistens um sehr hohe Intensitäten handelt. Die Abbildung 4.31a zeigt den möglichen Abstimmbereich für die Typ I-Wechselwirkung, die Berechnung erfolgte mit den Sellmeier-Gleichungen aus [BSG87].

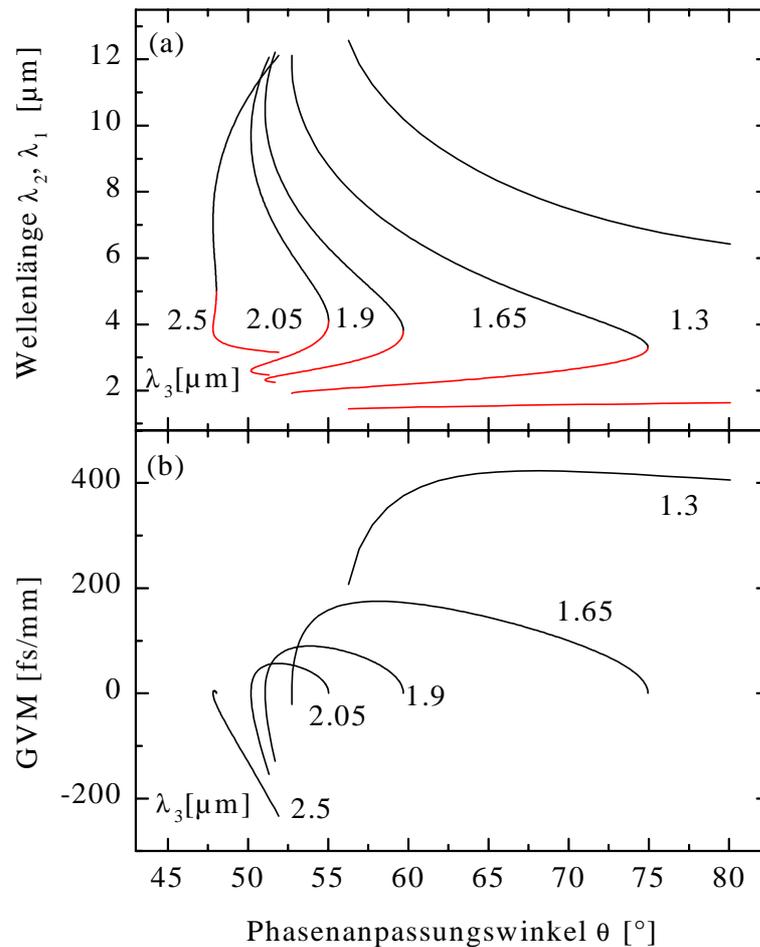


Abb. 4.31: a) Spektrale Durchstimmbarkeit und b) GVM zwischen Signal- und Idlerimpulsen Δ_{21} in Typ I-ZGP für fünf verschiedene Pumpwellenlängen λ_3 .

In Abb. 4.31b wird der GVM-Parameter Δ_{21} , der umgekehrt proportional zur spektralen Akzeptanz $\Delta\nu$ in der „fixed-field“-Näherung ist (siehe 2.53), für verschiedene Pumpwellenlängen aufgetragen. Man sieht, daß es bei $\lambda_3=2.05$, 1.9, 1.65 und 1.3 μm breite flache Bereiche gibt, in denen die GVM zwischen Signal- und Idlerimpulsen im jeweiligen Abstimmbereich fast konstant bleibt. Das bedeutet, daß man mit Typ I-Wechselwirkung nicht nur eine genügend schmale, sondern auch nahezu konstante Bandbreite erreichen kann, die eine Voraussetzung zur Erzeugung von Fourier-limitierten fs-Impulsen ist.

Die Abbildung 4.32 zeigt die GVM zwischen Idler- und Pump- (Δ_{13}) und Signal- und Pumpimpulsen (Δ_{23}) als Funktion der Idlerwellenlänge λ_1 für fünf verschiedene Pumpwellenlängen λ_3 .

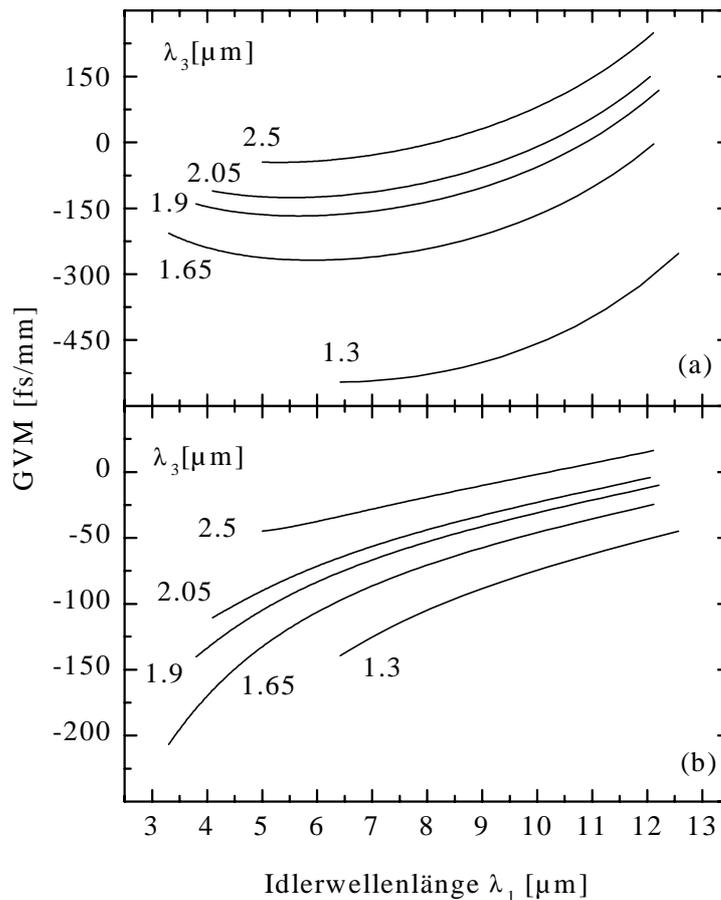


Abb. 4.32: GVM zwischen Idler- und Pump- Δ_{13} (a) und Signal- und Pumpimpulsen Δ_{23} (b) in Typ I-ZGP für fünf verschiedene Pumpwellenlängen λ_3 .

4.2.2. Experimentelle Anordnung zur ZGP-OPG

Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 4.33 dargestellt. Als Pumpquelle wurde hier ein kommerzieller NIR-OPG (s. Kap. 3.2.2) verwendet. Da hier die Typ II-Wechselwirkung in BBO benutzt wird, sind die erzeugten Signal- und Idlerimpulse zueinander senkrecht polarisiert. Die Folgefrequenz von 1 kHz wird vom regenerativen Ti:Saphir-Verstärker bestimmt.

Das Ziel dieses Experimentes war in erster Linie, die Eignung von ZGP als fs-OPG-Material zu testen und dabei die optimale Pumpwellenlänge λ_3 im NIR-Spektralbereich zu bestimmen. Daher wurden die drei ZGP-Proben in einstufiger Ausführung und quasi senkrecht zum einfallenden Pumpstrahl montiert. Die Idler- bzw. Signalimpulse mit Impulsdauern zwischen 120 fs und 140 fs und eine Einzelimpulsenergie zwischen 10 μJ und 40 μJ wurden mit einer Linse bester Form (L1) fokussiert, die ZGP-Probe lag vor dem Brennpunkt. Um nur die

gewünschten Pumpimpulse (Signal oder Idler) herauszufiltern, wurden vor der Linse ein Langpaß-Filter (F1) und ein Polarisator eingesetzt. Die Trennung von Pump-, Signal- und Idlerwellen nach der ZGP-Probe erfolgte durch einen zweiten Langpaß-Filter F2.

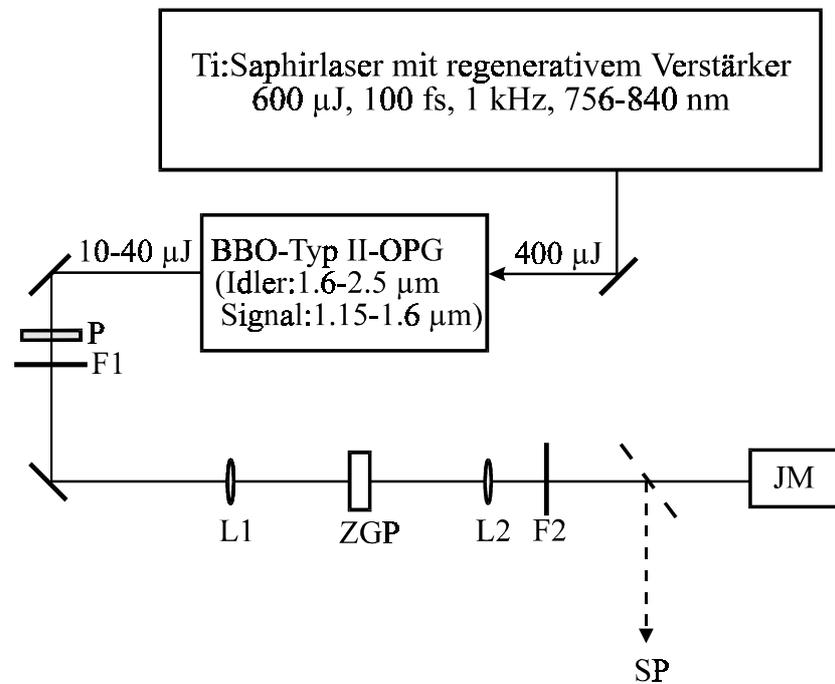


Abb. 4.33: Experimenteller Aufbau zum ZGP-OPG, **L1**: 20 cm Linse bester Form, **L2**: 10 cm BaF₂-Linse, **F1**: Si-Filter, **F2**: Langpaß-Filter auf Ge-Substrat **SP**: Spektrometer mit Stickstoff gekühltem HgCdTe-Detektor oder PbS- bzw. PbSe-Diode, **JM**: Energiemesser, **P**: Polarisator.

Die spektralen Eigenschaften wurden anschließend mit dem gleichen Spektrometer (aus Abs. 4.1.2.1) in Verbindung mit verschiedenen Detektoren (Abb. 4.33) charakterisiert.

4.2.3. Optisch parametrische Generation in ZGP

Bei einer Pumpwellenlänge von $\lambda_3=2.07 \mu\text{m}$ (Idlerimpuls aus dem NIR-OPG) konnte man mit der 52.5° ZGP-Probe eine Pumpschwelle für die parametrische Impulsgeneration von $I_{3m}=25 \text{ GW/cm}^2$ messen. Wenn GVM vernachlässigt wird, kann die Pumpschwelle bei verschiedenen OPG-Experimenten durch $(I_{3m})^{1/2}L \propto g_0$ oder äquivalent durch $I_{3m}L^2$ verglichen werden. In unserem Fall ergibt sich $I_{3m}L^2=1 \text{ GW}$. Dieser Wert ist einerseits gut vergleichbar mit den Messungen in [Vkv95], andererseits liegt er ein wenig höher als das, was man im MIR-Spektralbereich mit 2.7 ps Pumpimpulsen erhalten hat [PTS97]. Die höhere Schwelle in unserem Fall ist offensichtlich auf eine kürzere Wechselwirkungslänge L_{GVM} im fs-Regime zurückzuführen.

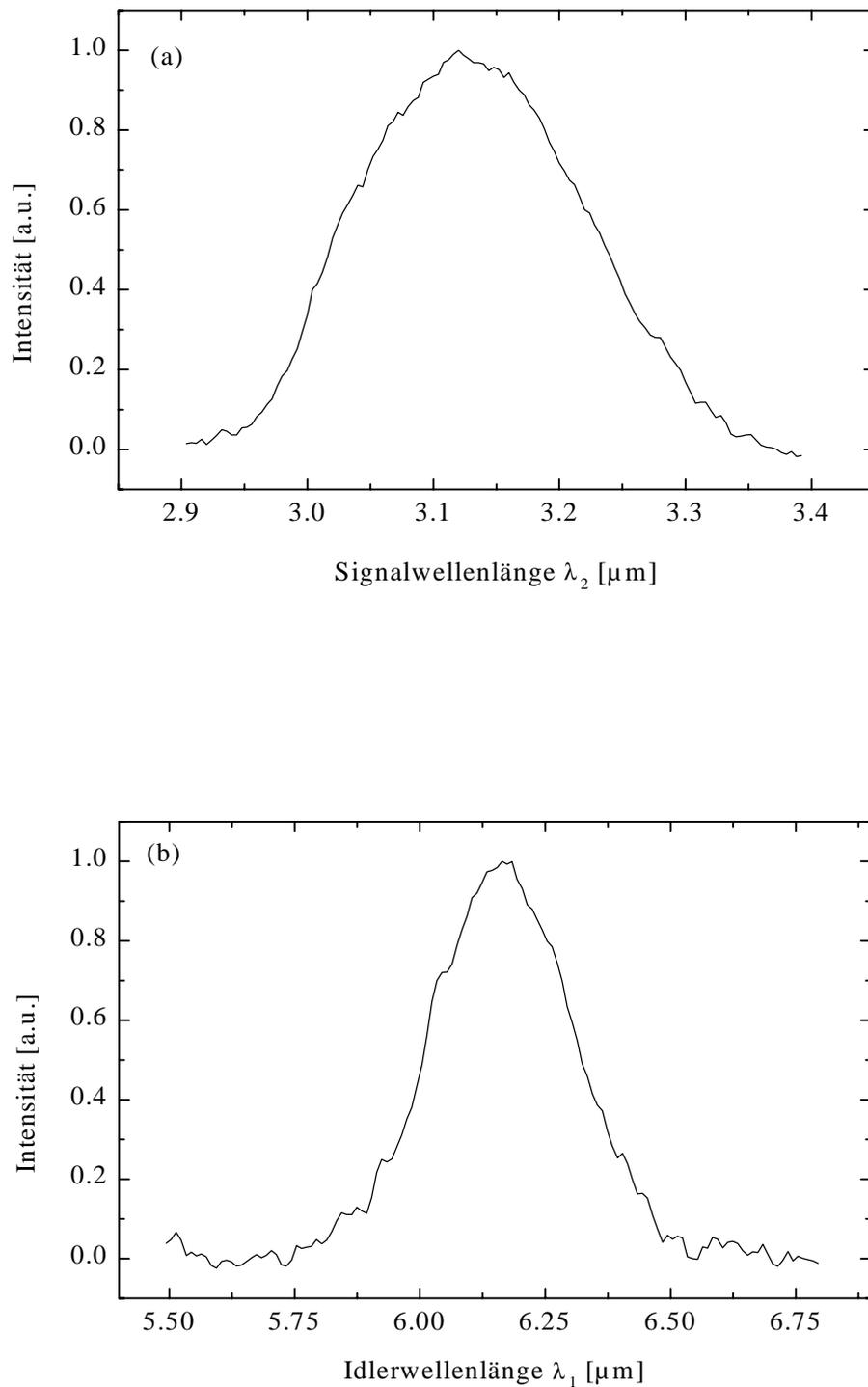


Abb. 4.34: (a) Signal- und (b) Idlerspektrum des ZGP-OPG mit der 52.5° -Probe bei senkrechtem Einfall des Pumstrahls. Die Pumpwellenlänge ist $\lambda_3=2.07 \mu\text{m}$.

Bei $I_{3m}=60 \text{ GW/cm}^2$ ($\mathcal{E}_3=16 \mu\text{J}$) konnte am ZGP-OPG eine Gesamtausgangsenergie (Signal und Idler) von 215 nJ gemessen werden. Dies entspricht einer internen Umwandlungseffizienz

von 2.5 % im einstufigen Betrieb. Die Idlerimpulse aus dem ZGP-OPG können nach Abb. 4.31a prinzipiell bis zu 10 μm durchgestimmt werden.

Wie aus Abb. 4.34 ersichtlich ist, zeigen die aufgenommenen Signal- und Idlerspektren eine wohl definierte spektrale Form ohne Struktur. Unter Annahme eines Fourier-Produktes von 0.5, was wir für den Pumpimpuls gemessen haben, führt die spektrale Halbwertsbreite zu Impulsdauern von 75 fs für den Signalimpuls und 200 fs für den Idlerimpuls. Diese Abschätzungen sind gut vergleichbar mit dem GVM-Verhalten: Bei dieser Pumpwellenlänge laufen im ZGP-Kristall Idler- und Signalimpuls schneller als der Pumpimpuls mit $\Delta_{13}=-125$ fs/mm und $\Delta_{23}=-65$ fs/mm. (Abb. 4.32) Die Spitzenleistungen der generierten Impulse betragen dabei ≈ 2 MW um $\lambda_2=3$ μm und ≈ 0.4 MW um $\lambda_1=6$ μm .

Bei $\lambda_3=1.89$ μm wurden die zwei Proben mit 52.5°- und 55°-Schnittwinkeln für die parametrische Impulserzeugung getestet. Für den senkrechten Einfall betrug die parametrische Schwelle $I_{3m}=28$ GW/cm² für die erste Probe und 55 GW/cm² für die zweite. Die erhöhten Schwellen lassen sich in beiden Fällen mit einem stärkeren zeitlichen Walk-off-Effekt (s. Abb. 4.31b) erklären.

Schließlich wurde versucht, die 67°-Probe noch kurzwelliger zu pumpen, aber die parametrische Schwelle konnte bis $I_{3m}\approx 100$ GW/cm² bei $\lambda_3=1.66$ μm und bis $I_{3m}\approx 150$ GW/cm² bei $\lambda_3=1.3$ μm (Signal aus dem NIR-OPG) nicht erreicht werden. Statt dessen konnte bei diesen hohen Intensitäten neben einigen unerwünschten nichtlinearen Effekten wie nichtlineare Absorptionsverluste, durch Selbstphasenmodulation induzierte spektrale Verbreiterung (Abb. 4.35) und Selbstfokussierung des Pumpimpulses, zusätzlich nicht-phasenangepaßte SHG beobachtet werden. Trotz dieser Effekte waren keine Zerstörungen an den Oberflächen oder im Kristall zu sehen. Die optimale Pumpwellenlänge für den fs-ZGP-OPG liegt nach unserer Abschätzung zwischen 1.9 μm und 2.1 μm im NIR-Spektralbereich. Weitere Verbesserungen der hier gezeigten Ergebnisse im Bezug auf die Umwandlungseffizienz und Ausgangsenergie sollten mit einer Antireflex-Beschichtung des Kristalls und einer zweistufigen Konfiguration möglich sein. Der Wunsch, den ZGP-OPG möglichst kurzwelliger zu pumpen, war in diesem Experiment nicht nur durch die höhere Pumpenergie, die bei kürzeren Wellenlängen vorhanden ist, sondern auch die bessere Detektionsmöglichkeiten für die NIR-Pumpstrahlung motiviert.

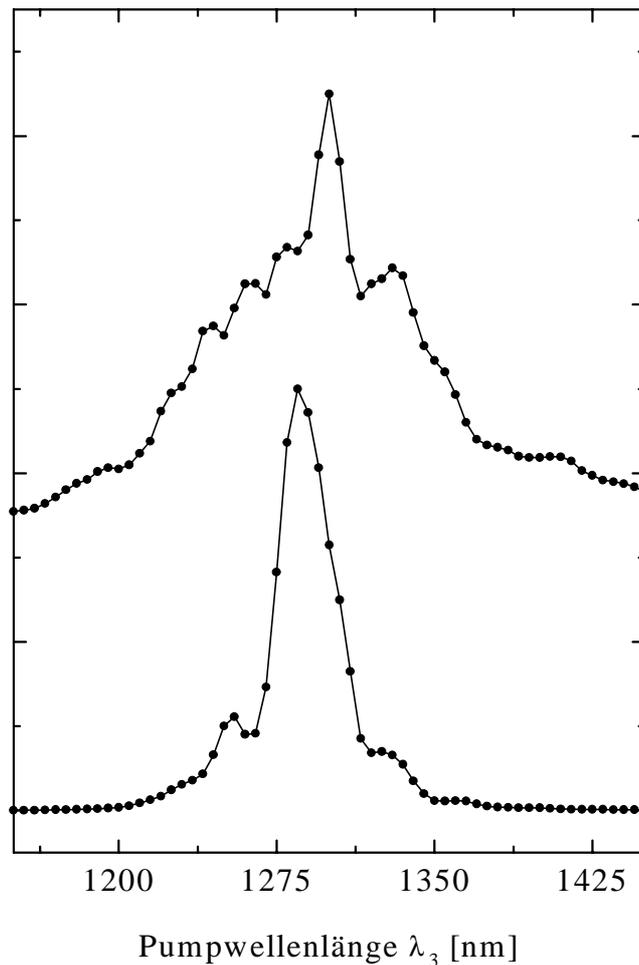


Abb. 4.35: Spektren des Pumpimpulses bei $\lambda_3=1.3 \mu\text{m}$ vor (untere Kurve) und nach (obere Kurve) der 67° -ZGP-Probe bei $I_{3m} \approx 100 \text{ GW/cm}^2$.

Zum ersten Mal wurde hier ein ZGP-OPG bei Pumpwellenlängen unterhalb von $2.5 \mu\text{m}$, wo kommerzielle NIR-OPG's als Pumpquellen verfügbar sind, betrieben. Dies ist uns gelungen dank der reduzierten Restabsorption unserer Proben und dank der Anwendung von kurzen Kristallen, deren Länge im fs-Regime durch die GVM limitiert wird.

4.2.4. Messung der nichtlinearen Absorption in ZGP

Mit dem oben beschriebenen Aufbau wurden an den ZGP-Proben intensitätsabhängige Transmissionsmessungen für verschiedene Pumpwellenlängen zwischen $1.25 \mu\text{m}$ und $2.25 \mu\text{m}$ und für zwei verschiedene Polarisierungen durchgeführt.

Diese Messung ermöglicht uns, die beim OPG-Experiment auftretenden nichtlinearen Absorptionsverluste zu charakterisieren und daraus den nichtlinearen Absorptionskoeffizienten von ZGP abzuschätzen.

Die ordentliche Polarisation entlang der Y-Achse des Kristalls entspricht der phasenangepaßten Stellung für parametrische Generation, im anderen Fall war die Polarisation in der kritischen Ebene. Unter Berücksichtigung des Pumpenergieabbaus in der phasenangepaßten Konfiguration durch die parametrische Impulserzeugung, die nur bei längeren Pumpwellenlängen beobachtet wurde, waren die gemessenen nichtlinearen Verluste unabhängig von der Polarisation.

Bis zu $I_{3m}=30 \text{ GW/cm}^2$ bei $\lambda_3=1.9 \mu\text{m}$ und bis zu $I_{3m}=45 \text{ GW/cm}^2$ bei $\lambda_3=2.2 \mu\text{m}$ waren keine nichtlinearen Verluste zu sehen, d. h. es konnte eine gewisse Schwelle beobachtet werden. Bei $I_{3m}=50 \text{ GW/cm}^2$ betrug die Transmission durch die 52.5° -Probe 53 % bei $\lambda_3=2.22 \mu\text{m}$ und 51.5 % bei $\lambda_3=2.13 \mu\text{m}$ für die nicht-phasenangepaßte Konfiguration. Diese Werte liegen nur wenig unter dem aus den Fresnel-Reflexionen berechneten Kleinsignalwert von 54 %.

Bei kürzeren Wellenlängen waren die Transmissionsänderungen viel deutlicher meßbar und daher zuverlässiger; die Schwelle bezüglich der Intensität verschwand. Bei Pumpwellenlängen von $1.3 \mu\text{m}$ und für $I_{3m}=50 \text{ GW/cm}^2$, was weit unter der parametrischen Schwelle liegt, betrug die Transmission für beide Polarisationen nur 33 %. Dies ist deutlich geringer als die lineare Transmission (46.5 %). Eine derart komplizierte Intensitätsabhängigkeit, wie oben beschrieben, kann im allgemeinen nicht allein mit einem Zwei- oder Drei-Photonen-Absorptionsprozeß erklärt werden. Die Wellenlängenabhängigkeit der nichtlinearen Verluste ist ein Hinweis dafür, daß sie in Zusammenhang mit der anormalen NIR-Absorption (z. B. Verunreinigungen) stehen.

Letztlich wurde noch überprüft, ob die nichtlinearen Verluste instantan entstehen. Zu diesem Zweck wurde zuerst die Repetitionsrate des Lasersystems von 1 kHz auf 100 Hz reduziert, wobei keine Änderung der Transmission festgestellt werden konnte. Weiter wurde eine Anordnung für nichtkollineare Pump-Abtast-Messung (Überlapp im Fokus) ähnlich wie ein Michelson-Interferometer aufgebaut. Hier wurde bei gleicher Wellenlänge der schwächere Strahl (Abtast-Strahl) nach dem ZGP-Kristall detektiert. Da die Abklingzeit der gemessenen Kurve im Bereich der Impulsdauer lag, kann man daraus schließen, daß die Verluste ein instantaner Prozeß sind und daher einen ganz anderen Ursprung haben als die pumpinduzierten Verluste, die in [BMJ95] für ZGP beschrieben sind. Die Abbildung 4.36 zeigt einige Meßserien für die nichtlineare Transmission bei $\lambda_3=1.3 \mu\text{m}$. Die Meßergebnisse wurden dann nur unter Berücksichtigung der Zwei-Photonen-Absorption mit (2.63) gefittet.

Eine grobe Abschätzung des nichtlinearen Absorptionskoeffizienten unter der Annahme einer Gauß'schen zeitlichen und räumlichen Verteilung liefert $\beta_{TP}=0.25 \text{ cm/GW}$.

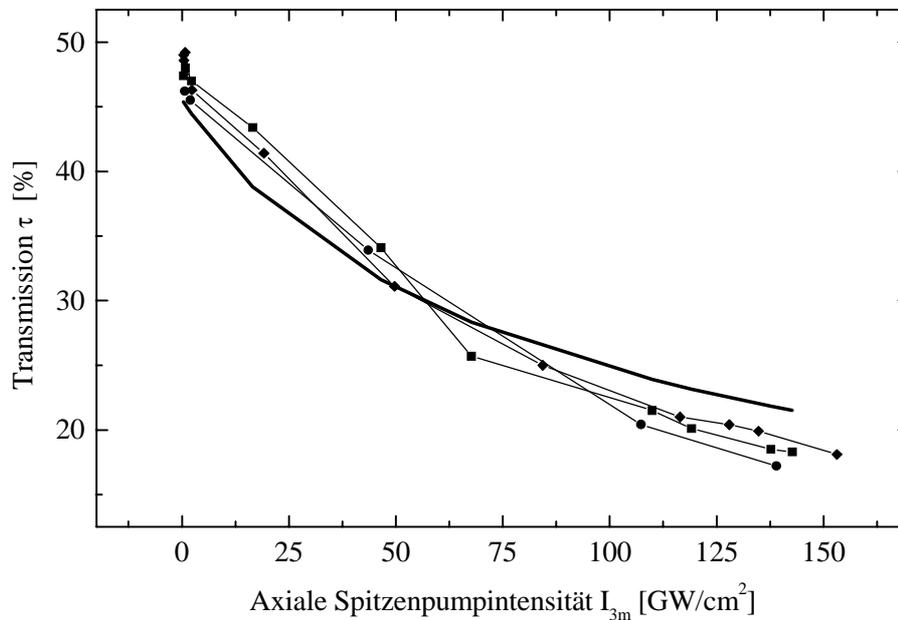


Abb. 4.36: Intensitätsabhängige Transmission der 67°-ZGP-Probe bei $\lambda_3=1.3 \mu\text{m}$. Die dickere Kurve zeigt den Fit unter der Annahme eines Zwei-Photonen-Absorptionsprozesses.

Es ist hier zu bemerken, daß die Abweichung des Fits von den experimentell gemessenen Punkten in Abb. 4.36 nicht durch Annahme anderer zeitlicher bzw. räumlicher Verteilung des Pumpstrahls verbessert werden konnte.

Die hier gezeigte Abschätzung stellt erste Messung von β_{TP} in ZGP dar, deshalb kann man dieses Ergebnis nur mit anderen Materialien aus Tab. 4.3 vergleichen, die ein ähnliches Bandgap wie ZGP besitzen. Leider sind die entsprechenden Messungen bei verschiedenen Wellenlängen und Impulsdauern. In AgGaSe_2 (Bandkante bei 1.75 eV), der wie ZGP zu den Chalkopyriten gehört, wurde in [MaA80] $\beta_{TP}=1.4 \text{ cm/GW}$ bei $1.064 \mu\text{m}$ gemessen. In GaSe (Bandkante bei 2 eV) wurde $\beta_{TP}=6 \text{ cm/GW}$ bei 700 nm gemessen [VMV98]. In CdSe (Bandkante bei 1.75 eV) lieferten Messungen mit ps-Impulsen bei $1.064 \mu\text{m}$ Werte zwischen 18 und 35 cm/GW [Ndn97]. Die generell höheren Werte können dadurch erklärt werden, daß in GaSe, CdSe und AgGaSe_2 die Messungen bei Wellenlängen kürzer als die doppelte Wellenlänge, die der Bandkante entspricht, erfolgten. In unserem Fall von ZGP lag die Wellenlänge nur in der Nähe der halben Bandkante.

4.2.5. Bestimmung des nichtlinearen Brechungsindex mit der z-Scan-Technik

In diesem experimentellen Teil wurde versucht, erstmals den nichtlinearen Kerr-Koeffizienten n_2 in ZGP bei NIR-Pumpwellenlängen um $1.26 \mu\text{m}$ zu bestimmen. Für die Messung wurde die in Abs. 2.6 erläuterte z-Scan-Technik verwendet. Ein selbststartender modensynchronisierter fs-Cr:Forsterit-Laseroszillator wurde dabei verwendet [PSM98]. Der Laser läuft bei 83 MHz Repetitionsrate und liefert eine maximale mittlere Leistung von 500 mW bei einer Impulsdauer von 94 fs um etwa $1.26 \mu\text{m}$.

Zur z-Scan-Messung wurde die ZGP-Probe in der Nähe vom Brennpunkt einer 5 cm Linse bewegt. Die lineare Transmission durch die hinterliegende Blende betrug $S=15\%$. Man konnte keine Unterschiede zwischen o-Polarisation und Polarisation in der XZ-Ebene für den einfallenden Strahl feststellen. Daher wird hier nur die Transmissionsmessung mit dem o-polarisierten Strahl präsentiert (Abb. 4.37).

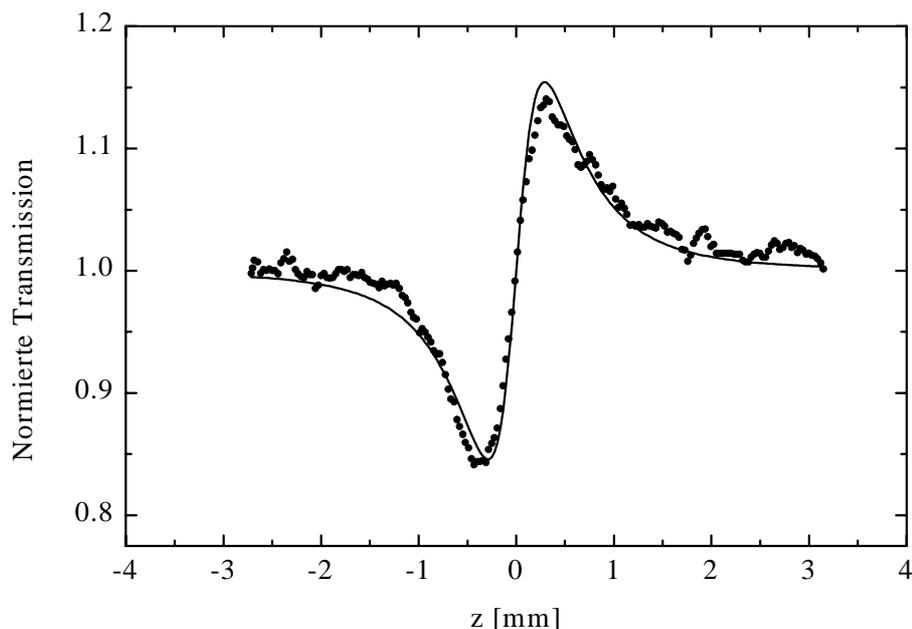


Abb. 4.37: z-Scan-Kurve der 67° -ZGP-Probe um $1.26 \mu\text{m}$ für eine einfallende mittlere Leistung von 75 mW bei 83 MHz. Durchgezogene Kurve ist Fitkurve mit (2.58).

Zur Anpassung der gemessenen Daten wird die Formel (2.58) verwendet. Aus den Fit-Parametern konnte eine mittlere Phasenänderung von $\langle \Delta\Phi \rangle = 0.76$ und eine Rayleigh-Länge von $z_R = 0.34$ mm hergeleitet werden. Aus dieser z_R erhält man $w_0 = 11.6 \mu\text{m}$, was mit den experimentell durch die Rasierklingen-Methode ($w_0 = 11.8 \mu\text{m}$ mit Gauß'schem Fit) und durch einen Pinhole ($w_0 = 11.1 \mu\text{m}$) bestimmten Strahlquerschnitten im Fokus sehr gut übereinstimmt. Die hergeleitete Phasenänderung war sehr gut vergleichbar mit der groben

Abschätzung, die sich aus $\langle \Delta\Phi \rangle = 2.47 \Delta\tau_{p,v} (1-S)^{-1/4}$ ergibt (Abs. 2.6). In diesem Experiment war $\Delta\tau_{p,v} = 0.31$, d. h. $\langle \Delta\Phi \rangle = 0.8$.

Da die Repetitionsrate beim verwendeten Laser nicht variiert werden konnte, wurde nur die mittlere Leistung des einfallenden Strahls geändert, um langsame Akkumulationen oder thermische Effekte bei 83 MHz ausschließen zu können. Bei Erhöhung der mittleren Leistung bis zu 135 mW konnte man keine signifikanten Veränderungen der Ergebnisse von Abb. 4.37 feststellen. Bei $I_{3m} = 4.3 \text{ GW/cm}^2$, wie in Abb. 4.37, wurde andererseits keine nichtlineare Absorption beobachtet und daher war keine Korrektur dafür notwendig [Srl96]. Eine leichte Modulation in der z-Scan-Kurve mit offener Blende war aber bereits ab 7.8 GW/cm^2 (135 mW mittlere Leistung) bemerkbar, was auf nichtlineare Absorption hindeutet.

Die einfallende Energie betrug unter Berücksichtigung der ersten Reflexion (2.59) $\mathcal{E}_i = 0.65 \text{ nJ}$. Aus der Formel (2.60) mit $\alpha = 0.87 \text{ cm}^{-1}$ (Abb. 4.30) und $n_0 \approx 3.2$ konnte $L_{\text{eff}} = 1.5 \text{ mm} < L$ berechnet werden, während sich in der Näherung für eine kurze Probe (Abs. 2.6), wo $L \ll n_0 Z_R$ gilt, $L_{\text{eff}} \approx 1.8 \text{ mm}$ ergab. Die GVD-Länge (2.51) beträgt $L_{\text{GVD}} \approx 7.2 \text{ mm}$ in ZGP für den ordentlich polarisierten Strahl. Theoretisch sollte diese Länge zu einer Impulsverbreiterung von 26 % führen [SEm97], was tatsächlich durch Impulsdauermessungen vor und nach dem 67° -ZGP-Kristall bestätigt werden konnte. Die gemessene Impulsdauer (FWHM) nahm von 94 fs auf 120 fs zu. Da die Bedingung $L_{\text{GVD}} > 4 \ln 2 L$ [SEm97] in unserem Experiment stets erfüllt ist und die effektive Länge L_{eff} [siehe (2.60)] kürzer als L ist, konnte man bei der Berechnung von n_1 aus Abb. 4.37 die zeitliche Verbreiterung der Impulse vernachlässigen.

Aus (2.59) mit $L_{\text{eff}} = 1.5 \text{ mm}$ ergibt sich schließlich für die sech^2 -Impulsform ein Wert von $n_1 = 5.37 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ für ZGP bei einer Wellenlänge von $\lambda = 1.26 \text{ }\mu\text{m}$.

Es ist möglich, n_1 theoretisch abzuschätzen [SEm97]. Aus der Dispersionstheorie der „bound electronic“ Kerr-Nichtlinearität erhält man folgende Gleichung:

$$n_1 [\text{cm}^2 / \text{W}] = b \frac{\lambda_g^4 [\mu\text{m}]}{n_0^2} G_2(\lambda_g / \lambda) \quad (4.1)$$

Hier ist b eine Konstante mit dem Wert von etwa $0.65 \cdot 10^{-12}$ [in Einheiten von (4.1)] für wide-gap dielektrische Materialien, während für Halbleiter $b = 1.22 \cdot 10^{-12}$ aus dem besten Fit von experimentellen Daten bestimmt wurde [SEm97]. λ_g bezeichnet die Bandgap-Wellenlänge des Materials. G_2 ist eine normierte Dispersionsfunktion, die für $u = \lambda_g / \lambda < 0.6$ durch:

$$G_2(u) = 1 + 2.4u^2 + \frac{2.6}{400(u - 0.535)^2 + 1} \quad (4.2)$$

approximiert werden kann. G_2 beträgt z. B. ≈ 3 für ZGP bei $\lambda = 1.26 \mu\text{m}$. Schließlich ergibt sich aus (4.1) eine theoretische Abschätzung von $n_I = 5.3 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$. Dies zeigt wiederum sehr gute Übereinstimmung mit unserem experimentellen Ergebnis. Unter Berücksichtigung der Näherungen bei dem Einfluß der Absorption und der Länge der Probe sowie die Vernachlässigung der GVD wird eine Ungenauigkeit von $\pm 20\%$ für den hier bestimmten Wert für n_I in ZGP abgeschätzt.

Es sei noch erwähnt, daß uns neben ZGP auch ZnSe ein Material, für das n_I vor kurzem mit einem ähnlichen Laser bei $1.27 \mu\text{m}$ bestimmt wurde [KtW94], zur Verfügung stand, um die Zuverlässigkeit unserer Messung zu bestätigen. Wir erhielten die 3 mm lange ZnSe-Probe von IKZ (Institut für Kristallzüchtung, Berlin). Diese polykristalline Probe war so selektiert, daß sie einen minimalen Cu-Gehalt besitzt, was durch die reduzierte Fluoreszenz im roten Spektralbereich bei Beleuchtung mit UV-Licht verifiziert werden kann. Man konnte feststellen, daß die parasitäre nichtphasenangepaßte SHG in dieser Probe viel schwächer war als in den kommerziell verfügbaren ZnSe-Spiegelsubstraten. In ZnSe beträgt der lineare Absorptionskoeffizient α nur $\approx 0.006 \text{ cm}^{-1}$ und folglich wird L_{eff} allein durch die Abweichung von der Näherung für kurze Proben (2.60) bestimmt. L_{GVD} in ZnSe beträgt 17.5 mm, was zu einer vernachlässigbaren Impulsverbreiterung durch GVD führt. Dies konnte experimentell bestätigt werden. Da die Nichtlinearität von ZnSe viel niedriger ist als die von ZGP, wurde für ZnSe eine höhere mittlere Leistung (135 mW) benötigt. Aus der gemessenen Transmissionsänderung von $\Delta\tau_{p,v} = 0.13$ konnten wir $n_I = 7.5 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$ erhalten. Dieser Wert ist zwar ein wenig größer als der in [KtW94] berichtete Wert ($n_I = 6 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$), aber in guter Übereinstimmung mit älteren z-Scan-Experimenten [SHS91]. Die verwendete Intensität im Fokus bei unserer z-Scan-Messung war etwa gleich wie in [KtW94], wo die langsamen Beiträge zu n_I in ZnSe durch Reduzierung der Repetitionsrate unter 1 MHz ausgeschlossen werden konnten. Der theoretische Wert für ZnSe bei $1.26 \mu\text{m}$ liegt übrigens höher und beträgt $n_I = 1.6 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$.

Bei $I_{3m} \approx 100 \text{ GW}/\text{cm}^2$ führt der relativ große Wert von n_I in ZGP zur erheblichen Selbstphasenmodulation, wie es in Abb. 4.35 mit verstärkten Impulsen bei $1.3 \mu\text{m}$ gezeigt wurde. Das B-Integral auf der Achse [hier mit $B = 2\pi n_I I_{3m} (1-R) L_{\text{eff}}/\lambda$, siehe (2.67)] betrug etwa 9π für die obere Kurve in Abb. 4.35 und die Selbstfokussierung trat, wie erwartet, in

Erscheinung, da der kritische Wert [s. (2.67)] durch die hohe einfallende Intensität mit der effektiven Länge überschritten wurde. Bei längeren Pumpwellenlängen wie $\lambda_3=1.65 \mu\text{m}$ bei etwa gleicher Intensität konnten wir aber solche Effekte nicht beobachten. Die Größenordnung der spektralen Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation in Abb. 4.35 kann unter Vernachlässigung von GVD durch den Vergleich der verdoppelten maximalen spektralen Verschiebung ($\Delta\nu_{\text{SP}}\approx B/\pi T_3$) mit der anfänglichen spektralen Breite (FWHM), die durch $\Delta\nu_3\approx 0.5/T_3$ gegeben ist, grob abgeschätzt werden. Wir erhalten damit $\Delta\nu_{\text{SP}}/\Delta\nu_3\approx 18$ auf der Achse. Die räumlich gemittelten Spektren in Abb. 4.35 zeigen aber nur 4-fache Verbreiterung. Außer der räumlichen Verteilung der Intensität ist die nichtlineare Absorption ein anderer wichtiger Faktor, der zu dieser Abweichung beiträgt. Diese nichtlineare Absorption wurde bei der theoretischen Abschätzung des B-Integrals nicht berücksichtigt.

Da n_I fast immer ein unerwünschter Effekt bei OPG/OPA ist, ist es interessant, den Wert für ZGP mit anderen Kristallen aus Tab. 4.3 zu vergleichen. Aus der Literatur ist nur $n_I=-1.5\cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ für CdSe bekannt [SHS91].

4.3. Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden-Lichtimpulse im MIR bis $10 \mu\text{m}$ durch optisch parametrische Verstärkung an einem Cr:Forsterit-Verstärkersystem

Wie bereits erwähnt, war es bisher nicht möglich, fs-MIR-Impulse oberhalb von $5 \mu\text{m}$ durch Pumpen eines OPAs bzw. OPGs mit Ti:Saphir-Verstärkersystem direkt zu erzeugen. Auch wenn es in einzelnen Fällen andere Gründe dafür gibt, ist es die Zwei-Photonen-Absorption in allen Kristallen, die bis $10 \mu\text{m}$ und weiter transparent sind, die das Pumpen von OPA's oder OPG's im fs-Regime um 800 nm nicht erlaubt. Ein Cr:Forsterit-Verstärkersystem bietet sich deshalb als alternative fs-Pumpquelle bei längerer Wellenlänge im NIR an.

Die Tabelle 4.4 zeigt die wichtigsten Eigenschaften kommerziell verfügbarer nichtlinearer Kristalle, die bei der Wellenlänge des Cr:Forsteritlasers (um $1.25 \mu\text{m}$) keine Zwei-Photonen-Absorption aufweisen.

Nichtlineare Kristalle, Klasse	Transparenzbereich [μm]	Effektive Nichtlinearität d_{eff}	Nichtlinearer Koeffizient [pm/V]
AgGaS₂ negativ-einachsige, $\bar{4}2\text{m}$	0.47-13	$d_{\text{ooe}}=d_{36}\sin\theta\sin 2\varphi$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oeo}}=d_{36}\sin 2\theta\cos 2\varphi$	$d_{36}=17.5$
HgGa₂S₄ negativ-einachsige, $\bar{4}$	0.55-13	$d_{\text{ooe}}=(d_{36}\sin 2\varphi+d_{31}\cos 2\varphi)\sin\theta$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oeo}}=(d_{36}\cos 2\varphi-d_{31}\sin 2\varphi)\sin 2\theta$	$d_{36}=31.5$ $d_{31}=10.5$
Ag₃AsS₃ negativ-einachsige, 3m	0.6-13	$d_{\text{ooe}}=d_{31}\sin\theta-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oeo}}=d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$d_{31}=10.4$ $d_{22}=16.6$
Ag₃SbS₃ negativ-einachsige, 3m	0.6-13.5	$d_{\text{ooe}}=d_{31}\sin\theta-d_{22}\cos\theta\sin 3\varphi$ $d_{\text{eoe}}=d_{\text{oeo}}=d_{22}\cos^2\theta\cos 3\varphi$	$d_{31}=7.8$ $d_{22}=8.2$

Tab. 4.4: Potentielle Kandidaten für OPA im Spektralbereich 3 – 10 μm mit Cr:Forsteritlaserpumpen (für ZnGeP₂ und GaSe siehe Tab. 4.3).

Dabei ist Silberthiogallat (AgGaS₂) das am weitesten verbreitete und technologisch gut beherrschte Material. Pyrargyrit (Ag₃SbS₃) hat kleinere Nichtlinearitäten als Proustite (Ag₃AsS₃). Proustite zeigt seinerseits wesentlich größere GVM in ooe- und eoe-Polarisationskonfigurationen als AgGaS₂ und Quecksilberthiogallat (HgGa₂S₄). In der ooe-Konfiguration, die in AgGaS₂ und HgGa₂S₄ nicht phasenangepasst ist, ist d_{eff} in Ag₃AsS₃ wesentlich kleiner. GaSe (Tab. 4.3) hat trotz sehr hoher Nichtlinearität ähnlich geringe GVM nur in der ooe-Konfiguration, dies allerdings nur bei Winkeln θ , die bei dem einzig möglichen Schnitt in diesem Material ($\theta=0^\circ$) nicht erreichbar sind. ZGP (Tab. 4.3) hätte auch keine Zwei-Photonen-Absorption bei $\lambda_3=1.25 \mu\text{m}$. Wie in den vorigen Abschnitten erläutert, ist aber die Anwendung dieses Materials bei dieser Wellenlänge aus verschiedenen Gründen (Restabsorption, limitierte Phasenanpassung, enorme GVM) nicht denkbar. Im nächsten Abschnitt vergleichen wir AgGaS₂ und HgGa₂S₄, die in unserem Experiment verwendet wurden.

4.3.1. Eigenschaften von AgGaS₂ und HgGa₂S₄

AgGaS₂ und HgGa₂S₄ sind beide negativ einachsige Kristalle und transparent bis 13 μm . Sie haben ähnliche Bandgaps: das Bandgap von AgGaS₂ liegt bei etwa 450 nm und das von HgGa₂S₄ bei 440 nm. AgGaS₂ guter Qualität wird heutzutage von mehreren Lieferanten angeboten. Die in diesem Experiment verwendeten Proben stammen von EKSMA (Lithauen). Der HgGa₂S₄-Kristall ist relativ unbekannt, obwohl er schon im Jahr 1975 für nichtlineare optische Anwendungen entwickelt wurde [LBK76]. Seitdem gab es aber nur eine Gruppe, die sich mit diesem Material intensiv beschäftigt hat. Sie bestimmte optische Eigenschaften wie

die Sellmeier-Gleichungen [BMP79] und die Zerstörungsschwelle [LBK76] von HgGa_2S_4 , sowie die nichtlinearen Koeffizienten [BMP80]. Vor kurzem wurden verbesserte Sellmeier-Gleichungen für das gleiche Material (Universität Kuban, Rußland) veröffentlicht [TKk98].

Die bisher berichtete Zerstörungsschwelle der Kristalloberfläche mit ns-Impulsen für AgGaS_2 und HgGa_2S_4 [AAB80, TKk98] deutet darauf hin, daß HgGa_2S_4 eine um zwei- bis dreimal höhere Widerstandsfähigkeit besitzt. Die Schwelle für 30 ns Impulse liegt z. B. in diesem Kristall in der Größenordnung von 60 MW/cm^2 bei $1.064 \mu\text{m}$.

Hier wird für AgGaS_2 der nichtlineare Koeffizient von $d_{36}=17.5 \text{ pm/V}$ angenommen, der sich aus einer Zusammenstellung zahlreicher Abschätzungen durch verschiedene Methoden ergibt [Rda92]. Für den HgGa_2S_4 -Kristall ergibt sich dann aus der relativen Messung in [BMP80] $d_{36}=31.5 \text{ pm/V}$ und $d_{31}=10.5 \text{ pm/V}$ (Tab. 4.4). Die relativen Vorzeichen der Nichtlinearitäten in HgGa_2S_4 sind aber bis jetzt nicht bekannt, deshalb wird die kleinere Komponente d_{31} bei der Wahl des Kristallschnittes eliminiert, indem man gemäß der angegebenen d_{eff} (Tab. 4.4) den azimuthalen Winkel $\varphi=45^\circ$ für Typ I- und $\varphi=0^\circ$ für Typ II-Wechselwirkung auswählt. Solche azimuthalen Winkel wurden auch für unsere AgGaS_2 -Proben gewählt. Der Schnitt für den Phasenanpassungswinkel ist bei uns unter $\theta=40^\circ$ (Typ I-Wechselwirkung) bzw. $\theta=46^\circ$ (eoe-Typ II) für HgGa_2S_4 und $\theta=36.5^\circ$ (Typ I) bzw. $\theta=42^\circ$ (eoe-Typ II) für AgGaS_2 gewählt. Alle 4 Proben sind 2 mm lang mit einer Apertur von $4 \times 5 \text{ mm}^2$. Es soll hier bemerkt werden, daß die Verbesserung von d_{eff} in HgGa_2S_4 beim Pumpen um $1.25 \mu\text{m}$ höchstens 7 % beträgt, wenn zusätzlich der d_{31} -Koeffizient ausgenutzt wird.

Das GVM-Verhalten in AgGaS_2 und HgGa_2S_4 für $\lambda_3=1.25 \mu\text{m}$ wird zusammen mit dem $\text{FOM}/(\lambda_1\lambda_2)^{1/2}=d_{\text{eff}}(\lambda_1\lambda_2n_1n_2n_3)^{-1/2} \propto g_0$ in Abb. 4.38 dargestellt. Die Berechnung hier erfolgt mit entsprechenden Sellmeier-Gleichungen aus [TKk98, TKk99].

Wie aus Abb. 4.38 ersichtlich ist, sind die GVM-Parameter beider Materialien sehr ähnlich. Diese Ähnlichkeit ermöglicht uns, die d_{36} -Koeffizienten von AgGaS_2 und HgGa_2S_4 aus dem experimentell beobachteten OPA-Verhalten zu vergleichen.

In allen Wechselwirkungskonfigurationen bewegt sich der Signalimpuls schneller als der Pumpimpuls und der Idlerimpuls schneller als der Signalimpuls. Bei Typ I-Wechselwirkung ist zwar die GVM zwischen Idler- und Pumpimpuls Δ_{13} kleiner als im Fall von Typ II-Wechselwirkung, aber die Situation ist zwischen Signal- und Pumpimpuls (Δ_{23}) genau umgekehrt. Es ist daher kaum möglich, auf der Basis des GVM-Verhaltens vorherzusagen, welche von den beiden Wechselwirkungstypen günstiger für OPA wäre.

Wie man aus den FOM-Kurven in Abb. 4.38 entnehmen kann, sollte sowohl Typ I- als auch Typ II-Wechselwirkung in HgGa_2S_4 aufgrund des größeren nichtlinearen Koeffizienten

effizientere OPA als in AgGaS_2 liefern. Für beide Kristalle hat d_{eff} in Typ II-Wechselwirkung höheren Wert als in Typ I, was mit unterschiedlicher Winkelabhängigkeit zu erklären ist (Tab. 4.4). Alle vier Kurven im unteren Bild von Abb. 4.38 zeigen eine Abnahme mit zunehmender Idlerwellenlänge aufgrund der $(\lambda_1\lambda_2)^{1/2}$ -Abhängigkeit, die die parametrische Verstärkung g in (2.21) bestimmt. Der Abfall der Kurven auf der kurzwelligen Seite in Typ II-Wechselwirkung ist allein auf die Annäherung an den polaren Winkel $\theta=90^\circ$ und d_{eff} zurückzuführen.

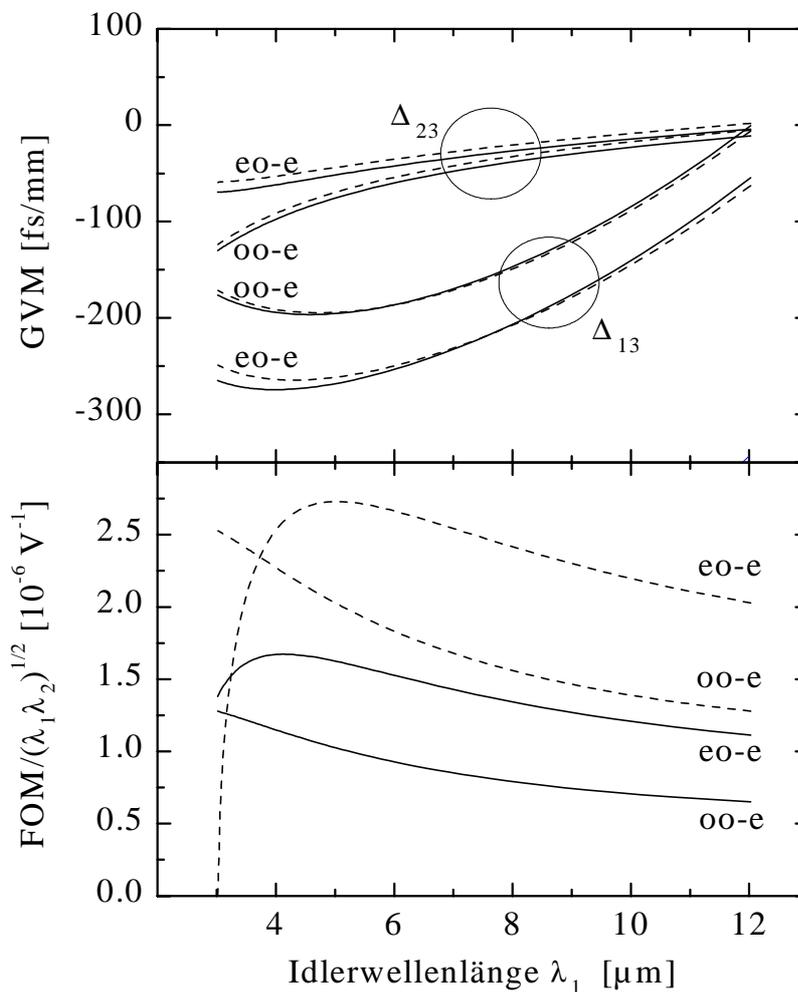


Abb. 4.38: GVM zwischen Idler- und Pumpimpuls Δ_{13} und zwischen Signal- und Pumpimpuls Δ_{23} und „figure of merit“ (FOM), normiert mit $(\lambda_1\lambda_2)^{1/2}$ für Typ I (oo-e)- und Typ II (eoe)-Wechselwirkung in AgGaS_2 (durchgezogene Kurven) und HgGa_2S_4 (gestrichelte Kurven).

4.3.2. Experimentelle Anordnung

Der experimentelle Aufbau zur Erzeugung abstimmbarer fs-MIR-Impulse bis $10\ \mu\text{m}$ durch OPA wird in Abb. 4.39 dargestellt. Als Pumpquelle dient hier ein regenerativer Cr:Forsterit-Verstärker, der bei einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Impulsdauer von 175 fs (Gauß'sche Impulsform angenommen) Einzelimpulsenergien von $200\ \mu\text{J}$ liefert [SZP99].

Die Pumpwellenlänge ist hier bei $1.25\ \mu\text{m}$ fixiert. Für dieses Experiment wird eine Impulsenergie von etwa $100\ \mu\text{J}$ verwendet. Zuerst wird der Pumpstrahl durch ein Teleskop herunter kollimiert. Ein Teil der Pumpstrahlung wird frequenzverdoppelt. Die Impulse bei der zweiten Harmonischen um $625\ \text{nm}$ mit nahezu gleicher Impulsdauer wie bei der Grundwelle werden in einem $5\ \text{mm}$ langen LBO-Kristall ($\varphi=0^\circ$, $\theta=90^\circ$ Schnitt für Typ I-Wechselwirkung) über Winkelphasenanpassung erzeugt und anschließend mittels eines dichroitischen Spiegels umgelenkt. Die zweite Harmonische mit einer Energie von $8\ \mu\text{J}$ wird dann zum Pumpen der ersten Stufe OPA1 für die Erzeugung von Seedimpulsen bei der Idlerwellenlänge für OPA2 benötigt. Der größere Teil der Pumpenergie geht durch den dichroitischen Spiegel und läuft über eine Verzögerungsstrecke zur Verstärkerstufe OPA2.

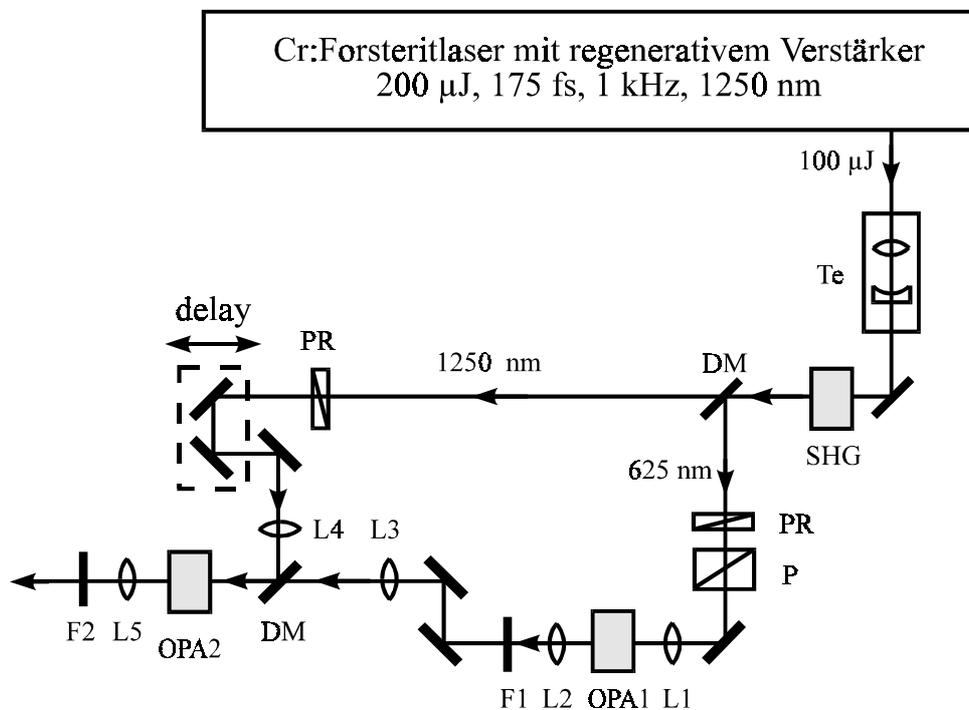


Abb. 4.39: Experimenteller Aufbau, **Te**: Teleskop, **OPA1**: erste Stufe (OPG; 5 mm Typ II-LBO), **OPA2**: zweite Stufe (OPA), **P**: Polarisator zur Unterdrückung des $1.25\ \mu\text{m}$ -Pumpimpulses, **L1**, **L2**, **L3**, **L4** und **L5**: 5 cm, 5 cm, 20 cm, 10 cm, und 10 cm BaF₂-Linsen, **PR**: Polarisationsdreher, **F1**: RG1000-Filter, **F2**: Langpaß-Filter auf Ge-Substrat, **DM**: dichroitische Spiegel.

Der OPA1-Kristall ist ein 5 mm langer LBO für Typ II (eo-e)-Wechselwirkung und unter $\theta=0^\circ$ geschnitten. Typ II-Wechselwirkung bietet schmalere und nahezu konstante Seedbandbreite für OPA2. Der Typ II-LBO ist in einem Ofen montiert, um eine Abstimmbarkeit der Wellenlänge durch Änderung der Temperatur zwischen 300°C und Raumtemperatur zu ermöglichen. Diese Art von Temperaturabstimmung im fs-Regime wurde früher mit Pumpimpulsen bei 800 nm [PFs94] und 400 nm [PvS94] (Grundwelle und zweite Harmonische eines regenerativen Ti:Saphir-Verstärkers) demonstriert. Die Vorteile der nichtkritischen Phasen Anpassung durch Temperaturänderung in OPA1 bestehen vor allem darin, daß man keine zusätzliche räumliche Justierung in der zweiten Stufe OPA2 benötigt, wenn die erzeugte Seedwellenlänge (Idler in OPA1) variiert wird. Nach OPA1 werden sowohl der restliche Pumpstrahl bei 625 nm als auch der generierte Signalimpuls um $1\ \mu\text{m}$ mit dem Filter F1 unterdrückt und der erzeugte Idlerimpuls seedet die zweite Stufe OPA2 bei der Signalwellenlänge. Die Polarisationsdreher in beiden Armen in Abb. 4.39 ermöglichen, die Reflexion und Transmission der verwendeten dichroitischen Spiegel besser auszunutzen. Man kann im Prinzip mit dieser OPA-Ausführung durch Seeden von OPA2 zwischen 1.68 und $1.43\ \mu\text{m}$ den MIR-Spektralbereich zwischen 4.9 und $10\ \mu\text{m}$ mit dem Idlerimpuls aus OPA2 abdecken. Die Seedwellenlänge entspricht dabei einer Temperaturänderung zwischen 300 und 200°C in OPA1.

Die Spektren der nach OPA2 erzeugten Idlerimpulse werden mit dem gleichen Spektrometer wie bisher in Verbindung mit einem Stickstoff-gekühlten HgCdTe-Photodetektor aufgenommen. Die Impulsdauer wird durch Kreuzkorrelation mittels SFG zwischen dem Idler- aus OPA2 und einem Referenzimpuls bestimmt. Der Referenzstrahl ist ein kleiner Anteil vom Pumpstrahl bei $1.25\ \mu\text{m}$, der an der Vorderfläche des SHG-LBO-Kristalls reflektiert wird. Ein $0.3\ \text{mm}$ dünner AgGaS₂-Kristall mit $\theta=40.5^\circ$ für Typ I-Wechselwirkung stand hier als SFG-Kristall zur Verfügung. Die GVM zwischen den zwei o-Wellen in diesem Kristall beträgt etwa $80\ \text{fs}$ bei $\lambda_1=5\ \mu\text{m}$ und $50\ \text{fs}$ bei $\lambda_1=9\ \mu\text{m}$. Diese Werte haben zwar einen geringeren Einfluß auf die Halbwertsbreite der gemessenen Kreuzkorrelationsfunktion als die Referenzimpulsdauer, aber sie sollten trotzdem bei der Entfaltung berücksichtigt werden.

4.3.3. Ergebnisse und Diskussion

Eine axiale Spitzenintensität des Pumpimpulses von $I_{3m}=125\ \text{GW}/\text{cm}^2$, was einer Impulsenergie von $\mathcal{E}_3=63\ \mu\text{J}$ bei einem Gauß'schen Strahldurchmesser von $0.54\ \text{mm}$ entspricht, wurde zum Pumpen von OPA2 mit AgGaS₂ oder HgGa₂S₄ verwendet. Dabei

konnten in allen vier Proben keine Transmissionsverluste außer Fresnel-Reflexionen beobachtet werden.

Die gemessenen Idlerenergien \mathcal{E}_1 bei einer Seedenergie von 190 nJ sind in Abb. 4.40 für verschiedene Wellenlängen aufgetragen. Diese Abhängigkeiten von \mathcal{E}_1 lassen sich mit dem $FOM/(\lambda_1\lambda_2)^{1/2}$ -Verhalten (Abb. 4.38) gut begründen. Offensichtlich konnte in diesem Fall die kleinere parametrische Verstärkung bei längeren Wellenlängen nicht durch die günstigeren GVM-Parameter kompensiert werden. Die aus dem Experiment abgeschätzte parametrische Verstärkung bei der Signalwellenlänge für Typ II-HgGa₂S₄ variiert unter Berücksichtigung von Fresnel-Verlusten je nach Idlerwellenlänge zwischen 8 und 30. Bei der maximalen Verstärkung beträgt die maximale interne Umwandlungseffizienz (Signal + Idler) 11 % allein in OPA2 und die maximale externe Effizienz für OPA1 und OPA2 5 %. Dies bedeutet, daß die präsentierte direkte Erzeugung der fs-MIR-Impulse eine Verbesserung um mehr als zwei Größenordnungen im Vergleich zu den bisherigen kaskadierten Ausführungen mit DFG an Ti:Saphir-Verstärkersystemen [SPW94, GBR98, PFs94] darstellt.

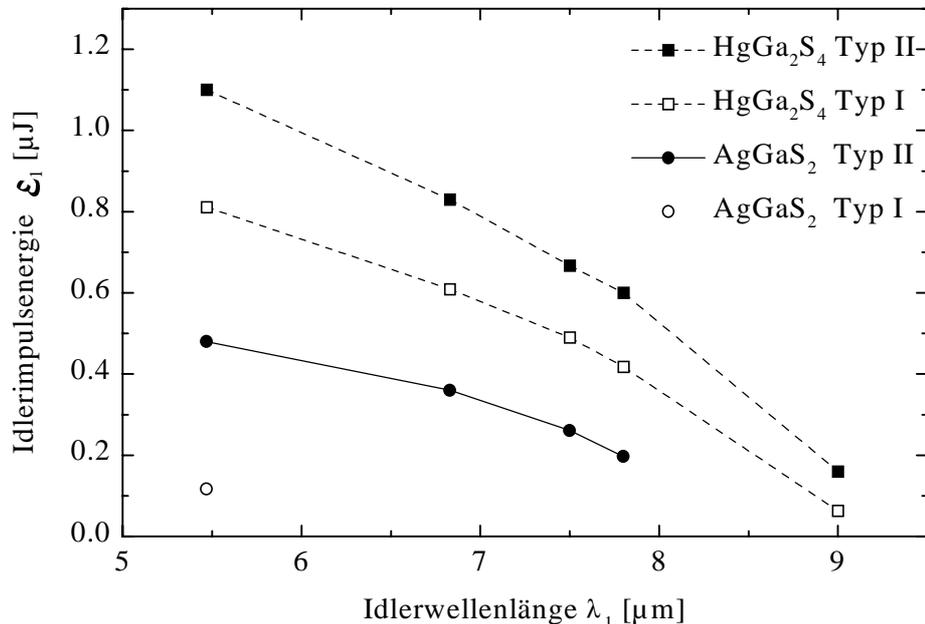


Abb. 4.40: Gemessene Idlerimpulsenergie \mathcal{E}_1 nach OPA2 mit HgGa₂S₄ und mit AgGaS₂ für Typ I- und Typ II-Wechselwirkung, aufgetragen gegen die Idlerwellenlänge λ_1 .

Die Sellmeier-Gleichungen von HgGa_2S_4 [TKk99] sagen zwar für Typ II-Wechselwirkung etwas größere Phasenanpassungswinkel (um $\approx 2^\circ$) als [BMP79] voraus, aber die hier in Abb. 4.41 dargestellten gemessenen Werte liegen unter Berücksichtigung der experimentellen Meßgenauigkeit von $\pm 1\%$ gut im Rahmen des berechneten Bereiches.

Die Durchstimbarkeit der Idlerimpulse zwischen 5 und 9 μm wurde in diesem Experiment mit HgGa_2S_4 sowohl für Typ I- als auch für Typ II-Wechselwirkung gezeigt. Dagegen konnte die Idlerwellenlänge mit AgGaS_2 -Typ II aufgrund der niedrigeren d_{eff} nur bis 8 μm abgestimmt werden.

Aus der aufgenommenen Kreuzkorrelationskurve bei $\lambda_1=7.8\ \mu\text{m}$ (Abb. 4.42) konnten wir nach Entfaltung mit einer Gauß'schen Impulsform eine Idlerimpulsdauer von $T_1=180\ \text{fs}$ beim Typ II- HgGa_2S_4 -Kristall erhalten. Diese Impulsdauer entspricht einer Spitzenleistung von 3.3 MW für die gemessene Idlerimpulsenergie (Abb. 4.40).

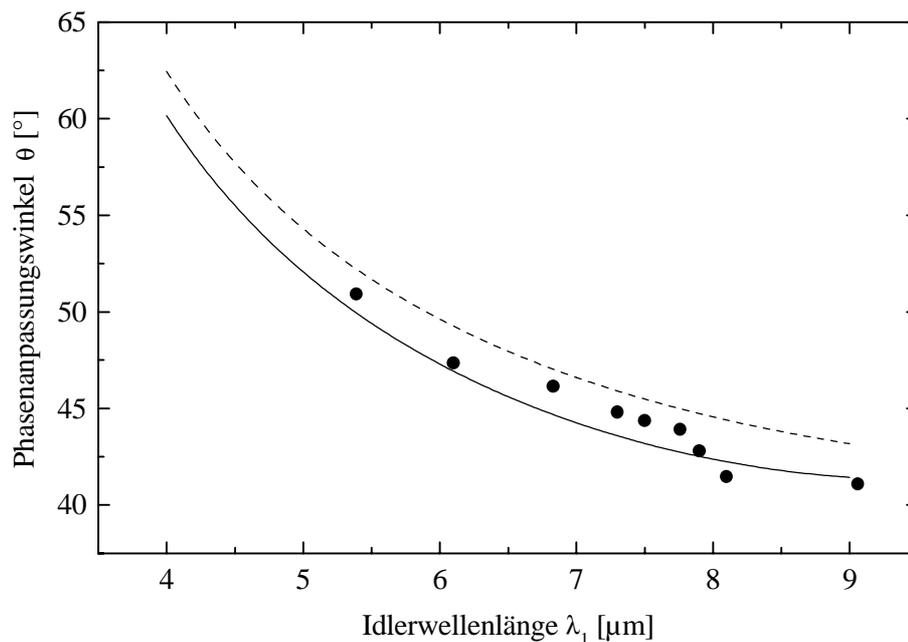


Abb. 4.41: Vergleich zwischen experimentell bestimmten und mit den Sellmeier-Gleichungen berechneten Phasenabstimmungswinkeln für Typ II-Phasenabstimmung in HgGa_2S_4 . Die durchgezogene Linie ist nach [BMP79] gerechnet und die gestrichelte Linie nach [TKk99].

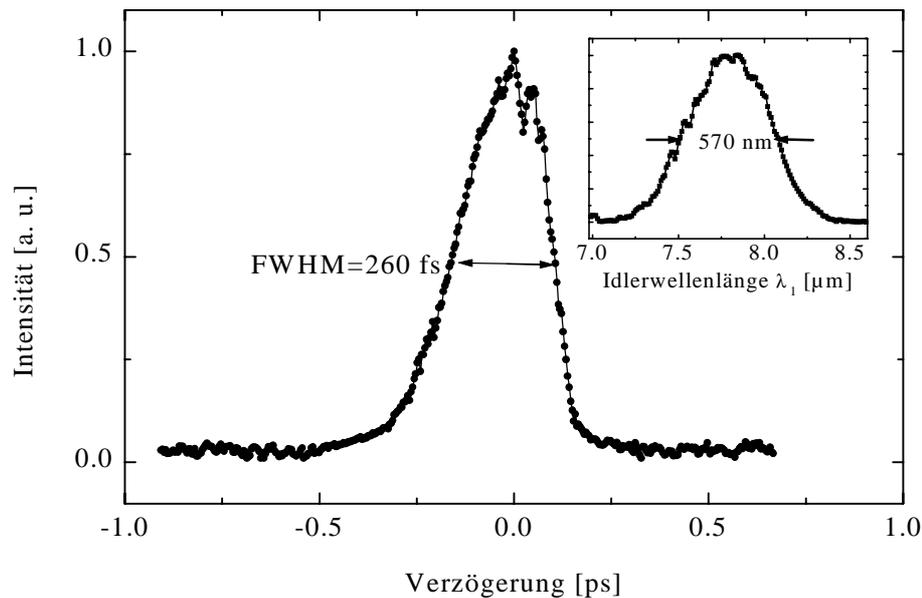


Abb. 4.42: Kreuzkorrelationskurve für den erzeugten Idlerimpuls aus OPA2 mit dem Typ II-HgGa₂S₄-Kristall bei 7.8 μm und das entsprechende Idlerspektrum.

Aus Abb. 4.42 ergibt sich ein Impulsdauer/Bandbreite-Produkt von ≈ 0.5 , was wiederum dem des Pumpimpulses bei $\lambda_3=1.25 \mu\text{m}$ entspricht. Die Stabilität des Idlerimpulszuges lag je nach Wellenlänge zwischen 10 % und 15 %. Bei höherer Umwandlungsrate konnte bessere Stabilität beobachtet werden.

Bei kürzeren Wellenlängen werden die Idlerimpulse aufgrund größerer GVM breiter, aber die Impulsdauer geht nicht über 240 fs hinaus. Das Fourier-Produkt lag hier stets unterhalb von 0.8.

Bei Typ I-Wechselwirkung in HgGa₂S₄, die nach der Vorhersage aus Abb. 4.38 (unteres Bild) kleinere parametrische Verstärkung g_0 bietet, konnte bei kürzerer Wellenlänge zwar eine ähnliche Impulsdauer von $T_1=220 \text{ fs}$, wie bei Typ II-Phasen Anpassung gemessen werden, aber das Fourier-Produkt betrug 1.1 (Abb. 4.43). Ein ähnliches Verhalten, wie oben dargestellt, hat man ebenfalls bei den AgGaS₂-Proben gesehen. Bei den verwendeten Pumpintensitätswerten konnte bei allen Proben weder in Typ I- noch in Typ II-Wechselwirkung ungeseedete parametrische Generation beobachtet werden.

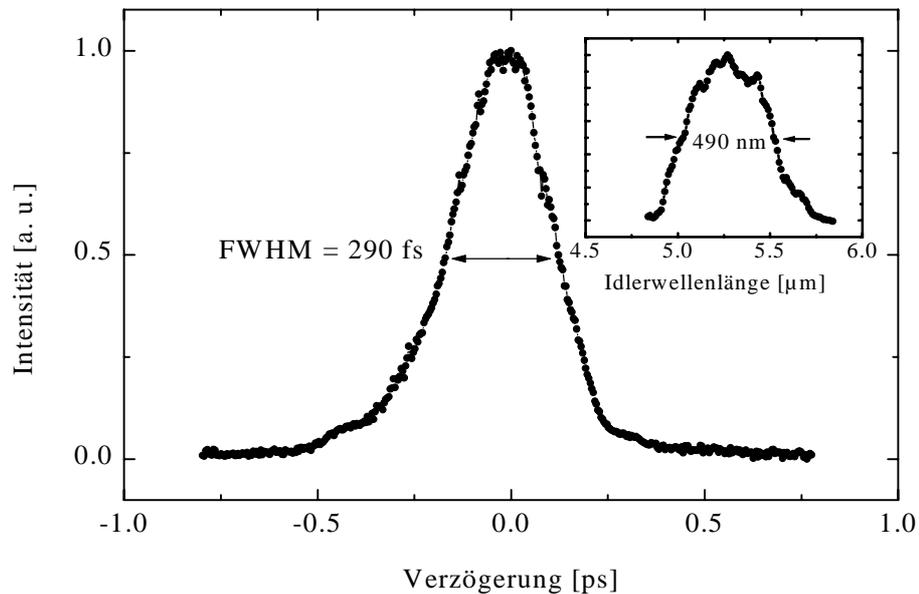


Abb. 4.43: Kreuzkorrelationskurve für den erzeugten Idlerimpuls aus OPA2 mit dem Typ I-HgGa₂S₄-Kristall bei 5.4 μm und das entsprechende Idlerspektrum.

Die experimentellen Ergebnisse zeigen, daß bei $\lambda_3=1.25\ \mu\text{m}$ HgGa₂S₄ im Vergleich zu AgGaS₂ das geeignetere Material zur Erzeugung abstimmbarer fs-MIR-Impulse bis 9 μm ist. Unser Experiment bestätigt eindeutig, daß die Nichtlinearität von HgGa₂S₄ die von AgGaS₂ übertrifft. Weitere Verbesserungen in Bezug auf die Ausgangsidlerenergie und den Abstimmbereich könnten durch Anti-Reflex-Beschichtung der Proben sowie in zweistufiger Konfiguration möglich sein.

5. Zusammenfassung

Die wichtigsten wissenschaftlichen Beiträge der vorliegenden Arbeit konzentrieren sich auf die Entwicklung, Untersuchung und Charakterisierung neuartiger fs-Laserquellen um 200 nm und im VUV- sowie im MIR-Spektralbereich, die auf nichtlinearer optischer Frequenzkonversion durch parametrische Prozesse zweiter Ordnung in Kristallen basieren.

Es wurde zum ersten Mal gezeigt, daß die Erzeugung abstimbarer sub-200 fs-Lichtimpulse um 200 nm durch FHG eines hochrepetierenden fs-Ti:Saphirlasers mit SFG zwischen der Grundwelle und der dritten Harmonischen in BBO realisiert werden kann. Erstmals konnten die erzeugten fs-Lichtimpulse bei der vierten Harmonischen sowohl zeitlich als auch spektral charakterisiert werden. Die mittlere Leistung im mW-Bereich, die bei der 82 MHz-Repetitionsrate einer sehr niedrigen Einzelimpulsenergie entspricht, reduziert im Verhältnis zu verstärkten Systemen vor allem die Zerstörungsgefahr bei eventuellen Anwendungen zur Untersuchung von Adsorbaten an Oberflächen. Diese Ergebnisse wurden in [J1] publiziert.

Um fs-Lichtimpulse tiefer in den VUV-Spektralbereich zu transformieren, wurde die vierte Harmonische in geeigneten nichtlinearen Kristallen mit NIR-Impulsen gemischt. Diese Experimente wurden an einem 1 kHz fs-Ti:Saphir-Verstärkersystem, das zusätzlich mit einem NIR-OPG ausgerüstet ist, durchgeführt. Neben dem kommerziell verfügbaren Kristall KB5 standen in dieser Arbeit zwei neu entwickelte VUV-Kristalle LB4 und CLBO zur Verfügung. Man konnte mit SFG fs-Impulse bis 166 nm, die kürzeste Wellenlänge, die bisher an einem „all-solid-state“ System erreicht wurde, erzeugen. Die neuen Kristalle wurden hier charakterisiert und miteinander verglichen. Es stellte sich dabei heraus, daß die untersuchten Kristalle dem bisher im VUV verwendeten LBO-Kristall gegenüber in mancher Hinsicht und speziell unterhalb von 180 nm bessere Eigenschaften besitzen. Die erzeugten abstimmbaren sub 200 fs-VUV-Impulse mit hoher Spitzenleistung können für Pump-Abtast-Experimente mit hoher Zeitauflösung im VUV-Spektralbereich angewandt werden. Die Ergebnisse mit verschiedenen Materialien wurden in [J3], [J4], [J14] sowie in der Übersichtsarbeit [J8] veröffentlicht.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden neben der Wellenlängenerweiterung in den VUV-Spektralbereich OPG und OPA für die Erzeugung abstimbarer fs-MIR-Impulse untersucht. Das Hauptziel dieser Experimente war vor allem, intensive ($>1 \mu\text{J}$) und bandbreitebegrenzte abstimmbare fs-MIR-Impulse in möglichst kompakter Ausführung zu erzeugen.

Der MLN-Kristall hat sich aufgrund der geringeren GVM beim Pumpen mit einem regenerativen fs-Ti:Saphir-Verstärker um 800 nm für die fs-Impulserzeugung zwischen 3 und

4 μm als sehr geeignetes OPA-Material erwiesen. Zum ersten Mal wurde mit diesem Material fs-OPA demonstriert und dabei bisher die höchste Umwandlungseffizienz (40 % intern) in einstufiger OPA erreicht [J2]. Als Seedquelle diente neben einem ns-Mikrolaser auch eine gepulste Laserdiode, womit der OPA noch kompakter aufgebaut werden konnte [J12]. Dabei war die Abstimmung der erzeugten Idlerimpulse viel einfacher durch die Änderung der Seedwellenlänge (durch Temperaturabstimmung der Laserdiode) möglich. Bei Impulsdauern um 150 fs konnten maximale Idlerenergien bis 20 μJ erreicht werden.

In MLN wurde auch nichtkollineare Wechselwirkung untersucht. Diese Art von OPA lieferte durch Gruppengeschwindigkeitsanpassung und damit Verlängerung der Wechselwirkungslänge neben der höheren Umwandlungseffizienz zusätzlich kürzere Impulsdauer. Allerdings erschwert die nichtkollineare Geometrie die Abstimmung der erzeugten Impulse [J7].

Die geringeren GVM-Parameter in MLN ermöglichten weiterhin die Erzeugung extrem kurzer Lichtimpulse um 3 μm [J6]. Die gemessene Impulsdauer von 50 fs entspricht nur 5 optischen Perioden. Dies ist die kürzeste Impulsdauer, die man jemals in diesem Spektralbereich mit einem OPA erreicht hat. Dieser Wert liegt, bezogen auf die Anzahl der optischen Perioden, im Bereich dessen, was man bisher mit OPG/OPA im VIS- und NIR-Spektralbereich im besten Fall erreicht hat.

In dem MIR-Spektralbereich zwischen 3 und 4 μm wurde mit den gleichen Pump- und Seedquellen zum ersten Mal OPA auf der Basis von einem periodisch gepolten Material (PPKTP) demonstriert und untersucht [J9]. Dabei konnte erhöhte Umwandlungseffizienz im Vergleich zur konventionellen Phasenabstimmung durch die Ausnutzung des nichtlinearen Koeffizienten, der nur im periodisch gepolten KTP wirksam wird, erhalten werden.

Um abstimmbare fs-Lichtimpulse oberhalb von 5 μm zu erzeugen und damit den verfügbaren Spektralbereich zu erweitern, wurden hier zwei weitere Experimente durchgeführt. Da durch direktes Pumpen mit einem Ti:Saphir-Verstärkersystem keine Lichtimpulse in diesem Spektralbereich erzeugt werden können, wurde zuerst eine indirekte Methode benutzt. Mittels eines kaskadierten OPGs mit ZGP konnten fs-Lichtimpulse bis 10 μm generiert werden [J5]. Es war die erste OPG-Ausführung mit diesem Material im fs-Regime. Dabei wurde ZGP auch charakterisiert und die Zwei-Photonen-Absorption ($\beta_{\text{TP}}=0.25 \text{ cm/W}$ bei 1.3 μm) sowie der Kerr-Koeffizient ($n_2=5.37 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ bei 1.26 μm) gemessen [J13].

Eine direkte Erzeugung abstimmbarer fs-Impulse im MIR bis 9 μm durch OPA wurde in dieser Arbeit an einem einzigartigen regenerativen fs-Cr:Forsterit-Verstärker demonstriert. Die Pumpimpulse bei 1.25 μm und 1 kHz aus diesem Verstärker und die abstimmbaren

Seedimpulse um $1.5 \mu\text{m}$, die aus einem nichtkritisch phasenangepaßten LBO-OPG erzeugt wurden, lieferten Idlerimpulsenergien im μJ -Bereich zwischen $5 \mu\text{m}$ und $9 \mu\text{m}$. Zwei Kristalle, AgGaS_2 und HgGa_2S_4 mit unterschiedlichen Wechselwirkungstypen wurden in diesem Experiment als OPA-Material verwendet und die experimentellen Ergebnisse wurden miteinander verglichen [J10, J11].

Es wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit gezeigt, daß mit den oben dargestellten parametrischen Methoden, gestartet mit dem fs-Ti:Saphir-Verstärkersystem, Spektralbereiche vom VUV um 166 nm bis $10 \mu\text{m}$ im MIR ohne weiteres mit energiereichen fs-Lichtimpulsen abgedeckt werden können. Direkte und effizientere Erzeugung abstimmbarer fs-MIR-Impulse oberhalb von $5 \mu\text{m}$ konnte darüber hinaus an einem fs-Cr:Forsterit-Verstärkersystem demonstriert werden.

6. Literaturverzeichnis

- [AAB80] S. A. Andreev, N. P. Andreeva, V. V. Badikov, I. N. Matveev, and S. M. Pshenichnikov, *Sov. J. Quantum Electron.* 10 (1980) 1157 [transl. from *Kvantovaya Elektronika (Moscow)* 7 (1980) 2003]
- [ACD68] S. A. Akhmanov, A. S. Chirkin, K. N. Drabovich, A. I. Kovrigin, R. V. Khokhlov, and A. P. Sukhorukov, *IEEE J. Quantum Electron.* 4 (1968) 598
- [BBr79] S. J. Brosnan, and R. L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.* 6 (1979) 415
- [BBW91] A. Borsutzky, R. Brünger, and R. Wallenstein, *Appl. Phys. B* 52 (1991) 380
- [BCd90] P. N. Butcher, and D. Cotter, „The Element of Nonlinear Optics“, (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1990)
- [BFM94] B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, B. Menaert, X. Cabirol, P. Villeval, and C. Bonnin, *J. Opt. Soc. Am. B* 11 (1994) 750
- [BGT84] D. A. Bryan, Robert Gerson, and H. E. Tomaschke, *Appl. Phys. Lett.* 44 (1984) 847
- [BGA82] N. P. Barnes, D. J. Gettemy, and R. S. Adhav, *J. Opt. Soc. Am. B* 72 (1982) 895
- [BLS93] A. P. Baronavski, H. D. Ladouceur, and J. K. Shaw, *IEEE J. Quantum Electron.* 29 (1993) 580
- [BMJ95] N. P. Barnes, K.E. Murray, M. G. Jani, T. Pollak, and P. Schunemann, *OSA Proc. on Advanced Solid-State Lasers, 1995, Vol. 24*, B. H. T. Chai and S. S. Paine (eds), (OSA, 1995)154; P. A. Budni, L. A. Pomeranz, P. G. Schunemann, T. M. Pollak, and E.P.Chicklis, *OSA TOPS Vol.10 Advanced Solid-State Lasers, 1997*, C. R. Pollock, and W. R. Bosenberg (eds), (OSA, 1997) 256
- [BMP79] V. V. Badikov, I. N. Matveev, V. L. Panyutin, S. M. Pshenichnikov, T. M. Repyakhova, O. V. Rychik, A. E. Rozenson, N. K. Trotsenko, and N. D. Ustinov, *Sov. J. Quantum Electron.* 9 (1979) 1068 [transl. from *Kvantovaya Elektronika (Moscow)* 6 (1979) 1807]
- [BMP80] V. V. Badikov, I. N. Matveev, S. M. Pshenichnikov, O. V. Rychik, N. K. Trotsenko, N. D. Ustinov, and S. I. Shcherbakov, *Sov. J. Quantum Electron.* 10 (1980) 1300 [transl. from *Kvantovaya Elektronika (Moscow)* 7 (1980) 2235].
- [BPM89] H. J. Bakker, P C. M. Planken, and H. G. Muller, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 1665
- [BQS95] S. P. Le Blanc, Z. Qi, and R. Sauerbrey, *Appl. Phys. B.* 61 (1995) 439
- [Brw92] R. W. Boyd, „Nonlinear Optics“, (Academic press, Inc., San Diego, 1992)
- [BRF99] B. Boulanger, I. Rousseau, J. P. Fève, M. Maglione, B. Menaert, and G. Marnier, *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999) 281

- [BSG87] G. C. Bhar, L. K. Samanta, D. K. Ghosh, and S. Das, *Sov. J. Quantum Electron.*, 17 (1987) 860 [translated from *Kvantovaya Elektron. (Moscow)* 14 (1987) 1361]
- [BTA97] K. C. Burr, C. L. Tang, M. A. Arbore, and M. M. Fejer, *Opt. Lett.* 22 (1997) 1458
- [BZK84] V. L. Boichenko, I. I. Kosichkin, A. P. Tarasevich, V. G. Tunkin, and A. P. Shotov, *Sov. J. Quantum Electron.* 14 (1984) 141 [translated from *Kvantovaya Elektron., (Moscow)* 11 (1984) 203]
- [CCG94] L. K. Cheng, L. T. Cheng, J. Galperin, P. A. Morris Hotsenpiller, J. D. Bierlein, *J Crystal Growth* 137 (1994) 107
- [Cct93] C. T. Chen, „Development of New Nonlinear Optical Crystals in the Borate Series“, edited by V. S. Letokhov, C. V. Shank, Y. R. Shen, and H. Walther (Harwoods Academic Publishers, Netherland, 1993)
- [CND97] G. Cerullo, M. Nisoli, and S. De Silvestri, *Appl. Phys. Lett.* 71 (1997) 3616
- [CPv92] P. Chernev, and V. Petrov, *Opt. Lett.* 17 (1992) 172
- [CWX95] C. Chen, Y. Wang, Y. Xia, B. Wu, D. Tang, K. Wu, Z. Wenrong, L. Yu, and L. Mei, *J. Appl. Phys.* 77 (1995) 2268
- [DAF95] P. Di Trapani, A. Andreoni, P. Foggi, C. Solcia, R. Danielius, and A. Piskarskas, *Opt. Commun.* 119 (1995) 327; P. Di Trapani, A. Andreoni, C. Solcia, P. Foggi, R. Danielius, A. Dubietis, and A. Piskarskas, *J. Opt. Soc. Am. B* 12 (1995) 2237; P. Di Trapani, A. Andreoni, C. Solcia, G. P. Banfi, R. Danielius, A. Piskarskas, and P. Foggi, *J. Opt. Soc. Am. B* 14 (1997) 1245.
- [DBM95] M. R. X. de Barros, R. S. Miranda, T. M. Jedju, and P. C. Becker, *Opt. Lett.* 20 (1995) 480
- [DGN97] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan and D. N. Nikogosyan, „Handbook of Nonlinear Optical Crystals“, (Springer Verlag, Berlin, 1997)
- [DRE96] T. Dimitre, A. M. Rubenchik, D. Eimerl, and M. D. Perry, *J. Opt. Soc. Am. B* 13 (1996) 649
- [DPS93] R. Danielius, A. Piskarskas, A. Stabinis, G. P. Banfi, P. D. Trapani, and R. Righini, *J. Opt. Soc. Am. B* 10 (1993) 2222
- [DSO99] K. Deki, J. Sakuma, Y. Ohsako, A. Finch, M. Horiguchi, Y. Mori, and T. Sasaki, *Rev. Las. Eng.* 27 (1999)525; J. Sakuma, A. Finch, Y. Ohsako, K. Deki, M. Yoshino, M. Horiguchi, T. Yokota, Y. Mori, and T. Sasaki, in *Advanced Solid-State Lasers*, M. M. Fejer, H. Injeyan, and U. Keller (eds), Vol. 26 of OSA TOPS (Opt. Soc. Am., Washington, D. C., 1999) 89

- [DSS96] R. DeSalvo, A. A. Said, E. W. Van Stryland, and M. Sheik-Bahae, *IEEE J. Quantum Electron.* 32 (1996) 1324
- [EBK94] U. Emmerichs, H. J. Bakker, and H. Kurz, *Opt. Commun.* 111 (1994) 497
- [EMF90] R. C. Eckardt, H. Masuda, Y. X. Fan, and R. L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.* 26 (1990) 922
- [EsS98] S. Ehret, and H. Schneider, *Appl. Phys. B* 66 (1998) 27
- [EWB97] U. Emmerichs, S. Woutersen, and H. J. Bakker, *J. Opt. Soc. Am. B* 14 (1997) 1480
- [EWC88] D. C. Edelstein, E. S. Wachman, L. K. Cheng, W. R. Bosenberg, C. L. Tang, *Appl. Phys. Lett.* 52 (1988) 2211
- [FAS99] K. Fradkin, A. Arie, A. Skliar, and G. Rosenman, *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999) 914
- [FCT91] S. Furusawa, O. Chikagawa, S. Tange, T. Ishidate, H. Orihara, Y. Ishibashi, and K. Miwa, *J. Phys. Soc. Jpn.* 60 (1991) 2691
- [FHH87] T. Y. Fan, C. E. Huang, B. Q. Hu, R. C. Eckardt, Y. X. Fan, R. L. Byer, and R. Feigelson, *Appl. Opt.* 26 (1987) 2390
- [FSb99] „Advances in Lasers and Applications“, edited by D. M. Finlayson, B. D. Sinclair Proceedings of the fifty second Scottish Universities Summer School in Physics, (IoP, Bristol and Philadelphia, 1999)
- [FWH97] J. M. Fraser, D. Wang, A. Hache, G. R. Allan, and H. M. van Driel, *Appl. Opt.* 36 (1997) 5044
- [GAF97] A. Galvanauskas, M. A. Arbore, M. M. Fejer, M. E. Fermann, and D. Harter, *Opt. Lett.* 22 (1997) 105
- [Gbr98] B. Golubovic, M. K. Reed, *Opt. Lett.* 23 (1998) 1760
- [GCD95] G. M. Gale, M. Cavallari, T. J. Driscoll, and F. Hache, *Opt. Lett.* 20 (1995) 1562
- [GGH97] G. M. Gale, G. Gallot, F. Hache, and R. Sander, *Opt. Lett.* 22 (1997) 1253
- [GGS94] J. H. Glowina, D. R. Gnass, and P. P. Sorokin, *J. Opt. Soc. Am. B* 11 (1994) 2427
- [GHg94] G. Ghosh, *Appl. Phys. Lett.* 65 (1994) 3311
- [GKS92] J. H. Glowina, M. Kaschke, and P. P. Sorokin, *Opt. Lett.* 17 (1992) 337
- [HCC95] G. R. Holtom, R. A. Crowell, and L. K. Cheung, *Opt. Lett.* 20 (1995) 1880
- [HCX95] G. R. Holtom, R. A. Crowell, and X. S. Xie, *J. Opt. Soc. Am. B* 12 (1995) 1723
- [HjW84] J. Herrmann and B. Wilhelmi, „Laser für ultrakurze Lichtimpulse“, (Akademie-Verlag, Berlin, 1984)
- [HLZ93] P. Hamm, C. Lauterwasser, and W. Zinth, *Opt. Lett.* 18 (1993) 1943
- [HPK00] J. Hellström, V. Pasiskevicius, H. Karlsson, and F. Laurell, *Opt. Lett.* 25 (1998) 2000

- [JBN91] W. Joosen, H. J. Bakker, L. D. Noordam, H. G. Muller, and H. B. van Linden van den Heuvell, *J. Opt. Soc. Am. B* 8 (1991) 2537
- [JKE97] R. Jacquemin, S. Kraus, and W. Eberhardt, *Solid State Commun.* 105 (1998) 449
- [Kat86] K. Kato, *IEEE J. Quantum Electron.* 22 (1986) 1013
- [Kat91] K. Kato, *IEEE J. Quantum Electron.* 27 (1991) 1137
- [Kat94] K. Kato, *IEEE J. Quant. Electron.* 30 (1994) 2950
- [Kat95] K. Kato, *IEEE J. Quant. Electron.* 31 (1995) 169
- [KdX98] D. Kim, and G-Y. Xiao, *J. Opt. Soc. Am. B* 15 (1998) 570
- [Kit86] C. Kittel, „Introduction to Solid State Physics“, (Wiley, New York, 1986); M. E. Ines, A. M. Glass, „Principles and Applications of Ferroelectrics and Related Materials“, (Clarendon Press, Oxford, 1977)
- [KJC94] T. Y. Kwon, J. J. Ju, J. W. Cha, J. N. Kim, and S. I. Yun, *Mater. Lett.* 20 (1994) 211
- [KjW96] J. D. Kafka, and M. L. Watts, *Ultrafast Phenomena X*, Springer Series in Chemical Physics, Vol. 62, eds.: P. F. Barbara, J. G. Fujimoto, W. H. Knox, and W. Zinth, (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1996) 38
- [KKA98] T. Kartaloglu, K. G. Köprülü, O. Aytür, M. Sundheimer, and W. P. Risk, *Opt. Lett.* 23 (1998) 61
- [KKF00] T. Kojima, S. Konno, S. Fujikawa, K. Yasui, K. Yoshizawa, Y. Mori, T. Sasaki, M. Tanaka, and Y. Okada, *Opt. Lett.* 25 (2000) 58
- [KKR95] V. Krylov, A. Kalintsev, A. Rebane, D. Erni, and U. P. Wild, *Opt. Lett.* 20 (1995) 151; V. Krylov, O. Ollikainen, J. Gallus, U. Wild, A. Rebane, and A. Kalintsev, *Opt. Lett.* 23 (1998) 100
- [KLf97] H. Karlsson, and F. Laurell, *Appl. Phys. Lett.* 71 (1997) 3474
- [KRK96] O. Kittelmann, J. Ringling, G. Korn, A. Nazarkin, and I. V. Hertel, *Opt. Lett.* 21 (1996) 1159
- [KSS97] R. Komatsu, T. Sugawara, K. Sassa, N. Sarukura, Z. Liu, S. Izumida, Y. Segawa, S. Uda, T. Fukuda, and K. Yamanouchi, *Appl. Phys. Lett.* 70 (1997) 3492
- [KtW94] T. D. Krauss, and F. W. Wise, *Appl. Phys. Lett.* 65 (1994) 1739
- [LBK76] B. F. Levine, C. G. Bethea, H. M. Kasper, and F. A. Thiel, *IEEE J. Quantum Electron.* 12 (1976) 367
- [LBL98] E. Lallier, M. Brevignon, and J. Lehoux, *Opt. Lett.* 23 (1998) 1511
- [LBR99] P. Loza-Alvarez, C. T. A. Brown, D. T. Reid, W. Sibbett, and M. Missey, *Opt. Lett.* 24 (1999) 1523
- [LKR94] A. Lohner, P. Kruck, and W. W. Rühle, *Appl. Phys. B* 59 (1994) 211

- [LSt96] S. Lin, and T. Suzuki, *Opt. Lett.* 21 (1996) 579
- [LTT96] S. Lin, Y. Tanaka, S. Takeuchi, and T. Suzuki, *IEEE J. Quantum Electron.* 32 (1996) 124
- [MaA80] A. Miller, and G. S. Ash, *Opt. Commun.* 33 (1980) 297
- [MAJ95] S. W. McCahon, S. A. Anson, D.-J. Jang, and Thomas F. Boggess, *Opt. Lett.* 20 (1995) 2309
- [MBW99] S. Marzenell, R. Beigang, and R. Wallenstein, *Appl. Phys. B* 69 (1999) 423
- [MEF95] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. W. Pierce, *J. Opt. Soc. Am. B* 12 (1995) 2102
- [MHT93] K. Mossavi, T. Hofmann, F. K. Tittel, and G. Szabo, *Appl. Phys. Lett.* 62 (1993) 1203
- [MIB97] L. E. Myers, and W. R. Bosenberg, *IEEE J. Quant. Electron.* 33 (1997) 1663
- [MKN95] Y. Mori, I. Koroda, S. Nakajima, T. Sasaki, and S. Nakai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 34 (1995) L296; *Appl. Phys. Lett.*, 67 (1995) 1818
- [MMS97] V. A. Maslov, V. A. Mikhailov, O. P. Shaunin, and I. A. Shcherbakov, *Quantum Electron.* 27 (1997) 356
- [MMT86] S. A. Magnitskii, V. I. Malachova, A. P. Tarasevich, V. G. Tunkin, and S. D. Yakubovich, *Opt. Lett.* 11 (1986) 18
- [Mrc64] R. C. Miller, *Appl. Phys. Lett.* 5 (1964) 17
- [MRE97] C. McGowan, D. T. Reid, M. Ebrahimzadeh, and W. Sibbett, *Opt. Commun.* 134 (1997) 186
- [NaB91] A. Nebel, and R. Beigang, *Opt. Lett.* 16 (1991) 1729
- [NaB92] A. Nebel, and R. Beigang, *Opt. Commun.* 94 (1992) 369
- [NDK97] E. T. J. Nibbering, O. Dühr, and G. Korn, *Opt. Lett.* 22 (1997) 1335
- [Ndn97] David N. Nikogosyan, „Properties of Optical and Laser-related Materials, (John Wiley & Sons, New York, 1997)
- [NSM94] M. Nisoli, S. De. Silvestri, V. Magni, O. Svelto, R. Danielius, A. Piskarskas, G. Valiulis, and A. Varanavicius, *Opt. Lett.* 19 (1994) 1973
- [NUn96] T. Nishikawa, and N. Uesugi, *Opt. Commun.* 124 (1996) 512
- [PFs94] V. Petrov, F. Seifert, and F. Noack, *Appl. Phys. Lett.* 65 (1994) 268
- [PNf96] V. Petrov, and F. Noack, *Opt. Lett.* 21 (1996) 1576
- [PNS97] V. Petrov, F. Noack, and R. Stolzenberger, *Appl. Opt.* 36 (1997) 1164
- [PSK94] V. Petrov, F. Seifert, O. Kittelmann, J. Ringling, and F. Noack, *J. Appl. Phys.* 76 (1994) 7704

- [PSM98] V. Petrov, V. Shcheslavskiy, T. Mirtchev, F. Noack, T. Itatani, T. Sugaya, and T. Nakagawa, *Electron. Lett.* 34 (1998) 559
- [PTC94] P. E. Powers, C. L. Tang, and L. K. Cheng, *Opt. Lett.* 19 (1994) 1439
- [PTS97] V. Petrov, Y. Tanaka, and T. Suzuki, *IEEE J. Quantum Electron.* 33 (1997) 1749
- [PvN95] V. Petrov, and F. Noack, *J. Opt. Soc. Am. B* 12 (1995) 2214
- [PvN96] V. Petrov, and F. Noack, *Opt. Quant. Electron.* 28 (1996) 1105
- [PvS94] V. Petrov, F. Seifert, and F. Noack, *Appl. Opt.* 33 (1994) 6988
- [RCH94] M. T. Reiten, R. A. Cheville, and N. J. Halas, *Opt. Commun.* 110 (1994) 645
- [Rda92] D. A. Roberts, *IEEE J. Quantum Electron.* 28 (1992) 2057
- [RFS96] W. Radloff, T. Freudenberg, V. Stert, H.-H. Ritze, K. Weyers, and F. Noack, *Chem. Phys. Lett.* 258 (1996) 507; W. Radloff, T. Freudenberg, H.-H. Ritze, V. Stert, F. Noack, and I. V. Hertel, *Chem. Phys. Lett.* 261 (1996) 301; W. Radloff, T. Freudenberg, V. Stert, H.-H. Ritze, F. Noack, and I. V. Hertel, *Chem. Phys. Lett.* 264 (1997) 210
- [RKN92] J. Ringling, O. Kittelmann, and F. Noack, *Opt. Lett.* 17 (1992) 1794
- [RKN93] J. Ringling, O. Kittelmann, F. Noack, G. Korn, and J. Squier, *Opt. Lett.* 18 (1993) 2035
- [Rko94] J. Ringling, O. Kittelmann, F. Noack, U. Stamm, J. Kleinschmidt, and F. Voss, *Opt. Lett.* 19 (1994) 1639
- [RmS96] M. K. Reed, and M. K. Steiner Shepard, *IEEE J. Quantum Electron.* 32 (1996) 1273
- [RPE97] D. T. Reid, Z. Penman, M. Ebrahimzadeh, W. Sibbett, H. Karlsson, and F. Laurell, *Opt. Lett.* 22 (1997) 1397
- [RWb89] W. Rudolf, and B. Wilhelmi; „Light Pulse Compression“, edited by V. S. Letokhov, C. V. Shank, Y. R. Shen, and H. Walther (Harwoods Academic Publishers, Netherland, 1989)
- [SBP97] P. G. Schunemann, P. A. Budni, L. Pomeranz, M. G. Knights, T. M. Pollak, and E. P. Chicklis, in *Advanced Solid State Lasers*, C. R. Pollock, W. R. Bosenberg, eds., Vol. 10 of *Trend in Optics and Photonics Series* (Opt. Soc. Am., Washington, D. C., 1997) 253
- [SCL97] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielmann, F. Krausz, and K. Ferencz, *Opt. Lett.* 22 (1997) 1562
- [SDb78] R. E. Stickel, and B. Dunning, *Appl. Opt.* 17 (1978) 981
- [SEm97] M. Sheik-Bahae, and M. Ebrahimzadeh, *Opt. Commun.* 142 (1997) 294

- [SHS91] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutching, D. J. Hagan, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, *IEEE. J. Quantum Electron.* 27 (1991) 1296
- [SKt98] A. Shirakawa and T. Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.* 72 (1998) 147; A. Shirakawa, I. Sakane, and T. Kobayashi, *Conference on Lasers and Electro-Optics, Vol.6, 1998 OSA Technical Digest Series (OSA, Washington, D.C. 1998), Post-deadline paper CPD11.*
- [SKU98] T. Sugawara, R. Komatsu, and S. Uda, *Solid State Commun.* 107 (1998) 233
- [SPt97] P. G. Schunemann, and T. M. Pollak, „Method for growing crystals“, U.S. patent 5,611,856 (March 18, 1997)
- [SPW94] F. Seifert, V. Petrov, and M. Woerner, *Opt. Lett.* 19 (1994) 2009
- [Srl96] Richard L. Sutherland, „Handbook of Nonlinear Optics“, (Marcel Dekker Inc., New York, 1996)
- [SRP94] F. Seifert, J. Ringling, V. Petrov, F. Noack, and O. Kittelmann, *Opt. Lett.* 19 (1994) 1538
- [SSf89] S. Szatmari, and F. P. Schäfer, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 1877
- [SSH91] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, M. J. Soileau, and E. W. Van Stryland, *Opt. Eng.* 30 (1991) 1228
- [SsS89] S. Szatmari and F. P. Schäfer, *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989) 1877
- [SSW90] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wie, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, *IEEE. J. Quantum Electron.* 26 (1990) 760
- [SWT96] D. E. Spence, S. Wielandy, C. L. Tang, C. Bosshard, and P. Günter, *Appl. Phys. Lett.* 68 (1996) 452
- [SZP99] V. Shcheslavskiy, N. Zhavoronkov, V. Petrov, F. Noack, and M. Bouvier, *IEEE J. Quantum Electron.* 35 (1999) 1123
- [TCI95] C. L. Tang, and L. K. Cheng, „Fundamentals of Optical Parametric Prozesses and Oscillators“, edited by V. S. Letokhov, C. V. Shank, Y. R. Shen, and H. Walther (Harwoods Academic Publishers, Netherland, 1995)
- [TKk98] E. Takaoka, and K. Kato, “Second-harmonic generation in HgGa_2S_4 ”, in *Conference on Lasers and Electro-Optics-Europe CLEO/EUROPE'98, Technical Digest, (Glasgow, Scotland, 14-18 Sept. 1998), paper CFH7.*
- [TKk99] E. Takaoka, and K. Kato, *Appl. Opt.* 38 (1999) 4577
- [TMM93] A. Tünnermann, C. Momma, K. Mossavi, C. Windolph, and B. Wellegehausen, *IEEE J. Quant. Electron.* 29 (1993) 1233; K. Mossavi, L. Fricke, P. Liu, and B. Wellegehausen, *Opt. Lett.* 20 (1995) 1403

- [UnK96] N. Umemura, and K. Kato, *Appl. Opt.* 35 (1996) 5332
- [UnK97] N. Umemura, and K. Kato, *Appl. Opt.* 36 (1997) 6794
- [UYK99] N. Umemura, K. Yoshida, T. Kamimura, Y. Mori, T. Sasaki, and K. Kato, in *Advanced Solid-State Lasers*, M. M. Fejer, H. Injeyan, and U. Keller (eds), Vol. 26 of OSA TOPS (Optical Society of America, Washington, D. C., 1999) 715
- [VCv97] K. L. Vodopyanov, V. Chazapis, *Opt. Commun.* 135 (1997) 98
- [VkV95] K. L. Vodopyanov, and V. G. Voevodin, *Opt. Commun.* 117 (1995) 277
- [VMV98] K. L. Vodopyanov, S. B. Mirov, V. G. Voevodin, and P. G. Schunemann, *Opt. Commun.* 155 (1998) 47
- [WPL98] S. Wang, V. Pasiskevicius, F. Laurell, and H. Karlsson, *Opt. Lett.* 23 (1998) 1883
- [WXC92] B. Wu, F. Xie, C. Chen, D. Deng, and Z. Xu, *Opt. Commun.* 88 (1992) 451
- [YKM99] M. Yoshimura, T. Kamimura, K. Murase, Y. Mori, H. Yoshida, M. Nakatsuka, and T. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* 38 (1999) L129
- [Zer64] F. Zernike, *J. Opt. Soc. Am.* 54 (1964) 1215; F. Zernike, *Errata, J. Opt. Soc. Am.*, 55 (1965) 210E
- [ZHS95] Jing-yuan Zhang, Jung Y. Huang, and Y. R. Shen, „Optical Parametric Generation and Amplification“, edited by V. S. Letokhov, C. V. Shank, Y. R. Shen, and H. Walther (Harwoods Academic Publishers, Netherland, 1995)
- [ZMS96] T. Zhang, Y. Motoki, L. B. Sjarma, H. Daido, Y. Kato, Y. Mori, and T. Sasaki, *Electron. Lett.* 32 (1996) 452
- [ZSJ97] D. E. Zelmon, D. L. Small, and D. Jundt, *J. Opt. Soc. Am. B* 14 (1997) 3319

A. Veröffentlichungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit

- [J1] F. Rotermund, V. Petrov, „Generation of the fourth harmonic of a femtosecond Ti:sapphire laser“, *Opt. Lett.* 23 (1998) 1040
- [J2] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, „Femtosecond traveling-wave optical parametric amplification in MgO:LiNbO₃“, *Appl. Opt.* 37 (1998) 8504
- [J3] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, „Generation of femtosecond pulses down to 166nm by sum-frequency mixing in KB₅O₈ 4H₂O“, *Electron. Lett.* 34 (1998) 1748
- [J4] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, R. Komatsu, T. Sugawara, S. Uda, „Vacuum ultraviolet application of Li₂B₄O₇: Generation of 100 fs pulses down to 170 nm“, *J. Appl. Phys.* 84 (1998) 5887
- [J5] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, P. Schunemann, „Femtosecond parametric generation in ZnGeP₂“, *Opt. Lett.* 24 (1999) 414
- [J6] F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack, M. Wittmann, G. Korn, „Laser diode seeded operation of a femtosecond optical parametric amplifier with MgO:LiNbO₃ and generation of a 5-cycle pulses near 3 μm“, *J. Opt. Soc. Am. B* 16 (1999) 1539
- [J7] F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack, „Femtosecond noncollinear optical parametric amplification in the mid-infrared“, *Opt. Commun.* 169 (1999) 183
- [J8] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, J. Ringling, O. Kittelmann, R. Komatsu, „Frequency conversion of Ti:sapphire based femtosecond laser systems to the 200-nm spectral region using nonlinear optical crystals“, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 5 (1999) 1532
- [J9] F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack, V. Pasiskevicius, J. Hellström, F. Laurell, „Efficient femtosecond traveling-wave optical parametric amplification in periodically poled KTiOPO₄“, *Opt. Lett.* 24 (1999) 1874
- [J10] F. Rotermund, V. Petrov, „Mid-infrared femtosecond optical parametric generator pumped by Cr:forsterite regenerative amplifier at 1.25 μm“, *Appl. Phys. B* 70 (2000) 731
- [J11] F. Rotermund, V. Petrov, „Mercury thiogallate mid-infrared femtosecond optical parametric generator pumped at 1.25 μm by Cr:forsterite regenerative amplifier“, *Opt. Lett.* 25 (2000) 768
- [J12] F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack, „Laser-diode-seeded single and double stage femtosecond optical parametric amplification in the mid-infrared“, *Opt. and Quantum Electron.* 32 (2000) 1057
- [J13] F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack, P. Schunemann, „Characterization of ZnGeP₂ for parametric generation with near-infrared femtosecond pumping“, *Fiber Integr. Opt.* (2000) in Druck
- [J14] V. Petrov, F. Noack, F. Rotermund, M. Tanaka, Y. Okada, „Sum-frequency generation of femtosecond pulses in CsLiB₆O₁₀ down to 175 nm“, *Appl. Opt.* (2000) in Druck

B. Lebenslauf

Persönliche Daten

Name	Fabian Rotermund
Geburtsdatum	03.12.1967
Geburtsort	Seoul/Korea
Nationalität	deutsch
Familienstand	verheiratet

Ausbildung und beruflicher Werdegang

03/74-02/80 Grundschule in Seoul

03/81-02/83 Mittelschule in Seoul

03/83-01/85 Oberschule in Seoul

03/85 Übersiedelung nach Deutschland

05/85 Erwerbung der deutschen Staatsangehörigkeit

10/85-07/89 Werner-von-Siemens Gymnasium in Regensburg

Allgemeine Hochschulreife 06/89

01/90-04/91 Zivildienst beim Diakonischen Werk in Regensburg

10/91-04/97 Studium der Physik an der Universität Regensburg

Diplomarbeit zum Thema: „J-Aggregation von Indocyaningrün; Herstellung, Absorption, Fluoreszenz und Femtosekunden-Sättigungsspektroskopie“

04/97 Beginn mit der Promotionsarbeit am Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie Berlin

C. Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand in den Jahren 1997 bis 2000 am Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie Berlin und wurde zum großen Teil vom BMBF (Projekt FKZ:13N7071/5) gefördert.

An dieser Stelle möchte ich mich bei einer Reihe von Personen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Weber, der die vorliegende Arbeit betreute und mich unterstützt hat.

Herrn Prof. Dr. I V. Hertel danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Max-Born-Institut anfertigen zu dürfen.

Ebenso bedanke ich mich bei Herrn Prof. A. Penzkofer, der bereit war die Aufgabe des Zweitgutachters zu übernehmen

Mein Dank gilt insbesondere Dr. V. Petrov für die hervorragende Betreuung und gute Zusammenarbeit während dieser Zeit. Seine wertvollen Ratschläge und ständigen Hilfestellungen haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Er nahm viel Zeit für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Bei unserem Abteilungsleiter Dr. F. Noack möchte ich mich für die Betreuung und seine tatkräftige Hilfe sowohl im experimentellen Teil dieser Arbeit als auch beim Korrekturlesen bedanken. Allen Angehörigen meiner Abteilung danke ich an dieser Stelle für die sehr gute Zusammenarbeit.

Nicht zuletzt gilt mein Dank Dr. M. Wittmann, Dipl.-Phys. O. Steinkellner und Dr. F Jäger für die zahlreichen wertvollen Diskussionen und Hilfestellungen in jeder Hinsicht.

Für die Hilfe in technischen Belangen möchte ich mich bei Frau G. Mügge, Herrn H. J. Thiemann, Herrn M. Dose und Herrn W. Krüger bedanken.

Meiner Frau Ki-Sook möchte ich besonders danken, die mir in allen Situationen sehr viel Verständnis entgegengebracht hat. Abschließend gilt mein Dank meiner Tante Young und Frau B. Kühnert, die mich ganze Zeit unterstützt hat.