

LASERPHYSIK

FREQUENZKONVERSION.TEX KB 20070622

KLAUS BETZLER¹

FACHBEREICH PHYSIK, UNIVERSITÄT OSNABRÜCK

F: FREQUENZKONVERSION

Viele Frequenzbereiche werden von Lasern direkt abgedeckt, dafür wurden vielfältige Systeme mit geeigneten Übergängen entwickelt. Weitere Frequenzbereiche sind dadurch zugänglich, dass man die Laserfrequenz durch physikalische Effekte nachträglich in einen anderen Frequenzbereich konvertiert. Als ein Beispiel wird hier die optische Frequenzverdopplung behandelt.

1 Nichtlineare optische Suszeptibilität

Im Kapitel *Wellenoptik* hatten wir schon kurz die Maxwell-Gleichungen für die elektrischen und magnetischen Felder \mathbf{E} , \mathbf{D} , \mathbf{B} und \mathbf{H} diskutiert:

$$\nabla \mathbf{D} = \rho \quad (1)$$

$$\nabla \mathbf{B} = 0 \quad (2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (3)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (4)$$

mit ρ als Ladungsdichte und \mathbf{j} als Stromdichte.

\mathbf{D} und \mathbf{E} bzw. \mathbf{B} und \mathbf{H} hängen über Materialparameter zusammen

$$\mathbf{D} = \epsilon \epsilon_0 \mathbf{E} \quad \text{und} \quad \mathbf{B} = \mu \mu_0 \mathbf{H} . \quad (5)$$

ϵ_0 und μ_0 sind die Permittivität² und die Permeabilität³ des Vakuums, beide als Konstanten definiert, ϵ und μ die zugehörigen materialspezifischen relativen Größen. ϵ und μ sind im allgemeinen Fall Tensoren zweiter Stufe;

¹KLAUS.BETZLER@UNI-OSNABRUECK.DE

²Auch als Dielektrizitätskonstante oder Influenzkonstante,

³auch als Induktionskonstante bezeichnet.

dies bedeutet unter anderem, dass \mathbf{D} und \mathbf{E} bzw. \mathbf{B} und \mathbf{H} nicht parallel zueinander sind.

Wir beschränken uns hier auf unmagnetische Materialien mit $\mu = 1$ und betrachten die magnetischen Feldgrößen nicht weiter.

Die dielektrische Verschiebung \mathbf{D} kann man aufteilen in einen Vakuumanteil $\epsilon_0 \mathbf{E}$ und einen materialspezifischen Anteil, die Polarisation \mathbf{P}

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad \text{mit} \quad \mathbf{P} = \epsilon_0(\epsilon - 1)\mathbf{E} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} . \quad (6)$$

Ganz allgemein kann die Polarisation am Ort \mathbf{r} und zur Zeit t sowohl vom Feld in der Umgebung \mathbf{r}' wie auch von der Vorgeschichte t' abhängen, für diesen allgemeinen linearen Fall wird \mathbf{P} dann formuliert als Integral

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt' \quad (7)$$

mit $\chi^{(1)}$ als linearer elektrischer Suszeptibilität des Mediums. Im einfachen Fall monochromatischer ebener Wellen wird $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) = E(\mathbf{k}, \omega) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)$, dann liefert eine Fourier-Transformation auf Gleichung 7 angewendet

$$\mathbf{P}(\mathbf{k}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \quad (8)$$

mit

$$\chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{r} + i\omega t) d\mathbf{r} dt . \quad (9)$$

χ hängt im Allgemeinen nur sehr wenig von \mathbf{k} ab, in fast allen praktischen Fällen kann man diese Abhängigkeit vernachlässigen⁴.

1.1 Nichtlineare Polarisation

Der beschriebene lineare Zusammenhang zwischen Feld und Polarisation, d. h. zwischen Anregung und Antwort, Aktion und Reaktion, entspricht unserer praktischen Erfahrung, zumindest im Bereich optischer Frequenzen. Nichtlinearitäten kennt man eher aus anderen Bereichen (Sättigung und Hysterese bei ferroelektrischen oder ferromagnetischen Materialien, Orientierungspolarisation, Verzerrungen bei hohen Intensitäten in der Akustik, mechanische Deformation).

Bei größeren Lichtintensitäten, wie man sie durch Laser erreicht, ist auch im optischen Fall die Beschränkung auf die strikte Linearität nicht mehr

⁴Grundsätzliche Einschränkungen in der \mathbf{r} - und t -Abhängigkeit von χ sind natürlich auch durch Kausalität und Endlichkeit der Lichtgeschwindigkeit gegeben.

ausreichend. Solange \mathbf{E} nicht übermäßig groß wird, kann man \mathbf{P} in guter Näherung als Reihenentwicklung in \mathbf{E} mit wenigen Gliedern schreiben

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = & \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt' \\ & + \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(2)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r}_2, t_2) d\mathbf{r}_1 dt_1 d\mathbf{r}_2 dt_2 \\ & + \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(3)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2; \mathbf{r} - \mathbf{r}_3, t - t_3) \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t_1) \\ & \quad \times \mathbf{E}(\mathbf{r}_2, t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}_3, t_3) d\mathbf{r}_1 dt_1 d\mathbf{r}_2 dt_2 d\mathbf{r}_3 dt_3 \\ & + \dots \end{aligned} \quad (10)$$

Darin sind die $\chi^{(n)}$ die nichtlinearen Suszeptibilitäten n -ter Ordnung. Analog zum linearen Fall kann man Fourier-transformieren. Allerdings sollte für \mathbf{E} nun eine Summe aus mehreren ebenen Wellen angenommen werden

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_i \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) . \quad (11)$$

Für die Polarisation ergibt sich dann

$$\mathbf{P}(\mathbf{k}, \omega) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) + \dots \quad (12)$$

mit

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) , \\ \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) &= \epsilon_0 \chi^{(2)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j, \omega = \omega_i + \omega_j) \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) , \\ \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) &= \epsilon_0 \chi^{(3)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j + \mathbf{k}_l, \omega = \omega_i + \omega_j + \omega_l) \\ & \quad \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \omega_l) . \end{aligned} \quad (13)$$

Die $\chi^{(n)}(\mathbf{k}, \omega)$ können ähnlich wie im linearen Fall als Integrale über $\chi^{(n)}(\mathbf{r}, t)$ berechnet werden. Wieder wird die \mathbf{k} -Abhängigkeit im Allgemeinen vernachlässigt.

$\chi^{(n)}$ ist ein Tensor der Stufe $n + 1$.

Mit der Einsteinschen Summenkonvention kann man die Polarisation auch in Komponentenschreibweise formulieren, z. B. für $\mathbf{P}^{(2)}$

$$P_k^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi_{kmn}^{(2)}(\omega = \omega_i + \omega_j) E_m(\omega_i) E_n(\omega_j) , \quad k, m, n = 1 \dots 3 . \quad (14)$$

1.2 Der anharmonische Oszillator als qualitatives Modell

Für die Polarisation im optischen Bereich sind im Wesentlichen die Elektronen im Material verantwortlich, Dipole und Ionen können den hohen Frequenzen nicht folgen. Die klassische Beschreibung der elektronischen Polarisierbarkeit geht von einem harmonischen Potenzial aus, in dem die relevanten Elektronen wie ein harmonischer Oszillator mit der Eigenfrequenz ω_0 auf die Anregung durch ein äußeres elektrisches Feld reagieren.

Zur anschaulichen *klassischen* Beschreibung der nichtlinearen Polarisati-on kann man das Modell des harmonischen Oszillators durch anharmonische Anteile im Potenzial erweitern. Die anharmonischen Anteile können mit gerader oder ungerader Symmetrie, das heißt als gerade oder ungerade höhere Potenzen in der Potenzialfunktion berücksichtigt werden (Abbildung 1).

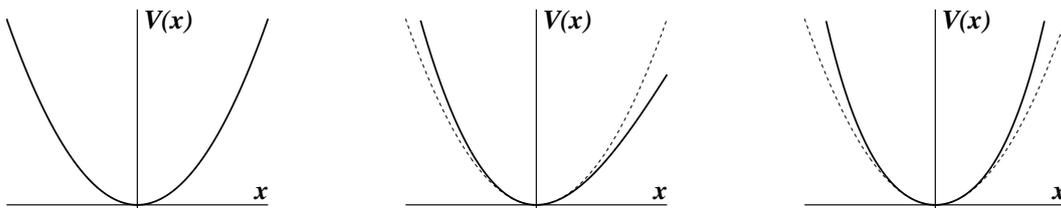


Abbildung 1: Potenzialformen für den anharmonischen Oszillator. Links: harmonisches Potenzial $V_h(x) = \frac{a}{2}x^2$, Mitte: anharmonisches Potenzial mit ungerader Symmetrie $V_o(x) = V_h(x) + \frac{b}{3}x^3$, rechts: anharmonisches Potenzial mit gerader Symmetrie $V_e(x) = V_h(x) + \frac{c}{4}x^4$. Gestrichelte Kurve: harmonischer Anteil.

Die (eindimensionale) Bewegungsgleichung für das Elektron im anharmonischen Potenzial unter dem Einfluss einer treibenden Kraft F wird

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + ax + bx^2 + cx^3 = F . \quad (15)$$

Im harmonischen Fall wäre $b = c = 0$, für ein anharmonisches Potenzial mit ungerader Symmetrie $b \neq 0$, für gerade Symmetrie $c \neq 0$. Sowohl b wie auch c sollen so klein sein, dass sie als kleine Störungen behandelt werden können.

Als antreibende Kraft betrachten wir ein elektrisches Feld mit Fourierkomponenten bei den Frequenzen $\pm\omega_1$ and $\pm\omega_2$

$$F = \frac{q}{m} \left[E_1 \left(e^{-i\omega_1 t} + e^{i\omega_1 t} \right) + E_2 \left(e^{-i\omega_2 t} + e^{i\omega_2 t} \right) \right] . \quad (16)$$

q und m sind Ladung und Masse des Elektrons.

Ohne Berücksichtigung der anharmonischen Störungen b und c erhält man die bekannte Lösung $x^{(1)}$ für x

$$x^{(1)} = \sum_i x^{(1)}(\omega_i), \quad x^{(1)}(\omega_i) = \frac{(q/m)E_i}{\omega_0^2 - \omega_i^2 - i\omega_i\gamma} e^{-i\omega_i t} \quad (17)$$

mit $\omega_0^2 = a$.

Mit der Oszillatordichte N (Anzahl relevanter Oszillatoren pro Volumeneinheit) wird die induzierte dielektrische Polarisation

$$\mathbf{P} = Nqx. \quad (18)$$

Lösungen höherer Ordnung erhält man durch Hinzunahme der Störterme, in denen die Lösungen des ungestörten Problems eingesetzt werden, beispielsweise $bx^{(1)2}$ für bx^2 .

Als erstes sehen wir uns die Lösung zweiter Ordnung an, wir nehmen an, dass nur $b \neq 0$ ist, dagegen $c = 0$. Wir ersetzen F durch die Störung $-bx^{(1)2}$ und erhalten so

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + ax = -bx^{(1)2}. \quad (19)$$

$-bx^{(1)2}$ enthält die Frequenzen $2\omega_i, \omega_i + \omega_j, \omega_i - \omega_j, \omega_i - \omega_i = 0$. Somit werden Frequenzverdopplung, Summenfrequenz- und Differenzfrequenzmischung und optische Gleichrichtung durch diesen Ansatz beschrieben. Eine typische Lösung (hier für die Frequenzverdopplung) hat die Form

$$x^{(2)}(2\omega_i) = \frac{-b(q/m)^2 E_i^2}{(\omega_0^2 - \omega_i^2 - i\omega_i\gamma)^2 (\omega_0^2 - 4\omega_i^2 - i2\omega_i\gamma)} e^{-i2\omega_i t}. \quad (20)$$

Als zweiten Fall nehmen wir Anharmonizitäten mit gerader Symmetrie an, $b = 0, c \neq 0$. Der Störterm ist nun $-cx^{(1)3}$

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \gamma \frac{dx}{dt} + ax = -cx^{(1)3}. \quad (21)$$

Offensichtlich werden nun nur Terme mit einer ungeraden Anzahl von ω s generiert, z. B. $3\omega_i, 2\omega_i - \omega_i = \omega_i, \omega_i + \omega_j + \omega_k, \omega_i + \omega_j - \omega_k$. Auf diese Weise werden Frequenzverdreifung, nichtlineare Brechung, nichtlineare Absorption und ähnliche Effekte beschrieben.

Anharmonizitäten mit gerader Symmetrie treten grundsätzlich in allen Materialien auf, auch in isotropen Medien wie Flüssigkeiten und Gasen, Anharmonizitäten ungerader Symmetrie dagegen nur in Materialien ohne Inversionszentrum. Dies folgt einem globalen Prinzip: Die Materialeigenschaften müssen mit der Symmetrie kompatibel sein.

Aus den Gleichungen 17, 20, and 18 kann man grob das Verhältnis zwischen linearer und nichtlinearer Polarisation und damit das Verhältnis zwischen linearer und nichtlinearer Suszeptibilität abschätzen. Unter der Annahme, dass man weit weg von der Resonanzfrequenz ist, d. h. für $\omega_0 \gg \omega_i$, erhält man für das Verhältnis der Polarisationen

$$\left| \frac{P^{(2)}}{P^{(1)}} \right| \approx \left| \frac{qbE}{m\omega_0^4} \right|. \quad (22)$$

Nimmt man weiter an, dass im Falle eines starken Feldes für ein gebundenes Elektron die harmonische und die anharmonische Kraft, $m\omega_0^2 x$ and mbx^2 , von ähnlicher Größenordnung sind und beide in der Größenordnung der Bindungsenergie $|qE_{at}|$ (das gilt nur für große Anharmonizitäten b), so wird

$$|qE_{at}| \approx m\omega_0^2 x \approx mbx^2 \quad (23)$$

oder, wenn man x ersetzt,

$$|qE_{at}| \approx \frac{m\omega_0^4}{b}. \quad (24)$$

Gleichung 22 wird dann

$$P^{(2)}/P^{(1)} \approx E/E_{at} \quad (25)$$

und für die Suszeptibilitäten gilt

$$\chi^{(2)}/\chi^{(1)} \approx 1/E_{at}. \quad (26)$$

Man kann dies für höhere Ordnungen verallgemeinern

$$P^{(n+1)}/P^{(n)} \approx E/E_{at} \quad \text{and} \quad \chi^{(n+1)}/\chi^{(n)} \approx 1/E_{at}. \quad (27)$$

Die inneratomaren Felder E_{at} sind größenordnungsmäßig⁵ 3×10^{10} V/m; mit $\chi^{(1)} \approx 3$ wird die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung etwa 10^{-10} m/V. Typische reale Werte für nichtlineare Suszeptibilitäten zweiter Ordnung finden sie beispielsweise in Tabelle 7.1 des zitierten Buchs. Sie liegen zwischen etwa 10^{-12} m/V für Materialien mit kleiner Anharmonizität (Quarz: $\chi_{xxx}^{(2)} = 0.8 \times 10^{-12}$ m/V) und 10^{-10} m/V für typische nichtlinear optische Materialien (LiNbO₃: $\chi_{zzz}^{(2)} = 0.8 \times 10^{-10}$ m/V).

⁵Y. R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, Inc. (1984). ISBN 0-471-88998-9.

2 Frequenzverdopplung

Der geschichtlich erste und heute wichtigste der nichtlinear-optischen Prozesse zur Erzeugung neuer Laserwellenlängen ist die Frequenzverdopplung. Schon kurz nach der Erfindung des Rubin-Lasers⁶ wurden die ersten Experimente dazu von Franken und Mitarbeitern⁷ durchgeführt. Da man für den grünen Bereich derzeit noch keine guten Halbleiterlaser herstellen kann, werden dort überwiegend frequenzverdoppelte Neodym-Laser (Nd:YAG) verwendet. So beispielsweise bei allen grünen Laserpointern.

2.1 Tensoreigenschaften

Im einfachen eindimensionalen Bild des Abschnitts 1.2 hatten wir schon gesehen, dass für die Frequenzverdopplung ungerade Potenzen im Elektronenpotenzial benötigt werden. Das Potenzial darf mithin nicht spiegelsymmetrisch sein. Auf drei Dimensionen erweitert bedeutet das, dass Frequenzverdopplung nur in Materialien möglich ist, die nicht inversionssymmetrisch sind. Die Punktgruppe darf nicht die Inversion als Symmetrieelement enthalten.

Die für die Frequenzverdopplung zuständige nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(2)}$ ist ein Materialtensor dritter Stufe. Somit enthält er 27 Tensorelemente χ_{ijk} , die jeweils die Feldkomponenten E_j und E_k mit der Polarisationskomponente P_i verbinden. Für reale Materialien reduziert sich die Anzahl der unabhängigen Tensorelemente meist deutlich.

Symmetrieaspekte: Materialtensoren müssen mit der Symmetrie des Materials kompatibel sein. Ausführliches zur formalen Behandlung finden Sie in Skripten und Büchern zur Gruppentheorie. Oft kann man aber schon mit einer einfachen anschaulichen Betrachtung zurecht kommen. Die Tensorelemente transformieren wie Produkte aus den entsprechenden Koordinaten, das Tensorelement χ_{133} mithin wie das Produkt xzz . Gibt es nun eine Symmetrieoperation, die x in $-x$ überführt (Spiegelebene, Drehung), so wird das Produkt xzz zu $-xzz$, mithin χ_{133} zu $-\chi_{133}$. Da sich der Wert von Tensorelementen bei Symmetrieoperationen nicht ändert, ist $\chi_{133} = -\chi_{133}$. Somit gleich Null. Entsprechendes gilt für alle Tensorelemente, bei denen die Indizes eine ungerade Anzahl von Einsen enthalten. Durch Anwendung ausgesuchter Symmetrieoperationen der Punktgruppe lässt sich daher der Suszeptibilitätstensor rasch vereinfachen⁸.

⁶T. H. Maiman: *Stimulated Optical Radiation in Ruby*. Nature 187:493 (1960).

⁷P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich: *Generation of Optical Harmonics*. Phys. Rev. Letters 7:118 (1961).

⁸Die Signatur der Tensoren finden Sie auch in einschlägigen Büchern wie z. B. J. F. Nye: *Physical Properties of Crystals*, Oxford University Press.

Indexpermutation: Für die Polarisation darf es keine Rolle spielen, wenn man die beiden Feldvektoren vertauscht. Mithin muss gelten: $\chi_{ijk} = \chi_{ikj}$. Damit reduziert sich die Zahl der voneinander unabhängigen Tensorelemente von 27 auf 18.

Indexkontraktion: Man nutzt diese Verringerung für eine kontrahierte Schreibweise, bei der man den zweiten und dritten Index wie folgt zusammenfasst:

$$11 \rightarrow 1, \quad 22 \rightarrow 2, \quad 33 \rightarrow 3, \quad 23, 32 \rightarrow 4, \quad 31, 13 \rightarrow 5, \quad 12, 21 \rightarrow 6. \quad (28)$$

Damit kann der Suszeptibilitätstensor für die Frequenzverdopplung als zweidimensionale Matrix geschrieben werden (zur Unterscheidung wird statt χ üblicherweise d zur Bezeichnung der Tensorelemente verwendet):

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_z E_x \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}. \quad (29)$$

2.2 Das Problem der Phasenanpassung

Die von der eingestrahlten Welle $\mathbf{E}^{(1)}$ lokal hervorgerufenen nichtlineare Polarisation $\mathbf{P}^{(2)}$ (Gleichung 10) wirken als Inhomogenitäten in der Wellengleichung für \mathbf{E} . Lokal werden dadurch Wellen $\mathbf{E}^{(2)}$ erzeugt. Die Wellen $\mathbf{E}^{(1)}$ und $\mathbf{E}^{(2)}$ bewegen sich mit den für sie jeweils charakteristischen Geschwindigkeiten durch das nichtlineare Medium. Nur wenn diese Geschwindigkeiten gleich sind, überlagern sich die an unterschiedlichen Orten erzeugten Wellen $\mathbf{E}^{(2)}$ phasenrichtig und man erzielt eine effiziente Konversion (*Phasenanpassung*). Bei unterschiedlichen Geschwindigkeiten ist dies dagegen nicht der Fall. Abbildung 2 verdeutlicht die beiden Fälle.

Die Lichtgeschwindigkeit in Materialien wird durch deren Brechungsindex bestimmt. Und da der Brechungsindex in allen Materialien frequenzabhängig ist (Dispersion), ist der übliche Fall der in Abbildung 2 rechts skizzierte. Die frequenzverdoppelten Wellen bewegen sich mit geringerer Geschwindigkeit als die Grundwelle, man erreicht keine Phasenanpassung.

Zur Berechnung der frequenzverdoppelten Gesamtintensität integrieren wir über die an unterschiedlichen Orten generierten Teilwellen unter Berücksichtigung der Ausbreitungsgeschwindigkeiten. Zur Beschreibung lassen wir die Zeitanteile ($\exp(i\omega t)$) weg und fassen alle Vorfaktoren zu einer Konstanten zusammen.

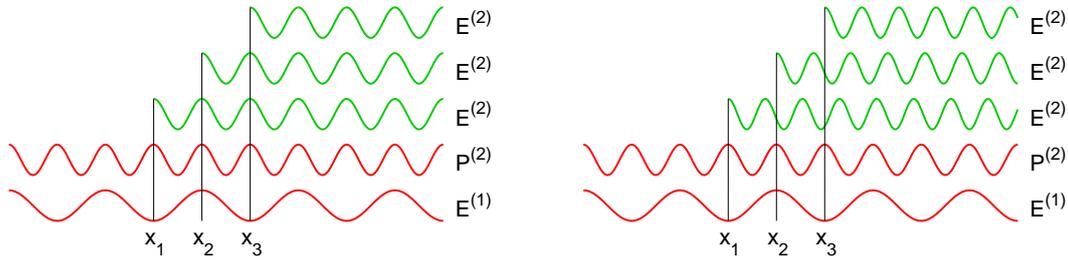


Abbildung 2: Fundamentalwelle $E^{(1)}$, induzierte Polarisation $P^{(2)}$ und frequenzverdoppelte Wellen $E^{(2)}$, die an den Positionen x_1 , x_2 und x_3 in einem nichtlinearen Materials erzeugt werden. Links: Die frequenzverdoppelten Wellen bewegen sich mit der gleichen Geschwindigkeit wie die Grundwelle, sie überlagern sich phasenrichtig (man hat *Phasenanpassung*). Rechts: Unterschiedliche Geschwindigkeiten, der Normalfall, führen zu Phasenunterschieden zwischen der verschiedenen $E^{(2)}$.

Für $E^{(1)}(x)$ und $P^{(2)}(x)$ können wir schreiben

$$E^{(1)}(x) = E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_1 x}, \quad (30)$$

$$P^{(2)}(x) = \chi E^{(1)}(x)E^{(1)}(x) = \chi E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-i2k_1 x}. \quad (31)$$

Nehmen wir $P^{(2)}$ als antreibende Kraft in der Wellengleichung für $E^{(2)}$, so erhalten wir

$$E^{(2)}(x) = K' \cdot P^{(2)}(x) = K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-i2k_1 x} \quad (32)$$

in K sind alle notwendigen Konstanten wie die nichtlineare Suszeptibilität oder die Brechungsindizes zusammengefasst.

$E^{(2)}$ läuft nun durch das Material mit einer Geschwindigkeit, die für $\omega_2 = 2\omega_1$ typisch ist, und einem Wellenvektor k_2 . Für eine Position x' ergibt sich damit für diese frequenzverdoppelte Teilwelle

$$E^{(2)}(x') = E^{(2)}(x) \cdot e^{-ik_2(x'-x)} = K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_2 x'} e^{-i(2k_1 - k_2)x}. \quad (33)$$

Integration über x von $x = 0$ bis $x = L$ liefert

$$\begin{aligned} E_{\text{total}}^{(2)}(x') &= K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_2 x'} \int_0^L e^{-i(2k_1 - k_2)x} dx \\ &= K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_2 x'} \frac{1}{i\Delta k} \left[e^{i\Delta k L} - 1 \right] \\ &= K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_2 x'} e^{i\frac{\Delta k}{2}L} \frac{1}{i\Delta k} \left[e^{i\frac{\Delta k}{2}L} - e^{-i\frac{\Delta k}{2}L} \right] \\ &= K \cdot E^{(1)}(0)E^{(1)}(0) \cdot e^{-ik_2 x'} e^{i\frac{\Delta k}{2}L} \cdot \frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k/2} \end{aligned} \quad (34)$$

mit

$$\Delta k = k_2 - 2k_1 = \frac{2\pi}{\lambda_2}n(\omega_2) - 2\frac{2\pi}{\lambda_1}n(\omega_1) = \frac{4\pi}{\lambda_1}(n(\omega_2) - n(\omega_1)) . \quad (35)$$

λ_1 und $\lambda_2 = \lambda_1/2$ sind die Vakuumwellenlängen für die Grundwelle und die frequenzverdoppelte.

Oft wird eine charakteristische Länge, die so genannte *Kohärenzlänge* L_c , definiert. Dabei ist gewisse Vorsicht geboten, da zwei verschiedene Definitionen verwendet werden, die sich um den Faktor 2 unterscheiden. Zum einen die Weglänge, bei der der Sinus sein Maximum erreicht hat, zum andern die, bei der er sein Vorzeichen wechselt. So kann die Kohärenzlänge definiert sein

$$\text{als } L_c = \frac{\pi}{\Delta k} \quad \text{oder als } L_c = \frac{2\pi}{\Delta k} . \quad (36)$$

Die Intensität des frequenzverdoppelten Lichts hängt hauptsächlich von der Phasenfehlpassung Δk ab, daneben natürlich vom Quadrat der Intensität der Grundwelle und von den relevanten Tensorelementen des Tensors der nichtlinearen Suszeptibilität, das heißt vom Material. Als Tensorelement wird oft ein so genanntes *effektives* Tensorelement d_{eff} verwendet, in dem die relevanten Tensorelemente und die geometrische Anordnung (Einstrahlwinkel, Polarisation) des Verdopplermaterials zusammengefasst sind

$$I^{(2)} = C \cdot d_{\text{eff}}^2 \cdot I^{(1)2} \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k/2)^2} . \quad (37)$$

Der Einfachheit halber sind alle Vorfaktoren in C zusammengefasst; zur quantitativen Berechnung von $I^{(2)}$ muss man sich damit etwas eingehender beschäftigen (vgl. Lehrbücher zur Nichtlinearen Optik).

Aufgrund der Dispersion des Brechungsindexes ist Δk in Gleichung 37 generell von Null verschieden. Dadurch oszilliert die Intensität der generierten frequenzverdoppelten Welle sinusquadratförmig. Falls man es schafft, Δk gegen Null gehen zu lassen, ist der folgende Grenzwert zu betrachten

$$\lim_{\Delta k \rightarrow 0} \frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k/2} = L . \quad (38)$$

In diesem idealen Fall nimmt die Intensität der frequenzverdoppelten Welle quadratisch mit L zu – zumindest solange $I^{(1)}$ konstant bleibt (*undepleted fundamental wave approximation* oder *undepleted pump approximation*).

Die Ortsabhängigkeit der frequenzverdoppelten Intensität für einige Werte von Δk ist in Abbildung 3 skizziert.

Der Normalfall ist $\Delta k \neq 0$, mithin oszillierende und geringe Intensitäten der frequenzverdoppelten Welle. Große Intensitäten erreicht man nur, wenn man den Fall $\Delta k = 0$ erreicht, d. h. wenn sich Grundwelle und frequenzverdoppelte Welle mit gleicher Geschwindigkeit durch das Material bewegen.

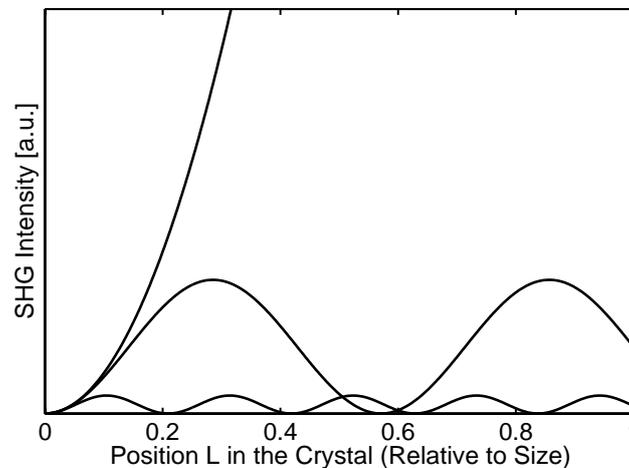


Abbildung 3: Ortsabhängigkeit der frequenzverdoppelten Intensität für verschiedene Werte von Δk . Quadratischer Intensitätsverlauf für $\Delta k = 0$, oszillierende Intensitäten für endliche Δk .

Eine weitere interessante Möglichkeit ergibt sich dann, wenn man im Intensitätsmaximum einen Phasensprung erreicht, beispielsweise durch Vorzeichenumkehr des effektiven Tensorelements.

2.3 Doppelbrechung

Brechungsindizes sind frequenzabhängig (*Dispersion*), damit ist auch die Lichtgeschwindigkeit in Materie frequenzabhängig. Der Brechungsindex ist als Materialeigenschaft mit dem Tensor der linearen Suszeptibilität bzw. der Dielektrizitätskonstanten verbunden. Dies ist ein Tensor zweiter Stufe, der mit der Punktsymmetrie des Materials kompatibel sein muss. Diese Tensoren zweiter Stufe lassen sich so transformieren, dass nur die drei Diagonalelemente ungleich null sind. Diese drei Diagonalelemente bestimmen dann die Hauptbrechungsindizes des Materials für die zugehörigen Polarisationsrichtungen des Feldes.

In isotropen Materialien (Gläser) und in Kristallen mit kubischer Symmetrie ist dieser Tensor zweiter Stufe ebenfalls isotrop, die drei Diagonalelemente sind gleich. Das heißt, dass der Brechungsindex unabhängig von der Ausbreitungsrichtung und der Polarisation des Lichts ist. Niedrigere Kristallsymmetrien lassen zwei oder sogar drei unterschiedliche Diagonalelemente zu, entsprechend zwei oder drei Hauptwerte für den Brechungsindex. Tetragonale, hexagonale und trigonale Symmetrien erzwingen zwei gleiche Diagonalelemente, das dritte ist davon unabhängig, orthorhombische, monokline und trikline Symmetrien lassen drei unterschiedliche Dia-

gonalelemente zu.

Die unterschiedlichen Hauptbrechungsindizes wirken sich so aus, dass man für jede Ausbreitungsrichtung im Kristall zwei ausgezeichnete Polarisationsrichtungen hat, eine mit dem für diese Ausbreitungsrichtung minimalen und eine mit dem für diese Richtung maximalen Index. Beliebiger polarisiertes Licht spaltet in diese beiden Polarisierungen auf. Die Materialien sind *doppelbrechend*. Die Flächen, die diese beiden Brechungsindizes beschreiben, sind in Abbildung 4 skizziert, links für den Fall von zwei Hauptbrechungsindizes, rechts für drei. Zeichnet man den Vektor der Ausbreitungsrichtung mit ein, ergeben sich generell zwei Schnittpunkte mit den beiden Indexflächen, die beiden für diese Richtung relevanten unterschiedlichen Brechungsindizes.

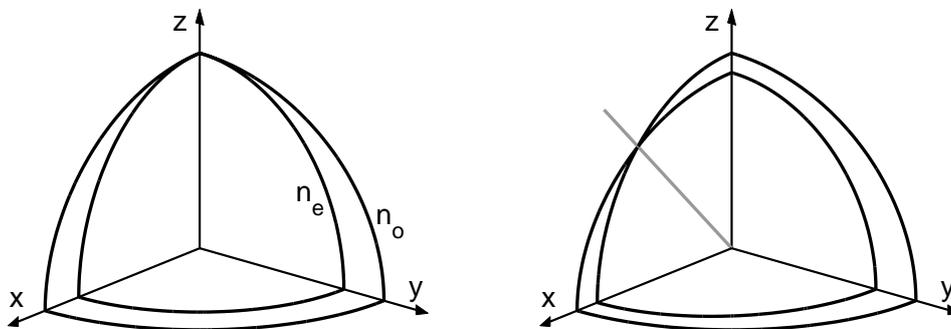


Abbildung 4: Brechungsindexflächen in einem optisch einachsigen (links) und in einem optisch zweiachsigen Kristall (rechts). Die beiden Flächen repräsentieren die Brechungsindizes für die jeweiligen Ausbreitungsrichtungen.

Unterschiedlich sind sie für *fast* jede Ausbreitungsrichtung. Ausnahme ist im linken Bild die Richtung entlang der z-Achse, im rechten entlang der grau gezeichneten Linie und entlang der dazu spiegelsymmetrischen. Für diese Richtungen ist der Brechungsindex polarisationsunabhängig, keine Polarisation ist ausgezeichnet, in diesen Richtungen hat man mithin keine Doppelbrechung. Man bezeichnet diese Richtungen als *optische Achsen* und die entsprechenden Kristalle als optisch *einachsig* bzw. *zweiachsig* (*uniaxial* bzw. *biaxial*).

Im optisch **einachsigen** Fall (linkes Teilbild von Abbildung 4) ist einer der beiden sich ergebenden Brechungsindizes unabhängig vom Einstrahlwinkel, man bezeichnet diesen als *ordentlichen*. Die zugehörige Polarisationsrichtung liegt senkrecht zur z-Achse. Der andere, *außerordentliche*, variiert je nach Einstrahlwinkel zwischen dem ordentlichen und seinem Extremwert. Die dazu gehörige Polarisationsrichtung liegt senkrecht zur ordentlichen. Ist der außerordentliche Brechungsindex kleiner als der ordentliche,

spricht man von *negativer*, ansonsten von *positiver* Doppelbrechung.

Bei **zweiachsigen** Materialien ist alles etwas komplizierter, es gibt keine ordentliche Polarisationsrichtung mehr, bei niedrigen Symmetrien (monoklin und triklin) werden die Hauptrichtungen darüber hinaus frequenzabhängig, da sie nicht durch Symmetrieelemente *festgehalten* werden.

Die Doppelbrechung kann man nun ausnutzen, um für die beiden relevanten Frequenzen bei der Frequenzverdopplung gleiche Brechungsindizes, das heißt gleiche Ausbreitungsgeschwindigkeiten zu erreichen. Geometrisch gesehen muss man dazu die Schnittlinien der Brechungsindexflächen für die Grundfrequenz und die verdoppelte Frequenz finden. In Abbildung 5 ist dies für den Fall eines optisch einachsigen Materials mit negativer Doppelbrechung skizziert, der Übersichtlichkeit halber sind nur die Flächen für den größeren Brechungsindex bei der Grundfrequenz, $n_o^{(1)}$, und für den kleineren bei der verdoppelten, $n_e^{(2)}$, gezeichnet. Die beiden zugehörigen Polarisationsrichtungen stehen jeweils senkrecht aufeinander. Die grau eingezeichnete Schnittkurve definiert den *Phasenanpassungswinkel* Θ , unter dem man einstrahlen muss, um *phasenangepasste* Frequenzverdopplung zu erreichen.

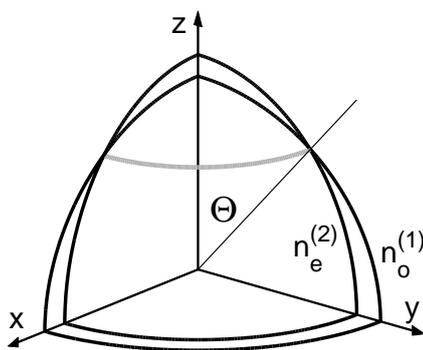


Abbildung 5: Brechungsindexflächen für den *ordentlichen* Brechungsindex bei der Grundfrequenz, $n_o^{(1)}$, und den *außerordentlichen* bei der verdoppelten, $n_e^{(2)}$, in einem einachsigen Material mit *negativer* Doppelbrechung ($n_e < n_o$). Die graue Schnittkurve (bei einachsigen Materialien ein Kreis) definiert den *Phasenanpassungswinkel* Θ .

Die Situation der Abbildung 5 ist der erwünschte Idealfall, Phasenanpassung ist möglich. Dieser Fall wird jedoch nur erreicht, wenn die Doppelbrechung so groß ist, dass sich die beiden Indexflächen tatsächlich schneiden. Ob dies möglich ist, kann aus dem Dispersionsverlauf der Brechungsindizes abgelesen werden. Abbildung 6 zeigt zwei Beispiele.

2.4 Materialien

Die ersten Experimente zur Frequenzverdopplung wurden schon kurz nach der Erfindung des Rubinlasers mit Quarz als Verdopplerkristall gemacht⁹.

⁹P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich. *Generation of Optical Harmonics*. Phys. Rev. Lett. 7:118 (1961).

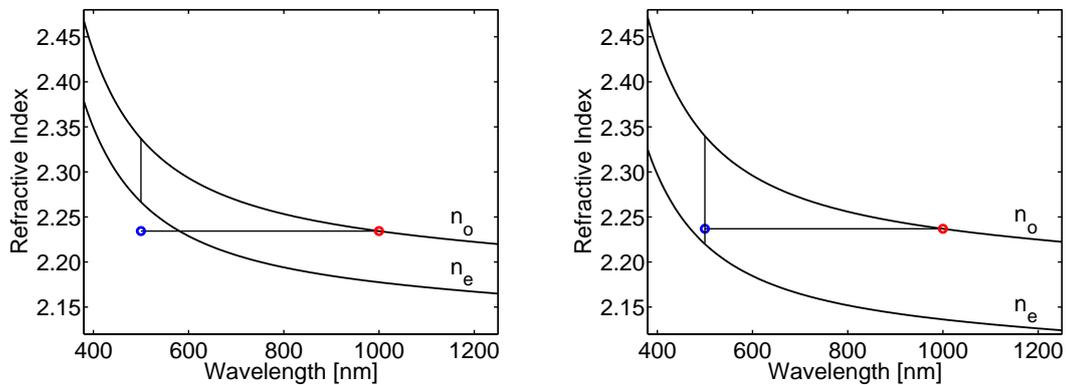


Abbildung 6: Dispersion der Brechungsindizes in uniaxialen Materialien. Links: kleine Doppelbrechung, rechts: große Doppelbrechung. Bei negativer Doppelbrechung ist der Brechungsindex für die Grundwelle fest ($n_o^{(1)}$), der Index für die frequenzverdoppelte Welle ($n_e^{(2)}$) kann durch den Einstrahlwinkel entlang der eingezeichneten senkrechten Linien variiert werden. Links ohne, rechts mit der Möglichkeit zur Phasenanpassung.

Dank der hohen Laserleistung war der Effekt trotz der geringen nichtlinearen Suszeptibilität von Quarz nachweisbar. Seither wurde eine Vielzahl von Materialien auf ihre Eignung im Bereich der Frequenzkonversion getestet. Tatsächlich verwendet in technischen Anwendungen werden nur ganz wenige. Unter anderem sind dies Kristalle aus der KDP-Gruppe wie KDP (Kalium-Di-Hydrogen-Phosphat, KH_2PO_4) und ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$), die entsprechenden Arsenate sowie deuterierte Verbindungen wie KD_2PO_4 , Borate wie Lithiumborat (LiB_3O_5), Cäsium-Lithium-Borat ($\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$), Beta-Barium-Borat ($\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$), Niobate wie Kaliumniobat (KNbO_3) und Lithiumniobat (LiNbO_3), Phosphate wie KTP (Kalium-Titanyl-Phosphat, KTiOPO_4).

Durch die Entwicklung leistungsstarker Laser mit großem Strahlquerschnitt (einige Quadratdezimeter) für die Laserfusion wurde es notwendig, sehr große Verdopplerkristalle herzustellen, um die Laserfrequenz vom Infraroten (1064 nm, Nd:YAG) ins Ultraviolette zu konvertieren. Nach der Entwicklung eines *Rapid-Growth*-Verfahrens für KDP¹⁰ ist es heute möglich, die benötigten großen Kristalle in sinnvoller Zeit herzustellen. Abbildung 7 zeigt einen dieser Kristalle.

¹⁰N. P. Zaitseva, J. J. de Yoreo, M. R. Dehaven, R. L. Vital, L. M. Carman, H. R. Spears: *Rapid growth of large-scale (40-55 cm) KDP crystals*. Proc. SPIE 3047:404-414 (1997)



Abbildung 7: Nach einem Spezialverfahren hergestellter KDP-Kristall mit der Kristallzieherin Natalia Zaitseva als Größenvergleich.

2.5 Quasiphasenanpassung

Abbildung 3 legt ein interessantes weiteres Verfahren zur Intensitätsverbesserung nahe. Schafft man es, jeweils im Maximum des Sinusquadratverlaufs die Phase der induzierten nichtlinearen Polarisation so zu verschieben, dass man statt einer destruktiven Wechselwirkung eine konstruktive erhält, verstärkt sich die frequenzverdoppelte Intensität auch ohne echte Phasenanpassung. Die Idee für dieses als *Quasiphasenanpassung* bezeichnete Verfahren wurde schon in einer der ersten theoretischen Veröffentlichungen zur nichtlinearen Optik von Bloembergen geäußert¹¹. Man wechselt einfach das Vorzeichen des relevanten Tensorelements in periodischer Folge. Einfach? Das lässt sich erst seit einigen Jahren durch die periodische Polung von geeigneten ferroelektrischen Kristallen (Lithiumniobat und Lithiumtantalat) mit (noch) unzureichender Qualität erreichen. Abbildung 8 zeigt das Prinzip. Die erforderlichen Domänenengrößen entsprechen der Kohärenzlänge, liegen also im Mikrometerbereich. Das ist der Grund für Probleme bei der Herstellung und bisher nicht ausreichende Stabilität, so dass die breite technische Anwendung allenfalls in der Zukunft liegt.

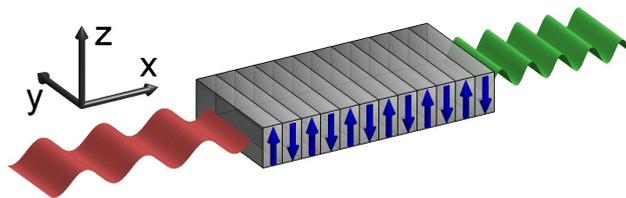


Abbildung 8: Periodisch gepolte Domänenstruktur zur Frequenzverdopplung in Materialien wie Lithiumniobat und Lithiumtantalat.

Der Intensitätsverlauf für Quasiphasenanpassung im Vergleich zum pha-

¹¹J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan: *Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric*. Phys. Rev. 127, 1918–1939 (1962).

senangepassten und nicht phasengepassten Fall ist in Abbildung 9 dargestellt.

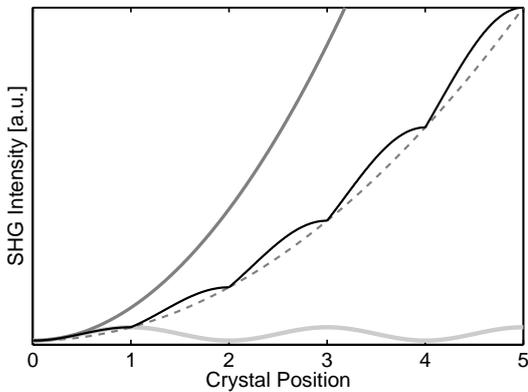


Abbildung 9: Intensitätsverlauf für phasengepasste (dunkelgraue Parabel), quasiphasenangepasste (schwarze Kurve), und nicht phasengepasste Frequenzverdopplung (hellgrau) unter der Annahme identischer geometrischer Anordnung.

Quasiphasenanpassung liefert zwar eine deutlich geringere Intensität als phasengepasste Verdopplung, jedoch ermöglicht es diese Technik, auch Tensorelemente zu nutzen, für die keine normale Phasenanpassung möglich ist. In *realen* Kristallen sind diese Tensorelemente oft größer als diejenigen, die zur phasengepassten Verdopplung genutzt werden können.

Ein interessantes Beispiel ist Lithiumniobat: das zur phasengepassten Verdopplung nutzbare Tensorelement ist d_{31} mit¹² 4.3 pm/V. Das größte Tensorelement ist jedoch d_{33} mit einem Wert von¹² 27 pm/V. Abbildung 10 zeigt den Vergleich zwischen Phasenanpassung mit d_{31} und Quasiphasenanpassung mit d_{33} .

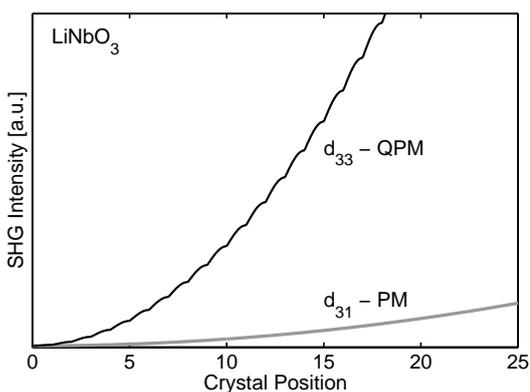


Abbildung 10: Lithiumniobat: Vergleich der Intensitäten zwischen phasengepasster Verdopplung mit d_{31} und quasiphasenangepasster mit d_{33} . Für die Rechnung wurde von idealen Geometrien ausgegangen: Phasenanpassungswinkel 90° bei der phasengepassten Verdopplung, ideale periodische Domänenstruktur bei der Quasiphasenanpassung.

¹²David A. Roberts: *Simplified Characterization of Uniaxial and Biaxial Nonlinear Optical Crystals: A Plea for Standardization of Nomenclature and Conventions*. IEEE J. Quantum Electron. QE-28, 2057 (1992).