

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.