

2 Nichtlineare Optik in Kristallen

Für die angewandte NLO besonders wichtige Prozesse wie die Frequenzverdopplung, die Summen- oder Differenzfrequenzbildung⁹ und die parametrische Verstärkung erfordern

$$\chi^{(2)} \neq 0.$$

In diesem Kapitel soll gezeigt werden, daß diese Bedingung nur in nicht-inversionssymmetrischen Medien erfüllt werden kann, d. h. entweder an Grenzflächen zwischen beliebigen Medien oder in Kristallen, die keine Inversionssymmetrie besitzen.

Dies erfordert zwangsläufig eine Auseinandersetzung mit der Kristalloptik, da nicht-inversionssymmetrische Kristalle beispielsweise doppelbrechend sind. Es wird sich zeigen, daß gerade diese Eigenschaft benutzt werden kann, um die "phase matching"-Bedingung zu erfüllen. (Im folgenden steht häufig "PM" für "phase matching").

2.1 Konsequenzen der Symmetrien des Mediums

In Kristallen ist $\chi^{(2)}$ keine skalare Größe, sondern genau wie $\chi^{(1)}$ ein Tensor. Es gilt

$$P_i^{NL}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega; \omega', \omega'') E_j(\omega') \cdot E_k(\omega'') \quad (1)$$

i, j und k stehen hier für die kartesischen Koordinaten x, y und z . Der Tensor $\chi_{ijk}^{(2)}$ besitzt 27 Komponenten, doch bestehen zwischen diesen zahlreiche Beziehungen. Beispielsweise ist die Reihenfolge der Feldkomponenten offenbar willkürlich. Das hat zur Folge, daß gelten muß

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega; \omega', \omega'') = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega; \omega'', \omega'). \quad (2)$$

(Zu beachten ist, daß die Frequenzen mitgetauscht werden müssen.) Häufig ist die Frequenzabhängigkeit uninteressant (z. B. bei der Frequenzverdopplung: $\omega' = \omega''$); man führt dann üblicherweise ein

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (3)$$

und hat dann die Beziehung

$$d_{ijk} = d_{ikj}. \quad (4)$$

Der Tensor d_{ijk} besitzt demnach nur 18 unabhängige Komponenten.¹⁰ Im folgenden soll die Bezeichnung χ_{ijk} gewählt werden; die Frequenzabhängigkeit soll nicht beachtet werden

⁹Die Differenzfrequenzbildung erlaubt einerseits, durch "Frequenzmischung" zweier "sichtbarer" Laser kohärente Strahlung im mittleren oder fernen Infrarot zu erzeugen (MIR oder FIR). Andererseits erlaubt sie, die "up-conversion" eines MIR- oder FIR-Signales durchzuführen, d. h. die Umsetzung in das Sichtbare oder nahe Infrarot (NIR), in dem gute Detektoren zur Verfügung stehen.

¹⁰Es ist sehr verbreitet, für x und xx den Index 1, für y und yy den Index 2, für z und zz den Index 3, für yz und zy den Index 4, für xz und zx den Index 5 und für xy und yx den Index 6 einzuführen. Aus $d_{xxz} = d_{x(xz)}$ wird dann d_{15} , usw.

Es ist wichtig zu wissen, daß die Beziehung

$$d(SI) = \frac{4\pi}{3 \cdot 10^4} d(esu)$$

und es wird nicht mehr angegeben, daß es sich um die quadratische Nichtlinearität handelt.

Bei einer Koordinatentransformation

$$x'_\kappa = \sum_\lambda T_{\kappa\lambda} x_\lambda \quad (5)$$

transformiert sich χ gemäß

$$\chi'_{\lambda'\mu'\nu'} = \sum_{\lambda\mu\nu} T_{\lambda'\lambda} T_{\mu'\mu} T_{\nu'\nu} \chi_{\lambda\mu\nu}.$$

Wenn T in der betreffenden Kristallklasse eine Symmetrieoperation ist, so können wir das gestrichene und das ungestrichene System nicht unterscheiden und erhalten die Beziehung

$$\chi_{\lambda'\mu'\nu'} = \sum_{\lambda\mu\nu} T_{\lambda'\lambda} T_{\mu'\mu} T_{\nu'\nu} \chi_{\lambda\mu\nu}. \quad (6)$$

Beispiel 1: Wenn das Medium inversionssymmetrisch ist, so ist

$$T_{\lambda'\lambda} = (-1)\delta_{\lambda'\lambda}$$

eine Symmetrieoperation. Daraus folgt

$$\chi_{\lambda\mu\nu} = (-1)^3 \cdot \chi_{\lambda\mu\nu}$$

und damit

$$\chi_{\lambda\mu\nu} = 0 \quad \text{für alle } \lambda, \mu, \nu.$$

In inversionssymmetrischen Medien gibt es demnach keine quadratischen Nichtlinearitäten.¹¹

Beispiel 2: Ein beliebiger Kristall der NLO ist KDP (Kalium-dihydrogenphosphat). Er gehört zur Kristallklasse $\bar{4}2m$. Symmetrieoperationen sind

- (a) 180°-Drehung um x -Achse
- (b) 180°-Drehung um y -Achse
- (c) 90°-Drehung um z -Achse mit anschließender Inversion

Die Transformationsmatrizen zu (a), (b) und (c) sind

$$T^{(a)} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}; \quad T^{(b)} = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}; \quad T^{(c)} = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}$$

Aus der Transformation (a) folgt

$$\chi_{\lambda\mu\nu} = T_{\lambda\lambda}^{(a)} \cdot T_{\mu\mu}^{(a)} \cdot T_{\nu\nu}^{(a)} \chi_{\lambda\mu\nu}$$

gilt, bzw.

$$d(SI) = 3,68 \cdot 10^{-15} d(esu),$$

falls ϵ_0 eingeschlossen ist. d wird fast immer in "esu" (electrostatic units) angegeben — meistens ohne jede Dimensionsangabe.

¹¹In einem inversionssymmetrischen Medium muß P sein Vorzeichen ändern, wenn E sein Vorzeichen ändert. Deshalb muß P eine ungerade Funktion von E sein.

mit der Folge

$$\begin{aligned}
\chi_{xxy} &= \chi_{xyx} = (-1)\chi_{xxy} = 0 \\
\chi_{yxx} &= (-1)\chi_{yxx} = 0 \\
\chi_{xxz} &= \chi_{zxx} = (-1)\chi_{xxz} = 0 \\
\chi_{yzz} &= (-1)\chi_{yzz} = 0 \\
\chi_{zxx} &= (-1)\chi_{zxx} = 0 \\
\chi_{yyy} &= (-1)^3\chi_{yyy} = 0 \\
\chi_{zzz} &= (-1)^3\chi_{zzz} = 0 \\
\chi_{yyz} &= \chi_{zyy} = (-1)^3\chi_{yyz} = 0 \\
\chi_{zzz} &= \chi_{zyz} = (-1)^3\chi_{zzz} = 0 \\
\chi_{zyy} &= (-1)\chi_{zyy} = 0
\end{aligned}$$

Ganz ähnlich liefert uns die Symmetrieoperation (b) die weiteren Bedingungen

$$\begin{aligned}
\chi_{yyx} &= \chi_{xyx} = (-1)\chi_{yyx} = 0 \\
\chi_{xyy} &= (-1)\chi_{xyy} = 0 \\
\chi_{xzz} &= (-1)\chi_{xzz} = 0 \\
\chi_{xxx} &= (-1)^3\chi_{xxx} = 0 \\
\chi_{zxx} &= \chi_{zzx} = (-1)\chi_{zxx} = 0
\end{aligned}$$

Von Null verschieden sein können nur die Größen

$$\chi_{xyz} = \chi_{xzy}; \chi_{yxz} = \chi_{yzx}; \chi_{zxy} = \chi_{zyx}$$

Die Symmetrieoperation (c) liefert hierzu noch die Relation

$$\begin{aligned}
\chi_{xyz} &= T_{xy}T_{yx}T_{zz} \cdot \chi_{yxz} \\
&= (-1)^2\chi_{yxz} = \chi_{yxz}
\end{aligned}$$

Tatsächlich brauchen also nur die beiden Komponenten χ_{xyz} und χ_{zxy} bestimmt zu werden. Aus thermodynamischen Überlegungen kann man allerdings folgern, daß die Beziehung

$$\chi_{\lambda\mu\nu} = \chi_{\mu\lambda\nu}$$

näherungsweise erfüllt ist. Diese Beziehung trägt den Namen ‘‘Kleinmansche Vermutung‘‘. Im Falle von KDP ist bei $\lambda = 1,06\mu$ gemessen worden

$$\begin{aligned}
\chi_{xyz} &= \chi_{xzy} = (0,98 \pm 0,04) \cdot 10^{-12} m/V \\
\chi_{zxy} &= 0,94 \cdot 10^{-12} m/V.
\end{aligned}$$

Bekanntlich existieren 32 Kristallklassen. Von ihnen sind 21 nicht inversionssymmetrisch und damit prinzipielle Kandidaten für quadratische Nichtlinearitäten. Für alle Kristallklassen ist natürlich bekannt, welche Koeffizienten nicht-verschwindend sein können und welche weiteren Relationen bestehen.¹²

Anmerkung: An der Grenzfläche zwischen zwei Medien und insbesondere zwischen einem Medium und dem Vakuum, d. h. an einer Oberfläche, herrscht in aller Regel keine Inversionssymmetrie. Dadurch treten an Oberflächen grundsätzlich quadratische Nichtlinearitäten auf, und zwar auch an isotropen Medien. Diese Eigenschaft kann ausgenutzt werden, um Oberflächenuntersuchungen durchzuführen. Ein Beispiel für die Anwendung dieser Idee ist die Untersuchung von monoatomaren Schichten von Molekülen auf Flüssigkeitsoberflächen (Langmuir–Blodgett–Schichten).

¹²Es ist kein Zufall, daß quadratische Nichtlinearitäten in Kristallen auftreten, in denen auch ein Pockelseffekt beobachtet wird.

2.2 Phasenanpassung im Fall einer quadratischen Nichtlinearität

Die übliche Lösung des Problems der Phasenanpassung soll hier am Beispiel der Frequenzverdopplung demonstriert werden. Bei anderen Prozessen liegen die Verhältnisse ganz ähnlich.

Die PM-Bedingung erfordert

$$k^{2\omega} = 2k^\omega$$

und damit ergibt sich für den Brechungsindex die Bedingung

$$n^{2\omega} = n^\omega.$$

(Die hochgestellten Indizes kennzeichnen, ob die jeweilige Größe sich auf Grund- oder Oberwelle bezieht.) Wegen der Dispersion ist diese Bedingung im allgemeinen verletzt; bei normaler Dispersion ist nämlich $n^{2\omega} > n^\omega$.

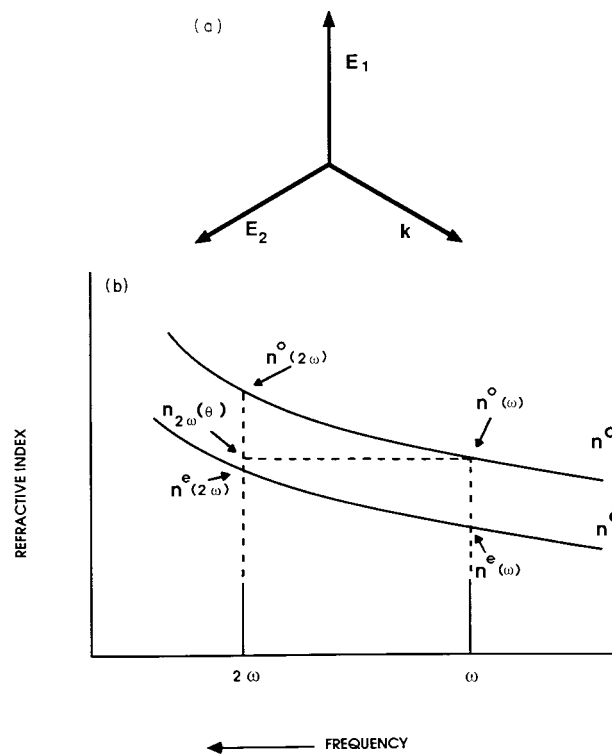


Abbildung 10: Abhängigkeit der Größen n_o und n_{ao} bei einem negativ einachsigen Kristall von der Frequenz

Kristalle, die keine Inversionssymmetrie besitzen, sind grundsätzlich doppelbrechend. Es existiert dann ein “ordentlicher“ und ein “außerordentlicher“ Brechungsindex (n_o und n_{ao}). Die Idee für die Phasenanpassung besteht jetzt darin, dafür zu sorgen, daß

$$n_o^{2\omega} = n_{ao}^\omega \quad (7a)$$

oder

$$n_{ao}^{2\omega} = n_o^\omega \quad (7b)$$

(vgl. Abb. 10). Wir wollen im folgenden nur uniaxiale Kristalle betrachten; nur diese spielen in der NLO eine Rolle.

Im ‘‘ordentlichen Strahl‘‘ steht der E-Vektor auf der optischen Achse senkrecht. Der Brechungsindex n_o hangt dann nicht von der Ausbreitungsrichtung ab. Beim ‘‘auerordentlichen Strahl‘‘ liegt der E-Vektor in der von der Ausbreitungsrichtung und der optischen Achse aufgespannten Ebene. Der Winkel zwischen Ausbreitungsrichtung und optischer Achse sei ϑ . Der auerordentliche Brechungsindex hangt von ϑ ab, und zwar ist

$$n_{ao}(\vartheta) = \frac{n_{eo}n_o}{\sqrt{n_o^2 \sin^2 \vartheta + n_{eo}^2 \cos^2 \vartheta}} \quad (8)$$

(Dies ist die Gleichung eines Rotationsellipsoids um die optische Achse.) Speziell ist

$$n_{ao}(90^\circ) = n_{eo}$$

$$\lim_{\vartheta \rightarrow 0} n_{ao}(\vartheta) = n_o$$

(Fur $\vartheta = 0$ existiert kein auerordentlicher Strahl.) Man verwendet folgende Terminologie:

$$\left. \begin{array}{l} n_{eo} > n_o \quad \text{’’positiv’’} \\ n_{eo} < n_o \quad \text{’’negativ’’} \end{array} \right\} \text{einachsige Kristalle’’}.$$

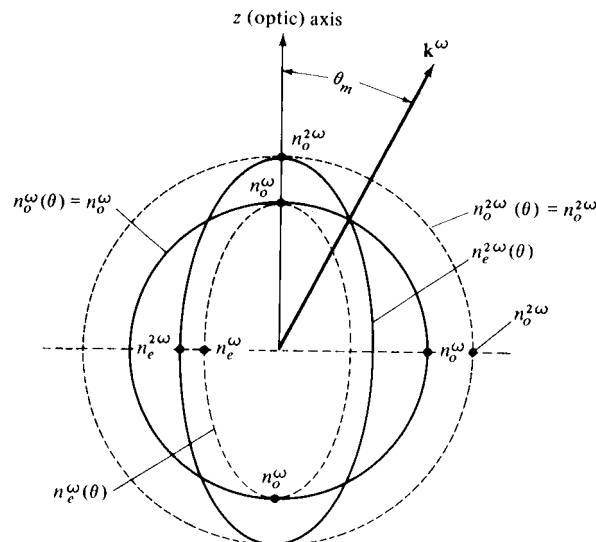


Abbildung 11: Indexellipsoid fur einen negativ einachsigen Kristall fur die Fundamentale und die Harmonische.

Bei normaler Dispersion ist $n(2\omega) > n(\omega)$. Daher kann bei negativ einachsigen Kristallen ein Winkel ϑ_m gefunden werden, so da

$$n_{ao}^{2\omega}(\vartheta_m) = n_o^\omega \quad (9a)$$

(vgl. Abb. 11) und bei positiv einachsigen, so daß

$$n_o^{2\omega} = n_{ao}^\omega(\vartheta_m), \quad (9b)$$

sofern nur die Doppelbrechung groß genug ist im Vergleich zur Dispersion. ϑ_m wird als “phase matching“-Winkel bezeichnet. ϑ_m ist natürlich wellenlängenabhängig.

Da man bei einem Kristall zweckmäßigerweise in der Nähe der geometrischen Längsachse einstrahlt, muß der Kristall “geeignet geschnitten sein“, d. h. die (optische) Kristallachse muß in etwa den Winkel ϑ_m mit der geometrischen Achse einschließen. Der Kristall läßt sich deshalb nur in einem gewissen Wellenlängenintervall benutzen, in dem dann die PM-Bedingung durch Feinjustierung von ϑ erreicht werden kann.

Unkritische Phasenanpassung:

Da nichtlineare Prozesse mit der Intensität stark zunehmen, wird man versuchen, durch Fokussierung die Intensität zu erhöhen. Dabei tritt aber notwendigerweise eine gewisse Winkelverteilung von \vec{k} um ϑ_m auf. Es sei jetzt $\vartheta = \vartheta_m + \Delta\vartheta$ ($\Delta\vartheta \ll 1$). Dann ergibt sich eine Fehlanpassung (“mismatch“)

$$\Delta k = k^{2\omega} - 2k^\omega = \frac{2\omega}{c} [n_{ao}^{2\omega}(\vartheta_m + \Delta\vartheta) - n_o^\omega]; \quad (10)$$

dabei haben wir $n_{ao} < n_o$ angenommen. Für kleine $\Delta\vartheta$ ist

$$\begin{aligned} n_{ao}^{2\omega}(\vartheta_m + \Delta\vartheta) &= n_{ao}^{2\omega}(\vartheta_m) + \Delta\vartheta \cdot \left. \frac{dn_{ao}}{d\vartheta} \right|_{\vartheta_m} \\ &= n_o^\omega + \Delta\vartheta \cdot \left. \frac{dn_{ao}}{d\vartheta} \right|_{\vartheta_m} \end{aligned}$$

Wir finden näherungsweise (unter Vernachlässigung der Dispersion)

$$\Delta k \approx -\frac{2\omega}{c} (n_{ao} - n_o) \cdot \sin \vartheta_m \cdot \Delta\vartheta \quad (11)$$

Daraus folgt ¹³

$$\Delta k \approx 0, \quad \text{falls } \vartheta_m = 90^\circ.$$

In diesem Fall haben die Kugel, die den ordentlichen Brechungsindex repräsentiert, und das Rotationsellipsoid, das den außerordentlichen Brechungsindex repräsentiert, eine gemeinsame Tangentialebene: sie ”schmiegen sich aneinander an“. Das “90°-Phasematching“ ist also unempfindlich gegen Winkelabweichungen (“unkritisches Phasematching“).

Das 90°-PM läßt sich für eine vorgegebene Wellenlänge manchmal durch eine Temperaturvariation erreichen (vgl. Abb. 12). Man nutzt dabei aus, daß n_{ao} stark temperaturabhängig ist, n_o aber kaum. (Dies hat natürlich zur Folge, daß kritische Anwendungen immer verlangen, daß die Kristalltemperatur auch im Fall des “kritischen PM“ hinreichend konstant gehalten wird.)

¹³Dies Ergebnis kann man auch ohne jede Rechnung erhalten: im Falle $\vartheta_m = 90^\circ$ haben die Ellipse $n_{ao}^\omega(\vartheta)$ und der Kreis $n_o^{2\omega}(\vartheta) = n_o^{2\omega}$ bzw. die Ellipse $n_{ao}^\omega(\vartheta)$ und der Kreis $n_o^\omega(\vartheta) = n_o^\omega$ eine gemeinsame Tangente. Bei kleinen Variationen von ϑ um 90° bleibt deshalb die Differenz der Brechungsindizes sehr klein.

Das 90° -PM sollte auch deshalb angestrebt werden, weil im außerordentlichen Strahl anders als im ordentlichen nur für $\vartheta_m = 90^\circ$ der k -Vektor und der Poyntingvektor (Richtung des Energieflusses) parallel sind. Ordentlicher und außerordentlicher Strahl laufen deshalb im allgemeinen auseinander ("walk-off"-Effekt). Dadurch wird die Wechselwirkungslänge für die Harmonischenerzeugung begrenzt.

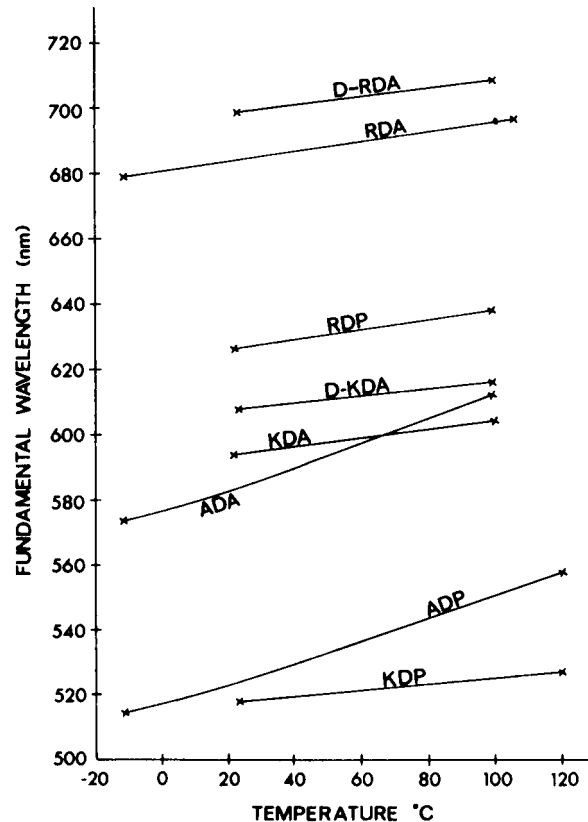


Abbildung 12: Temperaturabhängigkeit der Wellenlänge der Grundwelle für 90° -Phasematching bei der Frequenzverdopplung, dargestellt für Isomorphe des Kaliumdihydrogenphosphats (KOP)

Typ I und Typ II – Phasematching

Wenn die nichtlinear gekoppelten Feldstärkekomponenten der Grundwelle beide dem ordentlichen oder beide dem außerordentlichen Strahl angehören, so spricht man von Typ I-Phasen Anpassung. Wird eine Komponente des ordentlichen Strahles mit einer Komponente des außerordentlichen Strahles gekoppelt, so spricht man von Typ II-Phasen Anpassung. Die Typ I-Phasen Anpassung ist vorzuziehen, aber in Sonderfällen ist der Typ II nicht zu vermeiden.

Anmerkung:

Bei OPOs erfolgt die grobe Festlegung der Emissionswellenlänge durch die PM-Bedingung. Sie läßt sich also durch Temperatur- oder Winkelvariation verändern (vgl. Abb. 13). Im "Entartungspunkt" $\omega_1 = \omega_2$ ist die Frequenzselektivität gering und daher die Emissionsbandbreite des OPO groß.

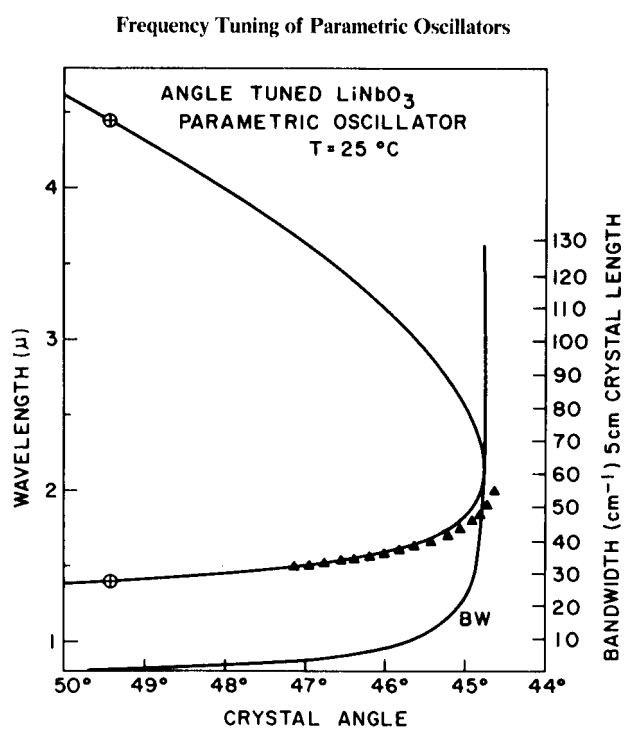


Abbildung 13: Abstimmbereich und Bandbreite bei einem LiNbO_3 -(Kristall)-OPO, der von einem Nd-YAG-Laser gepumpt wird ($\lambda = 1,06\mu$).