

3 NICHTLINEARE EFFEKTE

Die folgende Diskussion ist angelehnt an [12]. Viele physikalischen Prozesse unserer Welt erscheinen auf den ersten Blick linear. Gerade bei kleinen Störungen eines Systems sind die Abweichungen von der vollständigen Physik meist marginal und ein linearer Ansatz führt zu einfachen, analytischen Lösungen, die gute Ergebnisse liefern. Als Beispiel sei die Gravitation genannt. Für schlichte Fallexperimente aus einer Höhe h in der Nähe der Erdoberfläche reicht der Ansatz $E_{\text{Pot}} = mgh$ wobei g eine Näherung des Gravitationsgesetzes $E_{\text{Pot}} = m_1 m_2 G / r$ darstellt. Und selbst dieses Gesetz bricht unter modernen Betrachtungen wie der Relativitätstheorie zusammen. Andere Beispiele sind das Hooksche Gesetz für die Rückstellkraft einer Feder sowie das Verhalten von Licht in dispersiven Medien.

In vielen Anwendungen moderner Physik ist es günstig nichtlineare Effekte zu minimieren, weil sie eine gewünschte Ordnung stören. Allerdings bietet Nichtlinearität in manchen Fällen eine Vielzahl neuer Möglichkeiten, wie in diesem Kapitel gezeigt werden soll. Es wird auf einige nichtlineare Effekte wie den quadratisch vom Feld abhängigen Kerreffekt eingegangen, deren Beschreibung notwenig ist, um Effekte wie Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation sowie Gruppengeschwindigkeitsdispersion eines Strahls zu erklären. Selbstfokussierung kann ausgenutzt werden, um in einem Laserresonator die Moden gleicher Phase zu favorisieren und somit eine Modenkopplung zu erreichen, indem höhere Intensitäten selbstfokussiert werden und so eine stärkere Verstärkung erfahren (Kerrlinsen Modenkopplung) [13, 14].

Am Ende dieses Kapitels findet sich eine Diskussion der Summenfrequenzerzeugung, die in zwei separaten Prozessen für eine Frequenzverdreifachung benutzt werden kann.

3.1 Fortpflanzung von Licht in Medien

Bei der Ausbreitung von Licht verschiebt sich die Elektronendichte periodisch durch das elektrische Feld der Strahlung. Dabei werden die Elektronen durch das elektrische \mathbf{E} -Feld¹ gestört. Die reemittierten Wellen bilden die sich weiter fortpflanzende Strahlung. Jeder Streuvorgang

¹Vektoren werden im Weiteren durch Fettdruck von Skalaren unterschieden.

3 Nichtlineare Effekte

induziert eine Phasenverschiebung, was zur Folge hat, dass ein Beobachter unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten v_p des Lichts in verschiedenen Materialien misst [15, 16]. Es kann ein Brechungsindex n definiert werden, der angibt ob die Phasengeschwindigkeit der Photonen durch Absorptions- und Emissionsprozesse beschleunigt oder verlangsamt werden.

$$n \equiv \frac{c}{v_p} \quad (3.1)$$

Wobei c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ist. Die Phasenverschiebungen an den Streuzentren sind von der Wellenlänge abhängig. Da die Abstände der Streuzentren im Medium in ähnlicher Größenordnung wie die Wellenlängen liegen, ist der Brechungsindex abhängig von der Wellenlänge.

Bei kleinen Lichtintensitäten ist die Auslenkung der Elektronen klein gegen den Abstand von ihren Gitteratomen, womit die Polarisation² \mathbf{P} eines isotropen Mediums in annähernd linearem Zusammenhang zur Feldstärke des Laserfeldes ist. Dies entspricht der oben erwähnten linearen Näherung eines physikalischen Prozesses.

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} \quad (3.2)$$

Die Konstanten ϵ_0 und χ sind die elektrische Feldkonstante und die dielektrische Suszeptibilität des Materials. Diese Gleichung reichte lange Zeit aus um die meisten optischen Effekte zu erklären.

Für hohe Intensitäten ist das Potential, in dem sich die Elektronen befinden nicht mehr parabelförmig, denn die Kernladungen der Nachbaratomen beginnen eine signifikante Rolle zu spielen und der Zusammenhang zwischen Auslenkung und Rückstellkraft ist nicht linear. Die nichtlineare Antwort eines optischen Mediums auf ein Laserfeld kann als Reihenentwicklung der Polarisation beschrieben werden:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots) = \epsilon_0 \sum_{n=1}^{\infty} \chi^{(n)} \mathbf{E}^n \quad (3.3)$$

Kristalle verhalten sich nicht in allen Raumrichtungen gleich, sodass die Materialantwort und das Polarisationsverhalten richtungsabhängig ist. Ferner ist die Polarisation eines Materials nicht immer parallel zum Laserfeld. Die bisher skalare, dielektrische Suszeptibilität wird durch einen

²Das Wort Polarisation hat in der Physik zwei Bedeutungen. Man spricht von der Polarisation des Lichtes und meint die räumliche Ausrichtung des \mathbf{E} -Feldes. Ferner können Materialien polarisiert werden, d.h. einer Ladungsumverteilung ausgesetzt zu sein.

Suszeptibilitätstensor $\chi_{ij}(\omega)$ ersetzt. Gl. 3.3 ändert sich damit zu

$$\mathbf{P}(\omega) = \varepsilon_0 \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{ij} \chi_{ij}^{(n)}(\omega) \cdot \mathbf{E}^n(\omega) \quad (3.4)$$

$$= \varepsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl} E_j E_k E_l + \dots) \quad (3.5)$$

Der Zusammenhang zwischen elektrischer Feldstärke \mathbf{E} und elektrischer Flussdichte \mathbf{D} ist für jedes Material anders und nichtlinear (auch wenn häufig eine lineare Näherung sinnvoll ist). Die Polarisierung erfolgt nicht instantan, da in einem Medium mit einer Ladungsverschiebung auch ein Energietransport verbunden ist. Dadurch ist \mathbf{P} frequenzabhängig. Mit $\mathbf{D}(\omega) = \varepsilon_0 \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{P}(\omega)$ folgt:

$$\mathbf{D}_i(\omega) = \varepsilon_0 \mathbf{E}_i(\omega) + \varepsilon_0 \sum_{i,j} \chi_{ij}(\omega) \cdot \mathbf{E}_j(\omega) \quad (3.6)$$

Die Frequenzabhängigkeit der elektrischen Flussdichte ist nichts anderes als die später noch diskutierte Dispersion (Kapitel 3.3).

3.1.1 Doppelbrechung

Der Brechungsindex einiger Materialien ist sowohl von der Polarisierung als auch von der Ausbreitungsrichtung des Lichtes abhängig. Sie sind in der Lage einen unpolarisierten Lichtstrahl in zwei senkrecht zu einander polarisierte Lichtbündel aufzuteilen, wobei beide Strahlen nach Durchlaufen des Mediums in die gleiche Richtung propagieren, wenn auch räumlich getrennt. Das auftretende Phänomen wird Doppelbrechung oder *Birefringenz* genannt. Betrachtet man ein Objekt durch ein doppelbrechendes Material, erscheint das Objekt zweimal.

3.2 Kerr-Effekt

Ein nichtlinearer, optischer Effekt wurde erstmals 1875 von John Kerr beschrieben [17]. Er entdeckte, dass sich der Brechungsindex eines isotropen Materials leicht ändert, sobald man eine elektrische Spannung anlegt. Dieses Phänomen ist heutzutage als quadratischer, elektrooptischer Effekt oder Kerr-Effekt bekannt. Eine Verschiebung der Ladungsträger und damit der Streuzentren induziert vom elektrischen Feld \mathbf{E} ist der Grund für den sich verändernden Brechungsindex. Das Material hat dann ähnliche Eigenschaften wie ein einachsiger Kristall, dessen optische Achse parallel zu den Feldlinien verläuft. Es addieren sich nichtlineare Terme

zum Brechungsindex, der durch eine Taylorreihe beschrieben werden kann.

$$\begin{aligned} n(\mathbf{E}) &= n_0 + S_1 \cdot \mathbf{E} + S_2 \cdot \mathbf{E}^2 + \dots \\ &= n_0 + n_1 \lambda + n_2 \lambda^2 + \dots \end{aligned} \quad (3.7)$$

Sofern man alle Parameter gegenüber dem S_2 Faktor vernachlässigen kann, spricht man vom *optischen Kerr-Effekt*. S_2 ist wellenlängenabhängig, sodass mit Einführung einer materialspezifischen Kerr-Konstante K sich ergibt: [12, S. 13]

$$|n_0 - n_{\text{ao}}| = \Delta n = \lambda_0 K \mathbf{E}^2 \approx \frac{3 \chi^{(3)}}{4c\epsilon_0 n^2} I \quad (3.8)$$

Für intensive elektromagnetische Strahlung ändert das eigene \mathbf{E} -Feld den Brechungsindex des Mediums um einen nicht zu vernachlässigen Teil. Da die Intensität I quadratisch proportional zu \mathbf{E} ist, kann der Brechungsindex geschrieben werden als:

$$n = n_0 + n_2 \cdot I = n(I) \quad (3.9)$$

Das nichtlineare Verhalten eines Materials ist eine Zusammensetzung aus der instantanen Reaktion der Elektron und dem zeitlich verzögerten Raman-induzierten Kerr-Effekt.

3.2.1 Selbstfokussierung

Ein kurzer, intensiver Puls erfährt mit seinem intensitätsabhängigen Brechungsindex am Rand einen geringen Brechungsindex als in der Mitte. Übertrifft dieser Effekt die in gegensätzliche Richtung wirkende Beugung und ist $n_2 > 1$, wirkt das Medium wie eine Sammellinse. Es kommt ab einer Schwelleistung P_{cr} zur Selbstfokussierung [18]

$$P_{\text{cr}} = N_{\text{cr}} \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 n_2} \quad (3.10)$$

wobei die kritische Leistung N_{cr} vom Strahlprofil abhängt und für Gaußpulse auf 1,8962 abgeschätzt werden kann. Die Schwelleistung zu überschreiten ist sehr leicht, jedoch ist bei großen Strahlradien die Brennweite so groß, dass dieser Effekt zu vernachlässigen ist. Die Brennweite f eines Strahls mit Strahlgröße σ und optischer Leistung P in einem Medium der Dicke d ist nach [19, S. 146]:

$$f < d : \quad \frac{1}{f} = \frac{\lambda}{4\pi\sigma^2} \sqrt{\frac{P}{P_{\text{cr}}} - 1} \quad (3.11)$$

$$f > d : \quad \frac{1}{f} = \frac{n_2 I_0 d}{\sigma^2} \quad (3.12)$$

wobei I_0 die Spitzenintensität ist.

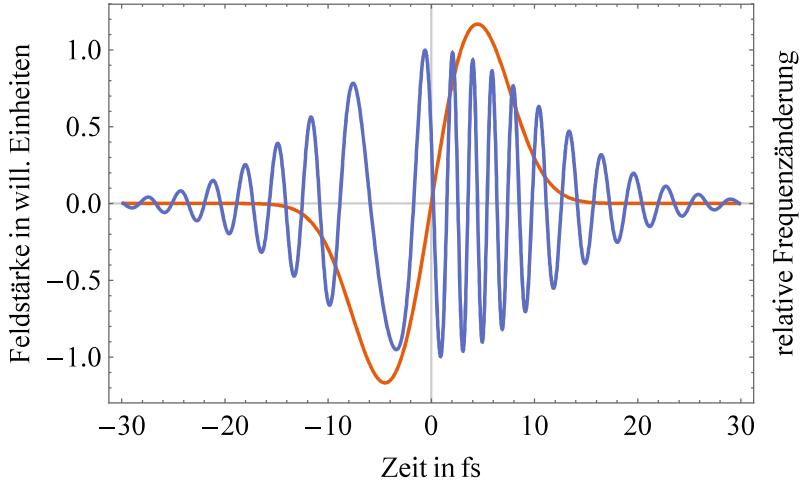


Abbildung 3.1: Selbstphasenmodulation eines Gaußpulses (blau). Aufgrund eines intensitätsabhängigen Brechungsindexes wird die Frequenz temporal moduliert. Die orange Kurve zeigt die relative Frequenzänderung. Der geplottete Puls entspricht mit seiner Anzahl der E -Feld-Schwingungen etwa einem 26 fs (FWHM) Puls mit einer Wellenlänge von 800 nm, wobei die räumliche Front des Pulses in der negativen Zeitachse liegt. Basierend auf Gl. 3.13 und [12, S. 134]

Zu bemerken sei, dass der Effekt sich nicht beliebig fortsetzt. Ab einem Strahldurchmesser von etwa $(5 \cdot 10^{-6} \text{ m})$ [20, S. 1028] kommt es zur Totalreflexion und der Strahl fällt nicht weiter zusammen. Allerdings ist bei dieser Strahlgröße die Intensität meist über der Zerstörschwelle des Mediums.

Ein ähnlicher Effekt bekannt als *small-scale self-focusing* soll hier auch kurz genannt werden, da er zu sogenannten hot spots, Punkte im Strahlprofil mit außerordentlich hoher Intensität, oder Filamentierung führt. Dieses Phänomen ist unabhängig vom Strahlprofil und tritt üblicherweise bei $50 P_{\text{cr}}$ auf.

3.2.2 Selbstphasenmodulation

Der optische Kerr-Effekt führt auch zu einem Phasenshift im Laserpuls. Nicht nur räumlich hat der Puls unterschiedliche Intensitäten, sondern auch zeitlich. Am vorderen Teil des Wellenpakets ist die Intensität klein und erfährt einen anderen Brechungsindex als in der zeitlichen Mitte, wo die Intensität am größten ist.

Die räumliche Front des Pulses wird zu niedrigeren, der hintere Teil zu höheren Frequenzen verschoben (Vgl. Abb. 3.1). Die Änderung der Frequenz für einen in z -Richtung propagierenden Puls ist nach [12, S. 133]

$$\frac{d\omega}{dt} = -\frac{\omega n_2 z}{c} \frac{\partial^2 I}{\partial t^2} \quad (3.13)$$

	Luft	Quarz	BBO ₀	BBO _{a0}
800 nm	0,02	36,16	73,27	56,88
400 nm	0,05	97,57	211,43	150,10
266 nm	0,10	197,53	528,76	348,93

Tabelle 3.1: Gruppengeschwindigkeitsdispersionen von verschiedenen Materialien für relevante Wellenlängen. Angaben in der üblichen Einheit $\frac{\text{fs}^2}{\text{mm}}$. Werte der Brechungsindices aus [21–23].

3.3 Gruppengeschwindigkeitsdispersion

Die Ausbreitungsgeschwindigkeiten von Wellen erfordern zwei Begriffe der Geschwindigkeit. Die *Phasengeschwindigkeit* v_p bezeichnet die Fortbewegung von Punkten gleicher Phase und definiert den bereits eingeführten Brechungsindex n in Gl. 3.2. Überlagert man Wellen unterschiedlicher Frequenz und legt eine Einhüllende um das Wellenpaket, wird die Geschwindigkeit dieser als *Gruppengeschwindigkeit* v_g bezeichnet. Die Modulation einer Welle breitet sich also mit v_g aus und ist häufig verschieden von v_p . Es gilt mit $\omega = 2\pi\nu$ und $k = \frac{2\pi}{\lambda}$

$$v_p \equiv \lambda\nu = \frac{c}{n} \quad v_g \equiv \frac{\partial\omega}{\partial k} = \frac{c}{n} \left(1 + \frac{\lambda}{n} \frac{dn}{d\lambda} \right) \quad (3.14)$$

Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion GVD ist ein Maß für die Änderung der Pulsdauer in einem dispersiven Medium. Entscheidend für die Verzerrung sind die unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten der einzelnen Wellenlängen $v_g(\lambda)$, die den Puls zusammensetzen. Hervorgerufen wird dies durch den wellenlängenabhängigen Brechungsindex (siehe Gl. 3.7). Das Spektrum des Pulses ändert sich jedoch nicht. Definiert ist die GVD mit

$$\text{GVD}(\nu_0) \equiv \frac{\partial}{\partial\nu} \left(\frac{1}{v_g(\nu)} \right)_{\nu=\nu_0} \quad (3.15)$$

Die übliche Einheit der GVD ist Femtosekunden pro Millimeter. Man spricht von einem positiv gechirpten Puls, wenn der Anteil der höheren Frequenzen, also kürzeren Wellenlängen zeitlich später propagieren. Die meisten Materialien induzieren positiven Chirp. Der von einem transmittierten Medium der Dicke δ eingeführte Chirp lässt sich mit der Gruppenverzögerungsdispersion (GDD) quantifizieren:

$$\text{GDD} = \delta \cdot \text{GVD} = \delta \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \left(\frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right) \cdot \Delta\lambda \quad (3.16)$$

wobei $\Delta\lambda$ die spektrale Pulsbreite FWHM und λ_0 die mittlere Wellenlänge bezeichnet.

Tab. 3.1 enthält alle für diese Arbeit relevanten Gruppengeschwindigkeitsdispersionen.

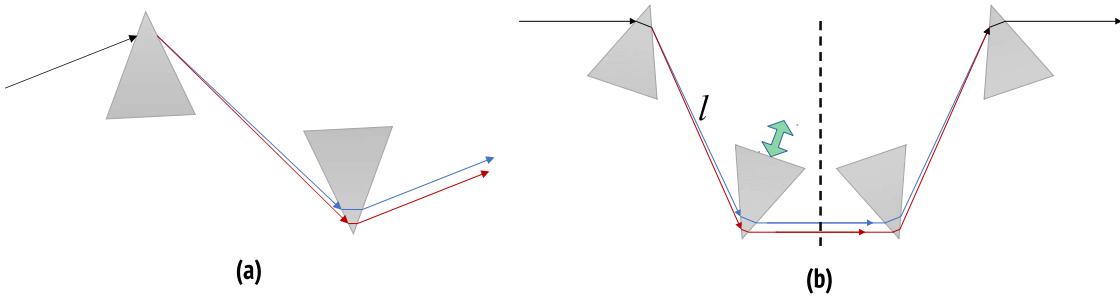


Abbildung 3.2: (a) Ein Prismenpaar zur Kompensierung von positiver Gruppengeschwindigkeitsdispersion. Umso größer die Wellenlänge ist umso länger wird der zurückzulegende Weg. Häufig nicht erwünscht ist die räumliche Auf trennung der verschiedenen Wellenlängen. (b) Mithilfe von zwei weiteren Prismen kann der Puls wieder spektral zusammengeführt werden. Die gestrichelte Linie ist eine Symmetriechse. An dieser Position kann anstelle der zusätzlichen Prismen ein Spiegel aufgestellt werden.

3.3.1 Kompensierung der Dispersion

Es liegt nahe, dass die kürzesten Pulsdauern nur erreicht werden können, wenn der Puls nicht gechirpt ist. Sofern während des Weges vom Laserausgang zum Experiment Optiken durchlaufen werden oder der Luftweg einige Meter lang ist, muss der am Ende positive Chirp kompensiert werden. Negativer Chirp kann durch einen Prismenkompressor eingeführt werden, welcher aus zwei oder vier Prismen besteht. Aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes und damit zurückzulegenden Wegstrecken im Glas der spektralen Komponenten spaltet ein einzelnes Prisma einen Lichtstrahl auf. Durch die Transmission durch das Prisma wird zunächst eine positive GDD induziert, was später ausgenutzt werden kann um die richtige Feineinstellung des Kompressors zu finden.

Wie Abb. 3.2a illustriert ermöglicht eine Anordnung von Prismen unterschiedliche Wegstrecken für die einzelnen Frequenzkomponenten. Damit insgesamt ein negativer Chirp induziert wird, ist entscheidend, dass die kleineren Frequenzen einen längeren Luftweg haben.

Nach Durchlaufen von zwei Prismen propagieren die verschiedenen Wellenlängen räumlich nicht überlappend. Die Zuhilfenahme von zwei weiteren Prismen kehrt diesen Effekt wieder um, jedoch kann anstelle dessen auch ein Spiegel nach dem zweiten Prisma aufgebaut werden, der den Strahl in sich selbst zurückführt (siehe Abb. 3.2b). Ein leichter vertikaler Versatz auf dem Rückweg ermöglicht das einfache Auskoppeln des Strahls.

Nach Fork, Martinez und Gordon [24] lässt sich der eingeführte Chirp eines Prismenkompressors abschätzen

$$\text{GDD}_{\text{Prism}} \approx \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \left[4l(A \cdot \sin \beta - B \cos \beta) + 32\sigma \left(\frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right) \right] \quad (3.17)$$

$$\text{mit } A := \frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3} \right) \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \quad B := 2 \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \quad \beta \approx -2 \frac{dn}{d\lambda} \Delta\lambda \quad (3.18)$$

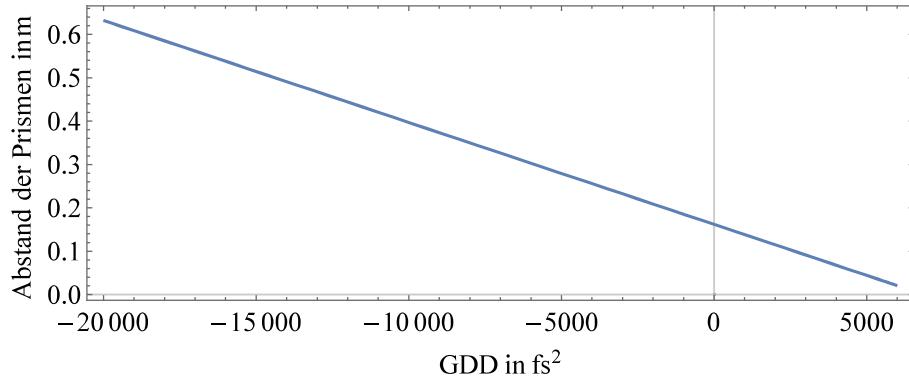


Abbildung 3.3: Chirpkompensierung mithilfe eines Prismenkompressors mit Quarzprismen. Gezeigt ist die Relation zwischen GDD und Abstand der Prismen nach Gl. 3.17. Ein solcher Kompressor führt ab einem Prismenabstand von etwa 16,1 cm und größer eine negative GDD ein, wobei der Chirp eines Pulses von den zuvor transmittierten Medien abhängt (vgl. Tab. 3.1).

wobei σ die räumliche Größe des gaußförmigen Strahlprofils bezeichnet und durch Modellieren einer Gaußfunktion gemäß den Messpunkten gefunden werden kann. n bezeichne den Brechungsindex der Prismen und l den Abstand zwischen ihnen. Die Formel wurde unter der Annahme hergeleitet, dass der Strahl nicht selbstphasenmoduliert ist. Ein Plot für den Zusammenhang von Prismenabstand und eingeführter GDD ist in Abb. 3.3 zu finden.

Wie bereits erwähnt kann die Veränderung des Glasweges zur Feinabstimmung des Kompressors verwendet werden, da nur abgeschätzt werden kann wie stark ein Puls gechirpt ist. Verschiebt man zum Beispiel das zweite Prisma wie in Abb. 3.2 mit dem grünen Pfeil angedeutet, verändert sich der Glasweg und somit auch den vom Prismenkompressor erzeugten Chirp.

3.4 Summenfrequenzerzeugung

Unter Summenfrequenzerzeugung (*engl: sum frequency generation SFG*) versteht man den Effekt, dass bestimmte Kombinationen von Materialien, Wellenlängen und anderen Bedingungen zwei einfallende Lichtstahlen vereinen, die mit der Summe der Frequenz weiterpropagieren. Interessant ist die Verdopplung der Frequenz, da dieser Prozess die niedrigste, nichtlineare Ordnung darstellt und somit relativ effizient angeregt werden kann.

Beschränkt man die Betrachtung darauf, dass nur Licht derselben Wellenlänge in den Kristall einfällt und setzen damit $E(t) = E_0 \sin \omega t$ als Wellengleichung an, ergibt in Gl. 3.3 mit der Annahme, dass das Medium parallel zum E-Feld polarisiert, eingesetzt:

$$P = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E_0 \sin \omega t + \chi^{(2)} E_0^2 \sin^2 \omega t + \chi^{(3)} E_0^3 \sin^3 \omega t + \dots) \quad (3.19)$$

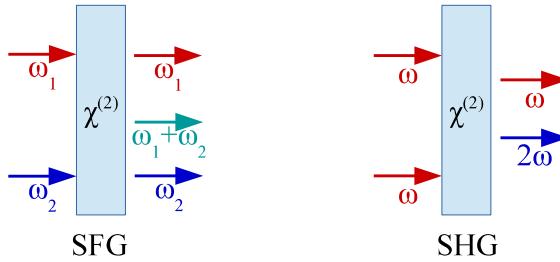


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung einer Summenfrequenzerzeugung durch einen nicht linearen Suszeptibilitätsterm z.B. in einem doppelbrechenden Kristall und der Spezialfall der Frequenzverdopplung.

Mit $\sin^2 \xi = \frac{1}{2}(1 - \cos 2\xi)$ ergibt sich:

$$P = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E_0 \sin \omega t + \frac{\chi^{(2)} E_0^2}{2} (1 - \cos 2\omega t) + \frac{\chi^{(3)} E_0^3}{4} (3 \sin \omega t - \sin 3\omega t) + \dots \right) \quad (3.20)$$

Dabei sei besonderes Augenmerk auf den zweiten Summanden gerichtet. Es entsteht ein Welle mit Frequenz 2ω . Nichtlineare Effekte ermöglichen demnach eine Frequenzumwandlung in ein Vielfaches der Ausgangsfrequenz. Dabei ist die Frequenzverdopplung dominierend und höhere Ordnungen sind stark unterdrückt [5]. Zu beachten sei, dass für Gl. 3.20 vorausgesetzt wurde, dass die Polarisation sich instantan dem elektrischen Feld anpasst und die Frequenz des einfallendes Lichts nicht mit der Resonanz des Medium zusammenfällt.

Eine SFG ist eine Drei-Wellen-Interaktion $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$. Die folgende Konvention wird benutzt: Die Indices 1 und 2 beschreiben die einfallenden Wellen und Index 3 die ausfallende Welle (vgl. Abb. 3.4). Wobei im einfachen Falle der *Second Harmonic Generation SHG* $\omega_1 + \omega_2$ gilt. Für die später diskutierte *third harmonic generation* (deutsch: Erzeugung der dritten Harmonischen) THG wird eine Drei-Wellen-Interaktion mit der fundamentalen und der frequenzverdoppelten Welle durchgeführt werden $\omega_1 = 2\omega_2$. Bei der SHG und THG werden somit zwei Spezialfälle der Summenfrequenzerzeugung betrachtet.

Für effiziente SFG müssen die Phasen der Strahlen übereinstimmen, da es sonst zu destruktiver Interferenz kommt (*phase matching*)

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 \quad (3.21)$$

Wie Gl. 3.7 zeigt, ist der Brechungsindex wellenlängenabhängig. In den meisten Fällen kommt es zwangsläufig zur destruktiven Interferenz des fundamentalen und des erzeugten Strahls, selbst wenn Gl. 3.21 erfüllt ist. Als zweite Bedingung gilt nun für SHG bzw. THG, die nur in

doppelbrechenden Medien erfüllt werden kann:

$$n_1 = n_3 \quad \text{für SHG} \quad (3.22)$$

$$n_1 + 2n_2 = 3n_3 \quad \text{für THG} \quad (3.23)$$

In einachsigen Kristall (wie z.B. β -Bariumborat) gibt es eine Vorzugsrichtung, die als *optische Achse* bezeichnet wird. Polarisation senkrecht zur optischen Achse des Kristalls führt zu einem Brechungsindex unabhängig vom Schliffwinkel; dieser Strahl wird als *ordentlich (o)* bezeichnet. Entsprechend heißen Strahlen parallel zur optischen Achse polarisiert *außerordentlich (ao)*. Für beliebte SFG Prozesse werden die Kristalle in einem Schliffwinkel gefertigt, sodass der außerordentliche, frequenzverdoppelte Strahl denselben Brechungsindex aufweist wie der ordentliche. Haben die einfallenden Strahlen dieselbe Polarisation, spricht man von *type 1 phase matching*. Es ist auch möglich, dass die beiden einstrahlenden Wellen zueinander senkrechte Polarisation aufweisen (*type 2 phase matching*) [25]. Man unterscheidet weiter zwischen negativ ($n_{ao} < n_o$) und positiv doppelbrechenden ($n_{ao} > n_o$) Materialien.

Hohe Konversionseffizienzen können nur durch Wahl des richtigen Materials erreicht werden. Doppelbrechende Kristalle wie Kaliumdihydrogenphosphat (KDP) oder β -Bariumborat (BBO) werden häufig verwendet, da sie hohe Zerstörschwellen haben und für verschiedene, ausgewählte Wellenlängen den gleichen Brechungsindex besitzen. Ihre materialspezifische Suszeptibilität eignet sich besonders gut für nichtlineare Prozesse. Im Fall dieser Arbeit wurden Kristalle aus β -Bariumborat verwendet. Der wellenlängenabhängige Brechungsindex ist durch die Sellmeier-Gleichungen gut angenähert. Zahlenwerte aus [23]:

$$n_o(\lambda)^2 = 2,7366122 + \frac{0,0185720 \mu\text{m}^2}{\lambda^2 - 0,0178746 \mu\text{m}^2} - (0,0143756 \mu\text{m}^{-2})\lambda^2 \quad (3.24)$$

$$n_{ao}(\lambda, \theta = 90^\circ)^2 = 2,3698703 + \frac{0,0128445 \mu\text{m}^2}{\lambda^2 - 0,0153064 \mu\text{m}^2} - (0,0029129 \mu\text{m}^{-2})\lambda^2 \quad (3.25)$$

Für den Brechungsindex \tilde{n} eines beliebigen Strahl gibt es eine Abhängigkeit zum Schliffwinkel θ des Kristalls in Form eines Ellipsoids [26].

$$\frac{1}{\tilde{n}(\theta, \lambda)} = \sqrt{\frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2 \theta}{n_{ao}^2(\lambda)}} \quad (3.26)$$

Aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindices des einlaufenden und erzeugten Lichts sind auch die Gruppengeschwindigkeiten verschieden, was zur Folge hat, dass das am Anfang des Kristalls erzeugte Licht nicht mit dem am Ende zeitlich überlagert. Dieser Effekt zieht bei ultrakurzen Pulsen eine signifikante Pulsverlängerung des erzeugten Lichts mit sich, die je nach Anwendung unerwünscht ist. Die Konversionseffizienz kann somit nicht kompromisslos durch Wahl von dickeren Kristallen und damit längeren Wechselwirkungswegen gesteigert werden.

Auch bringen dicke Kristalle natürlich eine höhere, positive GDD mit sich, die allerdings nachträglich kompensiert werden kann.

3.4.1 Kristalleigenschaften für SHG

Ein theoretisches Kristallgitter darf für erfolgreiche SHG nicht zentrosymmetrisch sein. Folgende Überlegungen belegen diese Aussage: Unter der Annahme, dass eine Welle der Form $E(t) = E_0 \cdot \cos(\omega t)$ auf eine zentrosymmetrische Kristallstruktur trifft, ist die resultierende Polarisation zweiter Ordnung nach Gl. 3.5

$$P(t) = \chi^{(2)} (E_0 \cdot \cos(\omega t))^2 \quad (3.27)$$

Die Zentrosymmetrie fordert dann aber

$$-P(t) = \chi^{(2)} (-E_0 \cdot \cos(\omega t))^2 = \chi^{(2)} (E_0 \cdot \cos(\omega t))^2 = P_2(t) \quad (3.28)$$

Damit folgt $P(t) = 0$ und schließlich

$$\chi_{ijk}^{(2)} = 0 \quad \text{fast überall} \quad (3.29)$$

Der zweite Term in Gl. 3.20 ist damit unterdrückt. Eine THG kann allerdings sehr wohl in einem zentrosymmetrischen Kristall stattfinden. β -Bariumborat ist nicht zentrosymmetrisch und eignet sich somit.

In dieser Arbeit soll eine Frequenzverdopplung mit anschließender Summenfrequenzerzeugung von infrarotem 800 nm Licht durchgeführt werden. Nach Gl. 3.22 ist für die SHG ein Kristall auszuwählen, der denselben Brechungsindex für 800 nm und 400 nm aufweist. Mit Gl. 3.24 ergibt sich ein Brechungsindex für den ordentlichen Strahl und 800 nm von

$$n_o^{800 \text{ nm}} = 1,6605. \quad (3.30)$$

Abb. 3.5a veranschaulicht, dass bei einem Schliffwinkel von

$$\phi = 29,2^\circ \quad (3.31)$$

eines BBO-Kristalls der Brechungsindex für 400 nm bei den gewünschten 1,6605 liegt.

3.4.2 Kristalleigenschaften für THG

Zur Erzeugung der dritten Harmonischen wird eine SFG von 800 nm und dem im SHG-Kristall erzeugten 400 nm Lichts durchgeführt. Gl. 3.23 muss erfüllt werden. 800 nm und 400 nm laufen

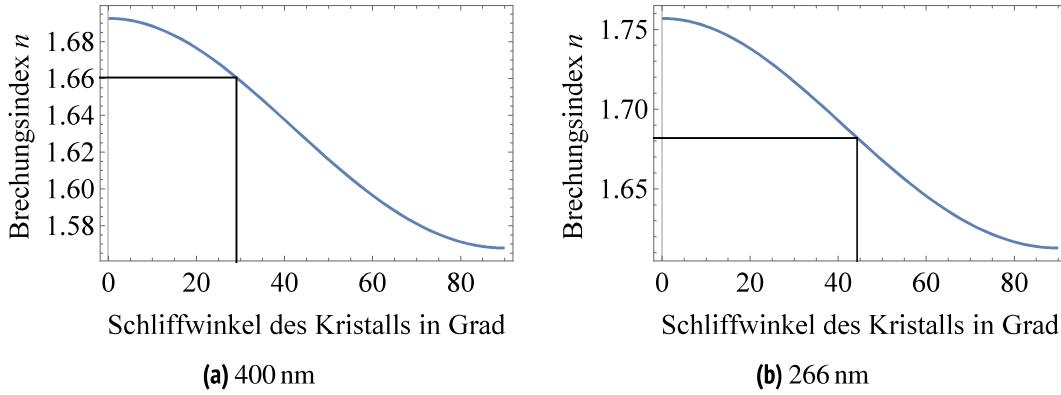


Abbildung 3.5: Berechneter Brechungsindex für 266 nm bzw. 400 nm Licht als außerordentlicher Strahl in β -Bariumborat in Abhängigkeit zum Schliffwinkel des Kristall nach Gl. 3.26.

als ordentlicher Strahl ein und haben damit Brechungsindices von $n_o^{800 \text{ nm}} = 1,6605$ und $n_o^{400 \text{ nm}} = 1,6926$. Damit muss der Kristall so geschliffen werden, dass

$$\widetilde{n}_{ao}(266 \text{ nm}) = 1,6819 \quad (3.32)$$

gilt. Der Brechungsindex für einen Strahl, der in beliebiger Richtung einläuft wird wieder in Gl. 3.26 eingesetzt. Abb. 3.5b zeigt, dass für THG der ideale Schliffwinkel bei

$$\phi = 44,3^\circ \quad (3.33)$$

liegt.

3.4.3 Anpassen des zeitlichen Überlapps

Für eine gute Effizienz der SFG zur Erzeugung der dritten Harmonischen müssen die einlaufenden Strahlen des 800 nm und 400 nm Lichts räumlich und zeitlich überlagert sein. Die räumliche Überlagerung ist dabei kein Problem, da die Ausbreitungsrichtung des SHG-Signals sich nicht vom fundamentalen Strahl unterscheidet. Allerdings sind die Gruppengeschwindigkeiten innerhalb des Kristalls von beiden nicht gleich (Gl. 3.14 folgend), auch wenn wie gefordert gilt, dass $n_o(800 \text{ nm}) = \widetilde{n}_{ao}(400 \text{ nm}, \theta)$ und damit die Phasengeschwindigkeiten identisch sind. Für die Gruppengeschwindigkeiten gibt es eine Abhängigkeit zur Wellenlänge und ersten Ableitung des Brechungsindexes nach λ :

$$v_g^o(\lambda) = v_p^o \left(1 + \frac{\lambda}{n_o} \frac{dn_o}{d\lambda} \right) \quad v_g^{ao}(\lambda, \theta) = v_p^{ao} \left(1 + \frac{\lambda}{n_{ao}} \frac{d\widetilde{n}_{ao}(\theta)}{d\lambda} \right) \quad (3.34)$$

Der zeitliche Versatz, der durch Propagation durch die Luft entsteht ist zu vernachlässigen, da $n_o \approx n_{ao} \approx 1$ und $\lambda \ll 1$, wohingegen in β -Bariumborat eine zu kompensierende Verschiebung entsteht. Quantitativ wird eine Gruppengeschwindigkeitsdiskrepanz (*engl: group velocity*

mismatch) als Differenz der inversen Gruppengeschwindigkeiten eingeführt:

$$\text{GVM} \equiv \frac{1}{v_g^o} - \frac{1}{v_g^{ao}} \quad (3.35)$$

Die intuitivste Methode für den zeitlichen Überlapp ist den einen Strahl eine längere Wegstrecke zurücklegen zu lassen als den anderen. Jedoch erfordert diese Herangehensweise eine räumliche Trennung und Vereinigung, die in jedem Fall verlustbehaftet ist. Ferner sollte angemerkt werden, dass ultrakurze Pulse nicht nur zeitlich, sondern auch räumlich sehr kurz sind. Zum Beispiel hat ein 50 fs Puls nur eine räumliche Größe von 15 μm . Eine Verschiebestrecke muss mindestens auf dieser Größenordnung korrekt angepasst werden.

Es erweist sich häufig als einfacher einen weiteren doppelbrechenden Kristall zu verwenden. Als Material muss ein negativ einachsiger Kristall gewählt werden, damit die außerordentliche Welle eine geringere Gruppengeschwindigkeit als die ordentliche Welle. Geeignet sind unter anderem β -Bariumborat und Calcit. Die optische Achse des Kristall wird dabei parallel zur Polarisation der zweiten Harmonischen ausgerichtet, die dann zur außerordentlichen Welle wird, damit einen geringen Brechungsindex als der fundamentale Strahl erfährt und sich schließlich schneller als die Fundamentale bewegt. Eine grobes Maß des induzierten, zeitlichen Versatzes ist die Dicke der Platte. Eine Feinjustage kann durch Rotation der optischen Achse durchgeführt werden. Bei einem Einfallwinkel zwischen -5° und $+5^\circ$ kann der zeitliche Laufzeitunterschied einer solchen Kompensationsplatte etwa um ± 70 fs bis ± 100 fs feinabgestimmt werden [27]. Für den Aufbau in dieser Arbeit wird ein Calcitkristall verwendet.

3.4.4 Anpassen der Polarisation

Nach dem SHG-Kristall sind der fundamentale 800 nm und erzeugter 400 nm Strahl senkrecht zu einander polarisiert. Für den SFG Prozess zur Erzeugung der dritten Harmonischen des fundamentalen Strahls müssen beide Strahlen jedoch die gleiche Polarisation aufweisen. Erreicht werden kann dies leicht über eine Wellenplatte, die eine $\lambda/2$ Platte für 800 nm und eine λ Platte für 400 nm ist.