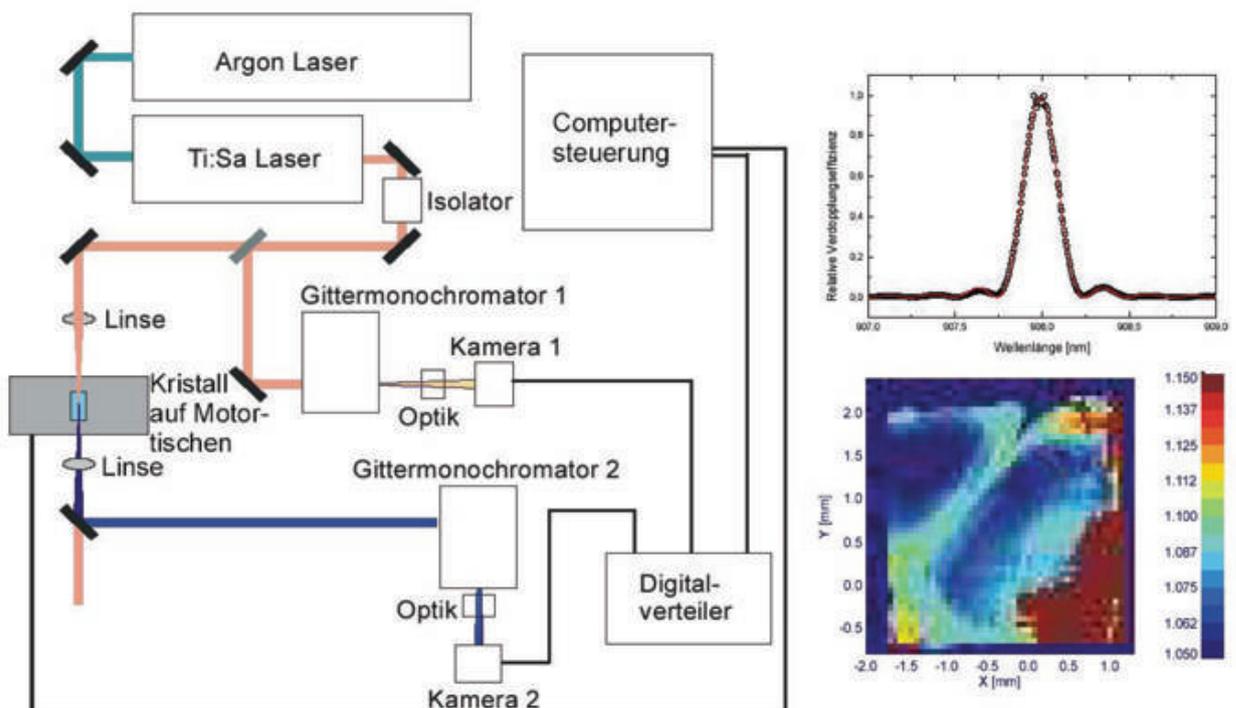


Entwicklung und Anwendung neuer zerstörungsfreier Messmethoden zur Charakterisierung optisch nichtlinearer Kristalle für die Phasen- und Quasiphasenanpassung



**Entwicklung und Anwendung
neuer zerstörungsfreier Messmethoden
zur Charakterisierung
optisch nichtlinearer Kristalle
für die Phasen- und
Quasiphasenanpassung**

Dissertation

Lars Knut Friß

Vom Fachbereich Physik der Technischen Universität Kaiserslautern
zur Verleihung des akademischen Grades
„Doktor der Naturwissenschaften“
genehmigte Dissertation

Betreuer: Prof. Dr. R. Wallenstein

Zweitgutachter: Prof. Dr. R. Beigang

Datum der wissenschaftlichen Aussprache: 08.04.2005

D386

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2005

Zugl.: Kaiserslautern, Univ., Diss., 2005

ISBN 3-86537-574-X

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2005

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2005

Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-86537-574-X

**Gewidmet meinen Eltern
Anni und Hermann Frieß**

Abstract

Development and application of new non destructive methods for the characterization of nonlinear optical crystals for phase-matching and quasi-phase-matching

This work describes the experimental investigation of new methods for the spatially resolved characterization of nonlinear optical crystals. These methods were designed to investigate crystal properties which take effect on the conversion efficiency in nonlinear mixing processes. Characteristic properties of the nonlinear optical crystals such as the uniformity of the natural birefringence (given by the homogeneity parameter α), the wavelength acceptance, the phase matching wavelength, the phase matching temperature and the variation of the phase matching wavelength with the crystal temperature, were measured. A detailed understanding of the influence of the measured properties on frequency conversion processes provides important feedback to crystal design and crystal growth.

For the investigation of these parameters, the power of the second - harmonic generated wave was measured in dependence on the wavelength of the fundamental wave. In order to compare the experimental results with analytical predictions, low pump powers were used, so that pump depletion could be neglected. The phase velocities of the travelling waves in the SHG process were matched by collinear phase matching.

A drawback of conventional methods for the characterization of nonlinear optical crystals is the long measuring time. In these experiments, the pump wavelength acceptance curve is measured by tuning the wavelength of the fundamental wave while the crystal temperature is fixed. Due to the long measuring time this scanning technique is not suitable for two-dimensional highly spatially resolved investigations of nonlinear optical crystals with common apertures. For that reason, a new fast technique for two dimensional investigations of nonlinear optical crystals was developed. The fs-pulses of a Ti:Sapphire laser were focussed into the crystal with a beam waist of $80 \mu\text{m}$. The spectra of fs laser pulses are wider than the pump wavelength acceptance of the investigated nonlinear optical crystals. In addition, the laser power varied little within the wavelength range which was converted into second harmonic radiation. These facts allow the generation and measurement of the complete wavelength dependence of the conversion efficiency by one single ultra-short fs-laser pulse. Thus for the first time, measurements of these important crystal properties with a high spatial resolution in two dimensions were possible. The crystal properties could be measured with a spatial resolution of $80 \mu\text{m}$, a high long time stability with a relative error of less than 1 % for the investigated properties (α , the wavelength acceptance and the

phase matching wavelength). The system has a high absolute accuracy with errors of less than 5 % for the homogeneity parameter α . With the realized experimental setup, crystals for second harmonic generation of fundamental radiation in the range from 680 - 1100 nm can be characterized (limited by the Ti:Sapphire spectral range).

One main application in this thesis was the investigation of nonlinear crystals designed for frequency doubling of laser radiation at 860 nm. The crystals were investigated to test the new experimental method and to achieve information on the properties and the quality of the available crystals. The measurement methods were used for spatially resolved characterization of the nonlinear optical materials potassium niobate (KNbO_3), potassium niobate with changes in stoichiometry (S- KNbO_3) and bismuth borate (BiB_3O_6).

The material properties for high quality potassium niobate were determined to get standard values. Comparison to these values allow for quality grading of other crystals. With the used experimental method, spatially variations of the investigated parameters were detected within all the crystals. These variations were mainly attributed to ferroelectric domains.

S- KNbO_3 was investigated to test the material and to describe the differences to KNbO_3 . The crystal was of low quality with a homogeneity parameter of $\alpha = 1,53$. At a position within the crystal with a good birefringence homogeneity, various crystal properties, like the wavelength acceptance bandwidth, the temperature acceptance and the angular acceptance bandwidth, were measured. Especially the deviation of the phase-matching-temperature of about 3 °C in comparison to KNbO_3 should be mentioned.

BiB_3O_6 is a new attractive material for frequency conversion. For that reason, the measurement methods were used for spatially resolved characterization of BiB_3O_6 . Important properties of this material, such as temperature acceptance, the angular acceptance and the wavelength acceptance for frequency doubling of laser radiation at 860 nm, were measured for the first time. Due to the wide wavelength acceptance ($(1,34 \pm 0,03)$ nm·cm), the material is well suited for SHG of ultra short laser pulses.

In the last part of this thesis, the established Schlieren method was extended to characterize crystals for quasi - phase - matching (QPM). The method is also applicable for spatially resolved investigations of internal fields in the crystals.

This method allows for nondestructive investigations of crystals after the domain inversion. Without etching the surface of the QPM crystals, visualization of the periodic structure within QPM crystals was possible.

Internal fields were detected for the first time in potassium niobate after the domain inversion. These internal fields affect the refractive indices n_a due to the electro-optical-effect. With the Schlieren method, the magnitude of the internal fields was determined to

4,8 V/mm.

The measurement methods for the characterization of nonlinear optical crystals, presented in this thesis, provide a base for further investigations of optical properties which influence the conversion efficiency in frequency conversion processes.

Kurzdarstellung

Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Entwicklung, experimentellen Realisierung und Anwendung neuer Messmethoden zur Untersuchung von die Frequenzkonversionseffizienz beeinflussenden Eigenschaften optisch nichtlinearer Kristalle für die Phasen- und Quasiphasenanpassung. Die Messmethoden sollten zerstörungsfreie, räumlich zweidimensional aufgelöste präzise quantitative Messungen ermöglichen.

Im ersten Teil dieser Arbeit wird ein Verfahren zur Untersuchung der Doppelbrechungshomogenität, der Wellenlängenakzeptanzbandbreite, der Phasenanstimmungstemperatur, der Phasenanstimmungswellenlänge und der Temperaturabhängigkeit der Phasenanstimmungswellenlänge vorgestellt.

Zur Bestimmung dieser Parameter ist es notwendig, die Wellenlängen- oder Temperaturabhängigkeit der relativen Konversionseffizienz (Akzeptanzkurve) genau zu bestimmen.

In bisherigen experimentellen Realisierungen zur Bestimmung von Akzeptanzkurven wurde dies durch Änderung der Temperatur des nichtlinearen Kristalls [Na69] oder der Wellenlänge der eingestrahlten Fundamentalstrahlung [Pl95] bewerkstelligt. Diese Methoden sind sehr zeitaufwendig, was die räumliche Auflösung limitiert. Von V. Wesemann [We02] wurden ultrakurze Laserimpulse zur Bestimmung der Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Wellenlänge vorgeschlagen. Das breite Spektrum von fs-Laserimpulsen ist ausreichend, um die gesamte Akzeptanzkurve eines optisch nichtlinearen Kristalls in einer Art „Ein-Schuß-Verfahren“ zu erzeugen und zu messen.

Auf diesem Prinzip wurde ein neuer experimenteller Aufbau realisiert, charakterisiert und optimiert, mit dem die oben beschriebenen Parameter gemessen werden können.

Das entwickelte Verfahren besitzt eine hohe räumliche Auflösung von $80\ \mu\text{m}$ und eine hohe Langzeitstabilität mit Abweichungen unter 1 % für die untersuchten Parameter und eine hohe Absolutgenauigkeit. Die Phasenanstimmungswellenlänge kann in Abhängigkeit von der Temperatur mit einer Genauigkeit von $\pm 0,13\ \text{nm}$ bestimmt werden. Der relative Fehler bei der Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α liegt unter 5 %.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Charakterisierung optisch nichtlinearer Materialien für die Frequenzverdopplung der Strahlung für eine Fundamentalwellenlänge von 860 nm. So konnte die Leistungsfähigkeit der neuen Messmethode gezeigt und verschiedene Materialien umfassend charakterisiert werden.

Durch Untersuchung mehrerer Kaliumniobat KNbO_3 - Kristalle mit ultrakurzen Laserimpulsen wurden die besten Kristalle bestimmt und Referenzwerte für die oben angesprochenen Eigenschaften bestimmt. Mit der in dieser Arbeit entwickelten Messmethode konnten in bisher als sehr homogen eingeschätzten Kristallen eindeutige räumliche Variationen der

Kristallparameter bestimmt werden. Die Ursachen der Variationen sind in erster Linie auf ferroelektrische Domänen innerhalb der Kristalle zurückzuführen.

Für diese Arbeit stand ein KNbO_3 - Kristall mit veränderter Stöchiometrie zur Verfügung. Veränderungen der Stöchiometrie können zur Variation bzw. Verbesserung optischer Eigenschaften führen. Deshalb wurde der Kristall für die Erzeugung der zweiten Harmonischen bei einer Fundamentalwellenlänge von 860 nm umfassend zweidimensional aufgelöst charakterisiert. In den Untersuchungen zur Bestimmung der Homogenität der Doppelbrechung erwies sich der Kristall als sehr inhomogen mit einem über den Kristall gemittelten Wert des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α von 1,53. Das Material hat mit seiner geringen Homogenität und seiner früher einsetzenden Absorption im kurzwelligen Bereich (≈ 500 nm) eindeutige Nachteile zu konventionellen KNbO_3 . Auffallend war bei dem Material eine deutlich abweichende (3°C höhere) Phasenangepasstemperatur für nicht-kritische Phasenangepasstung, was als Indiz für eine Variation der Stöchiometrie angesehen werden kann.

BiB_3O_6 ist ein attraktives neues Material zur Frequenzkonversion. Mit der realisierten Messmethode wurde deshalb das Material erstmals für eine Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm zweidimensional aufgelöst charakterisiert. Wichtige Kristalleigenschaften von BiB_3O_6 wurden erstmals gemessen. Ein großer Vorteil von BiB_3O_6 ist das im Vergleich zu KNbO_3 sehr große Wellenlängenakzeptanzbandbreiten-Längenprodukt von $(1,34 \pm 0,03)$ nm·cm. In BiB_3O_6 kann, wie es für die Erzeugung von kurzen frequenzkonvertierten Laserimpulsen notwendig ist, ein breites Frequenzspektrum konvertiert werden. Ein weiterer Vorteil ist die geringe Temperaturabhängigkeit der Phasenangepasstwellenlänge im Vergleich zu KNbO_3 . BiB_3O_6 ist also insbesondere geeignet für Systeme mit geringer Temperaturstabilität und für die Frequenzverdopplung ultrakurzer Laserimpulse.

Im zweiten Teil der vorliegenden Dissertation wurde das etablierte Schlierenverfahren in Hinblick auf eine neue räumlich aufgelöste Methode zur Charakterisierung von Kristallen für die Quasiphasenangepasstung optimiert. Mit dem Verfahren ist die zerstörungsfreie Untersuchung von Kristallen nach einer Domäneninversion möglich. Ohne aufwendiges Anätzen des Kristalls kann die periodische Struktur in QPM-Kristallen sichtbar gemacht werden, wodurch Rückschlüsse auf die wichtigen Kristalleigenschaften gezogen werden können. Mit dem Verfahren konnten erstmals kristallinterne Felder nachgewiesen werden, die nach der Domäneninversion in KNbO_3 auftreten. Die kristallinternen Felder wirken sich durch den elektrooptischen Effekt auf die Brechungsindizes des Kristalls aus. Es konnte gezeigt werden, dass die Felder in erster Linie Auswirkungen auf den Brechungsindex n_a des Kristalls haben. Die Größe der kristallinternen Felder konnten durch Bestimmung der durch die

Felder verursachten Ablenkwinkel und durch eine Modellbildung über die Ursache der Ablenkwinkel zu 4,8 V/mm bestimmt werden. Dies entspricht etwa 1 % der Koerzitivfeldstärke von KNbO_3 .

Die in dieser Arbeit entwickelten Messverfahren zur zerstörungsfreien Untersuchung optisch nichtlinearer Kristalle für Phasen- und Quasiphasenanpassung stellen eine Grundlage zur weitergehenden Untersuchung der Zusammenhänge zwischen den durch die Stöchiometrien, Inhomogenitäten und Domänen verursachten optischen Eigenschaften und den erzielbaren Konversionseffizienzen dar.

Publikationsliste

Konferenzbeiträge

1. L. K. Frieß, V. Wesemann, J. A. L'huillier, A. Borsutzky und R. Wallenstein; "Investigation of the optical homogeneity of nonlinear crystals by a new single shot method"; European Conference on Lasers and Electro-Optics (2003), 22.06.-27.06.2003 in München, Technical Digest, p. 64, CT4-4-THU
2. J. A. L'huillier, V. Wesemann, G. Bitz, L. K. Frieß, R. Wallenstein und A. Borsutzky; "Moderne hochauflösende Messverfahren zur Untersuchung der optischen Eigenschaften von laseraktiven und optisch nicht linearen Festkörpermaterialeien"; DGKK-Jahrestagung (2002), 20.03.-22.03.2002 in Idar-Oberstein (eingeladener Vortrag), V13
3. H. Fuchs, O. Casel, M. Tremont, L. K. Frieß, und R. Wallenstein; "Amplitude and phase measurement of 20 ps pulses from a mode-locked high-power InGaAs diode laser MOPA system using frequency-resolved optical gating"; Conference on Lasers and Electro-Optics (2004), 16.05.-21.05.2004 in San Francisco, California, CTuP9 (2003)

Wissenschaftliche Zeitschriften

1. L. K. Frieß, K. Klamroth und M. Sprau; "A Wavefront Approach to Center Location Problems with Barriers"; Annals of Operations Research (wird veröffentlicht)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	7
2.1	Züchtung von Einkristallen	7
2.1.1	Grundlagen der Einkristallzüchtung	8
2.1.2	Verfahren zur Züchtung von Einkristallen	10
2.2	Frequenzkonversion in optisch nichtlinearen Kristallen	14
2.2.1	Phasen- und Quasiphasenanpassung	22
2.2.2	Die Doppelbrechungshomogenität	26
2.2.3	Die Quasiphasenanpassung	31
2.3	Feldinduzierte Brechzahl- und Längenänderungen	39
2.3.1	Der piezoelektrische Effekt	39
2.3.2	Der elektrooptische Effekt	41
3	Messmethoden zur Charakterisierung von optisch nichtlinearen Kristallen	45
3.1	Das Schlierenverfahren	45
3.2	Bestimmung der Konversionseffizienz bei Frequenzverdopplung	52
3.3	Bestimmung der Akzeptanzkurve mit ultrakurzen fs - Laserimpulsen	57
3.3.1	Experimentelle Realisierung	59
3.3.2	Auswertung der Messergebnisse	63
3.3.3	Güte des realisierten Messverfahrens	64
4	Charakterisierung von optisch nichtlinearen Kristallen für die Doppel- brechungsphasenanpassung	71
4.1	Charakterisierung von Kaliumniobat	71

4.1.1	Allgemeine Bemerkungen zu Kaliumniobat KNbO_3	71
4.1.2	Räumlich aufgelöste Charakterisierung von a-cut Kaliumniobat Kristallen für nichtkritische Phasenanpassung bei 860 nm	80
4.1.3	Zusammenstellung der Ergebnisse	90
4.2	Charakterisierung von Kaliumniobat mit veränderter Stöchiometrie „S- KNbO_3 “	99
4.2.1	Allgemeine Bemerkungen zu „S- KNbO_3 “	99
4.2.2	Absorption	100
4.2.3	Frequenzkonversionsexperimente zur Charakterisierung von stöchiometrischem Kaliumniobat S- KNbO_3	101
4.2.4	Vergleich von KNbO_3 mit S- KNbO_3	108
4.3	Charakterisierung von Wismutborat BiB_3O_6	110
4.3.1	Allgemeine Bemerkungen zu Wismutborat BiB_3O_6	110
4.3.2	Charakterisierung von Wismutborat BiB_3O_6 für Frequenzverdopplung der Strahlung 860 nm	113
4.3.3	Vergleich zwischen Wismutborat und Kaliumniobat	120
5	Charakterisierung von QPM-Kristallen	123
5.1	Charakterisierung mittels ultrakurzer Laserimpulse	124
5.2	Charakterisierung mittels Schlierenverfahrens	130
5.2.1	Optische Weglängenänderung	132
5.2.2	Modell zur Auswertung von Schlierenuntersuchungen an Kristallen mit Bereichen unterschiedlicher spontaner Polarisierung	136
5.2.3	Experimentelle Ergebnisse der Schlierenuntersuchungen an QPM-Kristallen	140
6	Zusammenfassung	153
	Literaturverzeichnis	157
	A Verwendete Kristalle	169
	Lebenslauf	171
	Danksagung	173

Kapitel 1

Einleitung

Die Realisierung des ersten Lasers durch T. H. Maiman [Ma60] war der Beginn einer rasanten Entwicklung einer neuen Technologie. Der Laser als Werkzeug ist heute aus vielen Anwendungen, wie der Spektroskopie, Analytik, Biotechnologie, Medizin, Kommunikationstechnik oder Displaytechnologie nicht mehr wegzudenken. Aus diesem Grund wurden bis heute eine Vielzahl von unterschiedlichen Strahlquellen für die verschiedenen Anforderungen entwickelt. Die Lasertypen wurden dabei in unterschiedlichen Spektralbereichen vom ultravioletten bis zum infraroten Spektralbereich realisiert. Die Strahlquellen zeichnen sich häufig durch eine hohe Ausgangsleistung, gute Strahlqualität sowie gepulste Strahlung vom Nanosekunden- bis zum Femtosekunden-Regime aus. Für einige Anwendungen sind das schmale Spektrum der realisierten Systeme sowie die Tatsache, dass die Laser nur diskrete Wellenlängen emittieren, von Nachteil.

Besonders im sichtbaren Spektralbereich fehlen Laser mit hoher Leistung. Sichtbare Strahlung hoher Leistung wird deshalb durch Frequenzkonversion von infraroter Strahlung in optisch nichtlinearen Kristallen erzeugt.

Eine wichtige Voraussetzung für die Fertigung von Lasersystemen mit Frequenzkonversion sind optische Komponenten hoher und geprüfter Qualität. Während für optische Komponenten aussagekräftige Prüfverfahren und Normen zur Qualitätsbeurteilung eingesetzt werden [Di00], gibt es für optisch nichtlineare Kristalle keine entsprechenden Messvorschriften und Messverfahren, die vorab eine genaue Beurteilung der Qualität der Kristalleigenschaften zulassen. Qualitätstests eines optisch nichtlinearen Kristalls erfolgen daher meist durch Einbau in das Zielprodukt oder durch einfache Messungen der maximalen Konversionseffizienz an einem Punkt des Kristalls. Wenn dieser Kristall nicht die nötigen Spezifikationen erfüllt, muss ein anderer Kristall eingebaut werden.

Da eine Reihe von Faktoren Einfluss auf die Konversionseffizienz haben, müssen zur Be-

urteilung der Kristallqualität zunächst prüfungsrelevante Kristalleigenschaften gefunden werden, die für eine effiziente Frequenzkonversion unabdingbar sind. Anschließend müssen Verfahren für eine detaillierte Untersuchung der Eigenschaften entwickelt werden. Die realisierten Messmethoden müssen eine präzise quantitative, räumlich zweidimensional aufgelöste Messung dieser Größen ermöglichen.

Sind die entsprechenden Eigenschaften und deren Variationen innerhalb eines Kristalls als auch zwischen verschiedenen Kristallen bekannt, kann die für eine effiziente Frequenzkonversion geforderte Qualität der Kristalle durch gezielte Optimierung der Züchtung oder der Weiterverarbeitung (periodische Strukturierung, Beschichtung) erreicht werden.

Viele wichtige Eigenschaften, die sich auf die Konversionseffizienz auswirken, lassen sich aus der Bestimmung der Abhängigkeit der relativen Konversionseffizienz von der Phasenangepassungswellenlänge oder der Kristalltemperatur bestimmen. Eine wesentliche Voraussetzung für eine effiziente Frequenzkonversion ist die Phasenanpassung der wechselwirkenden Wellen. Um diese in Kristallen zu erreichen, wird die Doppelbrechung der Materialien ausgenutzt. Die Homogenität der Doppelbrechung über die gesamte Kristalllänge stellt dementsprechend ein entscheidendes Kriterium für eine effiziente Frequenzkonversion in einem optisch nichtlinearen Kristall dar. Zur Untersuchung dieser Eigenschaft wurde von Nash et al. [Na69] der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α definiert. Für dessen Bestimmung ist die Messung der Abhängigkeit der relativen Konversionseffizienz von der Fundamentalwellenlänge oder der Kristalltemperatur notwendig.

Für die Frequenzkonversion ultrakurzer Laserimpulse ist die Wellenlängenakzeptanzbandbreite entscheidend. Nur mit einer großen Akzeptanzbandbreite ist es möglich, ein breites Frequenzspektrum effizient zu konvertieren und so auch ultrakurze konvertierte Impulse zu erzeugen.

Die Phasenanpassungstemperatur ist nicht nur ein wichtiges Kriterium, das die Konversionseffizienz beeinflusst, sondern es kann auch als Kriterium zur Beurteilung der Stöchiometrie eines optisch nichtlinearen Kristalls benutzt werden. Für das Material LiNbO_3 kann durch Untersuchung der Phasenanpassungstemperatur die Zusammensetzung eines Kristalls mit einer Genauigkeit von 0.01mol% bestimmt werden [WC96].

Die Phasenangepassungswellenlänge und die Änderung der Phasenangepassungswellenlänge mit der Temperatur sind wichtige Kriterien für durchstimmbare Strahlquellen mit Frequenzkonversion (OPOs, OPGs). Bei diesen Anwendungen führen bereits minimale Abweichungen der Kristalltemperatur zu einer Reduktion der Konversionseffizienz.

In bisherigen experimentellen Realisierungen zur Bestimmung einer Akzeptanzkurve wurde diese durch Änderung der Temperatur des nichtlinearen Kristalls bestimmt [Na69] oder durch Variation der eingestrahnten Fundamentalwellenlänge [P195]. Diese Methoden sind

sehr zeitaufwendig. Bedingt durch die hohen Messdauern sind die erreichbaren räumlichen Auflösungen deshalb jeweils stark limitiert. Von V. Wesemann [We02] wurden ultrakurze Laserimpulse zur Bestimmung der Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Wellenlänge vorgeschlagen. Mit dieser Methode ist es prinzipiell möglich, die Spektren der Fundamentalstrahlung und der zweiten Harmonischen in einem „Ein-Schuß-Verfahren“ zu realisieren.

Die Methode wird in der vorliegenden Arbeit konsequent weiterentwickelt. So wird eine neue, vollautomatisierte Messmethode zur räumlich zweidimensional aufgelösten Bestimmung der Akzeptanzkurven und der oben beschriebenen Eigenschaften zur Charakterisierung optisch nichtlinearer Kristalle realisiert. Das Verfahren ermöglicht Untersuchungen mit hoher räumlicher Auflösung.

Zur Demonstration der Leistungsfähigkeit des realisierten Messverfahrens werden in dieser Arbeit eine Reihe von Kaliumniobat-Kristallen untersucht. Ein weiteres Ziel der Untersuchungen ist es, wichtige Kristalleigenschaften des Materials zu bestimmen und zu verifizieren. Die Beurteilung der Qualität eines optisch nichtlinearen Kristalls ist recht schwierig, bedingt durch die verschiedenen Anforderungen spezieller Anwendungen an Transparenz, Akzeptanzen und effektive nichtlineare Koeffizienten. Ein erster Schritt zur Beurteilung der Qualität eines Kristalls ist ein Vergleich der Eigenschaften mit den Materialkonstanten. Zur Bestimmung der Materialkonstanten eines optisch nichtlinearen Materials ist eine explizite experimentelle Untersuchung an verschiedenen Kristallen unerlässlich. So können die Kristalle in eine qualitätsbezogene Reihenfolge gebracht und die Materialkonstanten für hochwertiges Material bestimmt werden. In der vorliegenden Arbeit wird eine Einordnung von Kaliumniobat-Kristalle durchgeführt und die für das Material optimalen optischen Eigenschaften bestimmt und verifiziert. Die bestimmten Materialkonstanten sind die Wellenlängenakzeptanzbandbreite, die Phasenanpassungstemperatur, die Phasenanpassungswellenlänge und die Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge. Es wird ferner gezeigt, dass ein Hauptproblem von Kaliumniobat die Existenz von ferroelektrischen Domänen ist, die sich in einem weiten Bereich des Kristalls auswirken.

Neben Domänen treten in KNbO_3 weitere Phänomene wie blau-induzierte Infrarot Absorption (BLIIRA) oder Streuzentren auf, die die Konversionseffizienz reduzieren und deren Ursache bisher teilweise nicht bekannt sind. Durch Variation der Stöchiometrie ist es möglich, Einfluss auf wichtige Eigenschaften eines Materials zu nehmen. In der vorliegenden Arbeit stand erstmals ein KNbO_3 -Kristall zur Verfügung, bei dem versucht wurde, die Stöchiometrie zu verändern. Durch Untersuchungen sollen Indizien, die auf eine veränderte Stöchiometrie hindeuten, gefunden und wichtige Eigenschaften des Materials zur Frequenzverdopplung von 860 nm Strahlung bestimmt werden. Es handelt sich dabei

um nichtkritische Phasenanpassung. Wichtige Eigenschaften, wie Akzeptanzbandbreiten und Absorption, werden bestimmt und mit konventionellem Kaliumniobat verglichen.

Wismutborat ist erst seit dem Jahr 1999 in optisch guter Qualität erhältlich [Be99]. In dieser Zeit wurde der Kristall für unterschiedliche Anwendungen [We02, Cz03, Pe03] benutzt. Untersuchungen des Materials zur Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge um 1064 nm zeigten, dass es sich um ein attraktives neues Material für diese Wellenlänge handelt [We02]. Wegen der geringen Absorption des Materials im kurzwelligen Spektralbereich und den großen nichtlinearen Koeffizienten sollte das Material auch für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm geeignet sein. Deshalb wird Wismutborat mit den entwickelten Messverfahren erstmals umfassend räumlich zweidimensional aufgelöst für kritische phasengepasste Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm untersucht. Wichtige Kristalleigenschaften für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm werden erstmals bestimmt. Die Eigenschaften von Wismutborat für die Frequenzkonversion der Wellenlänge 860 nm werden mit denen von Kaliumniobat verglichen.

Für eine effiziente Frequenzkonversion kann anstelle der Phasenanpassung auch die sogenannte Quasiphasenanpassung benutzt werden. Die Technik der Quasiphasenanpassung (QPM, Quasi-Phase-Matching) wurde bereits 1962 von Bloembergen et al. [Ar62], noch vor der doppelbrechenden Phasenanpassung, vorgeschlagen. Um wichtige Eigenschaften von QPM - Kristallen, wie den „Duty-Cycle“, zu beurteilen, sind räumlich aufgelöste Untersuchungen des gepolten Bereichs unerlässlich. Eine herkömmliche Methode zur Qualitätskontrolle der Homogenität und der Periodizität der QPM - Strukturen ist das Anätzen der Kristalle mit Flußsäure (HF) [Ze03]. Dieses ist wegen der zerstörerischen Auswirkungen der Säure auf die Kristalloberflächen ungeeignet für Kristalle, die bereits eine hochwertige Politur oder Antireflexbeschichtung auf der Ein- und Austrittsfläche aufweisen. Optische Methoden sind die abbildende elektrooptische Mikroskopie [GM98, GM99, GiM99] oder die Nutzung des elektrooptischen Effekts in Verbindung mit gekreuzten Polarisatoren [He01]. Mit den genannten Methoden wurden bisher lediglich Aussagen über die Wachstumsgeschwindigkeit von Domänen gemacht.

In der vorliegenden Arbeit wird eine neue, zerstörungsfreie Methode zur Untersuchung von QPM - Kristallen entwickelt. Die Methode nutzt das Schlierenverfahren zur Sichtbarmachung von Domänen. Für die Untersuchungen wurde ein von V. Wesemann [We02] bezüglich der räumlichen Auflösung und der Genauigkeit optimiertes Verfahren verwendet. Dieses Verfahren wurde bereits erfolgreich zur Charakterisierung von Kristallen eingesetzt [We02, Lh03]. Zusätzlich wird ein von M. Müller [MS03] vorgestelltes Verfahren zur Untersuchung von Domänen an einem Punkt eines Kristalls erweitert. So werden mit dem

Schlierenverfahren in Verbindung mit einer angelegten elektrischen Spannung räumlich aufgelöste, quantitative und qualitative Aussagen über die Qualität und Homogenität der eingebrachten periodischen Strukturen ermöglicht.

Darüber hinaus können mit dem entwickelten Verfahren erstmals durch eine Domäneninversion im elektrischen Feld eingebrachte, kristallinterne Felder in Kaliumniobat nachgewiesen und deren Größe mittels des Schlierenverfahrens zerstörungsfrei bestimmt werden.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die wichtigen theoretischen Grundlagen der Kristallzüchtung und der nichtlinearen Optik skizziert. In diesem Rahmen werden verschiedene Kristallzüchtungsverfahren vorgestellt sowie die grundlegenden physikalischen Phänomene der optisch nichtlinearen Frequenzkonversion diskutiert.

2.1 Züchtung von Einkristallen

Die Einkristallzüchtung ist in den letzten Jahrzehnten zu einem wichtigen Forschungsgebiet avanciert. Die Herstellung großer, stofflich und strukturell einheitlicher Einzelkristalle (Einkristalle), die nach Form, Größe und optischer Qualität hohen Ansprüchen genügen, ist für die Laserindustrie und den damit verbundenen wissenschaftlichen und industriellen Fortschritt von fundamentaler Bedeutung. Die unterschiedlichen industriellen Anforderungen an die Kristalle reichen dabei von hochreinen stöchiometrischen Kristallen für die Frequenzkonversion bis hin zu Kristallen mit bestimmten Fremdphasen (Dotierungen) für die Laserentwicklung. Aufgrund des technologischen Fortschritts ist es heute möglich, den Kristallzüchtungsprozess der jeweiligen Applikation anzupassen. Dennoch lassen sich die Entstehung von Gitterfehlern sowie die Ausbildung von Inhomogenitäten im Kristall nicht vollständig vermeiden. Solche Kristalldefekte bzw. Störungen wirken sich in der Regel negativ auf die optische Qualität der Kristalle aus.

Eine detaillierte Beschreibung über die für die Herstellung von Kristallen wichtigen Grundlagen und Herstellungsverfahren findet sich bei K. Recker [Re78] oder bei K. T. Wilke [Wi73].

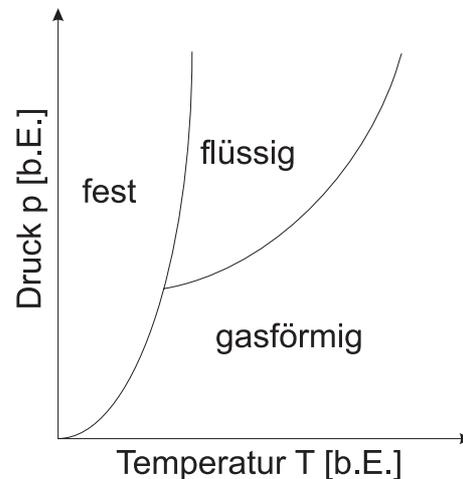


Abbildung 2.1: Skizze eines Phasendiagramms für ein Einstoffsystem. Als Trennlinie zwischen flüssiger und fester Phase dient die Schmelzkurve. Als Trennlinie zwischen fester und gasförmiger Phase dient die Dampfdruckkurve bis zum kritischen Punkt.

2.1.1 Grundlagen der Einkristallzüchtung

Thermodynamische Grundlagen

Bei der Kristallzüchtung wird eine chemische Substanz aus der gasförmigen, der flüssigen (gelösten) oder einer festen Phase in den kristallinen Zustand überführt. Dabei ist der Phasenübergang in der Regel ein Phasenübergang erster Ordnung, welcher nur dann abläuft, wenn die freie Enthalpie G eines Systems kleiner wird [Re78]. Das Wachstumsverhalten und die Züchtungsart richten sich in erster Linie nach den physikalischen und chemischen Eigenschaften eines Materials (z.B. Schmelzpunkt, Umwandlungspunkte, Mischbarkeiten, Stabilitätsbereiche). Das Gleichgewichtsverhalten (Zustandsverhalten) wird in Phasendiagrammen dargestellt. Dabei werden die Abhängigkeiten des Zustandes von der Temperatur T , dem Druck p oder den Konzentrationen c der einzelnen Stoffe dargestellt.

Als Beispiel für ein Phasendiagramm ist in Abbildung 2.1 das p - T Diagramm für ein Einstoffsystem skizziert. In Phasendiagrammen sind die Zustandsgebiete der festen, flüssigen und gasförmigen Phasen durch Dampfdruck-, Schmelzdruck- und Umwandlungskurve, die auch Gleichgewichtskurven genannt werden, getrennt. In den Kurven sind zwei, in den Schnittpunkten drei Phasen stabil (Gibbsches Phasengesetz).

Von besonderer Bedeutung für die Züchtung optisch nichtlinearer und laseraktiver Kristalle sind Zwei- und Mehrstoffsysteme. Diese Systeme sind die Grundlagen für die Züchtung

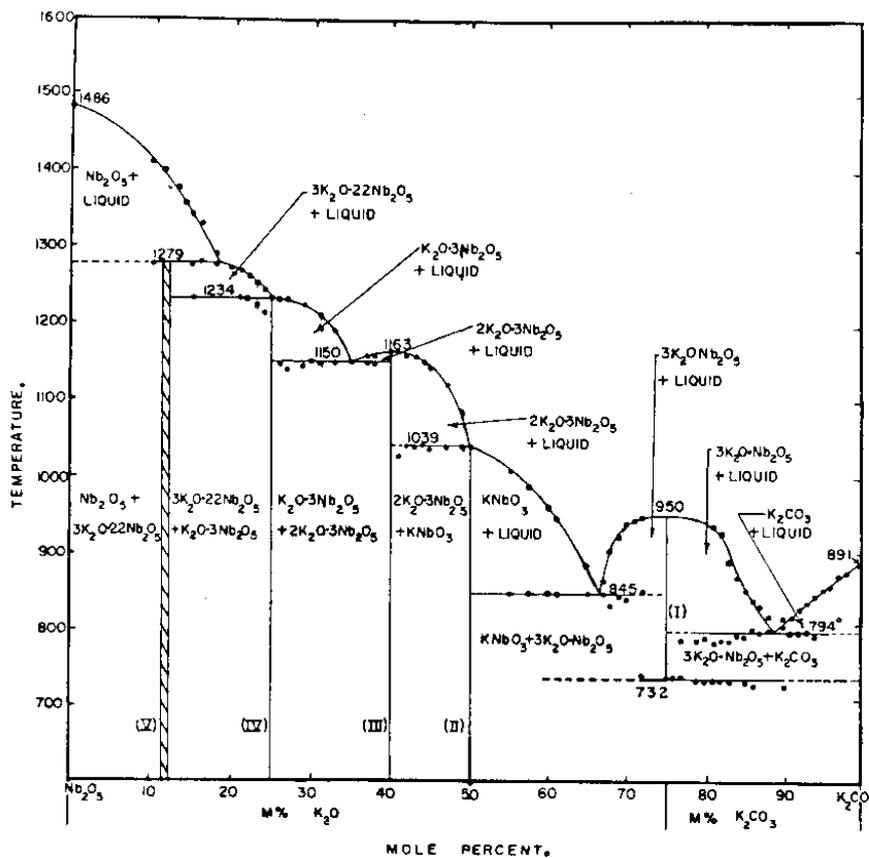


Abbildung 2.2: Phasendiagramm von KNbO₃. Quelle: [Re55]

von Kristallen aus einer Lösung und aus Mehrstoffsystemen. Ein Beispiel für ein Material, das aus der Lösung gezüchtet wird, ist das in dieser Arbeit verwendete Kaliumniobat KNbO₃, dessen Phasendiagramm in Abbildung 2.2 dargestellt ist [Re55].

Löslichkeitsdiagramme

Lösungsmittel sind die während der Kristallzüchtung nicht kristallisierende Anteile eines Zwei- oder Mehrstoffsystems. Lösungsmittel können dabei nicht nur flüssig sein, sondern auch feste, sogenannte Flußmittel, finden in der Kristallzüchtung Verwendung. Im allgemeinen Fall wird von gesättigten Lösungen ausgegangen, wobei das Verhältnis von gelösten Komponenten zu Lösungsmittel stark variieren kann. In allen Fällen kommt es zu Wechselwirkungen zwischen den Komponenten mit dem Lösungsmittel. Diese Wechselwirkungen, deren genauen Auswirkungen nicht bekannt sind, können sich nachteilig auf die Kristall-

qualität auswirken.

In sogenannten Löslichkeitsdiagrammen wird die Sättigungskonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt.

Unstetigkeiten in Löslichkeitsdiagrammen kennzeichnen eine Modifikation, z. B. in der Zusammensetzung der kristallisierenden Phase.

2.1.2 Verfahren zur Züchtung von Einkristallen

Bei der Einkristallzüchtung werden am häufigsten Züchtungsmethoden aus der Schmelze verwendet. Bei diesen Verfahren werden die Phasengrenzen üblicherweise durch Änderung der Temperatur überschritten. Die Phasengrenze ist also mit der Schmelzpunktisotherme identisch. In diesem Abschnitt soll auf die drei in der Kristallzüchtung am häufigsten angewandten Züchtungsverfahren eingegangen werden.

Nacken-Kyropoulos Verfahren

Das Nacken - Kyropoulos Verfahren wurde von Nacken und Kyropoulos unabhängig voneinander entwickelt [Wi73, Re78]. In Abbildung 2.3 ist eine Züchtungsapparatur nach Nacken-Kyropoulos abgebildet. Die Substanz wird in einem Tiegel aufgeschmolzen und zur Beseitigung von Keimen lange Zeit in einer temperaturhomogenen Offenzone als überhitzte Schmelze belassen.

Anschließend wird die Temperatur der Schmelze gesenkt und der gekühlte Impfkristallhalter tief in die Schmelze eingetaucht. Durch langsames und stetiges Abkühlen der Schmelze kann der Kristall wachsen. Ist der gewünschte Durchmesser des Kristalls erreicht, wird der Impfkristall langsam aus der Schmelze gezogen. Die Geschwindigkeiten liegen dabei etwa bei $3 \cdot 10^{-7} \frac{\text{m}}{\text{s}}$ bis $1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Ist die Schmelze verbraucht, wird der Einkristall vom Halter gelöst und der Tiegel langsam auf Zimmertemperatur gebracht.

Ein Vorteil dieses Verfahrens liegt darin, dass der Kristall nicht mit dem Tiegel in Berührung kommt, wodurch Spannungen und Verunreinigungen durch den Tiegel verhindert werden. Nachteile sind ungleichmäßige Wachstumsgeschwindigkeiten und gekrümmte Wachstumsfronten, welche zu Inhomogenitäten führen.

Das Nacken - Kyropoulos Verfahren stellt ein geeignetes Verfahren zur Züchtung optisch nichtlinearer Kaliumniobat (KNbO_3) -Kristalle dar [Fu72, Fu74].

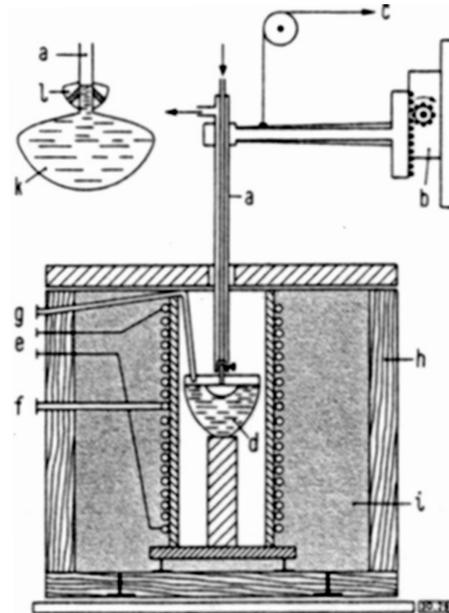


Abbildung 2.3: Nacken-Kyropoulos-Züchtungsapparatur, dabei bedeuten (a) wassergekühlter Impfkristallhalter, (b) Hebevorrichtung, (c) Gegengewicht, (d) Tiegel mit Schmelze, (e) Kanthal, (A1) Heizdrahtwendel, (f) Thermoelement zur Regelung, (g) Thermoelement zu Kontrolle, (h) Aluminiumfolie, (i) Magnesiumoxid zur Wärmeisolation, (k) Einkristall, (l) polykristallines Material. Quelle: [Re78]

Czochralski Verfahren

Das 1918 von J. Czochralski vorgestellte Verfahren [Czo18] zur Kristallzüchtung ist dem Verfahren von Nacken-Kyropoulos verwandt, es ist das häufigste zur Züchtung von Oxid - Kristallen eingesetzte Verfahren. Abbildung 2.4 zeigt die schematische Darstellung des Züchtungsaufbaus. Die Substanz wird bei diesem Verfahren in einem Tiegel aufgeschmolzen. Die Schmelze wird allerdings, im Gegensatz zum Nacken - Kyropoulos Verfahren, nicht stark überhitzt, sondern nur leicht über die Schmelztemperatur gebracht. Der Impfkristall wird nicht so tief in die Schmelze eingebracht wie im Nacken-Kyropoulos-Verfahren, stattdessen bleibt die Grenzfläche zwischen Kristall und Schmelze immer auf Höhe der Schmelzoberfläche. Durch Anpassung der Ziehgeschwindigkeit an die Kristallisationsgeschwindigkeit lässt sich bei diesem Verfahren der Kristalldurchmesser gezielt beeinflussen. Die Vor- und Nachteile sind ähnlich denen des Nacken-Kyropoulos-Verfahrens.

Das Czochalski Verfahren wurde zur Züchtung des in dieser Arbeit untersuchten Wismut-

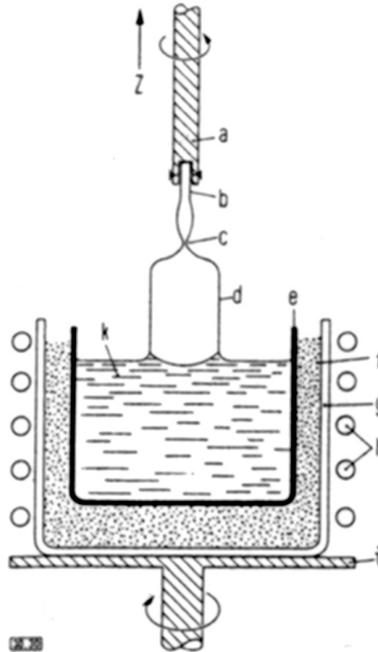


Abbildung 2.4: Zuchtungsapparatur nach Czochalski. Dabei bedeuten: (a) Impfkristallhalter, (b) Impfkristall, (c) Einschnürung zur Verminderung von Baufehlern, (d) wachsender Einkristall, (e) Tiegel aus Edelmetall, (f) Sintermagnesia, (g) keramischer Schutztiegel, (h) wassergekühlte Kupferrohrspirale zur Hochfrequenzbeheizung, (i) Tiegelfalterung, (k) Schmelze, (Z) Ziehrichtung. Quelle: [Re78]

borat BiB_3O_6 Kristalls verwendet.

Schmelzlösungszüchtung

Schmelzlösungszüchtungen werden häufig dann angewendet, wenn die Substanzen Eigenschaften haben, welche eine Züchtung unterhalb der Schmelztemperatur notwendig machen. Solche Eigenschaften können z.B. ein zu hoher Schmelzpunkt für eine Schmelzzüchtung oder ein inkongruenter Schmelzpunkt sein. Eine Unlöslichkeit in bei Raumtemperatur flüssigen Lösungsmitteln ist ein weiterer Grund für die Anwendung dieser Verfahren. Zur Herabsetzung des Schmelzpunktes dienen Substanzen, die bei Raumtemperatur fest sind, bei hohen Temperaturen aber als Flußmittel verwendet werden können. Die Substanzen dürfen dabei keine Verbindung mit den zu züchtenden Substanzen eingehen. Nachteile des Verfahrens sind die große Zähigkeit der meisten Schmelzen und die Tendenz zu spontaner Keimbildung. Ferner ist die Züchtung großer Einkristalle, die Trennung der Kristalle vom

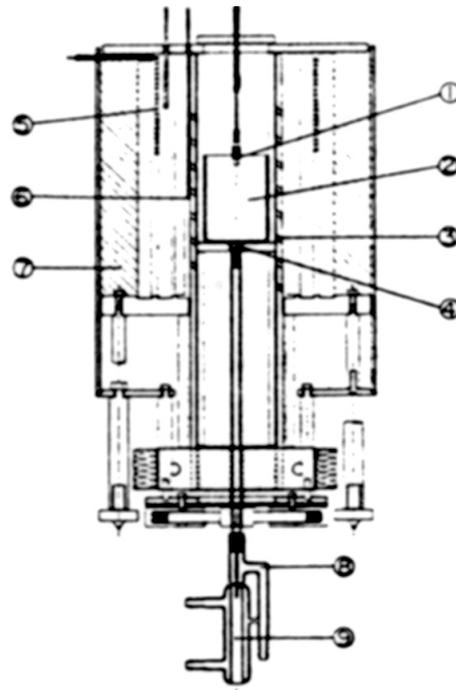


Abbildung 2.5: TSSP - Züchtungsaufbau, (1) Impfling, (2) Pt-Tiegel,(3) SiC Heizelement,(4) Thermocouple,(5) Nachheizer ,(6) Thermocouple,(7) Isolierung,(8) Gas Einlaß,(9) Referenz Punkt. Quelle: [F178]

Flußmittel und letztlich der Einbau des Flußmittels in den Kristall sehr problematisch.

Das „top-seeded-solution-pulling“-Verfahren, das bei der Züchtung aller, in dieser Arbeit verwendeten Kaliumniobat-Kristalle, benutzt wurde, ist ein Verfahren zur Züchtung aus der Schmelzlösung. Der Aufbau ist in Abbildung 2.5 dargestellt.

Diese Methode ist detailliert von U. Flückinger [F178] sowie G. J. Mizell et al. [Mi94] beschrieben worden. Ein geeigneter Seed-Kristall wird als Keim für den Kristall-Rohling unter ständiger Rotation mit ca. $1 \frac{\text{mm}}{\text{h}}$ aus der Lösung gezogen. Die Lösung besteht dabei aus K_2O und Nb_2O_5 . Die Temperatur der Lösung beträgt ca. 1100°C , der Schmelzpunkt von Kaliumniobat 1040°C . Während des Wachstumsprozesses wird die Lösung langsam abgekühlt. Gleichzeitig wird der wachsende Kristall nach oben und nach Abschluß der Wachstumsphase aus der Lösung gezogen. Danach werden Kristall und Lösung unter ständiger Temperaturkontrolle langsam abgekühlt.

2.2 Frequenzkonversion in optisch nichtlinearen Kristallen

In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Grundlagen der nichtlinearen Optik dargestellt. Eine detaillierte Einführung in die nichtlineare Optik findet sich in [ZW73, BC90, DGN91, Bo92, Su96].

Ausgangspunkt für die weiteren Betrachtungen sind die Maxwell'schen Gleichungen des elektromagnetischen Feldes für nichtleitende, nichtmagnetische Medien:

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (2.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (2.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \quad (2.4)$$

Dabei sind \vec{E} das elektrische Feld, \vec{D} die dielektrische Verschiebung, \vec{H} das magnetische Feld und \vec{B} die magnetische Induktion.

In einem Dielektrikum gelten ferner folgende Materialgleichungen:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \quad (2.5)$$

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E}) \quad (2.6)$$

Orts- und zeitabhängige elektrische Felder \vec{E} erzeugen in einem Medium eine induzierte Polarisation $\vec{P} = \vec{P}(\vec{E})$, die als Taylorreihe entwickelt werden kann [Su96]:

$$\begin{aligned} \vec{P} &= \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + (\varepsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \varepsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots) \\ &= \vec{P}^1 + (\vec{P}^2 + \vec{P}^3 + \dots) \\ &= \vec{P}^L + (\vec{P}^{NL}) \end{aligned} \quad (2.7)$$

Dabei sind ε_0 die Vakuum Dielektrizitätskonstante und $\chi^{(j)}$ die Suszeptibilität j - ter Ordnung, die die Form eines Tensors (j+1)ter Stufe besitzt und i. A. frequenzabhängig ist.

Der Term \vec{P}^L , der die lineare Antwort eines Mediums auf eine eingestrahlte elektromagnetische Welle beschreibt, ist über die "lineare Suszeptibilität" $\chi^{(1)}$ (siehe Gleichung (2.7)) mit dem elektrischen Feld verknüpft. Der Real- bzw. Imaginärteil der linearen Suszeptibilität beschreiben den linearen Brechungsindex bzw. den linearen Absorptionskoeffizienten eines Mediums bei kleinen elektrischen Feldstärken des anregenden Feldes.

Ordnung der Suszeptibilität $\chi^{(j)}$	(nichtlinearer) Prozess
1	Lineare Absorption und Emission, linearer Brechungsindex
2	Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) Pockels Effekt (linearer elektrooptischer Effekt) Optische Gleichrichtung Summen und Differenzfrequenzmischung parametrische Verstärkung
3	Zwei-Photonen-Absorption Kerr Effekt (quadratischer elektrooptischer Effekt) Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) Optischer Kerr Effekt (Optisch induzierte Doppelbrechung)
m	m-Photonen-Absorption Erzeugung der m-ten Harmonischen

Tabelle 2.1: Katalog der nichtlinearer Phänomene

Brechungsindexellipsoid, Indikatrix und Optische Achse

Bei der Beschreibung der linearen optischen Eigenschaften eines Mediums ergibt sich durch Einsetzen des linearen Terms der Polarisation \vec{P}^L aus Gleichung (2.7) in Gleichung (2.6)

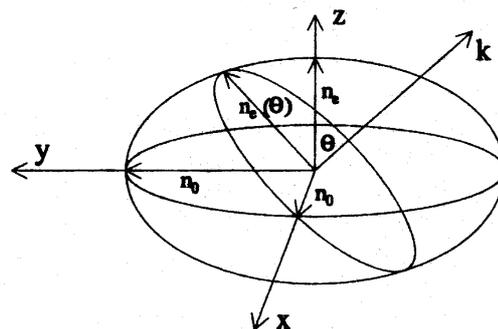


Abbildung 2.6: Indexellipsoid eines negativ uniaxialen Kristalles, aus [Ko88]

folgender linearer Zusammenhang:

$$\vec{D} = (\mathbb{I} + \chi^{(1)})\varepsilon_0 \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} \quad (2.8)$$

$\varepsilon = \mathbb{I} + \chi^{(1)}$ wird als relativer Dielektrizitätstensor bezeichnet. Als Wellengleichung für die lineare Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle in einem nicht leitenden, nichtmagnetischen Medium ergibt sich:

$$\Delta \vec{E} = \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (2.9)$$

Mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit $c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \varepsilon_0}}$.

Der lineare Brechungsindextensor ist definiert als:

$$n = \sqrt{\varepsilon} \quad (2.10)$$

Für die Ausbreitungsgeschwindigkeit v in einem Medium gilt:

$$v = n^{-1} \cdot c \quad (2.11)$$

Als Lösung der Wellengleichung (Gleichung (2.9)) ergeben sich zwei elektromagnetische Wellen, welche sich mit einer von der Ausbreitungsrichtung und Polarisation abhängigen Geschwindigkeit im Medium ausbreiten. Die Wellen sind zueinander senkrecht polarisiert. Eine detaillierte mathematische Diskussion findet sich bei J. A. Fleck [FF83] oder bei J. F. Nye [Ny85].

Die unterschiedlichen Geschwindigkeiten v der Wellen resultieren aus den unterschiedlichen Brechungsindizes n_i der jeweiligen Welle.

Die Abhängigkeit der Ausbreitungsgeschwindigkeit bzw. der Brechungsindizes von der Ausbreitungsrichtung und von der Polarisation kann graphisch durch einen Brechungsindexellipsoiden „der Indikatrix“, dargestellt werden. Abbildung 2.6 zeigt exemplarisch den Indexellipsoid eines Kristalls. Sind die Koordinatenachsen x_1, x_2, x_3 in Richtung der Hauptachsen des Tensors der Dielektrizitätskonstanten gewählt, so ist die Indikatrix durch folgende Gleichung gegeben:

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_3^2} = 1 \quad (2.12)$$

Dabei sind $n_1 = \sqrt{\varepsilon_{11}}, n_2 = \sqrt{\varepsilon_{22}}$ und $n_3 = \sqrt{\varepsilon_{33}}$. $\varepsilon_{11}, \varepsilon_{22}$ und ε_{33} sind die Hauptachsenelemente des Tensors der Dielektrizitätskonstanten ε_{ij} .

Für jeden Wellenvektor \vec{k} lässt sich eine Ebene innerhalb der Indikatrix finden, die senkrecht zu der Ausbreitungsrichtung steht und den Mittelpunkt des Ellipsoiden enthält. Die

Schnittkurve der Ebene mit dem Ellipsoiden ist im Allgemeinen eine Ellipse, deren Hauptwerte den Brechungsindizes der zueinander senkrechten polarisierten Teilwellen entsprechen.

Der Indexellipsoid eines isotropen und auch eines kubischen Kristalls sind Kugeln, d.h. $n_1^2 = n_2^2 = n_3^2$ [Ny85].

Dagegen ist die Indikatrix von hexagonalen, tetragonalen und trigonalen Kristallen ein Rotationsellipsoid um eine der Hauptachse des Ellipsoiden.

Ist x_3 diese Hauptrotationsachse, so gilt für die Gleichung (2.12):

$$\frac{x_1^2}{n_o^2} + \frac{x_2^2}{n_o^2} + \frac{x_3^2}{n_e^2} = 1 \quad (2.13)$$

Die Ebene senkrecht zur Rotationsachse ist ein Kreis mit dem Radius n_o . Die Ausbreitungsgeschwindigkeit von Wellen, die sich in Richtung der Rotationsachse, die optischen Achse genannt wird, im Medium ausbreiten, ist unabhängig von der Polarisation der Strahlung. Diese Art von Kristallen werden optisch uniaxiale Kristalle genannt. Die Brechungsindizes n_o und n_e werden als ordentlicher und außerordentlicher Brechungsindex bezeichnet. Ist der Term $(n_e - n_o) < 0$, so wird der Kristall als negativ uniaxial bezeichnet, andernfalls als positiv uniaxial. Die Differenz des ordentlichen und des außerordentlichen Brechungsindex $\Delta n = n_o - n_e$ wird als Doppelbrechung bezeichnet.

Orthorhombische, monokline und trikline Kristallgitter besitzen als Indikatrix einen Ellipsoiden mit drei unterschiedlichen Hauptachsen. Innerhalb dieser Brechungsindexellipsoiden existieren zwei kreisförmige Ebenen, also zwei Ausbreitungsrichtungen innerhalb des Kristalls, für die die Geschwindigkeiten sich ausbreitender elektromagnetischer Wellen polarisationsunabhängig sind. Die Flächennormalen dieser Ebenen werden ebenfalls als optische Achsen bezeichnet und die Kristalle als optisch biaxial.

Nichtlineare Optik

Bei hohen Feldstärken der eingestrahnten Welle sind die Terme höherer Ordnung nicht mehr vernachlässigbar. Physikalisch beschreibt die nichtlineare Polarisation P^{NL} verschiedene optisch nichtlineare Wechselwirkungen. So beschreibt $P^{(2)}$ Effekte wie die Erzeugung der zweiten Harmonischen (Second Harmonic Generation, SHG) und die Summenfrequenzmischung (Sum Frequency Generation, SFG). Wegen $\vec{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \cdot \vec{E} \vec{E}$ werden diese Wechselwirkungen auch $\chi^{(2)}$ -Wechselwirkungen genannt. Eine Übersicht über einige durch die Polarisation höherer Ordnung verursachten Wechselwirkungen ist in Tabelle 2.1 zusammengestellt.

Bei der Betrachtung der für diese Arbeit wichtigen $\chi^{(2)}$ Wechselwirkungen wird ein verlustfreies Medium angenommen. In diesem Falle sind die Suszeptibilitäten eine frequenzunabhängige reelle Größe, im Falle gleicher Polarisation der eingestrahlten Wellen sogar eine skalare Größe. Zur Ableitung der nichtlinearen Wellengleichung werden die Maxwell'schen Gleichungen (2.1) bis (2.4) genutzt und in die Gleichungen (2.5) und (2.6) eingesetzt. Daraus folgt die nichtlineare Wellengleichung:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2 \epsilon_0} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (2.14)$$

$c = \frac{c_0}{n}$ ist die Phasengeschwindigkeit des elektromagnetischen Feldes, c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und n der Brechungsindex des Mediums. Ferner gilt für die magnetische Permeabilität im Vakuum $\mu_0 = \frac{1}{c^2 \epsilon_0}$.

Der rechte Term der Gleichung (2.14) ist der nichtlineare Quellterm. Dieser stellt eine kleine Störung der linearen Wellengleichung dar (kleine Feldamplitude). Im Weiteren werden nur noch die für diese Arbeit relevanten Suszeptibilitäten zweiter Ordnung $\chi_{ijk}^{(2)}$ berücksichtigt. In diesem Fall spricht man von $\chi^{(2)}$ Wechselwirkung oder von einer Drei-Wellen-Wechselwirkung.

Für $\chi^{(2)}$ Wechselwirkungen lassen sich drei gekoppelte Differentialgleichungen, die sogenannten gekoppelten Amplitudengleichungen herleiten. Voraussetzungen für die Herleitung dieser Gleichungen sind:

- es werden drei unendlich ausgedehnte ebene Wellen mit diskreten Frequenzkomponenten verwendet. Diese breiten sich in z - Richtung aus. Die Wellen lassen sich durch folgende Gleichungen beschreiben:

$$\vec{E}_i(z, t) = \mathcal{E}_i(z) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} \quad (2.15)$$

Die Frequenzen dieser ebenen Wellen seien ω_j , mit den zugehörigen Wellenzahlen $k_j = \frac{n_j \omega_j}{c}$.

- es herrscht Rotationssymmetrie um die z -Achse.
- die Felder \vec{E} und \vec{P} bilden Transversalwellen.
- es gilt die sogenannten „slowly varying amplitude approximation“ (SVAA), bei der sich die Amplitude des Feldes über den Bereich der Größenordnung einer Wellenlänge räumlich und zeitlich nur langsam ändert.

Tensorschreibweise	Matrixschreibweise
11	1
22	2
33	3
23 und 32	4
13 und 31	5
12 und 21	6

Tabelle 2.2: Transformation der Indizes der Tensorschreibweise in die Matrixschreibweise für den optisch nichtlinearen d_{ijk} -Tensor. Quelle: [Ny85]

Die von Null verschiedenen Komponenten des $\chi_{ijk}^{(2)}$ -Tensors sind durch das Material und dessen Symmetrieeigenschaften definiert. Sind alle Komponenten ungleich 0, so werden 324 komplexe Größen benötigt.

Unter Ausnutzung verschiedener Symmetrieeigenschaften, wie die intrinsische Permutationssymmetrie, die Kleinman Symmetrie sowie räumliche Symmetrieeigenschaften kann die Anzahl dieser Größen deutlich reduziert werden.

Die Eigenschaften der $\chi_{ijk}^{(2)}$ -Tensoren der 32 Kristallklassen sind detailliert in [Ny85] dargestellt. Gebräuchlicher als der Suszeptibilitätstensor $\chi_{ijk}^{(2)}$ -Tensor ist die Größe d_{ijk} , die als Tensor der optischen nichtlinearen Koeffizienten bezeichnet wird. Die Komponenten des Tensors sind gegeben durch

$$d_{ijk} = \frac{1}{2}\chi_{ijk}^{(2)} \quad (2.16)$$

Eine kontrahierte Notation kann eingeführt werden, wenn die Bedingungen der „Kleinman Symmetrie“ erfüllt sind, was im Falle der für diese Arbeit relevante Frequenzverdopplung zutrifft. Der Tensor $\chi_{ijk}^{(2)}$, bzw. d_{ijk} hat unter Ausnutzung intrinsischer Symmetrien, 27 reelle Elemente. Dies entspricht einem $3 \times 3 \times 3$ Tensor. Aufgrund der Kleinman-Symmetrie kann der Tensor d_{ijk} gemäß der Nye'schen Kurzschreibweise nach Tabelle 2.2 zu einer 3×6 -Matrix kontrahiert werden. Dies geschieht, indem die letzten beiden Indizes der Parameter d_{ijk} zusammenfasst werden zu dem Parameter d_{il} .

Mit dem Tensor der optisch nichtlinearen Koeffizienten und der Matrix Schreibweise kann die nichtlineare Polarisation 2. Ordnung für die Erzeugung der zweiten Harmonischen

(SHG) in der Form geschrieben werden:

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1^2 \\ E_2^2 \\ E_3^2 \\ 2E_2E_3 \\ 2E_3E_1 \\ 2E_1E_2 \end{pmatrix}$$

Die nichtlineare Polarisation 2. Ordnung kann, bei gegebener Ausbreitungsrichtung der elektromagnetischen Wellen durch den Kristall und gegebener Polarisation in Bezug auf die optischen Achsen des Kristalls durch den effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} ausgedrückt werden. Eine allgemeine Methode zur Berechnung des nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} für jede beliebige Kristallklasse findet sich in [ZW73]. Im Falle der Frequenzverdopplung gilt folgender skalarer Zusammenhang:

$$P(2\omega) = 2\varepsilon_0 d_{eff} E(\omega)^2 \quad (2.17)$$

Die gekoppelten Amplitudengleichungen folgen nun durch Einsetzen der Gleichung (2.15) in die nichtlineare Wellengleichung (2.14) und den eben beschriebenen Näherungen zu:

$$\frac{\partial \mathcal{E}_1}{\partial z} = i \frac{\omega_1}{cn_1} d_{eff} \mathcal{E}_3 \mathcal{E}_2^* e^{-i\Delta kz} \quad (2.18)$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}_2}{\partial z} = i \frac{\omega_2}{cn_2} d_{eff} \mathcal{E}_3 \mathcal{E}_1^* e^{-i\Delta kz} \quad (2.19)$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}_3}{\partial z} = i \frac{\omega_3}{cn_3} d_{eff} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-i\Delta kz} \quad (2.20)$$

Dabei ist $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ die Wellenvektordifferenz. Die Gleichungen (2.18) - (2.20) werden als gekoppelte Amplitudengleichungen bezeichnet.

Aus diesen Gleichungen kann ein wichtiger Erhaltungssatz, die Manley - Rowe - Beziehung abgeleitet werden:

$$\frac{1}{\omega_1} \frac{d}{dz} (n_1 |\mathcal{E}_1|^2) = \frac{1}{\omega_2} \frac{d}{dz} (n_2 |\mathcal{E}_2|^2) = \frac{1}{\omega_3} \frac{d}{dz} (n_3 |\mathcal{E}_3|^2) \quad (2.21)$$

Die Manley - Rowe - Beziehung besagt, dass bei der Vernichtung eines Photons mit der Frequenz ω_3 genau ein Photon der Energie ω_1 und eines der Frequenz ω_2 erzeugt werden. Sinngemäß kann

$$\begin{aligned} \hbar\omega_3 &= \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 \\ \Leftrightarrow \omega_3 &= \omega_1 + \omega_2 \end{aligned} \quad (2.22)$$

als Energieerhaltungssatz und die vektorielle Phasenbedingung

$$\begin{aligned}
 \hbar \vec{k}_1 + \hbar \vec{k}_2 &= \hbar \vec{k}_3 \\
 \Leftrightarrow \vec{k}_1 + \vec{k}_2 &= \vec{k}_3 \\
 \Leftrightarrow \Delta \vec{k} &= \vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2 = 0
 \end{aligned} \tag{2.23}$$

als Impulserhaltung der an der Drei-Wellen-Wechselwirkung beteiligten Photonen angesehen werden.

Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG)

Für den Fall der Erzeugung der zweiten Harmonischen sind die gekoppelten Amplitudengleichungen analytisch lösbar.

Im Fall geringer Konversionseffizienz (d.h. $\mathcal{E}_{2\omega} \ll \mathcal{E}_\omega$) kann der Abbau der Fundamentalstrahlung vernachlässigt werden (low gain Näherung), es gilt $\mathcal{E}_\omega(z, t = konst)$.

Durch Integration der gekoppelten Amplitudengleichungen (2.18), berechnet sich die Intensität der zweiten Harmonischen $I_{2\omega}$ zu:

$$I_{2\omega} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n c^2 |\mathcal{E}_{2\omega}|^2 = \left(\frac{\omega_1}{n_{2\omega} c} d_{eff} \right)^2 |\mathcal{E}_\omega|^4 l^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k l}{2} \right) \tag{2.24}$$

und die Leistung der zweiten Harmonischen ergibt sich zu:

$$P_{2\omega} = K l^2 \frac{P_\omega^2}{A} \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k l}{2} \right) \tag{2.25}$$

mit dem Strahlquerschnitt A , der nichtlinearen Kopplungskonstanten K , der Länge des Kristalls l und P_ω sowie $P_{2\omega}$ als Leistungen der Fundamentalstrahlung und der zweiten Harmonischen. $n_{2\omega}$ und n_ω stehen für die Brechungsindizes der zweiten Harmonischen und der Fundamentalstrahlung im Material.

Die Funktion $\text{sinc}^2(x)$ steht dabei für $\frac{\sin^2(x)}{x^2}$. Für die nichtlineare Kopplungskonstante gilt:

$$K = \frac{2\omega_1}{\pi \varepsilon_0 c^3} \frac{d_{eff}^2}{n_3 n_1^2} \tag{2.26}$$

mit der Kreisfrequenz der Fundamentalstrahlung ω_1 und der Kreisfrequenz der zweiten Harmonischen ω_3 und der Dielektrizitätskonstante ε_0 .

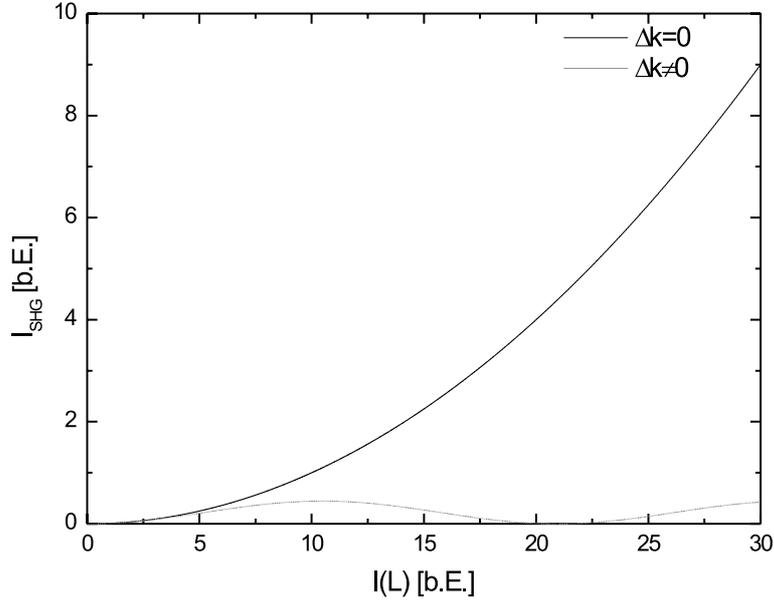


Abbildung 2.7: Intensität der zweiten Harmonischen für $\Delta k = 0$ und $\Delta k \neq 0$ in Abhängigkeit von der Kristalllänge $l(L)$.

2.2.1 Phasen- und Quasiphasenanpassung

In den Gleichungen (2.24) und (2.25) hat der sogenannte Interferenzterm $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta kl}{2}\right)$ eine besondere Bedeutung. Die Frequenzkonversion hat die höchste Effizienz, wenn gilt $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta kl}{2}\right) = 1$. Abbildung 2.7 zeigt die Intensität der erzeugten Welle in Abhängigkeit von der Kristalllänge l für $\Delta k = 0$ und $\Delta k \neq 0$. Der Fall $\Delta k = 0$ wird als Phasenanpassung bezeichnet. Für $\Delta k = 0$ steigt die Intensität und somit auch die Leistung der zweiten Harmonischen mit der Kristalllänge quadratisch an. Für $\Delta k \neq 0$ oszilliert die Intensität der erzeugten Welle während der Propagation durch den Kristall.

Aufgrund der Phasenfehlanspassung $\Delta k \neq 0$ ändert sich die Phasendifferenz der wechselwirkenden Wellen linear mit der Ausbreitungsrichtung der Wellen. Nach der sogenannten Kohärenzlänge l_c beträgt die relative Phasenverschiebung π und die Intensität, bzw. die Leistung der zweiten Harmonischen hat ihr Maximum erreicht. Für $l > l_c$ tritt Rückkonversion auf, bis die Intensität der zweiten Harmonischen nach der doppelten Kohärenzlänge $2l_c$ auf 0 abgesunken ist. Nach der Länge $2l_c$ beginnt der Prozess von vorne.

In folgendem Abschnitt werden zwei Methoden der Phasenanpassung vorgestellt. Zum Einen die Phasenanpassung in doppelbrechenden Medien (Birefringence Phase Matching, BPM) und zum Anderen die Quasi-Phasen-Anpassung (Quasi-Phase-Matching, QPM).

Phasenanpassung mittels Doppelbrechung BPM

In dieser Arbeit wird der Spezialfall der kollinearen Phasenanpassung (kollineare Ausbreitung der drei Wellen) verwendet.

Für eine effiziente Frequenzkonversion ist die phasengleiche Ausbreitung der Polarisationswellen und der erzeugten elektro-magnetischen Wellen unerlässlich. D.h. Gleichung (2.23) muss erfüllt sein. Der Betrag der Vektoren k_i ist definiert durch:

$$k_i = |\vec{k}_i| = \frac{2\pi n_i(\lambda_i)}{\lambda_i} \quad (2.27)$$

Somit gilt für die Erzeugung der zweiten Harmonischen nach Gleichung (2.23):

$$\begin{aligned} \Delta k &= 2\pi \left(\frac{n_{2\omega}}{\lambda_{2\omega}} - \frac{n_\omega}{\lambda_\omega} - \frac{n_\omega}{\lambda_\omega} \right) \\ &= \frac{2\varpi_1}{c} (n_{2\omega} - n_\omega) \end{aligned} \quad (2.28)$$

Mit der Fundamentalwellenlänge λ_ω , der Wellenlänge der zweiten Harmonischen $\lambda_{2\omega} = \frac{\lambda_\omega}{2}$, den entsprechenden Brechungsindizes n_ω und $n_{2\omega}$, sowie der Kreisfrequenz $\varpi = 2\pi \frac{c}{\lambda}$. Die Phasenanpassungsbedingung ist also abhängig von den Brechungsindizes der am Prozess beteiligten Wellen. Für eine effiziente Frequenzkonversion müssen die Brechungsindizes der Fundamentalwelle und der zweiten Harmonischen identisch sein ($\Delta k = 0 \Leftrightarrow n_3 = n_1$). Dies kann durch den Einsatz doppelbrechender Kristalle erreicht werden.

Optisch uniaxiale Kristalle

Der Wert des außerordentlichen Brechungsindex $n^e(\theta)$ ist abhängig von der Ausbreitungsrichtung, d.h. von dem Polarwinkel θ zwischen der optischen Achse und dem Wellenvektor \vec{k} der sich im Medium ausbreitenden Welle. Mit Kenntnis des Hauptwertes des Brechungsindex n_e und des Polarwinkels θ kann der Brechungsindex $n^e(\theta)$ berechnet werden:

$$n^e(\theta) = n_o \sqrt{\frac{1 + \tan^2\theta}{1 + \left(\frac{n_o}{n_e}\right)^2 \tan^2\theta}} \Leftrightarrow n^e(\theta) = \sqrt{\frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2}} \quad (2.29)$$

Diese Abhängigkeit des Brechungsindex von der Ausbreitungsrichtung kann ausgenutzt werden, um die Phasenanpassungsbedingung (Gleichung (2.23)) zu erfüllen, indem man den Wert des außerordentlichen Brechungsindex durch Variation des Winkels θ dem, des ordentlichen Brechungsindex anpasst.

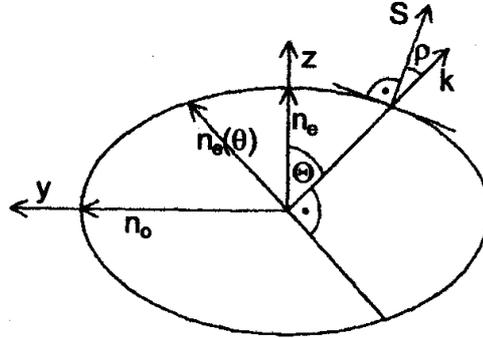


Abbildung 2.8: Zur Definition des „walk-off“ Winkels, aus [Ko88]

Der „walk-off“ Winkel

Für einen außerordentlichen Strahl, der sich nicht entlang einer Hauptachse ausbreitet, ist ($0^\circ < \theta < 90^\circ$) und somit ist die dielektrische Verschiebung \vec{D} nicht mehr parallel zum elektrischen Feld \vec{E} . Der Wellenvektor \vec{k} , der senkrecht zur dielektrischen Verschiebung \vec{D} ist, schließt mit der Richtung des Energieflusses, gegeben durch den Poyntingvektor \vec{S} (senkrecht zu \vec{E}), einen Winkel ρ ein. Dieser Winkel, wird als „walk-off“ Winkel bezeichnet. Die ordentlich und die außerordentlich polarisierten Wellen laufen auseinander, wodurch die Wechselwirkungslänge und somit auch die Effizienz der Frequenzkonversion reduziert wird. In Abbildung (2.8) ist der walk - off graphisch dargestellt. Hierfür gilt [Su96]:

$$\rho = \frac{\vec{S} \cdot \vec{k}}{|\vec{S}| |\vec{k}|} = \arctan \left[\frac{n_e^2(\theta)}{2} \left[\frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right] \sin(2\theta) \right] \quad (2.30)$$

Akzeptanzbandbreiten

Bei Winkeln $0^\circ < \theta < 90^\circ$ spricht man von kritischer Phasenanpassung. Bei $\theta = 0^\circ$ bzw. $\theta = 90^\circ$ spricht man von nichtkritischer Phasenanpassung. Die Phasenanpassung kann bei nichtkritischer Phasenanpassung in Kristallen durch Änderung der Kristall-Temperatur erreicht werden. Dabei wird die unterschiedliche Temperaturabhängigkeit des ordentlichen und des außerordentlichen Brechungsindex ausgenutzt.

Wird die Phasenanpassung durch Variation des Winkels oder durch Variation der Temperatur erreicht, führt eine Abweichung von der optimalen Temperatur oder dem optimalen Winkel zu Verringerung der Konversionseffizienz. Die Konversionseffizienz gegeben durch

Gleichung (2.25) ist auf die Hälfte abgesunken bei:

$$\frac{\Delta k \cdot l}{2} = \frac{\pi}{2,25} \quad (2.31)$$

Also bei einer Phasenanpassung Δk von:

$$\Delta k_{50\%} = \pm 0.886 \frac{\pi}{l} \quad (2.32)$$

Die sogenannte Akzeptanzbandbreite gibt an, wie weit der Winkel, die Temperatur oder die Wellenlänge verstimmt werden kann, bevor die Effizienz auf die Hälfte abgesunken ist. Zur Berechnung dieser Akzeptanzbandbreiten wird eine Taylorreihenentwicklung der Phasenanpassung durchgeführt. Dabei wird die Abhängigkeit der Wellenvektoren von verschiedenen physikalischen Größen, wie Winkel θ , Wellenlänge λ , Temperatur T usw. genutzt.

Für kleine Abweichungen $\Delta\theta$ vom Phasenanpassungswinkel θ_0 folgt:

$$\Delta k(\theta) = \Delta k(\theta_0) + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial\theta} \Delta\theta + \frac{1}{2} \frac{\partial^2(\Delta k)}{\partial\theta^2} (\Delta\theta)^2 + \dots \quad (2.33)$$

Mit den entsprechenden Gleichungen für Wellenlänge und Temperatur ergeben sich die Akzeptanzbandbreiten für die kritische Phasenanpassung:

$$\Delta\theta = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k)}{\partial\theta} \right]_{\theta=\theta_0}^{-1} \quad (2.34)$$

$$\Delta T = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k)}{\partial T} \right]_{T=T_0}^{-1} \quad (2.35)$$

$$\Delta\lambda = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k)}{\partial\lambda} \right]_{\lambda=\lambda_0}^{-1} \quad (2.36)$$

Bei nichtkritischer Phasenanpassung verschwinden die ersten Ableitungen [ZW73] in Gleichung (2.33), weshalb auch Terme höherer Ordnung bei der Reihenentwicklung berücksichtigt werden. Mit der zweiten Ableitung folgt exemplarisch für die Winkelakzeptanzbandbreite [Su96]:

$$\Delta\theta = 2 \sqrt{0.886 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial^2(\Delta k)}{(\partial\theta)^2} \right]_{\theta=\theta_0}^{-1}} \quad (2.37)$$

Optisch biaxiale Kristalle

In optisch biaxialen Kristallen gibt es keine Definition von ordentlichem und außerordentlichem Brechungsindex mehr. Bei der Strahlausbreitung in einer Hauptebene (in einer

Phasenangepassungsebene	Phasenangepassungswinkel	entsprechender uniaxialer Kristall
xy-Ebene ($\theta = 90^\circ$)		negativ uniaxialer Kristall
yz-Ebene ($\phi = 90^\circ$)		positiv uniaxialer Kristall
xz-Ebene ($\phi = 0^\circ$)	$\theta < \theta_{oA}$	negativ uniaxialer Kristall
	$\theta > \theta_{oA}$	positiv uniaxialer Kristall

Tabelle 2.3: Phasenangepassungsebene in biaxialen Kristallen und korrespondierende uniaxiale Kristalle

Ebene, die von zwei Hauptachsen aufgespannt wird) liegen jedoch analoge Verhältnisse zu optisch uniaxialen Kristallen vor (vgl. Tabelle 2.3).

Im diesem Fall werden die ordentlichen und die außerordentliche Brechungsindizes entsprechend der Tabelle 2.4 definiert.

Bei den meisten zweiachsigen Kristallen gilt die Relation $n_z > n_y > n_x$. In diesem Fall liegen die optischen Achsen symmetrisch um die z-Achse. Für den Winkel zwischen optischer Achse und der z-Achse θ_{oA} gilt:

$$\sin(\theta_{oA}) = \frac{n_z}{n_y} \sqrt{\frac{n_y^2 - n_x^2}{n_z^2 - n_x^2}} \quad (2.38)$$

Aufgrund von Dispersion ist der Winkel θ_{oA} Wellenlängenabhängig.

2.2.2 Die Doppelbrechungshomogenität

Für eine effiziente Frequenzverdopplung ist es notwendig, die Phasenangepassungsbedingung (Gleichung (2.23)) möglichst über die gesamte Kristalllänge zu erfüllen. Wird die Pha-

Hauptebene	ordentlicher Brechungsindex	außerordentlicher Brechungsindex
xy-Ebene ($\theta = 90^\circ$)	$n_o(\phi) = n_z$	$n_e(\phi) = \frac{n_x n_y}{\sqrt{n_y^2 \sin^2(\phi) + n_x^2 \cos^2(\phi)}}$
yz-Ebene ($\phi = 90^\circ$)	$n_o(\theta) = n_x$	$n_e(\theta) = \frac{n_y n_z}{\sqrt{n_y^2 \sin^2(\theta) + n_z^2 \cos^2(\theta)}}$
xz-Ebene ($\phi = 0^\circ$)	$n_o(\theta) = n_y$	$n_e(\theta) = \frac{n_x n_z}{\sqrt{n_x^2 \sin^2(\theta) + n_z^2 \cos^2(\theta)}}$

Tabelle 2.4: Ordentliche und außerordentliche Brechungsindizes in den drei Hauptebenen biaxialer Kristalle, aus [DGN91]

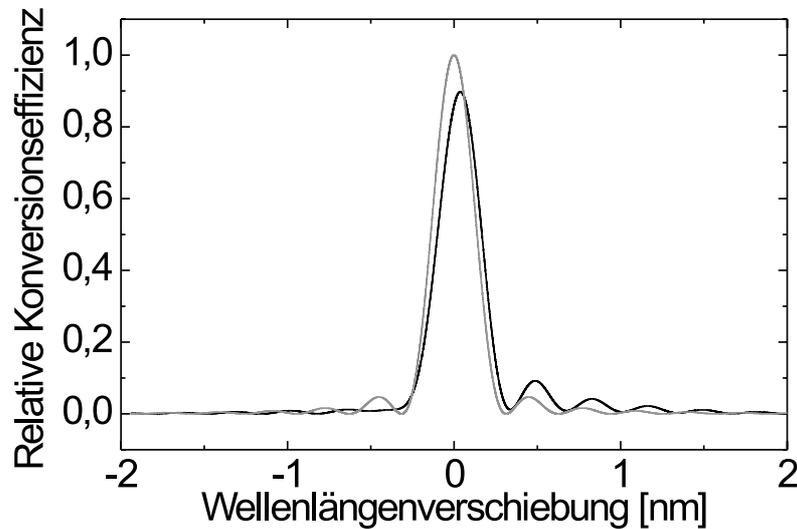


Abbildung 2.9: Akzeptanzkurve eines Kristall mit Inhomogenitäten in der Doppelbrechung (schwarz) und eines idealen Kristalls (grau).

senanpassung über Doppelbrechung erreicht, ist dies gleichbedeutend mit der Bedingung, dass die Doppelbrechung über die gesamte Kristalllänge konstant bleibt. In der Literatur wurden mehrere Kriterien zur Untersuchung der Doppelbrechungshomogenität optisch nichtlinearer Kristalle beschrieben. F.R. Nash [Na69] und J.E. Midwinter [Mi67, Mi68] charakterisierten die Doppelbrechungshomogenität durch Messung der Verdopplungseffizienz in Abhängigkeit von der Wellenlänge der Fundamentalstrahlung. Zusätzlich wurden verschiedene Kriterien zur Untersuchung der Doppelbrechungshomogenität verglichen. Dabei stellte sich heraus, dass nur eine Analyse der gesamten Akzeptanzkurve ausreichend ist, um die Homogenität der Doppelbrechung quantitativ zu beurteilen [Na69]. Es wurde nachgewiesen, dass die Flächen unterhalb der Akzeptanzkurven unabhängig von der Art der im Kristall vorliegenden Störung konstant ist. Zur Beurteilung der Homogenität der Doppelbrechung wurde deshalb der von der Fläche unterhalb der Akzeptanzkurve abhängige Homogenitätsparameter α definiert [Na69]:

$$\alpha = \frac{\delta\lambda_{eff}}{\delta\lambda_{calc}} \quad (2.39)$$

Die effektive Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ bezeichnet die Fläche unterhalb der gemessenen Akzeptanzkurve dividiert durch die Höhe des zentralen Maximums (η_{Max}):

$$\delta\lambda_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} \eta(\lambda_{\omega})}{\eta_{max}} d\lambda_{\omega} = \int_0^{\infty} \frac{\eta(\lambda_{\omega})}{\eta_{max}} d\lambda_{\omega} \quad (2.40)$$

Die effektive Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ ergibt sich aus der Konversionseffizienz η in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_{ω} [P195] oder in Abhängigkeit von der Temperatur T des Kristalls [Na69].

$\delta\lambda_{calc}$ ist die effektive Linienbreite eines Kristalls mit absolut homogener Doppelbrechung. Die Konversionseffizienz $\eta(\lambda)$ ist gegeben durch [Na69]:

$$\eta(\lambda) = \frac{P_{2\omega}(\frac{\lambda}{2})}{P_{\omega}^2(\lambda)} \quad (2.41)$$

λ bezeichnet die Wellenlänge der Fundamentalstrahlung, $P_{2\omega}(\frac{\lambda}{2})$ die Leistung der zweiten Harmonischen und $P_{\omega}(\lambda)$ die Leistung der Fundamentalen.

Zur theoretischen Bestimmung der effektiven Linienbreite $\delta\lambda_{calc}$ eines perfekten Kristalls muss der Quotient $\frac{\eta(\lambda)}{\eta_{max}}$ berechnet werden. In der Näherung großer Strahltaillen gilt für den Quotienten $\frac{\eta(\lambda)}{\eta_{max}}$:

$$\frac{\eta(\lambda)}{\eta_{max}} = K(\lambda) \left(\frac{\sin(\frac{\Delta k \cdot l}{2})}{\frac{\Delta k \cdot l}{2}} \right)^2 \quad (2.42)$$

Die Funktion $K(\lambda)$ ist definiert durch [We02]:

$$K(\lambda) = \frac{\lambda_{PM}^3 n_{\omega}^2(\lambda_{PM}) n_{2\omega}(\frac{\lambda_{PM}}{2})}{\lambda^3 n_{\omega}^2(\lambda) n_{2\omega}(\frac{\lambda}{2})} \frac{(n_{\omega}^2(\lambda) - 1)^2 (n_{2\omega}^2(\frac{\lambda}{2}) - 1)^2}{(n_{\omega}^2(\lambda_{PM}) - 1)^2 (n_{2\omega}^2(\frac{\lambda_{PM}}{2}) - 1)^2} \quad (2.43)$$

n_{ω} und $n_{2\omega}$ bezeichnen die Brechungsindizes der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen. L ist die Länge des Kristalls und λ_{PM} die Wellenlänge bei der die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist.

In dieser Arbeit wird lediglich ein geringer Wellenlängenbereich von maximal 8 nm betrachtet. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Fundamentalwellenlängen (860 nm) und Materialien (u.a. Kaliumniobat) weichen die Werte der Funktion $K(\lambda)$ nur unwesentlich von 1 ab. Daher ist der Einfluß der Funktion $K(\lambda)$ bei der Bestimmung der effektive Linienbreite eines perfekten Kristalls $\delta\lambda_{calc}$ vernachlässigbar.

Für Δk gilt:

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} \quad (2.44)$$

Material	λ_{PM} [nm]	Ebene	Akzeptanzbandbreite [nm]
KNbO ₃	860	a-cut	0,09
KNbO ₃	946	32°ab	0,15
KNbO ₃	980	b-cut	0,174
KNbO ₃	1064	19°bc	0,266

Tabelle 2.5: Aus den Brechungsindexdaten für KNbO₃ berechnete Wellenlängenakzeptanzbandbreiten für verschiedene Schnitttrichtungen und 1 cm lange Kristalle.

k_ω und $k_{2\omega}$ bezeichnen die Wellenvektoren der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen. Mit der Definition des Wellenvektors $k = \frac{2\pi \cdot n}{\lambda}$ und $\lambda_{SHG} = \frac{\lambda_{Fund}}{2}$ folgt:

$$\Delta k = \frac{4 \cdot \pi}{\lambda_\omega} \cdot (n_\omega - n_{2\omega}) \quad (2.45)$$

Wegen der geringen spektralen Bandbreite des verwendeten Lasers kann die Taylorentwicklung der Differenz der Brechungsindizes $\Delta n(\lambda) = n_{2\omega}(\lambda) - n_\omega(\lambda)$ um λ_{PM} durch das lineare Glied genähert werden [Na69]:

$$\Delta n(\lambda)_{\lambda_{PM}} = (\lambda_{PM} - \lambda) \cdot \frac{d(\Delta n(\lambda))}{d\lambda} \quad (2.46)$$

Somit ergibt sich für die berechnete Abhängigkeit der normierten Verdopplungseffizienz von der Wellenlänge (Gleichung (2.42)):

$$\frac{\eta(\lambda)}{\eta_{max}} = \left(\frac{\sin(2\pi L \frac{d\Delta n}{d\lambda}(\lambda_{PM} - \lambda))}{2\pi L \frac{d\Delta n}{d\lambda}(\lambda_{PM} - \lambda)} \right)^2 \quad (2.47)$$

Für den Quotienten $\frac{d\Delta n}{d\lambda}$ folgt nach Einsetzen von Gleichung (2.45) in Gleichung (2.46) nach einigen Umformungen:

$$\frac{d \Delta n}{d\lambda} = \frac{1}{4,5 \Delta \lambda} \frac{\lambda_{PM}}{L} \quad (2.48)$$

$2 \cdot \Delta \lambda$ entspricht der vollen Halbwertsbreite (FWHM). Diese kann aus den experimentell ermittelten Sellmeier Gleichungen des jeweiligen Materials berechnet oder direkt experimentell bestimmt werden. Mit Kenntnis der optimalen Akzeptanzbandbreite eines Materials und den Gleichungen (2.47) und (2.48) kann nun die effektive Linienbreite eines idealen Kristalls $\delta \lambda_{Calc}$ ermittelt werden. In Tabelle 2.5 sind exemplarisch die vollen Halbwertsbreiten für verschiedene Orientierungen von Kaliumniobat zusammengestellt.

Die Definition des Homogenitätsparameter α beruht darauf, dass die über alle Wellenlängen

der Fundamentalstrahlung integrierte Verdopplungseffizienz unabhängig von Doppelbrechungsinhomogenitäten konstant ist. Dabei wird vorausgesetzt, dass sich in Bereichen mit Inhomogenitäten die zentrale Phasenanpassungswellenlänge, also die Wellenlänge, bei der die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist, verschiebt. Dies führt zu Verzerrungen der Akzeptanzkurve und zu einer Reduktion der maximal mit monochromatischer Laserstrahlung erreichbaren Konversionseffizienz. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 2.9 für einen Kristall dargestellt, dessen Doppelbrechung nicht konstant ist, sondern über die Kristalllänge zwei verschiedene Bereiche mit unterschiedlicher Doppelbrechung aufweist. Abbildung 2.9 zeigt zum Vergleich auch die Akzeptanzkurve eines idealen Kristalls.

Bedingt durch die Normierung der gemessenen Kurve auf 1 und der Gleichheit der Fläche unter den beiden Akzeptanzkurven kann aus den Messungen auf die Reduktion der Effizienz bei monochromatischer Frequenzverdopplung im Vergleich zu einem idealen Kristall geschlossen werden. Es gilt [Na69]:

$$\eta_{Maximal} = \frac{1}{\alpha} \cdot \eta_{Ideal} \quad (2.49)$$

Dabei ist $\eta_{Maximal}$ die im Vergleich zu einem idealen Kristall maximal erreichbare Konversionseffizienz eines Kristall mit Inhomogenitäten. η_{Ideal} ist die Konversionseffizienz eines perfekt homogenen Kristalls. Weitere Details finden sich in [Na69].

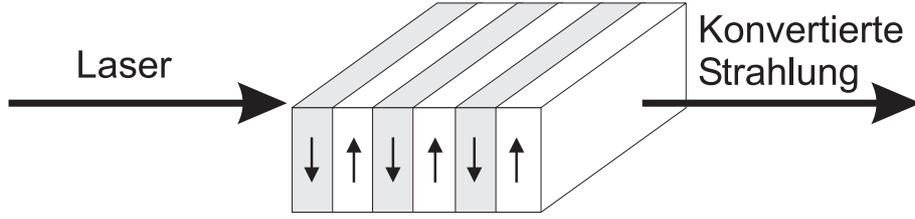


Abbildung 2.10: Idealer QPM Kristall zur Frequenzkonversion. Das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten, also die Richtung der nichtlinearen Polarisation (gekennzeichnet durch die Pfeile) ist invertiert mit der Periode eines ganzzahligen Vielfachen der Kohärenzlänge l_c .

2.2.3 Die Quasiphasenanpassung

Für eine effiziente Frequenzkonversion wurde bereits im Jahre 1962 durch Armstrong et al. [Ar62] die Quasiphasenanpassung (Quasi-phase-matching, QPM) vorgeschlagen. Im Gegensatz zur Phasenanpassung durch Doppelbrechung, die im optimalen Fall an jedem Punkt des Kristalls erfüllt ist ($\Delta k = 0$), wird bei der Quasiphasenanpassung die Phasenverschiebung periodisch korrigiert.

Nach einer Strecke l_c haben die wechselwirkenden Wellen eine relative Phase von π zueinander. Wie im Abschnitt 2.2.1 diskutiert, würde es zu Rückkonversion der Strahlung kommen. Die Kohärenzlänge kann mit Hilfe der Impulserhaltung (Gleichung (2.23)) berechnet werden:

$$l_c = \frac{\pi}{|\Delta \vec{k}|} = \frac{1}{2} \left(\frac{n_3}{\lambda_3} - \frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} \right)^{-1} \quad (2.50)$$

Nach jeder Kohärenzlänge l_c ist es notwendig, die Phasenverschiebung zu korrigieren.

Durch Umkehrung des Vorzeichens des effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} kann der für die Quasiphasenanpassung notwendige Phasensprung von π erreicht werden.

Das Prinzip der Quasiphasenanpassung wird realisiert, in dem in einem nichtlinearen Kristall ein periodischer Vorzeichenwechsel des nichtlinearen Koeffizienten mit einer Periode von

$$\Lambda_g = 2l_c \quad (2.51)$$

realisiert wird.

Für den Fall der Frequenzverdopplung folgt:

$$\Lambda = 2l_c = \frac{\lambda}{2(n_3 - n_1)} \quad (2.52)$$

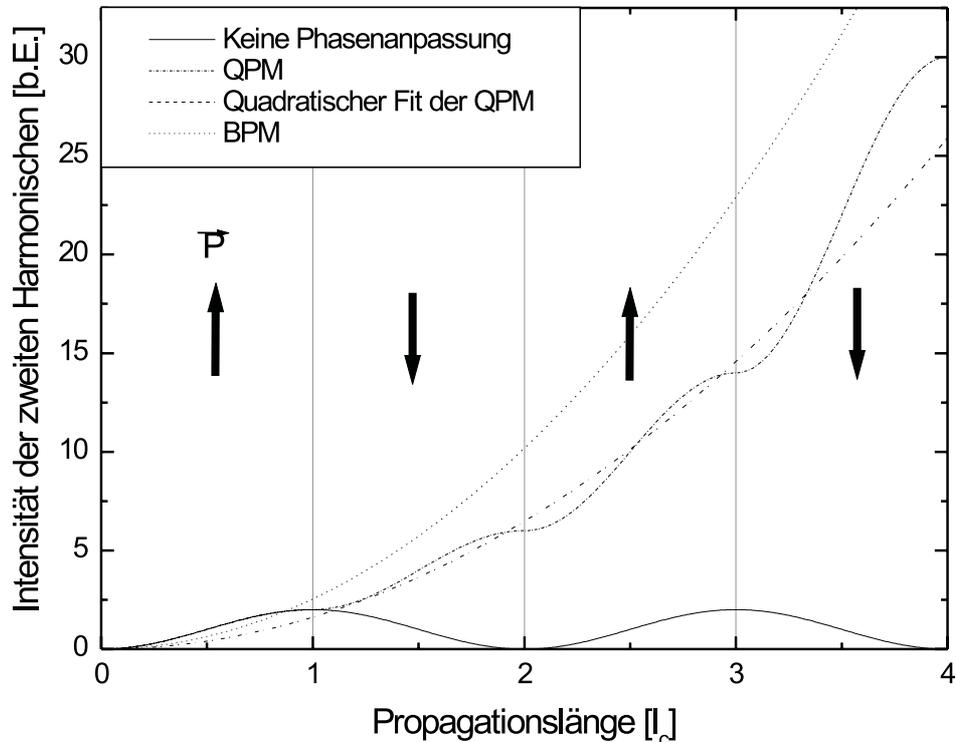


Abbildung 2.11: Intensität der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der Propagationslänge in einem nichtlinearen Medium für Quasiphasenanpassung (QPM), Phasenanpassung mittels Doppelbrechung (BPM) und ohne Phasenanpassung

In Abbildung 2.11 ist die Intensität der zweiten Harmonischen ohne Phasenanpassung, mit Phasenanpassung und bei Quasiphasenanpassung in Abhängigkeit von der Kristalllänge dargestellt. Die Quasiphasenanpassung führt im Mittel zu einem stetigen Anwachsen der Intensität der zweiten Harmonischen.

Der effektive nichtlineare Koeffizient ist eine Größe, die von der Kristallstruktur abhängt. Das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten ergibt sich dabei aus der Richtung der spontanen Polarisation P_s . Die Richtung der spontanen Polarisation kann durch feldinduzierte Inversion ferroelektrischer Domänen in Kristallen mit polarer Achse beeinflusst werden. Der Prozess der Inversion von ferroelektrischen Domänen im elektrischen Feld wird auch

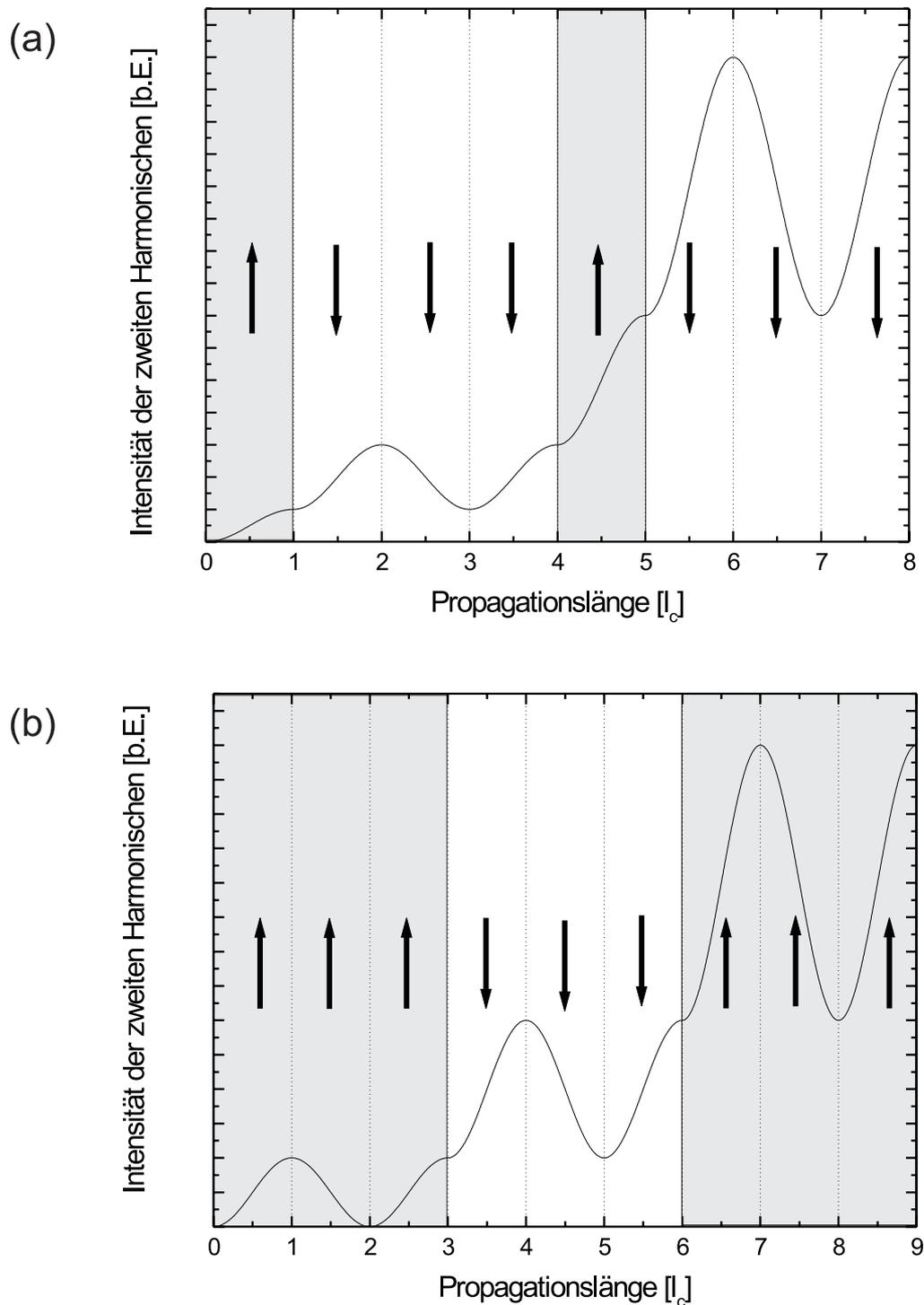


Abbildung 2.12: Intensität der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der Propagationslänge für Quasiphasenanpassung (a) 2. Ordnung und (b) 3. Ordnung. Die Richtung der spontanen Polarisation ist mit Pfeilen gekennzeichnet.

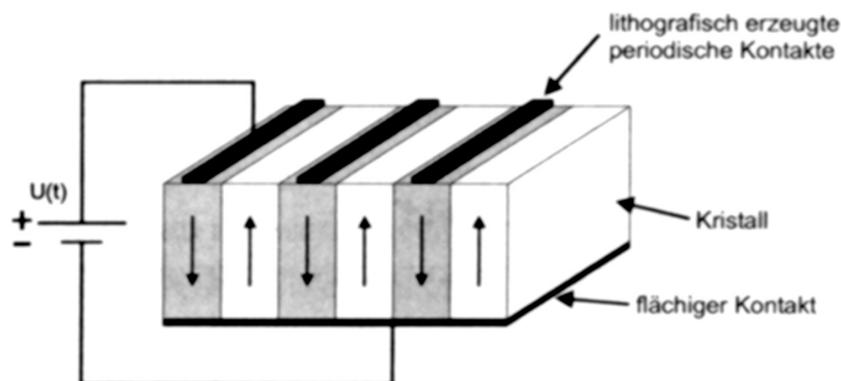


Abbildung 2.13: Schematische Darstellung der Domäneninversion im elektrischen Feld. Die Pfeile zeigen die Polarisationsrichtung nach dem Prozess der periodischen Domäneninversion, aus [Ze03]

als „polen“ bezeichnet.

Das an den Kristall angelegte elektrische Feld muß dabei größer sein als die Koerzitivfeldstärke E_c (Coercitive Field). In Abbildung 2.13 ist das Prinzip der Domäneninversion im elektrischen Feld schematisch dargestellt. Auf einen Kristall werden lithographisch erzeugte periodische Elektrodenstrukturen aufgebracht, die nach der Domäneninversion wieder entfernt werden können. Nach Anlegen eines elektrischen Feldes ($E > E_c$) besitzt der Kristall eine periodische Struktur der spontanen Polarisation P_S . In Abbildung 2.13 sind die Polarisationsrichtungen nach dem Prozess der periodischen Domäneninversion durch Pfeile symbolisiert.

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kristalle wurden entweder mittels einer Elektrolyt- oder einer Corona-Polungsmethode einer Domäneninversion unterzogen. Beide Methoden finden sich detailliert bei S. Zelt [Ze03].

Da die Kohärenzlänge l_c im Bereich weniger μm liegt, stößt man bei der Verwendung lithographischer Verfahren zur Erzeugung von periodischen Strukturen schnell an die Grenzen der Realisierbarkeit. Abhilfe schafft die Quasiphasenanpassung höherer Ordnung. Die Abbildungen 2.12 (a) und (b) zeigen die Abhängigkeit der Intensität der zweiten Harmonischen bei Quasiphasenanpassung 2. Ordnung (Abbildung 2.12 (a)) und 3. Ordnung (Abbildung 2.12 (b)) von der Propagationslänge. Quasiphasenanpassung höherer Ordnung wird erreicht, indem die spontane Polarisation mit einer Periode von $\Lambda = 2ml_c$ ($m=1,3,\dots$) moduliert wird. Quasiphasenanpassung gerade Ordnung wird durch Aneinanderreihung von Domänen alternierender Länge erreicht. Die Breite der einzelnen Domänen muß dabei

ungeradzahligem Vielfachen der Kohärenzlänge l_c entsprechen und die Summe der Breiten zweier aufeinanderfolgender Domänen muß $\Lambda = 2ml_c$ sein.

Eine ausführliche Beschreibung der Quasiphasenanpassung findet sich in [Fe92].

Intensität und Akzeptanzbandbreiten

Zur quantitativen Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen mit Quasiphasenanpassung muß die räumliche Abhängigkeit des effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} berücksichtigt werden.

In den gekoppelten Amplitudengleichungen (2.18)-(2.20) wird dies durch Substitution des effektiven nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} durch den ortsabhängigen Koeffizienten $d(z)$ erreicht.

Bei vernachlässigbarem Pumpabbau gilt nach Gleichung (2.20):

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}_3}{\partial z} &= i \frac{\omega_3}{cn_3} d(z) \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{\partial \mathcal{E}_1}{\partial z} &= \frac{\partial \mathcal{E}_2}{\partial z} = 0 \end{aligned} \quad (2.53)$$

Wegen der periodischen Variation des Vorzeichens des optisch nichtlinearen Koeffizienten läßt sich $d(z)$ in einer Fourierreihe darstellen. Es gilt [Fe92]:

$$d(z) = |d| \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m e^{imK_g z} \quad (2.54)$$

mit den Fourierkoeffizienten G_m , $|d|$ dem Betrag des optisch nichtlinearen Koeffizienten und dem Gittervektor \vec{K} , für dessen Betrag gilt:

$$K_g = \frac{2\pi}{\Lambda_g} \quad (2.55)$$

Wird $d(z)$ als periodische „Rechteck“- Funktion beschrieben, mit dem „Duty cycle“ $D = \frac{a}{\Lambda_g}$ wobei a die Länge einer Domänensektion und Λ_g die Gitterperiode ist, so folgt für die Fourierkoeffizienten:

$$G_m = \frac{2}{\pi m} \sin(\pi m D) \quad (2.56)$$

Für E_3 folgt nach Integration von Gleichung (2.53) über die Kristalllänge L :

$$E_3(L) = \frac{\omega_3 E_1 E_2}{cn_3} d_{eff} L e^{(\Delta k' \frac{L}{2})} \frac{\sin\left(\Delta k' \frac{L}{2}\right)}{\Delta k' \frac{L}{2}} \quad (2.57)$$

Durch Substitution von Δk durch $\Delta k' = \Delta k - K_m$ und Einsetzen von $d_{eff} = \frac{2|d|}{\pi m}$ für den effektiven nichtlinearen Koeffizienten behalten die bereits im Abschnitt 2.2.1 hergeleiteten

Beziehungen zur Frequenzkonversion weiterhin Gültigkeit.

Entsprechend lassen sich analog zur Phasenanpassung in doppelbrechenden Medien Akzeptanzbandbreiten für die Quasiphasenanpassung angeben [Fe92]:

$$\Delta\Lambda = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k')}{\partial\Lambda} \right]_{\Lambda=\Lambda_0}^{-1} \quad (2.58)$$

$$\Delta T = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k')}{\partial T} \right]_{T=T_0}^{-1} \quad (2.59)$$

$$\Delta\lambda = 1.772 \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial(\Delta k')}{\partial\lambda} \right]_{\lambda=\lambda_0}^{-1} \quad (2.60)$$

Bei Quasiphasenanpassung 1. Ordnung ist die Intensität der zweiten Harmonischen entlang der Ausbreitungsrichtung um den Faktor $\frac{2}{\pi}$ im Vergleich zur Phasenanpassung mittels Doppelbrechung reduziert. Der Grund für die Reduktion der Effizienz ist, dass die Phasenanpassung nur makroskopisch über den Kristall, aber nicht mikroskopisch erfüllt ist. Innerhalb einer Domänenbreite bleibt die Phasenbeziehung der wechselwirkenden Wellen nicht konstant, sondern es kommt zu einer Phasenverschiebung, die zu Rückkonversion führt.

Bei Quasiphasenanpassung höherer Ordnung trägt nur jede m-te Domäne effektiv zur Frequenzkonversion bei. Dieser Effekt kann als Reduktion der effektiven Kristalllänge beschrieben werden. Für Quasiphasenanpassung 3. Ordnung bedeutet dies, dass die effektive Kristalllänge nur $\frac{1}{3}$ der tatsächlichen Kristalllänge beträgt.

Die konvertierte Leistung ist proportional zu d_{eff}^2 (Gleichung (2.25)). Da der effektive nichtlineare Koeffizient bei Quasiphasenanpassung 3. Ordnung um den Faktor $\frac{1}{3}$ reduziert ist, ist die konvertierte Leistung um den Faktor $\frac{1}{9}$ gegenüber der Quasiphasenanpassung 1. Ordnung reduziert.

Die Quasiphasenanpassung besitzt gegenüber der konventionellen Phasenanpassung einige Vorteile:

- Der Wellenvektor \vec{k} kann so gewählt werden, dass der größte optisch nichtlineare Koeffizient für die Frequenzkonversion genutzt und somit die größtmögliche Effizienz erreicht werden kann.
- Die Ausbreitungsrichtung der wechselwirkenden Wellen kann so gewählt werden, dass kein räumlicher „walk-off“ auftritt (nichtkritische Phasenanpassung).
- Durch die prinzipielle freie Wählbarkeit der Domänenperiode Λ ist der gesamte Transparenzbereich des Kristalls für die Frequenzkonversion nutzbar.

- Durch die ortsabhängige Phasenanpassung wird eine Kombination verschiedener optisch nichtlinearer Wechselwirkungen ermöglicht. Durch hintereinander geschaltete unterschiedliche Domänenperioden können Kaskadenprozesse erzeugt werden. Variiert hingegen die Domänenperiode über die Kristallbreite, kann durch Verschieben des Kristalls eine Wellenlängendurchstimmung erreicht werden.
- Variiert die Domänenperiode mit der Kristalllänge kann bei Frequenzverdopplung eine zeitliche Kompression der erzeugten Impulse bei Verwendung frequenzmodulierter Fundamentalimpulse erreicht werden.
- Photonische Bauelemente lassen sich auf einem Substrat (LiNbO_3 , GaAs) integrieren.

Fehlerhafte Domänenstrukturen

Die für die Quasiphasenanpassung verantwortlichen Domänenstrukturen sind nicht, wie bisher angenommen, perfekt periodisch. Vielmehr treten Abweichungen von dieser Struktur auf. Diese Abweichungen entstehen bei der durch ein elektrisches Feld verursachten Inversion ferroelektrischer Domänen des Kristalls. Abweichungen von der idealen Struktur sind einerseits das Fehlen einzelner oder mehrerer Domänen und andererseits Abweichungen der Domänenlängen. Die Abweichungen der Domänenlängen können lokal begrenzt oder über das gesamte Kristallvolumen vorhanden sein.

Dieser Abschnitt gibt eine kurze Zusammenfassung der genannten Fehler und deren Auswirkungen auf die Konversionseffizienz. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [Fe92].

Kristalle mit nicht invertierten Kristallbereichen

In Abbildung 2.14 (a) ist eine ideale QPM Struktur mit zugehöriger Phasenfehlanpassungskurve dargestellt. Bei Veränderungen der Phasenfehlanpassungskurve durch nichtinvertierte Kristallbereiche muss unterschieden werden, ob sich die nichtinvertierten Bereiche am Rand (siehe Abbildung 2.14 (b)) oder in der Mitte des Kristalls (siehe 2.14 (c)) befinden. Sind die fehlenden Domänen am Rand eines Kristalls, so entspricht dies einem Kristall mit einer kleineren effektiven Länge L' . Entsprechend sind die Akzeptanzbandbreiten, wie sie in den Gleichungen (2.58) gegeben sind, verbreitert. Das Intensitätsmaximum ist gegenüber einem Kristall mit idealer Domänenstruktur um den Faktor $\eta = (\frac{L'}{L})^2$ verkleinert.

Bei fehlenden Domänen in der Mitte des Kristalls wird ebenfalls eine Reduktion der Konversionseffizienz um den Faktor $\eta = (\frac{L'}{L})^2$ verursacht. Die Akzeptanzbandbreite ist jedoch nicht verbreitert, da die gesamte Kristalllänge berücksichtigt wird.

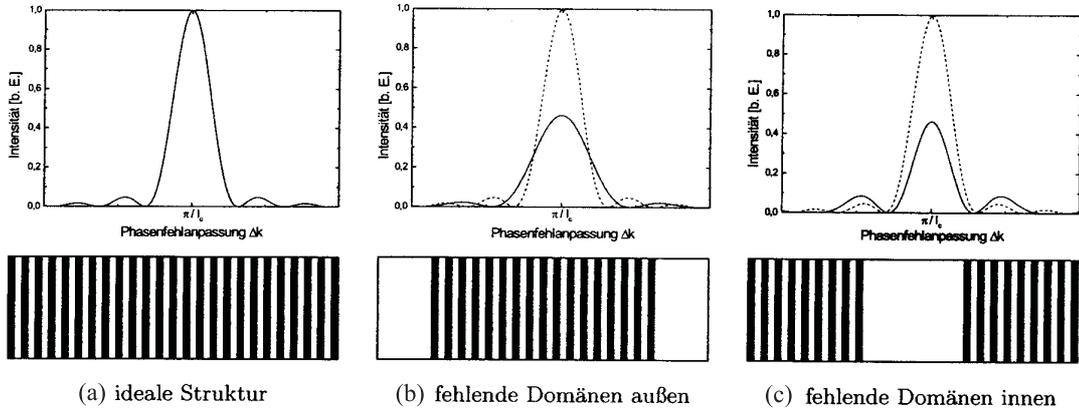


Abbildung 2.14: Auswirkungen von Domänenfehler auf die Phasen Anpassungskurven. Unten sind die Domänenfehler dargestellt, oben die Auswirkung auf die Phasen Anpassungskurve, im Vergleich zur optimalen Kurve, aus [Ze03]

In beiden Fällen sind die Konversionseffizienzen auf die Hälfte reduziert, wenn 30% der Kristalllänge nicht invertierte Domänen aufweisen.

„Duty-Cycle“- oder Periodenfehler Für eine effiziente Frequenzkonversion sind eine perfekte Polungsperiode und ein optimaler „Duty-Cycle“ (bei QPM ungerader Ordnung gilt $D_{Optimal} = 0,5$) wünschenswert. Abweichungen realer Kristalle von diesen optimalen Strukturen wurden von M. Fejer et al. [Fe92] untersucht.

Zur Diskussion der Auswirkungen von Fehlern der Polungsperiode oder von Fehlern im „Duty-Cycle“ auf die Konversionseffizienz muss unterschieden werden, ob es sich um statistische oder konstante Abweichungen vom Mittelwert handelt. Bei statistischen Fehlern wird anstatt einer Toleranz ein Erwartungswert für die Toleranzen angegeben. Das Verhält-

Fehlerart	Periode	Duty-Cycle
konstant	$\eta = \text{sinc}^2\left(\frac{\delta\Lambda}{\Lambda} \frac{N}{2}\right)$	$\eta = \sin^2\left(\left(1 - \frac{\delta D}{D}\right) \frac{\pi}{2}\right)$
statistisch	$\langle \eta \rangle = 1 - \frac{\pi^2}{6} N \left(\frac{\sigma_l}{l_c}\right)$	$\langle \eta \rangle = 1 - \frac{\pi^2}{2} \left(\frac{\sigma_l}{l_c}\right)$

Tabelle 2.6: Reduktion der Quasiphasenanpassungs Effizienz verursacht durch Fehler der Gitterstruktur.

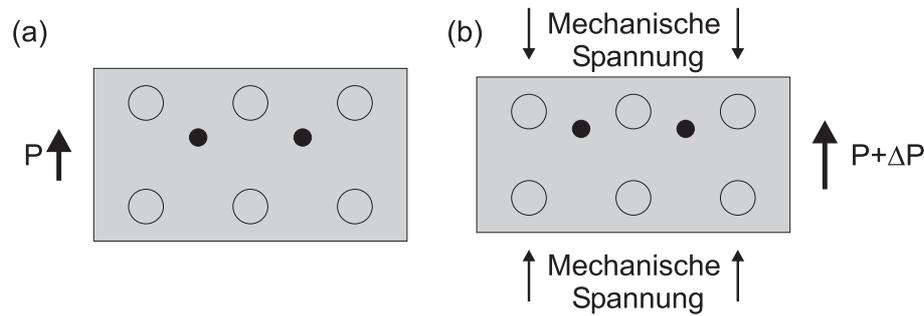


Abbildung 2.15: Ferroelektrischer Kristall ohne mechanische Spannung (a) und unter Spannung (b). Die Spannung ändert die Polarisation um ΔP . Quelle: [Ki85]

nis der Konversionseffizienz eines Kristalls mit Periodenfehlern zur Konversionseffizienz eines Kristalls ohne Fehler ist nach [Fe92] direkt von der Anzahl der Domänen abhängig, wobei $N = \frac{L}{\Lambda_g}$ gilt.

Das Verhältnis der Konversionseffizienz eines Kristalls mit nicht konstantem „Duty-Cycle“ zur Konversionseffizienz eines Kristalls ohne Fehler ist dagegen nicht von der Anzahl der Domänen abhängig. Eine detaillierte Betrachtung findet sich in [Fe92]. In der Tabelle 2.6 sind die Ergebnisse aus [Fe92] zusammengefasst.

2.3 Feldinduzierte Brechzahl- und Längenänderungen

2.3.1 Der piezoelektrische Effekt

Alle in dieser Arbeit verwendeten Kristalle sind piezoelektrisch, da es sich um Ferroelektrika handelt. Eine an die Kristalle angelegte mechanische Spannung ändert deren Polarisation P um den Betrag der induzierten piezoelektrischen Polarisation ΔP . Dieser Effekt der als direkter piezoelektrischer Effekt bezeichnet wird ist in Abbildung 2.15 skizziert. Die Änderung der Polarisation erfolgt linear mit der angelegten Spannung. Im eindimensionalen Fall kann dies mit der folgenden Gleichung dargestellt werden:

$$P = d^{(P)}\sigma \quad (2.61)$$

$d^{(P)}$ wird als piezoelektrischer Modul bezeichnet.

Die auf einen Körper wirkenden Spannungen lassen sich mathematisch durch einen Tensor vom Rang 2 [Ny85] beschreiben. Der Spannungstensor mit den Komponenten σ_{ij} hat

insgesamt 9 Einträge:

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{12} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{pmatrix}$$

Die Polarisation ist im allgemeinen ein Vektor mit drei Komponenten. Entsprechend gilt im dreidimensionalen Fall die Gleichung [Ny85]:

$$P_i = d_{ijk}^{(P)} \sigma_{jk} \quad (2.62)$$

Die Anzahl der unabhängigen Komponenten des piezoelektrischen Modul kann reduziert und in Matrixform transformiert werden. Für den piezoelektrischen Modul lässt sich eine (3x6)-Matrix bilden, wobei die letzten beiden Indizes der Tensorschreibweise entsprechend der Tabelle 2.1 zusammengefasst werden:

$$\begin{pmatrix} d_{11}^{(P)} & d_{12}^{(P)} & d_{13}^{(P)} & d_{14}^{(P)} & d_{15}^{(P)} & d_{16}^{(P)} \\ d_{21}^{(P)} & d_{22}^{(P)} & d_{23}^{(P)} & d_{24}^{(P)} & d_{25}^{(P)} & d_{26}^{(P)} \\ d_{31}^{(P)} & d_{32}^{(P)} & d_{33}^{(P)} & d_{34}^{(P)} & d_{35}^{(P)} & d_{36}^{(P)} \end{pmatrix}$$

Eine detaillierte mathematische Darstellung des piezoelektrischen Effekts findet sich in [Ny85].

Der umgekehrte (inverse) piezoelektrische Effekt

Von besonderem Interesse für diese Arbeit ist der inverse piezoelektrische Effekt. Dieser ist eine direkte thermodynamische Konsequenz des direkten piezoelektrischen Effektes [Ny85]. Eine an einen piezoelektrischen Kristall angelegte elektrische Spannung und ein somit im Kristall wirkendes elektrisches Feld verursacht eine mechanische Verzerrung des Kristalls. Hat die Gleichung für den direkten piezoelektrischen Effekt die Form wie in Gleichung (2.62) dargestellt, so hat der inverse piezoelektrische Effekt, folgende mathematische Form [Ny85]:

$$\epsilon_{jk} = d_{ijk}^{(P)} E_i \quad (2.63)$$

Für die Komponenten des Spannungstensors ϵ_{jk} gilt, $\epsilon_{jk} = \epsilon_{kj}$. Dies hat zur Folge, dass $d_{ijk}^{(P)}$ symmetrisch in j und k ist. Entsprechend kann die Gleichung (2.63) in die folgende Matrixdarstellung überführt werden:

$$\epsilon_j = d_{ij}^{(P)} E_i \quad (i = 1, 2, 3; j = 1, \dots, 6) \quad (2.64)$$

2.3.2 Der elektrooptische Effekt

Der lineare elektrooptische Effekt

Unter dem elektrooptischen Effekt versteht man die Änderung der Brechungsindizes durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes. Für den Brechungsindex eines Festkörpers gilt nach Entwicklung in eine Potenzreihe nach dem elektrischen Feld E :

$$n = n_0 + aE_0 + bE_0^2 + \dots \quad (2.65)$$

n_0 ist der Brechungsindex ohne elektrisches Feld. a und b sind Proportionalitätskonstanten. Durch ein elektrisches Feld verursachte Änderungen der Brechungsindizes äußern sich in kleinen Änderungen der Gestalt und Orientierung der Indikatrix. Diese Veränderungen des Indexellipsoiden werden durch Zusatzterme in der Gleichung (2.12) erfasst.

In erster Näherung, die als sogenannter linearer elektrooptischer Effekte bezeichnet wird, ist die Änderung der Koeffizienten $\left(\frac{1}{n^2}\right)_i$ linear mit dem angelegten elektrischen Feld $\vec{E}_{el} = (E_{x_1}, E_{x_2}, E_{x_3})$ und lässt sich schreiben als:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2}\right)_i = r_{ijk} E_k \quad (2.66)$$

mit $k = 1, 2, 3$.

Die Koeffizienten r_{ijk} bilden den elektrooptischen Tensor. Dabei handelt es sich um einen Tensor dritter Stufe, der analog zu dem piezoelektrischen und dem Tensor der optisch nichtlinearen Koeffizienten auf eine Matrix mit 18 unabhängigen Komponenten r_{ij} reduziert werden kann. Die Matrixform der Gleichung (2.66) lautet:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2}\right)_i = r_{ij} \cdot E_j \quad (2.67)$$

Der photoelastische Effekt

Im Allgemeinen ist die Variation des Brechungsindex eines Festkörpers nicht nur eine Funktion des angelegten elektrischen Feldes, sondern auch eine Funktion der auf den Körper wirkenden mechanischen Spannungen. Daher muß die eindimensionale Gleichung (2.65) um die Spannung σ erweitert werden [Ny85]:

$$n = n_0 + aE_0 + a'\sigma + bE_0^2 + b'\sigma^2 + b''E_0\sigma + \dots \quad (2.68)$$

a, a', \dots und b, b', \dots sind Proportionalitätskonstanten. Der Brechungsindex n_0 beschreibt den Brechungsindex ohne äußere Einflüsse und der Term aE_0 den linearen elektrooptischen Effekt. Der Term $a'\sigma$ beschreibt den sogenannten photoelastischen Effekt, der die Variation des Brechungsindex aufgrund einer mechanischen Spannung wiedergibt.

Werden die Terme höherer Ordnung vernachlässigt, so ist die Variation der Brechungsindizes gegeben durch:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_i = r_{ijk} E_k + \pi_{ijkl} \sigma_{kl} \quad (2.69)$$

r_{ijk} sind die Komponenten des elektrooptischen Effektes. π_{ijkl} sind die sogenannten piezooptischen Koeffizienten. Sie bilden einen Tensor 4. Stufe.

Werden die durch mechanische Spannungen verursachten Änderungen der Brechungsindizes eines Festkörpers durch Verschiebungen ϵ_{ij} anstelle von Spannungen σ_{ij} ausgedrückt, so folgt mit $\sigma_{kl} = c_{klrs} \epsilon_{rs}$ für Gleichung (2.69):

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} = r_{ijk} E_k + p_{ijrs} \epsilon_{rs} \quad (2.70)$$

Mit $p_{ijrs} = \pi_{ijkl} c_{klrs}$. Die Komponenten p_{ijrs} werden als elastooptische Koeffizienten bezeichnet. Sie bilden den elastooptischen Tensor.

Der sekundäre elektrooptische Effekt

Bei der Diskussion des elektrooptischen Effektes, müssen auch die mechanischen Spannungen, die auf einen Festkörper wirken, berücksichtigt werden. Ist der Kristall „frei“, so sind die Spannungen am Rand des Kristalls 0. Ist der Kristall „geklammert“, so sind die Verschiebungen am Rand 0.

Wird an einen piezoelektrischen Kristall eine elektrische Spannung angelegt, so wird sich dieser wegen des inversen piezoelektrischen Effekts ausdehnen oder zusammenziehen. Diese Verschiebungen verursachen auf Grund des photoelastischen Effekts Variationen der Brechungsindizes des Kristalls. Diese Variation der Brechungsindizes auf Grund der Piezoelektrizität eines Kristalls werden als sekundärer elektrooptischer Effekt bezeichnet. Der bereits diskutierte lineare elektrooptische Effekt wird in diesem Zusammenhang auch als primärer Effekt bezeichnet.

In einem Kristall ist der beobachtbare Effekt der Variation der Brechungsindizes durch Anlegen einer elektrischen Spannung die Summe aus primärem und sekundärem Effekt.

Um den sekundären elektrooptischen Effekt mathematisch zu beschreiben, werden die durch den inversen piezoelektrischen Effekt verursachten Verschiebungen gemäß Gleichung (2.63) bestimmt und in Gleichung (2.70) eingesetzt. Für die Variation der Brechungsindizes bedingt durch den sekundären elektrooptischen Effekt gilt:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_i = p_{ijrs} \epsilon_{rs} = p_{ijrs} \left(d_{irs}^{(P)} E_i \right) \quad (2.71)$$

Die Tensor p kann aufgrund seiner Symmetrie mit der Nyeschen Kurzschreibweise wiederum als 6×6 -Matrix dargestellt werden.

Setzt man Gleichung (2.71) in Gleichung (2.70) ein, so folgt in Matrixschreibweise:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_i = r_{ij} \cdot E_j + p_{ijrs} \left(d_{ij}^{(P)} E_i \right) \quad (2.72)$$

Kapitel 3

Messmethoden zur Charakterisierung von optisch nichtlinearen Kristallen

3.1 Das Schlierenverfahren

H. Schardin [Sc42] hat eine Schliere als die Ursache für jede auf ein verhältnismäßig kleines Gebiet beschränkte irreguläre Ablenkung des Lichtes definiert. Solche Strahlablenkungen werden z. B. durch, zur Strahlausbreitung senkrechte, Variationen der Brechungsindizes verursacht.

Eine Vielzahl verschiedener Realisierungsmöglichkeiten finden sich in den Übersichtsartikeln von H. Schardin [Sc42] und L. A. Vasil'ev [Va71].

Die Schlierenverfahren wurden für eine Reihe verschiedener Anwendungen entwickelt und genutzt, z.B. für die Bestimmung von Konzentrationsgradienten in Flüssigkeiten.

Qualitative Untersuchungen der Schlieren in Kristallen während oder nach der Züchtung wurden von H.M. Cox et al [CM73], K. Kitamura [Ki80], W. Jin et al. [Ji93], S. Kleine [Kl97], V. Wesemann [We02] und J. L'huillier [Lh03] durchgeführt.

Im Wesentlichen existieren zwei verschiedene Gruppen von Schlierenmessverfahren. Es handelt sich dabei um Verfahren, bei denen das zu untersuchende Objekt mittels optischer Komponenten abgebildet wird, und eine Gruppe, bei der keine Abbildung des Untersuchungsobjektes durch optische Komponenten erfolgt.

Das Schattenverfahren ist ein typisches Verfahren ohne optische Komponenten zur Abbildung des Untersuchungsobjektes. Dabei wird der von einer punktförmigen Quelle ausgehende Lichtkegel durch eine Probe auf einen Schirm abgebildet. Die Schlieren führen dabei zu einer Ablenkung des Lichtes und somit zu einer Helligkeitsänderung auf dem Schirm. Bereiche einer Schliere, in denen die Ablenkung konstant ist, erzeugen keinen Kontrast

auf dem Beobachtungsschirm. Deshalb können mit diesem Verfahren nur Änderungen der Lichtablenkungen detektiert werden [Sc42]. Die Schattenmethode ist entsprechend für eine quantitative Untersuchung von Proben ungeeignet.

In der Gruppe der Schlierenverfahren bei denen das zu untersuchende Objekt mittels optischer Komponenten abgebildet wird, wird ein räumlicher Filter oder ein Farbfilter in der Fourierebene genutzt. Ein räumlicher Filter wandelt dabei die in einem Objektpunkt verursachten Strahlablenkungen in Intensitätsänderungen im Bildpunkt. Durch Verwendung von Farbfiltern mit abgestufter Färbung werden unterschiedliche Ablenkwinkel in Farbinformationen überführt.

Ein Beispiel für diese Gruppe ist das sogenannte Töplersche Schlierenverfahren [Sc34, Sc42]. Bei diesem Schlierenverfahren wird mit einer Blende die Information über die Strahlablenkung in eine Intensitätsänderung in der Bildebene überführt. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass mögliche Absorptionen in dem Material als Schlieren interpretiert werden.

Die einzigen quantitativen Untersuchungsmethoden sind die Methoden von S. Kleine [Kl97] und V. Wesemann [We02]. Beide Methoden benutzen eine Xenonbogenlampe als Strahlquelle und eine CCD - Kamera zur Detektion. Die von S. Kleine genutzte Methode ist eine Dunkelfeldmethode, d.h., die nicht abgelenkten Strahlen wurden durch eine kreisförmige Schlierenblende vollständig abgeblockt. In dieser Arbeit wird nur der Betrag und nicht die Richtung des Ablenk winkels bestimmt. Ferner ist die Absorption vernachlässigt.

Die Realisierung von V. Wesemann [We02] ist eine quantitative Messmethode, die die Absorption durch ebenfalls durchgeführte Transmissionsmessungen der Proben berücksichtigt. Mit dieser Methode ist es möglich, den Betrag und die Richtung des Ablenk winkels zu bestimmen.

Experimentelle Realisierung

Abbildung 3.1 zeigt schematisch den von V. Wesemann [We02] realisierten Versuchsaufbau, der zur Bestimmung der Strahlablenkung in Kristallen verwendet wurde. Der Messaufbau entspricht im Wesentlichen dem Töplerschen Schlierenverfahren [Sc34, Sc42].

Als Strahlungsquelle dient eine leistungsstabilisierte Xenonhochdrucklampe (Osram XBO 500 W/RC). Ein Teil der Leistung der emittierten Strahlung wird mit einer Photodiode gemessen und zur Steuerung des Lampenstroms und damit der Lampenleistung genutzt [PZ81]. Nach einer Stabilisierungsphase weist die Lampenanordnung relative Stabilitätsschwankungen von lediglich $\pm 0,05\%$ auf. Ein Parabolspiegel dient dazu, die Strahlung der Xenon-Lampe auf eine Streuscheibe aus Opalglas zu fokussieren. Die Streuscheibe dient zur räumlichen Homogenisierung der Strahlung. Eine achromatische Linse mit der

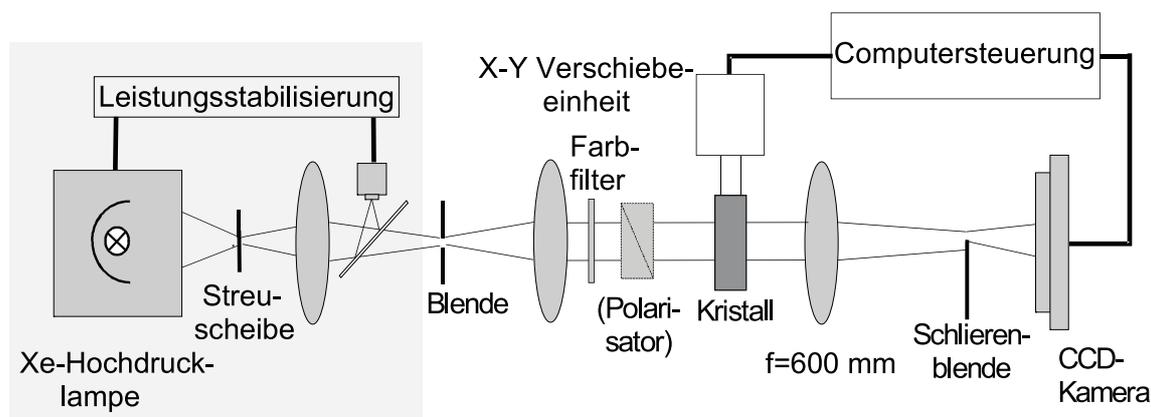


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Schlierenverfahrens (Quelle: V. Wesemann [We02]). Für Details siehe Text.

Brennweite $f = 40$ mm fokussiert die gestreute Strahlung auf eine rechteckige Blende, die sogenannte Lichtquellenblende. Die Lichtquellenblende ist rechteckig und entspricht einer scharfkantig rechteckig begrenzten, flächenhaften Lichtquelle mit räumlich homogener Intensitätsverteilung. Ein Objektiv der Firma Rodenstock (APO-Rodagon D1x4/75mm) mit einer Brennweite von $f = 75$ mm dient dazu, die Strahlung zu kollimieren. Im kollimierten Strahlbereich befindet sich ein Farbfilter (Filterglas BG3/3mm, Hersteller Fa. Schott). Die transmittierte Strahlung hat eine volle Halbwertsbreite (FWHM) von 50 nm bei einer zentralen Wellenlänge von 450 nm.

Zur Untersuchung optisch doppelbrechender Kristalle wird ein Polarisator in den Versuchsaufbau eingefügt, so können die Gradienten der optischen Weglänge für ordentlich und außerordentlich polarisierte Strahlung getrennt untersucht werden.

Die Probe wird hinter dem Polarisator positioniert. Die Probenrückseite wird mit der Hilfe einer Linse (Brennweite $f = 600$ mm) auf eine CCD-Kamera (Photometrics ATC300L) abgebildet. In der Fourierebene der Abbildung, die zugleich die Bildebene der Lichtquelle ist, wird eine Schlierenblende eingebracht. Die Schlierenblende blendet einen Teil des Lichtquellenbildes aus. Bei einer idealen Probe würde diese Abdeckung zu einer homogenen, aber abgeschwächten Ausleuchtung der CCD-Kamera führen. Reale Proben jedoch besitzen allerdings einen Gradienten der geometrischen Länge oder einen Brechungsindexgradienten. Diese Gradienten führen dazu, dass der Lichtstrahl an der entsprechenden Stelle zu der Schlierenblende hin, oder von dieser wegelenkt wird. Diese Ablenkung führt zu einer Intensitätsänderung im zugehörigen Bildpunkt auf der CCD-Kamera. Gradienten parallel

zur Strahlausbreitung führen dabei zu keiner Ablenkung, lediglich Komponenten senkrecht zur Ausbreitungsrichtung führen zu Helligkeitsänderungen. Da bei dieser Messmethode lediglich Komponenten senkrecht zu Schlierenblende gemessen werden können, sind für eine vollständige Erfassung der Gradienten der optischen Weglänge zwei Messungen mit zueinander senkrechten Blenden notwendig. Als Schneidenblenden werden Rasierklingen verwendet, welche parallel zu der Begrenzung der Lichtquellenrechteckblende justiert sind. Eine ausführliche Beschreibung des experimentellen Aufbaus und dessen Leistungsfähigkeit findet sich in [We02].

Theoretische Grundlagen

Im allgemeinen Fall setzt sich die Ablenkung eines Lichtstrahls in einem Kristall aus einer Ablenkung, bedingt durch einen Brechungsindexgradienten, und aus einem Gradienten der geometrischen Länge des Kristalls zusammen. Sollte eine Trennung der beiden Effekte notwendig sein, so ist das Schlierenverfahren alleine nicht ausreichend. Deshalb werden zusätzliche Messungen der Oberflächenprofile der Proben notwendig. Mit Kenntnis der Oberflächenprofile der Kristalle ist es möglich, die Brechungsindexgradienten in der Probe zu bestimmen [We02, Lh03].

Zur quantitativen Erfassung des Gradienten der optischen Weglänge geht man nun von einem Lichtstrahl aus, der sich parallel zur z-Richtung ausbreitet und in der xz-Ebene abgelenkt wird.

Nach H.Schardin [Sc34] und H. Wolter [Wo56] folgt für den Ablenkwinkel ϵ eines Lichtstrahls der durch einen Brechungsindexgradienten hervorgerufen wird:

$$\epsilon = \frac{1}{n} \int_0^L \left(\frac{dn}{dx} \right)_{(x_0, y_0, z)} dz \quad (3.1)$$

Der Kristall hat dabei die konstante Länge L und einen ortsabhängigen Brechungsindex senkrecht zu z. $\left(\frac{dn}{dx} \right)_{(x_0, y_0)}$ ist die x-Komponente des Brechungsindexgradienten an der Stelle (x_0, y_0, z) .

Unter der Annahme, dass der Gradient $\frac{dn}{dx}$ unabhängig von der Lichtausbreitung z ist, folgt für den Ablenkwinkel:

$$\epsilon = \frac{L}{n} \frac{dn}{dx} \quad (3.2)$$

Wenn der Lichtstrahl wieder aus dem Kristall austritt, wird der Strahl gebrochen. Für den außerhalb des Kristalls gemessenen Ablenkwinkel α gilt näherungsweise [We02]:

$$\alpha_n = n\epsilon = L \frac{dn}{dx} \quad (3.3)$$

Auch eine Ortsabhängigkeit der geometrische Länge des Kristalls beeinflusst die Ausbreitung des Lichtstrahls. Zur Herleitung des durch die geometrische Länge verursachten Winkels wird von einem Kristall mit einem kleinen Keilwinkel ausgegangen, wobei die Eintrittsfläche senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lichtstrahls steht. Zur Herleitung des Ablenkungswinkels, der durch Änderungen der geometrischen Weglänge hervorgerufen wird, wird ein Kristall mit einem kleinen Keilwinkel γ in x-Richtung betrachtet. Für den Keilwinkel gilt dann:

$$\frac{dL}{dx} = \tan(\gamma) \quad (3.4)$$

Steht die Vorderseite senkrecht zum Strahl, der sich wieder in z-Richtung ausbreitet, wird der Strahl an der Rückseite des Kristalls gemäß dem Snelliusschen Brechungsgesetz gebrochen. Mit dem Brechungsgesetz ergibt sich in der Näherung für kleine Winkel, also $\sin \alpha \approx \alpha$ und $\sin \gamma \approx \gamma$ [Wo56]:

$$\alpha_L = (n - 1)\gamma = (n - 1)\frac{dL}{dx} \quad (3.5)$$

Die für die x-Richtung angestellten Betrachtungen gelten ebenso für die y- und die z-Richtung.

Aus den Gleichungen (3.3) und (3.5) ergibt sich der Gesamtablenkwinkel α in Abhängigkeit von der optischen Weglänge [We02]:

$$\alpha = \alpha_L + \alpha_n = (n - 1)\frac{dL}{dx} + L\frac{dn}{dx} = \frac{d}{dx}(nL) - \frac{dL}{dx} \quad (3.6)$$

Eine Strahlablenkung in der Probe um einen Winkel α führt am Ort der Schlierenblende zu einer Versetzung des Lichtquellenbildes um die Strecke Δa [Sc42]:

$$\Delta a = \alpha f \quad (3.7)$$

f ist dabei die Brennweite der abbildenden Linse. Dieser Versatz führt zu einer Intensitätsänderung $\Delta\Phi$ im Bildpunkt. Nutzt man eine rechteckige Blende oder eine entsprechende Lichtquelle, so führt eine zu den Begrenzungen parallele Schneide, die als Schlierenblende eingesetzt wird, zu einer dem Strahlversatz Δa proportionalen Intensitätsänderung:

$$\Delta\Phi = k\Delta a \quad (3.8)$$

Die Proportionalitätskonstante kann aus Messungen ohne Probe für die jeweilige Schlierenposition bestimmt werden.

Aus den Gleichungen (3.7) und (3.8) folgt:

$$\alpha = \frac{\Delta\Phi}{kf} \quad (3.9)$$

Binning	2	4	8
Maximale räumliche Auflösung [μm]	13,5	27,0	54,0
Minimaler detektierbarer Ablenkwinkel ($\cdot 10^{-6}$)[rad]	4,0	2,2	1,2
Fehler der Gradientenkomponenten [%]	2,0	1,3	0,9
Fehler des Betrags des Gradienten [%]	4,0	2,6	1,8
Fehler des Richtungswinkels [%]	2,0	1,3	0,9

Tabelle 3.1: Relative Fehler der kartesischen Komponenten des Gradienten der optischen Weglänge, des Betrages und des Richtungswinkels des Gradienten der optischen Weglänge in Abhängigkeit der maximalen räumlichen Auflösung, aus [We02])

Zur genauen Bestimmung möglichst kleiner Ablenkwinkel ist also eine langbrennweitige Linse notwendig. Zum Vergleich von Kristallen verschiedener Länge wird der Gradient der optischen Weglänge auf die Länge des Kristalls normiert.

Um eine anschaulichere Darstellung der Größen und der Richtung des auf die Kristalllänge normierten Gradienten der optischen Weglänge zu erhalten, werden die Messdaten in Teilen dieser Arbeit in Polarkoordinaten transformiert. Details hierzu finden sich in [We02].

Räumliche Auflösung und Messgenauigkeit

Die räumliche Auflösung des realisierten Messverfahrens ist begrenzt durch die Größe des Bildausschnittes, der auf die CCD-Kamera abgebildet wird. Ein Pixel hat dabei eine Größe von $19 \mu m$. Berücksichtigt man die Vergrößerung von 2,28 und 2,81 so sind Objekte von $8,4 \mu m$, bzw. $6,8 \mu m$ auflösbar. Zur Minimierung der durch das sogenannte Photonensrauschens der CCD-Kamera verursachten Messfehler ist es in der Auswertung möglich, die Werte mehrerer benachbarter Kamerapixel zu einem Megapixel zusammenzufassen. Dieser Vorgang wird als Binning bezeichnet. Die räumliche Auflösung reduziert sich entsprechend. Die minimal detektierbare Ablenkwinkel wurden experimentell von V. Wesemann [We02] bestimmt. Die aus den Messungen berechneten Werte sind in der Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Für den maximal detektierbaren Ablenkwinkel gilt:

$$\alpha = \arctan\left(\frac{R}{a}\right) \quad (3.10)$$

Es ergeben sich maximal detektierbare Ablenkwinkel von $\alpha = 4,1 \cdot 10^{-2} (\equiv 2,34^\circ)$ (Vergrößerung 2,81) bzw. $\alpha = 3,9 \cdot 10^{-2} (\equiv 2,22^\circ)$ (Vergrößerung 2,28) für die Gegenstandsweiten

von $a = 814 \text{ mm}$ (Vergrößerung 2,81) bzw. von $a = 858 \text{ mm}$ (Vergrößerung 2,28) und dem Radius der Aperturblende von $R = 33,34 \text{ mm}$.

In der Tabelle 3.1 sind auch die berechneten Werte der relativen Fehler in Abhängigkeit von der Auflösung zusammengefasst. Die Mittelung über mehrere Pixel führt zu einer Reduzierung des Intensitätsrauschens auf Kosten der räumlichen Auflösung.

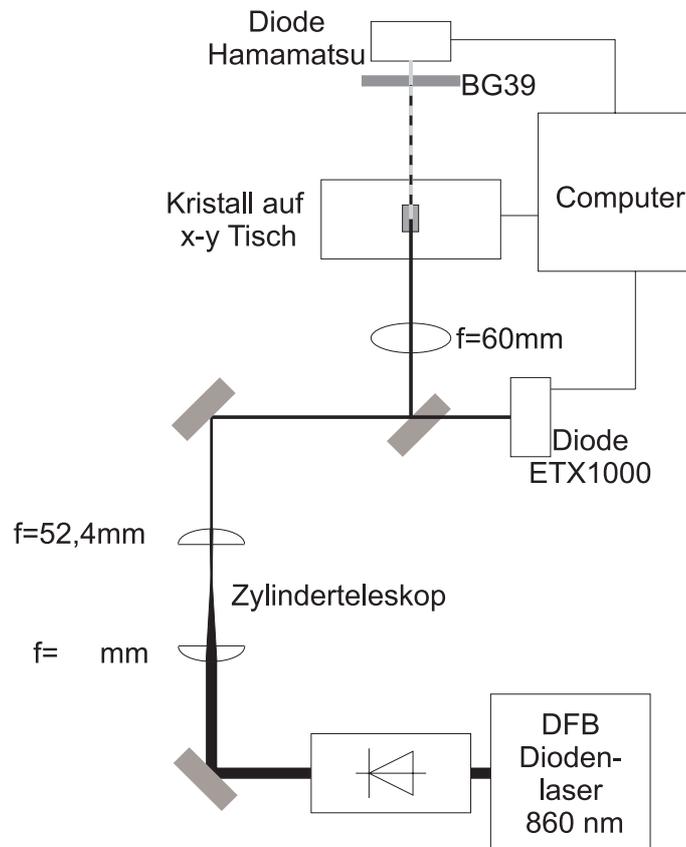


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Messplatzes zur Bestimmung der Konversionseffizienz bei 860 nm.

3.2 Bestimmung der Konversionseffizienz bei Frequenzverdopplung

Eine vielfach genutzte Methode zur Untersuchung optisch nichtlinearer Kristalle ist die Ermittlung der Konversionseffizienz. Mit deren Kenntnis und Kenntnis des genauen Strahlverlaufs der Fundamentalstrahlung kann die wichtige Größe der effektiven optischen nichtlinearen Koeffizienten d_{eff} berechnet werden [BK68].

Einen Überblick der bisher realisierten Aufbauten zur Bestimmung der Konversionseffizienz im Einfachdurchgang durch einen optisch nichtlinearen Kristall findet sich bei S. E. Kapphan [Ka99].

Die Eigenschaften von Kristallen können zum Beispiel durch Variation der Stöchiometrie oder der Dotierungskonzentration räumlich stark variieren. Entsprechend kommen in die-

ser Arbeit zweidimensional aufgelösten Untersuchungen besondere Bedeutung zu.

Ortsaufgelöste Messungen der Konversionseffizienz wurden durch Abrastern eines Kristalls in einem Laserstrahl [NF80, Sc89] oder durch Abbildung der zweiten Harmonischen, die durch Fundamentalstrahlung mit homogener Intensitätsverteilung erzeugt wird, realisiert [Sc87]. In den meisten Arbeiten wurde dabei von einer konstanten Leistung der Fundamentalstrahlung, bzw. von einer absolut homogenen Intensitätsverteilung der Fundamentalstrahlung ausgegangen.

In [We02] wurde ein Messaufbau realisiert, der die Verdopplungseffizienz aus der gleichzeitigen Messung der Leistung der Fundamentalstrahlung und der Leistung der zweiten Harmonischen bestimmt. Der Vorteil hierbei ist, dass nicht mehr von einer konstanten Leistung der fundamentalen Strahlung ausgegangen werden muss. Leistungsschwankungen des Lasers werden berücksichtigt und so die Genauigkeit des Verfahrens erhöht.

In diesem Abschnitt wird ein Verfahren zur zweidimensional aufgelösten Bestimmung der Verdopplungseffizienz bei Frequenzkonversion im Einmaldurchgang durch einen optisch nichtlinearen Kristall vorgestellt.

Experimentelle Realisierung

Abbildung 3.2 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau zur Bestimmung der Konversionseffizienz.

Die in einem Laser erzeugte Fundamentalstrahlung wird zur Vermeidung von Rückreflektion durch einen optischen Isolator geleitet und anschließend durch ein Zylinderteleskop geformt. Mit einem Strahlteiler wird die Laserstrahlung in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Der durch den Strahlteiler transmittierte Teil der Strahlung wird zur Bestimmung der Leistung der Fundamentalstrahlung durch eine Photodiode aufgezeichnet. Der reflektierte Anteil der Strahlung wird durch eine Linse der Brennweite $f = 60$ mm in einen optisch nichtlinearen Kristall fokussiert. Der optisch nichtlineare Kristall ist temperaturstabilisiert. Durch zwei X-Y Motortische kann die Position des Kristalls senkrecht zum Messstrahl variiert werden. Die im Kristall erzeugte zweite Harmonische wird mittels eines spektralen Filters von der Fundamentalstrahlung getrennt und durch eine weitere Photodiode detektiert.

Die für die Bestimmung der Frequenzkonversionseffizienz genutzte Strahlquelle sollte zeitlich intensitäts- und frequenzstabil sein. Ferner sollte die Strahlquelle spektral sehr schmalbandig sein. Eine Strahlquelle, die diese Anforderungen hinreichend erfüllt, ist ein Diodenlaser mit sogenannter verteilter Rückkopplung (Distributed-feedback-Dioden-Laser, DFB-Laser).

Der in dieser Arbeit verwendete Diodenlaser (Hersteller: FBH Berlin) hat eine spektrale Bandbreite $\delta\nu$ von weniger als 11 MHz und weist eine hohe zeitliche Stabilität auf mit relativen Leistungsschwankungen von weniger als 0,5 %. Die Wellenlänge der emittierten Strahlung beträgt 860 nm und lässt sich durch die Temperatur und den Diodenstrom durchstimmen. Die maximale Ausgangsleistung des Lasers beträgt 210 mW. Mit Beugungsmaßzahlen von $M_x^2 = 1,1$ in saggitaler und $M_y^2 = 1,4$ in horizontaler Ebene ist die Strahlung nahezu beugungsbegrenzt, weist jedoch einen Astigmatismus und elliptischen Strahlquerschnitt auf.

In der vorliegenden Arbeit wurden nur relative Messungen der Konversionseffizienz, ohne Bestimmung von Absolutwerten durchgeführt, weshalb die im Strahlquerschnitt vorhandene Filamentierung unerheblich war.

Zur Bestimmung der relativen Leistung des durch den Strahlteiler transmittierten Anteils der Strahlung wurde eine Photodiode (Herstellers Epitaxx; Typ: ETX1000) genutzt.

Zur Variation der Kristallposition wurden zwei Schrittmotortische (Owis, Modell LM60) und zur Temperaturregelung ein NTC - Widerstand (Modell B57861, Siemens Matsushita Components) verwendet. Ein Farbfilter (Typ BG39, Hersteller: Fa. Schott) dient zur Trennung von Fundamentalstrahlung und zweiter Harmonischen. Mit einer Photodiode (Herstellers Hamamatsu; Typ: S2386-8K) wurde die zweite Harmonische detektiert.

Die räumliche Auflösung des realisierten Messverfahrens wurde durch den Strahltaillendurchmesser des Diodenlasers ($75 \mu\text{m}$) limitiert.

Zur Bestimmung der Stabilität des realisierten Messverfahrens wurde die Konversionseffizienz in einer Langzeitmessung mehrmals an einer Stelle des Kristalls durchgeführt. Die Messung dauerte ca. 8 Stunden, was etwa dem 2-3 fachen einer orts aufgelösten Messung entspricht. Die so ermittelte relative Standardabweichung der Konversionseffizienz hatte einen Wert von 0,43 %.

Messbeispiel

In den Abbildungen 3.3 (a) und (b) sind die Ergebnisse von zwei zweidimensional aufgelösten Messungen der Konversionseffizienz des Kristalls AND15004 dargestellt. Die Messungen wurden mit dem eben vorgestellten Aufbau durchgeführt. Die Effizienz η ist in den Abbildungen farblich kodiert. Der Kristall hat eine markante Störung, die diagonal von links unten nach rechts oben verläuft. In Abbildung 3.3 (a) wird in dieser Störung eine geringere Effizienz erzielt als im Rest des Kristalls. In Abbildung 3.3 (b) jedoch wurde in der diagonalen Störung eine größere Effizienz als im Rest des Kristalls erzielt. Das liegt daran, dass vor der Messung jeweils an einem Punkt innerhalb des Kristalls die Frequenz-

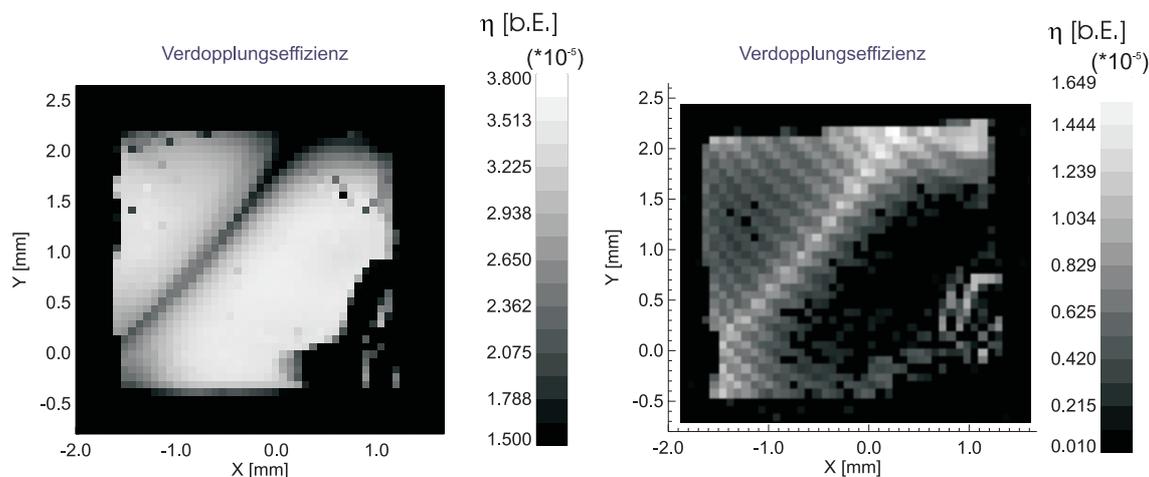


Abbildung 3.3: Konversionseffizienzmessungen des Kristalls AND15004. Die Messgröße ist in Grautönen kodiert, die Messungen wurden bei verschiedenen Temperaturen des nichtlinearen Kristalls durchgeführt. Für Details siehe Text.

konversion durch Variation der Kristalltemperatur optimiert wurde.

Der Punkt, der zur Optimierung gewählt wurde, lag bei Abbildung 3.3 (a) außerhalb der Störung und bei Abbildung 3.3 (b) innerhalb der Störung. Offensichtlich variiert innerhalb des Kristalls die Phasenangepasstemperatur auf Grund der Störung. Bei der Messung, die in Abbildung 3.3 (a) dargestellt ist, wurden insgesamt höhere Konversionseffizienzen erzielt als in der zweiten Messung (Abbildung 3.3 (b)).

Eine reine Konversionseffizienzmessung ist offensichtlich nicht ausreichend, um einen nichtlinearen Kristall vollständig zu charakterisieren. Um die optimale Position für eine Frequenzkonversion innerhalb eines Kristalls zu bestimmen, müsste für möglichst viele Punkte im Kristall eine Optimierung der Kristalltemperatur durchgeführt werden und jeweils die maximale Konversionseffizienz ermittelt werden. Diese Vorgehensweise wäre mit einem erheblichen Zeitaufwand verbunden.

Es wären Untersuchungen des Kristalls hilfreich, mit denen detailliertere Informationen über konversionseffizienzbeeinflussende Eigenschaften wie Phasenangepasstemperatur, Wellenlängenakzeptanzbandbreite und Doppelbrechungshomogenität erhalten werden könnten. So könnte bereits im voraus eine optimale Stelle (mit hoher Homogenität der Doppelbrechung) für die Frequenzkonversion bestimmt werden. Ferner wären bereits die optimalen Bedingungen für die Experimente (Phasenangepasstemperatur) bekannt. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmals ein Messplatz realisiert, mit dem durch

eine schnelle Messung ($< 6\mu s$) die gesamte Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der eingestrahlten Fundamentalwellenlänge möglich ist, wodurch zweidimensionale Messungen mit hoher räumlicher Auflösung möglich sind.

3.3 Bestimmung der Akzeptanzkurve mit ultrakurzen fs - Laserimpulsen

Wie das Messbeispiel in Abschnitt 3.2 zeigt, ist eine Charakterisierung der die Konversionseffizienz bestimmenden Eigenschaften eines nichtlinearen Kristalls durch eine einfache Konversionseffizienzmessung nicht ausreichend. Die Konversionseffizienz wird durch eine Vielzahl von Parametern bestimmt. Verluste innerhalb des Kristalls, bedingt durch Absorption, unzureichende Anti-reflex-Beschichtungen, oder Inhomogenitäten in der Doppelbrechung, beeinflussen die Konversion. Um die einzelnen Faktoren zu untersuchen, müssen Methoden entwickelt werden, die es erlauben, die Effekte voneinander zu trennen.

Eine Vielzahl von Informationen über Kristalleigenschaften, die sich auf die Konversionseffizienz auswirken, lassen sich aus der relativen Konversionseffizienz in Abhängigkeit von der Wellenlänge ermitteln.

Wie in Abschnitt 2.2.2 dargelegt, ist ein quantitatives Kriterium zur Beurteilung der Homogenität der Doppelbrechung der Homogenitätsparameter α .

Verschiedene Kriterien sind Abweichungen in der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} innerhalb des Kristalls, oder Variationen der Phasenanpassungstemperatur T_{PM} zur Konversion von Strahlung einer bestimmten Wellenlänge. Aus der Phasenanpassungstemperatur T_{PM} lassen sich Rückschlüsse auf die Stöchiometrie der untersuchten Kristalle machen. Dies wurde erfolgreich von U. Schlarb und K. Betzler [Sc93] für LiNbO_3 nachgewiesen. Räumlich aufgelöste Untersuchungen der Stöchiometrie oder der Dotierungskonzentration von Kristallen lassen direkte Rückschlüsse auf Variationen der Brechungsindizes und der Doppelbrechung zu [WC96, Lh03].

Für eine effiziente Frequenzkonversion ultrakurzer Laserimpulse sind Kristalle mit einer großen Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ wichtig, um ein möglichst breites Frequenzspektrum zu konvertieren. Die Akzeptanzbandbreite ist für QPM - Kristalle auch ein Kriterium, mit dem auf fehlende Domänen geschlossen werden kann [Fe92].

Bei durchstimmbaren frequenzkonvertierten Strahlquellen mit Temperaturphasenanpassung ist für eine effiziente Frequenzkonversion die genaue Kenntnis der Variation $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} mit der Temperatur T notwendig.

Die verschiedenen Kriterien machen eine möglichst genaue Kenntnis der Akzeptanzkurve notwendig. Bisherige Methoden zur Bestimmung der Akzeptanzkurve sind das Durchstimmen der Kristalltemperatur und gleichzeitiges Messen der Leistung der konvertierten Strahlung. Diese Methode wurde u.a. von F.R. Nash et al. [Na69] benutzt. Ein wesentlicher Nachteil dieser Methode ist die große Messdauer.

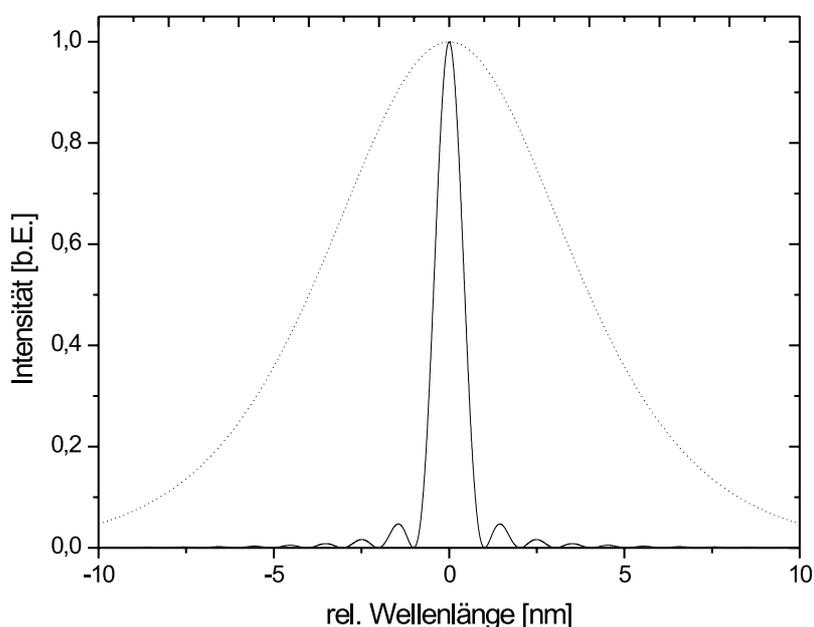


Abbildung 3.4: Die Abbildung zeigt einen fs-Impuls mit einer spektralen Breite (FWHM) von 8 nm (gepunktete Linie), sowie die zugehörige Akzeptanzkurve eines 1 mm langen Kaliumniobat-Kristalls mit einer wesentlich geringeren Akzeptanzbandbreite von 0,9 nm (durchgezogene Linie)

Eine weitere Methode, die gesamte Akzeptanzkurve zu bestimmen, ist die Variation der Pumpwellenlänge. Diese Methode wurde von T. Pliska et al. [Pl95] benutzt, um die Homogenität der Doppelbrechung zu bestimmen. Beide Methoden sind mit einem hohen Zeitaufwand verbunden.

Wegen der langen Messdauer sind beide Methoden für hochaufgelöste räumliche Untersuchungen von Kristallen nicht geeignet.

Nutzt man eine breitbandige Strahlquelle, deren Strahlung spektral wesentlich breiter als die Akzeptanzbandbreite des nichtlinearen Kristalls ist (wie in Abbildung 3.4 dargestellt), so ist es möglich, die gesamte Akzeptanzkurve, ohne aufwendige Scan-Methoden, mit einem Laserimpuls zu erfassen („Ein-Schuß-Verfahren“).

Von V. Wesemann [We02] wurde dieses Verfahren erstmals unter Verwendung ultrakurzer Laserimpulse angewandt. Dazu wurde mit zwei Spektrometern durch manuelles Auslösen der Messung das Spektrum der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen bestimmt.

Die Messungen wurden nur an einer Stelle durchgeführt, und es wurde der Homogenitätsparameter α bestimmt. Ferner konnte durch das Starten der Messung von Hand keine exakt gleichzeitige Messwerterfassung des Spektrums der Fundamentalstrahlung und des Spektrums der zweiten Harmonischen gewährleistet werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein vollständig automatisiertes Verfahren entwickelt, das mittels ultrakurzer Laserimpulse beide Spektren gleichzeitig erfassen kann. Um die oben genannten Parameter zur Charakterisierung optisch nichtlinearer Kristalle zweidimensional aufgelöst und sehr präzise zu bestimmen, muß die Akzeptanzkurve möglichst genau und in kurzer Zeit bestimmt werden. Das in dieser Arbeit realisierte Verfahren bestimmt die Wellenlängenakzeptanzkurve in $6 \mu s$ mit insgesamt 1800 Messpunkten.

An die Strahlquelle werden dabei eine Reihe von Forderungen gestellt, wie hohe zeitliche Stabilität und gute Strahlqualität. Um nichtlineare Kristalle in einem weitem Wellenlängenspektrum zu untersuchen, sollte der Laser in einem großen Wellenlängenbereich durchstimmbare sein.

Besonders geeignet hierzu ist ein Kerr - Linsen - Modengekoppelter Ti:Saphir-Laser.

Es handelt sich nach aktuellem Kenntnisstand um die erste Realisierung eines „Ein-Schuß-Verfahrens“ zur exakt gleichzeitigen Bestimmung des Spektrums der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen zur Berechnung der Akzeptanzkurve. Mit dieser Methode sind erstmals räumlich aufgelösten Messungen hoher Auflösung zur Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α , der Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$, der Phasen Anpassungswellenlänge λ_{PM} , der Variation der Phasen Anpassungswellenlänge mit der Temperatur $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ und der räumlichen Variation der Phasen Anpassungstemperatur T_{PM} für eine bestimmte Wellenlänge möglich.

3.3.1 Experimentelle Realisierung

Die realisierte Messmethode nutzt das breite Spektrum eines fs-Ti:Saphir-Lasers. Der Versuchsaufbau ist in Abbildung 3.5 skizziert. Zur Vermeidung von Rückreflektionen der Laserstrahlung in den Laser wird die Strahlung durch eine optische Diode (Hersteller Gsänger, Modell920II) geleitet. Nach dem Faraday-Rotator wird die Laserstrahlung mit einem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Der reflektierte Teil wird mittels eines Czerny-Turner-Gittermonochromators Digikröm 480 (Hersteller: CVI Laser Cor.) spektral zerlegt. Der Austrittsspalt des Monochromators ist auf die maximal mögliche Breite geöffnet, so dass der Monochromator als Spektrograph genutzt wird. Die maximale Auflösung des Spektrometers beträgt $\Delta\lambda = 0,032 \text{ nm}$. Zur genauen Analyse der Strahlung wurde diese mittels eines Kameraobjektivs der Firma Sigma (Modell: 28-105 mm, F3.8-5.6 UC-

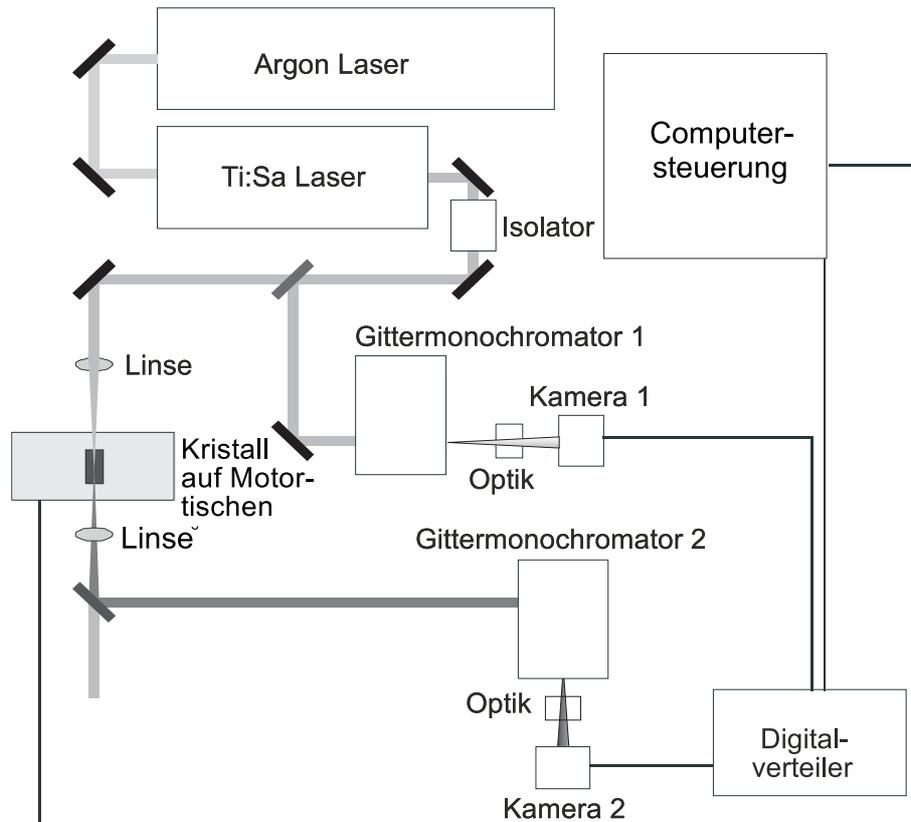


Abbildung 3.5: Aufbau der fs-Messmethode zu Bestimmung der für die Frequenzkonversion wichtigen Parameter

III) auf eine 12-Bit CCD-Zeilen-Kamera des Entwicklungsbüro G. Stresing (Modell 2010) abgebildet. Mit der aus 1728 Pixeln bestehenden Kamera wurde ein $4,7 \text{ nm}$ breites Spektrum erfasst.

Der transmittierte Teil der Strahlung wurde mittels einer Linse ($f = 100 \text{ mm}$) in den jeweiligen zu untersuchenden Kristall fokussiert. Die Linse war anti-reflex-beschichtet für die Strahlung des Ti:Saphirlasers. Die dabei entstehende zweite Harmonische wurde durch eine zweite Linse ($f = 80 \text{ mm}$) kollimiert und durch einen weiteren als Spektrometer genutzten Czerny-Turner-Gittermonochromator (Acton Research Corporation ARC, Modell: SpectraPro - 750) spektral zerlegt. Die minimale auflösbare Wellenlängendifferenz beträgt $\Delta\lambda \leq 0,026 \text{ nm}$. Der Austrittsspalt dieses Monochromators wurde auf eine CCD Zeilenkamera (Stresing: Modell 2010) abgebildet, wobei $2,35 \text{ nm}$ auf die Kamera abgebildet werden. Das abbildende Objektiv stammt vom Hersteller Nikon (Modell: Nikkor $f/1.8AF$). Zur genauen Berechnung der relativen Konversionseffizienz in Abhängigkeit von

der Wellenlänge war es notwendig, das Spektrum der Fundamentalen und der zweiten Harmonische zeitgleich aufzuzeichnen. Zur zeitgleichen Erfassung wurde ein Digitalverteiler des Entwicklungsbüro G. Stresing (Modell: 2061) verwendet. Beide Kameras sind über diesen Verteiler mit einem Computer verbunden. Um mehrdimensionale Untersuchungen des Kristalls durchzuführen, ist der Kristall auf zwei computergesteuerten Schrittmotortischen befestigt (Hersteller Owis, Modell LM60-12).

Die Abbildungen auf die beiden CCD - Kameras wurden so gewählt, dass der Abbildungsmaßstab das Verhältnis 1:2 hat. Dadurch ist es möglich, zusammengehörende Wellenlängen der Fundamentalstrahlung und der Strahlung der zweiten Harmonischen zu erfassen und zuzuordnen.

Durch das gleichzeitige Erfassen der beiden Spektren wird das Verfahren unempfindlich gegenüber Fluktuationen des Spektrums der Fundamentalstrahlung.

Charakterisierung des verwendeten Ti:Saphir-Lasersystems

Als Pumplaser wurde in dieser Arbeit ein Ti:Saphirlaser genutzt. Der verwendete Ti:Saphir-Laser beruht auf dem Prinzip der „Soft-aperture“ Kerr-Linsen-Modenkopplung, wobei die Technik der regenerativ eingeleiteten Selbstmodenkopplung [Ka92] benutzt wird. Innerhalb des Resonators befindet sich ein akustooptischer Modulator (AOM), der im Gegensatz zur aktiven Modenkopplung nichtresonant betrieben wird. Der akustooptische Modulator dient dabei lediglich zum Einleiten bzw. Stabilisieren der Modenkopplung über ein Rückkopplungssystem [Sp95].

Die Dispersion im Kristall sowie die durch die hohen Leistungen im Resonator verursachte Selbstphasenmodulation bewirken eine positive Frequenzmodulation der Laserimpulse. Die im Resonator umlaufenden Impulse würden sich also während ihrer Ausbreitung im Resonator verbreitern. Zur Kompensation ist es notwendig, eine negative Dispersion in den Resonator einzubringen. Hierzu dienen zwei Prismenpaare.

Durch die variable Prismenanordnung lässt sich die resultierende negative GDD stufenlos anpassen. Durch die verwendete verstellbare Impulskompression lassen sich fourierlimitierte Laserimpulse erzeugen.

Als Strahlquelle für den in dieser Arbeit realisierten Messplatz dient ein Ti:Saphirlaser der Firma Spectra Physics (Tsunami Modell 3960-S3M). Der Titansaphirlaser wird gepumpt durch einen Argon-Ionen-Laser, ebenfalls von der Firma Spectra Physics (Modell 2045).

Die Abbildung 3.6 a. zeigt die interferometrische Autokorrelation der Ti:Saphir-Laserstrahlung. Durch numerische Mittelung der zeitlich aufgelösten Interferenzstruktur der Autokorrelation lässt sich die Intensitätsautokorrelation und damit auch die Impulsdauer der Pumpstrahlung berechnen. Aus der Breite der Intensitätsautokorrelation ergibt sich unter

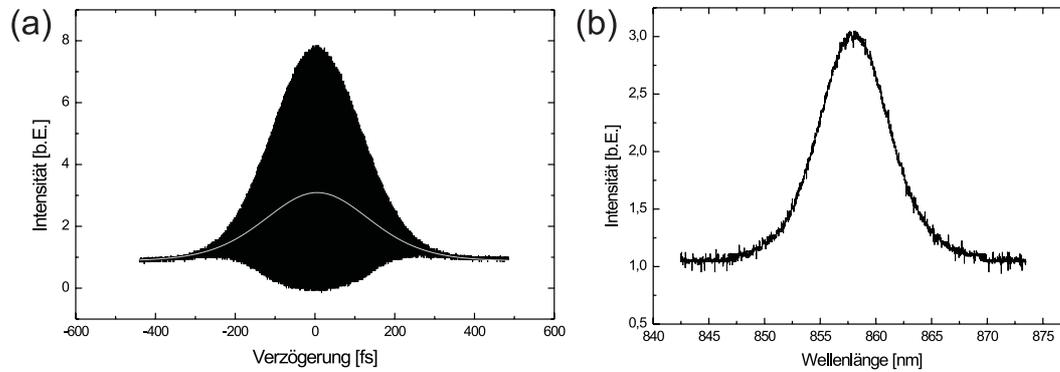


Abbildung 3.6: Interferometrische Autokorellation (a) und zugehöriges Spektrum (b) der Ti:Saphir-Laserstrahlung bei einer zentralen Wellenlänge von 860 nm. Für Details siehe Text.

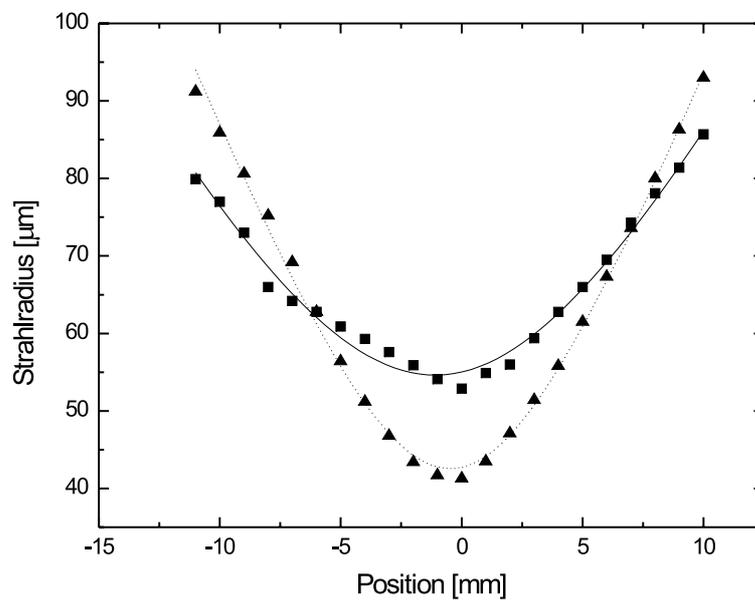


Abbildung 3.7: M^2 - Bestimmung der Ti:Saphir-Laserstrahlung. Für Details siehe Text.

Annahme eines sech²-förmigen Intensitätsprofils eine Impulsdauer von 114 fs.

Die Abbildung 3.6 b. zeigt das Spektrum der Pumpstrahlung. Bei der Zentralwellenlänge von 860 nm ist die spektrale Breite der Impulse 7,5 nm. Mit der Angabe der spektralen Breite und der Impulsdauer berechnet sich ein Zeit-Bandbreiten-Produkt von $\Delta\nu \cdot \Delta\tau \approx 0,35$. Die Strahlung des Pumplasers ist somit nahezu fourier-limitiert.

Die Repetitionsrate beträgt 80 MHz. Die Laserstrahlung ist bei dem verwendeten Spiegelsatz durchstimmbare zwischen 840 nm bis 1000 nm. Die Impulsdauer und das Zeit-Bandbreite-Produkt der Laserstrahlung ändern sich dabei nur unwesentlich.

Die Abbildung 3.7 zeigt den Verlauf des Strahlradius der Laserstrahlung sowohl in sagittaler als auch in horizontaler Richtung in Abhängigkeit von der Ausbreitungsrichtung hinter einer Linse mit einer Brennweite von $f = 100$ mm. Aus diesem Verlauf lässt sich die Beugungsmasszahl M^2 bestimmen. Sowohl in sagittaler Richtung als auch in horizontaler Richtung gilt $M^2 < 1,2$. Die Strahlung des Pumplasers ist somit nahezu beugungsbegrenzt.

3.3.2 Auswertung der Messergebnisse

Aus den experimentell bestimmten Spektren der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen wird gemäß Gleichung (2.41) die Akzeptanzkurve der Konversionseffizienz berechnet. Man erhält die relative Konversionseffizienz für die einzelnen Wellenlängen.

Durch Bestimmung der Position des Maximums wird die zentrale Verdopplungswellenlänge, also die Wellenlänge λ_{PM} , für die Phasenanpassung herrscht, ermittelt.

Die effektive Linienbreite λ_{eff} folgt durch numerische Integration der Messergebnisse. Der Homogenitätsparameter α ergibt sich nach Gleichung (2.39).

Die Akzeptanzbandbreite wird bestimmt, indem ausgehend von dem Maximum der Kurve die beiden Wellenlängen rechts und links des Maximums bestimmt werden, bei denen die relative Konversionseffizienz auf die Hälfte abgesunken ist. Durch Normierung mit der Kristalllänge folgt die Wellenlängenakzeptanzbandbreite des Kristalls.

Durch systematische Variation der Kristallposition senkrecht zum Messstrahl werden die Messgrößen an mehreren Punkten im Kristall bestimmt.

Durch mehrmalige Wiederholung der zweidimensionalen Messungen bei verschiedenen Temperaturen T wird die Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt. Durch polynomiale Regression der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} in Abhängigkeit von der jeweiligen Kristalltemperatur T kann der funktionale Zusammenhang $\lambda_{PM}(T)$ ermittelt werden. In dieser Arbeit wurden die Untersuchungen in einem schmalen Temperaturbereich zwischen 20 °C und 35 °C durchgeführt. In diesem Bereich konnte für die untersuchten Kristalle von einem linearen Zusammenhang zwischen Phasenanpas-

sungswellenlänge λ_{PM} und Kristalltemperatur T ausgegangen werden, weshalb hier lineare Fits durchgeführt wurden. Mit Kenntnis der Funktion $\lambda_{PM}(T)$ für jeden Punkt der orts aufgelösten Messung können die Parameter $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ für die Variation der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} mit der Temperatur T , die Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei einer bestimmten Temperatur und die Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Strahlung einer bestimmten Wellenlänge räumlich aufgelöst untersucht werden. Aus Kenntnis der Variation der Phasenanpassungstemperatur innerhalb des Kristalls lassen sich Aussagen über die Variationen der Zusammensetzung eines Kristalls machen [Sc93]. Diese Informationen können zur quantitativen Analyse der Variationen der Brechungsindizes und der Spannungsdoppelbrechung in Kristallen benutzt werden, analog zu den von J. L'huillier durchgeführten Untersuchungen an Nd:YAG [Lh03].

Ein großer Vorteil dieser Messmethode ist, dass keine Absolutwerte der Intensitäten der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen gemessen werden müssen. Insbesondere die Messungen des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α beruht auf Relativmessungen. Mittels Gleichung (2.49) lassen sich aber trotzdem quantitative Aussagen über die Reduktion der maximalen Konversionseffizienz eines Kristalls aufgrund von Inhomogenitäten der Doppelbrechung machen.

3.3.3 Güte des realisierten Messverfahrens

Räumliche Auflösung

Der konfokale Parameter b ist groß (4 cm) im Vergleich zur Länge der untersuchten Kristalle (maximal 1 cm). Die räumliche Auflösung des Messverfahrens wird somit vom Strahltaillendurchmesser der Fundamentalstrahlung festgelegt und beträgt 80 μm .

Die Wiederholgenauigkeit

Für räumlich aufgelöste Messungen ist eine hohe zeitliche Stabilität und eine hohe Wiederholgenauigkeit wichtig. Ohne diese Voraussetzungen sind verlässliche Messungen, die einen Vergleich der Messwerte innerhalb eines Kristalls oder auch zwischen verschiedenen Kristallen erlauben, nicht möglich.

Die Stabilität und Wiederholgenauigkeit wurden durch wiederholte Messungen der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} , der Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ und durch Bestimmung des Homogenitätsparameter α an einer Position des Kristalls bestimmt. Der Messzeitraum betrug 2-4 Stunden. Dies entspricht der Dauer einer typischen räumlich aufgelösten Messung.

In den Abbildungen 3.8 bis 3.10 sind die Ergebnisse einer solchen Messung dargestellt.

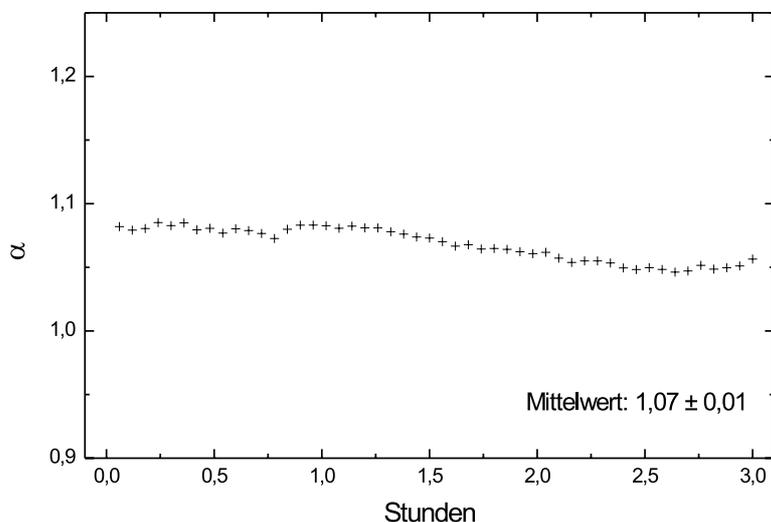


Abbildung 3.8: Langzeitstabilität des Homogenitätsparameters α . Die Messdauer betrug 3 Stunden. Es wurde ein Mittelwert von $(1,07 \pm 0,01)$ bestimmt, was einem relativen Fehler von 1 % entspricht.

Bei dieser Messung, die mit dem Kaliumniobat - Kristall AND15004 durchgeführt wurde, ergab sich ein Mittelwert des Homogenitätsparameters α von 1,07 mit einer Standardabweichung von 0,01, was einem relativen Fehler von etwa 1 % entspricht.

Der Mittelwert der Akzeptanzbandbreite beträgt 0,093 nm·cm mit einer Standardabweichung von 0,001 nm·cm, woraus sich ein relativer Fehler von etwa 1 % ergibt.

Der Mittelwert der zentralen Phasenangepassungswellenlänge ist 860,000 nm mit einer Standardabweichung von 0,004 nm, was einem relativen Fehler von deutlich unter 1 % ($4 \cdot 10^{-4}$ %) entspricht.

Aufgrund der hohen Stabilität des Systems sind also räumlich hochaufgelöste Messungen an Kristallen möglich.

Die hohe Wiederholgenauigkeit ist u.a. darauf zurückzuführen, dass die CCD-Kameras der Firma Stresing eine Auslesedauer von ungefähr $8 \mu\text{s}$ besitzen. Die Repetitionsrate des Lasers beträgt 80 MHz bei einer Impulsdauer von 100 fs, was bedeutet, dass pro Messung der beiden Spektren jeweils über 600 Laserimpulse auf die Kameras auftreffen. Diese Mittelung über sehr viele Impulse reduziert das Messrauschen und verbessert das Signal -

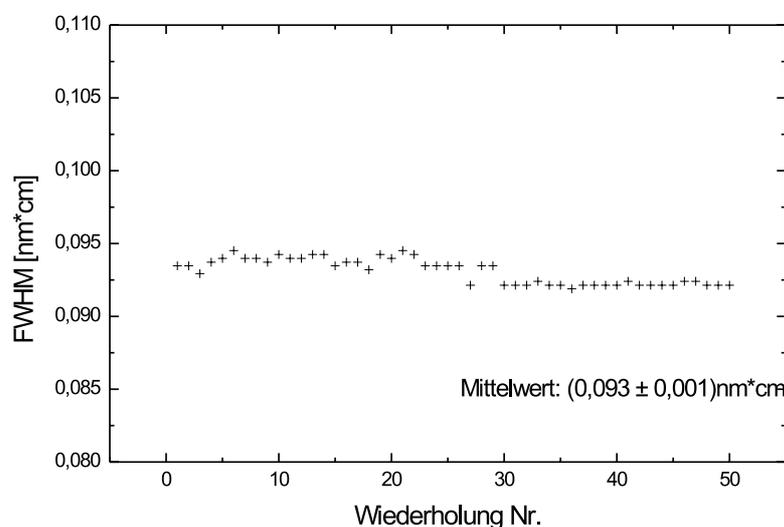


Abbildung 3.9: Langzeitstabilität der Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$. Die Messdauer betrug 3 Stunden. Es wurde ein Mittelwert von $(0,093 \pm 0,001) \text{ nm} \cdot \text{cm}$ bestimmt, was einem relativen Fehler von etwa 1 % entspricht.

Rausch Verhältnis.

Absolute Fehler des Messverfahrens

Fehler in der Bestimmung der Phasenanpassungswellenlänge

Zur Messung der Akzeptanzkurve wurde der Austrittsspalt des verwendeten Monochromators vollständig geöffnet. Aufgrund der fehlenden Wellenlängenselektion durch den Spalt konnte die auf einen Pixel der CCD-Zeile abgebildete Wellenlänge nicht zugeordnet werden. Um diese Zuordnung durchführen zu können, wurde nach der Justage der Monochromatoren eine Kalibrierung durchgeführt. Zu diesem Zweck wurde die in einem KNbO_3 -Kristall erzeugte zweite Harmonische des Ti:Saphir-Lasers (Wellenlänge SHG $\approx 430 \text{ nm}$) durch einen Strahlteiler aufgespalten. Ein Teil des Strahls wurde durch den Monochromator, der zur Bestimmung des Spektrums der zweiten Harmonischen benutzt wird, erfasst. Der andere Teil des Strahls wurde in einen Monochromator der Firma ANDO, Modell AQ-6315 eingekoppelt und das Spektrum gemessen. Durch Vergleich der beiden gemessenen Spektren konnte jedem Pixel der CCD-Zeile die mit dem Monochromator der Firma ANDO

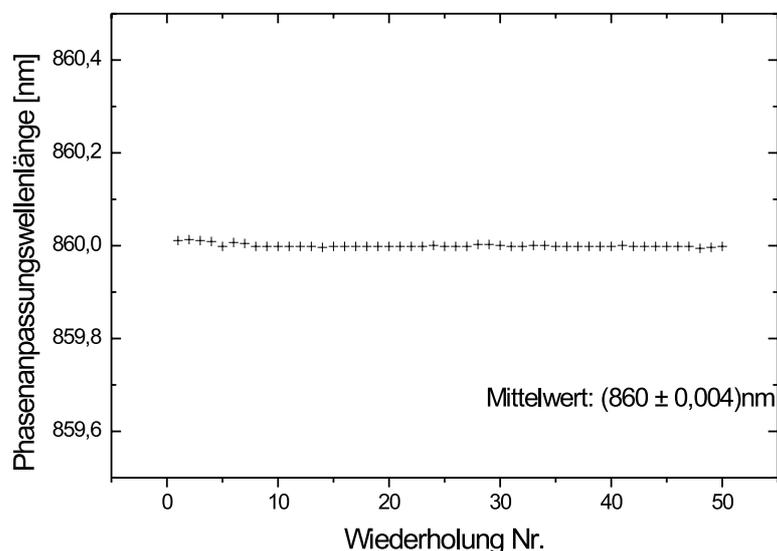


Abbildung 3.10: Langzeitstabilität der zentralen Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} . Die Messdauer betrug 3 Stunden. Es wurde ein Mittelwert von $(860,000 \pm 0,004)$ nm bestimmt, dies entspricht einem relativen Fehler von $4 \cdot 10^{-4} \%$

bestimmte Wellenlänge zugeordnet werden.

Nach der Kalibrierung des ersten Monochromators wurde der zweite Monochromator, der zur spektralen Erfassung der Fundamentalstrahlung benutzt wird, kalibriert. Dazu wurde der Ti:Saphirlasers im kontinuierlichen (cw-) Modus betrieben. Wie anhand der Abbildung 3.5 erklärt, wurde die Fundamentalstrahlung aufgespalten und ein Teil der Strahlung in einem nichtlinearen Kristall frequenzverdoppelt. Aufgrund der geringen spektralen Bandbreite der Fundamentalstrahlung und entsprechend der zweiten Harmonischen erfolgt eine der Spektren auf wenige Pixel (<5 Pixel) der CCD-Zeile. Beide Strahlen wurden gleichzeitig durch die beiden Monochromatoren des experimentellen Aufbaus erfasst. Durch Drehen des Gitters des zur Untersuchung der Fundamentalstrahlung verwendeten Monochromators wurde die Pixelposition des Fundamentalspektrums auf der CCD-Zeile pixelgenau mit der Pixel-Position des SHG - Spektrums übereinandergelegt. Damit konnte jedem Pixel der Fundamentalen ein Pixel der zweiten Harmonischen zugeordnet werden.

Das Auflösungsvermögen des zur Kalibrierung benutzten Monochromators des Herstellers

ANDO beträgt 0,05 nm. Das Auflösungsvermögen der beiden im experimentellen Aufbau verwendeten Monochromatoren ist deutlich höher. Deshalb ist der fehlerbestimmende Faktor bei der Zuordnung der Wellenlänge der zur Kalibrierung genutzte Monochromator. Der Fehler bei der Bestimmung der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} ist somit $\Delta\lambda_{PM} = 0,05$ nm.

Zur Bestimmung des Fehlers der Phasenanpassungswellenlänge in Abhängigkeit von der Temperatur muß der Fehler der Temperaturmessung berücksichtigt werden. Für die Temperaturmessung wird ein NTC - Widerstand Modell B57861 des Herstellers Siemens Matsushita Components verwendet. Die Toleranz dieser Widerstände wird vom Hersteller mit 1 % angegeben. Eine Abweichung der Temperatur um ein 1 % verursacht in dem untersuchten Temperaturbereich eine maximale Abweichung in der Phasenanpassungswellenlänge von $\pm 0,08$ nm. Der Gesamtfehler bei der Bestimmung der Phasenanpassungswellenlänge in Abhängigkeit von der Temperatur berechnet sich aus beiden Fehlern, d.h. dem Fehler aus der Kalibrierung der Spektrometer und dem Fehler aus der Temperaturbestimmung. Es folgt ein Wert von $\pm 0,13$ nm.

Fehler in der Bestimmung der Akzeptanzbandbreite

Auf die CCD-Zeilen der beiden Kameras wird ein Ausschnitt des Fundamentalspektrums bzw. des Spektrums der zweiten Harmonischen abgebildet. Von einem Pixel wird entsprechend ein Bruchteil des Spektrums mit der Breite $\Delta\lambda_K$ erfasst.

Jedem Pixel der Kameras wird bei der Auswertung eine Nummer zugeteilt. Die Akzeptanzbandbreite wird bestimmt, indem die Pixelnummern rechts und links des Maximums bestimmt werden, bei denen die relative Konversionseffizienz im Vergleich zur maximalen Konversionseffizienz auf die Hälfte abgesunken ist. Die Differenz der Pixelnummern wird multipliziert mit der spektralen Breite $\Delta\lambda_K$, welche auf einen Pixel abgebildet wird.

$$\Delta\lambda = (Pixel1 - Pixel2) \cdot \Delta\lambda_K \quad (3.11)$$

Für den Fehler folgt:

$$\Delta\Delta\lambda = (\Delta Pixel1 + \Delta Pixel2) \cdot \Delta\lambda_K + (Pixel1 - Pixel2) \cdot \Delta\Delta\lambda_K \quad (3.12)$$

wobei $\Delta Pixel1$ bzw. $\Delta Pixel2$ die Fehler bei der Bestimmung der Pixel sind bei der die Intensität auf die Hälfte abgesunken ist. $\Delta Pixel1$ bzw. $\Delta Pixel2$ wurden aus Messungen abgeschätzt. Die CCD-Kameras weisen ein Messrauschen auf. Bedingt durch dieses Rauschen wird während einer Messung eventuell die Höhe des Maximums nicht exakt bestimmt. Dadurch wird auch bei der Bestimmung der Pixel, bei denen die Effizienz auf die Hälfte

Kristalllänge[mm]	Spektrale Akzeptanzbandbreite [nm]	Fehler [nm]	Relativer Fehler [%]
10mm	0,09	0,05	67,6
5mm	0,18	0,06	38
2,5mm	0,36	0,06	15,7

Tabelle 3.2: Fehler für verschiedene Kristalllängen von KNbO_3 bei nichtkritischer Phasen Anpassung entlang der kristallographischen a - Achse.

abgesunken ist, ein Fehler gemacht. Aus Messungen wurden maximale Abweichungen von 4-5 Pixeln bestimmt. Der Maximalfehler wird nach oben auf jeweils 5 Pixel abgeschätzt. Der Fehler $\Delta\lambda_K$ der Breite des spektralen Anteils, der auf einen CCD - Pixel trifft, ist auf die Justage der Kameras zurückzuführen. Es werden auf einen Pixel 0,0052 nm des Fundamentalspektrums abgebildet. Die Justage der Monochromatoren erfolgte, indem der durch einen Monochromator geleitete Strahl eines Heliumneon-Lasers mit einem Kameraobjektiv auf eine der CCD-Zeilen abgebildet wurde. Anschließend wurde die am Monochromator eingestellte Wellenlänge variiert. Entsprechend der Variation verschob sich das Signal des Lasers auf der CCD-Zeile. Durch Quotientenbildung der Anzahl der Pixeldifferenz und der am Monochromator eingestellten Wellenlängendifferenz ergibt sich die Breite $\Delta\lambda_K$ des spektralen Anteils, der auf ein Pixel abgebildet wird. Der durch die Justage bedingte Maximalfehler ist gegeben durch das Auflösungsvermögen des Monochromators von 0,026 nm. Dies sind 5 Pixel, was einem relativen Fehler bei der Bestimmung der Breite $\Delta\lambda_K$ von 2,5 % entspricht.

In der Tabelle 3.2 sind exemplarisch einige mit Gleichung 3.12 berechnete Fehler zusammengestellt. Als Wellenlängenakzeptanzbandbreite wurde die des in dieser Arbeit verwendeten Materials Kaliumniobat für nichtkritische Phasen Anpassung der Wellenlänge 860 nm verwendet. Das Akzeptanzbandbreite-Längenprodukt beträgt $\Delta\lambda \cdot L = 0,09 \text{ nm} \cdot \text{cm}$. Zusätzlich sind in der Tabelle 3.2 die Fehler, wie sie für verschiedene Kristalllängen berechnet wurden, aufgeführt. Es zeigt sich, dass für Kristalle mit einer größeren Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ die relativen Fehler erwartungsgemäß kleiner sind.

Fehler in der Bestimmung des Homogenitätsparameter α

Der Parameter α wird durch numerische Integration (Riemann-Summe) bestimmt. Die

Riemann-Summe folgt aus der Summation der spektralen Breite eines Pixels multipliziert mit dem Messwert der relativen Intensität des jeweiligen Pixels. Die relative Intensität wird aus den gemessenen Spektren der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen durch Verwendung von Gleichung (2.41) für jeden Pixel bestimmt. Die Riemann Summe ist:

$$\delta\lambda_{eff} = \sum \Delta\lambda_K \cdot \eta_i = \Delta\lambda_K \sum \eta_i \quad (3.13)$$

mit der Effizienz η_i , welche durch die gemessenen Werte der jeweiligen Pixel i der beiden Kameras berechnet wird.

Der Fehler berechnet sich also zu:

$$\Delta\delta\lambda_{eff} = \Delta\lambda_K \cdot \sum \Delta\eta_i + \Delta\Delta\lambda_K \cdot \sum \eta_i \quad (3.14)$$

Der Fehler bei der Bestimmung der Intensität wird im wesentlichen durch das Messrauschen der CCD-Zeilen verursacht. Bei Nutzung der vollen Dynamik der CCD-Zeilen liegt der relative Fehler unter 1 %. Während der Messungen konnte es durch Drift des verwendeten Pumplasers zu einer Reduktion der auf die Kameras auftreffenden Intensität kommen. Der für diesen Fall experimentell bestimmte Fehler betrug maximal 2,5 %.

Der Fehler des Homogenitätsparameters wurde ebenfalls für verschiedene Kristalllängen für die Untersuchung eines perfekten Kristalls berechnet und ergab unabhängig von der Kristalllänge einen relativen Fehler von $\approx 2,5$ %.

In dieser Arbeit wird zur Bestimmung der Akzeptanzbandbreite und der Phasenanpassungswellenlänge immer der gleiche experimentelle Aufbau genutzt. Der absolute Fehler ist also bei allen Einzelmessungen identisch. Bei relativen Vergleichen der Messgrößen innerhalb der Kristalle und auch zwischen den Kristallen wirkt der Absolutfehler lediglich als Offset. Die relative Messgenauigkeit ist dadurch höher als die absolute Messgenauigkeit und wird im wesentlichen durch die Stabilität des Systems und das Bestimmungsverfahren der jeweiligen Messgröße bestimmt.

Weiter verbessert wird die Genauigkeit, da bei der Bestimmung der Messgrößen die Messung in jedem Messpunkt mehrmals wiederholt, und die Ergebnisse gemittelt werden. Ferner werden die meisten Kristalle mehrfach vermessen, und die Ergebnisse anschließend gemittelt. Durch die häufigen Wiederholungen und Mittelungen konvergieren die Ergebnisse entsprechend dem mathematischen Gesetz der großen Zahlen gegen den wahren Wert (zuzüglich einem Offset gegeben durch einen systematischen (absoluten) Fehler).

Der relative Vergleich der Phasenanpassungswellenlänge und der Wellenlängenakzeptanzbandbreite erfolgt also mit der Genauigkeit eines Pixels, was einer Wellenlängen-Unsicherheit von 0,0052 nm entspricht.

Kapitel 4

Charakterisierung von optisch nichtlinearen Kristallen für die Doppelbrechungsphasenanpassung

4.1 Charakterisierung von Kaliumniobat

4.1.1 Allgemeine Bemerkungen zu Kaliumniobat KNbO_3

Kaliumniobat KNbO_3 wurde 1951 erstmals künstlich hergestellt [Ma51], und die kristallographischen und ferroelektrischen Eigenschaften bestimmt. Die optisch nichtlinearen Eigenschaften wurden im Jahr 1968 durch S. K. Kurtz [Ku68] untersucht. Verschiedene Verfahren zur Herstellung von KNbO_3 wurden seitdem entwickelt. Zwei Verfahren sind zur Züchtung von Kaliumniobat-Kristallen besonders geeignet. Bei dem ersten handelt es sich um ein modifiziertes Nacken - Kyropoulos - Verfahren (Details siehe [Fu74]). Das zweite Verfahren ist die in Abschnitt 2.1 beschriebene „top-seeded solution pulling“ (TSSP-Technik). Die in dieser Arbeit verwendeten Kristalle des Herstellers FEE GmbH wurden ausschließlich nach der TSSP-Technik gezüchtet.

Dicht unterhalb des Schmelzpunktes weist KNbO_3 eine kubische Kristallstruktur auf, und ist somit zentrosymmetrisch. In dieser Phase besitzt Kaliumniobat weder ferroelektrische noch optisch nichtlineare Eigenschaften. Während der Abkühlphase der Kaliumniobat - Züchtung erfolgt bei 435 °C ein Phasenübergang 1. Ordnung, der den Kristall von der kubischen in die tetragonale Phase überführt. In dieser Phase ist gegenüber der kubischen Phase die c-Achse verlängert, während die a- und b-Achsen verkürzt sind. Durch den Phasenübergang verschieben sich die Schwerpunkte der positiven und der negativen Ladung.

Dies führt zu einer spontanen Polarisierung und ferroelektrischen Eigenschaften (Details siehe Chaib [Ch99]). Ein weiterer Phasenübergang 1. Ordnung bei etwa 210 °C überführt den Kristall schließlich in die orthorhombische Phase, die auch bei Raumtemperatur vorliegt. Auch hier weist Kaliumniobat starke ferroelektrische Eigenschaften auf. Die Abbildung 4.1 zeigt eine schematische Darstellung der orthorhombischen Kristallstruktur von Kaliumniobat KNbO_3 . Die Gitterparameter der Kristallographischen Achsen a , b und c sind bei Raumtemperatur: $a = 5,6896 \text{ \AA}$, $b = 3,9692 \text{ \AA}$ und $c = 5,7256 \text{ \AA}$.

Diese Kristallstruktur bleibt erhalten bis zu einem weiteren Phasenübergang bei ca. -50 °C , bei dem Kaliumniobat in den trigonalen Zustand übergeht.

In dieser Arbeit wird ausschließlich KNbO_3 im orthorhombischen Zustand untersucht.

Um die spontane Polarisierung aller ferroelektrischen Domänen entlang der c -Achse auszurichten, wird bei einer Temperatur von etwa 190 °C ein elektrisches Gleichspannungsfeld mit einer Feldstärke von etwa $1 \frac{\text{kV}}{\text{cm}}$ an den Kristall angelegt [Mi94]. Eine exakte Kontrolle der Steigerung und der Reduktion der Feldstärke ist dabei sehr wichtig, um Schäden in den Kristallen zu vermeiden.

Das Hauptproblem der KNbO_3 -Züchtung besteht in den Phasenübergängen und der weiteren Behandlung der Kristalle [F178]. Die ferroelektrischen Domänen von Kaliumniobat weisen eine außergewöhnlich hohe Mobilität auf, sodass bei zu großen Temperaturgradienten oder bei zu großen mechanischen Spannungen ungewollte ferroelektrische Domänen entstehen können [Mi88]. Die entstandenen Domänen lassen sich nur in wenigen Fällen durch Anlegen eines elektrischen Feldes wieder beseitigen. Die Domänen stellen auch ein Problem bei der Erzeugung von QPM - Strukturen in Kaliumniobat-Kristallen dar. Bei der Behandlung der Kristalle sollten deshalb mechanische Spannungen über $3 \frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$ und Abkühlraten von mehr als $30 \frac{\text{°C}}{\text{h}}$ und während der Phasenübergänge von mehr als $10 \frac{\text{°C}}{\text{h}}$ nicht überschritten werden. Ansonsten ist mit Riß- und Domänenbildung zu rechnen [Mi88]. Mit dieser Technik können innerhalb von drei Wochen Kristalle mit einem Gewicht von 200 g und einem Durchmesser von 25 mm gezüchtet werden [F178, We03].

In KNbO_3 sind Domänenwände mit einer Orientierung von 60 °, 90 °, 120 ° und 180 ° möglich. In den Abbildungen 4.2 und 4.3 sind 60 ° und 90 ° Domänen schematisch dargestellt und deren Polarisierung eingezeichnet. Eine detaillierte Beschreibung der Domänen findet sich bei E. Wiesendanger [Wie73] und L. A. Shuvalov [Shu88]. Die verschiedenen Domänen erschweren nicht nur die Handhabung der Kristalle während und nach der Züchtung, sondern auch die optischen Eigenschaften der Kristalle werden erheblich verschlechtert [Mi88].

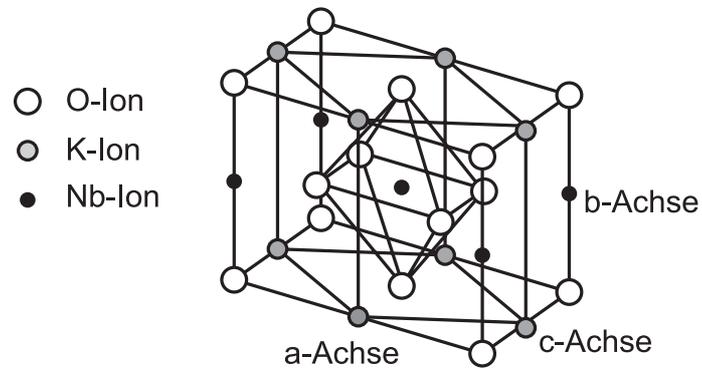


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Kristallstruktur von Kaliumniobat KNbO_3 . Die kristallographischen Achsen (a, b, c) spannen eine orthorhombische Einheitszelle auf.

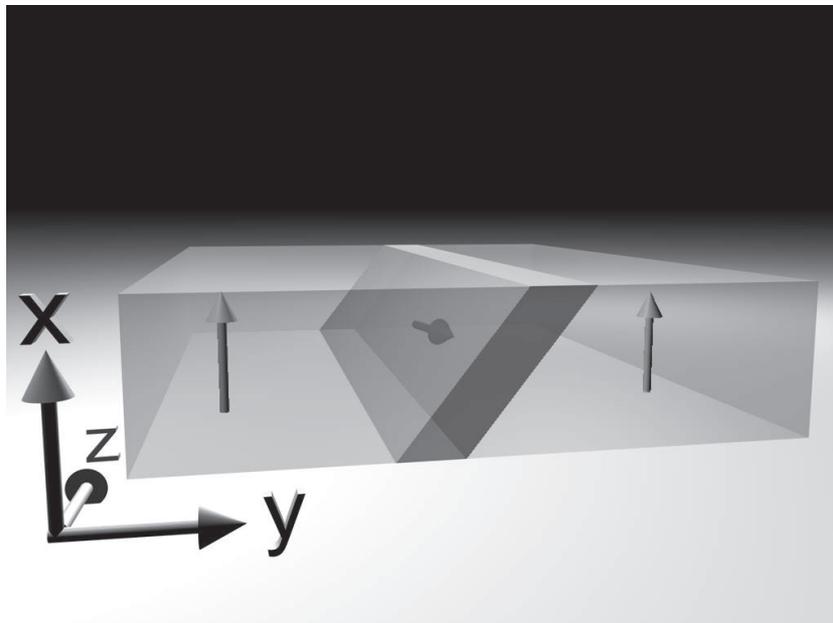


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung einer 90° Domäne in KNbO_3 . Die Pfeile innerhalb des Kristalls geben die Polarisationsrichtung an. Quelle: S. Zelt [Ze03]

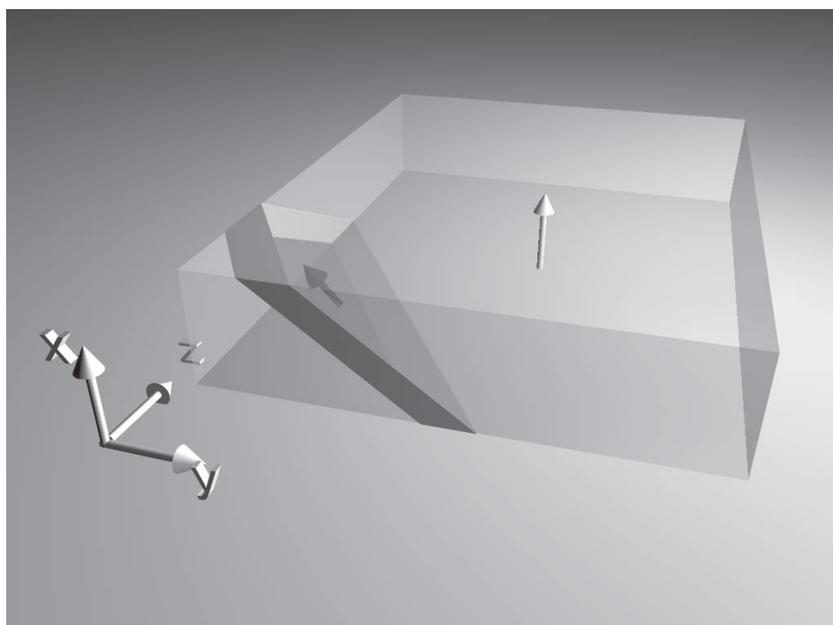


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung einer 60 ° Domäne in KNbO₃. Die Pfeile innerhalb des Kristall geben die Polarisationsrichtung an. Innerhalb der Domäne ist die spontane Polarisierung gedreht. Quelle: S. Zelt [Ze03]

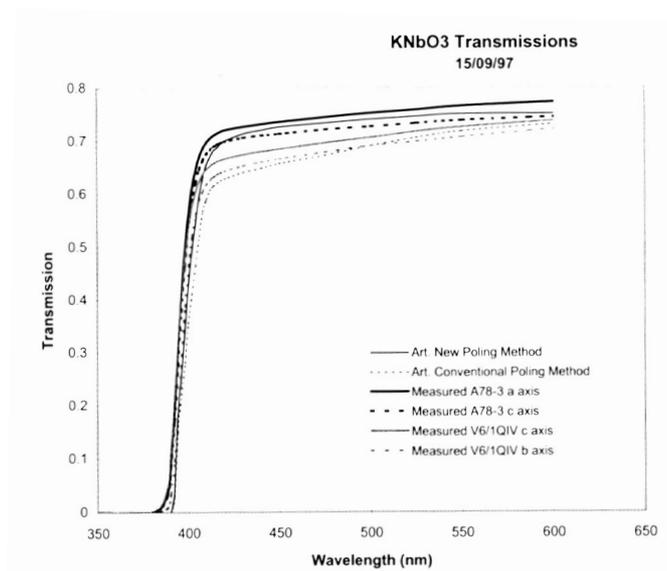


Abbildung 4.4: Transmission eines unbeschichteten KNbO₃ - Kristalls im sichtbaren Spektralbereich [Ve03]

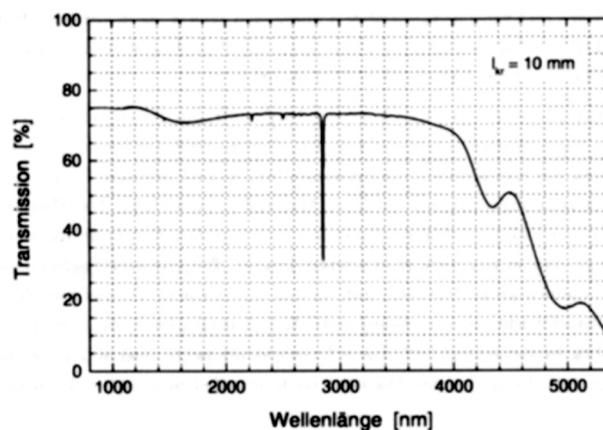


Abbildung 4.5: Transmission eines unbeschichteten 10 mm langen KNbO_3 - Kristalls im nahen und mittleren infraroten Spektralbereich [Ur97]

Optische Eigenschaften von Kaliumniobat

KNbO_3 hat bei Raumtemperatur eine orthorhombische Kristallstruktur der Punktgruppe $mm2$ [She90] und ist daher optisch biaxial.

Die kristallographischen Achsen (a, b, c) sind in Kaliumniobat im Vergleich zu den entsprechenden physikalischen Achsen (x, y, z) einmal zyklisch permutiert, d.h.:

$$(a, b, c) \hat{=} (y, z, x) \quad (4.1)$$

Es gilt die Relation $n_z > n_y > n_x$.

In der Abbildung 4.4 ist die Transmission von KNbO_3 für verschiedene Strahlausbreitungsrichtungen dargestellt. Die Transmission ist begrenzt durch eine steile UV-Absorptionskante, die bei Raumtemperatur etwa bei 395 nm liegt. In der Abbildung 4.5 ist die Transmission von KNbO_3 im nahen bis mittleren Infrarot dargestellt. Sie nimmt in einem weiten Bereich von 4,0–5,5 μm langsam ab. Die große polarisationsabhängige Absorption bei ca. 2,85 μm ist auf O-H-Streckschwingungen zurückzuführen, die durch Einlagerungen von Hydroxiden und Hydraten bedingt sind [Mi94, Ur97].

In KNbO_3 wird die Absorption von infraroter Strahlung durch Strahlung im blauen Spektralbereich erhöht. Dieser Effekt wird als BLIIRA (blue light induced infrared absorption) bezeichnet und wirkt sich negativ auf Frequenzkonversionprozesse aus (siehe H. Mabuchi et al. [Ma94]).

Besonderer Bedeutung bei der Phasenanpassung kommt den Brechungsindizes eines Materials zu. Innerhalb des Transparenzbereiches wird die Wellenlängen- und Temperatur-

Sellmeierkoeffizienten	n_a	n_b	n_c
a	2,5389409	2,6386669	2,370517
b	$3,8636303 \cdot 10^{-6}$	$3,8636303 \cdot 10^{-6}$	$3,8636303 \cdot 10^{-6}$
c	0,1371639	0,1361248	0,1194071
d	$1,767 \cdot 10^{-7}$	$0,796 \cdot 10^{-7}$	$1,75 \cdot 10^{-7}$
e	1,4451842	1,1948477	1,048952
f	$3,909336 \cdot 10^{-6}$	$1,3872635 \cdot 10^{-6}$	$2,1303781 \cdot 10^{-6}$
g	$1,2256136 \cdot 10^{-4}$	$0,90742707 \cdot 10^{-4}$	$1,8258521 \cdot 10^{-4}$
h	0,2725429	0,2621917	0,2553605
i	$2,38 \cdot 10^{-7}$	$1,231 \cdot 10^{-7}$	$1,89 \cdot 10^{-7}$
j	$6,78 \cdot 10^{-5}$	$1,82 \cdot 10^{-5}$	$2,48 \cdot 10^{-5}$
k	$2,837 \cdot 10^{-2}$	$2,513 \cdot 10^{-2}$	$1,939 \cdot 10^{-2}$
l	$1,22 \cdot 10^{-8}$	$0,558 \cdot 10^{-8}$	$0,27 \cdot 10^{-8}$
m	$3,3 \cdot 10^{-10}$	$4,4 \cdot 10^{-10}$	$5,7 \cdot 10^{-10}$

Tabelle 4.1: Sellmeierkoeffizienten der Temperaturabhängigen Sellmeiergleichungen, aus [Ju93]

abhängigkeit der Brechungsindizes eines Materials durch die empirischen Sellmeier-Gleichungen beschrieben. Die von B. Zysset [ZBG92] veröffentlichten Sellmeier Gleichungen stellen die bisher genaueste Beschreibung dar [Ur97, DGN91]. Von Jundt [Ju93, DGN91] wurden temperaturabhängige Sellmeier-Gleichungen veröffentlicht. Die Gleichungen von B. Zysset als auch von D. H. Jundt [ZBG92, Ju93] wurden mit einem Zwei-Oszillator Modell erstellt. Die temperaturabhängigen Gleichungen lauten:

$$n_{\alpha}^2 = 1 + \frac{(a_{\alpha} + b_{\alpha} \cdot F)\lambda^2}{\lambda^2 - (c_{\alpha} + d_{\alpha} \cdot F)^2} + \frac{(e_{\alpha} - f_{\alpha} \cdot F - g_{\alpha} \cdot G)\lambda^2}{\lambda^2 - (h_{\alpha} + i_{\alpha} \cdot F - j_{\alpha} \cdot G)^2} - (k_{\alpha} - l_{\alpha} \cdot F)\lambda^2 - m_{\alpha} \cdot F\lambda^4 \quad (4.2)$$

Mit $F = T^2 - 295,15^2$ und $G = T - 293,15$. Dabei ist $\alpha \in x, y, z$, T die Temperatur in °C und λ die Wellenlänge der eingestrahlten Welle. Die Sellmeierkoeffizienten sind in der Tabelle 4.1 zusammengefasst.

Abbildung 4.6 zeigt die mit den temperaturabhängigen Sellmeier-Gleichungen (4.2) berechneten Brechungsindizes bei einer Temperatur von 20 °C. Die Polarisationsrichtungen wurden entlang der Hauptachsen (a,b,c) gewählt.

Wegen der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes ist auch die Phasenanpassungs-

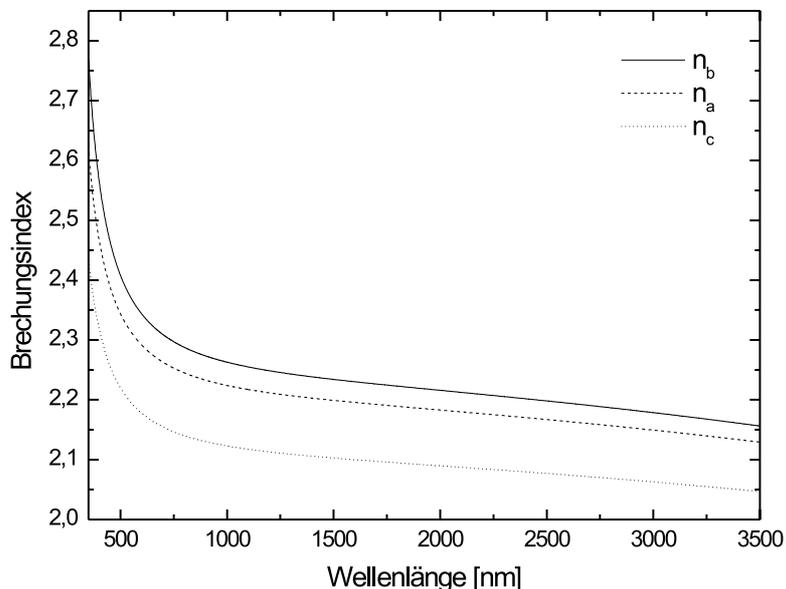


Abbildung 4.6: Brechungsindizes von KNbO_3 berechnet mit den Temperaturabhängigen Sellmeier-Gleichungen 4.2 von D. H. Jundt et al. [Ju93]

wellenlänge λ_{PM} bei konstantem Winkel temperaturabhängig. B. I. Biaggio et al. [Bi92] haben diese Abhängigkeit für die nichtkritische Phasenanpassung und Erzeugung der zweiten Harmonischen in Kaliumniobat untersucht. Es handelt sich phänomenologisch um eine quadratische Abhängigkeit:

$$\lambda_{PM} = a_2 \cdot T^2 + a_1 \cdot T + a_0 \quad (4.3)$$

Schnitttrichtung	a_0 [nm]	a_1 [$\frac{\text{nm}}{^\circ\text{C}}$]	a_2 [$\frac{\text{nm}}{^\circ\text{C}^2}$]
a-cut	850,40	0,294	$1,234 \cdot 10^{-3}$
b-cut	976,04	0,253	$1,146 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 4.2: Koeffizienten zur Bestimmung der Phasenanpassungswellenlänge für SHG in Abhängigkeit von der Temperatur bei nichtkritischer Phasenanpassung in KNbO_3 [Bi92]

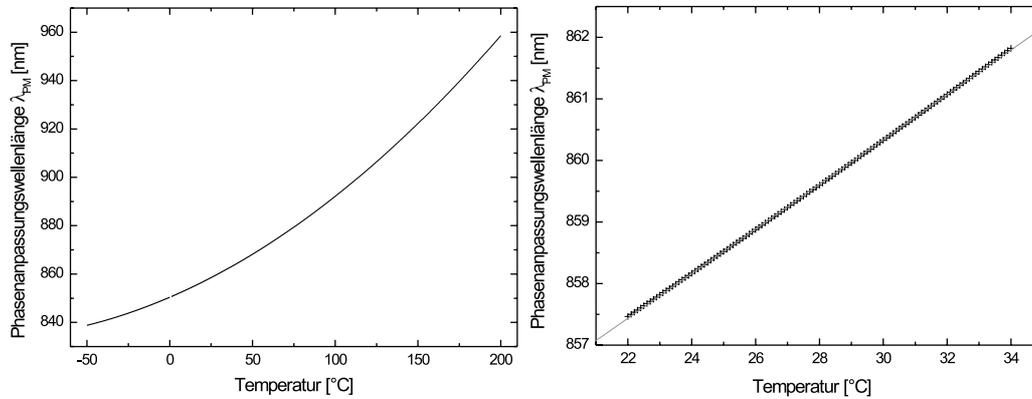


Abbildung 4.7: Zusammenhang zwischen der Phasenanpassungswellenlänge und der Temperatur. Berechnet mit Gleichung 4.3 von B. I. Biaggio [Bi92].

Mit der Methode der kleinsten Quadrate wurden durch B. I. Biaggio et al. [Bi92] die Koeffizienten a_0 , a_1 und a_2 bestimmt. Für $\Phi = 90^\circ$ (optisch nichtlinearer Koeffizient d_{31}) und für $\Phi = 0^\circ$ (optisch nichtlinearer Koeffizient d_{32}) sind die Koeffizienten in der Tabelle 4.2 zusammengefasst. Entsprechend ihrem Schnitt senkrecht zu den kristallographischen Achsen (a, b, c) werden diese Kristalle als a-cut, bzw. b-cut bezeichnet. Die Phasenanpassungswellenlänge bei a-cut Kristallen liegt bei Raumtemperatur etwa bei 860 nm und bei b-cut Kristallen etwa bei 980 nm. In den Abbildungen 4.7 ist die mittels Gleichung (4.3) berechnete Variation der Phasenanpassungswellenlänge mit der Temperatur für a-cut Kristalle dargestellt. Die linke Abbildung zeigt die Abhängigkeit der Wellenlänge von der Temperatur in einem Temperaturbereich von -50°C bis 200°C , gut zu erkennen ist die quadratische Abhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge von der Temperatur. In der zweiten Abbildung sieht man den Zusammenhang in einem Temperaturbereich von 22°C bis 34°C . In diesem Bereich ist in guter Näherung ein linearer Zusammenhang gegeben. Neben der Temperatur können auch elektrische und mechanische Spannungen Auswirkungen auf die Brechungsindizes eines Materials haben. Kaliumniobat weist elektrooptische, piezoelektrische und elastooptische Eigenschaften auf. Diese sind entscheidend für die experimentellen Untersuchungen in Abschnitt 5.2. Die entsprechenden Eigenschaften werden im Folgenden zusammengefasst. Der Tensor der elastooptischen Koeffizienten des Kristalls

p_{ijkl}^E	p_{11}^E	p_{12}^E	p_{13}^E	p_{21}^E	p_{22}^E	p_{23}^E
	-0,2	0,11	0,55	-0,13	0,23	0,16
	p_{31}^E	p_{32}^E	p_{33}^E	p_{55}^E	p_{44}^E	p_{66}^E
	0,64	0,15	0,82	0,45	0,57	-

Tabelle 4.3: Unabhängige Koeffizienten des elastooptischen Tensors von KNbO_3 [ZS93]

KNbO_3 hat folgende Form:

$$\begin{pmatrix} p_{11}^E & p_{12}^E & p_{13}^E & 0 & 0 & 0 \\ p_{12}^E & p_{22}^E & p_{23}^E & 0 & 0 & 0 \\ p_{13}^E & p_{23}^E & p_{33}^E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & p_{44}^E & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & p_{55}^E & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & p_{66}^E \end{pmatrix}$$

Die unabhängigen Koeffizienten des Tensors der elastooptischen Koeffizienten sind in der Tabelle 4.3 zusammengestellt. Der piezoelektrische Tensor hat die gleiche Form wie der Tensor der optisch nichtlinearen Koeffizienten. Die piezoelektrischen Konstanten von KNbO_3 wurden von [ZS93] bestimmt und sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst. Der elektrooptische Tensor hat wie der piezoelektrische Tensor 5 unabhängige Koeffizienten, die in Tabelle 4.5 zusammengestellt sind.

Piezoelektrische Konstanten d_{ijk}^P	gemessen $10^{-11} \frac{\text{C}}{\text{N}}$	berechnet $10^{-11} \frac{\text{C}}{\text{N}}$
d_{13}^P	0,98	0,99
d_{23}^P	-1,95	-1,92
d_{33}^P	2,93	3,05
d_{15}^P	5,16	10,3
d_{24}^P	11,7	7,8

Tabelle 4.4: Piezoelektrische Konstanten von KNbO_3 [ZS93]

Elektrooptische Konstanten r_{ijk}	$10^{-12} \frac{\text{m}}{\text{V}}$
r_{13}	34
r_{23}	6
r_{33}	63,4
r_{51}	120
r_{42}	450

Tabelle 4.5: Elektrooptische Konstanten von KNbO_3 [ZS93]

4.1.2 Räumlich aufgelöste Charakterisierung von a-cut Kaliumniobat Kristallen für nichtkritische Phasenanpassung bei 860 nm

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Untersuchungen an mehreren KNbO_3 -Kristallen durchgeführt. Ein Ziel der Untersuchungen war die Demonstration der Leistungsfähigkeit des in Abschnitt 3.3 beschriebenen Aufbaus.

Ein weiteres Ziel war die Bestimmung und Verifikation wichtiger Materialkonstanten von KNbO_3 . Für die Hersteller und Anwender von optisch nichtlinearen Kristallen ist die Qualität optisch nichtlinearer Materialien von besonderer Bedeutung. Dabei sind Qualitätsschwankungen sowohl zwischen den Kristallen als auch innerhalb eines Kristalls von Interesse. Nur durch deren Kenntnis ist eine effiziente Anwendung der Materialien bzw. Verbesserung der Kristallherstellung möglich.

Die Beurteilung der Qualität optisch nichtlinearer Kristalle ist bedingt durch die Vielzahl von Anforderungen, wie hohe Transparenz, großer effektiver nichtlinearer Koeffizient oder große Akzeptanzbandbreiten, sehr schwierig. Untersuchungen an dem laseraktiven Material Nd:YAG haben gezeigt, dass die aktuellen DIN-Normen für optische Komponenten nur eine unzureichende Charakterisierung für Laserkristalle darstellen [Lh03].

Ein erster Schritt zur Beurteilung der Qualität eines Kristalls ist der Vergleich mit den optimalen Eigenschaften (Materialkonstanten) eines Materials. Zur Bestimmung dieser Materialparameter ist die Untersuchung verschiedener Kristalle des gleichen Materials notwendig. Durch den Vergleich der für die Kristalle gewonnenen Ergebnisse ist eine hierarchische Einordnung der Kristalle bezüglich ihrer Qualität möglich. Nach der Einordnung der Kristalle können die Eigenschaften der besten Kristalle als Referenzwerte (Materialkonstanten) für das Material benutzt werden.

Zur Einordnung der Qualität verschiedener Kristalle zueinander eignet sich der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α , da er direkte quantitative Aussagen über die Homogenität des Kristalls zulässt. Je größer der bestimmte Wert des Parameters α ist, desto schlechter ist der Kristall.

Die untersuchten Kristalle waren für nichtkritische Phasenanpassung bei einer Wellenlänge von 860 nm geschnitten. Die Ausbreitungsrichtung der Fundamentalen bzw. zweiten Harmonischen ist dabei die kristallographische a-Achse (physikalische y-Achse) des Kristalls, weshalb auch von „a-cut“ Kristallen gesprochen wird.

Folgende die Konversionseffizienz beeinflussenden Kristalleigenschaften wurden untersucht:

- Homogenität der Doppelbrechung, charakterisiert durch den Parameter α (siehe Abschnitt 2.2.2)
- Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$
- Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur (22 °C)
- Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für eine Fundamentalwellenlänge von 860 nm
- Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$

Experimentelle Realisierung

Für jeden Kristall wurden mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Aufbau mehrere räumlich aufgelöste Messungen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Zur Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α und der Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ wurde über die wiederholten Messungen an einem Kristall jeweils der Mittelwert bestimmt. Dadurch werden die Einflüsse statistischer Schwankungen während der Messungen minimiert. Anschließend wurde räumlich über die Punkte des Kristalls gemittelt. Als Maß für die Variationen der untersuchten Größen wurde die Standardabweichung bestimmt.

Durch das mehrmalige Wiederholen der Messungen bei verschiedenen Temperaturen wurde die Abhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} von der Temperatur T , in einem Temperaturbereich zwischen 20 °C und 35 °C, bestimmt. Hier ist, wie in Abschnitt 4.1.1 diskutiert, nahezu ein linearer Zusammenhang zwischen Phasenanpassungswellenlänge und Temperatur gegeben.

Für die Untersuchungen wurden die Kristalle: AND15002, AND15004, AND17001, AND24001, AND25001, AND26001 verwendet. Eine Zusammenfassung der Kristalldaten befindet sich im Anhang A.

Die Kristalle AND17001 und AND24001 wurden an der ETH Zürich hergestellt und bereits von der FEE GmbH untersucht. Es handelt sich um Kristalle, die seitens der Kristallzüchter als sehr homogen eingeordnet wurden. Der Kristall AND17001 hat eine Apertur von $(12,8 \cdot 14,6)$ mm² und eine Länge von 1,6 mm. Der Kristall AND24001 hat eine Apertur von $(5,4 \cdot 3,7)$ mm² und eine Länge von 3,7 mm. Die anderen Kristalle wurden von der FEE GmbH gezüchtet und bearbeitet.

Die Kristalle AND15002 und AND15004 wurden aus dem gleichen Boule geschnitten. Es handelt sich um zwei kommerziell erhältliche Kristalle mit einer Apertur von $(3 \cdot 3)$ mm² und einer Länge von 5,0 mm bzw. 2,5 mm.

Die Kristalle AND25001 und AND26001 haben eine Apertur von $(3 \cdot 2,7)$ mm² und eine Länge von 8,0 mm.

Die Ergebnisse der Messungen sind in graphischer Form in den Abbildungen 4.8 bis 4.13 zusammengefasst. Die jeweilige Messgröße ist in Grautönen kodiert dargestellt.

Der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α

Zur Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α des Kristalls AND15002 wurden 5 Messungen genutzt, die bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt wurden. Durch Mittelung über diese 5 Messungen und anschließende Mittelung über 266 Messpunkte innerhalb des Messbereiches konnte der Mittelwert des Parameters α zu 1,17 mit einer Standardabweichung von 0,07 bestimmt werden. Der minimale gemessene Parameter α der Messung innerhalb des Kristalls beträgt 1,08 und der maximale 1,51.

Auffallend bei dem Kristall AND15002 sind zwei markante Stellen in den beiden unteren Ecken des Kristalls, sowie eine diagonal durch den Kristall laufende Störung. In diesen Bereichen steigt die Akzeptanzbandbreite deutlich an. Die Störungen in den Ecken sind Domänen, die vermutlich während der Politur der Kristalle durch Druck erzeugt wurden. Die Ursache der diagonalen Störung ist ebenfalls in einer Domäne zu suchen. In diesen Bereichen steigt der Wert des Homogenitätsparameters im Vergleich zum Rest des Kristalls an, was entsprechend zu einer Reduktion der maximal erzielbaren Konversionseffizienz führt.

Mit Gleichung (2.49) kann die auf Grund von Inhomogenitäten in der Doppelbrechung reduzierte, maximal erzielbare Konversionseffizienz des Kristalls bestimmt werden. Sie beträgt im Vergleich zu einem perfekt homogenen Kristall 93 % in den homogenen und 66 % in den durch Domänen gestörten Bereiche des Kristalls.

Bei den Untersuchungen des Kristalls AND15004 wurde der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α durch Mittelung über die Ergebnisse einer einzigen Messung bestimmt.

Dies war notwendig, da die Akzeptanzkurve des Kristalls auf Grund seiner Länge von 2,5 mm sehr breit ist. Während der verschiedenen Messungen wurde die Justage der Spektrometer beibehalten, d.h. es wurde immer die gleiche Wellenlänge auf den gleichen Kamerapixel abgebildet. Wenn die Kristalltemperatur variiert und entsprechend eine Verschiebung der Akzeptanzkurve verursacht wurde, konnte bei kurzen Kristallen mit einer spektral breiten Akzeptanzkurve nicht mehr der gesamte Bereich, der zur Bestimmung der effektiven Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ notwendig ist, aufgenommen werden.

Bei dem Kristall AND15004 fällt eine Störung in der rechten unteren Ecke des Kristalls auf, dabei handelt es sich um eine große ferroelektrische Domäne, die die Ausbreitung der außerordentlich polarisierten Strahlung der zweiten Harmonischen massiv stört, weswegen in dieser Region keine zuverlässigen Ergebnisse gewonnen werden können. Eine weitere Besonderheit ist eine, wie bei dem Kristall AND15002, diagonal durch den Kristall laufenden Domäne.

Über den Kristall gemittelt ergab sich ein Wert für den Parameter α von 1,07 mit einer Standardabweichung von 0,01. Der minimale Wert des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α für den Kristall hatte einen Wert von 1,04, was bedeutet, dass mit dem Kristall 96 % der theoretisch möglichen Konversionseffizienz erreicht werden kann. Innerhalb der diagonalen Störung hingegen ist die maximale erreichbare Konversionseffizienz um 10 % ($\alpha = 1,11$) gegenüber einem idealen Kristall reduziert. In dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Messbeispiel wurden bei Optimierung der Konversion an einen Punkt innerhalb der Störung insgesamt geringere Effizienzen erreicht, als bei Optimierung in einem Punkt außerhalb der Störung. Der Grund liegt offensichtlich in einer schlechteren Doppelbrechungshomogenität in diesem Bereich. Um die mit diesem Kristall maximale Konversion zu erreichen, muß die Phasenanpassung also an einem Punkt ausserhalb der Störung optimiert werden.

Die Untersuchung der Doppelbrechungshomogenität für den Kristall AND17001 wurde, wie bei dem Kristall AND15004, wegen der breiten Akzeptanzkurve des Kristalls aus einer Messung bestimmt.

Die scheinbar ovale Form des Kristalls in den Abbildungen 4.10 beruht darauf, dass der Kristall zu besserer Kühlung in einen Kristallhalter eingebaut wurde. Dieser Kristallhalter hatte eine Öffnung mit ovalem Ausschnitt.

Der Mittelwert für den Homogenitätsparameter α lag bei $1,01 \pm 0,02$, das Minimum bei einem Wert von 0,97. Der Parameter α kann per Definition nur Werte größer gleich 1 annehmen, weswegen die Werte als 1 interpretiert werden müssen. Das Maximum lag bei 2,19 und wurde in unmittelbarer Nähe einer Domäne im unteren linken Bereich des Kristalls angenommen. Geht man von der Domäne weg, so nimmt der Wert des Homogenitätspa-

parameter α zum oberen rechten Teil des Kristalls hin ab. Wie bereits bei den Kristallen AND15002 und AND15004 wird die Doppelbrechung durch eine Domäne erheblich verschlechtert. Wobei die Doppelbrechung nicht nur im Bereich der Domäne selbst gestört ist, sie wirkt sich auch in einem Bereich außerhalb der Domäne aus.

Der Mittelwert der Messungen des Kristalls AND24001 für den Doppelbrechungshomogenitätsparameters α beträgt 1,02 mit einer Standardabweichung von 0,03.

Abbildung 4.11 (a) zeigt die Ergebnisse der Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α . In der Mitte des Kristalls und an seiner linken Seite steigt der Wert des Parameters α an. Die Störungen sind auf Kristallwölbungen zurückzuführen. Mit Hilfe eines Interferometers konnte nachgewiesen werden, dass der Kristall AND24001 auf beiden polierten Oberflächen eine leichte Wölbung nach innen aufweist, sodass der Kristall am Rand eine größere Länge aufweist als in der Kristallmitte. Entsprechend wurde bei der Bestimmung des Parameters α nicht immer durch den richtigen Wert $\delta\lambda_{Calc}$ dividiert.

Dies ist der Grund für die Abweichung des Parameters α auf einen minimalen Wert unter 1. Der maximale Wert für α beträgt 1,12.

Für die Kristalle AND25001 und AND26001 wurde der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α und die Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ durch eine Mittelwertbildung aus 6 Messungen und insgesamt 475 Messpunkten (AND25001) bzw. 725 Punkten (AND26001) innerhalb des Kristalls bestimmt.

Der Mittelwert des Parameters α für den Kristall ergab einen Wert von $1,07 \pm 0,01$. Die durchschnittliche maximal mögliche Konversionseffizienz ist 93,5 % eines perfekten Kristalls. Der Kristall besitzt keine auffälligen Störungen mit extrem großen Werten für den Parameter α . Dennoch ist im Inneren des Kristalls eine Struktur zu erkennen. Der minimale Wert des Parameters α wird in einem bogenförmigen Bereich angenommen und beträgt 1,05. Der maximale Wert ist 1,17.

Für den Kristall AND26001 wurde ein Mittelwert des Parameters α von 1,05 mit einer wie beim Kristall AND25001 sehr geringen Standardabweichung von 0,01 bestimmt. Der Kristall kann entsprechend wieder als sehr homogen angenommen werden, die maximal erreichbare Konversionseffizienz liegt höher als bei dem Kristall AND25001 und hat einen Wert über 95 %. Der minimale Wert für α liegt bei 1,03 und das Maximum bei 1,21.

Die Ergebnisse zeigen, dass es möglich ist, KNbO_3 mit hoher Homogenität zu züchten. Trotzdem variiert die Doppelbrechung in den meisten Kristallen, besonderer Bedeutung kommt dabei Domänen innerhalb der Kristalle zu. Diese verschlechtern die optische Qualität der Kristalle und reduzieren die maximal erreichbare Konversionseffizienz. Dies ist besonders deutlich bei den Kristallen AND15002 und AND15004 zu sehen.

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$

Der Mittelwert der Akzeptanzbandbreite des Kristalls AND15002 betrug $(0,094 \pm 0,001)$ nm·cm. Das Minimum der Wellenlängenakzeptanzbandbreite des Kristalls war dabei $0,092$ nm·cm und das Maximum $0,095$ nm·cm. Da der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α deutlich größer als 1 ist, weichen die Werte der Akzeptanzbandbreite bedingt durch Inhomogenitäten des Kristalls vermutlich von denen eines idealen Kristalls ab.

Darauf läßt auch die Tatsache schließen, dass im Bereich der diagonalen Störung ein Anstieg der Akzeptanzbandbreite zu verzeichnen ist.

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite des Kristalls AND15004 wurde durch Mittelung der Messergebnisse von 4 Messungen und insgesamt 621 Messpunkte innerhalb des Kristalls bestimmt. Die Akzeptanzbandbreite des Kristalls außerhalb der Störung in der rechten unteren Ecke beträgt im Mittel $(0,092 \pm 0,001)$ nm·cm. Die maximale Wellenlängenakzeptanzbandbreite wird innerhalb der diagonalen Störung erreicht und beträgt $0,096$ nm·cm. Die diagonale Störung weist insgesamt eine größere Akzeptanzbandbreite auf als der Rest des Kristalls.

AND17001 besitzt eine durchschnittliche Wellenlängenakzeptanzbandbreite von $(0,087 \pm 0,005)$ nm·cm. Die Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ wurde dabei aus einer Mittelung über 6 Messungen und insgesamt 462 Messpunkten bestimmt. Das Minimum der Akzeptanzbandbreite liegt am rechten Rand des Kristalls. Das Maximum mit einem Wert von $0,145$ nm·cm wurde in der Nähe der Domäne im linken unteren Bereich des Kristalls angenommen. Die bogenförmigen Strukturen innerhalb des Kristalls sind auf Interferenzen zurückzuführen, die durch mangelhafte anti-reflex Beschichtungen der Vorder- und Rückseite des Kristalls verursacht werden.

Aus 6 Messungen und 828 Messpunkten konnte ein Mittelwert der Wellenlängenakzeptanzbandbreite für den Kristall AND24001 von $(0,089 \pm 0,004)$ nm·cm bestimmt werden. Der minimale Wert beträgt dabei $0,086$ nm·cm und der maximale Wert $0,190$ nm·cm. Wobei die maximalen Werte am linken und am unteren Rand des Kristalls angenommen werden. Der Anstieg am unteren Rand des Kristalls ist auf Domänen zurückzuführen.

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreiten für den Kristall AND25001 hat einen Mittelwert von $(0,094 \pm 0,001)$ nm·cm. Der minimale Wert für die Akzeptanzbandbreite wird im oberen Teil des Kristalls erreicht und hat einen Wert von $0,089$ nm·cm. Das Maximum wird in einer bogenförmigen Region im unteren Teil des Kristalls angenommen, der maximale Wert beträgt $0,096$ nm·cm.

Bei den Untersuchungen des Kristalls AND26001 weist der Kristall in der rechten oberen

Ecke eine kleinere Akzeptanzbandbreite als in der unteren linken Hälfte auf. Der Mittelwert der Akzeptanzbandbreite liegt, wie bei dem Kristall AND15004, bei einem Wert von $(0,092 \pm 0,002)$ nm·cm.

Die Kristalle mit den kleinsten Werten für den Doppelbrechungshomogenitätsparameter α , die Kristalle AND17001, AND24001 und AND26001 weisen auch die kleinsten Werte für die Akzeptanzbandbreite auf.

Die zentrale Phasenanpassungswellenlänge von Kaliumniobat KNbO_3 bei Raumtemperatur (22 °C)

Die Phasenanpassungswellenlänge des Kristalls AND15002 beträgt bei einer Temperatur von 22 °C und Mittelung über den Kristall $(857,91 \pm 0,03)$ nm. Das Minimum der Messung liegt bei 857,84 nm und das Maximum bei einer Wellenlänge von 857,99 nm. Abbildung 4.8 c. ist zu entnehmen, dass die Phasenanpassungswellenlänge in den inhomogenen Bereichen des Kristalls, in denen auch die Doppelbrechungshomogenität schlechter wird, ansteigt. Entsprechend der Theorie von F.R. Nash et al. [Na69] ist eine Variation der Phasenanpassungswellenlänge in Kristallen mit gestörter Doppelbrechung zu erwarten. Die Abbildung 2.9 zeigt, wie mit schlechter werdender Homogenität und entsprechender Verzerrung der Akzeptanzkurve auch die Phasenanpassungswellenlänge variiert.

Für den Kristall AND15004 wurde eine Phasenanpassungswellenlänge bei Raumtemperatur von $(857,86 \pm 0,06)$ nm bestimmt. Das Minimum der Messung liegt bei 857,73 nm und wird in der diagonalen Störung des Kristalls angenommen. Der maximale Wert der Phasenanpassungswellenlänge liegt bei 857,97 nm.

Für den Kristall AND17001 konnte ein Mittelwert von $(857,58 \pm 0,03)$ nm experimentell ermittelt werden. Der maximale Wert der Phasenanpassungswellenlänge wird am linken Rand des Kristalls erreicht und hat einen Wert von 857,70 nm. Das Minimum hat einen Wert von 857,51 nm. Trotz der Domäne variiert die Phasenanpassungstemperatur lediglich um 0,17 nm. In den Bereichen im oberen und im linken Teil des Kristalls, die große Werte des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α zeigen, treten bei dem Kristall AND17001 auch größere Werte für die Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} auf.

Die Phasenanpassungswellenlänge bei Raumtemperatur für den Kristall AND24001 ist im Mittel $(857,36 \pm 0,05)$ nm. Auffallend ist ein vertikaler Streifen auf der linken Seite des Kristalls, in dem die Phasenanpassungswellenlänge gegenüber dem restlichen Kristall erhöht ist, in diesem Bereich wird auch die maximale Phasenanpassungswellenlänge angenommen. Dieser Streifen hat in der Messung des Parameters α ebenfalls sehr geringe Werte.

Der Kristall AND25001 weist einen Mittelwert der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei

Raumtemperatur von $(857,47 \pm 0,03)$ nm auf. Der Kristall zeigt nur eine geringe Variation der Phasenanpassungswellenlänge von 0,24 nm auf. Abbildung 4.12 ist zu entnehmen, dass die Phasenanpassungswellenlänge zum oberen Rand des Kristall hin zunimmt.

Die Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur des Kristalls AND26001 beträgt $(857,37 \pm 0,03)$ nm. Die minimale Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} liegt für diesen Kristall bei 857,28 nm und das Maximum bei 857,45 nm. Das Minimum wird im rechten oberen Teil des Kristalls und das Maximum im linken unteren Teil des Kristalls angenommen. Die Struktur entspricht im wesentlichen der, die bei der Bestimmung der Wellenlängenakzeptanzbandbreite gefunden wurde.

Die ermittelten Phasenanpassungswellenlängen weichen nur geringfügig von der von B. I. Biaggio et al. [Bi92] ermittelte Wellenlänge von 857,47 nm ab. Der Kristall AND25001 weist sogar eine mit den Literaturwerten identische Phasenanpassungswellenlänge auf. Trotz teilweise starker Störungen innerhalb der Kristalle, wie zum Beispiel in den Kristallen AND15002 und AND15004, variiert die Phasenanpassungswellenlänge innerhalb der Kristalle nur sehr geringfügig.

Variation der zentralen Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$

Der Mittelwert für die Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ hat für den Kristall AND15002 einen Mittelwert von $(0,396 \pm 0,002) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. In den Ergebnissen dieses Parameters führen die vorher beschriebenen Störungen nur zu geringfügigen Variationen. Im rechten unteren Teil des Kristalls wird sowohl das Minimum als auch das Maximum des Parameters $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ angenommen. Das Minimum beträgt $0,389 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und das Maximum $0,401 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$.

Die Variation der Phasenanpassungswellenlänge mit der Temperatur ist für den Kristall AND15004 vergleichbar mit der des Kristalls AND15002. Der Mittelwert beträgt $(0,400 \pm 0,005) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Das Maximum der Steigung mit einem Wert von $0,413 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ findet sich in der diagonalen Störung des Kristalls. Das Minimum beträgt $0,387 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$.

Mit einem Mittelwert von $(0,374 \pm 0,006) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ weist der Kristall AND17001 eine geringere Variation der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} mit der Temperatur T auf, als die Kristalle AND15002 und AND15004. Der minimale Wert beträgt $0,366 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der maximale Wert für die Variation der Phasenanpassungswellenlänge mit der Temperatur beträgt bei diesem Kristall $0,453 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Er wird in der Nähe der Domäne angenommen. Wohingegen die Bereiche einer hohen Homogenität der Doppelbrechung auch einen geringeren Wert der Variation der Wellenlänge mit der Temperatur aufweisen.

Der Mittelwert für AND24001 beträgt $(0,387 \pm 0,005) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der minimal gemessene Wert

ist $0,233 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und der maximale Wert ist $0,401 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der Wert $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ variiert nur minimal über den Kristall, wie der Abbildung 4.11 d. zu entnehmen ist. Die in den anderen Messungen zu findenden Kristallstörungen sind hier nahezu nicht nachweisbar.

Bei dem Kristall AND25001 beträgt der Mittelwert $(0,395 \pm 0,001) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der minimale Wert beträgt $0,394 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und das Maximum $0,398 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der Kristall erweist sich bezüglich dieses Parameters als sehr homogen, dies ist auch der Standardabweichung von lediglich $0,001 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ zu entnehmen.

Der Mittelwert des untersuchten Parameters ist für den optisch nichtlinearen Kristall AND26001 $(0,384 \pm 0,001) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Das Minimum hat dabei einen Wert von $0,374 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und das Maximum von $0,391 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Wie der Kristall AND25001 weist auch der Kristall AND26001 keine besonderen Merkmale in der Variation der Phasenangepassungswellenlänge mit der Temperatur $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ über den Kristall auf.

Der Parameter $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ für den Temperaturbereich zwischen 20 °C und 35 °C wurde in dieser Arbeit erstmals explizit ermittelt. Insbesondere wurde erstmals die räumliche Variation über einen Kristall untersucht. Der mit den von B. I. Biaggio [Bi92] veröffentlichten Daten berechnete Wert ist kleiner als die Mittelwerte, die für Kristalle in dieser Arbeit bestimmt wurden. Nur der Kristall AND17001 weist einen kleineren Wert für die Temperaturabhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ auf. Insgesamt zeigen die Kristalle bezüglich des in diesem Abschnitt untersuchten Parameters nur geringe räumliche Variationen. Nur massive Störungen wie in den Kristallen AND15002 und AND15004 beeinflussen den Parameter $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$, weshalb der Parameter für Untersuchungen kleiner Variationen innerhalb der Kristalle wenig geeignet ist.

Phasenangepassungstemperatur T_{PM} für die Fundamentalwellenlänge 860 nm

Der Mittelwert der Phasenangepassungstemperatur bei einer Wellenlänge von 860 nm liegt für den Kristall AND15002 bei $(27,25 \pm 0,05)\text{ °C}$. In Abbildung 4.8 e. sind die Ergebnisse der entsprechenden Messungen dargestellt. Die diagonale Störung wirkt sich deutlich durch einen Anstieg in der Phasenangepassungstemperatur aus. Das Minimum der Messung lag bei einem Wert von $27,12\text{ °C}$ und das Maximum bei $27,36\text{ °C}$.

Für AND15004 wurde ein Mittelwert der Phasenangepassungstemperatur T_{PM} von $(27,36 \pm 0,13)\text{ °C}$ bestimmt. Das Minimum der Phasenangepassung ist in der Nähe der Domäne in der rechten unteren Ecke des Kristalls zu finden, der Wert beträgt $27,06\text{ °C}$. Die Phasenangepassungstemperatur steigt in Richtung der diagonalen Störung bis zu einem Maximalwert von $27,72\text{ °C}$. Die Messungen zeigen, dass in den Bereichen, in denen die Doppelbrechungshomogenität gestört ist, der Kristall auch andere Phasenangepassungstemperaturen

T_{PM} besitzt. Mit den Untersuchungen der Akzeptanzkurve können die unterschiedlichen Ergebnisse der Konversionseffizienzmessungen, die in den Abbildungen 3.3 (a) und 3.3 (b) dargestellt sind, erklärt werden. Insbesondere ist es möglich, verschiedene Ursachen für die Reduktion der Konversionseffizienz, wie Inhomogenitäten der Doppelbrechung oder Variation der Phasenanpassungstemperatur, voneinander zu trennen.

Für den Kristall AND17001 konnte ein Mittelwert für die Phasenanpassungstemperatur $T_{PM} = (28,52 \pm 0,09) \text{ }^\circ\text{C}$ bestimmt werden. Der minimale Wert der Phasenanpassung liegt bei $28,25 \text{ }^\circ\text{C}$ und das Maximum bei $28,63 \text{ }^\circ\text{C}$. Besonders auffällig bei diesem Kristall ist der keilförmige Verlauf der Phasenanpassungstemperatur. In dem Bereich, in dem die Doppelbrechungshomogenität schlecht ist, ist die Phasenanpassungswellenlänge kleiner als in dem Bereich mit hoher Homogenität.

Die mittlere Phasenanpassungstemperatur des Kristalls AND24001 liegt bei $(28,78 \pm 0,11) \text{ }^\circ\text{C}$. Das Minimum der Messung von $28,55 \text{ }^\circ\text{C}$ wird in dem selben Bereich angenommen, in dem auch die maximale Phasenanpassungswellenlänge liegt. Der maximale Wert von $29,20 \text{ }^\circ\text{C}$ wird im unteren linken Bereich des Kristalls angenommen.

AND25001 hat einen Mittelwert der Phasenanpassungstemperatur zur Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm von $(28,41 \pm 0,08) \text{ }^\circ\text{C}$. Das Minimum der Phasenanpassungstemperatur beträgt $27,96 \text{ }^\circ\text{C}$ und das Maximum $28,59 \text{ }^\circ\text{C}$.

Der Mittelwert der Temperatur für Verdopplung einer Wellenlänge von 860 nm beträgt für den Kristall AND26001 $(28,86 \pm 0,08) \text{ }^\circ\text{C}$. Der minimale Wert liegt bei $28,64 \text{ }^\circ\text{C}$ und das Maximum, das in der rechten oberen Ecke des Kristalls angenommen wird, bei $29,03 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Untersuchungen der Phasenanpassungstemperatur erweist sich als sehr sensitiv für Störungen innerhalb der Kristalle, da die Phasenanpassungstemperatur ebenso wie der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α variiert. Eine reine Bestimmung der Phasenanpassungstemperatur ist jedoch nicht ausreichend, um Rückschlüsse auf die Qualität der Kristalle zu ziehen, wie die Untersuchungen der Kristalle AND15004 und AND17001 exemplarisch zeigen. Während bei dem Kristall AND15004 eine Zunahme der Phasenanpassungswellenlänge in inhomogenen Bereichen zu beobachten ist, fällt sie bei dem Kristall AND17001 ab.

Kristall	AND15002	AND15004	AND17001
α	1,17±0,07	1,07±0,01	1,01±0,02
$\Delta\lambda \cdot L$ [nm·cm]	0,094±0,001	0,092±0,001	0,087±0,005
λ_{PM} @ 22 °C [nm]	857,91±0,03	857,86±0,06	857,85±0,03
$\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ [$\frac{\text{nm}}{\text{K}}$]	0,396±0,002	0,400±0,005	0,374±0,006
T_{PM} @ 860 nm [°C]	27,25±0,05	27,36±0,13	28,52±0,09
Kristall	AND24001	AND25001	AND26001
α	1,02±0,03	1,07±0,01	1,05±0,01
$\Delta\lambda \cdot L$ [nm·cm]	0,089±0,004	0,094±0,001	0,092±0,002
λ_{PM} @ 22 °C [nm]	857,36±0,05	857,47±0,03	857,37±0,03
$\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ [$\frac{\text{nm}}{\text{K}}$]	0,387±0,005	0,395±0,001	0,384 ±0,001
T_{PM} @ 860 nm [°C]	28,78±0,11	28,41±0,08	28,86±0,08
		Literaturwert	Mittelwert
α			1,03±0,02
$\Delta\lambda$ [nm·cm]		0,09	0,089±0,004
λ_{PM} @ 22 °C [nm]		857,47	857,53±0,04
$\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ [$\frac{\text{nm}}{\text{K}}$]		0,382	0,389±0,004
T_{PM} @ 860 nm [°C]		29,1	28,72±0,09

Tabelle 4.6: Zusammenstellung der Ergebnisse für den optisch nichtlinearen Kristall KNbO₃

4.1.3 Zusammenstellung der Ergebnisse

Zur Bestimmung und Verifikation der untersuchten Materialeigenschaften von KNbO₃ sollten die untersuchten Kristalle zunächst in eine qualitätsbezogene Reihenfolge gebracht werden. Legt man den Doppelbrechungshomogenitätsparameter α zugrunde, so sind die Kristalle AND17001, AND24001 und AND26001 die drei besten Kristalle. Der Kristall AND15002 ist mit einem Mittelwert des Parameters α von 1,17 der schlechteste untersuchte Kristall. Zur Bestimmung der Materialeigenschaften wird der Mittelwert der drei Kristalle mit den kleinsten mittleren α bestimmt.

Als Mittelwert der Ergebnisse der drei besten Kristalle ergab sich für die Wellenlängenakzeptanzbandbreite von KNbO₃ der Wert $\Delta\lambda = (0,089 \pm 0,004)$ nm·cm.

Die so ermittelte Phasen Anpassungswellenlänge für einen Kristall bei Raumtemperatur beträgt $\lambda_{PM} = (857,53 \pm 0,04)$ nm. Für die Temperaturabhängigkeit der Phasen Anpassungswellenlänge

sungswellenlänge wurde der Wert $\frac{d\lambda_{PM}}{dT} = (0,389 \pm 0,004) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ bestimmt. Die mittlere Phasenanpassungstemperatur T_{PM} beträgt $(28,72 \pm 0,09) \text{ }^\circ\text{C}$.

Die Mittelwerte aller Messgrößen, die mit den drei Kristallen bestimmt wurden, finden sich zur Übersicht ebenfalls in der Tabelle 4.6.

Die ermittelten Größen weichen geringfügig von den Literaturwerten (siehe [Bi92]) ab. In dieser Veröffentlichung wird keine Angabe über die Homogenität der verwendeten Kristalle gemacht. Die Abweichungen könnten entsprechend durch Kristalle unterschiedlicher Qualität verursacht worden sein.

Die Messungen zeigen, dass mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Aufbau deutliche Unterschiede in den untersuchten Eigenschaften, sowohl zwischen den Kristallen als auch innerhalb der KNbO_3 - Kristalle, nachzuweisen waren. Keiner der untersuchten Kristalle hatte eine perfekt homogene Verteilung der gemessenen Parameter. Die Abweichungen der verschiedenen Messgrößen innerhalb der Kristalle waren dabei teilweise sehr klein. Sie konnten aber mit dem in Abschnitt 3.3 vorgestellten experimentellen Aufbau nachgewiesen werden. Die bisher als sehr hochwertig eingeschätzten Kristalle AND17001 und AND24001 besitzen mittlere Werte für den Doppelbrechungshomogenitätsparameter α nahe 1 und erweisen sich somit tatsächlich als in Strahlausbreitungsrichtung sehr homogene Kristalle. Wie die Standardabweichungen der untersuchten Parameter zeigen, besitzen AND17001 und AND24001 im Vergleich zu den anderen Kristallen eine räumlich etwas größere Streuung der Eigenschaften. Die räumlichen Variationen des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α , die in den beiden Kristallen auftraten, waren im Falle des Kristalls AND24001 in erster Linie auf die gewölbten Kristalloberflächen zurückzuführen. Bedingt dadurch variiert die Länge des Kristalls in lateraler Richtung. Die Variationen bei dem Kristall AND17001 stammen von einer Domäne am linken unteren Rand des Kristalls.

Bei den Kristallen AND17001 und AND24001 wurden, im Widerspruch zur Definition des Doppelbrechungshomogenitätsparameter α , Werte kleiner als 1 bestimmt. Die Ursache hierfür liegt einerseits - im Falle des Kristalls AND24001 - an der räumlich nicht konstanten Länge des Kristalls und andererseits an der Wellenlängenakzeptanzbandbreite, die zur Berechnung der effektiven Linienbreite eines idealen Kristalls $\delta\lambda_{Calc}$ benutzt wurde. Zur Berechnung von $\delta\lambda_{Calc}$ wurde ein Wellenlängenakzeptanzbandbreiten-Längenprodukt von $0,09 \text{ nm}\cdot\text{cm}$ verwendet. Dieser Wert wurde aus den empirisch von B. I. Biaggio [Bi92] bestimmten Sellmeiergleichungen berechnet. Nutzt man den in der vorliegenden Arbeit bestimmten Wert von $0,089 \text{ nm}\cdot\text{cm}$ zur Berechnung der effektiven Linienbreite $\delta\lambda_{Calc}$, so sind die Werte des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α für die Kristalle immer größer als 1. Die Abweichungen unter den Wert 1 können zwei Ursachen haben. Der zur Berechnung der effektiven Linienbreite $\delta\lambda_{Calc}$ genutzte Theoriewert ist nicht korrekt. Eine weitere

Möglichkeit ist, dass die Justage der Monochromatoren nicht exakt war, so dass sowohl bei der Bestimmung der Akzeptanzbandbreite, als auch bei der Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameters ein Fehler gemacht wurde (Diskussion siehe Abschnitt 3.3) .

Mit der in Abschnitt 3.3 vorgestellten Untersuchungsmethode ist es möglich, Kristalle mit hoher räumlicher Auflösung zu untersuchen und bezüglich ihrer Qualität einzuordnen. Durch eine hierarchische Einordnung der Kristalle konnten Materialparameter für verschiedene Eigenschaften hochwertiger Kristalle bestimmt werden. Die Kristalle zeigten dabei mit dem verwendeten Experiment deutlich nachweisbare Variationen nicht nur zwischen den einzelnen Kristallen, sondern auch innerhalb eines Kristalls.

Es konnte gezeigt werden, dass KNbO_3 -Kristalle in hoher Qualität gezüchtet werden können. Legt man die Ergebnisse der hier durchgeführten Untersuchungen zu Grunde, so besitzen gute KNbO_3 -Kristalle mittlere Werte für den Doppelbrechungshomogenitätsparameter von $\alpha \leq 1,05$. Durchschnittliche Kristalle sollten bei einem Wert von etwa 1,07 liegen. Kristalle mit $\alpha \geq 1,1$ müssen als schlecht angesehen werden.

Das große Problem bei KNbO_3 sind in den Kristall durch Druck oder zu große Temperaturgradienten eingebrachte Domänen (AND15002 und AND15004). Diese wirken sich nicht nur an der Position der Domäne im Kristall selbst aus, sondern auch im Umfeld der Domänen sind die Doppelbrechungshomogenität und die anderen untersuchten Parameter gestört.

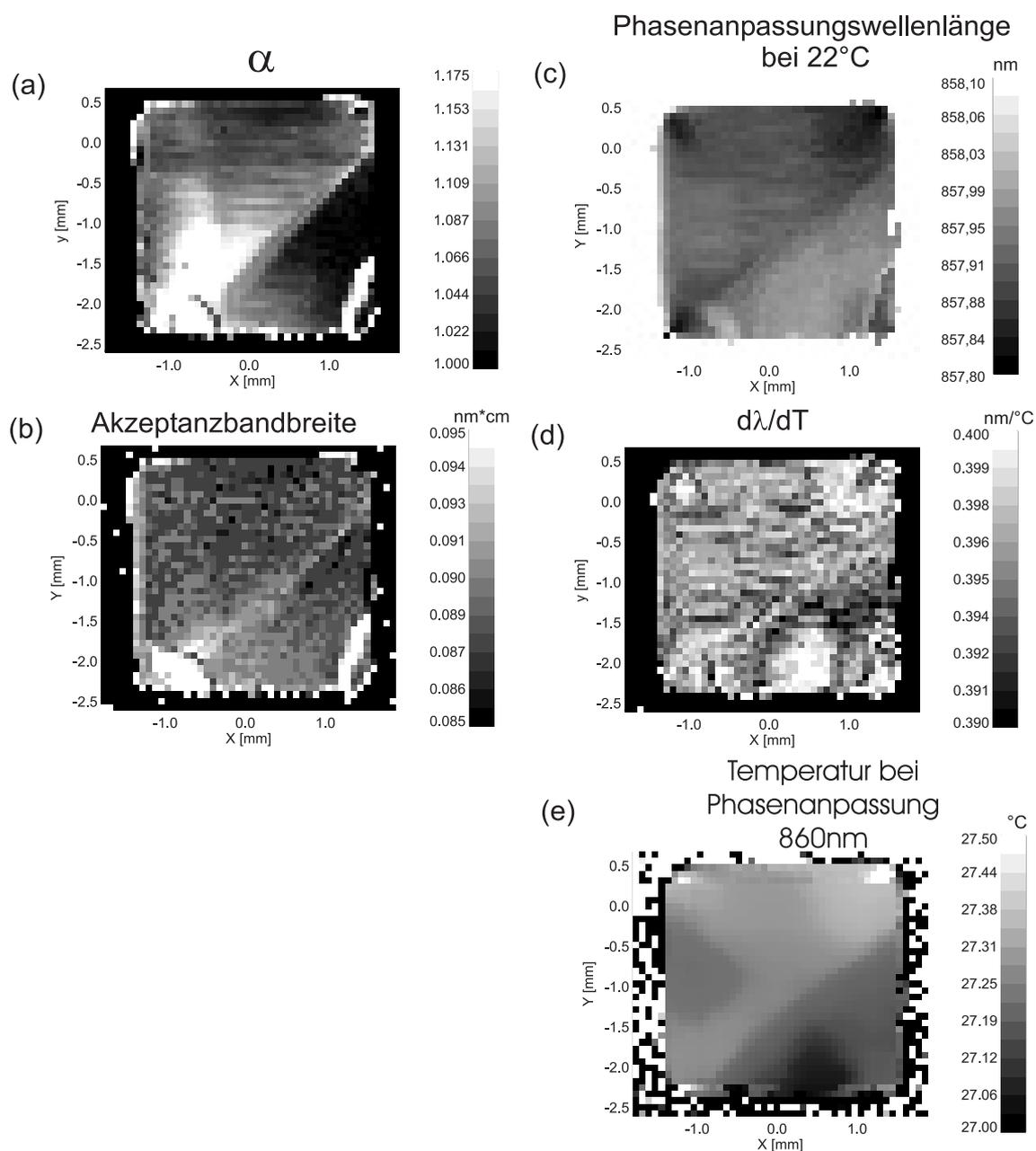


Abbildung 4.8: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND15002. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22 °C; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

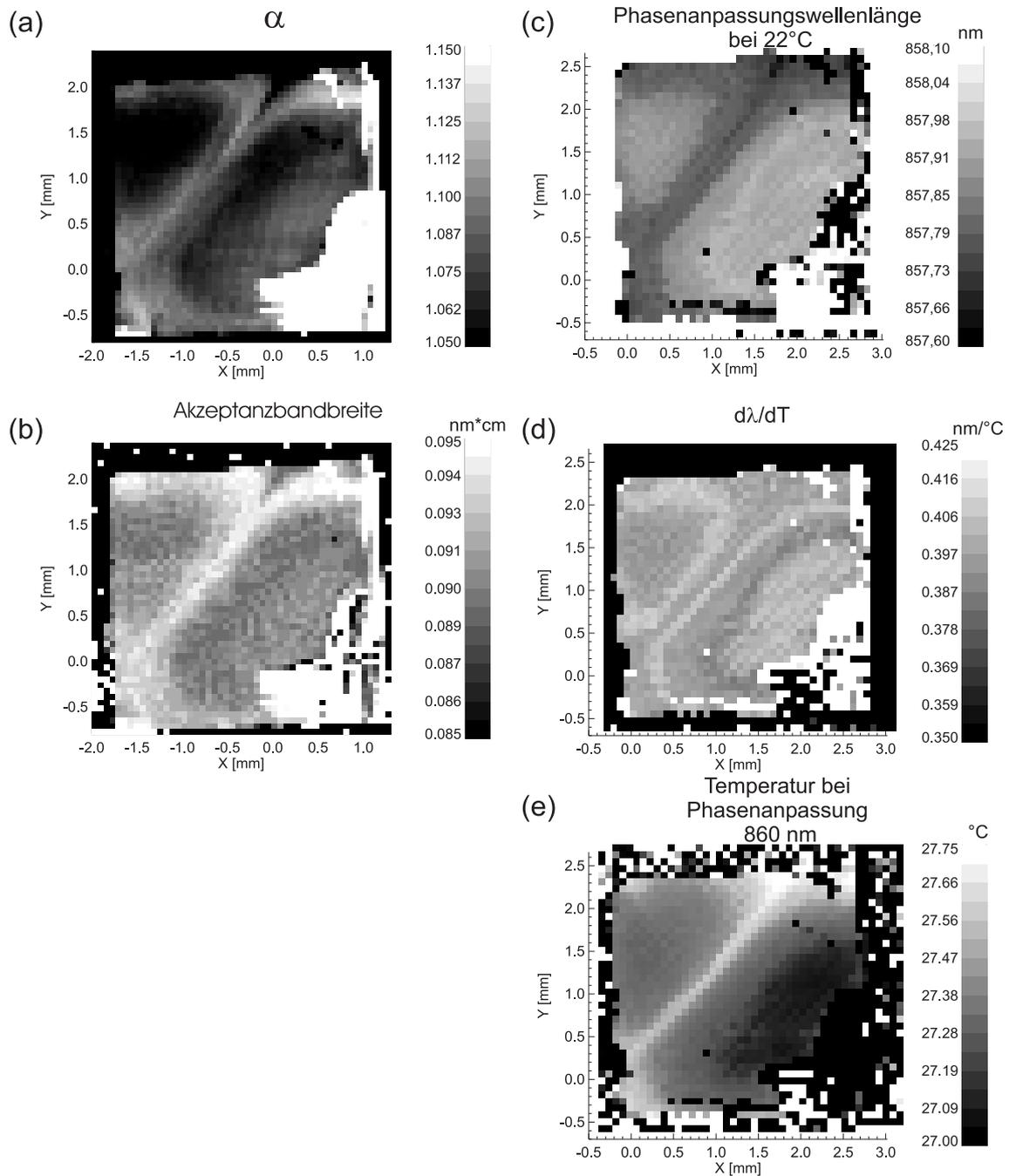


Abbildung 4.9: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND15004. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22°C ; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

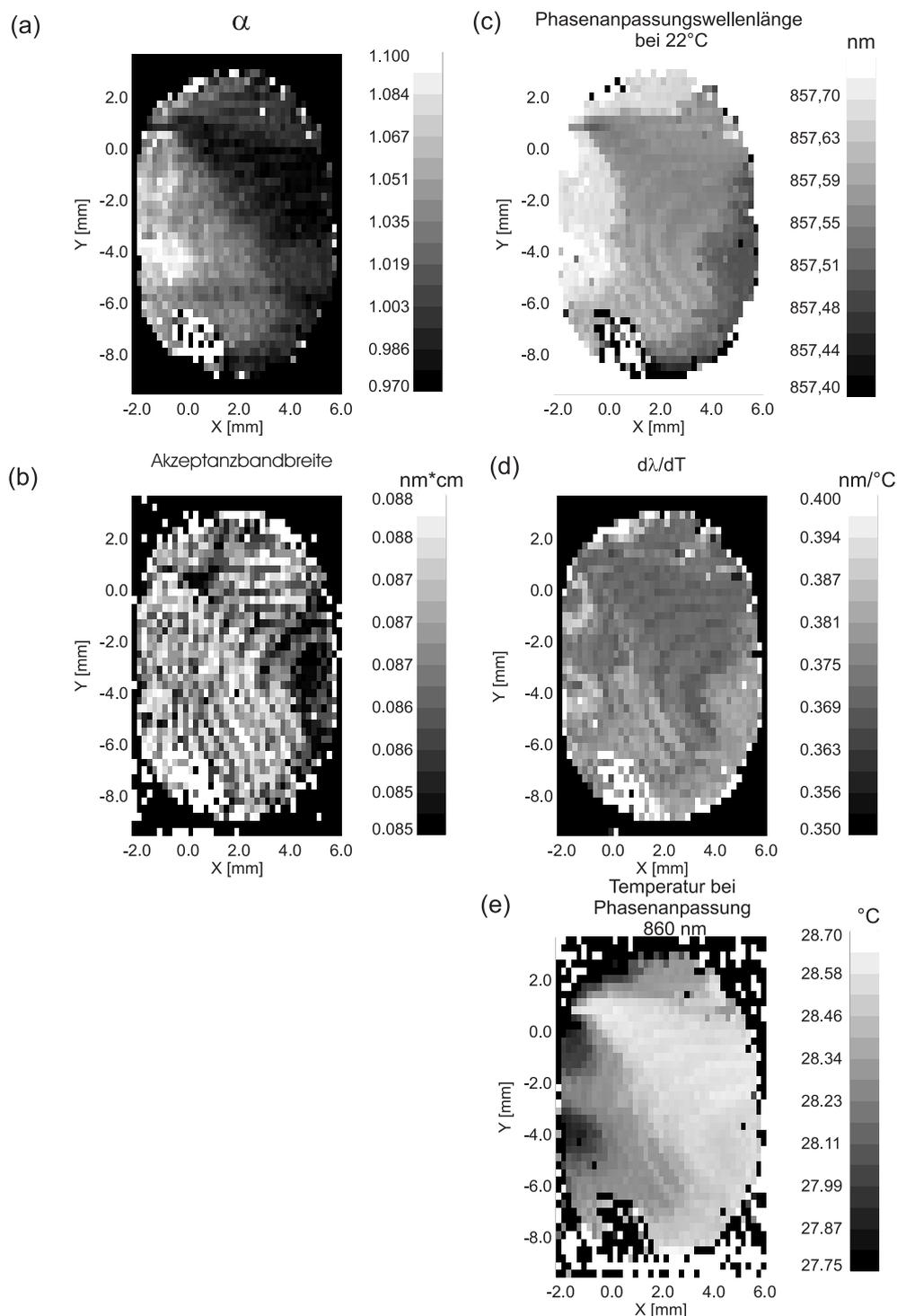


Abbildung 4.10: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND17001. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22 °C; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

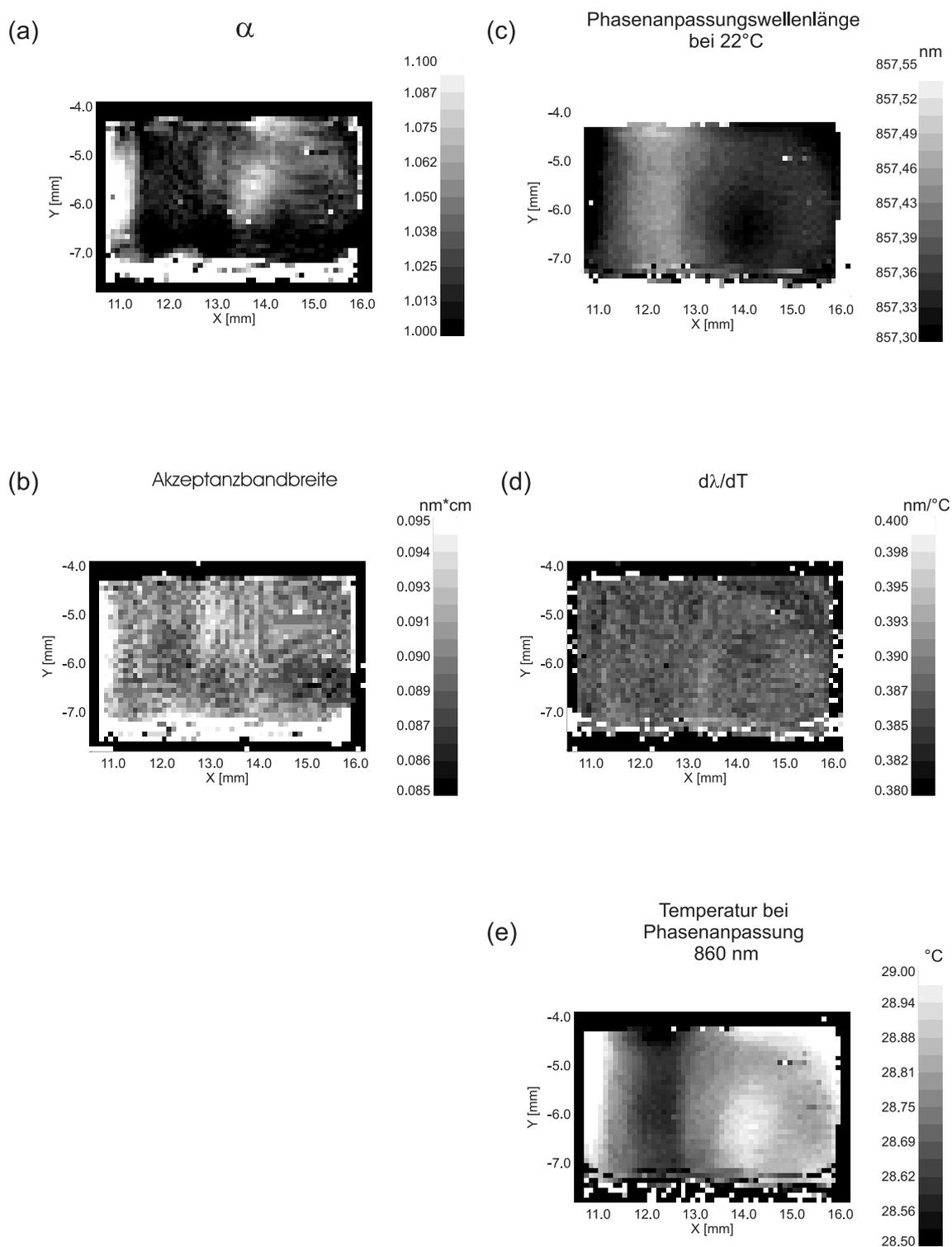


Abbildung 4.11: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND24001. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22°C ; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

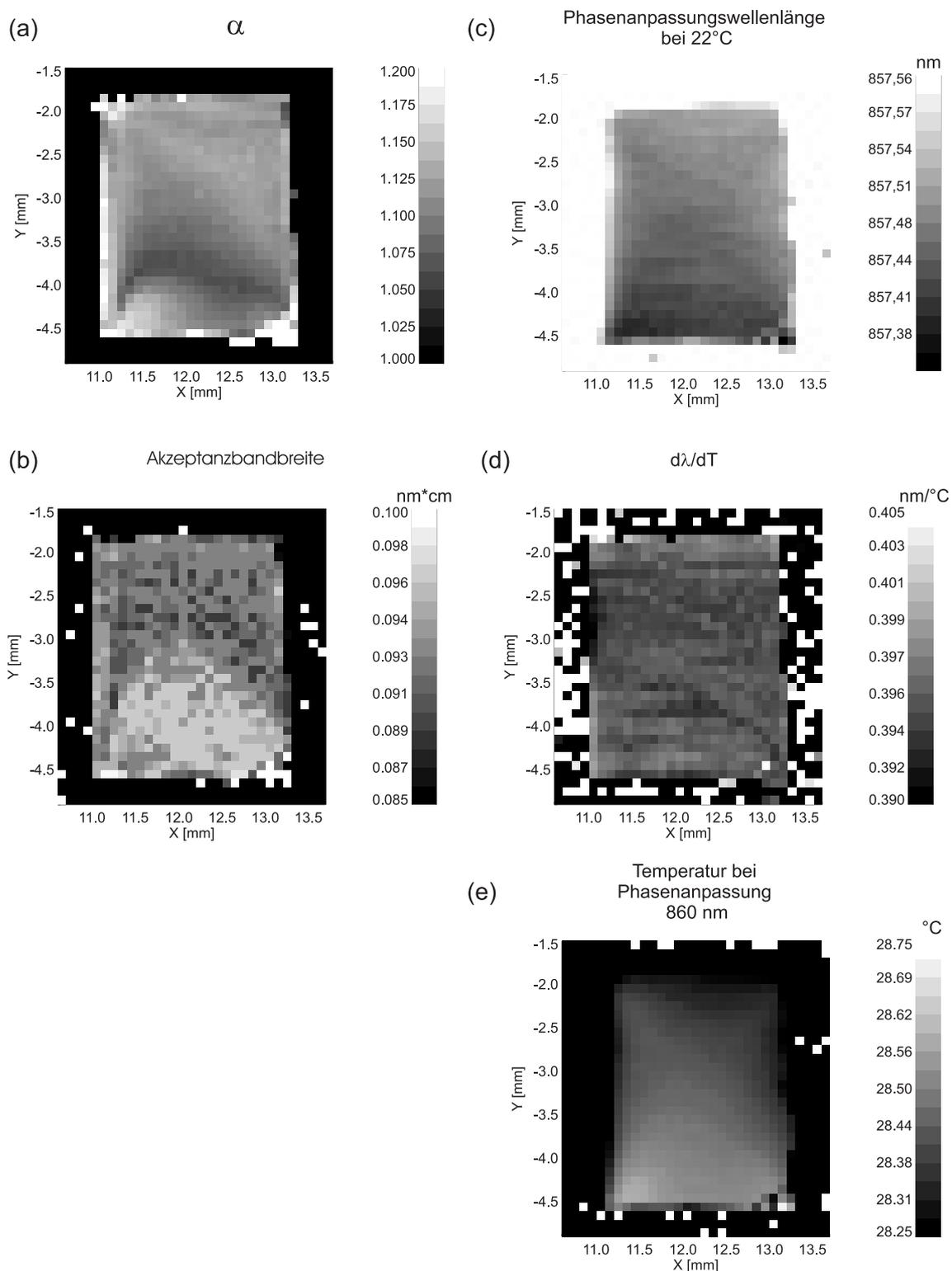


Abbildung 4.12: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND25001. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22°C ; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

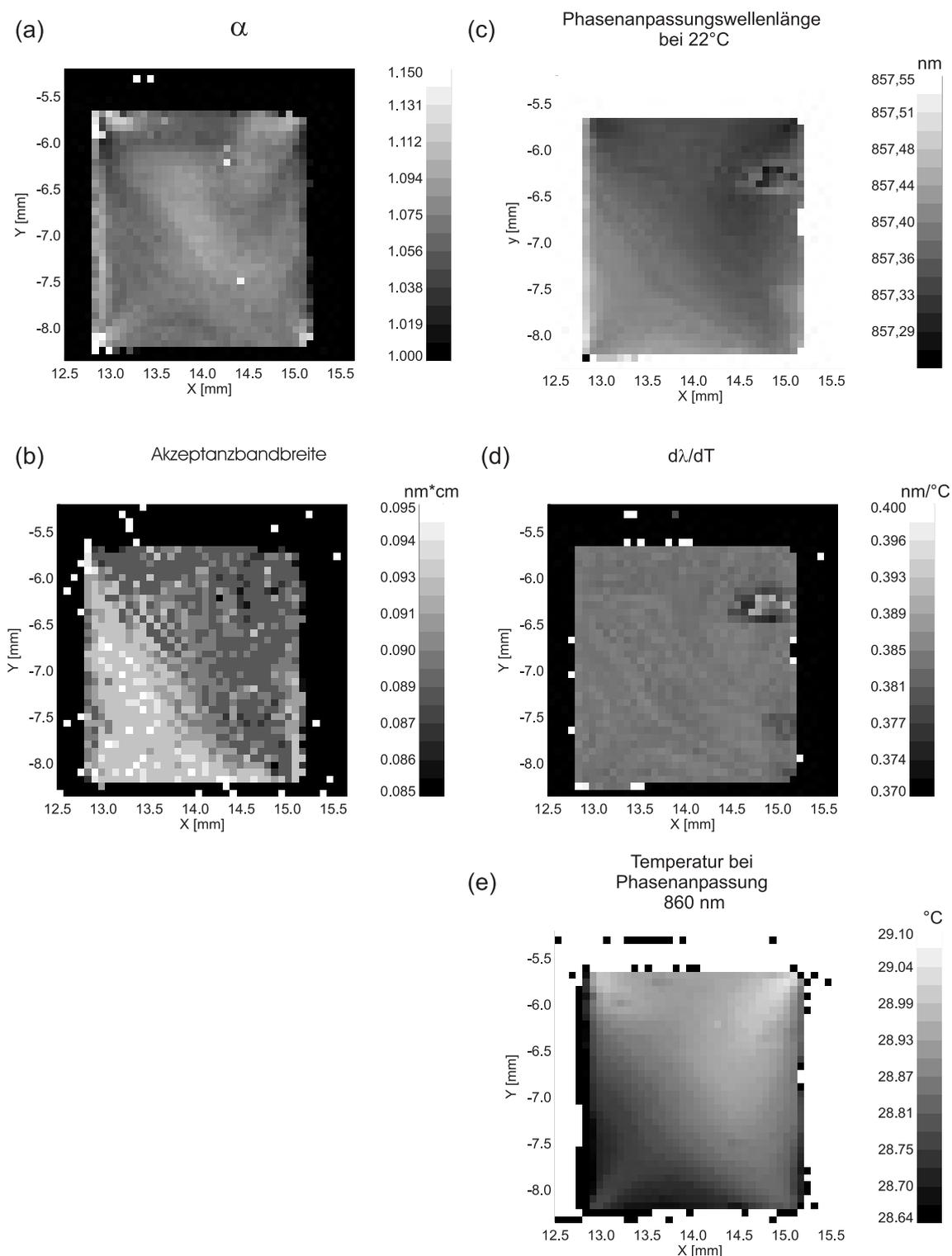


Abbildung 4.13: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND26001. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22°C ; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

4.2 Charakterisierung von Kaliumniobat mit veränderter Stöchiometrie „S-KNbO₃“

4.2.1 Allgemeine Bemerkungen zu „S-KNbO₃“

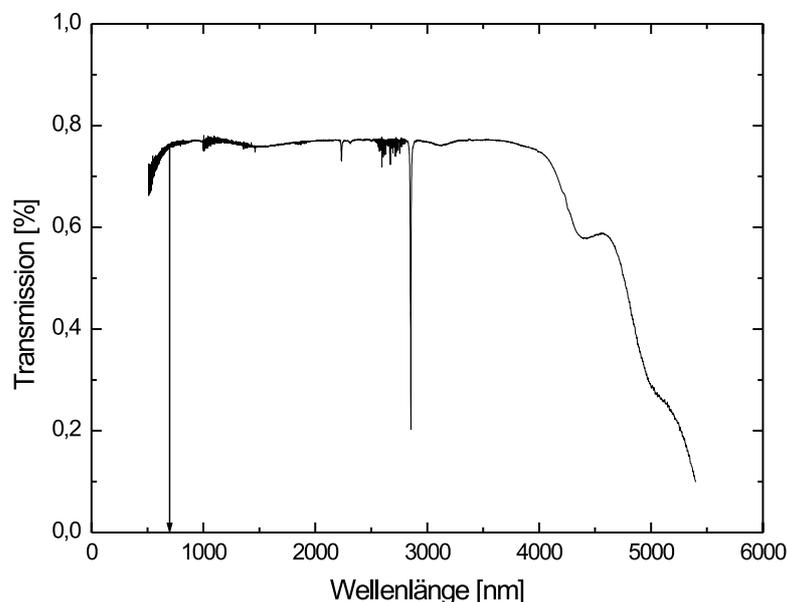
Während der Züchtungsoptimierung von KNbO₃ wurde mit verschiedenen Lösungsmittel experimentiert, um die Kristallzüchtung zu verbessern und die Stöchiometrie des Materials zu verändern. Bei der Frequenzkonversion in KNbO₃ treten verschiedene Phänomene, wie BLIIRA oder Streuzentren auf, die die Konversionseffizienz verschlechtern. Die Ursachen für diese Phänomene sind teilweise nicht bekannt [Ry03]. In anderen Materialien, wie LiNbO₃

konnte durch Variation der Stöchiometrie oder Einbau von Fremdatomen Einfluss auf Konversionseffizienz beeinflussende Eigenschaften des Materials genommen werden. Variation der Stöchiometrie von KNbO₃ könnte ebenso zu einer Veränderung der Eigenschaften und Verringerung negativer Effekte des Materials führen.

Das Phasendiagramm von KNbO₃ ist in der Abbildung 2.2 dargestellt. Die Züchtung von KNbO₃ ist in einem schmalen Bereich entlang der Liquidus Kurve möglich, die mit einem Überschuss an K₂CO₃ erreicht werden kann. Bei der Züchtung der in dieser Arbeit verwendeten KNbO₃ - Kristalle wurde deshalb eine Schmelze verwendet, die aus 48,5 mol%Nb₂O₅ und 51,5 mol%K₂CO₃ besteht. Die Stöchiometrie der erhaltenen KNbO₃ Kristalle wurde bisher nicht analysiert [Ry03].

Um erstmals KNbO₃ mit veränderter Stöchiometrie zu untersuchen, wurde ein Kristall gezüchtet, bei dem der K₂O Überschuss der Schmelze durch Rb₂O ersetzt wurde. Es sollten auf diese Weise KNbO₃ Kristalle aus eine Schmelze von 50:50 K₂O-Nb₂O₅ gezüchtet werden. Ob Rubidium in den Kristall eingebaut wurde, ist nicht bekannt, da mit dem Kristall bisher keine chemische Analyse durchgeführt werden konnten. Allerdings ist ein Einbau von Rubidium sehr unwahrscheinlich [Ry04]. Wegen der fehlenden chemischen Analyse ist ebenfalls unbekannt, ob der Kristall ein stöchiometrisches Verhältnis von Kalium zu Niob aufweist.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmals Untersuchungen an diesem Material durchgeführt, es handelt sich dabei ausschließlich um optische Untersuchungsmethoden. Mit den Untersuchungen sollten die optisch nichtlinearen Eigenschaften des Materials untersucht werden, um Vergleiche mit gewöhnlichem KNbO₃ durchführen zu können. Für die untersuchten Parameter sollten so eventuell vorhandene Vorteile des Materials für Frequenzkonversionsexperimente aufgefunden werden. Von wesentlichem Interesse sind insbesondere

Abbildung 4.14: Transmissionsspektrum von S-KNbO₃

Indizien, die auf eine veränderte Stöchiometrie des Materials hindeuten.

Zur Unterscheidung von gewöhnlichem Kaliumniobat wird das Kaliumniobat mit veränderter Stöchiometrie als S-KNbO₃ bezeichnet.

Der Kristall hat eine Länge von 9,5 mm mit einer Apertur von (13·10) mm². An der Oberseite befinden sich einige Brüche des Kristalls, die dazu führen, dass an diesen Stellen keine optischen Analysen möglich sind.

4.2.2 Absorption

Die wellenlängenabhängige Transmission des Kristalls wurde mit einem Fouriertransmissionsspektrometer Modell Bruker FTIR 120 durchgeführt. Die maximale Auflösung des Gerätes beträgt 0,14 GHz. Bei der Untersuchung der Proben wird üblicherweise eine Auflösung von 30 GHz ($\hat{=}$ 1 cm⁻¹) genutzt. Die Messung wurde mit unpolarisiertem Licht durchgeführt und ist in Abbildung 4.14 dargestellt. Die Messung wurde bedingt durch die Bauart des Spektrometers in zwei Stufen durchgeführt, die erste Messung wurde von einer

Wellenlänge von etwa 5500 nm bis 1100 nm durchgeführt, die zweite Messung schloss sich von einer Wellenlänge von 1100 nm bis zu 400 nm an. Wobei zu kürzeren Wellenlänge hin die Messung wegen des zur Verfügung stehenden Detektors und der Strahlquelle stark verrauscht erscheint.

Die beiden Transmissionsmessungen wurden in der Abbildung 4.14 zusammengefügt. Die Unterschiede zwischen KNbO₃ und S-KNbO₃ im infraroten Spektralbereich sind vernachlässigbar. Auch der signifikante Absorptionspeak bei etwa 2850 nm, bedingt durch die in die Kristallstruktur eingelagerte Hydroxide und Hydrate verursachten O-H - Streck-schwingungen ist vergleichbar. Ein Unterschied besteht im Anfangspunkt der UV Absorptionskante. Sie beginnt (siehe Abbildungen 4.4) bei KNbO₃ (bei Raumtemperatur) bei 410 nm, wohingegen bei S-KNbO₃ ein beginnender Transmissionsabfall bereits bei einer Wellenlänge über 500 nm zu verzeichnen ist, wie in der Abbildung 4.14 zu erkennen. Mit dem zur Verfügung stehenden Spektrometer konnte nicht die gesamte Absorptionskante erfasst werden, weshalb über den genauen Abfall der Transmission nichts ausgesagt werden kann. Die früher einsetzende Absorptionskante ist ein Nachteil des Materials S-KNbO₃ für Experimente im sichtbaren (grünen und blauen) Spektralbereich im Vergleich zu gewöhnlichem KNbO₃.

4.2.3 Frequenzkonversionsexperimente zur Charakterisierung von stöchiometrischem Kaliumniobat S-KNbO₃

Wie bei der Untersuchung von konventionellen KNbO₃ - Kristallen im Abschnitt 4.1.2 beschrieben, wurde der Kristall AND30001 mehrmals mit dem im Abschnitt 3.3 beschriebenen experimentellen Aufbau untersucht. Für die Berechnung des Parameters α ist die Kenntnis der theoretischen Linienbreite $\delta\lambda_{Calc}$ erforderlich (siehe Abschnitt 3.3). Diese ist für S-KNbO₃ nicht bekannt, sollte aber mit der von Kaliumniobat KNbO₃ vergleichbar sein. Daher wurde für die Berechnungen dieser Wert verwendet.

Anschließend wurde der Mittelwert für den Parameter α als Mittelwert von 6 Messungen bestimmt.

Eine entsprechende Vorgehensweise wurde auch bei der Bestimmung der Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ des Kristall angewendet.

Die Werte für die Phasen Anpassungswellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur (22 °C) die Variation der Phasen Anpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ und der Phasen Anpassungstemperatur T_{PM} für eine Phasen Anpassungswellenlänge von 860 nm wurden ebenso wie bei den in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Experimenten ermittelt.

Die Ergebnisse der Messungen sind in den Abbildung 4.15 (a) - e. dargestellt.

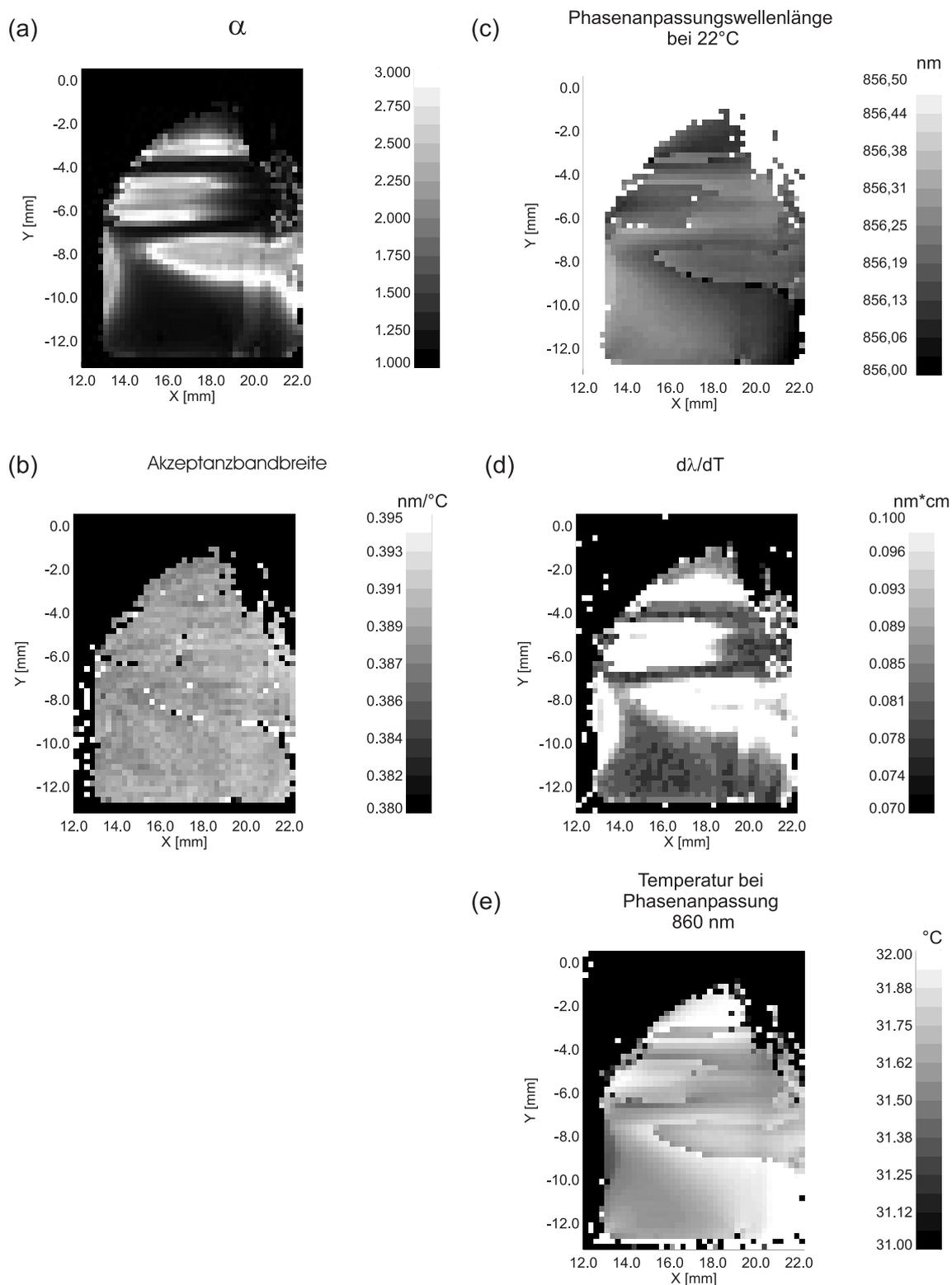


Abbildung 4.15: Ergebnisse der Messungen des Kristalls AND30001. (a): Homogenitätsparameter α ; (b) Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$; (c): Phasenanpassungswellenlänge bei 22 °C; (d): Variation der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ mit der Temperatur T ; (e): Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm

Der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α

Zunächst wurde die räumliche Variation des Doppelbrechungshomogenitätsparameter α untersucht. Kenntnis dieser Variationen ermöglicht die Ermittlung von Kristallstellen mit sehr kleinen Werten für α . Diese Stellen sind sehr homogen und eignen sich entsprechend auch zur Bestimmung der anderer konversionseffizienzbeeinflussenden Kriterien des Materials. In der Abbildung 4.15 ist bereits deutlich zu sehen, dass der Kristall vor allem im oberen Bereich starke Inhomogenitäten aufweist. Im oberen Teil des Kristalls befinden sich drei große waagrechte Störungen, in denen die Doppelbrechungshomogenität Werte deutlich größer als 3 annimmt. Im unteren linken Bereich des Kristall befindet sich eine Region, die sehr niedrige Werte des Parameters α aufweist.

Bei der anschließenden Mittelwertbildung der untersuchten Parameter wurden deshalb jeweils zwei Werte ermittelt, der erste Wert einmal über die gesamte Kristallfläche mit über 600 gemittelten Messpunkten und der zweite an der Stelle mit einem sehr geringen Wert des Parameters α mit 225 Messpunkten. Hierdurch können Aussagen an einer hochwertigen Stelle des Kristalls gemacht werden. Die Daten an der guten Stelle des Kristall sind jeweils gesondert gekennzeichnet.

Der Mittelwert des Homogenitätsparameters α beträgt gemittelt über den ganzen Kristall $1,57 \pm 0,57$. An einer guten Stelle des Kristalls ist der Wert $\alpha = 1,13$ mit einer deutlich geringeren Standardabweichung von $0,06$. Der maximale Wert des Parameters α ist $3,54$, was einer Reduktion der Konversionseffizienz aufgrund von Inhomogenitäten in der Doppelbrechung um fast 72 % entspricht (siehe Gleichung (2.49)). Der minimale Wert für den Doppelbrechungshomogenitätsparameter α wird ebenfalls im linken unteren Bereich des Kristall angenommen und beträgt $1,03$.

Der Kristall erweist sich bis auf kleine Bereiche als insgesamt sehr inhomogen.

Abhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge von der Temperatur $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$

Der Wert der Steigung $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ für die Variation der Phasenangepassungswellenlänge λ_{PM} mit der Temperatur T ist in der Abbildung 4.15 d. in Grautönen für den Kristall dargestellt. Trotz der Störungen innerhalb des Kristalls sind die Schwankungen des Wertes sehr gering. Der Mittelwert für die Abhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge von der Temperatur $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ über den gesamten Kristall hat einen Wert von $(0,388 \pm 0,024) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Im unteren Teil des Kristalls ist der Mittelwert des Parameters $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ nur geringfügig größer mit einem Wert von $0,390 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ mit einer sehr geringen Standardabweichung von $0,001 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Das Minimum in diesem Bereich hat einen Wert von $0,388 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und das Maximum von $0,392 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$. Der hier bestimmte Wert für die Temperaturabhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge ist nur geringfügig größer als der für gewöhnliches KNbO₃ bestimmte Wert. Eine möglicherweise

vorhandene Variation der Stöchiometrie wirkt sich also nur sehr geringfügig auf diesen Parameter aus.

Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur (22 °C)

In Abbildung 4.15 c. ist zu erkennen, dass die Phasenanpassungswellenlänge bei Raumtemperatur in den oberen Bereichen des Kristalls stark variiert. Die gestörten Bereiche haben größere Phasenanpassungswellenlängen als die ungestörten Bereiche im unteren Teil des Kristalls. Die gestörten Bereiche haben einen maximalen Wert der Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} von 862,27 nm, wohingegen der minimale Wert im ungestörten Bereich 855,80 nm beträgt.

Der Mittelwert für die Phasenanpassungswellenlänge über den gesamten Kristall ist 856,22 nm mit einer Standardabweichung 0,30 nm. Die gute Stelle im unteren Teil des Kristalls hat ebenfalls den Mittelwert 856,22 nm, allerdings mit einer Abweichung von 0,04 nm.

Die Phasenanpassungswellenlänge bei Raumtemperatur von S-KNbO₃ ist über 1 °C geringer als die von KNbO₃. Wie den Werten in der Tabelle 4.6 entnommen werden kann weichen die Mittelwerte für die Phasenanpassungswellenlänge bei den KNbO₃ Kristallen nur unwesentlich von dem bestimmten Mittelwert von 857,53 nm ab. Die Abweichung von mehr als 1 nm bei dem Kristall AND30001 stammen deshalb vermutlich nicht nur von den Inhomogenitäten des Kristalls, sondern deuten auf eine veränderte Stöchiometrie des Materials hin.

Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für eine zu konvertierende Wellenlänge von 860 nm

Die Phasenanpassungstemperatur T_{PM} gemittelt über den gesamten Kristall ist 31,76 °C mit einer Standardabweichung von 0,53 °C. Im linken unteren Teil des Kristalls ist die Phasenanpassungstemperatur 31,71 °C mit einer Standardabweichung von 0,07 °C. Die minimale Phasenanpassungstemperatur für eine zu konvertierende Strahlung der Wellenlänge von 860 nm ist 23,83 °C und die maximale Temperatur ist 44,32 °C. Die mittlere Phasenanpassungstemperatur ist deutlich höher als die für Kaliumniobat KNbO₃ ermittelte Temperatur von 28,2 °C.

In Lithiumniobat steigt die Phasenanpassungstemperatur T_{PM} bei nichtkritischer Phasenanpassung mit der Konzentration von Lithiumionen [WC96]. Vorbehaltlich einer chemischen Analyse hat man so ein Indiz, dass mehr Kaliumionen in die Kristalle eingebaut wurden. Eine andere Möglichkeit ist, dass bedingt durch das während der Züchtung verwendete Lösungsmittel R₂O, Rubidiumionen anstelle von Kalium während der Züchtung

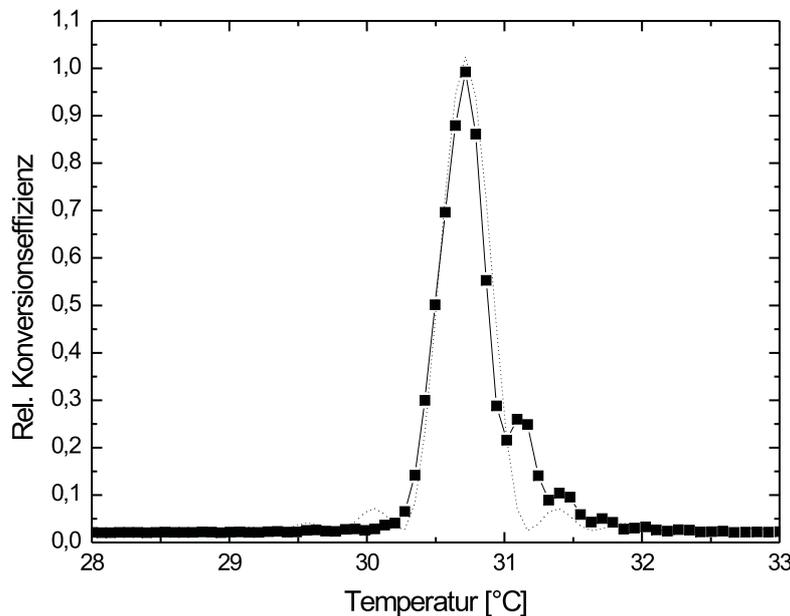


Abbildung 4.16: Die Temperaturakzeptanz beträgt 0,431 °C

des Kristalls eingebaut wurden. Im Gegensatz zu dem Lösungsmittel Na₂O, bei dem ein Einbau von Natrium in die Kristalle festgestellt wurde, ist dies hier allerdings nahezu ausgeschlossen [Ry04].

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite wurde bestimmt, indem wie bei dem Parameter α sechs Messungen gemittelt und dann über den gesamten Kristall bzw. über den unteren Teil des Kristalls räumlich gemittelt wurde. Die so bestimmte Akzeptanzbandbreite hat einen Mittelwert von 0,16 nm·cm mit einer Standardabweichung von 0,14 nm·cm. Im guten Bereich des Kristall ist die Akzeptanzbandbreite geringer als der in Abschnitt 4.1.2 bestimmte Wert für Kaliumniobat KNbO₃ von 0,089 nm·cm. Es wurde ein Wert von $(0,081 \pm 0,003)$ nm·cm bestimmt. Das Minimum in diesem Bereich ist 0,077 nm·cm und das Maximum ist 0,102 nm·cm. Der Kristall ist im Vergleich zu KNbO₃ entsprechend empfindlicher in Bezug auf Variation der Fundamentalwellenlänge oder Variation der Temperatur.

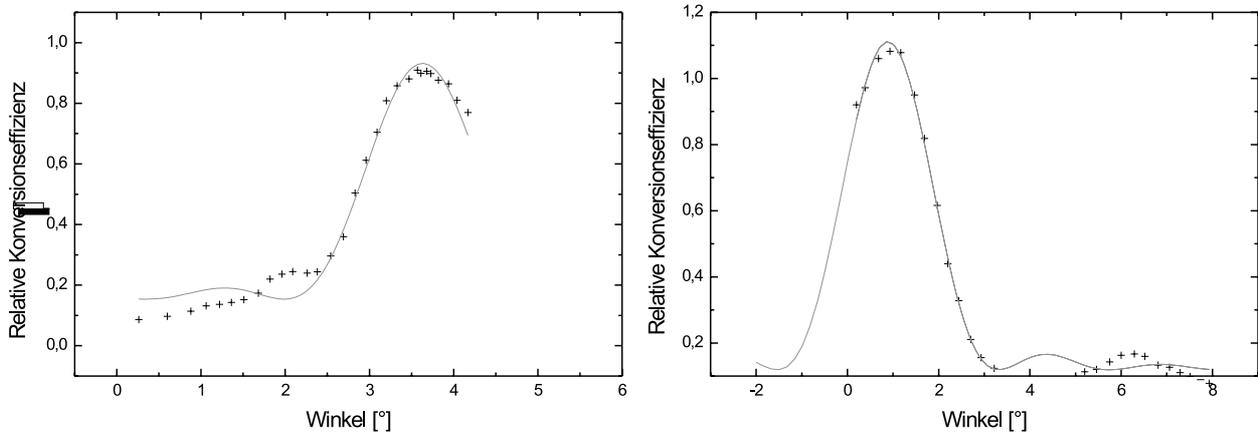


Abbildung 4.17: Die Winkelakzeptanz bezüglich des Polarwinkels ist $1,66^\circ$ ($1,91^\circ \cdot \text{cm} = 0,033 \text{ Rad} \cdot \text{cm}$). Bei Variation des Azimuthwinkels $2,151^\circ$ ($2,405^\circ \cdot \text{cm} = 0,043 \text{ Rad} \cdot \text{cm}$)

Die Temperaturakzeptanzbandbreite ΔT

Die Temperaturakzeptanz wurde mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Aufbau bestimmt, in dem die Kristalltemperatur variiert wurde.

Abbildung 4.16 zeigt die in einem unteren Teil des Kristall gemessene Abhängigkeit der relativen Konversionseffizienz von der Temperatur. An die Kurve wurde eine sinc^2 Kurve angefitet. Deutlich zu sehen ist, dass der erste rechte Seitenpeak der Akzeptanzkurve stark angehoben ist, wohingegen der linke Seitenpeak stark reduziert ist. Dies deutet darauf hin, dass die so bestimmte Akzeptanzbandbreite nicht exakt ist, da die Messung an einer inhomogenen Stelle des Kristalls durchgeführt wurde. Die experimentell ermittelte Temperaturakzeptanzbandbreite dürfte aber für eine erste Abschätzung ausreichend sein. Die daraus folgende Temperaturakzeptanzbandbreite beträgt $(0,431 \pm 0,004)^\circ\text{C}$. Dies entspricht einer auf die Kristalllänge normierten Temperaturakzeptanzbandbreite von $\Delta T \cdot L = (0,410 \pm 0,004)^\circ\text{C} \cdot \text{m}$. Die in der Literatur veröffentlichten Werte für die Temperaturakzeptanz von KNbO_3 liegen zwischen $0,2635^\circ\text{C} \cdot \text{m}$ und $0,3^\circ\text{C} \cdot \text{m}$ [Bi92]. Der für S-KNbO_3 ermittelte Wert ist größer. In der Literatur werden keine Aussagen über die Qualität der dort untersuchten Kristalle gemacht, weshalb der veröffentlichte Werte eventuell von dem eines idealen Kristalls abweicht.

Winkelakzeptanzbandbreiten bezüglich Variation des Phasenanpassungswinkels $\Delta\theta$ und des Azimutwinkels $\Delta\phi$

Die Winkelakzeptanzmessungen wurden mit dem im Kapitel 3.2 beschriebenen Aufbau durchgeführt, wobei der Winkel zwischen Kristall und Laser durch Verändern der Position des Kristallhalters realisiert wurde. Die Winkeldifferenz selbst wurde mit Hilfe eines roten Diodenlasers bestimmt. Die Reflektion des Laserstrahls an der Kristalloberfläche konnte an einer Skala abgelesen werden. Der externe Winkel war der Winkel zwischen der Oberflächennormalen des Kristalls und der Einfalls- bzw. Ausfallsrichtung des roten Diodenlaserstrahls. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4.17 zusammengefasst. Dass die Messwerte jeweils nur für einen Seitenpeak bestimmt wurden, ist bedingt durch die Kristallhalterungen, die keine weiteren Variationen erlaubten. Für die Akzeptanz des Polarwinkels θ konnte der Wert $\Delta\theta = (1,66 \pm 0,06)^\circ$ bestimmt werden. Für Variation des Azimutwinkels ergab sich ein Wert von $\Delta\phi = (2,15 \pm 0,06)^\circ$.

Normiert man dieses Ergebnis auf die Kristalllänge, so folgt ein Wert für die Akzeptanzbandbreite des Polarwinkels von $\Delta\theta \cdot L = (1,58 \pm 0,06)^\circ \cdot \text{cm}$. Das Azimutwinkelakzeptanz-Längenprodukt hat einen Wert von $\Delta\phi \cdot L = (2,04 \pm 0,06)^\circ \cdot \text{cm}$.

Umgerechnet auf interne Phasenanpassungswinkel $\Delta\theta_{int}$ bzw. $\Delta\phi_{int}$, die sich aus dem Snelliuschen Brechungsgesetz und dem externen Winkel ergeben, konnten für stöchiometrisches Kaliumniobat die Werte $\Delta\theta_{int} \cdot L = (0,67 \pm 0,01)^\circ \cdot \text{cm}$ und $\Delta\phi_{int} \cdot L = (0,87 \pm 0,01)^\circ \cdot \text{cm}$ berechnet werden. Im Bogenmaß bedeutet dies für den Polarwinkel $\Delta\theta_{int} \cdot L = (11,7 \pm 0,2) \text{ mrad} \cdot \text{cm}$ und für den Azimutwinkel $\Delta\theta_{int} \cdot L = (15,2 \pm 0,2) \text{ mrad} \cdot \text{cm}$.

Der für Variation des Polarwinkels bestimmte Wert von $\Delta\theta_{int} \cdot L = (0,67 \pm 0,01)^\circ \cdot \text{cm}$ stimmt nahezu mit dem Literaturwert $\Delta\theta_{int} \cdot L = (0,659 \pm 0,01)^\circ \cdot \text{cm}$ [Bi92] überein.

Die Akzeptanz bezüglich Variation des Azimutwinkels weicht von dem Literaturwert von $\Delta\phi_{int} = (1,117 \pm 0,01)^\circ \cdot \text{cm}$ [Bi92] ab. Bei der Bestimmung der Winkelakzeptanz ist es wichtig, dass der Kristall räumlich sehr homogen ist, da die Strahlposition innerhalb des Kristall variiert wird. Da der Kristall AND30001 viele Störungen aufweist, ist dies ein möglicher Grund für die großen Abweichungen der Winkelakzeptanz bezüglich Variation des Azimutwinkels Abweichungen.

Messgröße	KNbO ₃	S-KNbO ₃	
		ganz	gute Stelle
α	$1,03 \pm 0,02$	$1,57 \pm 0,58$	$1,13 \pm 0,06$
$\Delta\lambda \cdot L$ [nm · cm]	$0,089 \pm 0,004$	$0,165 \pm 0,140$	$0,081 \pm 0,003$
$\Delta T \cdot L$ [°C · cm]	0,2635-0,3 [Bi92]	$0,410 \pm 0,004$	
$\Delta\theta_{int} \cdot L$ [° · cm]	0,659 [Bi92]	$0,67 \pm 0,01$	
$\Delta\phi_{int} \cdot L$ [° · cm]	1,117 [Bi92]	$0,87 \pm 0,01$	
$\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ [$\frac{\text{nm}}{\text{K}}$]	$0,389 \pm 0,004$	$0,388 \pm 0,024$	$0,390 \pm 0,001$
T_{PM} @ 860 nm	$28,72 \pm 0,09$	$31,76 \pm 0,53$	$31,71 \pm 0,07$
λ_{PM} bei 22 °C [nm]	$857,53 \pm 0,04$	$856,22 \pm 0,30$	$856,22 \pm 0,04$

Tabelle 4.7: Vergleich zwischen KNbO₃ und S-KNbO₃

4.2.4 Vergleich von KNbO₃ mit S-KNbO₃

Zum Vergleich der beiden Materialien KNbO₃ und S-KNbO₃ sind in der Tabelle 4.7 die in dieser Arbeit bestimmten Messgrößen zusammengefasst. Größen für Kaliumniobat, die nicht in dieser Arbeit bestimmt wurden, sind einer Veröffentlichung von B. I. Biaggio [Bi92] entnommen und entsprechend gekennzeichnet.

Die Homogenität der Doppelbrechung des Kristalls AND30001 ist im Vergleich zu konventionellen Kaliumniobat deutlich schlechter. Im Vergleich zu einem perfekten Kristall ist daher bei einigen der untersuchten Kristalleigenschaften mit Abweichungen zu rechnen. Bei Beschränkung der Untersuchungen auf gute Bereiche (mit kleinen Werten des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α) des Kristalls, zeigen die gemessenen Parameter nur geringe Abweichungen zu konventionellen Kaliumniobat. Die Temperaturabhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ und die Winkelakzeptanz bezüglich Variation des Polarwinkels $\Delta\theta_{int}$ sind innerhalb der Messgenauigkeit identisch mit den Werten für herkömmliches Kaliumniobat. Das Wellenlängenakzeptanzbandbreiten-Längenprodukt $\Delta\lambda \cdot L$ an einer guten Stelle des Kristall ist minimal kleiner (0,008 nm·cm) als das für KNbO₃. Die geringe Abweichung von dem für KNbO₃ bestimmten Mittelwert und die kleine Differenz zu den minimalen Werten, die für KNbO₃ bestimmt wurden, deuten darauf hin, dass der Wert von (0,081 ± 0,003) nm·cm auf Inhomogenitäten innerhalb des Kristalls zurückzuführen ist. Die Abweichungen des Winkelakzeptanzbandbreiten-Längenprodukts bezüglich Variation des Azimutwinkels $\Delta\phi \cdot L$ und die Variation des Temperaturakzeptanz-Längenprodukts $\Delta T \cdot L$ sind zum einen auf die schlechte Qualität des Materials mit veränderter Stöchiome-

trie zurückzuführen. Andererseits werden in [Bi92] keine Aussagen über die Genauigkeit der Messungen und die Qualität der Kristalle gemacht. Dies erschwert eine Einschätzung über die tatsächlichen Abweichungen der Eigenschaften zu denen von KNbO₃.

Die deutlichsten Abweichungen, die nicht alleine auf die Qualität der Kristalle zurückzuführen sind, wurden bezüglich der Phasenangepasstemperatur T_{PM} für Frequenzverdopplung der Strahlung bei $\lambda = 860$ nm und für die Phasenangepasstwellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur bestimmt. Die Differenz der Phasenangepasstemperatur T_{PM} zwischen S-KNbO₃ und KNbO₃ beträgt 3 °C und steigt in den inhomogenen Bereichen des Kristalls sogar noch an. Legt man die bei dem in verschiedenen Konzentrationen von Lithium zu Niob Ionen züchtbaren Kristall LiNbO₃ gemachten Erfahrungen zugrunde [WC96], so deuten diese Ergebnisse auf eine Variation der Stöchiometrie hin. Ein durch das Lösungsmittel Rb₂O verursachter Einbau von Rubidium in das Material S-KNbO₃ ist unwahrscheinlich [Ry04]. Weshalb Rubidium als Ursache für die Variation der Phasenangepasstwellenlänge und der Phasenangepassttemperatur nahezu ausgeschlossen werden kann.

Um an dieser Stelle konkretere Aussagen über die Ursache für die Abweichungen der Phasenangepassttemperatur und Wellenlänge oder um im besonderen Aussagen über das tatsächliche Verhältnis von Kalium zu Niob Ionen machen zu können, wäre eine Kalibrierung mit verschiedenen Kristallen mit unterschiedlicher Konzentration notwendig.

Bezüglich der untersuchten Größen zeigt das Material S-KNbO₃ keinerlei Vorteile im Vergleich zu KNbO₃. Die größere Absorption im sichtbaren Spektralbereich und die geringere Wellenlängenakzeptanz stellen ebenso wie die geringe Doppelbrechungshomogenität Nachteile des untersuchten Kristalls dar. Mit den deutlichen Abweichungen der Phasenangepassttemperatur konnte ein Indiz für die veränderte Stöchiometrie gefunden werden.

Zur genauen Beurteilung des Materials wären allerdings Kristalle höherer Qualität und chemisch genau bekannter Zusammensetzung notwendig.

4.3 Charakterisierung von Wismutborat BiB_3O_6

4.3.1 Allgemeine Bemerkungen zu Wismutborat BiB_3O_6

Der Kristall Wismutborat BiB_3O_6 wurde erstmals im Jahre 1982 von J. Liebertz [Li82] erfolgreich gezüchtet. Die erste Züchtung des seit 1962 bekannten Kristalls in optisch guter Qualität gelang wegen des sehr aufwendigen Züchtungsverfahrens erst 1999 [Be99].

Von P. Becker et al. [Be99] wurden Kristalle mit Abmessungen von $(20 \cdot 30 \cdot 30 \text{mm}^3)$ während einer Züchtungsdauer von 3 Wochen hergestellt. Die Grundlage für die Züchtung bildet eine stöchiometrische Schmelze hoher Viskosität bestehend aus B_2O_3 und Bi_2O_3 . Wegen der stark unterschiedlichen Dichten dieser Ausgangsstoffe sind spezielle Vorbehandlungen der Schmelze notwendig. Neben der Viskosität ist auch das asymmetrische Wachstum Ursache dafür, dass bei dem von P. Becker et al. [Be99] entwickelten top seeded solution growth Verfahren der Kristall weder gedreht noch gezogen werden kann. Dies würde ein Abbrechen des Impflings verursachen. Die Temperatur der Schmelze beträgt ca. 726°C und wird während der Züchtung langsam abgesenkt.

Wismutborat BiB_3O_6 ist bei Raumtemperatur biaxial. Der Kristall hat eine monokline Kristallstruktur, die durch sich abwechselnde Schichten von Boratgruppen und Wismutgruppen gebildet wird. Die Gruppen sind parallel (001) aufgebaut (siehe J. Fröhlich [Fr84]). Die Boratgruppe bildet ein zweidimensionales Netz von trigonal und tetraedrisch koordinierten Einheiten im Verhältnis 2:1. Auf Grund der Zugehörigkeit von Wismutborat zur Kristallklasse 2 zeigt der Kristall Enantiomorphie. Er kann daher in rechts- und in linkshändiger Form kristallisieren. Der in dieser Arbeit verwendeten Wismutborat Kristall ist ein rechtshändiger Kristall.

Die Gitterparameter von Wismutborat sind $a = 7,116 \cdot 10^{-10}$ m, $b = 4,993 \cdot 10^{-10}$ m, $c = 6,508 \cdot 10^{-10}$ m und $\angle ac = \beta = 105,62^\circ$. Die Abbildung 4.18 zeigt das mit unpolarisierter Strahlung gemessene Transmissionsspektrum von Wismutborat (siehe [He00]). Einer der Vorteile des Materials ist die hohe Transparenz im ultravioletten Spektralbereich bis zu einer Wellenlänge von 286 nm (siehe Abbildung 4.18).

Die Abhängigkeit der Brechungsindizes von der Wellenlänge kann durch die Sellmeiergleichung folgender Form beschrieben werden:

$$n^2(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} - D\lambda^2 \quad (4.4)$$

Die entsprechenden Sellmeierkoeffizienten sind in der Tabelle 4.8 zusammengefasst. Abbildung 4.19 sind die aus Gleichung 4.4 berechneten Dispersionskurven dargestellt.

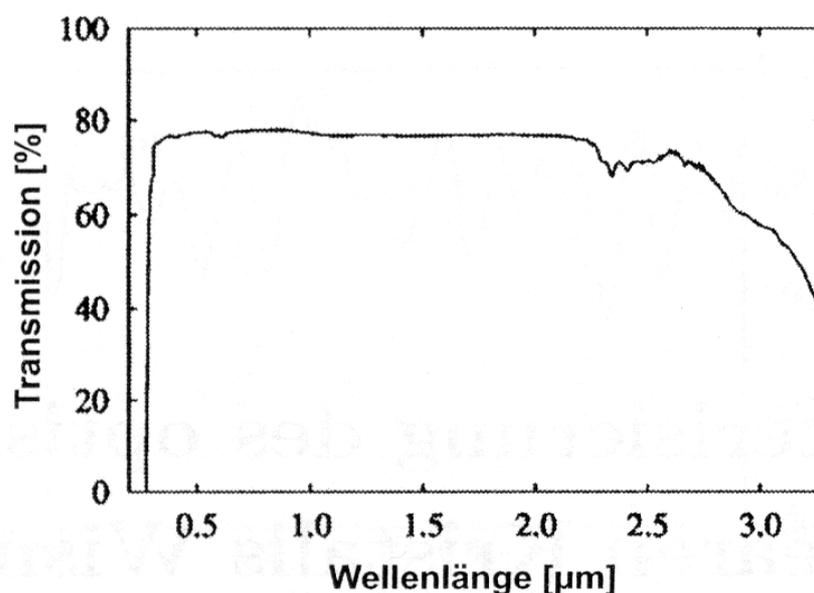


Abbildung 4.18: Das Transmissionsspektrum von BiB_3O_6 (Quelle: [He00]) Vorteil dieses Materials ist die hohe Transparenz im ultravioletten Spektralbereich bis zu Wellenlängen von 286 nm.

Der Tensor der optischen Nichtlinearitäten von Wismutborat hat die Form:

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{34} & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$$

Die Koeffizienten d_{ij} sind in der Tabelle 4.9 zusammengefasst. Sie wurden nach der „Maker fringe“ Methode [Ma62] bei einer Wellenlänge von 1079,5 nm von H. Hellwig et al. [He00]

	A	B	C	D
n_x	3,0740(3)	0,0323(1)	0,0316(3)	0,01337(6)
n_y	3,1685(3)	0,0373(1)	0,0373(1)	0,01750(8)
n_z	3,6545(4)	0,0511(2)	0,0371(3)	0,0226(1)

Tabelle 4.8: Sellmeierkoeffizienten für Wismutborat BiB_3O_6 (Quelle: [He00])

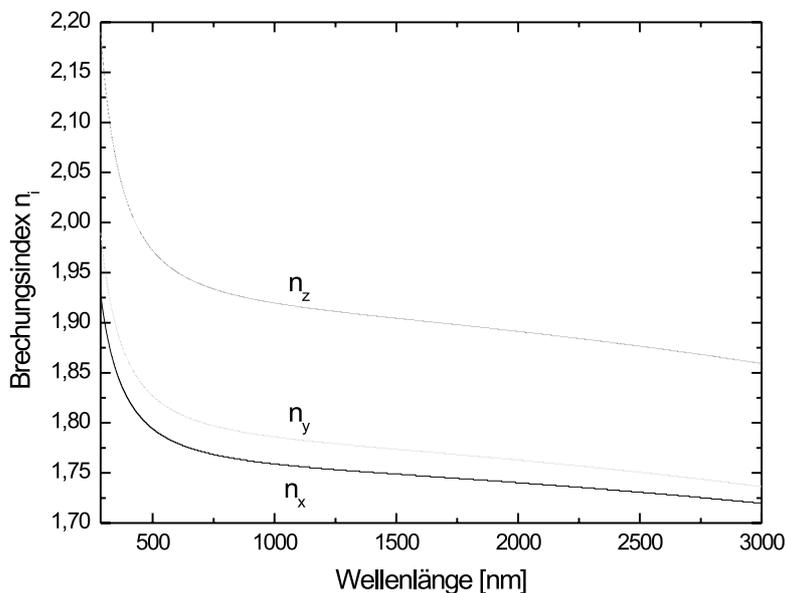


Abbildung 4.19: Die Wellenlängenabhängigkeit der Brechungsindizes von Wismutborat BiB_3O_6 für Polarisationsrichtung entlang der drei Hauptachsen. Berechnet mit den Sellmeiergleichungen von [He00]

bestimmt. Die Zerstörschwelle von Wismutborat liegt bei $200 \frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$ [We02].

Dieses Material ist erst seit kurzer Zeit in hinreichend guter optischer Qualität verfügbar, daher wurden bisher nur wenige Untersuchungen an diesem Material durchgeführt. Verdopplungsexperimente wurden in erster Linie bei den Wellenlängen 1064 nm, 964 nm und 1342 nm durchgeführt.

V.Wesemann [We02] untersuchte BiB_3O_6 Kristalle mit einem Schnittwinkel von $\theta = -11^\circ$

d_{14}	d_{16}	d_{21}	d_{22}	d_{23}	d_{25}	d_{34}	d_{36}
$\pm 2,4(3)$	$\pm 2,8(2)$	$\pm 2,3(2)$	$\pm 2,53(8)$	$\pm 1,3(1)$	$\pm 2,3(2)$	$\pm 0,9(1)$	$\pm 2,4(3)$

Tabelle 4.9: Werte der optischen Nichtlinearitäten für Wismutborat BiB_3O_6 in $[\frac{\text{pm}}{\text{V}}]$.
Quelle: [He00]

und $\theta = 11^\circ$, für die kritische Phasen Anpassung der Wellenlänge 1064 nm. Im Rahmen dieser Arbeit wurden auch Homogenitätsuntersuchungen mittels eines Schlierenmessplatzes durchgeführt. Bei der Wellenlänge 946 nm wurden Untersuchungen von C. Czeranowsky [Cz03] durchgeführt. Die nichtkritische Phasen Anpassung bei 1342 nm wurde von M. Peltz [Pe03] bei einer Temperatur von 262,6 °C entlang der z-Achse realisiert.

Die Untersuchungen haben gezeigt, dass es sich bei BiB_3O_6 um ein attraktives neues Material zur Frequenzkonversion handelt. Wegen der geringen Absorption im kurzwelligen Spektralbereich und der großen optisch nichtlinearen Koeffizienten sollte BiB_3O_6 auch ein interessantes Material für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm sein. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmals ein Kristall für die Konversion dieser Wellenlänge untersucht.

4.3.2 Charakterisierung von Wismutborat BiB_3O_6 für Frequenzverdopplung der Strahlung 860 nm

Für diese Arbeit stand erstmals ein Wismutboratkristall BiB_3O_6 für die Frequenzkonversion der Strahlung von 860 nm zur Verfügung. Der von der chinesischen Firma Crystech gezüchtete Kristall hatte einen Schnittwinkel von $\theta = 155,9^\circ$ und $\phi = 90^\circ$ für die kritisch phasenangepasste Frequenzverdopplung der Strahlung 860 nm in der yz-Ebene. Die Apertur des Kristalls XNE01001 war $(3 \cdot 3) \text{ mm}^2$ bei einer Länge von 5 mm. Der Kristall war antireflex beschichtet für die Fundamentalwellenlänge 860 nm und die zweite Harmonische 430 nm.

Analog zu den Messungen an KNbO_3 (siehe Kapitel 4.1.2) und den Messungen an S- KNbO_3 (siehe Kapitel 4.2) wurden für den Kristall BiB_3O_6 die Akzeptanzen bezüglich der Variation der Wellenlänge $\Delta\lambda$, des Phasen Anpassungswinkels $\Delta\theta$ und der Temperatur ΔT bestimmt. Ferner wurden die Variation des Phasen Anpassungswinkels und der Phasen Anpassungswellenlänge mit der Temperatur ($\frac{d\theta_{PM}}{dT}$ bzw. $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$) untersucht. Außerdem wurde räumlich aufgelöst die Phasen Anpassungswellenlänge λ_{PM} bei senkrechtem Einfall der Strahlung bestimmt und die Temperatur T_{PM} bei einer Phasen Anpassungswellenlänge von 860 nm.

Bei den Untersuchungen mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Aufbau konnte der Homogenitätsparameter α nicht bestimmt werden. Die Ursache hierfür war technisch bedingt. Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite und somit auch die Akzeptanzkurve von BiB_3O_6 ist sehr breit, weshalb die spektrale Breite des verwendeten Titansaphirlasers nicht ausreichte, um die gesamte Akzeptanzkurve zu bestimmen. Ferner hatte der Ausgangsspalt des zur spektralen Zerlegung der Fundamentalstrahlung verwendeten Spektrometers eine maxi-

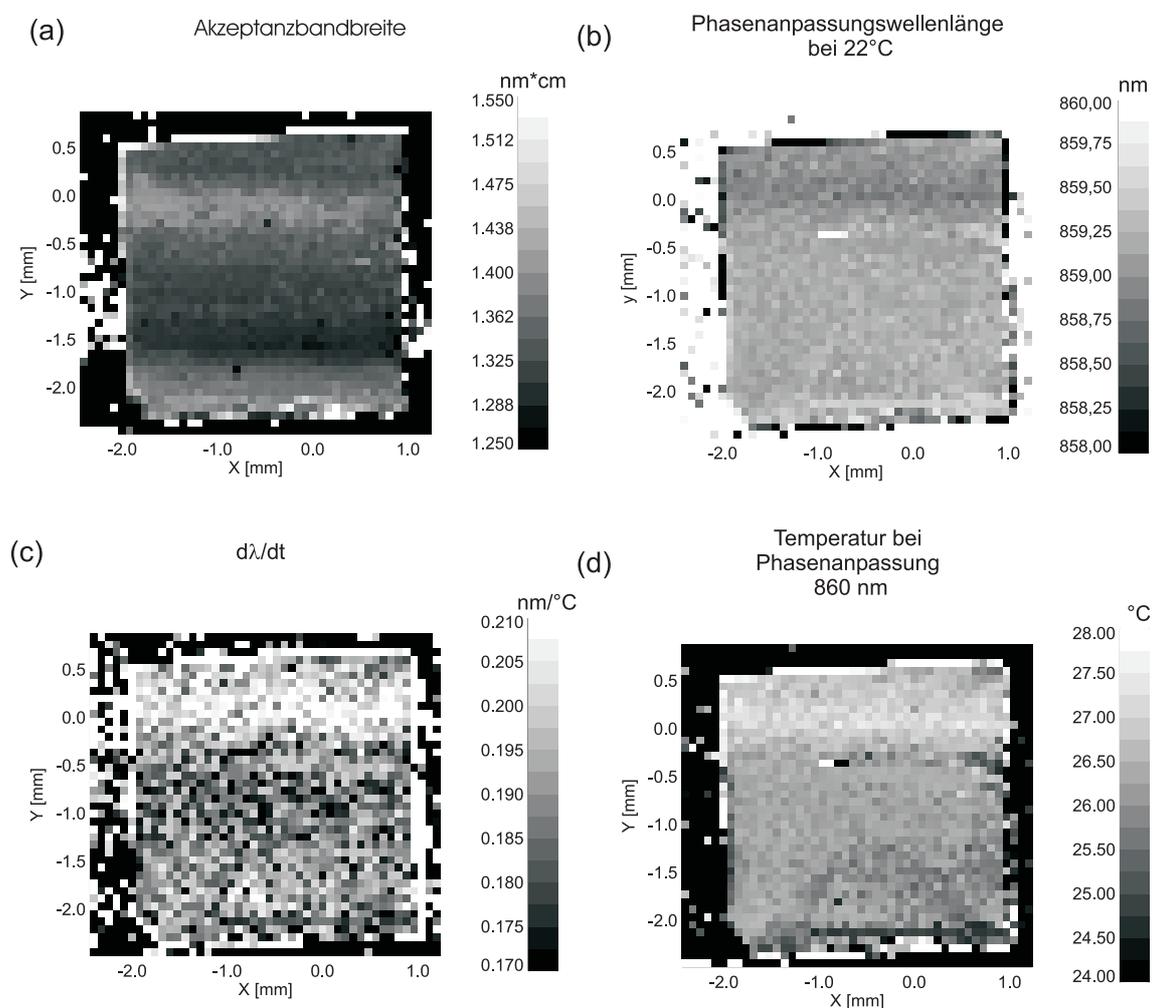


Abbildung 4.20: Messungen des Kristalls XNE01001. Abbildung (a) den die Wellenlängenakzeptanzbandbreite. Abbildung (b) zeigt die räumlich aufgelöste Messung der Phasenangepassungswellenlänge bei einer Temperatur von 22 °C. In Abbildung (c) ist die Variation der Phasenangepassungswellenlänge λ_{PM} mit der Temperatur dargestellt und in Abbildung (d) des Kristalls XNE01001 ist die Temperatur innerhalb des Kristalls zur Phasenangepassung bei exakt 860 nm dargestellt.

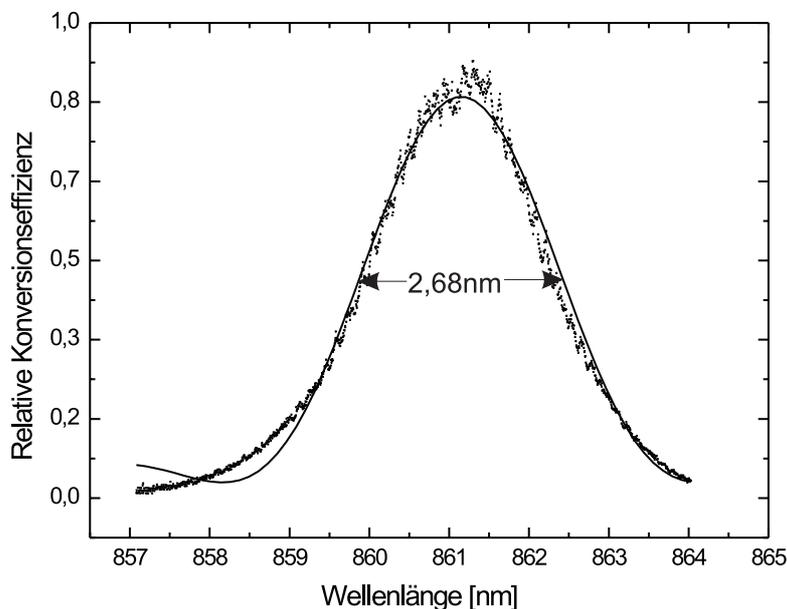


Abbildung 4.21: Relative Konversionseffizienz in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Das Wellenlängenakzeptanz-Längenprodukt beträgt $1,34 \text{ nm}\cdot\text{cm}$.

male Öffnung von 2 mm , weshalb maximal ein Ausschnitt von ca. $3,8 \text{ nm}$ auf die CCD-Zeile abgebildet werden konnte, was ebenfalls zu gering für BiB_3O_6 ist.

Wellenlängenakzeptanzbandbreite

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite für das Material Wismutborat wurde mit dem im Kapitel 3.3 beschriebenen Aufbau bestimmt. In Abbildung 4.21 ist exemplarisch die Messkurve für einen Punkt des Kristalls dargestellt. An die Messkurve wurde eine sinc^2 -Kurve angefitet und so eine auf die Kristalllänge normierte Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda \cdot L$ von $1,34 \text{ nm}\cdot\text{cm}$ bestimmt. Deutlich ist eine Asymmetrie der gemessenen Akzeptanzkurve zu sehen, die für Inhomogenitäten in der Doppelbrechung und somit auf einen nicht perfekten Kristall hinweisen.

In Abbildung 4.20 (a) ist die orts aufgelöste Messung der Wellenlängenakzeptanzbandbreite dargestellt. Der Mittelwert über 1056 Messpunkte beträgt $(1,337 \pm 0,034) \text{ nm}\cdot\text{cm}$. Das Minimum hatte einen Wert von $1,245 \text{ nm}\cdot\text{cm}$ und das Maximum der Wellenlängenakzeptanz-

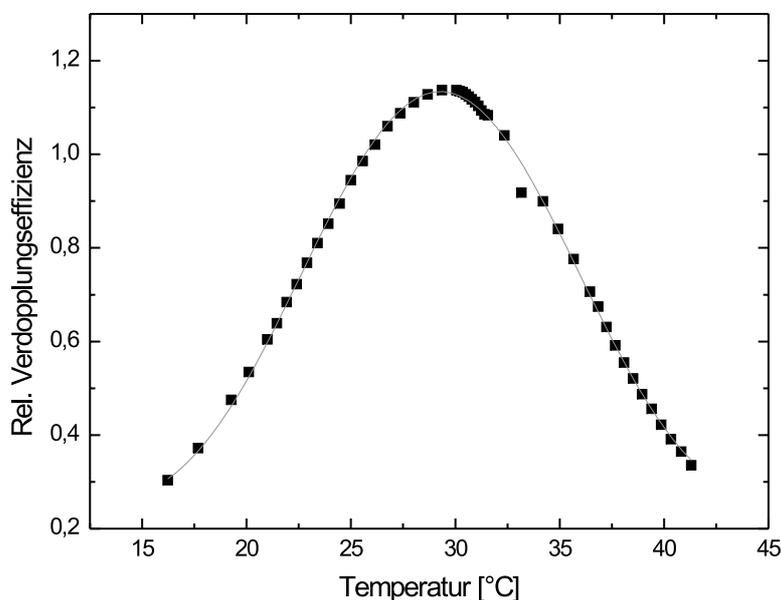


Abbildung 4.22: Relative Konversionseffizienz in Abhängigkeit der Kristalltemperatur. Die Temperaturakzeptanz von BiB_3O_6 beträgt $7,145 \text{ K}\cdot\text{cm}$

tanzbandbreite des Kristalls lag bei $1,493 \text{ nm}\cdot\text{cm}$.

Führt man analog zu Gleichung (2.46) eine Taylorreihenentwicklung durch, so folgt für den Differentialkoeffizienten:

$$\left. \frac{d\Delta n}{d\lambda} \right|_{\lambda=\lambda_{PM}} = 2,8588 \cdot 10^4 L^{-1} \quad (4.5)$$

Die Wellenlängenakzeptanzbandbreite von BiB_3O_6 ist im Vergleich zu KNbO_3 und S-KNbO_3 sehr groß, hier ist einer der Hauptvorteile des Materials, insbesondere für die Verdopplung von kurzen Laserimpulsen zu suchen.

Temperaturakzeptanz

Die Temperaturakzeptanz wurde mittels des in Kapitel 3.2 beschriebenen Aufbaus durch Variation der Kristalltemperatur bestimmt. In der Abbildung 4.22 ist der Verlauf der Akzeptanzkurve in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt.

Die auf die Kristalllänge normierte Temperaturakzeptanzbandbreite besitzt einen Wert von $\Delta T \cdot L = (7,145 \pm 0,007) \text{ K}\cdot\text{cm}$.

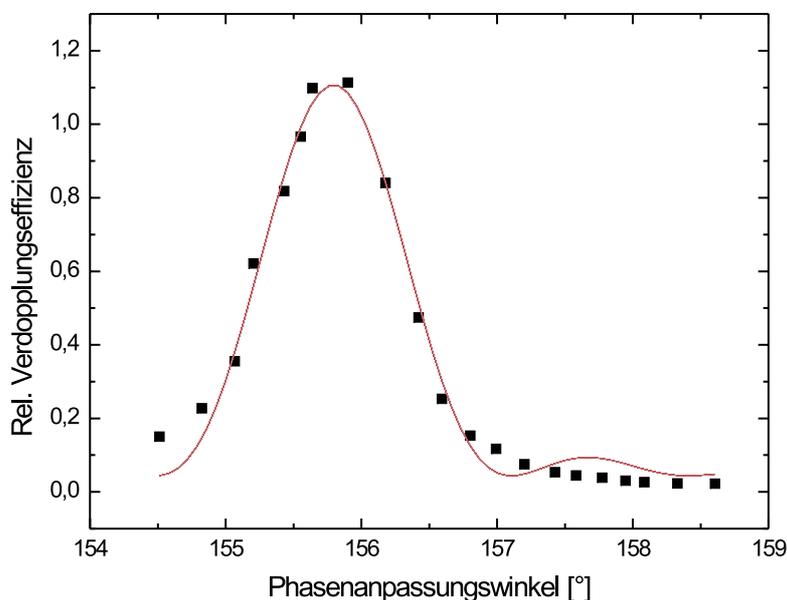


Abbildung 4.23: Relative Konversionseffizienz in Abhängigkeit des Phasenanpassungswinkels. Das Wellenlängenakzeptanzbandbreite-Längenprodukt von BiB_3O_6 beträgt $(0,583 \pm 0,030) \text{ }^\circ \cdot \text{cm}$

Führt man eine Taylorreihenentwicklung der Differenz der Brechungsindizes nach der Temperatur durch, so folgt für den Differentalkoeffizienten $\frac{d\Delta n}{dT}|_{T=T_{PM}} = \frac{\lambda}{2,25 \cdot L} \frac{1}{\Delta T}$, mit der Fundamentalwellenlänge λ : $\frac{d\Delta n}{dT}|_{T=T_{PM}} = (1,070 \pm 0,001) \cdot 10^{-5} \text{ L}^{-1}$.

Das Temperaturakzeptanzbandbreite-Längenprodukt ist im Vergleich zu dem von KNbO_3 sehr groß. Entsprechend müssen an die Temperaturstabilität des Kristalls bei der Frequenzverdopplung nur geringe Anforderungen gestellt werden.

Akzeptanz des Phasenanpassungswinkels $\Delta\theta$

Abbildung 4.23 zeigt die Ergebnisse der Messung zur Bestimmung der Akzeptanz bezüglich Variation des Phasenanpassungswinkels $\Delta\theta$. Die Messung wurde ebenfalls mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Aufbau durchgeführt. Zur Bestimmung des Winkels wurde ein zweiter Diodenlaser im roten Spektralbereich verwendet. Die Reflexion des Laserstrahls auf der Oberfläche des Kristalls wurde wie in Abschnitt 4.2 beschrieben zur Win-

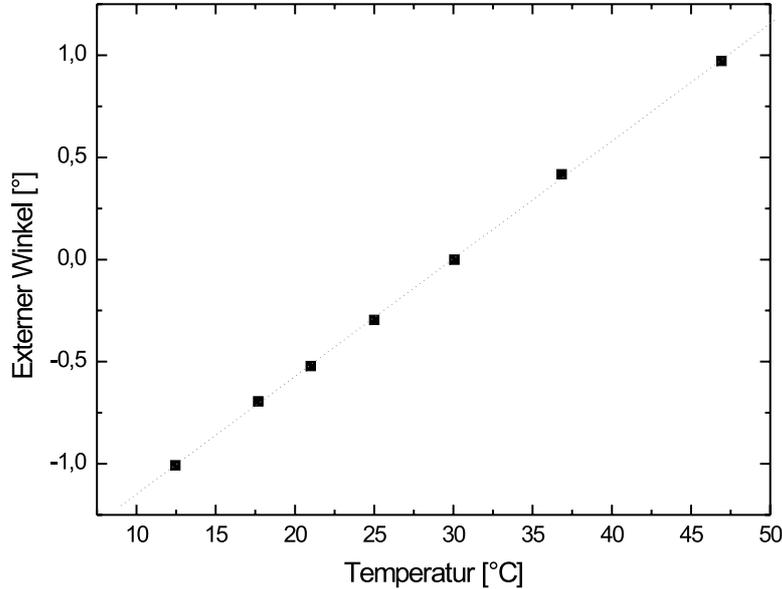


Abbildung 4.24: Abhängigkeit des Phasenanpassungswinkels von der Temperatur in Wismutborat BiB_3O_6 . Die punktierte Linie ist ein linearer Fit an die gemessenen Werte. Der Winkel variiert mit $(0,05758 \pm 0,00042) \frac{^\circ}{\text{K}}$.

kelbestimmung genutzt. Die an die Messung angefittete sinc^2 Kurve besitzt eine Halbwertsbreite von $(1,17 \pm 0,06) ^\circ$. Dies entspricht einer normierten Akzeptanzbandbreite von $(0,58 \pm 0,03) ^\circ \cdot \text{cm}$. Im Bogenmaß entspricht dies einer Akzeptanzbandbreite von $(10,2 \pm 1,0) \text{ mrad} \cdot \text{cm}$. Für den internen Phasenanpassungswinkel folgt mit diesen Werten eine normierte Akzeptanzbandbreite von $(0,32 \pm 0,02) ^\circ \cdot \text{cm}$ bzw. $(5,6 \pm 0,3) \text{ mrad} \cdot \text{cm}$ im Bogenmaß. Für den Differentialkoeffizienten $\frac{\partial \Delta n}{\partial \theta}$ folgt mit der gemessenen Akzeptanzbandbreite: $\frac{d\Delta n}{d\theta}|_{\theta=\theta_{PM}} = (1,37 \pm 0,07) \cdot 10^{-2}$.

Wie in der Abbildung 4.21 ist auch in dieser Messkurve eine Asymmetrie erkennbar, die auf Inhomogenitäten des Kristalls hinweisen.

Temperaturabhängigkeit des Phasenanpassungswinkels $\frac{d\theta_{PM}}{dT}$

Um die Abhängigkeit des Phasenanpassungswinkels von der Temperatur zu bestimmen wurde der gleiche modifizierte Aufbau wie bei der Bestimmung der Winkelakzeptanzband-

breite benutzt. Es wurde der externe Winkel als Winkel zwischen der Oberflächennormale und der Einfallrichtung des roten Diodenlaserstrahls verwendet. Die Messung erfolgte, in dem die Temperatur des Kristalls variiert und anschließend der Winkel so verändert wurde, dass maximale Frequenzkonversion erreicht wurde. Die Messung wurde für verschiedene Temperaturen durchgeführt. Abbildung 4.24 zeigt die gewonnen Messergebnisse. Es wurde eine Gerade an die Messergebnisse angepasst. Eine lineare Regression liefert den Wert für den Differentialkoeffizienten $\frac{d\theta_{PM}}{dT}$, der die Abhängigkeit des Phasenanpassungswinkels von der Temperatur angibt. Der Wert des Quotienten $\frac{d\theta_{PM}}{dT}$ ist $(0,05758 \pm 0,00042) \frac{\circ}{\text{K}}$. Der Betrag des Phasenanpassungswinkels nimmt mit steigender Temperatur zu [We04]. Um nichtkritische Phasenanpassung in Wismutborat für eine Wellenlänge von 860 nm zu ermöglichen, müsste die Kristalltemperatur rein rechnerisch entweder um $410 \text{ }^\circ\text{C}$ abgekühlt, oder um $1144 \text{ }^\circ\text{C}$ erhöht werden (Schmelztemperatur von Wismutborat $700 \text{ }^\circ\text{C}$). Damit ist es im Gegensatz zu Kaliumniobat physikalisch nicht möglich, in Wismutborat durch Änderung der Kristalltemperatur nichtkritische Phasenanpassung für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm zu erreichen.

Phasenanpassungswellenlänge λ_{PM} bei Raumtemperatur ($22 \text{ }^\circ\text{C}$)

Wie in den Abschnitten 4.1.2 und 4.2 beschrieben, wurde auch für Wismutborat die Phasenanpassungswellenlänge bei $22 \text{ }^\circ\text{C}$ und senkrechtem Einfall der Fundamentalstrahlung bestimmt. Dazu wurden 4 Messungen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Das Ergebnis folgt als Mittelwert über 1056 Punkte im Kristall. Es ergibt sich ein Mittelwert von $859,2 \text{ nm}$ mit einer Standardabweichung von $0,2 \text{ nm}$. Das Minimum der Messung liegt bei einem Wert von $858,7 \text{ nm}$ und das Maximum bei $862,7 \text{ nm}$. Der Wert bei senkrechtem Einfall liegt sehr nahe bei dem erwarteten Wert von 860 nm , was für die Qualität des Kristallzuschnitts spricht.

Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$

Die Variation der Phasenanpassungswellenlänge mit der Temperatur hat bei Mittelung über den Kristall einen Wert von $0,19 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ bei einer Standardabweichung von $0,02 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ mit einem Minimum von $0,07 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$ und einem Maximum von $0,23 \frac{\text{nm}}{\text{K}}$.

Der Betrag $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ ist nur halb so groß wie der für KNbO_3 bestimmte Wert. Das Material BiB_3O_6 ist also deutlich besser als KNbO_3 für Systeme mit geringer Temperaturstabilität geeignet.

Messgröße	gemessen
$\Delta\lambda \cdot L$ [nm·cm]	$1,34 \pm 0,03$
$\Delta T \cdot L$ [K·cm]	$7,145 \pm 0,007$
$\Delta\theta_{int} \cdot L$ [°·cm]	$0,32 \pm 0,06$ $(5,6 \pm 1)\text{mrad} \cdot \text{cm}$
$\frac{d\theta_{PM}}{dT}$ [$\frac{^\circ}{\text{K}}$]	$(0,0576 \pm 0,0004)$
$\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$ [$\frac{\text{nm}}{\text{K}}$]	$0,191 \pm 0,017$
T_{PM} @ 860 nm [°C]	$26,41 \pm 2,07$
λ_{PM} bei 22 °C [nm]	$859,17 \pm 0,21$

Tabelle 4.10: Eigenschaften von BiB_3O_6 für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm

Phasenanpassungstemperatur T_{PM} für eine zu konvertierende Wellenlänge von 860 nm

Um bei senkrechtem Einfall Phasenanpassung für die Erzeugung der zweiten Harmonischen zu erhalten, kann die Temperatur des Kristalls verändert werden. Die Phasenanpassungstemperatur beträgt bei einer Wellenlänge von 860 nm $T_{PM} = (26,41 \pm 2,07) \text{ }^\circ\text{C}$.

4.3.3 Vergleich zwischen Wismutborat und Kaliumniobat

In Tabelle 4.10 sind die für den optisch nichtlinearen Kristall BiB_3O_6 gewonnenen Ergebnisse zusammengefasst. Die Daten zum Vergleich mit KNbO_3 sind in der Tabelle 4.7 zusammengestellt.

Der Doppelbrechungshomogenitätsparameter α konnte für diesen Kristall nicht bestimmt werden. Die Asymmetrien der Kurven in den Abbildungen 4.21 und 4.23 weisen jedoch auf Inhomogenitäten in der Doppelbrechung hin. Die ermittelten Werte entsprechen folglich nicht denen eines perfekten BiB_3O_6 Kristalls, sind aber für einen Vergleich durchaus geeignet.

Ein Vorteil von BiB_3O_6 für Frequenzverdopplung der Strahlung bei einer Wellenlänge 860 nm ist die sehr große Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$. Diese macht das Material interessant für die Frequenzkonversion ultrakurzer Laserimpulse. Bei der Frequenzkonversion ultrakurzer spektral breiter Laserimpulse ist es wichtig, ein möglichst breites Frequenzspektrum zu konvertieren. Nur so ist es möglich, ebenfalls kurze frequenzkonvertierte

Impulse zu erzeugen. Hier dürfte mit einer 15 mal größeren Wellenlängenakzeptanzbandbreite von BiB_3O_6 im Vergleich zu KNbO_3 ein großer Vorteil zu sehen sein.

Ein weiterer Vorteil BiB_3O_6 im Vergleich zu KNbO_3 ergibt sich aus der großen Temperaturakzeptanzbandbreite ΔT , sowie der geringen Variation der Phasenanpassungswellenlänge mit der Temperatur $\frac{d\lambda_{PM}}{dT}$. Für BiB_3O_6 müssen bei Anwendungen, im Vergleich zu KNbO_3 , nur geringe Anforderungen an die spektrale Stabilität der Quelle der Fundamentalstrahlung und die Kristalltemperatur gestellt werden.

BiB_3O_6 besitzt für die Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm einige Nachteile gegenüber KNbO_3 .

Ein Nachteil von BiB_3O_6 im Vergleich zu KNbO_3 ist sicherlich, dass es sich bei Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm um kritische Phasenanpassung handelt (eine nichtkritische Phasenanpassung ist wie gezeigt wurde nicht möglich). Der so vorhandene „walk-off“ reduziert die Effizienz der Frequenzkonversion.

BiB_3O_6 besitzt große optisch nichtlineare Koeffizienten (siehe Tabelle 4.9). Für den in dieser Arbeit verwendeten Kristall mit einem Schnittwinkel von $\theta = 155,9^\circ$ ergibt sich mit den Werten in Tabelle 4.9 ein berechneter Wert für den effektiven nichtlinearen Koeffizienten von $d_{eff} = 2,1 \frac{\text{pm}}{\text{V}}$. Bei nichtkritischer Phasenanpassung in Kaliumniobat ist der entscheidende optisch nichtlineare Koeffizient für Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm der Koeffizient d_{31} . In der aktuellsten Veröffentlichung, in der die optisch nichtlinearen Koeffizienten von Kaliumniobat untersucht wurden, wird dieser Koeffizient zu $d_{31} = -11,3 \frac{\text{pm}}{\text{V}}$ bestimmt [Ro92]. Der Betrag des optisch nichtlinearen Koeffizienten von BiB_3O_6 ist also deutlich kleiner als der von KNbO_3 , was einen Nachteil von BiB_3O_6 für die Frequenzverdopplung von 860 nm Strahlung darstellt.

Das Material BiB_3O_6 stellt eine Alternative zu KNbO_3 für die Frequenzverdopplung von 860 nm Strahlung dar, wenn für die jeweilige Anwendungen große Wellenlängenakzeptanzbandbreiten, oder eine geringe Temperaturabhängigkeit erforderlich sind.

Kapitel 5

Charakterisierung von QPM-Kristallen

Die Demonstration der Domäneninversion in Ferroelektrika durch ein äußeres elektrisches Feld Anfang der 90er Jahre war ein Meilenstein auf dem Gebiet der Quasiphasenanpas-

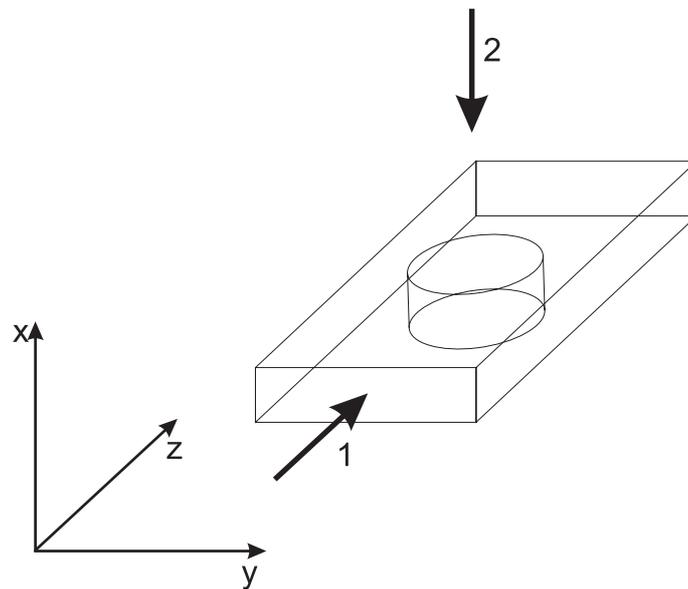


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung eines Kristalls zur Quasiphasenanpassung mit angedeutetem gepoltem Bereich. Der mit „1“ gekennzeichnete Kristall symbolisiert die Strahlausbreitungsrichtung für die Konversionseffizienz. Der Pfeil „2“ stellt die Strahlausbreitungsrichtung für Schlierenuntersuchungen der Kristalle dar.

sung. Bei der Frequenzkonversion von Laserstrahlung hat die Technik der Quasiphasenanpassung einige Vorteile gegenüber der Doppelbrechungsphasenanpassung (vgl. Abschnitt 2.2.3). Die erzielbare Konversionseffizienz hängt jedoch wesentlich von der Homogenität der Mikrostrukturierung ab („Duty-Cycle“, fehlende Perioden). Zur Untersuchung der räumlichen Strukturen in QPM-Kristallen sind orts aufgelöste Messungen notwendig, anhand derer Aussagen über die Güte der Domäneninversion getroffen werden können. Die Aussagen können zur Weiterentwicklung und Optimierung der zur Domäneninversion genutzten Verfahren und der Kristalle genutzt werden.

In dieser Arbeit wurden zwei Verfahren entwickelt und verwendet, um die in Kristalle eingebrachten periodischen Strukturen zu untersuchen. Bei dem ersten Verfahren handelt es sich um die in Kapitel 3.3 vorgestellte Methode, in der mit ultrakurzen Laserimpulsen die Akzeptanzkurve eines Kristalls bestimmt wird. Das zweite Verfahren wird in Abschnitt 5.2 erstmals vorgestellt. Hierbei werden durch den elektrooptischen und den piezoelektrischen Effekt verursachte Strahlablenkungen mit dem Schlierenmessplatz bestimmt (vgl. Abschnitt 3.1). Mit diesen Ablenkungswinkeln sind Rückschlüsse auf Kristalleigenschaften möglich.

In Abbildung 5.1 sind die jeweiligen Untersuchungsrichtungen für die beiden Verfahren schematisch dargestellt. Der mit „1“ markierte Pfeil repräsentiert die Richtung, in der sich die Strahlen während der Frequenzkonversionsexperimente in den Kristallen ausbreiten. Mit „2“ ist die Strahlausbreitungsrichtung gekennzeichnet, in welcher sich der Messstrahl bei den Schlierenuntersuchungen ausbreitet. In der Mitte des Kristalls ist symbolisch (rund) der gepolte Bereich dargestellt.

5.1 Charakterisierung mittels ultrakurzer Laserimpulse

Wie in Abschnitt 2.2.1 diskutiert, lassen sich für QPM - Kristalle Informationen über Fehler der periodischen Strukturen aus der Akzeptanzkurve gewinnen. Auch hier ist die Untersuchung mit spektral breiten ultrakurzen Lichtimpulsen besonders geeignet. Durch die hohen räumlichen Auflösungen, die mit diesem Verfahren ermöglicht werden, können sehr genau Informationen über die Position fehlender Domänen oder Fehler gewonnen werden. Exemplarisch wurde zur Demonstration der Eignung des Verfahrens ein periodisch gepolter mit MgO dotierter stöchiometrischer Lithiumtantalat Kristall (MgO:SLT) untersucht. Die im Kristall erzeugte Gitterperiode beträgt $\Lambda = 4,85 \mu\text{m}$ [Ze03]. Bei einer Kristalltemperatur von 29°C ermöglicht dieser Kristall quasiphasenangepasste Frequenzverdopplung von 908 nm Strahlung [Ze03].

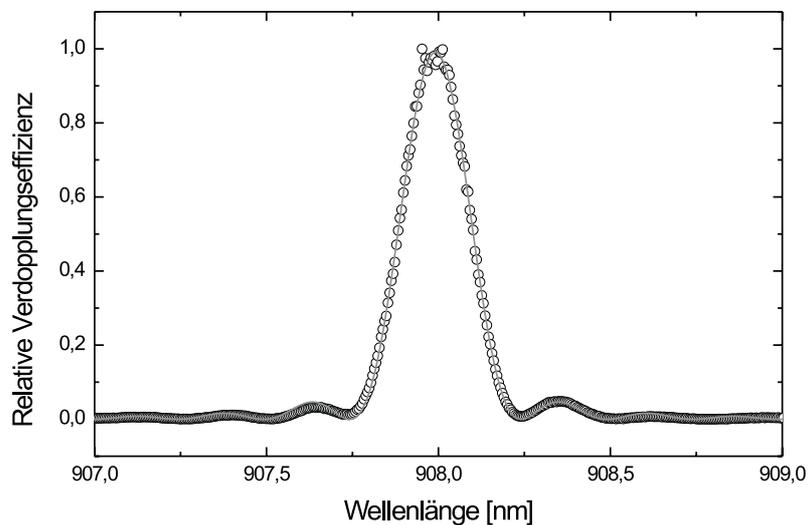


Abbildung 5.2: Relative Konversionseffizienz in Abhängigkeit der Wellenlänge, für Details siehe Text.

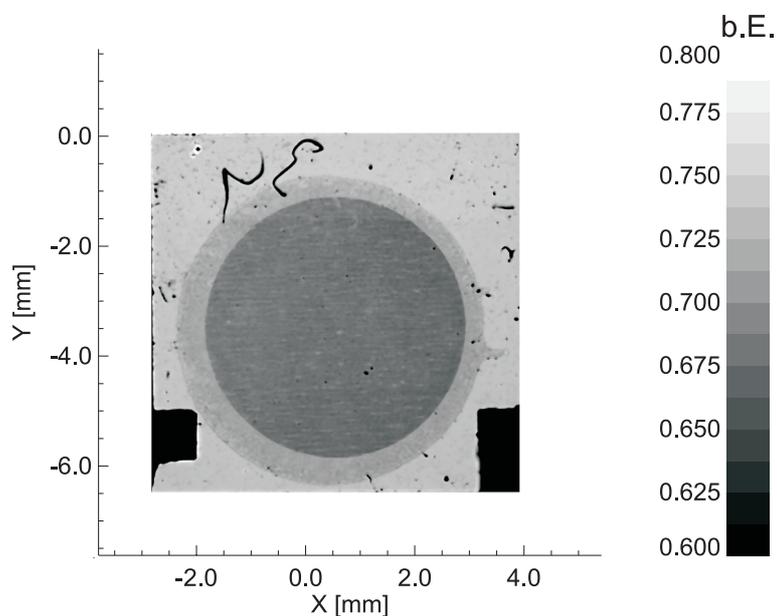


Abbildung 5.3: Transmissionsmessung eines QPM - Kristalls. Der Kristall wurde vorher angeätzt.

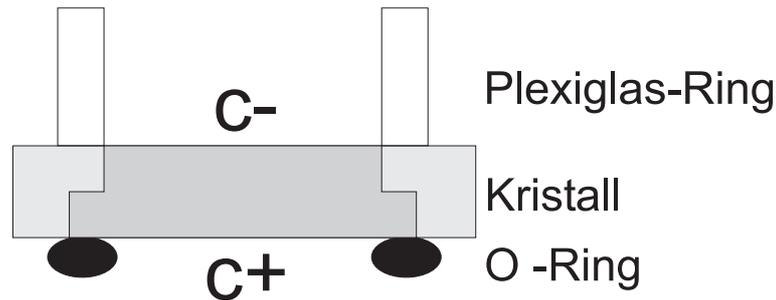


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung eines Kristalls in der Corona - Polungsapparatur.

In Abbildung 5.2 ist die relative Konversionseffizienz in Abhängigkeit von der Wellenlänge graphisch dargestellt. Die Akzeptanzkurve wurde in der Mitte des Kristalls ermittelt. An die experimentellen Daten wurde eine sinc^2 -Kurve (rot dargestellt) angepasst. Es ergibt sich eine Akzeptanzbandbreite von $\Delta\lambda = 0,24 \text{ nm}$, die sehr gut mit dem aus den Sellmeiergleichungen des Materials berechneten Wert übereinstimmt [Ze03]. Das Ergebnis lässt auf einen Kristall schließen, in dem die Domäneninversion mit gutem Erfolg durchgeführt wurde.

Bei der Auswertung der zweidimensionalen Untersuchungen des Kristalls muss berücksichtigt werden, dass der gepolte Bereich der in dieser Arbeit untersuchten Kristalle eine runde Form besitzt. Diese Form ist durch die Apparatur bedingt, die zur Domäneninversion im

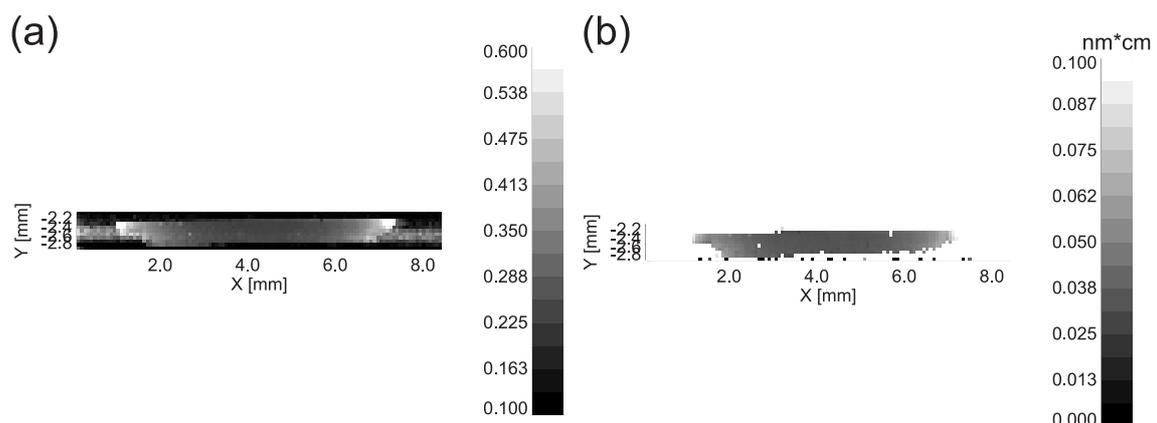


Abbildung 5.5: fs-Messung der effektiven Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ (Abbildung (a)) und der Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ (Abbildung (b)).

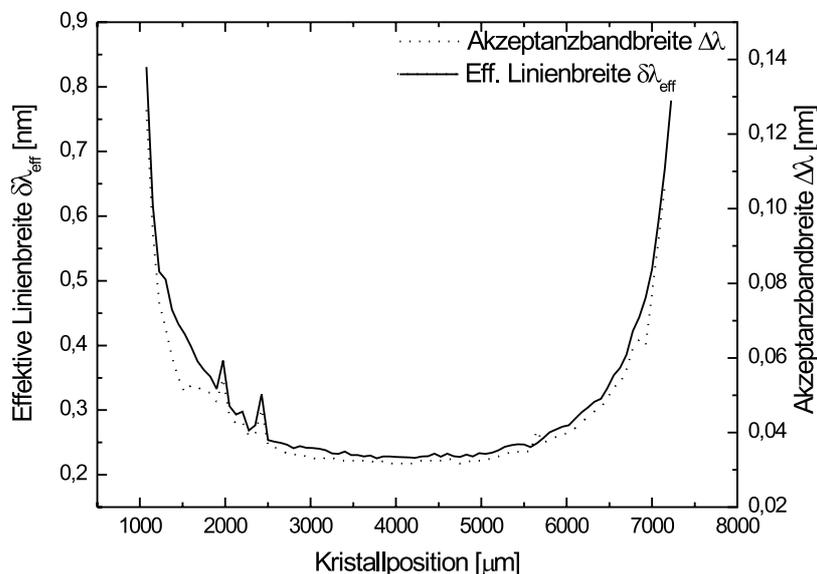


Abbildung 5.6: Schnitt durch die Messung der Akzeptanzbandbreite (gepunktete Kurve) und der effektiven Linienbreite. Der analoge Verlauf kann als fehlende Domänen am Rand der QPM-Struktur interpretiert werden.

elektrischen Feld verwendet wurde.

Der Kristall wurde zur Überprüfung der Polungsstruktur angeätzt [Ze03]. Bereiche unterschiedlicher spontaner Polarisierungen (unterschiedliche Domänen) besitzen verschiedene Ätzraten. Dadurch wird die Domänenstruktur in ein Höhenprofil überführt, die in Phasenkontrastuntersuchungen deutlich zu erkennen sind.

Auf Grund von Streuung sind die gepolten Bereiche, die entsprechend der in Abbildung 5.1 in Richtung „2“ durchgeführt wurden, deutlich zu erkennen.

Die Transmissionsmessungen wurden mit dem im Kapitel 3.1 beschriebenen Schlierenmessplatz durchgeführt. In Abbildung 5.3 ist die Transmissionsmessung des Kristalls dargestellt. Die Werte der Transmission sind linear in Grautönen kodiert. Die schwarzen Rechtecke innerhalb des Kristalls sind Teile des Kristallhalters. Innerhalb des Kristalls erkennt man drei Bereiche.

Der äußere Bereich hat die größte Transmission, hier fand keine Domäneninversion statt. Der innerste Bereich hat die geringste Transmission, hier wurde die Domäneninversion er-

folgreich durchgeführt. Durch das Anätzen wurde hier auf beiden Seiten des Kristalls eine Oberflächenstruktur erzeugt, die die Transmission durch Streuung erheblich reduziert.

Um diesen Bereich mit geringer Transmission befindet sich eine ringförmige Struktur, deren Transmission größer ist.

Der Kristall wurde in einer Corona-Entladung gepolt. In Abbildung 5.4 ist schematisch ein Kristall in der Polungsapparatur abgebildet. Bei dieser Polungsmethode wird die Inversion der ferroelektrischen Domänen durch ein elektrisches Feld eingeleitet. Durch das Umklappen der spontanen Polarisierungen entstehen Oberflächenladungen, die für den dauerhaften Erhalt der gepolten Struktur durch einen Stromfluss kompensiert werden müssen. Dazu treffen durch eine Corona-Entladung erzeugte Elektronen auf der c^- -Seite des Kristalls auf. Die Fläche, die von Elektronen getroffen werden kann, ist dabei scharf durch einen Plexiglas - Ring begrenzt. Auf der c^+ - Seite des Kristalls geschieht die Kompensation durch einen aluminiumbedampften O - Ring, der auf der c^+ -Seite des Kristalls aufliegt und den Kontakt zu vorher auf den Kristall aufgebrachten Metallelektroden herstellt. Da die Elektroden sich nahezu über den gesamten Kristall erstrecken und da sich der O-Ring durch das Andrücken (siehe Abbildung 5.4) verformt, ist der Bereich in dem der Ladungstransport stattfindet nicht so scharf begrenzt wie der Bereich, in dem die Elektronen auf der c^- - Seite auftreffen. Auf der c^+ - Seite des Kristalls wachsen die Domänenstrukturen deshalb in einem größeren Bereich als auf der gegenüberliegenden c^- - Seite.

Wie in Abbildung 5.4 skizziert, bildet sich um den Bereich in dem die Domäneninversion über die gesamte Kristallhöhe erfolgreich durchgeführt wurde, ein weiterer Bereich in dem die Domänenstruktur nicht über die gesamte Höhe durchgeführt wurde.

Durch Anätzen der beiden Oberflächen entsteht so in diesem ringförmigen Bereich nur auf einer Kristallseite eine Struktur die zur Streuung des transmittierten Lichtes führt. Die Transmission ist entsprechend größer als in dem vollständig gepolten Bereich und kleiner als im völlig ungepolten Bereich. Auch in einem Verdopplungsexperiment sollten die verschiedenen Bereiche deutlich zu erkennen sein.

In den Abbildungen 5.5 (a) und (b) sind die Ergebnisse einer Messung mit dem in Abschnitt 3.3 durchgeführten experimentellen Aufbau dargestellt. Bei der zweidimensional aufgelösten Messung wurde die effektive Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ (Abbildung 5.5 (a)) und die Wellenlängenakzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ (Abbildung 5.5 (b)) des Kristalls bestimmt. Beide Größen sind in den Abbildungen linear in Grautönen kodiert. Die effektive Linienbreite $\delta\lambda_{eff}$ nimmt von innen nach außen hin zu, was durch die runde Struktur bedingt ist. Die effektive Länge des Kristalls, die zur Frequenzverdopplung genutzt werden kann, wird nach außen hin kleiner. Dadurch ist die sinc^2 -Kurve, die die Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Wellenlänge wiedergibt, verbreitert. Analog zu den eben gemachten

Überlegungen sollte also auch die Akzeptanzbandbreite $\Delta\lambda$ von innen nach außen ansteigen, was durch Abbildung 5.5 (b) bestätigt wird.

In den Abbildungen 5.5 (a) und (b) ist jeweils am Rand des gepolten Bereiches eine Zone erkennbar, in der nicht über die gesamte Höhe des Kristalls sinnvolle Messwerte bestimmt wurden. In den unteren Zonen dieses Bereichs ist ebenso wie in den weiter außen gelegenen Bereichen des Kristalls keine Verdopplung möglich, da hier, wie bei der Transmissionsmessung (Abbildung 5.3) erklärt, keine periodische Struktur vorhanden ist. Die obere Fläche ist die $c+$ -Fläche des Kristalls. Hier konnte durch den aufliegenden O-Ring ein Ladungstransport und somit ein Polungsprozess stattfinden [Ze03].

Abbildung 5.6 zeigt einen horizontalen Schnitt durch die räumlich aufgelöste Messung der Akzeptanzbandbreite und einen Schnitt durch die Messung der effektiven Linienbreite, der an der gleichen Position durchgeführt wurde. Deutlich ist der korrespondierende Verlauf von Wellenlängenakzeptanzbandbreite und effektiver Linienbreite zu erkennen. Wie im Abschnitt 2.2.3 diskutiert, führen fehlende Domänen am Anfang oder Ende eines gepolten Bereichs zu einer Vergrößerung der Wellenlängenakzeptanzbandbreite, da dies einem Kristall mit kleinerer effektiven Länge entspricht. Ein kürzerer Kristall sollte auch eine größere effektive Linienbreite besitzen. Der analoge Verlauf der Kurven und die Zunahme der Messgrößen zum Rand des Kristalls sind Indizien, die auf die Abnahme der effektiven Kristalllänge zum Rand des Kristalls hindeuten. Mit dem in Kapitel 3.3 vorgestellten experimentellen Aufbau ist es also mit einer einzigen Messung, ohne Vorbehandlung des Kristalls (anätzen) möglich, zu unterscheiden, ob in Kristallen nach der Domäneninversion Domänen fehlen.

Die Nutzung von spektral breiten ultrakurzen Laserimpulsen hat gegenüber Standardmethoden wie Anätzen des Kristalls Vorteile. Eine aufwendige Vorbehandlung des Kristalls mit schwer zu handhabenden Chemikalien, wie Flußsäure, entfällt. Insbesondere ist die Methode zerstörungsfrei und entsprechend auch für Kristalle geeignet, die bereits eine aufwendige Politur oder teure Beschichtung besitzen. Die Methode wird in Strahlrichtung und nicht senkrecht dazu durchgeführt. Während bei der Transmissionsmessung nur festgestellt werden konnte, dass ein Bereich existiert, in dem nicht die gesamte Höhe des Kristalls gepolt wurde, kann mit dieser Methode die genaue Höhe und die tatsächliche Gestalt dieser Struktur festgestellt werden. Vorteile gegenüber einer räumlich aufgelösten Bestimmung der Konversionseffizienz ist die Tatsache, dass prinzipiell mehr Informationen über den Kristall und die Qualität des Polungsvorgangs gewonnen werden. Mit einer Messung der Konversionseffizienz wäre lediglich eine zu den Rändern des Kristalls kleiner werdende Effizienz bestimmt worden. Mit der Bestimmung der Akzeptanzkurve ist es möglich, dies durch Bestimmung der Wellenlängenakzeptanzbandbreite und der effektiven Linienbreite

auf fehlende Domänen am Anfang oder Ende der periodischen Struktur zurückzuführen. Die Untersuchung mit spektral breiten ultrakurzen Laserimpulsen ist also eine neue effiziente Untersuchungsmethode zur Beurteilung der Qualität von QPM-Kristallen.

5.2 Charakterisierung mittels Schlierenverfahrens

Von besonderer Bedeutung für eine effiziente Frequenzkonversion durch Quasiphasenanpassung ist die Qualität und die Homogenität der Domänenstruktur, sowie deren Form und Gestalt.

Eine herkömmliche Methode zur Untersuchung der mittels Domäneninversion eingebrachten Struktur in optisch nichtlinearen Kristallen ist das Anätzen mit Flußsäure (HF). Wegen der unterschiedlichen spontanen Polarisierung der Domänen kommt es zu unterschiedlichen Ätzraten und entsprechend zur Ausbildung von Oberflächenstrukturen, welche entweder mit einem normalen Lichtmikroskop unter Verwendung des Phasenkontrastverfahrens oder mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM) untersucht werden können [Mi97, Ze03].

Weitere Methoden zur Untersuchung von Domänen, deren Homogenität und der Dicke von Domänenwänden mit einem Rasterkraftmikroskop oder einem Scanning force microscope (SFM) wurden von L. M. Eng et al. [EG98] bzw. von J. Wittborn et al. [WC02] entwickelt. Hierbei wird der inverse piezoelektrische Effekt ausgenutzt.

Bei beiden Methoden wird die Unterseite des Kristalls mit einer Elektrode (Silberpaste) kontaktiert. Als zweite Elektrode auf der zu untersuchenden Oberseite des Kristalls dient der Cantilever des AFM. Mit den beiden Elektroden wird eine Wechselspannung an den Kristall angelegt. Aufgrund der entgegengesetzten Vorzeichen der piezoelektrischen Konstanten in den durch die ferroelektrische Domäneninversion hervorgerufenen Bereichen ist es möglich, die periodische Struktur des Kristalls zu untersuchen. Der Vorteil dieser Methode ist, dass es sich um eine zerstörungsfreie Untersuchung der Kristalle handelt. Ein Nachteil ist, dass nur Oberflächenstrukturen untersucht werden, weshalb innerhalb des Kristalls Variationen auftreten können, die nicht nachgewiesen werden.

Eine optische Methode, die sogenannte abbildende elektrooptische Mikroskopie, beruht, wie der Name schon sagt, auf dem elektrooptischen Effekt. V. Gopalan et al. haben eine Reihe von Untersuchungen mit dieser Methode durchgeführt [GM98, GM99, GiM99]. Die Kristalle wurden mit flüssigen Elektroden kontaktiert; anschließend wurde eine elektrische Spannung an den Kristall gelegt. Mit einem Lichtmikroskop werden dann die Domänen beobachtet. Die Domänen werden dabei sichtbar, da die unterschiedlichen Domänen innerhalb des Kristalls durch ihre unterschiedliche spontane Polarisierung unterschiedliche

elektrooptische Koeffizienten haben [GM98]. Die durch den elektrooptischen Effekt verursachten Brechungs-indexunterschiede zwischen den Domänen sorgen für eine Streuung des Lichtes in Transmission, die die Domänen sichtbar macht [GiM99]. Vergleichbar ist diese Untersuchungsmethode mit dem bereits im Kapitel 3.1 diskutierten Schattenverfahren. Die Methode wurde während des Polungsvorgangs genutzt. Untersucht wurden die uniaxialen Kristalle LiNbO_3 [GM99] und LiTaO_3 [GiM99]. So konnte die Gestalt und die Wachstumsgeschwindigkeit von Domänen in diesen Kristallen bestimmt werden.

Eine weitere Methode, die den elektrooptischen Effekt ausnutzt, wurde von J. Hellström et al. [He01] entwickelt. Ein Kristall wird zwischen gekreuzten Polarisatoren justiert und durch einen Laserstrahl beleuchtet. Eine an den Kristall angelegte elektrische Spannung führt durch den elektrooptischen Effekt zu einer Phasenverschiebung. Diese Phasenverschiebung wird als Helligkeitsänderung mit einer CCD Kamera zur weiteren Auswertung gemessen. Die Methode wird zur Sichtbarmachung des Domänenwachstums sowie zur Evaluation der Qualität des Kristalls nach der Domäneninversion genutzt.

Von S.I. Bozhevolnyi et al. [BH98] wurde die sogenannte SHG - Mikroskopie verwendet, um Domänen zu untersuchen. Die Methode wurde insbesondere genutzt, um QPM - Strukturen zu untersuchen. Dabei wird ein Laser in die Probe fokussiert und die dabei erzeugte Intensität der zweiten Harmonischen wird zur Analyse der Domänen verwendet. Mit den hier vorgestellten Methoden wurden im Wesentlichen Aussagen über die Wachstumsgeschwindigkeit von Domänen und die Qualität der Domänenstruktur nach einer Domäneninversion gemacht.

Von M. Müller et al. [MS03] wurde ein optisches Verfahren entwickelt, mit dem eine quantitative Untersuchung von Domänen möglich ist. Auch diese Methode beruht auf dem elektrooptischen Effekt. An einen Kristall, der mit flüssigen Elektroden kontaktiert wird, wird eine Spannung angelegt. Der Strahl eines Argonionenlasers wird durch einen Kristall transmittiert und dabei abgelenkt. Die Ablenkung beruht darauf, dass bei einer anliegenden elektrischen Spannung an den Stellen unterschiedlicher spontaner Polarisation wegen des elektrooptischen Effekts ein Sprung der Brechungsindizes auftritt. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass lediglich ein kleiner Teil des Kristalls, bedingt durch die Strahltaile des Lasers, untersucht wird, was eine Untersuchung des gesamten Kristalls, sehr langwierig macht. Die Methode wurde von M. Müller et al. [MS03] zur Untersuchung einzelner Domänen genutzt.

Ein Ziel der vorliegenden Arbeit war es, eine neue zerstörungsfreie Untersuchungsmethode zu entwickeln, mit deren Hilfe quantitative Aussagen über die Domänenstruktur und insbesondere die Domänenstruktur von QPM - Kristallen getroffen werden können. Die Methode sollte zweidimensionale Untersuchungen ermöglichen. In der hier entwickelten

Methode wird zur Analyse der Domänenstruktur das von M. Müller et al. [MS03] entwickelte Modell um den piezoelektrischen und den elasto-optischen Effekt erweitert. Ferner wird das Modell in Bezug auf periodische Strukturen erweitert. Zur zweidimensionalen Bestimmung der Ablenkungswinkel wurde das in Abschnitt 3.1 beschriebene Schlierenverfahren genutzt.

5.2.1 Optische Weglängenänderung

In der vorliegenden Arbeit wurden Kristalle für die Quasiphasenanpassung mittels des in Abschnitt 3.1 diskutierten experimentellen Aufbaus untersucht. An einzelne Kristalle wurde während dieser Untersuchungen gezielt ein elektrisches Feld angelegt und so die optische Weglänge innerhalb des Kristalls verändert. Durch den Kristall transmittierte Lichtstrahlen werden in Abhängigkeit von der optischen Weglängenänderung abgelenkt, deshalb werden in diesem Abschnitt die von einer elektrischen Spannung abhängige optische Weglängenänderung sowie der resultierende Ablenkungswinkel für Lichtstrahlen bestimmt.

Ein Kristall hat eine geometrische Länge L_{geo} und einen Brechungsindex n . Die optische Weglänge ist $L_{Opt} = n \cdot L_{geo}$.

Die Änderung der optischen Weglänge setzt sich entsprechend zusammen aus:

$$\begin{aligned} d(L_{Opt}) &= d(n \cdot L_{geo}) \\ &= dn \cdot L_{geo} + dL_{geo} \cdot n \end{aligned} \quad (5.1)$$

Die Änderung des Brechungsindex dn wird verursacht durch den primären elektrooptischen Effekt und dem photoelastischen Effekt. Die Änderung der geometrischen Länge dL_{geo} dagegen wird durch den inversen piezoelektrischen Effekt bestimmt. Diese Effekte wurden in Abschnitt 2.3 diskutiert.

Bedingt durch Kristallsymmetrien lassen sich einige Vereinfachungen der Matrixdarstellungen, des photoelastischen, des elektrooptischen und des piezoelektrischen Tensors durchführen. Für den elasto-optischen Tensor in Matrixdarstellung des hier verwendeten KNbO_3 gilt:

$$p_{ij} = \begin{pmatrix} p_{11} & p_{12} & p_{13} & 0 & 0 & 0 \\ p_{12} & p_{22} & p_{23} & 0 & 0 & 0 \\ p_{13} & p_{23} & p_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & p_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & p_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & p_{66} \end{pmatrix}$$

Für den elektrooptischen Tensor in Matrixdarstellung gilt:

$$r_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{23} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{42} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Die Komponenten der jeweiligen Tensoren finden sich im Abschnitt 4.1.

In den durchgeführten Experimenten wurde das elektrische Feld entlang der kristallographischen c-Achse angelegt. Die dreidimensionale vektorielle Beschreibung des elektrischen Feldes ist entsprechend:

$$\vec{E}_{El} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ E_c \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

Der primäre und der sekundäre elektrooptische Effekt

Mit den eben gemachten Vereinfachungen lassen sich folgende Gleichungen für die Variation der relativen Impermeabilitäten $\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_i$ angeben:

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 = (r_{13} + (c_{11}d_{13} + c_{12}d_{23} + c_{13}d_{33}))E_c \quad (5.3)$$

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2 = (r_{23} + (c_{21}d_{13} + c_{22}d_{23} + c_{23}d_{33}))E_c \quad (5.4)$$

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3 = (r_{33} + (c_{31}d_{13} + c_{32}d_{23} + c_{33}d_{33}))E_c \quad (5.5)$$

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 = 0 \quad (5.6)$$

Um den Betrag der Variation der Brechungsindizes zu berechnen, wird analog zu der Herleitung in A. Yariv [Ya75] vorgegangen. Im Folgenden werden hierbei die Gleichungen um den photoelastischen Effekt erweitert.

Mit den Gleichungen (5.3)-(5.6) können die Differenzen der Brechungsindizes berechnet werden.

Bei den hier genutzten Kristallen variieren durch Anlegen der Spannung in Richtung der kristallographischen c-Achse nur die relativen Impermeabilitäten $\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1, \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2, \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3$.

Die Lage der Hauptachsen des Indexellipsoids ändern sich nicht, lediglich deren Länge. Es folgen die Variation der Brechungsindizes zu:

$$\Delta n_1 = -\frac{1}{2}(n_1)^3 \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_1 \quad (5.7)$$

$$\Delta n_2 = -\frac{1}{2}(n_2)^3 \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_2 \quad (5.8)$$

$$\Delta n_3 = -\frac{1}{2}(n_3)^3 \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_3 \quad (5.9)$$

$$\Delta n_4 = \Delta n_5 = \Delta n_6 = 0 \quad (5.10)$$

Durch Ersetzen der Variation der relativen Impermeabilitäten durch den zuvor berechneten Wert folgt:

$$\Delta n_1 = -\frac{1}{2}(n_1)^3 (r_{13} + (c_{11}d_{13} + c_{12}d_{23} + c_{13}d_{33}))E_z \quad (5.11)$$

$$\Delta n_2 = -\frac{1}{2}(n_2)^3 (r_{23} + (c_{21}d_{13} + c_{22}d_{23} + c_{23}d_{33}))E_z \quad (5.12)$$

$$\Delta n_3 = -\frac{1}{2}(n_3)^3 (r_{33} + (c_{31}d_{13} + c_{32}d_{23} + c_{33}d_{33}))E_z \quad (5.13)$$

$$\Delta n_4 = \Delta n_5 = \Delta n_6 = 0 \quad (5.14)$$

Der piezoelektrische Effekt

Zur Berechnung der durch den inversen piezoelektrischen Effekt verursachten Längenänderung dL_{geo} des verwendeten KNbO₃ - Kristalls benötigt man den piezoelektrischen Tensor $d_{ijk}^{(P)}$ des Materials. Dieser kann auf Grund der Zugehörigkeit von KNbO₃ zur Symmetrieklasse $mm2$ in folgende Matrixdarstellung überführt werden:

$$d_{ij}^{(P)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Für die relative Längenänderung $\epsilon_i = \frac{\Delta l_i}{l_i}$ des Kristalls für die drei Raumrichtungen folgt für ein in c - Richtung angelegtes elektrisches Feld [Ny85] :

$$\epsilon_a = d_{31}E_c \quad (5.15)$$

$$\epsilon_b = d_{32}E_c \quad (5.16)$$

$$\epsilon_c = d_{33}E_c \quad (5.17)$$

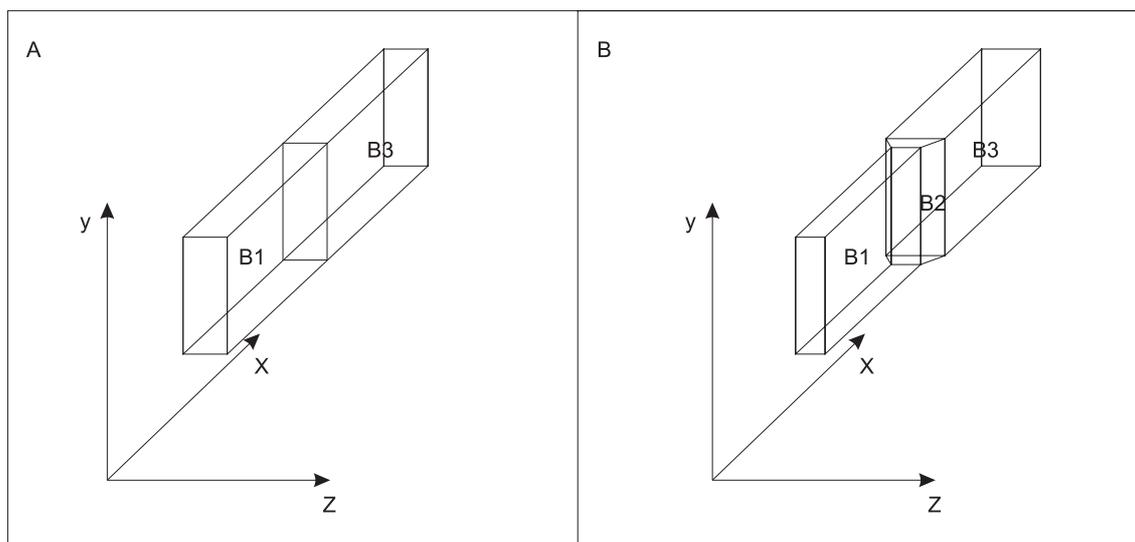


Abbildung 5.7: In den Abbildung (a) und (b) sind jeweils zwei Domänen mit entgegengesetzter spontaner Polarisation dargestellt. In der Abbildung (a) liegt keine Spannung an dem Kristall an. In der Abbildung (b) ist der gleiche Kristall mit einer angelegten elektrischen Spannung dargestellt. Für Details siehe Text.

Entsprechend gilt für die Längenänderung des Kristalls

$$\Delta l_a = d_{31} E_c l_a \quad (5.18)$$

$$\Delta l_b = d_{32} E_c l_b \quad (5.19)$$

$$\Delta l_c = d_{33} E_c l_c \quad (5.20)$$

Die Gleichungen (5.11) bis (5.14) und (5.18) bis (5.20) ermöglichen das Berechnen der feldinduzierten Brechzahl- bzw. Längenänderung für die drei Raumrichtungen bei Anlegen eines elektrischen Feldes in der kristallographischen c - Richtung von KNbO_3 - Kristallen. Die Komponenten der verschiedenen Tensoren sind in den Tabellen 4.3, 4.4 und 4.5 zusammengestellt.

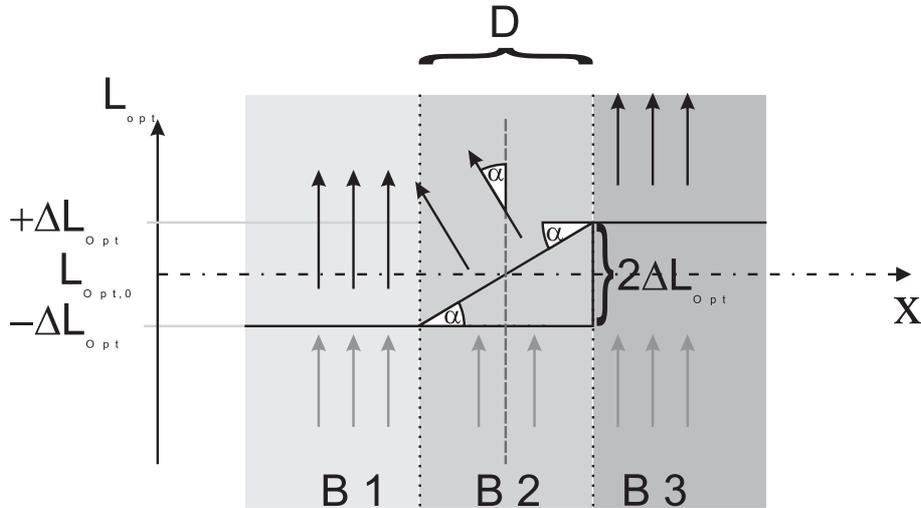


Abbildung 5.8: Durch Spannung induzierter Gradient der optischen Weglänge

5.2.2 Modell zur Auswertung von Schlierenuntersuchungen an Kristallen mit Bereichen unterschiedlicher spontaner Polarisation

Eine an einen Kristall angelegte elektrische Spannung bewirkt ein elektrisches Feld:

$$E = \frac{U}{d} \quad (5.21)$$

Dieses elektrische Feld verursacht wie eben diskutiert eine Änderung der optischen Weglänge. Ein idealer QPM-Kristall besteht aus Segmenten, die die Breite der Kohärenzlänge l_c haben. Die spontane Polarisation jeder Domäne ist dabei um 180° im Vergleich zu den Nachbarsegmenten gedreht. Wegen fehlender Inversionssymmetrie entspricht dies einem Vorzeichenwechsel nicht nur der Komponenten des Tensors der optischen Nichtlinearitäten (siehe Abschnitt 2.2.3), sondern auch der Komponenten des elektrooptischen und des piezoelektrischen Tensors.

Eine an einen solchen Kristall angelegte Spannung wird sich also auf benachbarte Segmente genau entgegengesetzt auswirken. In Abbildung 5.7 (a) sind zwei Segmente B1 und B3 mit entgegengesetzter spontaner Polarisation dargestellt. Abbildung 5.7 (b) zeigt die gleichen Segmente bei einer anliegenden elektrischen Spannung. Während die geometrische Ausdehnung L_{geo} des Segments B1 sich wegen des inversen piezoelektrischen Effekts verringert, vergrößert sie sich im Segment B3 um den gleichen Betrag. Eine analoge Betrachtung gilt

für den Brechungsindex, bedingt durch den primären und den sekundären elektrooptischen Effekt.

Zwischen den Domänen findet der Übergang sowohl der Brechungsindizes n als auch der geometrischen Weglänge L_{geo} nicht sprunghaft statt. Vielmehr bildet sich eine Übergangszone, die in Abbildung 5.7 (b) durch einen Übergangsbereich B2 angedeutet ist. Diese Übergangszonen führen zu einer Strahlablenkung von durch den Kristall transmittiertem Licht.

Die genaue Form und Größe dieser Übergangszone kann durch Finite-Elemente-Analysen bestimmt werden.

Wegen der kleinen angelegten Spannungen und den daraus folgenden geringen Änderungen der optischen Weglänge wird der Übergang in dieser Arbeit, in einer ersten Modellbildung, jedoch analog zur Veröffentlichung von [MS03] linear genähert. Das Modell von M. Müller et al. wird dabei um den piezoelektrischen und den elasto-optischen Effekt erweitert. Der Sachverhalt des linearen Überganges zwischen zwei Kristallbereichen mit entgegengesetzter spontaner Polarisation ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Die Abbildung zeigt die optische Weglänge eines Kristalls in Abhängigkeit von der Kristallposition. Der Kristall besteht aus zwei Bereichen mit entgegengesetzter Richtung der spontanen Polarisation. Die Grenze der beiden Bereiche ist durch eine senkrechte (segmentierte) Linie angedeutet. Waagrecht (segmentiert) eingezeichnet ist die optische Weglänge ohne anliegendes elektrisches Feld. Durch Anlegen eines elektrischen Feldes verkleinert sich die optische Weglänge im linken Bereich des Kristalls und im rechten Teil des Kristalls vergrößert sich die optische Weglänge, wie in der Abbildung 5.8 durch eine schwarze Linie angedeutet. Da der Übergang nicht sprunghaft stattfindet, sind analog zu Abbildung 5.7 drei Bereiche B1, B2 und B3 eingezeichnet. Entscheidend ist dabei der Bereich B2. Wesentlicher Bestandteil dieses Modells ist dabei die Breite D dieser Übergangszone. Wird der Ablenkswinkel von durch den Kristall transmittiertem Licht gemessen, so kann die Breite der Übergangszone wie folgt berechnet werden. Durch den Kristall transmittiertes Licht ist in Abbildung 5.8 durch Pfeile dargestellt. Die grauen Pfeile kennzeichnen einfallende und die schwarzen Pfeile ausgehende Strahlen. α kennzeichnet den Ablenkswinkel, um den ein durch den Kristall transmittierter Lichtstrahl an der Übergangszone abgelenkt wird.

Der Ablenkswinkel α lässt sich mit der Abbildung 5.7 ableiten. Aus geometrischen Betrachtungen folgt:

$$\begin{aligned} \tan \alpha &= \left| \frac{2 \cdot \Delta L_{Opt}}{D} \right| \\ \Rightarrow \quad \alpha &= \arctan \left(\left| \frac{2 \cdot \Delta L_{Opt}}{D} \right| \right) \end{aligned} \quad (5.22)$$

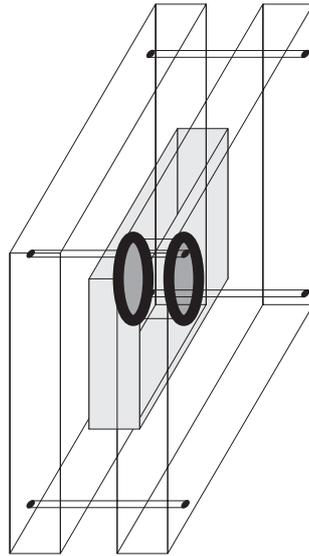


Abbildung 5.9: Ein Kristall grau gekennzeichnet wird zwischen zwei O - Ringen und zwei Plexiglasscheiben eingeklemmt. Elektrolyt (LiCl) wird zwischen Kristall, Plexiglas und O - Ringe eingefüllt, um den Kristall mit einer Spannungsquelle zu verbinden.

Mit Kenntnis der Differenz der optischen Weglänge und der angelegten Spannung an den Kristall kann, wenn der Ablenkwinkel α gemessen wird, die Breite der Übergangszone berechnet werden. Für kleine Ablenkwinkel gilt die Näherung $\alpha = \left| \frac{2 \cdot \Delta L_{Opt}}{D} \right|$. Zur Bestimmung des Ablenkwinkels α wurde der in Kapitel 3.1 vorgestellte Schlierenaufbau genutzt. Die Ausbreitungsrichtung der wechselwirkenden Wellen bei Frequenzkonversionsexperimenten ist parallel zur kristallographischen b - Achse. Diese ist in Abbildung 5.1 mit einer „1“ gekennzeichnet. Die Strahlausbreitungsrichtung während der Schlierenuntersuchungen war, parallel zur kristallographischen c - Achse (in Abbildung 5.1 mit „2“ gekennzeichnet) und somit senkrecht zur Ausbreitungsrichtung bei den Frequenzkonversionsexperimenten. Die Ablenkwinkel werden in diesem Fall verursacht durch Variationen der Kristalllänge in c - Richtung und durch Variationen der Brechungsindizes n_a bzw. n_b . Die Schlierenuntersuchungen an den Kristallen wurden mit polarisierter oder mit unpolarisierter Strahlung durchgeführt. Bei der mathematischen Beschreibung müssen deswegen drei Fälle unterschieden werden:

- Unpolarisierte Strahlung
- Polarisierte Strahlung parallel zu n_a

- Polarisierte Strahlung parallel zu n_b

Im Folgenden wird für alle drei Fälle ein mathematischer Zusammenhang zwischen dem angelegten elektrischen Feld und den Änderungen der optischen Weglänge angegeben. Berücksichtigt werden dabei sowohl die Längenänderung (siehe Gleichung (5.20)) als auch die Variation der Brechungsindizes (siehe Gleichungen (5.7) und (5.8)).

Für polarisierte Strahlung mit einer Polarisationsrichtung parallel zur kristallographischen a - Achse des Kristalls gilt Gleichung (5.1):

$$\begin{aligned}
\Delta(L_{Opt}) &= dn \cdot L_{geo} + dL_{geo} \cdot n \\
&= [\Delta n_a \cdot l_c] + [\Delta l_z \cdot n_a] \\
&= \left[-\frac{1}{2}(n_a)^3(r_{13} + (p_{11}d_{13}^{(P)} + p_{12}d_{23}^{(P)} + p_{13}d_{33}^{(P)}))E_c \cdot l_c \right] + [d_{33}^{(P)} E_c l_c \cdot n_a] \\
&= \left\{ -\frac{1}{2}(n_a)^2(r_{13} + (p_{11}d_{13}^{(P)} + p_{12}d_{23}^{(P)} + p_{13}d_{33}^{(P)})) + d_{33}^{(P)} \right\} \cdot E_c \cdot l_c \cdot n_a \\
&= \Delta L_{Opt}^{konst,1} \cdot E_c
\end{aligned} \tag{5.23}$$

Mit l_z der Länge des Kristalls in z-Richtung ohne elektrisches Feld und n_a dem Brechungsindex für Strahlung mit $E \parallel a$.

Für Licht mit einer Polarisationsrichtung parallel zu Kristallographischen b - Achse folgt analog:

$$\begin{aligned}
\Delta L_{Opt} &= [\Delta n_b \cdot l_c] + [\Delta l_c \cdot n_b] \\
&= \left\{ -\frac{1}{2}(n_b)^2(r_{23} + (p_{21}d_{13}^{(P)} + p_{22}d_{23}^{(P)} + p_{23}d_{33}^{(P)})) + d_{33}^{(P)} \right\} \cdot E_c \cdot l_c \cdot n_b \\
&= \Delta L_{Opt}^{konst,2} \cdot E_c
\end{aligned} \tag{5.24}$$

Für unpolarisiertes Licht wird der Ablenkungswinkel aus den Änderungen der Länge l_z des Kristalls durch Änderungen des Brechungsindex n_a und durch Variationen von n_b verursacht, es gilt:

$$\begin{aligned}
\Delta L_{Opt} &= \frac{1}{2}[(\Delta n_a + \Delta n_b) \cdot l_z] + \frac{1}{2}[(n_a + n_b) \cdot \Delta l_c] \\
&= \frac{1}{2} \left\{ -\frac{1}{2}[(n_a)^3(r_{13} + (p_{11}d_{13}^{(P)} + p_{12}d_{23}^{(P)} + p_{13}d_{33}^{(P)})) \right. \\
&\quad + (n_b)^3(r_{23} + (p_{21}d_{13}^{(P)} + p_{22}d_{23}^{(P)} + p_{23}d_{33}^{(P)}))] \\
&\quad \left. + d_{33}^{(P)} \cdot (n_a + n_b) \right\} \cdot E_c \cdot l_z \\
&= \Delta L_{Opt}^{konst,3} \cdot E_c
\end{aligned} \tag{5.25}$$

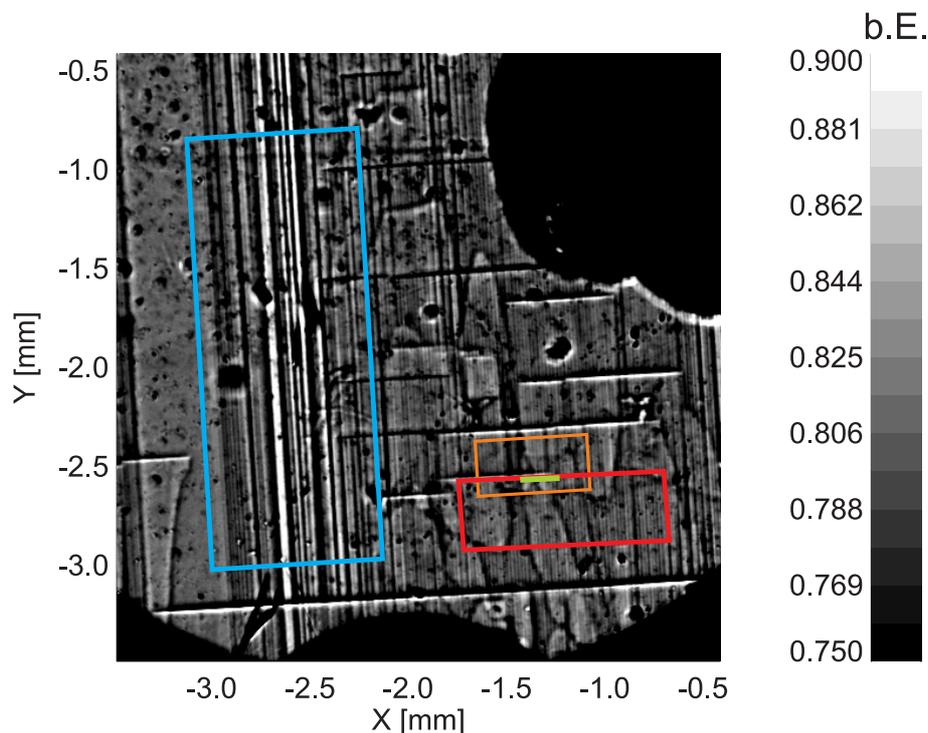


Abbildung 5.10: Transmissionmessung eines Kaliumniobatkristalls nach der Inversion der ferroelektrischen Domänen bei einer anliegenden Spannung von 500 V.

5.2.3 Experimentelle Ergebnisse der Schlierenuntersuchungen an QPM-Kristallen

In diesem Abschnitt werden die mit dem Schlierenmessplatz gewonnen Ergebnisse der Kristalle AND16001, AND16002 und AND19001 diskutiert. In die KNbO_3 - Kristalle wurden periodische Domänenstrukturen eingebracht.

Der Kristall AND16001 wurde, wie in Abbildung 5.9 skizziert, zwischen zwei Plexiglasplatten eingeklemmt. Anschließend wurden Schlierenmessungen bei verschiedenen, am Kristall anliegenden, elektrischen Spannungen durchgeführt. So konnte die in den Kristall eingebrachte Domänenstruktur sichtbar gemacht werden. Ferner wurde exemplarisch die Breite D der Übergangzone $B2$ bestimmt.

Die Kristalle AND16002 und AND19001 wurden ohne anliegendes elektrisches Feld und ohne Plexiglas und Elektrolyt untersucht. Durch Bestimmung der Ablenkwinkel α lassen sich bei Abschätzung der Breite D der Übergangzone $B2$ mit den Gleichungen (5.23) - (5.25) Rückschlüsse auf kristallinterne Felder ziehen.

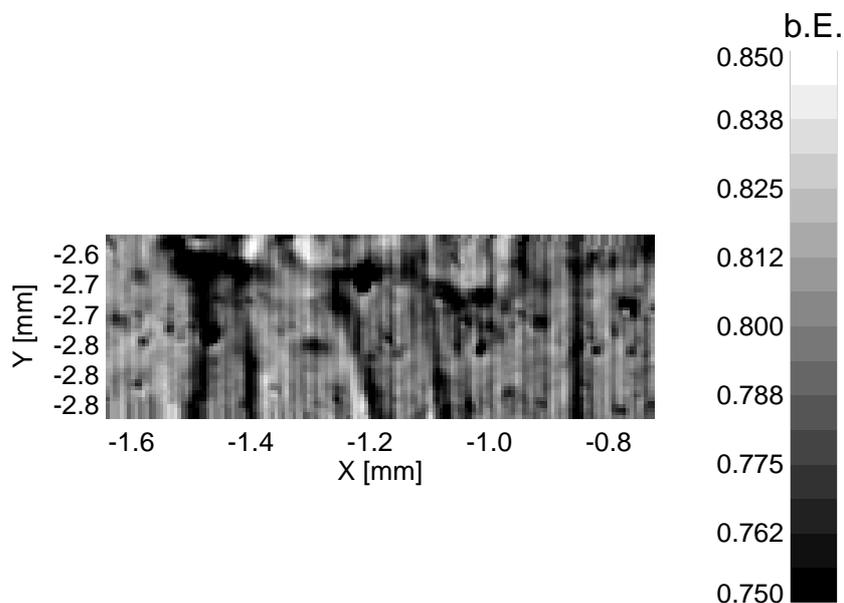


Abbildung 5.11: Ausschnitt einer Transmissionmessung eines Kaliumniobatkristalls nach der Inversion der ferroelektrischen Domänen bei einer anliegenden Spannung von 500 V.

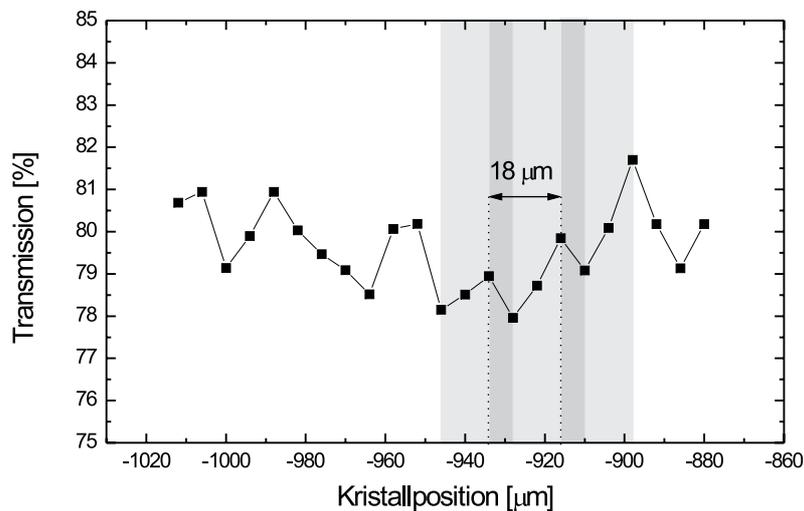


Abbildung 5.12: Schnitt durch die Transmissionmessung, deren Ergebnisse in Abbildung 5.10 dargestellt sind. Für Details siehe Text.

Schlierenuntersuchungen an dem Kristall AND16001 bei am Kristall anliegender elektrischer Spannung

Für die Untersuchungen an QPM - Kristallen wurde der Kaliumniobat Kristall AND16001 verwendet. Der Kristall hatte eine Dicke von 2 mm. Die Gitterperiode beträgt $\Lambda = 20,8 \mu\text{m}$. Die Breite der Domänen ist somit $10,4 \mu\text{m}$.

Die Abbildung 5.10 zeigt einen Ausschnitt der Ergebnisse der Transmissionsmessung, die im Rahmen der Schlierenuntersuchungen aufgenommen wurde. In der Abbildung sind deutlich Linien (blau eingerahmt) zu erkennen, die einen Abstand zwischen $30 \mu\text{m}$ und $50 \mu\text{m}$ besitzen. Da in der unmittelbaren Umgebung feinere Strukturen auftreten handelt es sich dabei nicht um Messartefakte, sondern vermutlich um Domänen, die während des Polungsvorgangs zusammengewachsen sind. Abbildung 5.11 zeigt einen vergrößerten Ausschnitt der gleichen Transmissionsmessung, die die beabsichtigte Domänenstruktur von $20,8 \mu\text{m}$ zeigt. Der Ausschnitt ist in Abbildung 5.10 rot markiert. Der Ausschnitt wurde um $3,5^\circ$ im Vergleich zur Ursprungsmessung gedreht. Deutlich zu erkennen ist eine periodische Streifenstruktur. In der Abbildung 5.11 sind auch Strukturen zu erkennen, die scheinbar nichts mit der periodischen Struktur zu tun haben. In diesen Bereich ist die Transmission im Vergleich zum restlichen Kristall deutlich geringer. Auch in der Abbildung 5.10 sind Strukturen zu erkennen, die die Transmission reduzieren. Diese Strukturen sind auf Kratzer in den Plexiglasplatten, Luftblasen innerhalb des Elektrolyts und andere Störungen zurückzuführen.

Zur Bestimmung des Abstands der Domänen wurde ein Schnitt durch die Messwerte innerhalb des rot markierten Ausschnitts gelegt. Der Schnitt ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Die Abstände der Maxima, die aus dem Schnitt bestimmt wurden, liegen zwischen $18 \mu\text{m}$ und $21 \mu\text{m}$. Bei einer Kristallposition zwischen $-1000 \mu\text{m}$ und $-960 \mu\text{m}$ ist eine Störung der Periodizität festzustellen, die auf ein Zusammenwachsen zweier Domänen hindeutet. Auffallend ist auch, dass zwischen $-960 \mu\text{m}$ und $-890 \mu\text{m}$ die ansteigenden Flanken der periodischen Struktur durch zwei Messwerte, die abfallenden Flanken durch einen Messwert repräsentiert werden. Die Zonen sind zur besseren Anschauung in diesem Bereich in der Abbildung 5.12 durch verschiedene Grautöne getrennt. Die Abstände entsprechen einer Breite von $12 \mu\text{m}$ für die aufsteigende und $6 \mu\text{m}$ für die absteigende Flanke. Diese Asymmetrie deutet darauf hin, dass in diesem Bereich des Kristalls der „Duty-Cycle“ nicht dem optimalen Wert von 0,5 entspricht.

Da die Domänen nur durch wenige Messwerte repräsentiert werden, sind genauere Aussagen über die Struktur und die Größe der Domänen nicht möglich. Die exakte Breite der Domänen bzw. die exakte Periodenlänge konnten aus diesem Grund ebenfalls nicht

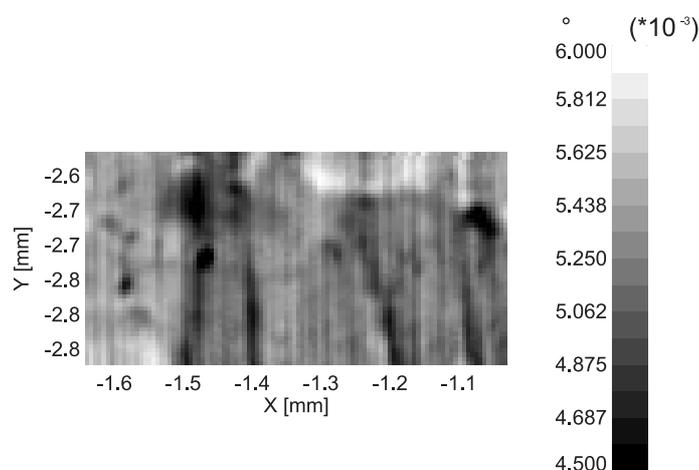


Abbildung 5.13: Ausschnitt der Ergebnisse einer Schlierenmessung des Kristall AND16001 bei einer angelegten elektrischen Spannung von 500 V. In Grautönen kodiert ist der resultierende Ablenkungswinkel α , für Details siehe Text

bestimmt werden. Auch in den Ergebnissen einer Schlierenmessung sind die Domänen deutlich zu erkennen. Abbildung 5.13 zeigt den Ausschnitt einer Messung bei einer am Kristall anliegenden Spannung von 500 V. Der Ausschnitt wurde in der Nähe der in Abbildung 5.10 rot markierten Zone entnommen. In der Abbildung ist der Betrag des Ablenkungswinkels α in Grautönen kodiert dargestellt.

Aus einer Schlierenmessung und den dabei bestimmten Ablenkungswinkeln lassen neben den aus einer Transmissionmessung entnehmbaren Ergebnissen weitere quantitative Informationen über die Domänenstruktur gewinnen. Als ein erster Schritt wird die Breite D der Übergangszone $B2$ bestimmt. Zu diesem Zweck wurde an den Kristall AND16001 eine elektrische Spannung angelegt und eine Schlierenmessung durchgeführt.

Bei einer periodischen Domänenstruktur wird im Folgenden für kleine angelegte Spannungen die in Abbildung 5.14 (a) dargestellte Abhängigkeit der optischen Weglänge von der Kristallposition angenommen. Die Abhängigkeit folgt analog zu dem in Abbildung 5.8 diskutierten Modell. Die unterschiedlichen Grautöne in der Abbildung 5.14 repräsentieren Bereiche entgegengesetzter spontaner Polarisation. Zwischen den Domänen bilden sich Übergangszonen, die zu einer Strahlablenkung führen. In Abbildung 5.14 (a) sind drei Fälle einer möglichen Strahlablenkung durch Pfeile repräsentiert. Im ersten Fall, der in Abbildung 5.14 (a) mit einer „1“ gekennzeichnet ist, findet - auch bei einer am Kristall anliegenden elektrischen Spannung - keine Strahlablenkung statt. In den Fällen zwei und drei werden Lichtstrahlen um den durch Gleichung (5.22) gegebenen Winkel abgelenkt. Die

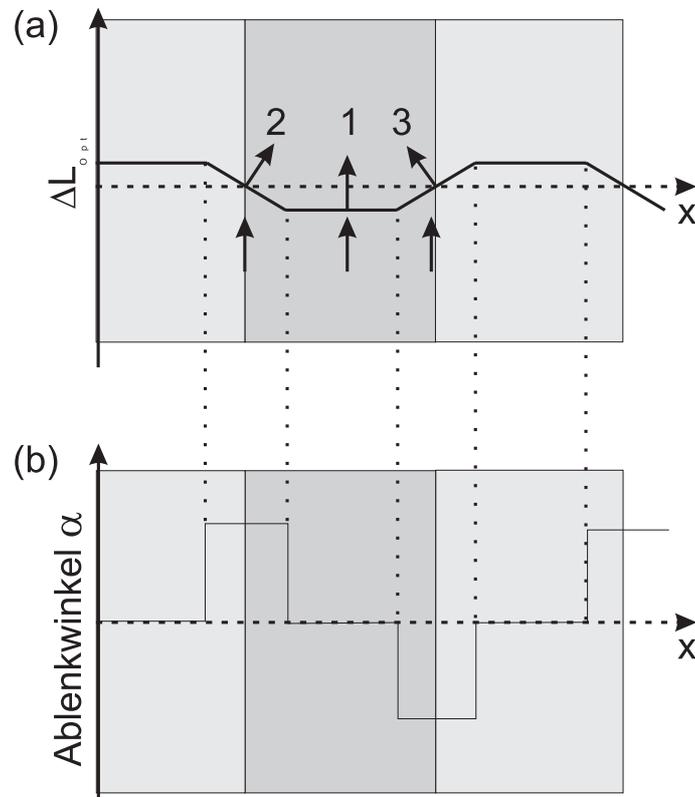


Abbildung 5.14: Skizze zur Herleitung der Strahlablenkung bei anliegender elektrischer Spannung.

Beträge der Ablenkwinkel sind dabei gleich, die Ablenkung erfolgt aber in unterschiedliche Richtungen. Trägt man diesen Ablenkwinkel eines Lichtstrahls in Abhängigkeit von der Kristallposition (analog zur Abbildung 5.14 (a)) auf, so folgt die in Abbildung 5.14 (b) dargestellte Abhängigkeit von der Kristallposition. Durch Grautöne sind analog zu Abbildung 5.14 (a) die Bereiche entgegengesetzter spontaner Polarisierung gekennzeichnet.

Auch ohne anliegendes elektrisches Feld existieren strahlablenkende Strukturen bedingt durch den Elektrolyt, die Plexiglasscheiben und den Kristall ohne elektrisches Feld (z. B. durch einen Keilwinkel). Diese Ablenkwinkel werden im Weiteren als intrinsisch bezeichnet.

Hat man den Betrag des Ablenkwinkels bei einer am Kristall anliegenden Spannung gemessen und subtrahiert den bereits vorher vorhandenen intrinsischen Ablenkwinkel, sollte sich eine Abhängigkeit von der Kristallposition ergeben, wie sie in Abbildung 5.14 (b) für den Ablenkwinkel dargestellt ist. Es existieren drei Bereiche: Zonen ohne Strahlablenkung,

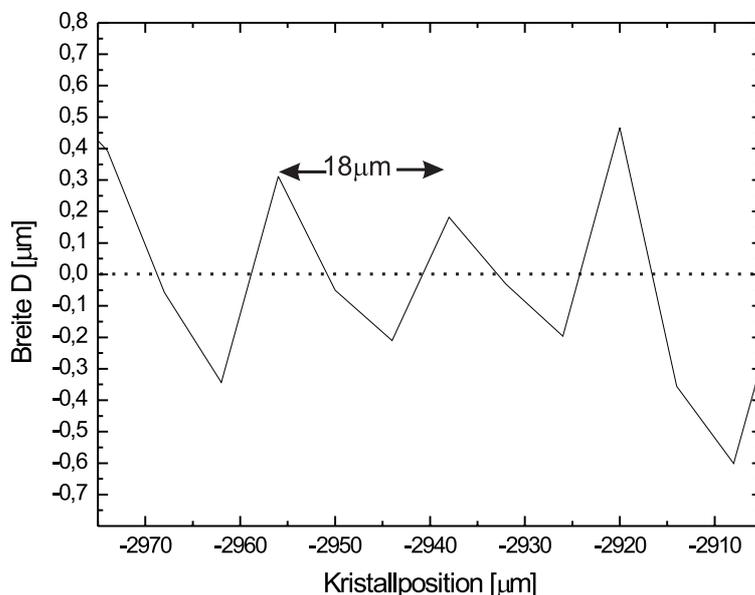


Abbildung 5.15: Ein Schnitt durch die experimentell bestimmten Ablenkwinkel bei 500 V. Die Werte wurden genutzt, um Werte für die Breite D der Übergangszone $B2$ zu berechnen.

Zonen mit positiven und Zonen mit gleich großen negativen Ablenkwinkel.

Berücksichtigt man die Beträge der intrinsischen Ablenkwinkel bei der Berechnung der Breite D der Übergangszone $B2$, sollte sich ein analoger Verlauf der Kurve ergeben. Dabei gibt der Betrag der Maxima bzw. Minima die Breite der Übergangszone wieder.

Zur Verifikation dieses Zusammenhangs wurde exemplarisch durch die Ergebnisse der experimentell bestimmten Ablenkwinkel bei einer am Kristall anliegenden Spannung von 500 V ein Schnitt gelegt. In Abbildung 5.10 ist die Position des Schnitts grün markiert. Aus den Werten wurde mit Gleichung (5.25) die Breite der Übergangszone D des Übergangsbereichs $B2$ (vgl. Abschnitt 5.2.1) bestimmt.

Die berechneten Werte sind in Abbildung 5.15 dargestellt.

In Abbildung 5.15 ist wie erwartet ein um $0 \mu\text{m}$ oszillierendes Verhalten zu beobachten. Die berechneten Breiten D der Übergangszonen gegeben durch die Maxima der Kurve streuen zwischen $\pm 0,2 \mu\text{m}$ und $\pm 0,8 \mu\text{m}$.

Der Verlauf der Messkurve weicht von den Erwartungen ab.

Die Erklärung hierfür ist vermutlich darin zu suchen, dass das räumliche Auflösungsvermögen des verwendeten Schlierenmessplatzes nicht ausreichend ist, um die verschiedenen Bereiche zu trennen. Das maximale Auflösungsvermögen des Schlierenmessplatzes beträgt $6,8\mu\text{m}$. Die Domänenbreite beträgt $10,4\mu\text{m}$. Wird eine Spannung an den Kristall angelegt, werden die Domänen, wie beschrieben, in drei Bereiche unterschiedlicher optischer Weglänge unterteilt. Die Breiten der verschiedenen Zonen sind dabei kleiner als das Auflösungsvermögen des Schlierenaufbaus. Sind die Strukturen kleiner als das Auflösungsvermögen, wird während der Messung die Intensitätsinformation mehrerer Bereiche gemittelt. Damit sind die Bereiche ohne zusätzliche - durch Spannung verursachte - Strahlablenkungen, nicht mehr von denen mit zusätzlicher Ablenkung zu trennen.

Bedingt durch die eben beschriebenen Mittlungen dürfte nicht nur der tatsächliche Verlauf der Kurve, sondern auch die Werte für die Breiten der Übergangszonen nicht korrekt bestimmt worden sein.

Die untersuchte Struktur ist mit einer Domänenbreite von $10,4\mu\text{m}$ am Rande des Auflösungsvermögens des zur Verfügung stehenden experimentellen Aufbaus. Dies wurde sowohl bei den Transmissionsmessungen als auch bei den Schlierenmessungen deutlich. Mit den durchgeführten Messungen konnten jedoch Indizien aufgezeigt werden, die auf die Richtigkeit des vorgestellten Modells (oszillierendes Verhalten) hindeuten. Ferner konnten mit den Schlierenmessungen bei angelegter Spannung Domänen sichtbar gemacht und Rückschlüsse auf den „Duty-Cycle“ gezogen werden. Zur exakten Verifikation und Berechnung der Breiten der Übergangszonen müsste in weiterführenden Experimenten das Auflösungsvermögen des verwendeten Schlierenmessplatzes erhöht werden. Auf diese Weise könnten genauere Informationen erhalten werden.

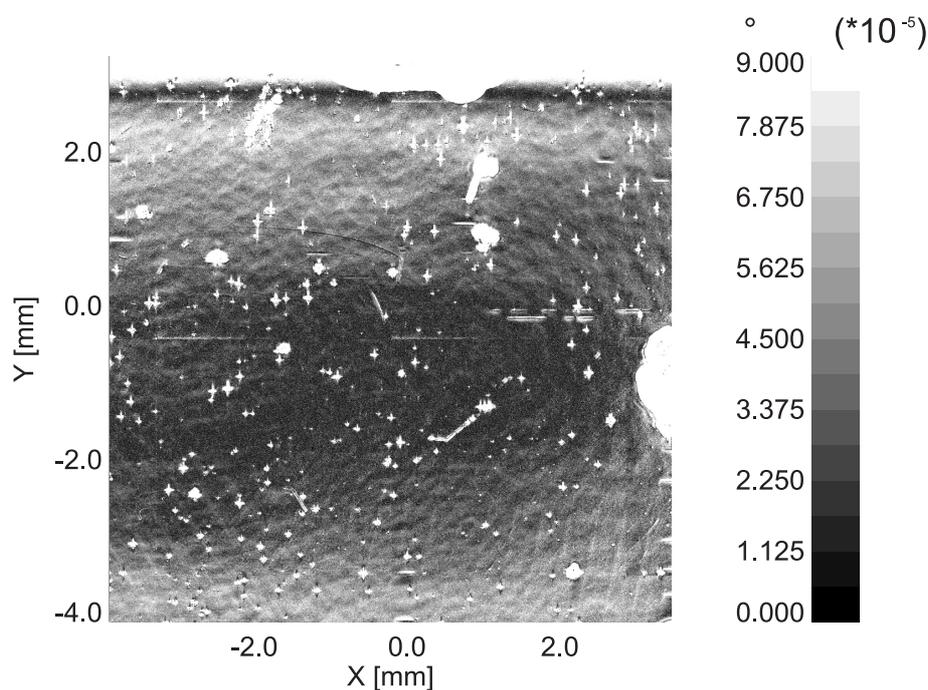


Abbildung 5.16: Ergebnisse einer Schlierenmessung des Kristalls AND16002 vor der Domäneninversion.

Schlierenuntersuchungen an den Kristallen AND16002 und AND19001 ohne anliegende elektrische Spannung

In Kaliumniobat gibt es eine Reihe von Phänomenen, deren Ursache bisher noch nicht geklärt wurde. So wurden innerhalb von Bulk - Kristallen Strukturen entdeckt, die als Streuzentren innerhalb des Kristall wirken [Ry03, We03]. Die Streuzentren könnten die Ursache für bisher nicht geklärte Verminderungen der Frequenzkonversionseffizienzen innerhalb von KNbO_3 sein [We03].

Ferner tritt nach der Inversion der ferroelektrischen Domänen innerhalb des Kristalls eine Trübung auf, die nach einigen Tagen wieder verschwindet [Ze032].

Eine mögliche Erklärung dieser Phänomene wäre das Auftreten von kristallinen Feldern, eventuell bedingt durch Störungen der Stöchiometrie.

Für das Material LiTaO_3 konnten von V. Gopalan et al. [GG962] Strukturen nachgewiesen werden, die zu Strahlablenkungen führen. Die Strahlablenkungen wurde auf kristallinterne Felder zurückgeführt. Diese wurden durch eine nichtstöchiometrische Zusammensetzung des Materials und durch OH^- Gruppen erklärt [GG96]. Die Größe dieser kristallinternen

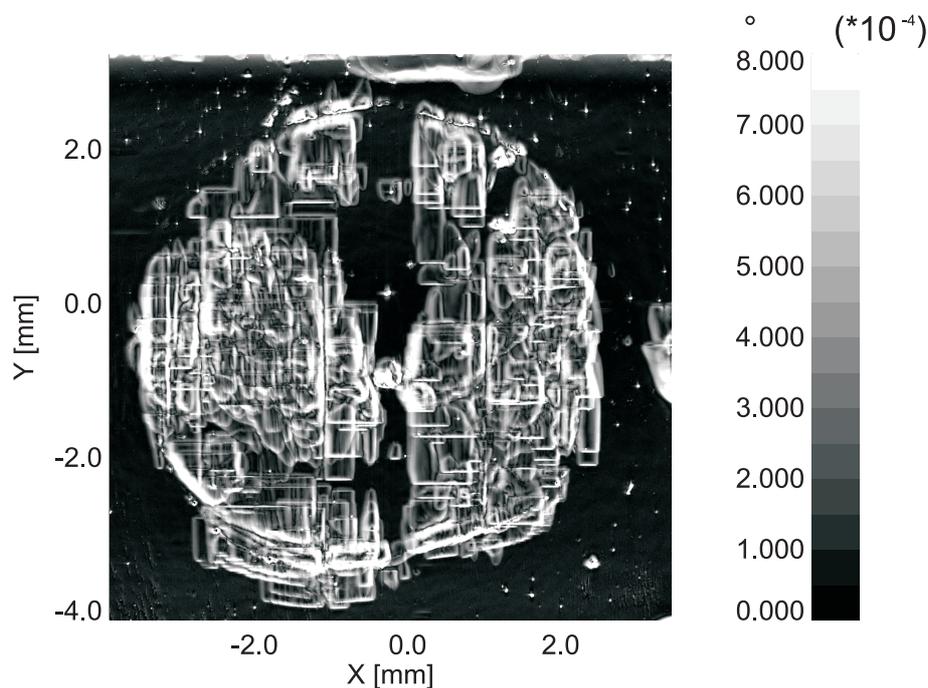


Abbildung 5.17: Ergebnisse einer Schlierenmessung des Kristalls AND16002 nach der Domäneninversion. Es sind deutlich Strukturen innerhalb des Kristalls zu erkennen, die auf kristallinterne Felder E_{Int} zurückzuführen sind.

Felder wurde dabei zu $50 \frac{\text{kV}}{\text{cm}}$ [GG962] bestimmt. Zur Bestimmung der Größe dieser elektrischen Felder wurde an die Kristalle eine elektrische Spannung angelegt. Durch Variation der Spannung wurde die gesamte Abhängigkeit der spontanen Polarisation vom angelegten elektrischen Feld aufgezeichnet (Dielektrische Hysteresekurve). Aus der Asymmetrie der Hysteresekurve lässt sich die Größe der kristallinternen Felder bestimmen. Dabei wurden die in den Kristallen befindlichen Strukturen zerstört.

Kristallinterne Felder sollten bedingt durch den elektrooptischen Effekt zu Variationen der optischen Weglänge für durch den Kristall transmittierte Strahlung führen. Diese Variationen sollten durch Bestimmung der Ablenkungswinkel mit dem Schlierenmessplatz nachweisbar sein.

Während der Untersuchungen an den QPM - Kristallen AND16002 und AND19001 wurde festgestellt, dass auch ohne anliegende elektrische Spannung nach der Domäneninversion strahlableitende Strukturen innerhalb des Kristalls aufzufinden sind, die vor der Domäneninversion nicht vorhanden waren.

Schlierenuntersuchungen an dem Kristall AND16002 mit unpolarisierter Strahlung

Die Abbildungen 5.16 und 5.17 zeigen die Ergebnisse von Schlierenmessungen an dem Kristall AND16002 vor und nach der Inversion der ferroelektrischen Domänen. Die Messungen wurden mit unpolarisiertem Licht durchgeführt. In der Abbildung 5.17 sind deutlich Strukturen zu erkennen, in denen der gemessenen Ablenkwinkel stark ansteigt.

Diese Strukturen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstmals in Kaliumniobat KNbO_3 nachgewiesen.

Die mit dem Schlierenmessplatz bestimmten Strahlablenkungen ohne ein äußeres elektrisches Feld lassen direkte Rückschlüsse auf die eben angesprochenen kristallinternen Felder zu.

Nach Feststellung der Strukturen in Kaliumniobat wurden zunächst Untersuchungen mit einem Rasterkraftmikroskop durchgeführt, um zu prüfen, ob die mit dem Schlierenmessplatz gemessenen Ablenkungen auf Oberflächenstrukturen zurückzuführen sind. Bei den Messungen konnten keine Verformungen der Oberfläche nachgewiesen werden, die in Verbindung zu den strahlablenkenden Strukturen standen.

Da relevante Oberflächenstrukturen fehlen, wurde im folgenden in erster Näherung davon ausgegangen, dass die geometrische Weglängenänderung (piezoelektrischen Eigenschaften) des Kristalls bei der Berechnung der kristallinternen Felder ohne angelegte Spannung vernachlässigt werden können. Die der Schlierenmessung entnehmbaren Ablenkwinkel werden in dieser Näherung also einzig auf den primären und den sekundären elektrooptischen Effekt zurückgeführt. Die entsprechenden Koeffizienten entfallen in den Gleichungen (5.23) - (5.25).

Für die kristallinternen Felder E_{Int} gilt nach Einsetzen einer der Gleichungen (5.23) - (5.25) in Gleichung (5.22):

$$E_{Int} = \frac{\alpha \cdot D}{2 \cdot \Delta L_{Opt}^{konst,i}} \quad (5.26)$$

Mit $i \in 1, 2, 3$.

Zur Bestimmung der Größe der kristallinternen Felder wurden die ermittelten Werte für die Strahlablenkwinkel α vor und nach der Domäneninversion voneinander abgezogen, so kann ein Offset durch bereits vor der Domäneninversion vorhandene strahlablenkende Strukturen berücksichtigt werden. Die internen Felder wurden nun mittels der Gleichungen (5.26) und (5.25) bestimmt. Die Breite der Übergangszonen wurde aus der graphischen Darstellung der Ergebnisse der Messung, die in Abbildung 5.17 dargestellt ist, zu $4 \mu\text{m}$ abgeschätzt. Dieser Wert ist ein typischer Wert, wie er aus den Ergebnissen der Schlierenmessungen bestimmt wurde. Die Größe der kristallinternen Felder wurde durch Mittelung

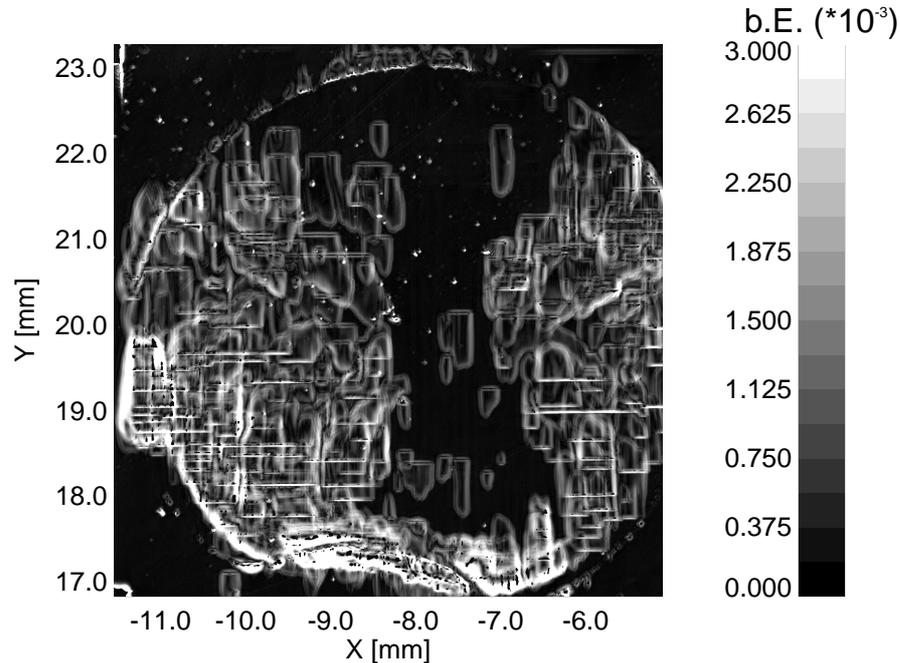


Abbildung 5.18: In s-polarisierter Strahlung sind die Strukturen innerhalb des Kristalls nach der Domäneninversion deutlich zu erkennen

über 3680 Punkte zu $E_{Int} \approx 7,8 \frac{\text{V}}{\text{mm}}$ bestimmt.

Schlierenuntersuchungen an dem Kristall AND19001 mit polarisierter Strahlung

Durch eine unpolarisierte Messung können die Strahlablenkungen auf die Brechungsindizes n_a und n_b des untersuchten Kaliumniobat Kristalls zurückgeführt werden. Um zu klären, ob sich die internen Felder tatsächlich auf beide Brechungsindizes auswirken, wurden an dem Kristall AND19001 Schlierenmessungen mit polarisierter Strahlung durchgeführt.

Die Abbildungen 5.18 und 5.19 zeigen Schlierenmessungen des Kristalls AND19001 nach der Domäneninversion, einmal mit s-polarisiertem ($E \parallel a$) Licht gemessen (Abbildung 5.18) und einmal mit p-polarisiertem ($E \parallel b$) Licht (Abbildung 5.19) gemessen.

Die Messungen zeigen, dass die Strahlablenkungen in erster Linie auf Variationen des Brechungsindex n_a zurückzuführen sind, da die Strukturen nur mit s-polarisierter Strahlung nachgewiesen werden können. Bei der Berechnung der kristallinternen Felder kann also Gleichung (5.23) angewendet und die Variation des Brechungsindex n_b und die damit verbundenen optische Weglängenänderung vernachlässigt werden. Die mit dieser Methode bestimmte Größe der kristallinternen Felder hatte typische Werte von $E_{Int} \approx 4,8 \frac{\text{V}}{\text{mm}}$

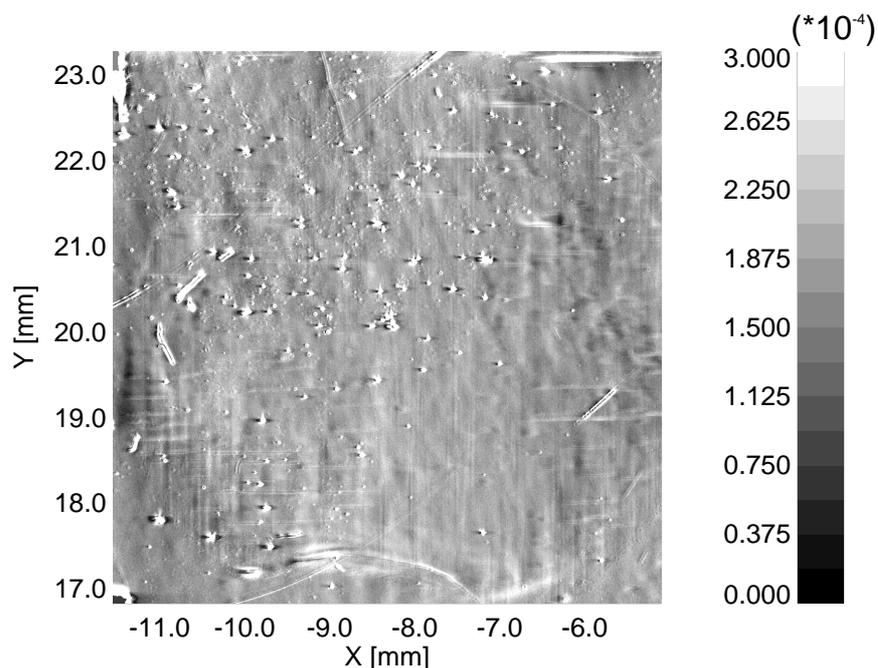


Abbildung 5.19: In p-polarisierter Strahlung sind die Strukturen kaum zu erkennen, für Details siehe Text.

(Mittelung über 1612 Punkte).

In diesem Kapitel wurde eine neue zerstörungsfreie Methode zur Qualitätskontrolle und quantitativen Untersuchung von QPM - Kristallen vorgestellt. Mit dieser Methode können zerstörungsfrei zweidimensionale Informationen über die Domänenstruktur von QPM-Kristallen gewonnen werden.

In der vorliegenden Arbeit wurden erstmals kristallinterne Felder innerhalb von Kaliumniobatkristallen nach einer Inversion ferroelektrischer Domänen im elektrischen Feld nachgewiesen und deren Größe experimentell bestimmt. Es konnte gezeigt werden, dass die Felder in erster Linie zu Variationen des Brechungsindex n_a des Materials führen. In erster Näherung konnte die Größe der kristallinternen Felder so zerstörungsfrei zu $E_{Int} \approx 4,8 \frac{\text{V}}{\text{mm}}$ bestimmt werden.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Entwicklung, experimentellen Realisierung und Anwendung neuer Messmethoden zur Untersuchung von Eigenschaften, die die Effizienz der Frequenzkonversion optisch nichtlinearer Kristalle für die Phasen- und Quasiphasenanpassung beeinflussen. Die Messmethoden sollten zerstörungsfreie, räumlich zweidimensional aufgelöste qualitative und präzise quantitative Messungen ermöglichen.

Zur Untersuchung der Qualität und der Eigenschaften von optisch nichtlinearen Kristallen wird häufig die bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen erreichte Frequenzkonversionseffizienz genutzt. Da die Konversionseffizienz durch eine Reihe von Faktoren und Kristalleigenschaften beeinflusst wird, sind diese Messungen nur im begrenzten Maße zur Charakterisierung von Kristallen geeignet. Die verschiedenen Eigenschaften können weiterhin räumlich stark variieren. Deshalb musste ein Messverfahren entwickelt werden, mit dem die Bestimmung der räumlichen Variation verschiedener für die Konversionseffizienz relevanter Eigenschaften möglich ist.

Wichtige Eigenschaften, die die Konversionseffizienz beeinflussen, sind die Homogenität der Doppelbrechung, die Wellenlängenakzeptanzbandbreite, die Phasenanpassungstemperatur, die Phasenanpassungswellenlänge und die Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge. Zur Bestimmung dieser Parameter ist es notwendig, die Wellenlängen- oder Temperaturabhängigkeit der relativen Konversionseffizienz hinreichend genau zu bestimmen.

In bisherigen experimentellen Realisierungen zur Bestimmung von Akzeptanzkurven wurden diese durch Änderung der Temperatur des nichtlinearen Kristalls [Na69] oder durch Variation der eingestrahelten Fundamentalwellenlänge [P195] bestimmt. Diese Methoden sind sehr zeitaufwendig, weshalb die innerhalb einer vorgegebenen Zeit erreichbare räumliche Auflösung stark limitiert ist.

Von V. Wesemann [We02] wurden ultrakurze Laserimpulse zur Bestimmung der Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Wellenlänge vorgeschlagen. Mit dieser Methode ist es wegen der großen spektralen Breite ultrakurzer Impulse im fs - Bereich prinzipiell möglich, die Spektren der Fundamentalstrahlung und der zweiten Harmonischen in einem „Einschuß-Verfahren“ zu realisieren. Die Methode wurde exemplarisch an einem Punkt eines Kristalls durch manuelles Auslösen zweier Spektrometer realisiert und zur Bestimmung des Doppelbrechungshomogenitätsparameter α genutzt.

Auf diesem Prinzip aufbauend wurde ein neuer, experimenteller Aufbau realisiert, charakterisiert und optimiert, mit dem die oben beschriebenen Parameter räumlich aufgelöst bestimmt werden können. Während jeder Messung wird die Homogenität der Doppelbrechung, die Wellenlängenakzeptanzbandbreite und die Phasenanpassungswellenlänge orts-aufgelöst bestimmt. Durch systematische Messungen bei verschiedenen Kristalltemperaturen wurde das Verfahren im Hinblick auf die Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge und der Phasenanpassungstemperatur erweitert.

Das Verfahren besitzt eine hohe räumliche Auflösung von $80 \mu\text{m}$. Wesentliche Voraussetzung für diese hohe Auflösung ist eine hohe Langzeitstabilität. Der realisierte experimentelle Aufbau besitzt eine Langzeitstabilität mit Abweichungen unter 1 % für die untersuchten Parameter und eine hohe Absolutgenauigkeit. Die Phasenanpassungswellenlänge kann in Abhängigkeit von der Temperatur mit einer Genauigkeit von $\pm 0,13 \text{ nm}$ und der Doppelbrechungshomogenitätsparameters α mit einem relativen Fehler von 2,5 % bestimmt werden.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Charakterisierung optisch nichtlinearer Materialien für die Frequenzverdopplung von Strahlung bei einer Fundamentalwellenlänge von 860 nm. Durch die Untersuchungen konnte die Leistungsfähigkeit der neuen Messmethode gezeigt und verschiedene Materialien umfassend charakterisiert werden. Ein erster Schritt zur Beurteilung der Qualität eines Kristalls ist ein Vergleich relevanter Eigenschaften mit den Materialparametern (Referenzwerten) für das Material. In dieser Arbeit wurden mehrere KNbO_3 -Kristalle untersucht und durch Untersuchung der Doppelbrechungshomogenität in eine qualitätsbezogene Reihenfolge gebracht. Durch Mittelwertbildung über die Ergebnisse der Messungen der besten Kristalle wurden Materialkonstanten für wichtige optischen Eigenschaften bestimmt und verifiziert.

Für nichtkritische Frequenzverdopplung von 860 nm-Strahlung wurden Referenzwerte für das Wellenlängenakzeptanzbandbreiten - Längenprodukt ($\Delta\lambda \cdot L = (0,089 \pm 0,004) \text{ nm} \cdot \text{cm}$), die Phasenanpassungstemperatur für Strahlung der Wellenlänge 860 nm ($T_{PM} = (28,72 \pm 0,09) \text{ }^\circ\text{C}$), die Phasenanpassungswellenlänge bei Raumtemperatur ($\lambda_{PM} = (857,53 \pm 0,04) \text{ nm}$) und die Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge

$(\frac{d\lambda_{PM}}{dT} = (0,389 \pm 0,004) \frac{\text{nm}}{\text{K}})$ bestimmt. Bei den Untersuchungen konnte die Leistungsfähigkeit der neuen fs-Messmethode zur Charakterisierung optisch nichtlinearer Kristalle gezeigt werden. So konnten eindeutige Unterschiede der untersuchten Eigenschaften zwischen den Kristallen aufgezeigt werden. Ferner konnten auch in bisher als sehr homogen eingeschätzten Kristallen eindeutige räumliche Variationen der Kristalleigenschaften bestimmt werden. Die Ursachen der Variationen sind in erster Linie auf ferroelektrische Domänen innerhalb der Kristalle zurückzuführen. Die Domänen wirken sich dabei in einem weiten Bereich innerhalb der Kristalle aus.

Durch Variation der Stöchiometrie ist es möglich, Einfluss auf wichtige Eigenschaften eines Materials zu nehmen. Im Rahmen dieser Arbeit stand ein KNbO_3 - Kristall zur Verfügung, in dem durch Verwendung eines anderen Lösungsmittels versucht wurde, die Stöchiometrie zu verändern. Der Kristall wurde für die Erzeugung der zweiten Harmonischen bei einer Fundamentalwellenlänge von 860 nm umfassend zweidimensional aufgelöst charakterisiert. Die Untersuchungen wurden durchgeführt, um Hinweise auf eine veränderte Stöchiometrie zu finden. Dazu wurde der Kristall mit konventionellem KNbO_3 verglichen. In den Untersuchungen zur Bestimmung der Homogenität der Doppelbrechung erwies sich der Kristall als sehr inhomogen mit einem über den Kristall gemittelten Wert des Doppelbrechungshomogenitätsparameters α von 1,53. An einer homogenen Stelle des Kristalls ($\alpha = 1,13$) wurde das Wellenlängenakzeptanz-Längenprodukt ($\Delta\lambda \cdot L = (0,089 \pm 0,004) \text{ nm}\cdot\text{cm}$), das Temperaturakzeptanz-Längenprodukt ($\Delta T \cdot L = (0,410 \pm 0,004) \text{ K}\cdot\text{cm}$), das Winkelakzeptanz-Längenprodukt bezüglich Variation des Polar- ($\Delta\theta_{int} \cdot L = (0,67 \pm 0,01) \text{ }^\circ\cdot\text{cm}$) und des Azimutwinkels ($\Delta\phi_{int} \cdot L = (0,87 \pm 0,01) \text{ }^\circ\cdot\text{cm}$) und die Temperaturabhängigkeit der Phasenangepassungswellenlänge ($\frac{d\lambda_{PM}}{dT} = (0,390 \pm 0,001) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$) bestimmt. Der Kristall hat mit seiner geringen Homogenität, seiner kleineren Wellenlängenakzeptanzbandbreite und seiner früher einsetzenden Absorption im kurzwelligeren Bereich ($\approx 500 \text{ nm}$) eindeutige Nachteile zu konventionellem KNbO_3 . Die geringe Homogenität des Kristalls erschwert auch den Vergleich mit den Eigenschaften von KNbO_3 . Die Abweichungen der untersuchten Eigenschaften waren häufig auf die schlechte Qualität des Kristalls zurückzuführen. Auffallend war bei dem Material allerdings eine deutlich abweichende Phasenangepassungstemperatur. Der für das Material bestimmte Wert für nichtkritische Phasenangepassung zur Frequenzverdopplung der Strahlung mit einer Wellenlänge von 860 nm beträgt $31,71 \text{ }^\circ\text{C}$. Dieser Wert ist $3 \text{ }^\circ\text{C}$ höher als der für KNbO_3 bestimmte Wert. Auf Grundlage der Erfahrungen mit LiNbO_3 deutet dieses Ergebnis auf eine Variation der Stöchiometrie hin.

BiB_3O_6 ist erst kurze Zeit in optisch guter Qualität erhältlich [Be99]. Untersuchungen zur Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge um 1064 nm zeigten, dass es sich um ein attraktives neues Material für diese Wellenlänge handelt [We02]. Wegen der gerin-

gen Absorption des Materials im kurzwelligigen Spektralbereich und den großen nichtlinearen Koeffizienten sollte das Material auch für die Frequenzverdopplung von Strahlung der Wellenlänge 860 nm geeignet sein. BiB_3O_6 wurde deshalb erstmals für Frequenzverdopplung dieser Strahlung umfassend zweidimensional aufgelöst charakterisiert. Wichtige Kristalleigenschaften von BiB_3O_6 wurden diesbezüglich erstmals gemessen. Dazu gehören die Temperaturabhängigkeit des Phasenanpassungswinkels $\frac{d\theta_{PM}}{dT} = (0,05758 \pm 0,00042) \frac{\circ}{\text{K}}$ sowie das Winkelakzeptanz-Längenprodukt $\Delta\theta_{int} \cdot L = (0,32 \pm 0,06) \circ \cdot \text{cm}$. Ein großer Vorteil von BiB_3O_6 ist das im Vergleich zu KNbO_3 sehr große Wellenlängenakzeptanz-Längenprodukt ($\Delta\lambda \cdot L = (1,34 \pm 0,03) \text{ nm} \cdot \text{cm}$). In BiB_3O_6 können somit effizient ultrakurze Laserimpulse konvertiert werden. Weitere Vorteile von BiB_3O_6 sind die geringe Temperaturabhängigkeit der Phasenanpassungswellenlänge ($\frac{d\lambda_{PM}}{dT} = (0,191 \pm 0,017) \frac{\text{nm}}{\text{K}}$) und das im Vergleich zu KNbO_3 sehr große Temperaturakzeptanzbandbreiten-Längenprodukt ($\Delta T \cdot L = (7,145 \pm 0,007) \text{ K} \cdot \text{cm}$). BiB_3O_6 ist damit insbesondere geeignet für Systeme mit geringer Temperaturstabilität und für die Frequenzverdopplung ultrakurzer Lichtimpulse.

Im zweiten Teil der vorliegenden Dissertation wurde das etablierte Schlierenverfahren im Hinblick auf eine neue räumlich aufgelöste Methode zur Charakterisierung von Kristallen für die Quasiphasenanpassung optimiert. Mit dem Verfahren ist die zerstörungsfreie Untersuchung von Kristallen nach einer Domäneninversion möglich. Ohne aufwendiges Anätzen des Kristalls sind mit dieser neuen Methode Rückschlüsse auf wichtige Eigenschaften, wie den „Duty-Cycle“ der periodischen Struktur, möglich. Weiterhin konnten mit diesem Verfahren erstmals lokale kristallinterne Felder nachgewiesen werden, die durch die Domäneninversion in KNbO_3 verursacht wurden.

Die kristallinternen Felder wirken sich durch den elektrooptischen Effekt auf die Brechungsindizes des Kristalls aus und führen so zu einer Strahlablenkung von durch den Kristall transmittiertem Licht. Experimentell konnte gezeigt werden, dass die Felder in erster Linie Auswirkungen auf den Brechungsindex n_a des Kristalls haben. Zur Bestimmung der Größe der kristallinternen Felder musste ein Modell entwickelt werden, das den Übergang zwischen zwei Bereichen unterschiedlicher spontaner Polarisation beschreibt. Durch Bestimmung der feldinduzierten Ablenkungswinkel konnten die Größe der Felder so zerstörungsfrei zu 4,8 V/mm bestimmt werden. Dies entspricht etwa 1 % der Koerzitivfeldstärke von KNbO_3 .

Die in dieser Arbeit entwickelten Messverfahren zur zerstörungsfreien Untersuchung optisch nichtlinearer Kristalle für Phasen- und Quasiphasenanpassung stellen eine Grundlage zur weitergehenden Untersuchung der Zusammenhänge zwischen den durch die Stöchiometrien, Inhomogenitäten und Domänen verursachten optischen Eigenschaften und den erzielbaren Konversionseffizienzen dar.

Literaturverzeichnis

- [AC00] SD. Alexandrov und I. Chernyh; "Interference method for determination of the refractive index and thickness"; Opt. Eng. **Vol 39. 9**, 2480 (2000).
- [Ar88] L. Arizmendi; "Simple holographic method for determination of Li/Nb ratio and homogeneity of $LiNbO_3$ crystals"; Journal of applied physics **Vol 64 .9**, 4654 (1988).
- [Ar62] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing und P.S. Pershan; "Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric"; Physical Review **Vol 127 .6**, 1918 (1962).
- [Ba84] J.-C. Baumert; "Nonlinear optical effects in $KNbO_3$ crystals at $Al_xGa_{1-x}As$, dye, ruby and Nd:YAG laser wavelengths"; Proc. SPIE **492**, 374 (1984).
- [Be99] P. Becker, J. Liebertz und L. Bohatý; "Top-seeded growth of bismuth triborate, BiB_3O_6 "; J. Cryst. Growth **203**, 149 (1999).
- [Bi92] B. I. Biaggio, P. Kerkoc, L.-S. Wu, P. Günter und B. Zysset; "Refractive indices of orthorhombic $KNbO_3$. II. Phase-matching configurations for nonlinear-optical interactions"; J. Opt. Soc. Am. B **Vol 9**, (1992).
- [BC90] P.N. Butcher und D. Cotter; "The Elements of Nonlinear Optics"; First paperback edition; Printed in Great Britain at the Athenaeum Press Ltd Newcastle upon Tyne (1991).
- [BH98] S. I. Bozhevolnyi, J.M. Hvam, K. Pedersen, F. Laurell, H. Karlsson, T. Skettrup und M. Belmonte; "Second-harmonic imaging of ferroelectric domain walls"; Applied Physics Letters **Vol 73**, 13 (1998).
- [BK68] G. D. Boyd und D.A. Kleinman ; "Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams"; Journal of applied physics , 3597 (1968).

- [Bo92] R. W. Boyd; "Nonlinear Optics"; Academic Press, San Diego, (1992).
- [Bu72] O. F. Butyagin; "Influence of a linear inhomogeneity of the refractive index of nonlinear crystals on second-harmonic generation"; Soviet Journal of quantum electronics **Vol. 2, 1**, 18 (1972).
- [Ch99] H. Chaib, D. Khatib, A. Toumanari and W. Kinase; "Theoretical study of temperature dependence of spontaneous polarization, optical properties and linear electro-optic coefficients of tetragonal KNbO_3 "; J.Phys.:Condens Matter **12**, (2000).
- [CM73] H.M. Cox und D. McLachlan Jr.; "The use of a Schlieren type microscope in the study of crystal growth"; J.Cryst.Growth **23**,71 (1973).
- [Cz03] C. Czeranowsky, E. Heumann und G. Huber.; " All - solid - state continuous - wave frequency - doubled Nd:YAG - BIBO Laser with 2.8 - W output power a 473 nm"; J.Cryst.Growth **23**,71 (1973).
- [Czo18] J. Czochralski; "Ein neues Verfahren zur Messung der Kristallisationsgeschwindigkeit der Metalle"; Z. Phys. Chemie, **92**,219-221 (1918).
- [Da70] S.P. Davis; "Diffraction Grating Spectrographs"; Holt, Rinehard and Winston; (1970).
- [De93] W. Demtröder; "Laserspektroskopie"; Springer - Verlag Berlin Heidelberg New York London Paris; 3. Auflage (1993).
- [De95] W. Demtröder; "Experimentalphysik"; Springer - Verlag Berlin Heidelberg New York London Paris; 1. Auflage (1995).
- [Di00] DIN Deutsches Institut für Normung e.V.; "DIN/ISO 10110, Optik und optische Instrumente, Erstellung von Zeichnungen für optische Elemente und Systeme"; (2000).
- [DGN91] V.G. Dmitriev und G.G. Gurzadyan und D.N. Nikogosyan; "Handbook of Nonlinear Optical Crystals"; Springer - Verlag Berlin Heidelberg New York London Paris(1991).
- [DK71] A.V. Dudenkova, V.A. Kalacheva Y.M. Popov and N.N. Shuikin; "Investigation of the optical inhomogeneity of Gallium Arsenide single crystals"; Soviet Physics - Semiconductors **Vol 5. 1**, 1 (1971).

- [DM90] M.A. Dreger und J.K. McIver; "Second-harmonic generation in a nonlinear, anisotropic medium with diffraction and depletion"; J. Opt. Soc. Am. B **Vol 7. 5**, 776 (1990).
- [DS88] K. W. DeShazer und J.M. Egglestone ; "Saturation of green absorption in titanium-doped sapphire laser crystals"; Optics letters **13**, 363 (1988).
- [EG98] L.M. Eng, H.J. Güntherodt, G. Rosenman, A. Skilar, M. Oron, M. Katz und D. Eger; "Nondestructive imaging and characterization of ferroelectric domains in periodically poled crystals"; Journal of applied physics **Vol 83**, 11 (1998).
- [Fe92] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt and R.L. Byer; "Quasi-phase-matched second harmonic generation: Tuning and tolerances"; IEEE J. Quantum Electron. **Vol 28**, 2631 (1992).
- [FF83] J.A. Fleck und M.D. Feit; "Beam propagation in uniaxial anisotropic media"; J. Opt. Soc. Am. **Vol 73. 7**, 920 (1983).
- [Fl78] U. Flückinger und H. Arend; "On The Preparation Of Pure, Doped And Reduced KNbO₃ Single Crystals"; J. of Crystal Growth **Vol 43**, 408 (1978).
- [Fr84] R. Fröhlich, L. Bohaty und J. Liebertz; "Die Kristallstruktur von Wismutborat"; Acta Crystallogr. Sect. C: Cryst. Struct. Commun. **40**, 343 (1984).
- [Fu72] T. Fukuda und Y. Uematsu; "Preparation of KNbO₃ single crystal for optical applications"; Jpn. Appl. Phys. **Vol 11**, 163 (1972).
- [Fu74] T. Fukuda und Y. Uematsu; "Kyropoulos Growth And Perfection Of KNbO₃ Single Crystal"; J. of Crystal Growth **Vol 24/25** , 450 (1974).
- [GF79] S. Guha und J. Falk; "The effects of focusing in the three-frequency parametric upconverter"; Journal of applied physics **Vol 51(1)**, 50 (1979).
- [GG962] V. Gopalan und M.C. Gupta; "Observation of internal field in LiTaO₃ single crystals: Its origin and time - temperature dependence"; Applied Physics Letters **Vol 68**, 7 (1996).
- [GG96] V. Gopalan und M.C. Gupta; "Origin of internal field and visualization of 180° domains in congruent *LiTaO₃* crystals"; Journal of applied physics **Vol 80**, 11 (1996).

- [Gi61] J.A. Giordmaine; "Mixing of light beams in crystals"; Physical review letters **Vol 8. 1**, 19 (1961).
- [GM98] V. Gopalan, T.E. Mitchell, Y. Furukawa und K. Kitamura; "The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of $LiNbO_3$ crystals"; Applied Physics Letters **Vol 72**, 16 (1998).
- [GiM99] V. Gopalan und T.E. Mitchell; "In situ video observation of 180° domain switching in $LiTaO_3$ by electro-optic microscopy"; Applied Physics Letters **Vol 85.4**, 2304-2311 (1999).
- [GM99] V. Gopalan, Q.X. Jia und T.E. Mitchell; "In situ video observation of 180° domain kinetics in congruent $LiNbO_3$ crystals"; Applied Physics Letters **Vol 75**, 16 (1999).
- [HB97] S. Hughes und J.M. Burzler; "Theory of Z-Scan measurements using Gaussian-Bessel beams"; Physical Review A **Vol 56. 3**, 1103 (1997).
- [He00] H. Hellwig, J. Liebertz und L. Bohaty; "Linear optical properties of the monoclinic bismuth borate BiB_3O_6 "; Journal of Applied Physics **Vol 88**, 240 (2000).
- [He01] J. Hellström, R. Clemens, V. Pasiskevicius, H. Karlsson, and F. Laurell; "Real-time and in situ monitoring of ferroelectric domains during periodic electric field poling of $KTiOPO_4$ "; Journal of Applied Physics **Vol 90. 3**, 1489 (2001).
- [HKB98] C. Horst, K. Kasemir und K. Betzler; "Determination of homogeneity of pure and doped lithium niobate by second harmonic generation temperature phase matching"; Journal of Applied Physics **Vol 84. 9**, 5158 (1998).
- [HN96] A. Harada und Y. Nihei; "Bulk periodically poled $MgO-LiNbO_3$ by corona discharge method"; Appl. Phys. Lett. **Vol 69**, 2629 (1996).
- [Ho84] W.L. Howes; "Rainbow Schlieren and its applications"; Appl. Opt. **23**, 2449-2460 (1984).
- [Ho85] W.L. Howes; "Rainbow Schlieren vs Mach-Zehnder interferometer: a comparison"; Appl. Opt. **34**, 816-822 (1984).
- [Gr95] P.S. Greenberg, R.B. Klimek, and D.R. Buchele; "Quantitative rainbow schlieren deflectometry"; Appl. Opt. **Vol 34**, (1995).

- [Ji93] W. Jin, J. Chen, W. Li, and H. Yan; "Development of optical system for high temperature in situ observation of oxide crystal growth"; *Ferroelectrics* **142**, 13 (1993).
- [Ju93] D.H. Jundt, P. Günter und B. Zysset; "Unbekannt"; *Nonlinear Opt.* **4**, 341-345 (1993).
- [Ka82] K. Kato; "High-Efficiency High-Power Parametric Oscillation in KNbO_3 "; *IEEE Journal of Quantum Electronics* **Vol 18. 4**, 451 (1982).
- [Ka92] J.D. Kafka, M.L. Watts, and J.W. Pieterse; "Picosecond und femtosecond pulse generation in a regeneratively mode-locked Ti:sapphire laser"; *IEEE Journal of Quantum Electronics* **Vol 28**, 2151 (1992).
- [Ka99] S.E. Kapphan; "Spatially resolved second-harmonic generation in ABO_3 -type ferroelectric crystals"; *J. Lumin.* **83**, 411 (1999).
- [Ke91] U. Keller, G. W. 't Hooft, W. H. Knox, J.E. Cunningham ;"Femtosecond Pulses from a Continuously Self-Starting Passively Mode Locked Ti:Sapphire Laser"; *Opt. Lett.* **Vol 16**, 1022 (1991).
- [Ki80] K. Kitamura, S. Kimura and S. Hosoya; "The interface shapes of some oxide materials grown by the floating zone method"; *J. Chem. Phys.* **44**, 658 (1965).
- [Ki85] C. Kittel; "Einführung in die Festkörperphysik" ; R. Oldenbourg Verlag München Wien; 12. Auflage (1999).
- [Ki69] R. Kingslake; "Applied Optics and Optical Engineering" ; Volume 5 Optical Instruments; Academic Press (1969).
- [KI97] S. Kleine, W.J.P. van Enckevort, and J. Derix; "A dark filed type Schlieren microscope for quantitative, in situ mapping of solute concentration profiles around growing crystals "; *J. Cryst. Growth* **179**, (1997).
- [Ko88] W. Koechner; "Solid State Laser Engineering" ; Springer Series in Optical Science, Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York; (1988).
- [Ko28] W. Kossel; "Falkenhagen: Quantentheorie und Chemie"; Hirzel, Leipzig; (1928).
- [KS99] F.K. Kneubühl und M.W. Sigrist; "Laser"; Teubner Studienbücher Physik; Stuttgart Leipzig, (1999).

- [Ku68] S.K. Kurtz und T.T. Perry; "A powder technique for the evaluation of nonlinear optical material"; J. Appl. Phys. **Vol 39**, 3798 (1968).
- [La99] P. Laubereau; "Quantenoptik"; Überarbeitete Vorlesungsmitschrift der Vorlesung Prof. Laubereau; Technische Universität München (1999).
- [Li82] J. Liebertz; "Metrik und Raumgruppe von BiB_3O_6 "; Z. für Kristallogr. **158**, 319 (1982).
- [Lh03] J.A. L'huillier; "Untersuchung und Modellierung der optischen Eigenschaften von $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ in Abhängigkeit von der Nd^{3+} Konzentration "; Dissertation Universität Kaiserslautern, (2003).
- [LM62] E.M. Levin und C.L. McDaniel; "The System $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{B}_2\text{O}_3$ "; J. Am. Ceram. Soc **45**, 355 (1962).
- [Ly91] A.M. Lyalikov; "Quantitativ testing of optical components by Schlieren method"; Sov. J. Opt. Technol. **Vol 58**, (1991).
- [Ly95] A.M. Lyalikov; "Quantitativ Schlieren Method for Studying the Wavefront Reconstructed from a Hologram"; Optics and Spectroscopy **Vol 78**, (1995).
- [Ma51] B.T. Matthias, and J.P. Remeika; "Dielectric properties of sodium and potassium niobates"; Phys. Rev. **82**, (1951).
- [Ma60] P.H. Maiman "Stimulated optical radiation in ruby"; Nature **Vol 187**, 493 (1960).
- [Ma62] P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenoff, and C.M. Savage; "Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics"; Phys. Rev. Lett. **8**, 21 (1962).
- [Ma94] H. Mabuchi, E.S. Polzik, and H.J. Kimble; "Blue-light-induced infrared absorption in KNbO_3 "; J. Opt. Soc. Am. B **11**, 163 (1972).
- [Ma01] S. Marzenell; "Untersuchung und Charakterisierung von Femtosekunden optisch parametrischen Oszillatoren im nahen und mittleren infraroten Spektralbereich"; Dissertation Universität Kaiserslautern, (2001).
- [MB71] A. Madox und R. Binder; "New Dimension in the Schlieren Technique: Flow Field Analysis Usin Color"; Appl. Opt. **Vol 10**, 1154 (1971).

- [Me99] J.P. Meyn, M.E. Klein, D. Woll, R. Wallenstein, and D. Rytz; "Periodically poled potassium niobate for second-harmonic generation at 463 nm"; Optics letters **Vol 24. 16**, 1154 (1999).
- [Mi67] J.E. Midwinter; "Assessment of lithium-meta-niobate for nonlinear optics"; Appl. Phys. Lett. **11**, 128 (1967).
- [Mi68] J.E. Midwinter; "Lithium niobate: effects of composition on the refractive indices an optical second harmonic generation"; J. Appl. Phys. **39**, 3033 (1968).
- [Mi88] G.J. Mizell, W.R. Fay, and J. Shimoji; "Advances in the production of KNbO₃ crystals"; Proceedings of the SPIE **968**, 88 (1988).
- [Mi94] G.J. Mizell, W.R. Fay, T. Alekel, D. Rytz, and M. Garret; "Growth, properties, and applications of potassium niobate single crystals"; Proceedings of the SPIE **2115**, 19 (1994).
- [Mi97] G.D. Miller, R.G. Batchko, W.M. Tulloch, M.M. Fejer, and R.L. Byer; "42%-efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate"; Optics letters **Vol. 22**, 24 (1997).
- [Mo92] L.F. Mollenauer, J.C. White, C.R. Pollack; "Tunable lasers"; Topics in applied physics; Springer Verlag; Berlin; (1992).
- [Mo83] P.F. Moulton; "New developments in solid state lasers"; Laser Focus **Vol 14**, 83 (1983).
- [MS03] M. Müller, E. Soergel, M.C. Wengler und K. Buse; "Light deflection from ferroelectric domain boundaries"; wird veröffentlicht (2003).
- [Na73] M. Nakamura, A. Yariv, H.W. Yen, S. Somekh, H.L. Garvin; "Optically pumped GaAs surface Laser with corrugation feedback"; Applied Physic Lett. **Vol 22**, 515 (1973).
- [Na69] F.R. Nash, G.D. Boyd, M. Sargent III, and P.M. Bridenraugh; "Effect of Optical Inhomogeneities on Phase Matching in Nonlinear Crystals"; Journal of Applied Physics **Vol 41. 6**, 2564 (1970).
- [NF80] J. Noda, M. Fukuma, and J. Ito; "Phase matching temperature variation of second-harmonic generation in Li outdiffused LiNbO₃ layers"; Journal of Applied Physics **Vol 51. 3**, 1379 (1980).

- [No90] W. Nolting; "Grundkurs: Theoretische Physik 3 Elektrodynamik" ; Verlag Zimmermann-Neufang; Ulmen; 3. Auflage (1990).
- [Ny85] J. Nye; "Physical Properties of crystals" ; Oxford Science publications (1985).
- [OT76] M. Okade, T. Takizawa und S. Ieiri; "Second harmonic generation by periodic laminar structures of nonlinear optical crystal"; Opt. Commun. **18**, 331-334 (1976).
- [Pe96] F. Pedrotti, L. Pedrotti, W. Bausch und H. Schmidt; "Optik: eine Einführung"; Prentice Hall, (1996).
- [Pe03] M. Peltz; "Charakterisierung von neuen nichtlinearen Kristallen zur Frequenzkonversion von Lichtimpulsen gütegeschalteter Festkörperlaser"; Dissertation Universität Kaiserslautern, (2003).
- [Pl95] T. Pliska, F. Mayer, D. Fluck, P. Günter, D. Rytz; "Nonlinear optical investigation of the optical homogeneity of KNbO₃ bulk crystals and ion-implanted waveguides"; J. Opt. Soc. Am. B **Vol 12. 10**, 1878 (1995).
- [Pow] R. C. Powell; "Physics of Solid-State Laser Materials"; AIP Press, Springer-Verlag New York (1998).
- [PZ81] A. Pebler und J.M. Zomp; "Stabilizing the radiant flux of a xenon arc lamp"; Appl. Opt. **20**, 4059 (1981).
- [RB95] A. Reichert und K. Betzler; "Induced noncollinear frequency doubling: A new characterization technique for electro-optic crystals"; Journal of Applied Physics **Vol 79. 5**, 2209 (1996).
- [Re78] K. Recker; "Einkristallzüchtung in Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie"; Verlag Chemie, Weinheim, New York **Vol 15, 4 edn** (1978).
- [Re55] A. Reisman und F. Holtzberg; "Phase Equilibria in the System K₂CO₃-Nb₂O₅ by the Method of Differential Thermal Analysis"; Journal American Chemical Society **Vol. 77**, 2115 (1955).
- [Ro92] D.A. Roberts; "Simplified characterization of uniaxial and biaxial nonlinear crystals: a plea for standardization of nomenclature and conventions"; IEEE J. Quantum Electron **28**, 2057 (1992).
- [Ry03] D. Rytz; "Persönliche Mitteilung"; (2003).

- [Ry04] D. Rytz; "Persönliche Mitteilung"; (2004).
- [Sa91] F. Salin, J. Squier, and M. Pichéet; "Modelocking of Ti:Sapphire lasers and self focusing: a Gaussian approximation"; Opt. Lett. **Vol 16**, 1671 (1991).
- [Sc34] H. Schardin; "Das Toeplersche Schlierenverfahren"; Forschungsheft **367**, VDI Verlag Berlin (1934).
- [Sc42] H. Schardin; "Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften"; Springer Verlag, Berlin 1942, **Vol 20**, chap. Die Schlierenverfahren und ihre Anwendung (1942).
- [Sc93] U. Schlarb und K. Betzler; "Influence of the defect structure on the refractive indices of undoped an Mg - doped lithium niobate"; Phys. Ref. B, **48**, 15613 (1993).
- [Sc87] N. Schmidt, K. Betzler, and S. Kapphan; "Spatially resolved second harmonic generation and interferometric investigation of LiNbO₃ crystals"; Cryst. Lattice Defects Amorph. Mater. **15**, 103 (1987).
- [Sc89] N. Schmidt, K. Betzler, M. Grabs, S. Kapphan, and F. Klose; "Spatially resolved second-harmonic-generation investigation of proton - induced refractive index changes in LiNbO₃"; J. Appl. Physics. **65**, 1253 (1989).
- [She90] D.Z. Shen; "Recent developments in the growth and nonlinear optical applications of KNbO₃ crystals"; Prog. Crystal Growth and Charact. **Vol 20**, (1990).
- [Shu88] L.A. Shuvalov; "Modern Crystallography IV"; Springer Series in Solid State Science; Springer Verlag, Berlin **Vol 15**, (1988).
- [Si91] L. Spinelli, N. Goldblatt, and G. Feugnet; "Sub-100 femtosecond pulse generation by Kerr lens modelocking in Ti:Sapphire"; Advanced Solid State Lasers; G. Dubé, L. Chase, Eds. Optical Society of America **Vol 10**, 120 (1991).
- [Sp91] D.E. Spence, P.N. Kean und W. Sibbett; "60-fsec pulse generation from a self-modelocked Ti:Sapphire laser"; Optics letters **Vol 16**, 42 (1991).
- [Sp95] Spectra-Physics, "Tsunami, Mode locked Ti:sapphire Laser, User's Manual"; (1995).
- [Su96] R. Sutherland; "Handbook of nonlinear optics"; Marcel Dekker, Inc.; 270 Madison Avenue, New York, (1996).

- [Svel89] O. Svelto; "Principles of Lasers"; third edition; Translation of: "Principi dei laser"; Plenum Press New York and London (1989).
- [Ue74] Y. Uematsu; "Nonlinear optical properties of KNbO_3 single crystals in the orthorhombic phase"; Jpn. J. Appl. Phys. **13**, 1362 (1974).
- [Ur97] R. Urschel; "Experimentelle Untersuchung und theoretische Analyse von kritisch phasenangepaßten optisch parametrischen Oszillatoren "; Dissertation Universität Kaiserslautern, (1997).
- [Va71] L. Vasil'ev; "Schlieren methods"; Israel Program for Scientific Translations New York, Jerusalem, London, (1971).
- [Ve03] S. Vernay; "Persönliche Mitteilung"; (2003).
- [Vo39] M. Volmer; "Kinetik der Phasenbildung"; Steinkopff-Verlag, Dresden-Leipzig, (1939).
- [WC02] J. Wittborn, C. Canalias, K.V. Rao, R. Clemens, H. Karlsson, and F. Laurell; "Nanoscale imaging of domains and domain walls in periodically poled ferroelectrics using atomic force microscopy"; Applied Physics Letters **Vol 80. 9**, 1622 (2002).
- [WC96] M. Wöhlecke, G. Corradi und K. Betzler; "Optical methods to characterise the composition and homogeneity of lithium niobate single crystals"; Applied Physics B **Vol 63**, 323 (1996).
- [We67] E.F. Weller; "Ferroelectricity. proceedings of the symposium of ferroelectricity. General motors research laboratories"; Elsevier publishing company (1967).
- [We02] V. Wesemann; "Neue experimentelle Methoden zur optischen Charakterisierung von laseraktiven und optisch nichtlinearen Kristallen"; Dissertation Universität Kaiserslautern, (2002).
- [We03] V. Wesemann; "Persönliche Mitteilung"; (2003).
- [We04] V. Wesemann; "Persönliche Mitteilung"; (2004).
- [Wi73] K.Th. Wilke und J. Bohm; "Kristallzüchtung"; VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, (1973).
- [Wie73] E. Wiesendanger; "Domain Structures In Orthorhombic KNbO_3 And Characterization Of Single Domain Crystals"; Czech. J. Phys. B, **Vol 23**, 91 (1973).

- [Wo56] H. Wolter; "Schlieren-, Phasenkontrast- und Lichtschnittverfahren"; Handbuch der Physik, **Vol 24**, Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York (1956).
- [XB00] D. Xue und K. Betzler; "Influence of optical-damage-resistant dopants on the nonlinear optical properties of lithium niobate"; Applied Physics B **Vol 72. 5**, 641 (2000).
- [Ya75] A. Yariv; "Quantum Electronics"; John Wiley and Sons, New York, (1975).
- [Ya93] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, and K. Watanabe; "First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation"; Appl. Phys. Lett **Vol 62**, 435 (1993).
- [YM03] C. Yang und J. Mertz; "Transmission confocal laser scanning microscopy with a virtual pinhole based on nonlinear detection"; Optics letters **Vol 28. 4** , 224 (2003).
- [Ze032] S. Zelt; "Persönliche Mitteilung"; (2003).
- [Ze03] S. Zelt; "Erzeugung von periodischen Domänen in ferroelektrischen Kristallen und deren Anwendung in der nichtlinearen Optik ";Dissertation Technische Universität Kaiserslautern, (2003).
- [ZS93] M. Zgonik, R. Schlessler, I. Biaggio, E. Voit, J. Tscherry, and P. Günter; "Materials constants of KNbO₃ relevant for electro- and acousto - optics"; Journal of applied physics **Vol 74. 2**, 1287 (1993).
- [ZBG92] B. Zysset, I. Biaggio und P. Günter; "Refractive indices of orthorhombic KNbO₃. I. Dispersion and temperature dependence"; J. Opt. Soc. Am. B. **Vol 9. 3**, 380 (1992).
- [ZW73] F. Zernike und J.E. Midwinter; "Applied nonlinear Optics"; John Wiley & Sons New York/Sydney/Toronto/London (1973).

Anhang A

Verwendete Kristalle

In diesem Kapitel werden die verwendeten Kristalle, ihre Schnittwinkel und ihr Verwendungszweck zusammengestellt.

Kristall	Material	Apertur [mm ²]	l [mm]	Bemerkung
AND13001	KNbO ₃			Doppelschnitt für SHG 860 nm und SHG 1064 nm
AND15001	KNbO ₃	3,0 · 3,0	5	SHG 860 nm
AND15002	KNbO ₃	3,0 · 3,0	5	SHG 860 nm
AND15004	KNbO ₃	3,0 · 3,0	2,5	SHG 860 nm
AND17001	KNbO ₃		1,6	SHG 860 nm
AND20001	KNbO ₃	1,7 · 2,6	5	Doppelschnitt für SHG 860 nm und SHG 1064 nm
AND21001	KNbO ₃	1,7 · 2,6	5	Doppelschnitt für SHG 860 nm und SHG 1064 nm
AND22001	KNbO ₃	1,6 · 2,6	5	Doppelschnitt für SHG 860 nm und SHG 1064 nm
AND22002	KNbO ₃	1,5 · 2,6	5	Doppelschnitt für SHG 860 nm und SHG 1064 nm
AND23001	KNbO ₃	9,6 · 20,1	5	SHG 1064 nm
AND23002	KNbO ₃	15,4 · 21,6	5	SHG 1064 nm
AND24001	KNbO ₃	5,4 · 3,7	3,7	SHG 860 nm
AND25001	KNbO ₃	3,0 · 2,7	8	SHG 860 nm
AND26001	KNbO ₃	3,0 · 2,7	8	SHG 860 nm
AND30001	S-KNbO ₃		9,8	SHG 860 nm
XNE01001	BiB ₃ O ₆	3,0 · 3,0	5	SHG 860 nm $\theta = 155,9^\circ$ und $\phi = 90^\circ$
AND16001	KNbO ₃			QPM - Kristall
AND16002	KNbO ₃			QPM - Kristall
AND16003	KNbO ₃	9,4 · 1,3	13,5	QPM - Kristall
AND16004	KNbO ₃			QPM - Kristall
AND19001	KNbO ₃	9,8 · 1,5	10,2	QPM - Kristall
XNT04001	LiTaO ₃			QPM - Kristall

Tabelle A.1: Eigenschaften und Abmessungen der untersuchten Kristalle.

Lebenslauf

Zur Person:

Name	Lars Knut Frieß
Staatsangehörigkeit	deutsch
Geburtsdatum	25.07.1974
Geburtsort	Kirchheimbolanden
Eltern	Hermann Franz Frieß und Anna Elisabeth Frieß, geb. Heß
Familienstand	ledig

Werdegang:

September 1981 - Juli 1985	Grundschule Bolanden
September 1985 - Juni 1994	Gymnasium Weierhof am Donnersberg Abschluß: Allgemeine Hochschulreife
04.07.1994 - 30.06.1995	Wehrdienst 2./Pionierbrückenbataillon 330 Speyer
01.10.1995 - 17.07.2000	Studium Mathematik und Physik für das Lehramt an Gymnasien an der Universität Kaiserslautern Abschluß: 1. Staatsexamen
01.08.2000 - 08.2004	Promotionsstudium Physik an der Universität Kaiserslautern

Berufliche Tätigkeit:

01.08.2000 - 31.12.2003	Wissenschaftlicher Mitarbeiter der Universität Kaiserslautern
01.02.2004 - 31.05.2004	Wissenschaftliche Hilfskraft der Technischen Universität Kaiserslautern

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. R. Wallenstein, der mir durch die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe die Arbeit an diesem interessanten Thema ermöglichte, für die Betreuung, sowie die materielle Unterstützung.

Bei Herrn Prof. Dr. R. Beigang bedanke ich mich für die hilfreichen Diskussionen im Kaffeeraum und die Bereitschaft, der zweite Gutachter dieser Arbeit zu werden.

Frau Dr. A. Borsutzky danke ich für die Einführung in die Aufgabenstellung und die Betreuung zu Beginn dieser Arbeit.

Besonderer Dank gilt den Herren Dr. J. L'huillier, Dr. V. Wesemann, Dr. T. Andres und M. Rahm für das Interesse an dieser Arbeit, die hilfreichen Diskussionen und die kritische Durchsicht des vorliegenden Manuskripts.

Für die Labor- bzw. Büroatmosphäre gilt mein Dank den 46ern Dr. S. Zelt, Dr. G. Torosyan, Marco Rahm, Thorsten Bauer, A. Quosig, M. Weinacht, T. Schmitt, C. Rau M. Nittmann und den 58ern D. Krennrich, M. D. Weitz, C. Theobald, Dr. G. Bitz.

Bei den anderen Mitgliedern und ehemaligen Mitgliedern bedanke ich mich für jegliche Unterstützung und Hilfe.

Bei der Arbeitsgruppe Jodl bedanke ich mich für die Unterstützung bei der Benutzung des FTIR-Spektrometers.

Bei den Herren Dieter Engel und Steffen Berger für die Messungen am Rasterkraftmikroskop.

Besonderer Dank gilt auch den Mitarbeitern der Firma FEE GmbH, Dr. D. Rytz und S. Vernay für die interessanten und hilfreichen Gespräche. Insbesondere bedanke ich mich für die verschiedenen Kristallproben, ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Herrn P. Bohnert, P. Frohnhöfer, H. E. Krenz und Herrn K. Köhl danke ich für die Unterstützung bei der Lösung von mechanischen und elektrischen Problemen.

Ganz besonders herzlich bedanke ich mich bei meinen Eltern, meinen Schwestern, meiner ganzen Familie sowie meiner Freundin für die Geduld, die aufmunternden Worte und die Unterstützung in jeder Lebenslage. Ohne euch wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

