

# Von der Photonenspaltung zum kontinuierlich emittierenden Universallaser

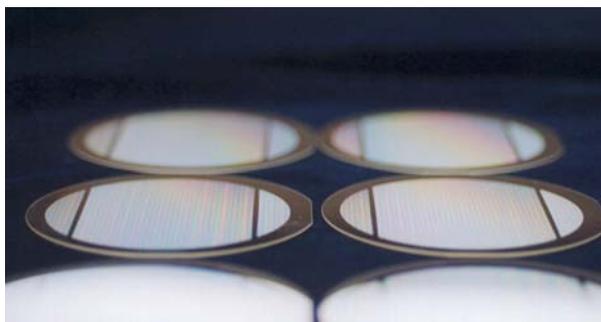
Optisch-parametrische Oszillatoren ergänzen herkömmliche abstimmbare Laser

Stephan Schiller und Jan-Peter Meyn

Monochromatisches Licht beliebiger Wellenlänge zu erzeugen ist ein alter Traum der Laserphysiker. Diesem Ziel kommen kontinuierlich emittierende optisch-parametrische Oszillatoren (cw-OPOs) mittlerweile sehr nahe. Sie wandeln das Licht eines „Pump“-Lasers effizient in die gewünschte Wellenlänge um. Stand der Technik ist derzeit eine Abdeckung des optischen Spektralbereichs von 0,5 bis 5  $\mu\text{m}$ . Entscheidend für die jüngsten Fortschritte sind moderne optische Technologien, unter anderem mikrostrukturierete nichtlinear-optische Kristalle. Wegen ihres breiten Durchstimmbereiches und ihrer spektralen Reinheit von besser als  $1 : 10^9$  sind cw-OPOs interessante Quellen für die Atom- und Molekülspektroskopie, aber auch für die Messtechnik. Vor allem in dem für den Spurengasnachweis relevanten mittleren Infrarot-Spektralbereich füllen sie eine wichtige Lücke.

Die Laserentwicklung verzeichnet seit vielen Jahren ein ungebrochenes Wachstum, angetrieben durch die vielfältigsten Anwendungen. Zahlreiche Forschungsinstitute und Firmen arbeiten an Verbesserungen der Spezifikationen, darunter die Breite der spektralen Überdeckung, Ausgangsleistung, räumliche Strahlqualität, Linienbreite, Frequenzstabilität, Abmessungen, Bedienungsfreundlichkeit, Lebensdauer und nicht zuletzt die Kosten.

In der Klasse der abstimmbaren Dauerstrich-Laser (*continuous wave*, cw) wurden verschiedenste Typen entwickelt, etwa Molekül-, Farbstoff-, Farbzentren- und diodengepumpte Festkörperlaser sowie elektrisch oder optisch gepumpte Halbleiterlaser (Abb. 1). So fanden Farbstofflaser in Forschungslabors große Verbreitung, da sie einen Durchstimmbereich von bis zu 100 nm erreichen und durch Wechsel des Farbstoffes einen weiten Spektralbereich vom nahen UV bis zum nahen Infrarot überdecken können. Die Schwierigkeiten in der Handhabung sind jedoch signifikant. Mit der Erfindung des Titan-Saphir-Lasers, eines Festkörperlasers, Anfang der 80er-Jahre wurden die Farbstofflaser aus dem Emissionsbereich des Ti-Saphir-Lasers verdrängt. Dabei ist der einzige wesentliche Unterschied zum Farbstofflaser, dass das aktive Material – ein Titandotierter Saphirkristall – mechanisch und optisch stabil ist. Inzwischen wurden weitere weit durchstimmbare Festkörperlaser auf der Basis von Übergangs-



Entscheidende Fortschritte bei der Entwicklung von kontinuierlich emittierenden OPOs brachten periodisch gepolte Kristalle. Die Streuung an der Oberfläche erfolgt durch angeätzte ferroelektrische Domänen. Aus dem zentralen Bereich der 3-Zoll-Wafer mit 32 schmalen Kanälen wird jeweils ein rechteckiger Kristall herausgeschnitten, der als Kernelement für einen OPO dient.

metallionen realisiert [1], doch von einer lückenlosen Abdeckung des sichtbaren und nah-infraroten Spektralbereiches ist man noch weit entfernt.

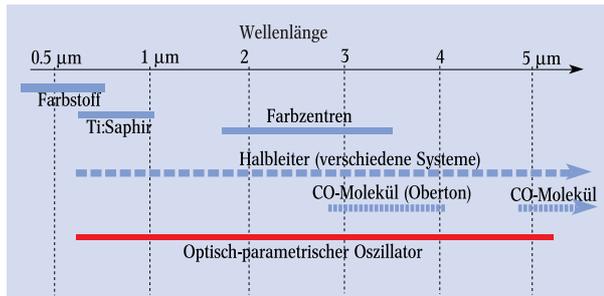
Die cw-OPOs basieren ebenfalls auf Kristallen, hierbei handelt es sich aber um solche, die geeignete nichtlinear-optische Eigenschaften aufweisen. Bekannt sind derartige Kristalle wegen ihrer Verwendung zur Frequenzverdopplung von Laserstrahlung. In einem OPO wird eine so genannte Pumpwelle der Frequenz  $\omega_p$  durch optisch nichtlineare Kopplung im Kristall in zwei Wellen niedrigerer Frequenzen  $\omega_s$  und  $\omega_i$  umgewandelt, die Signal- bzw. Idler-Welle genannt werden (Abb. 2). Im klassischen Bild führt diese nichtlineare Kopplung zur Modulation eines Parameters des Mediums, nämlich der elektrischen Polarisation – daher die Bezeichnung „parametrisch“. Im quantenmechanischen Bild beschreibt man diese Kopplung als Spaltung eines Pump-Photons in jeweils ein Signal- und ein Idler-Photon. Bei diesem optisch-parametrischen Prozess verbleibt keine Energie im Medium. Es gilt  $\omega_s + \omega_i = \omega_p$ , was als Photonenenergiebilanz interpretiert werden kann. Man verfolgt daher seit langem die Vision, mit einem Pumplaser der Frequenz  $\omega_p$ , den man nach rein praktischen Gesichtspunkten aussuchen kann, sämtliche denkbaren kleineren Lichtfrequenzen zu erzeugen. Die effiziente Umwandlung von Pump- in Signal- und Idlerstrahlung erfordert eine so genannte Phasenanpassung, in der die Unterschiede der Brechungsindizes für die beteiligten Lichtwellen ausgeglichen werden müssen.

Prof. Dr. Stephan Schiller, Institut für Experimentalphysik, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, Universitätsstraße 1, 40225 Düsseldorf; Dr. Jan-Peter Meyn, Fachbereich Physik, Erwin-Schrödinger-Str. 46, 67665 Kaiserslautern

Die erzeugten elektromagnetischen Felder sind von ihrer Natur her Laserstrahlen, d. h. quantenmechanische kohärente Zustände mit Intensitäts- und Phasenrauschen, die der Poisson-Statistik gehorchen und deren räumliche Wellenform eine ausgezeichnete Fokussierbarkeit ermöglicht.

Die ersten cw-OPOs wurden bereits Ende der 60er-Jahre demonstriert [2]. Sie konnten aber nicht stabil

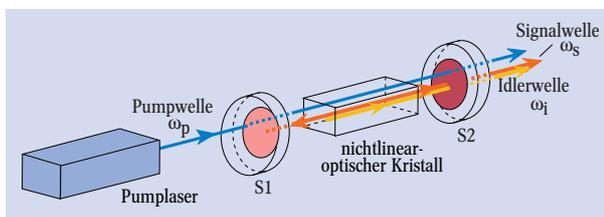
**Abb. 1:** Da in einem OPO zwei Wellen gleichzeitig erzeugt werden, kann der überdeckbare Emissionsbereich größer als bei Lasern sein. Durch Frequenzverdopplung wird auch der sichtbare Spektralbereich erreicht.



betrieben werden; ihre Entwicklung kam zwanzig Jahre lang kaum voran, während die gepulsten OPOs stetig weiterentwickelt wurden. Ende der 80er-Jahre wurden cw-OPOs wieder als Quellen für nichtklassisches Licht erforscht, Mitte der 90er-Jahre beschleunigte sich die Entwicklung. Inzwischen hat man das volle Potenzial von cw-OPOs realisiert und die ersten Systeme sind kommerziell erhältlich. Dies wurde durch Fortschritte bei den wesentlichen Komponenten ermöglicht: den nichtlinear-optischen Kristallen, den Dauerstrich-Pumplasern und den dielektrischen Schichten. Innerhalb der letzten Jahre wurden wichtige Meilensteine erreicht:

- ▶ vollständige Abdeckung des sichtbaren bis mittleren Infrarot-Spektrums; selbst ohne Komponentenwechsel lässt sich ein Spektralbereich von zwei optischen Oktaaven, z. B. 550 nm bis 2800 nm überdecken;
- ▶ hohe Ausgangsleistung (> 100 mW) und Effizienz (> 30 %);
- ▶ beugungsbegrenzte Strahlqualität;
- ▶ geringe Linienbreite (< 100 kHz);
- ▶ monochromatische Emission mit hoher zeitlicher Stabilität der erzeugten Frequenzen (< 100 MHz Drift pro Stunde);
- ▶ kontinuierliche Frequenzabstimmung über mehr als 10 GHz.

1) Die starke Korrelation zwischen den bei der parametrischen Fluoreszenz erzeugten Photonen macht man sich zur Erzeugung von nichtklassischem Licht und anderen quantenoptischen Untersuchungen (z. B. Quantentomographie, -teleportation, -kryptographie) zu Nutze. Auch die Ausgangswellen eines OPOs können in bestimmten Fällen auf Quantenniveau intensitätskorreliert sein.

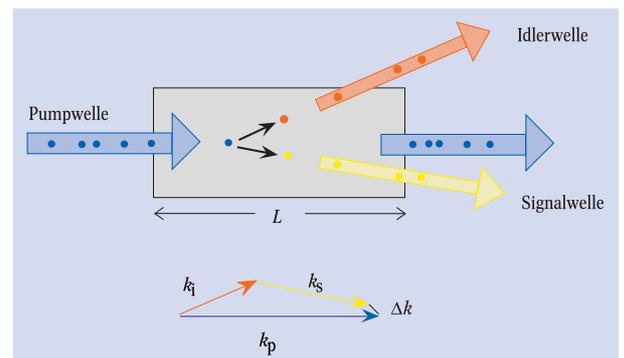


**Abb. 2:** Bei einem cw-OPO erzeugt eine Pumpwelle der Frequenz  $\omega_p$  durch nichtlineare Kopplung im Kristall zwei weitere Wellen, „Signal“ und „Idler“. Deren Frequenzen sind über die Energieerhaltung verknüpft:  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ . Durch optische Rückkopplung z. B. der Signalwelle zwischen zwei Spiegeln (S1 und S2) lässt sich die gewünschte Frequenz verstärken und regeln. Die Frequenzen sind durch Variation eines Kristallparameters über mehrere hundert Nanometer abstimmbaar.

Diese Eigenschaften machen cw-OPOs zu Laserquellen mit hohem Potenzial für die Atom- und Molekülspektroskopie, aber auch für die optische Messtechnik. Ein wichtiges Anwendungsfeld ist die hochauflösende Molekülspektroskopie im Infrarotbereich um 2–5 µm Wellenlänge. Zum Beispiel haben organische Moleküle aufgrund der zahlreichen Wasserstoffbindungen starke Schwingungsbanden im 3-µm-Bereich. Die Spektren sind für jede Molekülarart charakteristisch („spektraler Fingerabdruck“) und ermöglichen daher einerseits Strukturuntersuchungen, andererseits einen selektiven Nachweis. Die kompakten Abmessungen von cw-OPO-Systemen, die selbst mit zusätzlichen Erweiterungen wie externer Frequenzverdopplung auf einem kleinen Schreibtisch Platz finden, eine gewöhnliche Stromversorgung und keine Wasserkühlung benötigen, sollten es in naher Zukunft ermöglichen, einen hochempfindlichen und schnellen Spurengasnachweis vor Ort durchzuführen (etwa in einem Pflanzenanbaugelände oder Krankenhaus).

**Funktionsprinzip**

Ähnlich wie ein Laser besteht ein OPO prinzipiell aus zwei Komponenten (Abb. 2): Ein optisch gepumptes Medium wirkt als Verstärker für eine optische Welle, und ein Resonator, der im einfachsten Fall aus zwei Spiegeln besteht, ermöglicht die Rückkopplung der verstärkten Welle. Der Oszillationsprozess wird dadurch eingeleitet, dass das optisch gepumpte Medium spontan Photonenpaare niedrigerer Frequenz produziert (Abb. 3, parametrische Fluoreszenz).<sup>1)</sup> Diejenigen Photonen, die zufällig in die Resonatormode emittiert werden, werden dann durch das nichtlineare Medium vervielfacht, ihre Anzahl wächst exponentiell mit der Anzahl der Umläufe an, bis sich makroskopische, stationäre elektromagnetische Wellen mit schmalbandiger Signal- und Idlerfrequenz aufgebaut haben und das Verhalten des Oszillators im Wesentlichen klassisch beschrieben werden kann (Abb. 4). Es gibt verschiedene OPOs, die entweder die Signal- oder die Idlerwelle im Spiegelresonator überhöhen, oder auch beide Frequenzen gleichzeitig, wie unten ausgeführt wird. Ein teilweise transparenter Spiegel ermöglicht die Auskopplung der gewünschten Strahlung. Wie ein Laser hat ein OPO eine Schwellen-Pumpleistung, bei der die Verstärkung gerade die Leistungs-



**Abb. 3:** Die Oszillation wird durch parametrische Fluoreszenz ausgelöst, die als Photonenpaftung veranschaulicht werden kann: Ein Pumpphoton wird vernichtet, ein Signal- und ein Idlerphoton erzeugt. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozess liegt bei ca.  $10^{-10}$  pro Pumpphoton. Es werden hauptsächlich Photonenpaare erzeugt, deren Wellenvektoren näherungsweise die Impulserhaltung  $\Delta k = k_p - k_s - k_i = 0$  (Phasenanpassungsbedingung) erfüllen. Diese Bedingung bestimmt die Ausbreitungsrichtung von Signal- und Idlerwellen.

verluste im Resonator ausgleicht. Die Schwellenpumpleistung  $P_{\text{Schwelle}}$  ist bestimmt durch den Verlust der resonant umlaufenden Welle,  $A$ , und die Verstärkung beim einfachen Durchgang durch den Kristall normiert auf 1 W Pumpleistung  $G$ :

$$P_{\text{Schwelle}} = A/G.$$

Durch die Oszillation wird die Verstärkung unabhängig von der Pumpleistung auf das Niveau der Verluste stabilisiert.

### Die nichtlinear-optische Wechselwirkung

Unterschiede zwischen Laser und OPO bestehen hauptsächlich auf mikroskopischem Niveau und betreffen die Wechselwirkung der optischen Wellen mit dem nichtlinear-optischen Medium. Dieses ist im Gegensatz zu einem Lasermedium nicht in der Lage, Energie zu speichern. Dem Verstärkungsprozess liegt stattdessen ein instantaner Transfer von Energie zwischen den drei beteiligten Wellen mit dem nichtlinearen Medium als Mittler zugrunde. Der Verstärkungskoeffizient  $G \sim (\chi^{(2)})^2$  ist durch die Suszeptibilität zweiter Ordnung  $\chi^{(2)}$  bestimmt, ein Maß für die Stärke der quadratischen Abhängigkeit der Polarisation  $P$  der Elektronen des Mediums vom angelegten elektrischen Feld,  $P = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2$ .

Der Verstärkungsprozess ist kohärent, d. h. Richtung und Stärke des Transfers hängen von den Phasen der drei beteiligten Wellen ab. Die Phasen wiederum werden durch die Brechungsindizes  $n(\omega)$  des Mediums bei den jeweiligen Frequenzen bestimmt. Deshalb ist die parametrische Frequenzkonversion nur dann über die gesamte Kristalllänge  $L$  effizient, wenn die Phasengeschwindigkeiten der beteiligten Wellen identisch sind (siehe Infokasten zur Phasenanpassung), und das ist wegen der Kristalldispersion  $dn/d\omega \neq 0$  niemals ohne weiteres Zutun der Fall. Lange Zeit war die Nutzung der Polarisations- und Richtungsabhängigkeit des Brechungsindex in doppelbrechenden Kristallen die einzige praktikable Methode der Phasenanpassung. Durch Drehen des Kristalls oder Änderung seiner Temperatur lässt sich die Phasenanpassung verändern und man kann auf diese Weise einen beträchtlichen Spektralbereich abdecken. Abbildung 5 zeigt die Abstimmung eines OPOs mittels der Temperatur. Darüber hinaus ist gemäß Gl. (1) auch eine Abstimmung über die Frequenz der Pumpwelle möglich, was ein großer Vorteil gegenüber optisch gepumpten Lasern ist.

### Nichtlinear-optische Kristalle

Alle Medien ohne Inversionssymmetrie besitzen ein nichtverschwindendes  $\chi^{(2)}$ . Für cw-OPOs bestehen jedoch eine Reihe von zusätzlichen Anforderungen. Es kommen nur Kristalle in Frage, die mechanisch und thermisch stabil sind und die sich in hervorragender optischer Qualität herstellen und mit dielektrischen Schichten entspiegeln lassen. Weiterhin muss die nichtlineare Suszeptibilität vergleichsweise groß sein. Damit ist man praktisch auf Oxid-Kristalle beschränkt. Die

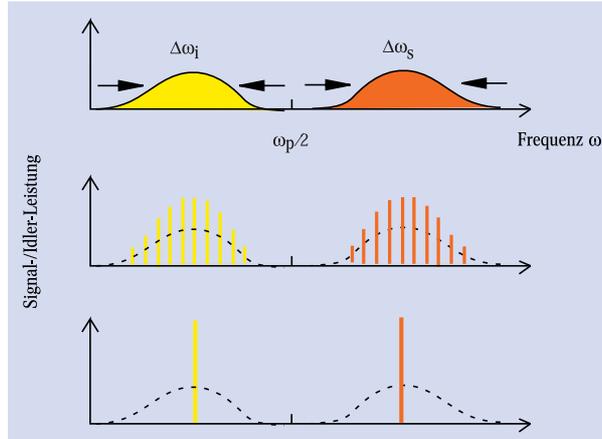


Abb. 4:

Das Spektrum des parametrisch erzeugten Lichtes hängt unter anderem von der Leistung ab. Unterhalb der Schwelle fluoresziert der OPO-Kristall in zwei Frequenzbändern, deren Breite durch die Toleranz der Phasenanpassung bestimmt ist (siehe Infokasten zur Phasenanpassung). Befindet sich der Kristall in einem Resonator, dominieren die Eigenmoden; bei einer Pumpleistung oberhalb der Schwelle tritt „Modenkonzurrenz“ auf, und nur das Modenpaar mit der höchsten Verstärkung oszilliert.

### Phasenanpassung und Quasiphasenanpassung (QPM)

In einem Medium mit nichtverschwindender Suszeptibilität zweiter Ordnung  $\chi^{(2)}$  koppeln jeweils zwei Wellen und erzeugen eine nichtlineare Polarisation. Z. B. koppeln Pump- und Idlerwelle zu  $P_3(t, z) = \chi^{(2)} E_p(t, z) E_i(t, z)$ . Für jede Welle ist das elektrische Feld  $E(t, z) \sim E_0 \cos(\omega t - kz)$ , mit dem Wellenvektor  $k = n(\omega)\omega/c$ .

Die Polarisation  $P_3$  weist also einen Beitrag  $\chi^{(2)} E_{p0} E_{i0} \cos((\omega_p - \omega_i)t - (k_p - k_i)z)$  auf. Da er mit der Frequenz  $\omega_p - \omega_i = \omega_s$  oszilliert, ist er laut Maxwellscher Wellengleichung eine Quelle für einen Feldzuwachs  $\Delta E_3(t, z) \sim P_3(t, z) \Delta z$  in jeder Schicht der Dicke  $\Delta z$  an der Position  $z$ . Der lokale Feldzuwachs ändert seine Phase mit der räumlichen Periode  $2\pi/(k_p - k_i)$ . Ein schon vorhandenes Feld  $E_s(t, z)$  mit der Frequenz  $\omega_s$  propagiert jedoch mit der Wellenlänge  $2\pi/k_s$ . Die in den einzelnen Bereichen des Mediums gebildeten Beiträge  $\Delta E_3(t, z)$  überlagern sich daher nur dann konstruktiv mit  $E_s(t, z)$ , wenn die beiden Wellenlängen übereinstimmen, d. h.  $\Delta k = k_p - k_i - k_s$ . Dies liefert die Phasenanpassungsbedingung  $n(\omega_p) \omega_p - n(\omega_s) \omega_s - n(\omega_i) \omega_i = 0$ . (1)

Wegen der Dispersion von  $n$  kann diese Bedingung nur unter Ausnutzung der Doppelbrechung des Kristalls erfüllt werden (der Brechungsindex doppelbrechender Kristalle hängt von der Polarisationsrichtung ab). Die drei Wellen müssen dann

unterschiedliche Polarisation besitzen.

Links im Bild ist der Einfluss der Phasenanpassung auf die Verstärkung einer Signalleistung skizziert. Für eine Signalleistung, deren Frequenz  $\omega_s$  Gl. (1) genügt, wächst der Leistungsgewinn quadratisch mit der Distanz im Medium (Kurve a). Für ein  $|\Delta k| \gg 1/L$  ist der am Ende des Mediums maximal erzielbare Leistungsgewinn dagegen gering (Kurve b). Für Werte  $|\Delta k| < \pi/2$  ist der Leistungsgewinn noch bedeutsam. Dieser Toleranz entspricht eine spektrale Breite  $\Delta\omega_s$  bzw.  $\Delta\omega_i$  bei der parametrischen Verstärkung.

Bei einem QPM-Medium (rechts) ist  $\chi^{(2)}$  entlang der Propagationsrichtung mit der Periode  $\Lambda$  moduliert und proportional zu

$$\chi_0^{(2)} (c_0 + c_1 \cos(2\pi z/\Lambda) + \text{höher Harmonische}),$$

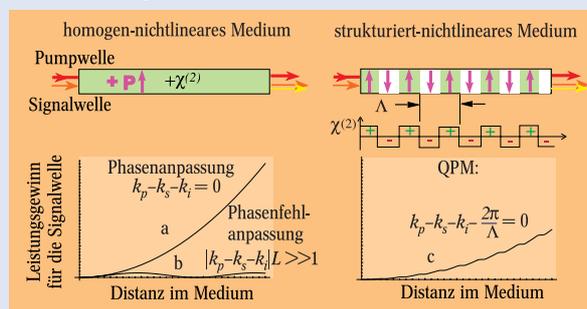
mit den Fourier-Koeffizienten  $c_i$ . Dieses „Gitter“ führt zu einer räumlichen Modulation der Stärke und/oder des Vorzeichens der Wechselwirkung zwischen den drei Wellen und damit der nichtlinearen Polarisation und des Feldzuwachses.  $\Delta E_3(t, z)$  ist nun proportional zu

$$\chi_0^{(2)} c_1 E_{p0} E_{i0} \cos((\omega_p - \omega_i)t - (k_p - k_i - 2\pi/\Lambda)z).$$

Wird demnach

$$2\pi/\Lambda = k_p - k_i - k_s \tag{2}$$

gewählt, so trägt  $\Delta E_3$  im räumlichen Mittel konstruktiv zum vorhandenen Feld  $E_s$  bei. Die Phasengeschwindigkeit eines Teils der Polarisation ist damit der des freien Feldes  $E_s$  angepasst worden. Man erzielt also eine ebenfalls quadratisch mit der Distanz anwachsende Leistungszunahme (Kurve c). Sie ist aber um den Faktor  $c_1^2$  geringer als bei echter Phasenanpassung  $\Delta k = 0$ . Für „bipolare“ Modulation ist  $c_1^2 = 4/\pi^2 \sim 40\%$ . Die leichte verbleibende Modulation ist eine Folge der nichtharmonischen Modulation der Suszeptibilität: Die räumlichen Fourier-Komponenten höherer Ordnung liefern phasenfehlangepasste Beiträge zur Signalamplitude.



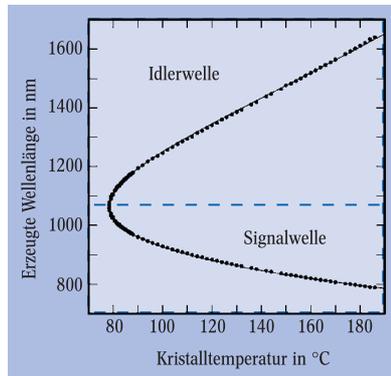
Ohne Phasenanpassung wird kaum Leistung auf die Signalwelle übertragen (links, a). Für die Quasiphasenanpassung (rechts) werden Kristalle mit periodisch modulierter Suszeptibilität hergestellt.

nichtlineare Kopplung ist im cw-Betrieb so klein, dass man die parametrische Verstärkung  $G \times P_L$ , die proportional zur Intensität des Pumplasers ist, durch Fokussierung des Pumplasers optimieren muss. Selbst bei den höchsten derzeit eingesetzten cw-Pumpleistungen  $P_L$  beträgt sie nur einige Prozent. Versucht man eine Phasen Anpassung durch Doppelbrechung, so kommt es in der Regel zu einer ungünstigen räumlichen Separation der beteiligten Laserstrahlen. Eine effiziente Ausbreitung der Wellen entlang einer Symmetrieachse ist nur für spezielle Frequenzkombinationen möglich.

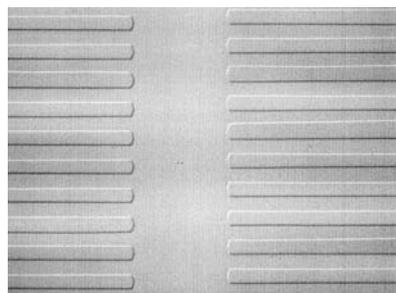
**Quasi-Phasen Anpassung**

Eine stürmische Entwicklung auf dem Gebiet der nichtlinear-optischen Kristalle lieferte Mitte der 90er-Jahre einen entscheidenden Beitrag zum Fortschritt der cw-OPOs: die Quasi-Phasen Anpassung (QPM) [3, 4]. Man verzichtet hier auf eine Anpassung der Ausbreitungsgeschwindigkeiten der beteiligten Lichtwellen und verschiebt stattdessen in regelmäßigen Abständen die Phase der nichtlinearen Polarisation, welche für die Kopplung verantwortlich ist: Die Phasenverschiebung erfolgt als Vorzeichenwechsel ( $\pi$ -Sprung) an Grenzflächen von gegensinnig angeordneten Kristall-Domänen (siehe Infokasten zur Phasen Anpassung). Die notwendige Breite einer Domäne  $\Lambda/2$  ist durch die Dispersion bestimmt und beträgt je nach Spektralbereich  $0,5 \mu\text{m}$  bis  $50 \mu\text{m}$ .

**Abb. 5:** Die Emissionswellenlängen lassen sich durch die Kristalltemperatur einstellen. In diesem Beispiel wurde mit konventioneller Phasen Anpassung nach Gl. (1) ein MgO-dotierter LiNbO<sub>3</sub>-Kristall verwendet. Die Pumpwelle hat eine Wellenlänge von 532 nm, der Resonator ist sowohl für die Idler- als auch die Signalwelle resonant. Die große spektrale Überdeckung erforderte extrem breitbandige dielektrische Spiegelbeschichtungen [21].



**Abb. 6:** Für die Quasiphasen Anpassung werden einem Kristall Domänen unterschiedlicher Polarisationsrichtung aufmoduliert. Gezeigt ist die Aufsicht auf zwei Gitter eines solchen PPLN-Kristalls, die durch einen Ätzprozess sichtbar gemacht worden sind. Die Gitterperiode beträgt  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ . Die Strahlpropagation ist in der Papierebene vertikal, also senkrecht zum Streifenmuster.



Das Konzept der QPM existiert seit den Anfängen der nichtlinearen Optik vor vierzig Jahren. Gelegentlich gab es Demonstrationen, z. B. durch Zusammen setzen gegenseitig orientierter Kristallplatten oder durch Züchtung von Lamellenstrukturen. Diese waren aber nicht praxistauglich, und so gelang es erst Ende der 80er-Jahre, die QPM anwendungsnah und verlässlich mithilfe des ferroelektrischen Effekts zu implementieren [3]. Ferroelektrika sind Kristalle mit einer gerichteten (polaren) Symmetrieachse. Ihre spontane Polarisation lässt durch ein extern angelegtes elektrisches Feld umrichten („umpolen“). Mit streifenförmigen Elektroden, die in hoher Präzision durch optische Li-

thographie auf den Kristall gebracht werden, können Domänen durch Anlegen eines definierten elektrischen Pulses permanent im Kristall erzeugt werden. Mikroskopisch gesehen findet eine permanente Verschiebung der Kationen relativ zum Anionengerüst im Kristall statt.

Das Besondere an der QPM in periodisch gepolten Kristallen besteht darin, dass sich beliebige Frequenzpaare  $\omega_s, \omega_i$  (mit  $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ ) durch geeignete Wahl der Domänen- oder Polungs-Periode  $\Lambda$  erzeugen lassen (s. Gl. 2). Lediglich die Schwierigkeit, sehr kleine Perioden im Bereich weniger  $\mu\text{m}$  herzustellen sowie die Lichtabsorption des Kristalls bei sehr langen oder kurzen Wellenlängen führt zu praktischen Grenzen. Besonders attraktiv ist die Möglichkeit, eine Vielzahl von Gittern unterschiedlicher Periode auf einem Kristall zu integrieren (sog. Multigitter, Abb. 6). Ein unten näher beschriebener Kristall mit 62 verschiedenen Wechselwirkungszonen hat etwa eine halbe Million Domänenwände, und die Experimente zeigen, dass alle Domänenwände im Mittel wunschgemäß positioniert sind. Die QPM-Technologie erlaubt also weitgehend eine Kristallherstellung nach Maß.

Der heute gebräuchlichste Kristall für periodische Polung ist Lithiumniobat („PPLN“). Mehrere andere Kristalle, z. B. LiTaO<sub>3</sub>, KTiOPO<sub>4</sub>, und KNbO<sub>3</sub>, eignen sich ebenfalls [5]. Lithiumniobat ist ein großtechnisch hergestelltes Material für Mikrowellenbauteile, elektrooptische Modulatoren und Wellenleiter; die cw-OPOs können hier von der Materialentwicklung für andere Anwendungsfelder profitieren.

**Emissionsbereich und spektrale Eigenschaften**

Dank der Phasen Anpassung durch die QPM und der Herstellung von breitbandigen Spiegeln und Antireflexschichten für die Kristalleintritts- und -austrittsflächen sind Emissionsbereiche über mehrere hundert Nanometer standardmäßig möglich geworden. Die größten bisher demonstrierten Emissionsbereiche von cw-OPOs liegen sogar bei zwei Oktaven. Auf dem Weg zu noch größeren Spektralbereichen gibt es mehrere Hindernisse: Die hohe Reflektivität der Spiegel ist immer auf einen gewissen Wellenlängenbereich begrenzt, die Kristalle absorbieren in der Nähe der Bandkante und im Infraroten wegen der Phononenabsorption, und schließlich sinkt die Verstärkung mit abnehmender Emissionsfrequenz:  $G \sim \omega_s^2 \omega_i^2 / \omega_p$ . All dies führt bei wachsendem Emissionsbereich zur Zunahme der Schwelle  $P_{\text{Schwelle}}$  über die verfügbare Pumpleistung hinaus.

Die Durchstimbarkeit allein ist nicht das einzige Qualitätskriterium. Die emittierte Strahlung muss auch frequenzstabil sein und eine geringe Frequenzbandbreite aufweisen. Die parametrische Verstärkung des Mediums erstreckt sich typischerweise über mehrere Nanometer und umfasst daher eine größere Anzahl von Resonatormoden, deren jeweilige Verstärkung  $G$  sich nur geringfügig unterscheidet. Die Modenfrequenzen, die durch die Weglänge des Lichts im Resonator bestimmt sind, und die jeweilige Verstärkung sind empfindlich auf äußere Störeinflüsse wie Schall, Temperatur, Vibrationen, aber auch auf Schwankungen der Pumpleistung und Pumpstrahlrichtung, die die Temperatur des Kristalls beeinflussen. Aufgrund dieser Einflüsse springt die OPO-Emissionsfrequenz normalerweise zwischen den verschiedenen Modenfrequenzen. Bringt man in den OPO-Resonator einen zweiten Resonator geringer Güte ein, der oft als einfache planparallele Glasplatte

(Etalon) realisiert wird, so wird die Verstärkung der einzelnen Moden soweit spektral moduliert, dass ein Springen zwischen Nachbarmoden unterdrückt wird [6–8]. Die verbleibende Frequenzdrift kann weitgehend vermieden werden, indem die OPO-Resonatorlänge durch eine Regelung an eine stabile optische Frequenz gekoppelt wird, z. B. an einen hochstabilen Referenzresonator [9] oder an den (frequenzstabilen) Pumplaser [8, 10, 14, 16].

### Beispiele für cw-OPOs

Aus der Vielzahl von cw-OPOs, die von verschiedenen Arbeitsgruppen entwickelt worden sind, sollen im Folgenden einige herausgegriffen werden, um charakteristische Eigenschaften zu verdeutlichen.

#### Doppelt-resonanter OPO (DRO).

Die Oszillationsschwelle eines OPOs wird erreicht, wenn die nichtlineare Kopplung der drei beteiligten Felder so groß wird, dass Verluste jeweils einer der Wellen durch Konversion aus den beiden anderen kompensiert werden; diese Verluste sind besonders gering, wenn die Signal- und die Idler-Welle gleichzeitig resonant sind. Die doppelte Resonanzbedingung ist sehr empfindlich im Hinblick auf äußere Störungen. Bei zufälliger Verringerung der Resonatorlänge etwa wird die Resonanzfrequenz sowohl für die Signal- als auch die Idlerwelle erhöht. Die Energieerhaltung  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$  erzwingt jedoch eine Frequenzerniedrigung einer der beiden Wellen. Daher kommt es sehr leicht zu Modensprüngen. Durch eine aktive Stabilisierung der Resonatorlänge können die Modensprünge unterdrückt werden [9, 11].

#### Einfach-resonanter OPO (SRO)

Ist eine hohe Ausgangsleistung erwünscht (für die ein starker Pumplaser mit mehreren Watt Ausgangsleistung gebraucht wird), so ist es technisch vorteilhaft, auf eine Resonanz zu verzichten und die höhere Oszillationsschwelle in Kauf zu nehmen; Durchstimmverhalten und Stabilitätskontrolle sind dann einfacher zu beherrschen. Abbildung 7 zeigt einen Signalwellen-resonanten cw-OPO mit 200 mW Ausgangsleistung bei  $2,1 \mu\text{m}$  Idlerwellenlänge mit PPLN als nichtlinearem Medium [12]. Als Pumplaser dient ein monofrequenter Diodenlaser mit Nachverstärker. Durch die Frequenzabstimmung des Pump lasers wird bei konstant gehaltenen Signalfrequenz nur die nichtresonante Idlerwelle abgestimmt; ein Bereich von fast 60 GHz kann innerhalb von 10 ms überdeckt werden. Die Quelle eignet sich daher sehr gut für die Spektroskopie.

#### Pump-resonanter SRO (PR-SRO)

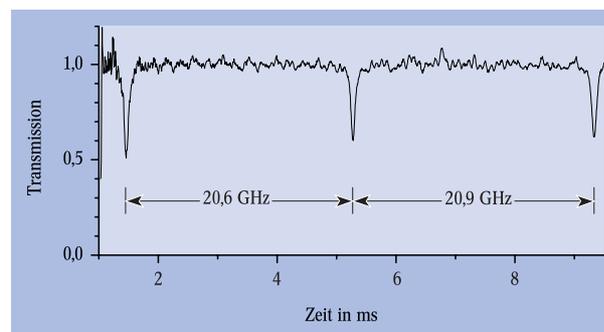
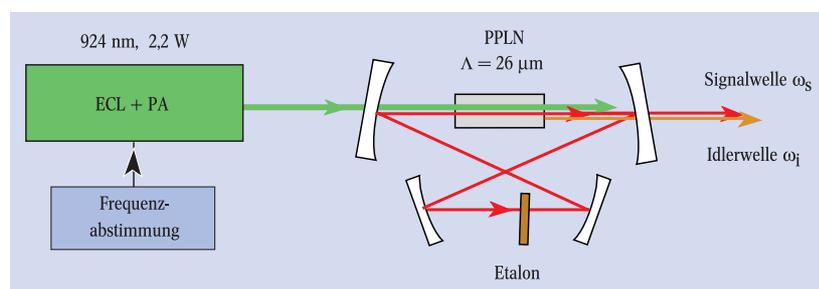
Um die Schwelle eines SROs herabzusetzen, kann die Pumpwelle in einem Resonator überhöht werden, der geeignet um den nichtlinearen Kristall aufgebaut ist [13]. Neben der deutlichen Absenkung der Oszillationsschwelle um einen Faktor zehn und mehr kann die ohnehin notwendige Regelung der Pumpresonatorlänge auch zur Stabilisierung des gesamten OPOs benutzt werden [14, 8]. Als Pumpquelle dient z. B. ein monolithisch aufgebauter Nd:YAG-Laser. Mit solchen Systemen wurde eine fast lückenlose Überdeckung von  $1,45 - 4 \mu\text{m}$ , eine Frequenzdrift  $< 100 \text{ MHz/h}$  und eine kontinuierliche Frequenzabstimmung um 1 GHz (bei  $3 \mu\text{m}$ ) erzielt. Die Ausgangsleistung liegt dabei in der Größenordnung 50 mW. Frequenzstabile Diodenlaser

sind ebenfalls als Pumpquellen geeignet [15].

Solche Systeme eignen sich gut zur Molekülspektroskopie auf der Wasserstoff-Fundamentalbande. Mit PR-SROs wurde z. B. hochauflösende Dopplerfreie Spektroskopie an Methan (Abb. 8) sowie hochempfindliche photoakustische Spektroskopie von einfachen Kohlenwasserstoffen durchgeführt [6]. In jüngster Zeit gelang auch der erste Spurengasnachweis mit einem OPO-Cavity-Ring-Down-System [17]. Eine Nachweisempfindlichkeit im  $10^{-9}$ -Bereich lässt sich erreichen, die mit der von gegenwärtig verwendeten, mit flüssigem Stickstoff gekühlten Molekülglasern vergleichbar ist.

#### Sichtbares Licht

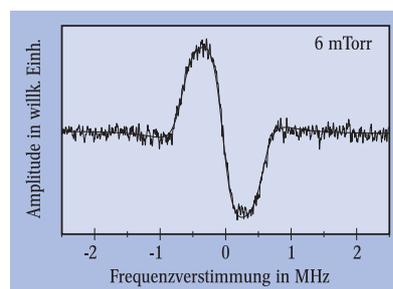
Der mögliche Spektralbereich von cw-OPO-Systemen erstreckt sich mit geeigneten Pumplasern und mit zusätzlich integrierter Frequenzverdopplung weit in den sichtbaren Bereich hinein. Mit ihrem Aufbau aus kristallinen Komponenten („all-solid-state“), der geringen Linienbreite und dem großen Abstimmbereich ent-



**Abb. 7:** ► oben: Ein Infrarot-SRO [12] eignet sich für die Spektroskopie. Der Pumplaser besteht aus einer Gitter-stabilisierten Laserdiode (ECL), nachverstärkt durch einen InGaAs-Verstärker (PA). Der 40 mm lange Kristall besteht aus periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN). Der OPO-Resonator ist nur für die Signalwelle resonant, die Idlerwelle wird vollständig durch den rechten Spiegel transmittiert. Bei einer maximalen Pumpleistung von 2,2 W beträgt die Idler-Ausgangsleistung 200 mW bei der Wellen-

länge  $2,11 \mu\text{m}$ . Das Etalon hält die Signalfrequenz konstant. Durch Variation der Pumplaserfrequenz (Abstimmereich 60 GHz) wird die Frequenz der Idlerwelle variiert (Linienbreite  $< 5 \text{ MHz}$ ).

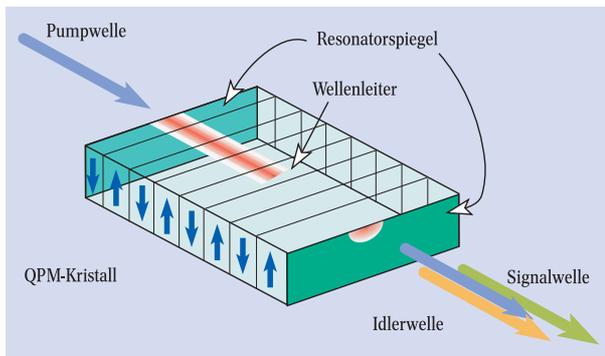
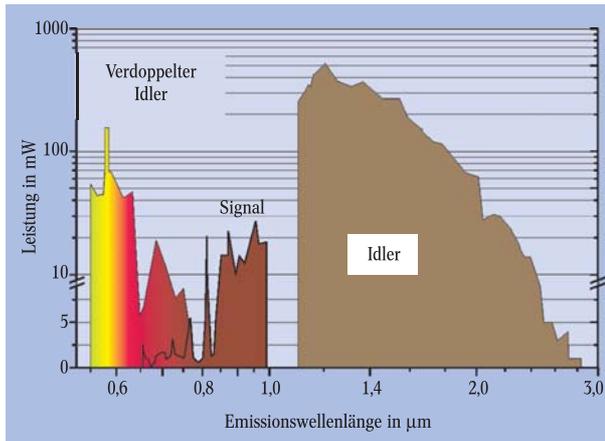
► unten: Absorptionsspektrum von  $\text{N}_2\text{O}$ -Gas im Bereich des zweiten Schwingungsobertons bei  $2,11 \mu\text{m}$ , aufgenommen durch Abstimmung der Idlerfrequenz und Resonatorlänge, und damit die Signalfrequenz, bleiben fest.



**Abb. 8:** Beispiel für hochauflösende Molekül-Vibrationsspektroskopie mit einem cw-OPO. Die Doppler-freie Sättigungsspektroskopie wurde an Methangas bei  $3,39 \mu\text{m}$  und niedrigem Druck durchgeführt (Leistung 10 mW). Die beobachtete Linienbreite setzt sich aus der Druckverbreiterung und der OPO-Linienbreite auf mittlerer Zeitskala zusammen [8].

wickeln sich cw-OPOs daher zur attraktiven Alternative zu den im Sichtbaren noch eingesetzten Dauerstrich-Farbstofflasern. Ein Ansatz für ein solches System geht von einem im Infraroten emittierenden OPO aus, dessen abstimmbare und frequenzstabile Ausgangsstrahlung in einem weiteren Konversionschritt in der Frequenz verdoppelt wird [10]. Auf diese Weise wurde ein besonders großer Emissionsbereich von  $0,56\text{--}2,67\ \mu\text{m}$  ohne Spiegelwechsel erzielt – ein Faktor von nahezu fünf in der Frequenz. Die Idlerstrahlung wurde dafür in einem externen Resonator frequenzverdoppelt. OPO und Frequenzverdopplung nutzen QPM-Multigitterkristalle mit 23 bzw. 62 Gittern unterschiedlicher Periode, um Phasenanpassung über den großen

**Abb. 9:** Mit einem Festkörperlaser-gepumpten SRO, speziell in Multigitterkristallen, und anschließender Frequenzverdopplung erzielt man einen breiten Emissionsbereich. Bis auf eine Lücke um  $1064\ \text{nm}$  (doppelte Pumpwellenlänge) wird der gesamte Spektralbereich von  $560\ \text{nm}$  bis  $2670\ \text{nm}$  abgedeckt [10].



**Abb. 10:** In einem Wellenleiter-OPO wird das Laserlicht im nichtlinearen Kristall nah an der Oberfläche geführt. Ein solches System wurde durch Einlagerung von Titanatomen unter die Oberfläche eines  $\text{LiNbO}_3$ -Substrats realisiert [19]. Damit geht eine Variation des Brechungsindex einher, die das Laserlicht unter der Oberfläche führt. Als Resonatorspiegel dienen dielektrische Schichten auf den Kristalloberflächen, als Pumpquelle ein abstimmbare Diodenlaser, der eine weite und schnelle Abstimmung der Signalwellenlänge ermöglicht.

Wellenlängenbereich zu ermöglichen (Abb. 9). Attraktiv an dem System ist zudem, dass als Pumpquelle ein weit verbreiteter frequenzstabiler  $532\ \text{nm}$  Festkörperlaser verwendet wurde. Da dieser zwar monofrequent, aber nicht abstimmbare ist, wurde die Abstimmung der OPO-Frequenzen über die synchrone Veränderung der Resonatorlänge und des Einstellwinkels des Etalons erzielt, ähnlich wie bei monofrequenten Lasern.

#### Integriert-optische cw-OPOs

Alternativ zu den bisher beschriebenen cw-OPOs aus diskreten Komponenten wird der Ansatz der Wellenleiter-OPOs verfolgt. In einem solchen integrierto-optischen OPO propagieren die Wellen in einem Wel-

lenleiter, der unterhalb der Oberfläche eines periodisch gepolten Kristalls eingebettet ist (Abb. 10). Die wechselwirkenden Lichtwellen werden auf wenige Mikrometer eingeschnürt. So werden bei geringen Leistungen große Intensitäten erreicht [18, 19]. Schon mit  $300\ \text{mW}$  Pumpleistung, die z. B. mit relativ preiswerten Massenprodukten wie nachverstärkten Telekommunikationslasern für einen SRO zur Verfügung steht, wird die Oszillationsschwelle erreicht. Es ist denkbar, dass die integrierten OPOs dank der geringeren Anzahl von Komponenten und Massenfertigung in Zukunft preiswert herstellbar sind und in Spektroskopie-Sensoren eine weite Verbreitung finden werden.

#### Ausblick: Kommerzialisierung und Entwicklungsperspektiven

Die genannten Beispiele zeigen, dass cw-OPOs bereits einen hohen Entwicklungsstand erreicht haben. Ausschlaggebend für den Erfolg ist das Zusammenspiel von nichtlinearen Kristallen, Beschichtungen, Pump-lasern, Resonator-Konfigurationen und Regelungstechnik. Die meisten Spezifikationen, die von einer Spektroskopie-Quelle erwartet werden, können cw-OPOs bereits erfüllen. Die Umsetzung in kommerzielle Produkte hat daher schon begonnen: Erste cw-OPOs werden von einer deutschen Firma angeboten.

An der Weiterentwicklung der cw-OPOs (Emissionsbereich, präzise Abstimmung, Kosten) wird intensiv gearbeitet. Die Verbesserung der Spezifikationen bedarf auch neuer Entwicklungen auf der Materialseite. Gegenstand der Forschung sind u. a. dickere QPM-Kristalle, verbesserte Homogenität der Gitter sowie Reduktion der Absorptionsverluste. Die verwendeten PPLN-Kristalle weisen herstellungsbedingt einen Lithium-Mangel auf, der Störungen verursacht. Ferner basieren alle heute bekannten QPM-Kristalle auf Ferroelektrika, die Übergangsmetalle wie Titan, Niob und Tantal enthalten. Aus chemischen Gründen sind diese immer mit Eisen und Chrom verunreinigt, die komplexe Absorptionszentren bilden können. Eine Erweiterung des Infrarotbereichs über  $5\ \mu\text{m}$  hinaus erfordert Ferroelektrika mit sehr kleinen Phononenenergien, die heute noch sehr wenig erforscht sind.

Eine faszinierende Perspektive bietet schließlich die Kombination von cw-OPOs mit der vor kurzem entwickelten Methode der Femtosekunden-Frequenzkämme auf der Basis modengekoppelter Laser [20]. Diese stellen ein diskretes Spektrum von Wellen mit extrem stabilen und genau bekannten optischen Frequenzen zur Verfügung. Sie könnten zur Stabilisierung der vom cw-OPO emittierten Strahlung dienen. Damit ließe sich mittelfristig cw-Laserstrahlung mit Leistungen im Watt-Bereich bereitstellen, bei hoher spektraler Reinheit und auf  $1 : 10^{15}$  stabiler Frequenz innerhalb eines großen Bereiches vom nahen UV bis in das mittlere Infrarot – ein ultimativer optischer Synthesizer.

\*

Wir danken allen Mitarbeitern und Kollegen, die zur Entwicklung der cw-OPOs beigetragen haben, insbesondere U. Strössner, E. Kovalchuck, R. Conroy, T. Petelski, A. Popp, F. Müller, F. Kühnemann, A. Peters, J. Mlynek, G. Rosenman, M. E. Klein, P. Groß, D.-H. Lee, K.-J. Boller und R. Wallenstein. Die Entwicklung der cw-OPOs wurde maßgeblich durch ein Verbundprojekt des BMBF ermöglicht sowie durch die Förderinstitutionen DFG, Kurt Lion, GIF und AvH.

## Literatur

- [1] S. Kück und G. Huber, Phys. Bl., Oktober 2001, S. 43
- [2] R. G. Smith et al., Appl. Phys. Lett. **12**, 308 (1968); R. L. Byer et al., Appl. Phys. **13**, 109 (1968)
- [3] W. K. Burns et al., IEEE Phot. Techn. Lett. **6**, 252 (1993)
- [4] L. E. Myers et al., J. Opt. Soc. Am. A **12**, 2102 (1995)
- [5] K. Mizuuchi et al., Opt. Lett. **21**, 107 (1996); A. Garashi et al., Opt. Lett. **23**, 1739 (1998); T. J. Edwards et al., Opt. Lett. **23**, 837 (1998); J.-P. Meyn et al., Opt. Lett. **24**, 1154 (1999); T. Hatanaka et al., Opt. Lett. **25**, 651 (2000). M. Harada et al., Appl. Phys. Lett. **69**, 2629 (1996)
- [6] G. A. Turnbull et al., Opt. Lett. **25**, 341 (2000)
- [7] P. E. Powers et al., Opt. Lett. **23**, 159 (1998)
- [8] E. V. Kovalchuk et al., Opt. Lett. **26**, 1430 (2001)
- [9] R. Al-Tahtamouni et al., Appl. Phys. B **66**, 733 (1998)
- [10] U. Strössner et al., J. Opt. Soc. Am. B **19**, 1 (2002)
- [11] A. J. Henderson et al., Opt. Lett. **20**, 1029 (1995)
- [12] M. E. Klein et al., Opt. Lett. **25**, 490 (2000)
- [13] G. Robertson et al., Opt. Lett. **19**, 1735 (1994)
- [14] K. Schneider et al., Opt. Lett. **22**, 1293 (1997)
- [15] I. D. Lindsay et al., Appl. Phys. Lett. **78**, 871 (2001)
- [16] F. Kühnemann et al., Appl. Phys. B **66**, 741 (1998)
- [17] A. Popp et al., Universität Düsseldorf und Universität Bonn (2002)
- [18] M. A. Arbore, M. M. Fejer, Opt. Lett. **22**, 151 (1997)
- [19] G. Schreiber et al., Proc. of Spie **4277**, 144 (2001)
- [20] T. Udem et al., Physik Journal, Februar 2002, S. 39
- [21] M. Tsunekane et al., Appl. Phys. Lett. **72**, 414 (1998)

## Die Autoren

**Stephan Schiller** ist Professor für Experimentalphysik an der Universität Düsseldorf. Im Rahmen seiner Promotion an der Stanford University bei Robert Byer beschäftigte er sich erstmals mit cw-OPOs und schmalbandigen Pumplasern. Während seiner Tätigkeit als Leiter der Arbeitsgruppe „Quantenmetrologie“ am Lehrstuhl von Jürgen Mlynek an der Universität Konstanz wurden cw-OPOs intensiv mit dem Ziel großer spektraler Überdeckung und Frequenzstabilität entwickelt und für die hochauflösende Spektroskopie, Erzeugung von nichtklassischem Licht und Quantenmessungen eingesetzt. Die Arbeiten bildeten die Basis für den weltweit ersten kommerziellen cw-OPO. Derzeit widmet er sich neuen Laser-Experimenten zum hochgenauen Test der speziellen Relativitätstheorie, einem Test der Newtonschen Gravitationskraft und der Speicherung und Kühlung von Molekülen.



**Jan-Peter Meyn** war schon als Student von der Ästhetik der Kristalle fasziniert. Er bekam bei Günter Huber in Hamburg beste Gelegenheit zum Umgang mit harten Oxiden und edlen Metallen im Rahmen seiner Diplom- und Promotionsarbeit, aus selbst gezüchteten Kristallen baute er miniaturisierte Festkörperlaser. Als Postdoc bei Martin Fejer an der Stanford University lernte er die Herstellung von QPM-Kristallen und wurde dann Assistent an der Universität Kaiserslautern. Sein Ziel ist eine kohärente Lichtquelle „en bloc“ aus einem mit allen (technologischen) Mitteln manipulierten Kristall, die den konventionellen komplexen Lasersystemen in nichts nachsteht. Resonatoren aus anisotropen Materialien verfolgen ihn auch außerhalb des Labors in Form von historischen Holzblasinstrumenten.

