

3 Nichtlineare Wellenausbreitung

Ausgangspunkt zur Herleitung der nichtlinearen Wellengleichung sind die Maxwellgleichung sowie die nichtlineare Polarisation $P = P_{lin} + P_{NL}$. Für die nichtlineare Wellengleichung betrachtet man anschließend die Ausbreitung der Felder E_1, E_2, E_3 und gelangt so zu einem System von gekoppelten Differentialgleichungen für die Felder $E_{1,2,3}$.

Die Maxwell-Gleichungen für nicht magnetische Materialien lauten

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial}{\partial t} \vec{D}, \quad \vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \vec{H}$$

mit der Stromdichte $\vec{j} = \sigma \vec{E}$ und der Leitfähigkeit σ . Für die dielektrische Verschiebung gilt

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0 \vec{E} + \varepsilon_0 \chi \vec{E} + \vec{P}_{NL}$$

mit $\varepsilon = 1 + \chi$ und der i -ten Komponente $P_{NL,i}$ der nichtlinearen Polarisation

$$P_{NL,i} = \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k$$

Einsetzen liefert die Gleichung

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \sigma \vec{E} + \varepsilon \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \vec{E} + \frac{\partial}{\partial t} P_{NL}$$

Wendet man den Operator *rot* auf die zweite Maxwell-Gleichung an, so gelangt man zur nichtlinearen Wellengleichung

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \sigma \frac{\partial}{\partial t} \vec{E} + \mu_0 \varepsilon \varepsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}_{NL}$$

Wir gehen zunächst von einem isotropen Medium aus mit $\vec{E} \parallel \vec{P}_{NL}$, so dass wir eine skalare Schreibweise verwenden können.

Im Folgenden wird die Ausbreitung von drei ebenen Wellen E_1, E_2 und E_3 mit den Frequenzen ω_1, ω_2 und ω_3 entlang der z -Richtung betrachtet:

$$E_1^{(\omega_1)}(z,t) = \frac{1}{2} \left(E_{01}^{(\omega_1)}(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c. c. \right)$$

$$E_2^{(\omega_2)}(z,t) = \frac{1}{2} \left(E_{02}^{(\omega_2)}(z) e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c. c. \right)$$

$$E_3^{(\omega_3)}(z,t) = \frac{1}{2} \left(E_{03}^{(\omega_3)}(z) e^{i(\omega_3 t - k_3 z)} + c. c. \right)$$

Das gesamte Lichtfeld ist also

$$E = E_1^{(\omega_1)} + E_2^{(\omega_2)} + E_3^{(\omega_3)}$$

und soll die nichtlineare Wellengleichung erfüllen. Zunächst sollen die in P_{NL} auftretenden Terme der Form $d_{ijk} E_j E_k$ betrachtet werden, z.B.

$$P_{NL}^{(\omega_1+\omega_2)} = \text{Re} \left(d^{(\omega_1+\omega_2)} E_{01} E_{02} e^{i[(\omega_1+\omega_2)t - (k_1+k_2)z]} \right)$$

oder

$$P_{NL}^{(\omega_3-\omega_2)} = \text{Re} \left(d^{(\omega_3-\omega_2)} E_{03} E_{02}^* e^{i[(\omega_3-\omega_2)t - (k_3-k_2)z]} \right)$$

Allgemein treten alle möglichen Summen oder Differenzen der Frequenzen $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ auf. Entscheidend ist allerdings, dass diese Terme im Allgemeinen nicht alle gleichzeitig synchron mit ω_1, ω_2 oder ω_3 sein können, d.h. es im Mittel über eine endliche Ausbreitungsstrecke keine Kopplung für diese Wellen.

Eine Ausnahme hiervon ist der Fall, dass die Frequenzen ω_1, ω_2 und ω_3 die folgende Bedingung erfüllen

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$$

In diesem Fall oszilliert der Term $P_{NL}^{(\omega_1+\omega_2)}$ mit der Frequenz ω_3 und dient so als Quelle einer Welle mit dieser Frequenz. Ein anderer Spezialfall ist die Bedingung $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$.

Im Folgenden wird nur der Spezialfall $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ betrachtet. Die nichtlineare Wellengleichung gilt für alle Zeiten t , d.h. man kann die Frequenzen ω_1, ω_2 und $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ getrennt betrachten. Für Terme mit der Frequenz ω_1 erhält man:

$$\begin{aligned} \nabla^2 E_1^{(\omega_1)} &= \mu_0 \sigma_1 \frac{\partial}{\partial t} E_1^{(\omega_1)} + \mu_0 \epsilon_1 \epsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_1^{(\omega_1)} \\ &+ \mu_0 d \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[\frac{1}{2} E_{03}^{(\omega_3)} E_{02}^{(\omega_2)*} e^{i[(\omega_3-\omega_2)t - (k_3-k_2)z]} + c. c. \right] \end{aligned}$$

Da die Ausbreitung entlang der z -Richtung erfolgt, reduziert sich der Laplace-Operator ∇^2 auf die zweite Ableitung nach z , also

$$\begin{aligned} \nabla^2 E_1^{(\omega_1)} &= \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \left[E_{01}^{(\omega_1)} e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c. c. \right] \\ &= \frac{1}{2} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} E_{01}^{(\omega_1)} - 2i k_1 \frac{\partial}{\partial z} E_{01}^{(\omega_1)} - k_1^2 E_{01}^{(\omega_1)} \right] e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c. c. \end{aligned}$$

Weiter geht man von der Annahme langsam veränderlicher Amplituden $E_{01}^{(\omega_1)}$ aus, d.h. es gilt die Abschätzung

$$\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_{01}^{(\omega_1)} \right| \ll \left| k_1 \frac{\partial}{\partial z} E_{01}^{(\omega_1)} \right|$$

Diese Näherung führt auf

$$\nabla^2 E_1^{(\omega_1)} = -\frac{1}{2} \left[k_1^2 E_{01}^{(\omega_1)} + 2ik_1 \frac{\partial}{\partial z} E_{01}^{(\omega_1)} \right] e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c. c.$$

Alle Komponenten oszillieren mit $e^{i\omega_1 t}$, daher ist $\partial/\partial t \rightarrow i\omega_1$ und es folgt

$$\begin{aligned} & -\frac{1}{2} \left[k_1^2 E_{01}^{(\omega_1)} + 2ik_1 \frac{\partial}{\partial z} E_{01}^{(\omega_1)} \right] e^{-ik_1 z} + c. c. \\ & = (i\omega_1 \mu_0 \sigma_1 - \omega_1^2 \mu_0 \varepsilon_1 \varepsilon_0) \left[\frac{1}{2} E_{01}^{(\omega_1)} e^{-ik_1 z} + c. c. \right] \\ & \quad - \omega_1^2 \mu_0 d \left[\frac{1}{2} E_{03}^{(\omega_3)} E_{02}^{(\omega_2)*} e^{-i(k_3 - k_2)z} + c. c. \right] \end{aligned}$$

Für die Wellenzahl gilt

$$k_1 = \frac{2\pi}{\lambda} n = \omega_1 \sqrt{\mu_0 \varepsilon_1 \varepsilon_0}$$

oder $k_1^2 = \omega_1^2 \mu_0 \varepsilon_1 \varepsilon_0$. Multiplikation des nicht komplex konjugierten Anteils der vorletzten Gleichung mit $i/k_1 e^{ik_1 z}$ führt auf

$$\begin{aligned} & -\frac{1}{2} \left[\omega_1^2 \mu_0 \varepsilon_1 \varepsilon_0 \frac{i}{k_1} E_{01}^{(\omega_1)} + 2ik_1 \frac{i}{k_1} \frac{\partial E_{01}^{(\omega_1)}}{\partial z} \right] \\ & = \left(i\omega_1 \mu_0 \sigma_1 \frac{i}{k_1} - \omega_1^2 \mu_0 \varepsilon_1 \varepsilon_0 \frac{i}{k_1} \right) \frac{1}{2} E_{01}^{(\omega_1)} \\ & \quad - \omega_1^2 \mu_0 \frac{i}{k_1} d \frac{1}{2} E_{03}^{(\omega_3)} E_{02}^{(\omega_2)*} e^{-i(-k_1 + k_3 - k_2)z} \end{aligned}$$

Als Ergebnis erhält man drei gekoppelte Differentialgleichungen für die Entwicklung der komplexen Feldamplituden E_{0i} entlang der Ausbreitungsrichtung z :

$$\frac{\partial E_{01}^{(\omega_1)}}{\partial z} = -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_1 \epsilon_0}} E_{01}^{(\omega_1)} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_1 \epsilon_0}} d E_{03}^{(\omega_3)} E_{02}^{(\omega_2)*} e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z}$$

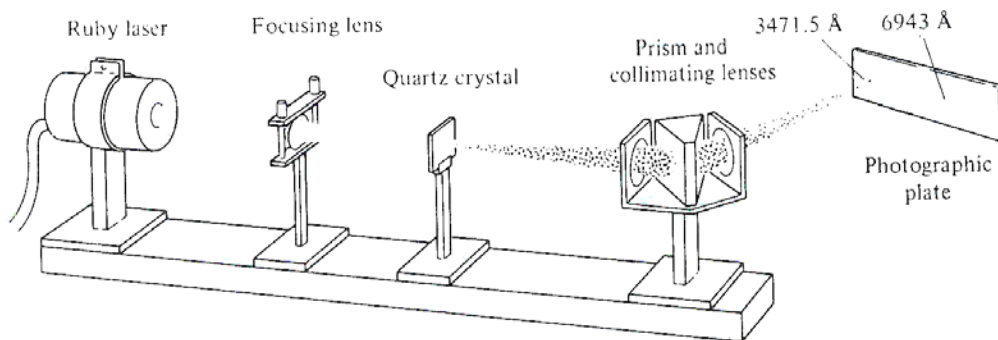
$$\frac{\partial E_{02}^{(\omega_2)}}{\partial z} = -\frac{\sigma_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_2 \epsilon_0}} E_{02}^{(\omega_2)} - \frac{i\omega_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_2 \epsilon_0}} d E_{01}^{(\omega_1)*} E_{03}^{(\omega_3)} e^{-i(k_3 - k_1 - k_2)z}$$

$$\frac{\partial E_{03}^{(\omega_3)}}{\partial z} = -\frac{\sigma_3}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_3 \epsilon_0}} E_{03}^{(\omega_3)} - \frac{i\omega_3}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_3 \epsilon_0}} d E_{01}^{(\omega_1)} E_{02}^{(\omega_2)} e^{-i(k_1 + k_2 - k_3)z}$$

Der jeweils erste Term auf der rechten Seite berücksichtigt die Dämpfung der Welle, während der jeweils zweite Term die nichtlineare Kopplung der Wellen („Wellenmischen“) beschreibt. Dieser Kopplungsterm enthält zudem einen Phasenterm, der entlang der Ausbreitungsrichtung zu einer Oszillation der Kopplungsstärke führt.

3.1 Frequenzverdopplung

Der erste Nachweis der optischen Frequenzverdopplung erfolgte 1961 in einem Experiment von Franken et al. (Literaturhinweis: Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)). Hierin wurde die Frequenzverdopplung 694 nm (rot) → 347 nm (UV) des roten Lichts eines Rubinlasers in den UV-Bereich gezeigt.



Die damals erreichte Konversionseffizienz, d.h. das Verhältnis aus Lichtleistung im Ultravioletten und im Roten, lag bei $P_{UV} / P_{rot} \approx 10^{-8}$. Heute erreicht man Maximalwerte von ca. 30 % im Single-Pass-Betrieb und ca. 80 % bei der resonatorinternen Frequenzverdopplung.

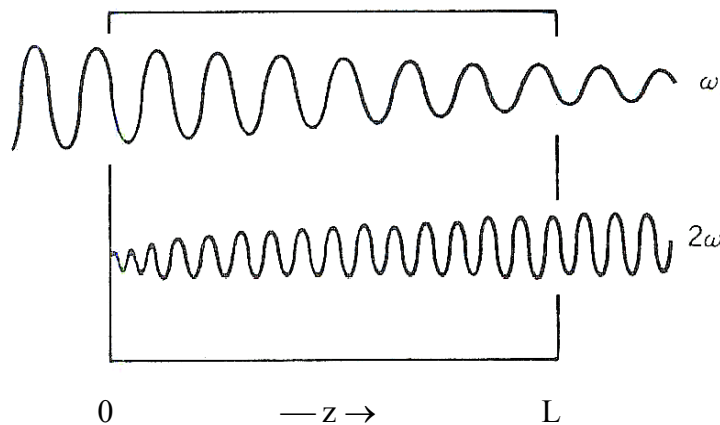
Die Frequenzverdopplung ist ein Spezialfall des oben abgeleiteten Differentialgleichungssystem für den Fall $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\omega_3 = 2\omega$ und $E_{01} = E_{02} = E^{(\omega)}$, $E_{03} = E^{(2\omega)}$. Weiterhin soll im Folgenden die Dämpfung der Wellen vernachlässigt werden, d.h. es sei $\sigma_1 = \sigma_2 = \sigma_3 = 0$.

Damit erhält man

$$\frac{d E^{(2\omega)}}{d z} = -i \omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon \varepsilon_0}} d [E^{(\omega)}]^2 e^{i \Delta k z}$$

mit $\Delta k \equiv k_3 - 2 k_1 = k^{(2\omega)} - 2 k^{(\omega)}$

Betrachtet wird die Frequenzverdopplung in einem Kristall der Länge L :



Die Effizienz der Frequenzverdopplung sei gering, so dass gilt $E^{(\omega)}(z) \approx E^{(\omega)}(0) = const.$, d.h. die Pumpwelle wird nicht erschöpft („non-depleted pump approximation“). Es wird nur die Welle $E^{(\omega)}$ eingestrahlt, also erhält man als Randbedingung $E^{(2\omega)}(0) = 0$.

Die Integration von der obigen Differentialgleichung über die Ausbreitungsrichtung z von 0 bis L liefert als Lösung die Amplitude $E^{(2\omega)}(L)$ am Ende des Kristalls

$$\begin{aligned} E^{(2\omega)}(L) &= -i \omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_{2\omega} \varepsilon_0}} d [E^{(\omega)}]^2 \int_0^L e^{i \Delta k z} dz \\ &= -i \omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_{2\omega} \varepsilon_0}} d [E^{(\omega)}]^2 \frac{e^{i \Delta k L} - 1}{i \Delta k} \end{aligned}$$

Die Intensität der frequenzverdoppelten Welle ist dann proportional zu

$$\begin{aligned} I^{(2\omega)} &\sim E^{(2\omega)}(L) E^{(2\omega)*}(L) = -\omega^2 \frac{\mu_0}{\varepsilon_0 \varepsilon_{2\omega}} d^2 |E^{(\omega)}|^4 \frac{(e^{i \Delta k L} - 1)(e^{-i \Delta k L} - 1)}{(\Delta k)^2} \\ &= \omega^2 \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \frac{1}{n_{2\omega}^2} d^2 |E^{(\omega)}|^4 L^2 \frac{(e^{i \Delta k L} - 1)(1 - e^{-i \Delta k L})}{4(\Delta k L / 2)^2} \\ &= \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \frac{\omega^2 d^2}{n_{2\omega}^2} |E^{(\omega)}|^4 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)} \end{aligned}$$

Intensität ist Leistung pro Fläche, also folgt

$$I_{2\omega} \equiv \frac{P_{2\omega}}{F} \quad \text{und} \quad I_{\omega} = \frac{P_{\omega}}{F}$$

mit der effektiven Strahlfläche F . Damit lässt sich dann schreiben

$$P_{\omega} = F I_{\omega} = F \frac{c n_{\omega} \epsilon_0}{2} |E^{(\omega)}|^2$$

$$|E^{(\omega)}|^2 = \frac{2}{c n_{\omega} \epsilon_0} \frac{P_{\omega}}{F}$$

Der Wirkungsgrad der Frequenzkonversion ist gegeben durch das Verhältnis

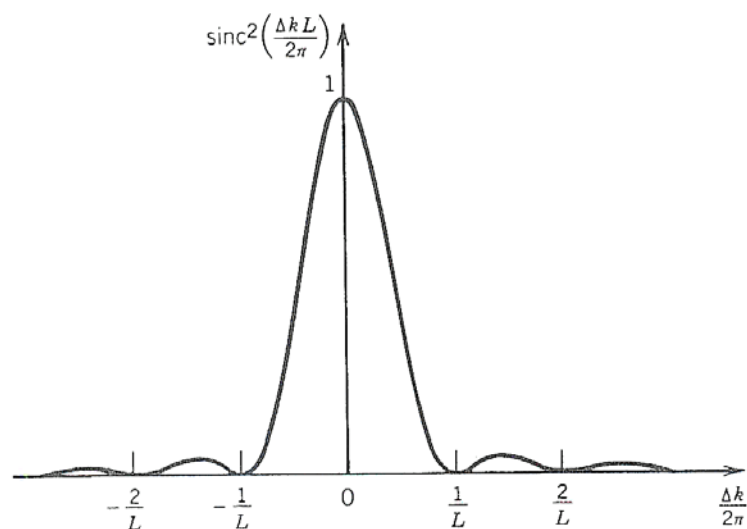
$$\eta \equiv \frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{|E^{(2\omega)}|^2}{|E^{(\omega)}|^2}$$

$$\eta = \frac{|E^{(2\omega)}|^2}{|E^{(\omega)}|^2} = \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \frac{\omega^2 d^2 L^2}{n_{2\omega}^2} |E^{(\omega)}|^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2}$$

$$= \frac{2}{c n_{\omega} \epsilon_0} \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \frac{\omega^2 d^2 L^2}{n_{2\omega}^2} \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \frac{P_{\omega}}{F}$$

$$= 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{\omega^2 d^2 L^2}{n_{2\omega}^2 n_{\omega}} \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \frac{P_{\omega}}{F}$$

Als wichtiges Resultat erhält man, dass η proportional zu den Quadraten L^2 (d.h. große Wechselwirkungslängen) und d^2 (d.h. große nichtlineare Koeffizienten) sowie zur Intensität I_{ω} der Pumpwelle ist.



Im Folgenden wird die Frequenzverdopplung unter Berücksichtigung der Pumpwellenerschöpfung, d.h. für den Fall $E^{(\omega)}(L) < E^{(\omega)}(0)$, betrachtet. Zur Vereinfachung der Schreibweise wird die folgende Definition gewählt

$$A_l = \sqrt{\frac{n_l}{\omega_l}} E_l \quad \text{mit } l = 1, 2, 3$$

Für die Intensität jeder Welle $l = 1, 2, 3$ gilt dann

$$\begin{aligned} I_l &= \frac{P_l}{F} = \frac{c n_l \varepsilon_0}{2} |E_l|^2 \\ &= \frac{c \omega_l \varepsilon_0}{2} |A_l|^2 \end{aligned}$$

Die drei gekoppelten Differentialgleichungen lauten somit

$$\begin{aligned} \frac{d A_1}{d z} &= -\frac{\alpha_1}{2} A_1 - i \kappa A_2^* A_3 e^{-i \Delta k z} \\ \frac{d A_2}{d z} &= -\frac{\alpha_2}{2} A_2 - i \kappa A_1^* A_3 e^{-i \Delta k z} \\ \frac{d A_3}{d z} &= -\frac{\alpha_3}{2} A_3 - i \kappa A_1 A_2 e^{i \Delta k z} \end{aligned}$$

mit

$$\kappa = \frac{d}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3}{n_1 n_2 n_3}}$$

$$\alpha_l = \sigma_l \sqrt{\mu_0 / (\varepsilon_0 \varepsilon_l)} \quad , \quad l = 1, 2, 3$$

$$\Delta k = -k_1 - k_2 + k_3$$

Für die Behandlung der Frequenzverdopplung setzen wir $A_1 = A_2$ für die beiden Pumpwellen mit $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, vernachlässigen die Absorption, $\alpha_l = 0$, und erhalten mit A_3 als Amplitude der frequenzverdoppelten Welle der Frequenz $\omega_3 = 2\omega$

$$\begin{aligned} \frac{d A_1}{d z} &= -i \kappa A_3 A_1^* e^{-i \Delta k z} \\ \frac{d A_3}{d z} &= -i \kappa A_1^2 e^{i \Delta k z} \end{aligned}$$

Es gelte Phasenanpassung, d.h. es sei im Folgenden $\Delta k = 0$.

Für die Lösung des Differentialgleichungssystems wird zunächst ein Phasenbezugspunkt gewählt, d.h. $A_1(0)$ sei eine reelle Größe. Damit ist dann auch $A_1(z)$ immer reell und man erhält das folgende reelle Gleichungssystem

$$\frac{d A_1}{d z} = -\kappa \hat{A}_3 A_1$$

$$\frac{d \hat{A}_3}{d z} = \kappa A_1^2$$

mit $\hat{A}_3 = +i A_3$ bzw. $A_3 = -i \hat{A}_3$

Dies lässt sich so interpretieren, dass die Amplitude A_3 zur Amplitude A_1 um $\pi/2$ phasenverschoben ist, d.h. die Amplituden A_1 und \hat{A}_3 sind in Phase.

Bei der nichtlinearen Wechselwirkung gilt mit der Randbedingung $A_3(0) = 0$ die Energieerhaltung in der Form

$$\begin{aligned} A_1^2(z) + \hat{A}_3^2(z) &= \text{const.} \\ &= A_1^2(0) \end{aligned}$$

Damit kann man schreiben

$$\frac{d \hat{A}_3}{d z} = \kappa A_1^2 = \kappa [A_1^2(0) - \hat{A}_3^2(z)]$$

oder
$$\frac{d \hat{A}_3}{A_1^2(0) - \hat{A}_3^2(z)} = \kappa dz$$

Integration der Gleichung unter Verwendung von

$$\int \frac{dx}{a^2 - x^2} = \frac{1}{a} \operatorname{atanh} \left(\frac{x}{a} \right)$$

ergibt als Ergebnis die Amplitude der frequenzverdoppelten Welle

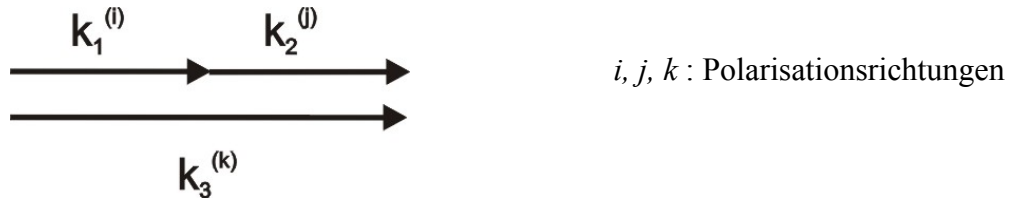
$$\hat{A}_3(z) = A_1(0) \tanh(\kappa A_1(0) z)$$

Die Effizienz der Frequenzverdopplung lautet damit

$$\eta = \frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} = \frac{|A_3(z)|^2}{|A_1(0)|^2} = \tanh^2(\kappa A_1(0) z)$$

3.2 Phasenanpassung

Voraussetzung für eine Frequenzverdopplung mit hoher Konversionseffizienz ist die Einhaltung der Phasenanpassbedingung $\Delta k = 0$. Die Forderung der Phasenanpassung ist hierbei wegen der deBroglie-Beziehung $p = \hbar k$ gleichzusetzen mit der Impulserhaltung.



mit $\Delta k = k_3^{(k)} - k_1^{(i)} - k_2^{(j)}$ und $\omega_3 = 2\omega$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ sowie

$$k_l = \frac{2\pi n_l}{\lambda_l} = \frac{\omega_l}{c} n_l, \quad l = 1, 2, 3$$

Phasenanpassung $\Delta k = 0$ bedeutet dann also

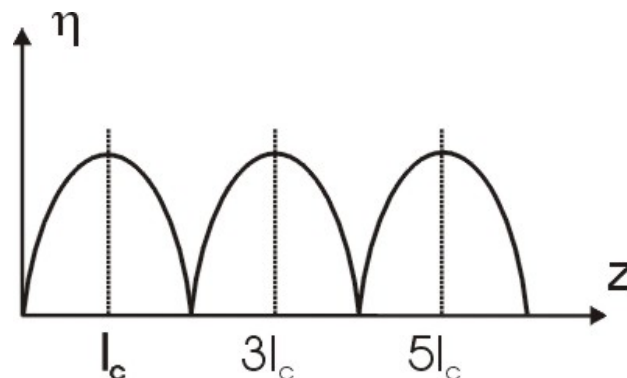
$$\frac{1}{c} (2\omega n_k^{(2\omega)} - \omega n_i^{(\omega)} - \omega n_j^{(\omega)}) = 0$$

oder $2n_k^{(2\omega)} = n_i^{(\omega)} + n_j^{(\omega)}$

Der einfachste Fall ist hier $n_i^{(\omega)} = n_j^{(\omega)}$ mit einer linear polarisierten Pumpwelle $i = j$, also

$$n^{(2\omega)} = n^{(\omega)}$$

Für den Fall, dass die Phasenanpassung nicht exakt erfüllt ist, also $\Delta k \neq 0$, breitet sich die frequenzverdoppelte Welle schneller bzw. langsamer aus als die Pumpwelle. Daher kommt es zu einer Phasendifferenz zwischen beiden Wellen, deren Größe sich mit der Ausbreitung entlang z ändert. Als Folge hiervon oszilliert die Leistung zwischen der Pump- und der frequenzverdoppelten Welle hin und her entsprechend der Sinc-Funktion $\sin^2(\Delta k x/2)/(\Delta k x/2)^2$.



Die räumliche Kohärenzlänge l_c ist hier gegeben durch

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\pi}{k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)}} = \frac{\lambda}{4(n^{(2\omega)} - n^{(\omega)})}$$

Bei $z = l_c$ sind die beiden Wellen um π außer Phase, d.h. die Leistung fließt von der frequenzverdoppelten Welle zurück zur Pumpwelle. Um eine hohe Effizienz zu gewährleisten ist daher immer Phasenanpassung Voraussetzung.

Zahlenbeispiel: Wellenlänge $\lambda = 1 \mu\text{m}$, Dispersion sei $n^{(2\omega)} - n^{(\omega)} \simeq 10^{-2}$:

$$l_c = \frac{10^{-6} \text{ m}}{4 \times 10^{-2}} = 25 \mu\text{m}$$

Die verfügbare Kristalllänge sei $L = 1 \text{ cm}$. Damit erhält man eine Erhöhung der Effizienz durch exakte Phasenanpassung $n^{(2\omega)} = n^{(\omega)}$ gegenüber dem nicht angepassten Fall um mehr als fünf Größenordnungen

$$\frac{\eta_{\text{opt}}}{\eta} \sim \left(\frac{L}{l_c} \right)^2 = 1.6 \times 10^5$$

Ein Erfüllen der Phasenanpassbedingung ist möglich durch die Ausnutzung der Doppelbrechung anisotroper Kristalle. Nichtlineare Kristalle zur Frequenzverdopplung haben kein Inversionszentrum und besitzen daher zumindest zwei verschiedene Brechungsindizes. Im Fall eines uniaxialen Kristalls ist dies der ordentliche Brechungsindex n_o und der außerordentliche Brechungsindex n_e . Für den Fall einer rein ordentlich oder außerordentlich polarisierten Pumpwelle spricht man von Typ I Phasenanpassung; hat die Pumpwelle eine Mischpolarisation, so ist dies eine Phasenanpassung vom Typ II.

Aufgrund der (normalen) Dispersion nimmt der Brechungsindex mit der Lichtfrequenz ω zu, d.h. es ist bei gleicher Polarisation stets $n^{(2\omega)} > n^{(\omega)}$. Unter Ausnutzung der Doppelbrechung ist aber einer der folgenden Fälle denkbar:

$$n_e^{(2\omega)} = n_o^{(\omega)} \quad \text{oder} \quad n_o^{(2\omega)} = n_e^{(\omega)}$$

In der folgenden Tabelle sind einige Zahlenwerte für den Kristall KDP (KH_2PO_4 , Kaliumdihydrogenphosphat) angegeben. Exakte Phasenanpassung ist demnach möglich für eine Pumpwellenlänge ω von etwa $2 \mu\text{m}$. In der Realität hat man aber meist andere Wellenlängen des Pumplichtes vorgegeben, etwa die Wellenlänge von leistungsstarken und vergleichsweise günstigen Nd:YAG- bzw. Nd:YVO₄-Lasern bei $1.064 \mu\text{m}$. Daher ist ein zusätzlicher Freiheitsgrad bei der Einstellung der Phasenanpassung notwendig. Dies ist z.B. über die Änderung der Ausbreitungsrichtung im Kristall möglich.

Table 8-2 Index of Refraction Dispersion Data of KH_2PO_4 (After Reference [8]).

Wavelength, μm	Index	
	n_o (ordinary ray)	n_e (extraordinary ray)
0.2000	1.622630	1.563913
0.3000	1.545570	1.498153
0.4000	1.524481	1.480244
0.5000	1.514928	1.472486
0.6000	1.509274	1.468267
0.7000	1.505235	1.465601
0.8000	1.501924	1.463708
0.9000	1.498930	1.462234
-> 1.0000	1.496044	ω -> 1.460993
1.1000	1.493147	1.459884
1.2000	1.490169	1.458845
1.3000	1.487064	1.457838
1.4000	1.483803	1.456838
1.5000	1.480363	1.455829
1.6000	1.476729	1.454797
1.7000	1.472890	1.453735
1.8000	1.468834	1.452636
1.9000	1.464555	1.451495
-> 2.0000	2ω -> 1.460044	1.450308

Als Beispiel wird ein unaxialer Kristall mit negativer Doppelbrechung ($n_e < n_o$) betrachtet und weiter berücksichtigt, dass der außerordentliche Brechungsindex von der Ausbreitungsrichtung im Kristall abhängt, d.h. vom Winkel θ zwischen dem Poynting-Vektor und der optischen Achse der Kristalls:

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2}$$

mit
$$n_e^{(2\omega)} < n_e^{(2\omega)}(\theta) < n_o^{(2\omega)}$$

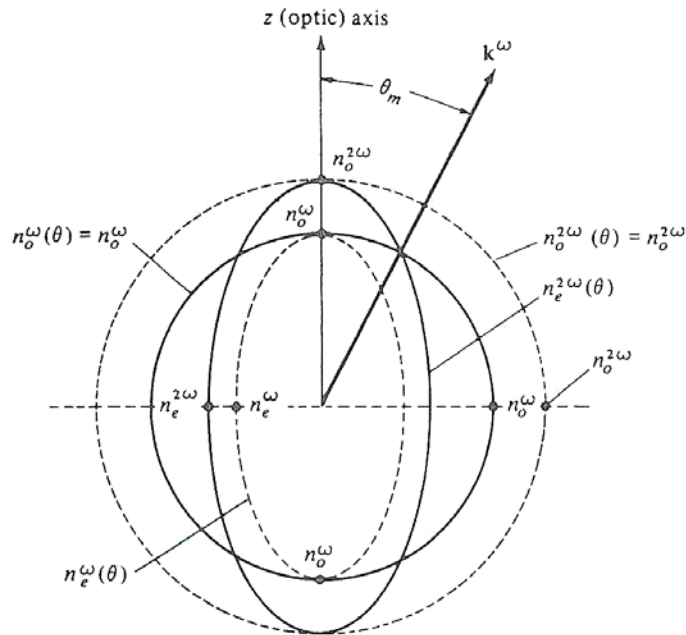
Es gibt also unter Umständen (entscheidend ist das Größenverhältnis von Doppelbrechung und Dispersion) einen Winkel θ_m , so dass gilt

$$n_e^{(2\omega)}(\theta_m) = n_o^{(\omega)}$$

In diesem Fall erhält man eine ordentlich polarisierte Pumpwelle ($i = j$) und eine außerordentlich polarisierte Frequenzverdoppelte Welle in gleicher Richtung ($k \neq i$). Den Phasenangepasswinkel θ_m ermittelt man formal durch Auflösen der obigen Gleichung, hier für den Fall negativer Doppelbrechung ($n_e < n_o$) und mit der Bedingung $n_o^{(\omega)} = n_e^{(2\omega)}(\theta_m)$:

$$\frac{1}{(n_o^{(\omega)})^2} = \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o^{(2\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e^{(2\omega)})^2}$$

$$\sin^2(\theta_m) = \frac{(n_o^{(\omega)})^{-2} - (n_o^{(2\omega)})^{-2}}{(n_e^{(2\omega)})^{-2} - (n_o^{(2\omega)})^{-2}}$$



Als Beispiel wird die Frequenzverdopplung in einem KDP-Kristall betrachtet bei der Pumpwellenlänge $\lambda^{(\omega)} = 693 \text{ nm}$ eines Rubinlasers. Mit den Zahlenwerten

$$\begin{aligned} n_e^{(\omega)} &= 1.466 & n_e^{(2\omega)} &= 1.487 \\ n_o^{(\omega)} &= 1.506 & n_o^{(2\omega)} &= 1.534 \end{aligned}$$

ergibt sich so ein Phasenanpasswinkel $\theta_m = 50.4^\circ$.

Eine andere Möglichkeit zur Phasenanpassung ist eine Mischpolarisation der Pumpwelle (Typ II Phasenanpassung). Die Pumpwelle ist hier unter 45° zur optischen Achse polarisiert ($i \neq j$), d.h. es ist nun

$$n_e^{(2\omega)}(\theta_m) = \frac{1}{2} [n_o^{(\omega)} + n_e^{(\omega)}(\theta_m)]$$

Es gelten wieder wie zuvor die Winkelabhängigkeiten für die Brechungsindizes

$$\frac{1}{(n_e^{(2\omega)})^2} = \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o^{(2\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e^{(2\omega)})^2}$$

und

$$\frac{1}{(n_e^{(\omega)})^2} = \frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o^{(\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e^{(\omega)})^2}$$

Aus der Phasenanpassbedingung folgt dann die Beziehung

$$\left(\frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o^{(2\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e^{(2\omega)})^2} \right)^{-\frac{1}{2}} = \frac{1}{2} \left(n_o^{(\omega)} + \left[\frac{\cos^2(\theta_m)}{(n_o^{(\omega)})^2} + \frac{\sin^2(\theta_m)}{(n_e^{(\omega)})^2} \right]^{-\frac{1}{2}} \right)$$

Zusammenfassung zur Phasenanpassung:

Typ I: Beide Pumpwellen $E_i^{(\omega)}, E_j^{(\omega)}$ haben gleiche Polarisation, $i = j$

Typ II: Pumpwellen $E_i^{(\omega)}, E_j^{(\omega)}$ haben verschiedene Polarisation, $i \neq j$

	positiv doppelbrechend $n_e > n_o$	negativ doppelbrechend $n_e < n_o$
Typ I	$n_o^{(2\omega)} = n_e^{(\omega)}(\theta_m)$	$n_e^{(2\omega)}(\theta_m) = n_o^{(\omega)}$
Typ II	$n_o^{(2\omega)}(\theta_m) = \frac{1}{2} (n_o^{(\omega)} + n_e^{(\omega)}(\theta_m))$	$n_e^{(2\omega)}(\theta_m) = \frac{1}{2} (n_e^{(\omega)}(\theta_m) + n_o^{(\omega)})$

Wichtig ist in diesem Zusammenhang die Tatsache, dass nicht jeder Kristall grundsätzlich auch phasenanpassbar für eine vorgegebene Wellenlänge ist. So ist z.B. der Mischkristall SBN75 ($\text{Sr}_{0.75}\text{Ba}_{0.25}\text{Nb}_2\text{O}_6$, Strontiumbariumniobat), der einen sehr großen SHG-Koeffizienten d besitzt, aber gleichzeitig eine kleine Doppelbrechung $n_o - n_e \leq 0.012$ bei einer relativ großen Dispersion $n_e^{(2\omega)} - n_e^{(\omega)} \approx 0.2$ hat, im Wellenlängenbereich $0.5 \mu\text{m} < \lambda < 3 \mu\text{m}$ nicht phasenanpassbar.

Bei Abweichungen von der Phasenanpassung kommt es zu einer deutlichen Erniedrigung der Effizienz entsprechend der Beziehung

$$\eta = \frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} \sim \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2}$$

Es sei δ die Abweichung vom Phasenanpasswinkel

$$\delta = \theta - \theta_m$$

Für kleine Abweichungen δ gilt die Näherung

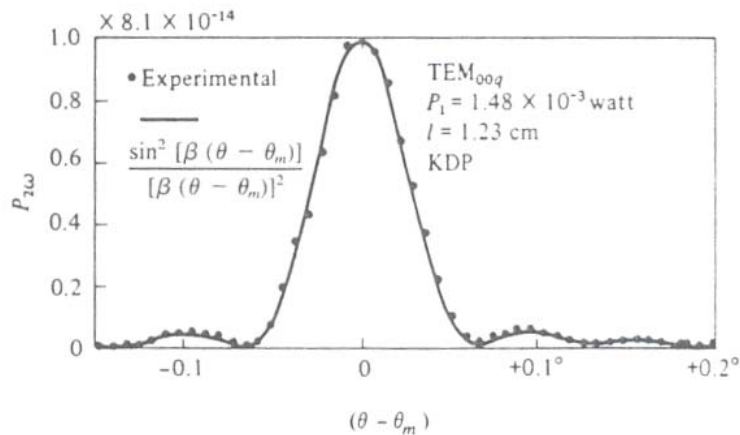
$$\Delta k(\theta) = k_e^{(2\omega)}(\theta) - 2k_o^{(\omega)} \approx 2\beta\delta$$

mit $\beta = \beta(n_o^{(\omega)}, n_o^{(2\omega)}, n_e^{(2\omega)}) = \text{const.}$

Mit Hilfe der Definition $\psi := \beta\delta L$ lässt sich dann schreiben

$$\eta = \frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} \sim \frac{\sin^2 \psi}{\psi^2}$$

Einen experimentellen Nachweis dieser Abhängigkeit zeigt die folgende Abbildung für einen KDP-Kristall.



Eine weitere Möglichkeit zur Phasenanpassung besteht über Temperaturänderungen des Kristalls wobei man ausnutzt, dass die Brechungsindizes n_o und n_e temperaturabhängig sind. Für optisch einachsige Kristalle gilt im Allgemeinen

$$\frac{\partial n_e}{\partial T} > \frac{\partial n_o}{\partial T}$$

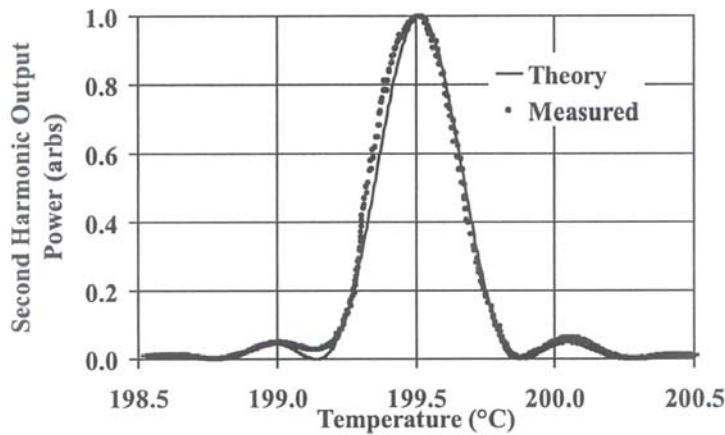
Als Beispiel wird der uniaxiale Kristall LiNbO_3 mit $n_e < n_o$ betrachtet. Lithiumniobat ist ein ferroelektrischer Kristall mit einer Curie-Temperatur $T_c \approx 1210^\circ \text{C}$. Bei Temperaturen oberhalb der Curie-Temperatur, $T > T_c$, befindet sich der Kristall in der paraelektrischen Phase und besitzt Inversionssymmetrie. Bei Temperaturen unterhalb T_c ist der Kristall ferroelektrisch, zeigt eine Spontanpolarisation P_s (deren Richtung mit dem Vorzeichen der Tensorelemente d_{ijk} verknüpft ist) und besitzt wegen der fehlenden Inversionssymmetrie unterschiedliche Brechungsindizes $n_e \neq n_o$. Ausgehend z.B. von Raumtemperatur bewirkt eine Temperaturerhöhung tendenziell ein Angleichen der beiden Brechungsindizes in der Form $n_e \rightarrow n_o$ für $T \rightarrow T_c$. Zu beachten ist weiter, dass die Größe dn/dT der Brechungsindexänderung mit der Temperatur vom Temperaturbereich sowie von der Lichtwellenlänge abhängt. Typische Zahlenwerte für LiNbO_3 lauten

$$\begin{aligned} \lambda = 0.5 \mu\text{m} & : \frac{dn_e}{dT} \approx 10^{-4} \quad , \quad \frac{dn_o}{dT} \approx 3 \times 10^{-5} \\ \lambda = 1 \mu\text{m} & : \frac{dn_e}{dT} \approx 4 \times 10^{-5} \quad , \quad \frac{dn_o}{dT} \approx 0 \end{aligned}$$

Als Näherung kann man daher schreiben

$$\frac{d(n_e - n_o)}{dT} \approx \frac{dn_e}{dT}$$

Für den Fall der Typ I Phasenanpassung ist so z.B. für das Material KDP (siehe Tabelle zu Beginn dieses Abschnitts) die Frequenzverdopplung eines Nd:YAG-Lasers der Wellenlänge $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ möglich über die Änderung der Kristalltemperatur auf die Phasenanpasstemperatur T_{pm} . Ein Beispiel zeigt die folgende Abbildung.



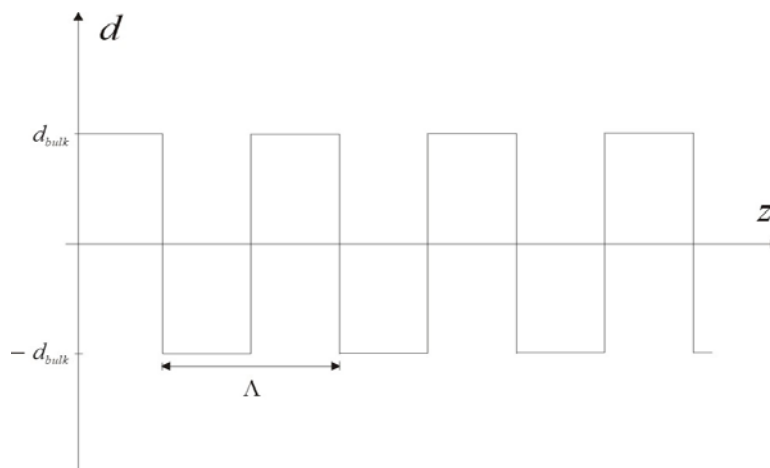
3.3 Quasi-Phasenanpassung

Ein häufig vorkommendes Problem bei der Frequenzverdopplung ist, dass Materialien wie LiNbO_3 und LiTaO_3 sehr große Diagonalelemente des d -Tensors aufweisen (z.B. d_{333}), diese aber nicht über Typ I oder Typ II Phasenanpassung nutzbar sind. Stattdessen arbeitet man, wie im vorhergehenden Abschnitt gezeigt wurde, mit zueinander orthogonal polarisierten Pump- und frequenzverdoppelten Wellen, wobei dann z.B. der Koeffizient $d_{311} \hat{=} d_{31}$ (bzw. $d_{312} = d_{36}$) genutzt wird. Für das Beispiel LiNbO_3 und LiTaO_3 beträgt das Größenverhältnis der maßgeblichen Koeffizienten $d_{333}/d_{311} \approx 3$. Falls nun der Koeffizient d_{333} genutzt werden kann, so bedeutet dies einen Gewinn von etwa einer Größenordnung in der Effizienz der Frequenzverdopplung.

Eine Lösung dieses Problems bietet die Quasi-Phasenanpassung (QPM, Quasi-Phase-Matching), bei der der nichtlineare Koeffizient in Ausbreitungsrichtung periodisch moduliert ist, also $d = d(z)$. Eine periodische Störung des nichtlinearen Koeffizienten d lässt sich entwickeln in der Form

$$d(z) = d_{\text{bulk}} \sum_m -i a_m \exp\left(i m \frac{2\pi}{\Lambda} z\right)$$

mit der Größe d_{bulk} des homogen polarisierten Kristalls, der Periodenlänge Λ und den Koeffizienten a_m der Ordnung m . Ein anwendungsnahes Beispiel ist der Fall einer rein binären Modulation $d = d(z)$ mit den Werten $\pm d_{\text{bulk}}$.



Einsetzen des allgemeinen Ansatzes für $d=d(z)$ in das zu Beginn dieses Kapitels entwickelte Differentialgleichungssystem (für den Fall $E_{01}^{(\omega_1)} = E_{02}^{(\omega_2)}$) liefert die Gleichung

$$\frac{d E_{01}^{(\omega_1)}}{d z} = -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0 \varepsilon_1}} E_{01}^{(\omega_1)} - \frac{i \omega_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0 \varepsilon_1}} d_{bulk} E_{03}^{(\omega_3)} E_{01}^{*(\omega_1)} \sum_m -i a_m \exp \left[i \left(m \frac{2 \pi}{\Lambda} - k_3 + k_1 + k_1 \right) z \right]$$

Die Phasenanpassungsbedingung lautet dann also

$$m \frac{2 \pi}{\Lambda} = \Delta k = k_3 - 2 k_1 \quad m = 1, 2, 3, \dots$$

Diese Bedingung sei für ein bestimmtes $m = n$ erfüllt; alle anderen $m \neq n$ mitteln sich dann über große Ausbreitungsstrecken $L \gg \Lambda$ weg. Die Größe des Koeffizienten a_m lässt sich durch Ausnutzen der Orthogonalität der einzelnen Summenglieder wie folgt bestimmen

$$\begin{aligned} \frac{d(z)}{d_{bulk}} &= \sum_m -i a_m \exp \left(i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) \\ \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda \frac{d(z)}{d_{bulk}} i \exp \left(-i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) & \\ &= \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda \sum_m a_m \exp \left(i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) \exp \left(-i n \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) dz = a_m \delta_{mn} \\ a_m &= \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda i \frac{d(z)}{d_{bulk}} \exp \left(-i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) dz \end{aligned}$$

Als einfachstes Beispiel für den Verlauf von $d=d(z)$ wird wieder der obige Fall mit einem Vorzeichenwechsel von d_{bulk} im Abstand einer halben Gitterperiode behandelt:

$$\begin{aligned} a_m &= \frac{i}{\Lambda} \int_0^\Lambda \frac{d(z)}{d_{bulk}} \exp \left(-i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) dz \quad (\text{mit } m \neq 0) \\ &= \frac{i}{\Lambda} \left[\int_0^{\Lambda/2} \exp \left(-i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) dz + \int_{\Lambda/2}^\Lambda -\exp \left(-i m \frac{2 \pi}{\Lambda} z \right) dz \right] \\ &= \frac{i}{\Lambda} \frac{-\Lambda}{i m 2 \pi} \left[\exp(-i m \pi) - 1 - \exp(-i m 2 \pi) + \exp(-i m \pi) \right] \\ &= \frac{1}{m \pi} \frac{1}{2} \left[1 - 2 \exp(-i m \pi) + \exp(-i m 2 \pi) \right] \\ &= \frac{1}{2 m \pi} \left[1 - 2 \cos(-m \pi) - \underbrace{2 i \sin(-m \pi)}_{=0} + \underbrace{\cos(-m 2 \pi)}_{=1} + \underbrace{\sin(-m 2 \pi)}_{=0} \right] \\ &= \frac{1}{m \pi} \frac{1}{2} \left[2 - 2 \cos(m \pi) \right] = \frac{1 - \cos(m \pi)}{m \pi} \end{aligned}$$

Für den Fall $m = 1$ erhält man somit

$$d_{eff} = a_m d_{bulk} = \frac{2}{\pi} d_{bulk}$$

Gegenüber dem Fall einer echten Phasenanpassung verringert sich die Effizienz bei der Quasi-Phasenanpassung demnach um den Faktor $\eta_{QPM} / \eta = (2/\pi)^2 \approx 0.4$.

Als Zahlenbeispiel wird die Quasi-Phasenanpassung in LiNbO₃ für die Frequenzverdopplung der Wellenlänge 1 μm betrachtet:

$$\Delta k = k_3 - 2k_1 = \frac{4\pi(n_e^{(2\omega)} - n_e^{(\omega)})}{\lambda} = \frac{4\pi}{1\mu\text{m}}(2.25 - 2.16) \approx 1.2 \times 10^6 \text{ m}^{-1}$$

$$\Lambda = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda}{2(n_e^{(2\omega)} - n_e^{(\omega)})} \approx 5 \mu\text{m}$$

Für den Fall $m = 1$ muss man also eine Periodenlänge von 5 μm bzw. eine Kohärenzlänge $l_c = 2.5 \mu\text{m}$ erreichen. Derart kleine Periodenlängen (d.h. die Strukturgröße ist gleich der halben Periodenlänge) bereiten in der Herstellung praktische Probleme. Daher wird zum Teil auch Quasi-Phasenanpassung mit Werten $m > 1$ genutzt. Für den Fall $m = 3$ benötigt man Gitterperioden von 15 μm ; gleichzeitig sinkt die relative Effizienz aber auf den Wert $\eta_{QPM, m=3} / \eta = (2/3\pi)^2 \approx 0.05$.

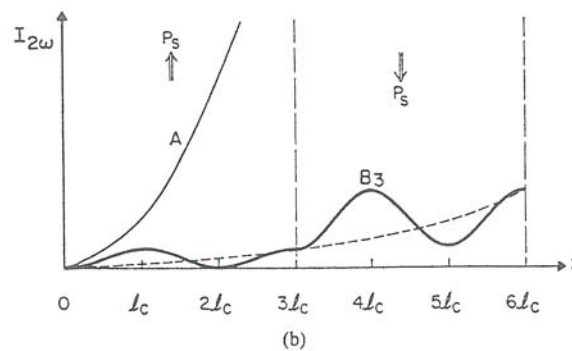
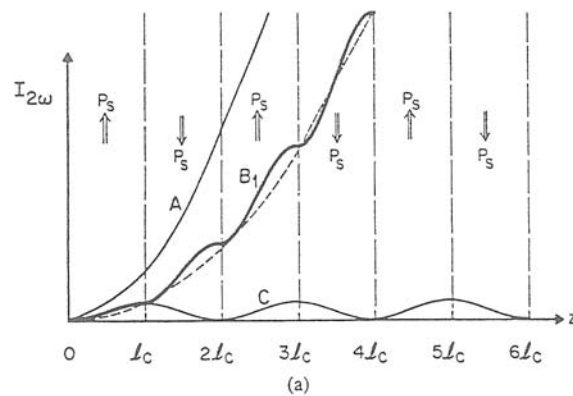


Fig. 1. Effect of phase matching on the growth of second harmonic intensity with distance in a nonlinear crystal. (a) A: perfect phase matching in a uniformly poled crystal; C: nonphase-matched interaction; B₁: first-order QPM by flipping the sign of the spontaneous polarization every coherence length of the interaction of curve C. (b) A: perfect phase matching; B₃: third-order QPM by flipping P_S every three coherence lengths.

Für die Erzeugung von gitterförmigen Strukturen zur Quasi-Phasenanpassung muss die Spontanpolarisation P_s der verwendeten ferroelektrischen Kristalle periodisch moduliert werden. Dies geschieht durch Anlegen eines elektrischen Feldes an gitterförmige Elektroden, die mit Hilfe lithographischer Techniken auf der Kristalloberfläche erzeugt werden. Der Zusammenhang $P_s(E)$ zeigt dabei das für Ferroelektrika typische Hystereseverhalten.

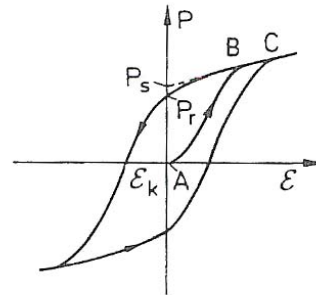
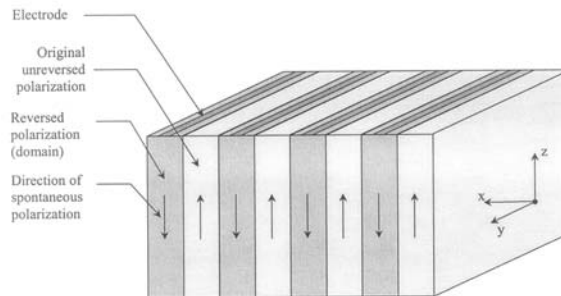


Fig. 4.14
 Hysteresekurve eines ferroelektrischen Kristalls, siehe Text.

Die nötigen Koerzitivfeldstärken E_c , bei denen das Vorzeichen der Spontanpolarisation umklappt, liegen meist oberhalb der Durchschlagfeldstärke von Luft (Beispiel LiNbO_3 : $E_c = 22 \text{ kV/mm}$), so dass unter isolierender Umgebung gearbeitet werden muss.



Der Polungsvorgang selbst kann nicht durch ein einfaches Umklappen von Domänen behandelt werden. Stattdessen handelt es sich um einen komplexen, zeitabhängigen Prozess, bei dem die Wachstumsgeschwindigkeit von Domänen von der angelegten Feldstärke abhängt und über viele Größenordnungen variieren kann. Ein schematischer Ablauf des Polungsvorgangs ist in der folgenden Abbildung gezeigt. Zunächst wachsen an den Kanten der aufgetragenen Fingerelektroden, also dort, wo die Feldstärke maximal ist, nadelartige Domänen zur Rückseite des Kristalls (a-c). Danach kommt es zu einer Verbreiterung der Domänen bzw. zu einem Verschmelzen der Nadeln miteinander (d,e), bevor der Wachstumsprozess mit abnehmender Größe der elektrischen Polungsfeldstärke entlang der transversalen Richtung zum Stoppen kommt (f). Die rechte Abbildung zeigt die durch Anätzen der Kristalloberfläche sichtbar gemachte periodische Domänenstruktur.

