



Kapitel 1

Einleitung

Passiv modengekoppelte Festkörperlaser, die ultrakurze Laserimpulse im Pikosekunden- oder Femtosekundenbereich emittieren, sind zu unverzichtbaren wissenschaftlichen und technischen Werkzeugen herangereift. Neben vielfältigen Anwendungsfeldern in Forschung, Medizin und Kommunikation leisten heute viele hundert dieser Geräte ihren Dienst in industriellen Produktionsanlagen.

Hohe Impulsspitzenleistungen ultrakurzer Laserimpulse erlauben zum einen die effiziente Frequenzkonversion infraroter Laserstrahlung in den sichtbaren oder ultravioletten Spektralbereich. Als sogenannte quasi-cw UV-Laser finden diodengepumpte, modengekoppelte und frequenzverdreifachte Pikosekundenlaser ihren Einsatz beispielsweise bei der Herstellung von elektrischen Leiterplatten mit dem Verfahren des *Laser Direct Imaging* (LDI). Anstelle einer traditionellen Belichtung über Fotomasken wird hier die Leiterbahn-Struktur mit höherer Auflösung direkt mittels fokussiertem Laserstrahl auf eine Fotolack beschichtete Platte geschrieben [3]. Desweiteren ermöglichen die hohen erreichbaren Leistungsdichten und vor allem die kurzen Wechselwirkungszeiten der Lichtimpulse mit der Materie einen präzisen und rückstandsfreien Abtrag kleinster Materialmengen, da ein schädigender Wärmeeintrag in das Material minimiert wird [4]. Die Mikromaterialbearbeitung hat sich daher als ein weiteres Hauptanwendungsgebiet von Ultrakurzpuls-Lasersystemen in der industriellen Fertigung entwickelt.

Nichtsdestotrotz sind heutige Ultrakurzpuls-Laser nach wie vor komplexe und vor allem kostenintensive Systeme. Derzeitige Entwicklungsanstrengungen richten sich daher auf eine Optimierung der Prozesseffizienz, um die tatsächlichen Kosten eines Ultrakurzpuls-Lasersystems zu senken und um neue Anwendungsfelder wirtschaftlich zu erschließen. So erfordert beispielsweise die Mikrostrukturierung großer Oberflächen höhere Materialabtragsraten, was neben einer Steigerung der Impulswiederholfrequenz in den Multi-Megahertzbereich vor allem eine Steigerung der mittleren Ausgangsleistung von Ultrakurzpuls-Lasersystemen erfordert [5, 6]. Gleiches gilt für das LDI, da eine Steigerung der mittleren UV-Leistung höhere Durchsatzraten an belichteten Leiterplatten ermöglicht. Unterstützt wird dieser Trend einerseits durch die

Entwicklung effizienter Verstärker, welche die Ultrakurzpuls-Laser zu immer höheren mittleren Leistungen befähigen [6–9]. Gleichzeitig steigt der Bedarf an leistungstärkeren aber wartungsarmen modengekoppelten Laseroszillatoren, die eine ausreichende Sättigung der nachfolgenden Verstärkerstufen bei möglichst wenigen Durchgängen und einen damit einfachen und robusten Aufbau gewährleisten.

Der modengekoppelte Laseroszillator bestimmt die wichtigsten laserphysikalischen Eigenschaften eines Ultrakurzpuls-Lasersystems, wie z.B. Impulsdauer, Impulswiederholrate, Strahlqualität oder Puls-zu-Puls-Stabilität. Vor allem jedoch die technische Zuverlässigkeit des Gesamtsystems wird in entscheidender Weise durch die Zuverlässigkeit des Oszillators bestimmt. Eine Steigerung der mittleren Ausgangsleistung setzt damit nicht nur hohe Anforderungen an das Lasermaterial und die Pumptechnologie, sondern erfordert robuste Modenkopplungsverfahren, auf der Basis langzeit- und leistungsstabiler Komponenten.

Die Erfindung und Entwicklung sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel (semiconductor saturable absorber mirror's, SESAM) vor 20 Jahren hat in entscheidender Weise zu einer Vereinfachung der Ultrakurzpuls-Laser beigetragen und den Weg für eine Kommerzialisierung dieser Laser geebnet. Ein Vorteil sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel besteht darin, deren makroskopische Parameter, wie z.B. die Sättigungsflussdichte [10–12], Modulationstiefe [11, 12], Relaxationszeit [13–17] und ferner die Absorptionswellenlänge [18–21] unabhängig vom Laserresonator zu kontrollieren und an die Bedürfnisse des jeweiligen Lasersystems anzupassen [11]. Darüberhinaus ist die weite Verbreitung der SESAMs vor allem auf deren unkomplizierte Handhabung, die Ausarbeitung konkreter Auslegungsrichtlinien zur Unterdrückung der unerwünschten Q-switch Modenkopplung [22, 23], sowie die Gewährleistung einer selbststartenden Modenkopplung in kommerziellen Systemen zurückzuführen.

Nachteile der SESAMs sind jedoch die langsame Wiederaufbauzeit der Absorptionsverluste nach Sättigung durch den ultrakurzen Impuls von einigen 10 bis mehreren 100 Piko- sekunden [24] sowie die häufig zu beobachtende zeitliche Degradation der SESAMs, infolge einer irreversiblen Änderung der Schichtstruktur mit zunehmender Betriebszeit des Lasers. Verschiedene Ursachen für die Alterung des Bauteils wurden in der Vergangenheit identifiziert [15, 17, 25–27]. Einer der möglichen Gründe ist die durch sättigbare und vor allem nichtsättigbare Verluste in der Halbleiterabsorberschicht aufgenommene Strahlungsleistung, welche durch nichtstrahlende Rekombination angeregter Ladungsträger in Wärme umgewandelt wird [15, 25, 26, 28]. Nichtsättigbare Verluste sind dabei das unerwünschte Nebenprodukt verschiedener Techniken [13–16, 29], wie z.B. der Niedertemperatur Molekularstrahlepitanie, welche durch den gezielten Einbau von Störstellen in der Absorberschicht die benötigte schnelle Relaxation der in das Leitungsband angeregten Elektronen gewährleisten. Um den Wärmeeintrag auf ein tolerierbares Maß zu reduzieren werden daher niedrige SESAM Modulationstiefen empfohlen [26, 30], da die nichtsättigbaren Verluste im Allgemeinen mit der Modulationstiefe des Absorberspiegels steigen [29]. Typische Modulationstiefen sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel in Hochleistungslasern erreichen daher selten vier Prozent [27], liegen jedoch meist unter einem Prozent.

Wird die Formung von Impulsen in SESAM modengekoppelten Lasern nicht durch die Bildung zeitlicher Solitonen dominiert, ist die stationäre zeitliche Impulsdauer im wesentlichen das Ergebnis einer Balance zwischen der durch den SESAM hervorgerufenen Selbst-Amplitudenmodulation (SAM) sowie der spektralen Filterwirkung des Lasermediums mit endlicher Verstärkungsbandbreite (*Gain Narrowing*). Niedrige SESAM Modulationstiefen sowie langsame Relaxationszeiten des SESAM sind somit unmittelbar mit längeren zeitlichen Impulsdauern verbunden [24]. Im Besonderen in 888 nm gepumpten, SESAM modengekoppelten Nd:YVO₄ Hochleistungsoszillatoren werden niedrige SESAM Modulationstiefen zum entscheidenden Nachteil. Erst kürzlich identifizierten hier mehrere unabhängige Studien den starken Einfluss des Gain Narrowing sowie die gleichzeitig niedrigen SESAM Modulationstiefen als Ursache für sehr lange zeitliche Impulsdauern im Bereich zwischen 30 und 40 Piko-sekunden [31–34].

Neuartige Modenkopplungsverfahren werden daher benötigt, die eine schnelle Verlustmodulation mit hoher Stärke bei gleichzeitig niedrigen linearen Verlusten und niedrigen Anforderungen an das Laserresonator-Design vereinen.

Hervorragender Ausgangspunkt neuer Verfahren bilden sogenannte *kaskadierte Nichtlinearitäten zweiter Ordnung*. Optische Nichtlinearitäten zweiter Ordnung sind im allgemeinen für Dreiwellenmischprozesse wie z.B. die Summenfrequenzerzeugung (SFG), die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) oder Differenzfrequenzerzeugung (DFG) bekannt. Wesentliches Merkmal eines *kaskadierten* Prozesses zweiter Ordnung ist, dass die in dem ersten elementaren $\chi^{(2)}$ -Prozess erzeugte neue Frequenzkomponente eine der Eingangswellen des darauffolgenden Prozesses zweiter Ordnung bildet. Die Bedeutsamkeit der kaskadierten Prozesse für die nicht-lineare Optik beruht auf der Tatsache, dass sie eine äußerst effiziente Nachahmung optisch nichtlinearer Phänomene dritter Ordnung, wie z.B. des optischen Kerr-Effektes ermöglichen [35].

Die einfachste Variante zur Imitation des optischen Kerr-Effektes durch einen kaskadierten Prozess zweiter Ordnung erfolgt durch phasenfehlangepasste SHG in einem einzelnen nichtlinearen Kristall. Infolge der Phasenfehlanpassung und des daraus resultierenden periodischen Energieaustausches zwischen der Fundamentalwelle sowie der zweiten Harmonischen erfährt die Fundamentalwelle eine, mit der Propagation zunehmende, intensitätsabhängige Phasenverschiebung. Klare Alleinstellungsmerkmale dieser nichtlinearen Phasenverschiebung ist die enorme Effektstärke sowie die Möglichkeit deren Betrag wie auch Vorzeichen durch den meist einfach zugänglichen Prozessparameter der Phasenfehlanpassung zu variieren [36].

Obwohl die Existenz einer nichtlinearen Phasenverschiebung der Fundamentalwelle via SHG bereits in den Anfängen der Nichtlinearen Optik bekannt war [37, 38], wurde die Effektstärke unterschätzt und die Aussichten auf eine konkrete Anwendung als gering eingestuft. Entscheidende Aufmerksamkeit erlangte der grundlegende Effekt erst im Jahr 1989 mit dem experimentellen Nachweis hoher nichtlinearer Phasenverschiebung der Fundamentalwelle

größer π durch Belashenkov [39] und vor allem die detaillierte experimentelle Charakterisierung der Phasenverschiebung durch Z-Scan Messungen mit Kaliumtitanylphosphat (KTP) im Jahr 1990 durch DeSalvo [36, 40]. Seit dieser Zeit hat sich das *Second Order Cascading* als eigenständiges Teilgebiet der Nichtlinearen Optik etabliert und sein Potenzial im Besonderen für moderne Ultrakurzpuls-Laserstrahlquellen ist mittlerweile unumstritten [2].

Eine hohe nichtlineare Phasenverschiebung allein ist noch nicht ausreichend für die Modenkopplung eines Lasers. Dies wird erst durch eine geeignete Umwandlung in eine Amplitudenmodulation eines im Laserresonator umlaufenden Impulses möglich. Zwei vollkommen unterschiedliche Techniken sind hierzu bislang bekannt:

Ein Laserstrahl erfährt infolge der durch den phasenfehlangepassten SHG-Prozess induzierten nichtlinearen Phasenverschiebung eine intensitätsabhängige transversale Phasenstörung. Je nach Vorzeichen der Phasenverschiebung bewirkt das nichtlineare Material somit eine intensitätsabhängige Fokussierung oder Defokussierung der Fundamentalstrahlung [40]. Diese, häufig auch als *parametrische Kerr-Linse* [41] bezeichnete, nichtlineare Linsenwirkung erzeugt innerhalb des Laserresonators leistungsabhängige Strahlparameter der Resonatoreigenmode. Vollkommen analog zu dem Prinzip der KLM, können diese mit Hilfe geeignet platzierter Blenden (*hard* oder *soft aperture's*) in eine Modulation der Verluste bzw. Verstärkung umgewandelt werden. Man spricht daher auch von *parametrischer Kerr-Linsenmodenkopplung* (PKLM).

Die Verwendung eines phasenfehlangepassten SHG-Prozess als *effektives Kerr-Medium* bietet zahlreiche Vorzüge, welche vor allem auf die hohe Effekstärke der kaskadierten Nichtlinearität zurückzuführen ist. Im Vergleich zu bekannten Kerr-Medien gewährleisten ein bis zu zwei Größenordnungen höhere *effektive* nichtlineare Brechungsindexkoeffizienten eine zuverlässig selbststartende und stabile Modenkopplung, auch für Laseroszillatoren mit niedriger Impulsspitzenleistung [42]. Die typischerweise hohen Anforderungen an ein strikt optimiertes KLM-Resonatordesign werden entschärft, da die stärkere effektive Kerr-Linse eine möglicherweise nicht optimale Kerr-Sensitivität des Resonators kompensiert. Hohe benötigte Positioniergenauigkeiten, häufig im Submillimeterbereich [11, 43], von Kerr-Medium und Resonatorspiegeln werden somit vermieden. Des weiteren entfällt die Notwendigkeit einer starken Fokussierung der Resonatoreigenmode in das nichtlineare Material, was häufig einen starken Astigmatismus der Resonatormode bewirkt und zusätzliche Techniken zur Astigmatismus-Kompensation erfordert [44]. Niedrigere benötigte Leistungsdichten im nichtlinearen Material weit unterhalb dessen Zerstörschwelle gewährleisten darüber hinaus eine hohe Zuverlässigkeit der nichtlinearen Komponente. Vernachlässigbare Absorptionsverluste der Fundamentalwelle schließlich verhindern einen signifikanten Wärmeeintrag und erlauben Anwendungen mit hoher mittlerer Leistung.

Die erste Demonstration eines PKLM modengekoppelten Lasers erfolgte im Jahre 1995 durch G. Cerullo und Mitarbeiter [45]. Das Verfahren fand seit dieser Zeit jedoch nur wenig Aufmerksamkeit [42, 46, 47]. Vor allem aber das Potenzial für Anwendungen hoher mittlerer

Leistung wurde noch nicht unter Beweis gestellt. So beträgt die bislang maximale mittlere Ausgangsleistung eines rein PKLM modengekoppelten Nd:YAG Lasers nur 0,5 W bei einer zeitlichen Impulsdauer von 14 ps [45]. Kürzlich wurde der parametrische Kerr-Linsen Effekt als zusätzlicher Impulsverkürzungs-Mechanismus in modengekoppelten Oszillatoren, basierend auf dem Verfahren des *nonlinear mirror mode-locking* [1], identifiziert [48–55]. Mit diesem *hybriden* Modenkopplungsverfahren wurde eine maximale mittlere Ausgangsleistung eines Nd:GdVO₄-Oszilators von 5,1 W demonstriert [55].

Es existiert eine zweite Möglichkeit, um die durch phasenfehlangepasste SHG erzeugte nicht-lineare Phasenverschiebung in intensitätsabhängige Resonatorverluste umzuwandeln. Diese Methode basiert auf der intensitätsabhängigen Änderung des Polarisationszustandes der resonatorinternen Lasermode:

Eine einfallende polarisierte Lichtwelle, welche sich in einem doppelbrechendem Medium entlang einer der Hauptachsen, z.B. der x-Achse, ausbreitet, lässt sich stets als Superposition zweier in y- bzw. z-Richtung linear polarisierter Teilwellen darstellen. Das Aufspaltungsverhältnis sowie die Phasendifferenz beider Teilwellen nach Durchlaufen der gesamten Kristalllänge bestimmt den Polarisationszustand der transmittierten Lichtwelle. Erfährt eine der beiden Teilwellen eine zusätzliche nichtlineare Phasenverschiebung, weil sie infolge eines phasenfehlangepassten Typ I SHG-Prozess eine periodische An- und Abregung der zweiten Harmonischen induziert, so wird der Polarisationszustand intensitätsabhängig. Ist der nichtlineare Kristall von zwei Polarisatoren umgeben und das Hauptachsensystem um die Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle um einen (das Aufspaltungsverhältnis bestimmenden) Rotationswinkel gedreht, so wird eine optische Anordnung mit nichtlinearem Transmissionskoeffizienten realisiert.

Diese Möglichkeit der *nichtlinearen Polarisations-Rotation* (NPR) via Typ I SHG wurde erstmals 1996 durch Saltiel und Mitarbeiter erkannt und mehrere Anordnungen mit nichtlinearem Transmissionskoeffizienten wurden beschrieben [56]. In einem resonatorexternen Experiment wurden bereits hohe nichtlineare Amplitudenmodulationen mit bis zu 50 % Modulationstiefe ultrakurzer 80 fs Impulse, induziert durch NPR via Typ I SHG in Beta-Bariumborat (BBO), nachgewiesen [57]. Eine entsprechende Applikation hinsichtlich der Laser Modenkopplung ist jedoch bislang auf die Modenkopplung eines blitzlampengepumpten Nd:YAG Lasers beschränkt [58].

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, die Zusammenhänge der zahlreichen Parameter der beiden Modenkopplungsverfahren PKLM sowie NPR via Typ I SHG besser zu verstehen und mit dieser Kenntnis modengekoppelte Hochleistungslaser zu realisieren, die kurze Pikosekunden-Impulse hoher mittlerer Leistung emittieren. Um hohe Pump- und mittlere Ausgangsleistungen mit hoher optischer Effizienz zu gewährleisten wird das Lasermaterial Nd:YVO₄ sowie dessen optimierte Anregung bei 888 nm verwendet [59].

Die nichtlineare Phasenverschiebung via SHG weißt mehrere Besonderheiten auf, welche die Analogie zu dem optischen Kerr-Effekt limitieren. Die Kenntnis dieser Merkmale ist von

zentraler Bedeutung sowohl für die Modellierung und als auch die experimentelle Realisierung beider Modenkopplungsverfahren. In Kapitel 2 werden daher zunächst die theoretischen Grundlagen der nichtlinearen Phasenverschiebung via phasenfehlangepasster Typ I SHG auf Basis der gekoppelten Amplitudengleichungen der nichtlinearen Optik beschrieben.

Die Gültigkeit dieser theoretischen Grundlagen wird anschließend in Kapitel 3 durch den experimentellen Nachweis und die detaillierte Charakterisierung der nichtlinearen Phasenverschiebung eines 1064 nm Probestrahls, induziert durch einen phasenfehlangepassten Typ I SHG-Prozess in Lithiumtriborat (LBO), überprüft. Experimentelle Grundlage hierzu bildet die Z-Scan-Methode sowie ein kommerzielles Pikosekundenlasersystem als Probestrahlsquelle. Die Computergestützte Automatisierung des gesamten Z-Scan-Messaufbaus ermöglichte bezüglich des Prozessparameters der Phasenfehlanpassung hochaufgelöste Messungen der nichtlinearen Phasenverschiebung. Der Einfluss weiterer Parameter, wie die Leistung der Fundamentalstrahlung sowie die Länge des nichtlinearen Mediums werden untersucht und mit den Vorhersagen der gekoppelten Amplitudengleichungen verglichen.

Kapitel 4 widmet sich ausschließlich der parametrischen Kerr-Linsen Modenkopplung. Ein rein PKLM modengekoppelter Nd:YVO₄ Hochleistungsoszillator wird realisiert. Dabei werden die durch die parametrische Kerr-Linse hervorgerufenen leistungsabhängigen Strahlradiusänderungen durch die Verstärkungsblendenwirkung (soft aperture) des 888 nm longitudinal gepumpten Nd:YVO₄ Laserkristalls in eine Gewinnmodulation umgewandelt. Der Einfluss wichtiger Stellgrößen auf die Güte und Stabilität der Modenkopplung, wie z.B. der Phasenfehlanpassung, der *off-focus* Position des effektiven Kerr-Mediums und der bezüglich maximaler Verstärkungsblendenwirkung optimale Überlapp zwischen Pump- und Lasermode im aktiven Medium wird untersucht. Die empirisch gewonnenen Erkenntnisse werden durch Berechnung der Selbst-Amplitudenmodulation (SAM) eines im Resonator umlaufenden Lichtimpulses verifiziert und physikalisch begründet.

Kapitel 5 widmet sich ausschließlich der Modenkopplung durch NPR via Typ I SHG. Die nichtlineare Änderung des Polarisationszustandes wird durch eine Vielzahl von Parametern, welche den nichtlinearen Kristall und dessen Implementierung im Laserresonator beschreiben, in entscheidender Weise beeinflusst. Um diese Parameter zu identifizieren wird daher zunächst der nichtlineare Transmissionskoeffizient für die in dieser Arbeit verwendeten Polarisator-Kristall-Polarisator Anordnung theoretisch berechnet. Anhand des gewonnenen analytischen Ausdrucks für die SAM werden zunächst grundlegende und praxistaugliche Auslegungsrichtlinien formuliert, deren Kenntnis Voraussetzung für die anschließende Realisierung und Charakterisierung eines durch NPR via Typ I SHG cw modengekoppelten Lasers notwendig sind.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Gegenstand dieser Arbeit ist die Entwicklung neuartiger passiver Modenkopplungsverfahren auf Basis kaskadierter $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesse zur Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse mit hoher mittlerer Ausgangsleistung. Damit ein Laseroszillator modengekoppelte Lichtimpulse emittiert, müssen kurze Lichtimpulse mit hoher Impulsspitzenleistung gegenüber der cw-Strahlung oder statistisch auftretenden Lichtimpulsen bevorzugt werden. Im Fall der passiven Modenkopplung wird dies durch ein resonatorinternes nichtlineares Element gewährleistet, welches in Abhängigkeit der Intensität der resonatorinternen Grundwelle Resonatorverluste erzeugt. Auf diese Weise wird eine Selbstamplitudenmodulation (SAM) eines im Resonator umlaufenden Lichtimpulses generiert.

Das nichtlineare Element für alle in dieser Arbeit betrachteten Modenkopplungsverfahren bildet ein nichtlinearer Lithiumtriborat (LBO) Kristall. Entgegen seiner üblichen Verwendung für die Frequenzkonversion wird dieser dazu verwendet, eine hohe nichtlineare Phasenverschiebung $\Delta\Phi_{NL}$ der resonatorinternen Grundwelle zu erzeugen. Durch eine geeignete Umwandlung dieser nichtlinearen Phasenverschiebung in intensitätsabhängige Resonatorverluste wird Modenkopplung möglich. Durch die Art und Weise, wie diese Umwandlung technisch realisiert wird, unterscheiden sich die einzelnen Modenkopplungsverfahren in dieser Arbeit.

Charakteristisch für alle in dieser Arbeit betrachteten Verfahren ist, dass die SAM stets in der Form

$$SAM := \frac{dT}{dP} = \underbrace{\frac{dT}{d\Delta\Phi_{NL}}}_{\text{abhängig von Verfahren}} \cdot \underbrace{\frac{d\Delta\Phi_{NL}}{dP}}_{\text{Grundeffekt}} \quad (2.1)$$

dargestellt werden kann. Dabei sei die SAM durch die nichtlineare Verlustmodulation dT/dP gegeben, wobei T die von der resonatorinternen Leistung P abhängigen Transmissions-Verluste des Laserresonators darstellen.

Der zweite Differentialquotient auf der rechten Seite von Gleichung (2.1) beschreibt den grundlegenden Effekt der nichtlinearen Phasenverschiebung, induziert durch den nichtlinearen Kristall. Er beeinflusst die SAM unmittelbar. Eine detaillierte Darstellung dieses Effektes ist für das Verständnis der in den weiteren Kapiteln beschriebenen Modenkopplungsverfahren

essentiell. Er ist allen Modenkopplungsverfahren gemeinsam und ist daher Gegenstand dieses Kapitels.

Der erste Differentialquotient dagegen beschreibt die von dem jeweiligen Modenkopplungsverfahren zu gewährleistende Phasen-Amplituden-Transformation. Eine ausführliche Darstellung der theoretischen Grundlagen hierzu erfolgt, nach den jeweiligen Verfahren gesondert, in den Kapiteln 4 und 5.

Eine allgemeine Einführung der theoretischen Grundlagen der Laser-Modenkopplung erfolgt beispielsweise in [60, 61]. Für eine umfassende Charakterisierung des in dieser Arbeit verwendeten Lasermaterials Nd:YVO₄ und dessen optimierte optische Anregung bei 888 nm sei der Leser auf die Dissertationsschrift von Louis McDonagh verwiesen [62].

2.1 Allgemeine Einführung kaskadierter $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesse

Breitet sich eine elektromagnetische Welle in einem dielektrischen Medium aus, so induziert das elektrische Feld der Welle zeitlich oszillierende atomare Dipolmomente. Die einfallende Primärwelle wird überlagert mit den phasenverzögerten Sekundärwellen, welche von den zu erzwungenen Schwingungen angeregten Dipolen in den einzelnen Schichten des Mediums ausgehen. Infolgedessen breitet sich die Gesamtwelle mit veränderter Phasengeschwindigkeit im Medium aus (Brechung) und wird mit der Propagation zunehmend abgeschwächt (Absorption) [63]. Die optischen Eigenschaften eines dielektrischen Mediums werden daher in entscheidender Weise durch die Beziehung zwischen der dielektrischen Polarisation \vec{P} (als Summe atomarer Dipolmomente pro Volumeneinheit) und dem elektrischen Feldvektor \vec{E} bestimmt. Die Beziehung ist im Allgemeinen abhängig von der Frequenz der einfallenden Primärwelle (Dispersion).

Ist die elektrische Feldstärke \vec{E} hinreichend hoch gegen die Feldstärke atominterner Felder, so wird die Beziehung zwischen \vec{P} und \vec{E} zusätzlich nichtlinear. Die induzierten Dipolmomente im Medium sind in diesem Fall so groß, dass die Auslenkung der Elektronen aus ihrer Ruhelage den Bereich mit einer linearen Rückstellkraft verlässt. Unter der Annahme eines dispersions- und verlustfreien Materials kann die nichtlineare Antwort des Mediums auf das elektrische Feld als instantan betrachtet werden [35, 64]. In diesem Fall wird die Polarisation häufig durch eine Entwicklung nach Potenzen des elektrischen Feldes in der Form

$$\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \tilde{E}(t) + \epsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}(t)^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} \tilde{E}(t)^3 + \dots \quad (2.2)$$

formuliert. Dabei bezeichnet ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und $\chi^{(n)}$ die Suszeptibilität n-ter Ordnung. Für die im Folgenden qualitative Klassifizierung optisch nichtlinearer Phänomene wurde in Gleichung (2.2) die Polarisation und das elektrische Feld lediglich als skalare Größen beschrieben und die Tensornatur der Suszeptibilität vernachlässigt. Für eine exakte Darstellung der Polarisation unter Berücksichtigung von Materialdispersion und Anisotropie sei auf die Literatur [64] verwiesen.

Gemäß Gleichung (2.2) wird das Medium für hohe elektrische Feldstärken nichtlinear. In einem nichtlinearen Medium breiten sich Wellen nicht mehr unbeeinflusst aus. Stattdessen beginnen sich mehrere Wellen mit im allgemeinen unterschiedlicher Frequenz zu mischen und erzeugen neue Wellen mit Frequenzen, welche nicht in dem ursprünglichen Strahlungsfeld enthalten waren. Derartige nichtlineare optische Phänomene werden üblicherweise nach der Anzahl der wechselwirkenden Felder bzw. der Ordnung n des zugrunde liegenden dielektrischen Suszeptibilitätstensors $\chi^{(n)}$ klassifiziert. Man unterscheidet demnach in sogenannte $\chi^{(2)}$ - bzw. $\chi^{(3)}$ -Effekte:

Die Suszeptibilität 2. Ordnung $\chi^{(2)}$ beschreibt die Wechselwirkung zwischen drei elektromagnetischen Feldern. Zu den möglichen Dreiwellenmischprozessen gehören die Summenfrequenzerzeugung (SFG), die Differenzfrequenzerzeugung (DFG), die Frequenzverdopplung (SHG) sowie die optische Gleichrichtung (OG). Typische Anwendungen der DFG sind z.B. die parametrische Verstärkung und die parametrische Oszillation [64]. $\chi^{(2)}$ -Effekte bewirken somit im allgemeinen die Erzeugung neuer Frequenzen. In der Praxis liegt dabei der Hauptaugenmerk häufig auf einem möglichst hohen Leistungstransfer von den eingestrahnten Wellen zu der zu erzeugenden neuen Welle.

In zentrosymmetrischen Medien fehlt die Suszeptibilität zweiter Ordnung, da sich die Polarisation exakt umkehren muss, wenn das elektrische Feld umgekehrt wird. Die dominierende Nichtlinearität ist in diesem Fall dritter Ordnung.

Die Suszeptibilität 3. Ordnung $\chi^{(3)}$ beschreibt die Wechselwirkung zwischen vier elektromagnetischen Feldern. Drei Eingangswellen mit im allgemeinen unterschiedlichen Frequenzen $\omega_i, \omega_j, \omega_k$ induzieren Anteile der nichtlinearen Polarisation, welche mit den Frequenzen

$$\omega_4 = \pm\omega_i \pm \omega_j \pm \omega_k \quad \text{für } i, j, k = 1, 2, 3 \quad (2.3)$$

oszillieren. Eine Nichtlinearität dritter Ordnung reagiert somit auf optische Felder durch Erzeugung von dritten Harmonischen (THG) sowie Summen und Differenzen von jeweils drei Frequenzen.

Während ein elementarer $\chi^{(2)}$ -Prozess zu der Erzeugung einer neuen Frequenzkomponente beiträgt, ermöglichen $\chi^{(3)}$ -Prozesse die Erzeugung einer Frequenz, die identisch ist mit der Frequenz einer oder aller drei Erregerwellen. In der Praxis spielt häufig der vollständig entartete 4-Wellen Mischprozess eine zentrale Rolle, für welchen die Oszillationsfrequenz der induzierten Polarisation identisch ist mit der Frequenz der drei Erregerwellen:

$$\omega = 2\omega - \omega \quad (2.4)$$

Betrachtet man ausschließlich Polarisationsanteile bei der Frequenz ω , so folgt für die Beziehung zwischen \tilde{P} und \tilde{E} unter der Annahme eines anregenden Feldes der Form $\tilde{E}(t) = E \cdot e^{i\omega t} + c.c.$:

$$\tilde{P}(2\omega - \omega) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + 3\chi^{(3)} E^* E \right) \cdot E \cdot e^{i\omega t} + c.c. = \epsilon_0 \chi_{eff} \cdot \tilde{E} \quad (2.5)$$

Die effektive Suszeptibilität χ_{eff} ist nun zusätzlich eine Funktion der Intensität I der einfallenden Welle, da $I = 1/2 \cdot \epsilon_0 n_0 c \cdot E^* E$. Definiert man den komplexen Brechungsindex des Materials analog zur linearen Optik gemäß $n + i\kappa = (1 + \chi_{eff})^{-1/2}$, so beschreibt die Beziehung (2.5) für den entarteten Vierwellenmischprozess einen intensitätsabhängigen komplexen Brechungsindex. Für den Realteil des Brechungsindex lässt sich vereinfacht schreiben [64]:

$$n = n_0 + n_2 \cdot I \quad (2.6)$$

Dabei bezeichnen die Materialkonstanten n_0 den linearen Brechungsindex und n_2 den nichtlinearen Brechungsindex, welcher proportional zu dem Realteil der $\chi^{(3)}$ -Suszeptibilität ist. Analog folgt für den Beer'schen Absorptionskoeffizienten [64]:

$$\alpha = \alpha_0 + \alpha_2 \cdot I \quad (2.7)$$

Dabei bezeichnet α_0 den linearen Beer'schen Absorptionskoeffizienten und α_2 den nichtlinearen Absorptionskoeffizienten, welcher proportional zu dem Imaginärteil der $\chi^{(3)}$ -Suszeptibilität ist [35]. Die intensitätsabhängige Änderung des Brechungsindex wird als *optischer Kerr-Effekt* bezeichnet. Materialien mit einer dominierenden Nichtlinearität 3. Ordnung bezeichnet man daher häufig auch als *Kerr-Medien*. Die durch den Kerr-Effekt hervorgerufene Änderung des Brechungsindex führt zu Effekten wie z.B. der Selbstphasenmodulation (SPM), Selbstfokussierung eines Laserstrahls und räumlichen Solitonen [64].

Der entartete $\chi^{(3)}$ -Prozess beschreibt somit nicht die Erzeugung einer neuen Frequenz, sondern die selbstinduzierte Änderung der Eigenschaften einer einfallenden Welle wie z.B. der Phase oder der räumlichen Strahleigenschaften (*self-action*). Er ist ein Beispiel dafür, dass $\chi^{(2)}$ - bzw. $\chi^{(3)}$ -Prozesse im allgemeinen sehr unterschiedliche optisch nichtlineare Phänomene hervorrufen.

Kaskadierung von $\chi^{(2)}$ -Prozessen:

Es ist jedoch möglich, durch $\chi^{(3)}$ -Prozesse hervorgerufene optisch nichtlineare Phänomene durch die sukzessive Abfolge zweier elementarer $\chi^{(2)}$ -Prozesse (SFG, DFG, SHG, OG) nachzuahmen [35, 36]. Wesentliches Merkmal eines solchen kaskadierten $\chi^{(2)}$ -Prozesses ist, dass die in dem ersten elementaren $\chi^{(2)}$ -Prozess erzeugte neue Frequenzkomponente (eventuell zusammen mit einer weiteren Welle) die Eingangswelle des darauffolgenden $\chi^{(2)}$ Prozesses bildet. Da mindestens zwei fundamentale $\chi^{(2)}$ -Prozesse beteiligt sind, wird ein kaskadierter Prozess symbolisch durch $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ repräsentiert. Die Bedeutsamkeit der $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesse für das Feld der nichtlinearen Optik besteht häufig darin, dass das zu imitierende optische Phänomen dritter Ordnung mit deutlich höherer Effektstärke realisiert werden kann.

Für zwei grundlegende $\chi^{(3)}$ -Effekte soll exemplarisch das entsprechende Gegenstück eines $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesses betrachtet werden:

Gemäß Gleichung (2.3) erlaubt die Suszeptibilität 3. Ordnung $\chi^{(3)}$ prinzipiell die direkte Erzeugung der dritten Harmonischen $3\omega = \omega + \omega + \omega$ [65–67]. Praktisch gesehen spielt jedoch

Imitation elementarer $\chi^{(3)}$ – Effekte durch $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ – Prozesse:

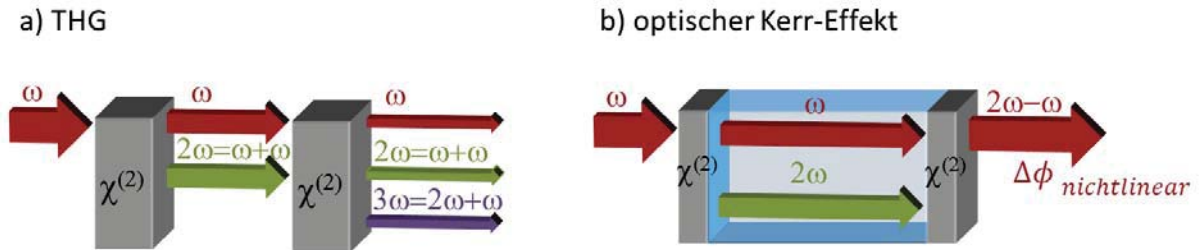


Abbildung 2.1: Zwei Beispiele für die Nachahmung eines nichtlinearen optischen Phänomens dritter Ordnung durch einen kaskadierten $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozess: a) THG: Erzeugung der dritten Harmonischen via Frequenzverdopplung und anschließender Summenfrequenzmischung. b) Optischer Kerr-Effekt: Erzeugung einer nichtlinearen Phasenverschiebung der Fundamentalen ω durch Frequenzverdopplung und anschließender Rückkonversion.

die THG via $\chi^{(3)}$ eine untergeordnete Rolle, da der Wirkungsgrad der Frequenzkonversion im allgemeinen sehr niedrig ist. Typische $\chi^{(3)}$ -Koeffizienten sind um Größenordnungen kleiner als die Suszeptibilitäten zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ von nichtlinearen Kristallen, welche üblicherweise für die Frequenzkonversion eingesetzt werden. Um dies zu kompensieren wäre eine Erhöhung der Leistungsdichte im Kerr-Medium notwendig, was jedoch durch die Zerstörschwelle des Mediums nur begrenzt möglich ist. Des Weiteren ist infolge der Frequenzverdreifachung der überspannte Wellenlängenbereich sehr groß und daher die Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung für die direkte THG via $\chi^{(3)}$ häufig nicht möglich [35].

In der Praxis wird stattdessen die 3. Harmonische meist durch einen kaskadierten $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozess realisiert und zwar durch Frequenzverdopplung $2\omega = \omega + \omega$ gefolgt von der Bildung der Summenfrequenz $3\omega = 2\omega + \omega$ aus frequenzverdoppelter und Grundwelle (s. Abbildung 2.1 links). Der zweite $\chi^{(2)}$ -Prozess erfolgt dabei in der Regel in einem zweiten nichtlinearen Kristall, kann jedoch auch innerhalb des ersten Kristalls erfolgen [68, 69].

Die THG via $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ ist lediglich ein anschauliches Beispiel für die Nachahmung eines elementaren $\chi^{(3)}$ -Prozesses. Sie spielt für die Modenkopplung von Lasern in dieser Arbeit keine weitere Rolle. Die passive Modenkopplung eines Lasers erfordert stattdessen die Erzeugung intensitätsabhängiger Resonatorverluste für die resonatorinterne Grundwelle. Intensitätsabhängige Verluste können beispielsweise mit Hilfe des optischen Kerr-Effektes (Kerr-Linsen Modenkopplung (KLM), s. Kapitel 4) realisiert werden.

Die Imitation des Kerr-Effektes durch $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ erfordert ganz offensichtlich, dass die durch den ersten elementaren $\chi^{(2)}$ -Prozess erzeugte neue Frequenzkomponente in dem darauffolgenden Prozess in die ursprüngliche Grundwelle zurückkonvertiert werden muss. Nur so ist gewährleistet, dass die Frequenz der Ausgangswelle des $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesses identisch ist mit der einfallenden Welle. Die Nachahmung einer Kerr-ähnlichen Phasenverschiebung

beruht daher stets auf einem periodischen Energieaustausch zwischen der einfallenden Welle und einer durch den $\chi^{(2)}$ -Prozess erzeugten neuen Welle mit unterschiedlicher Frequenz. Die einfachste Variante zur Nachahmung des optischen Kerr-Effektes besteht in der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) $2\omega = \omega + \omega$ und der darauffolgenden Differenzfrequenzerzeugung (DFG) $\omega = 2\omega - \omega$. Weitere Varianten werden z.B. in [36] diskutiert.

Die Realisierung einer nichtlinearen Phasenverschiebung erfolgt in dieser Arbeit ausschließlich durch Erzeugung der zweiten Harmonischen und anschließender Rückkonversion in die Grundwelle. Das grundlegende physikalische Funktionsprinzip soll im folgenden zunächst vereinfacht dargestellt werden.

2.2 Idealisierte Darstellung der nichtlinearen Phasenverschiebung via $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$

Die Erzeugung einer nichtlinearen Phasenverschiebung soll im folgenden durch zwei aufeinanderfolgende idealisierte $\chi^{(2)}$ -Prozesse anschaulich erläutert werden. Die beiden elementaren Prozesse finden dabei in zwei, mit dem räumlichen Abstand d voneinander getrennten, dünnen Scheibchen eines dielektrischen verlustfreien nichtlinearen Mediums statt (s. Abbildung 2.1 b)). Die Phasengeschwindigkeit der Fundamentalwelle sowie der zweiten Harmonischen sei innerhalb der dünnen Scheibchen identisch (die Materialien seien phasenangepasst). Beide nichtlineare Scheibchen seien umgeben von einem linearen verlustfreien Medium. Fundamentalwelle sowie zweite Harmonische breiten sich in diesem linearen Medium jedoch mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten aus.

Die Fundamentalwelle sowie die zweite Harmonische seien ebene Wellen. Die Feldamplituden beider Wellen sowie die nichtlineare Polarisation werden als skalare Größen betrachtet. Des Weiteren werde angenommen, dass sich die Amplitude der Felder über Distanzen in der Größenordnung der Wellenlänge nur wenig ändern (*Slowly varying envelope approximation*, [70]). Unter diesen Voraussetzungen wird der Aufbau einer durch die nichtlineare Polarisation hervorgerufenen neuen Welle in den Scheibchen durch die Amplitudengleichung

$$\frac{dE_j}{dz} = -i \cdot \frac{\omega_j}{\epsilon_0 n_j c} \cdot P_{NL} \quad (2.8)$$

beschrieben [64]. Dabei bezeichnet E_j die komplexe Feldamplitude der zu erzeugenden Welle j mit der Frequenz ω_j , n_j den Brechungsindex des Scheibchens für die jeweils betrachtete Welle und P_{NL} die komplexe Amplitude der nichtlinearen Polarisation $\tilde{P}_{NL}(z, t) = P_{NL} \cdot e^{i\omega \cdot t - k \cdot z} + c.c.$

Die Konversionseffizienz sei niedrig, d.h. ein Abbau der Erregerwellen im Inneren der Materialien sei näherungsweise vernachlässigbar. Daher sei die Amplitude der nichtlinearen Polarisation, induziert durch die einfallenden Wellen, innerhalb der nichtlinearen Scheibchen konstant. In diesem Fall folgt aus Gleichung (2.8) für die Feldamplitude der erzeugten Welle nach Durchlaufen des Scheibchens der Dicke Δz :

$$E_j = -i \cdot \frac{\omega_j}{\epsilon_0 n_j c} \cdot P_{NL} \cdot \Delta z \quad (2.9)$$

Zu Beginn des kaskadierten Prozesses sei keine zweite Harmonische vorhanden. Das elektrische Feld $\tilde{E}_1(z, t)$ der einfallenden Fundamentalwelle mit der komplexen Amplitude E_1 und dem Wellenvektor k_1 entlang der Ausbreitungsrichtung z werde beschrieben durch:

$$\tilde{E}_1(z, t) = \frac{1}{2} \cdot E_1 \cdot e^{i(\omega t - k_1 z)} + c.c. \quad (2.10)$$

Die Fundamentalwelle erzeugt in dem ersten Scheibchen an der Position $z=0$ Polarisationsanteile mit der Frequenz $2\omega = \omega + \omega$ mit der Amplitude:

$$P_{NL}(\omega + \omega) = \frac{1}{4} \cdot \epsilon_0 \chi^{(2)} \cdot E_1 \cdot E_1 \quad (2.11)$$

$P_{NL}(\omega + \omega)$ ist gemäß Gleichung (2.8) die Quelle der zweiten Harmonischen. Für das elektrische Feld der zweiten Harmonischen $\tilde{E}_2(z, t)$ mit der Feldamplitude E_2 nach dem ersten Scheibchen lässt sich nach (2.9) schreiben:

$$\tilde{E}_2(z, t) = -i \cdot \frac{1}{2} \cdot E_2 \cdot e^{i(2\omega t - k_2 z)} + c.c. \quad (2.12)$$

Die Fundamentale und zweite Harmonische breiten sich in dem linearen Medium zwischen beiden nichtlinearen Scheibchen mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten aus. Beide Felder zusammen $\tilde{E}_1 + \tilde{E}_2$ induzieren in dem zweiten $\chi^{(2)}$ -Prozess Polarisationsanteile, welche u.a. bei der Frequenz $\omega = 2\omega - \omega$ oszillieren. Betrachtet man nur diesen DFG-Prozess, also die Polarisationsanteile der Frequenz $\omega = 2\omega - \omega$, so lässt sich für die Amplitude der nichtlinearen Polarisation in dem zweiten dünnen Scheibchen an dem Ort $z=d$ schreiben:

$$P_{NL}(2\omega - \omega) = -i \cdot \frac{1}{2} \cdot \epsilon_0 \cdot \chi^{(2)} \cdot E_2 \cdot E_1^* \cdot e^{i(k_1 - k_2) \cdot d} \quad (2.13)$$

Die Polarisation (2.13) an der Position $z=d$ kann gemäß Gleichung (2.8) als Quelle einer neuen Fundamentalwelle $\tilde{E}_3(z, t)$ aufgefasst werden,

$$\tilde{E}_3(z, t) = (-i)^2 \cdot \frac{1}{2} \cdot E_3 \cdot e^{i(\omega \cdot t + (k_1 - k_2) \cdot d + k_1 \cdot (z - d))} + c.c. = \frac{1}{2} \cdot E_3 \cdot e^{i(\omega \cdot t + \pi + (2k_1 - k_2) \cdot d - k_1 \cdot z)} + c.c. \quad (2.14)$$

deren Frequenz und Wellenvektor identisch ist mit der einfallenden Fundamentalwelle. Die zurückkonvertierte Fundamentalwelle $\tilde{E}_3(z, t)$ ist jedoch gegenüber der einfallenden Fundamentalwelle $\tilde{E}_1(z, t)$ um den konstanten Phasenterm $\pi + (2k_1 - k_2) \cdot d$ phasenverschoben.

(Der Faktor $(-i)^2 = e^{i\pi}$ in (2.14) ist das Ergebnis einer zweimaligen Anwendung von Gleichung (2.8) und lässt sich aus Gründen der Energieerhaltung wie folgt interpretieren [71]: Wäre die Phasengeschwindigkeit der Fundamentalwelle sowie der zweiten Harmonischen in dem Medium zwischen beiden $\chi^{(2)}$ -Prozessen identisch, dann wäre $(2k_1 - k_2) \cdot d = 0$ und

die Phasenverschiebung zwischen einfallender Welle \tilde{E}_1 und zurückkonvertierter Welle \tilde{E}_3 wäre gemäß (2.14) gerade π . Die zurückkonvertierte Welle würde also destruktiv mit der Fundamentalwelle \tilde{E}_1 interferieren. In diesem Fall würde somit die Energie nicht in die Fundamentalwelle, sondern in die zweite Harmonische fließen. Aus dieser Überlegung folgt, dass eine Rückkonversion der zweiten Harmonischen in die Grundwelle nur dann stattfinden kann, wenn die zweite Harmonische \tilde{E}_2 und die Fundamentalwelle \tilde{E}_1 vor dem zweiten nichtlinearen Scheibchen eine zusätzliche Phasenverschiebung, z.B. durch Dispersion, von idealerweise π erfahren.)

Infolge der konstanten Phasenverschiebung $\pi + (2k_1 - k_2) \cdot d$ der rückkonvertierten Welle gegenüber dem nichtkonvertierten Anteil der einfallenden Fundamentalwelle ist die Superposition der beiden Fundamentalwellen $\tilde{E}_1 + \tilde{E}_3$ um eine Phase $\Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}}$ gegenüber der einfallenden Fundamentalwelle \tilde{E}_1 verschoben. Diese ist nichtlinear, denn:

Je höher die Intensität der einfallenden Fundamentalwelle \tilde{E}_1 , desto höher ist der relative Anteil E_3/E_1 der elektrischen Feldamplitude der zurückkonvertierten Fundamentalwelle \tilde{E}_3 , da die Welle \tilde{E}_3 durch zwei nichtlineare Prozesse aus der Fundamentalwelle \tilde{E}_1 erzeugt wird. Somit ist die Phasenverschiebung $\Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}}$ des Gesamtfeldes $\tilde{E}_1 + \tilde{E}_3$ ebenfalls eine Funktion der Intensität der einfallenden Fundamentalwelle \tilde{E}_1 .

Dies lässt sich mathematisch wie folgt formulieren: Die nichtlineare Phasenverschiebung $\Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}}$ des Gesamtfeldes $\tilde{E}_1 + \tilde{E}_3$ gegenüber der einfallenden Fundamentalwelle \tilde{E}_1 ergibt sich durch Betrachten von Realteil und Imaginärteil der komplexen Feldamplitude des Gesamtfeldes zu:

$$\tan \Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}} = \frac{\text{Im} (E_1 + E_3 \cdot e^{i(\pi+(2k_1-k_2)\cdot d)})}{\text{Re} (E_1 + E_3 \cdot e^{i(\pi+(2k_1-k_2)\cdot d)})} = \frac{E_3 \cdot \sin [(k_2 - 2k_1) \cdot d]}{E_1 - E_3 \cdot \cos [(k_2 - 2k_1) \cdot d]} \quad (2.15)$$

Unter der Annahme niedriger Konversionseffizienzen und damit $E_3 \ll E_1$ folgt näherungsweise

$$\tan \Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}} \approx \Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}} \approx \frac{E_3}{E_1} \cdot \sin [(k_2 - 2k_1) \cdot d] \quad (2.16)$$

Die Fundamentalwelle $\tilde{E}_3(z, t)$ ist das Ergebnis zweier nichtlinearer $\chi^{(2)}$ -Prozesse (SHG gefolgt von DFG). Die Feldamplitude E_3 ist demnach proportional zu:

$$E_3 \propto E_2 E_1^* \propto E_1 E_1 E_1^* \quad (2.17)$$

Woraus schließlich folgt:

$$\Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}} \propto E_1 E_1^* \cdot \sin [(k_2 - 2k_1) \cdot d] \quad (2.18)$$

Die nichtlineare Phasenverschiebung der Ausgangs-Fundamentalwelle ist also für hinreichend niedrige Konversionseffizienzen analog zum optischen Kerr-Effekt proportional zur Intensität der eingestrahlten Fundamentalwelle.

Zusammengefasst:

Infolge unterschiedlicher Phasengeschwindigkeiten der zweiten Harmonischen sowie der Fundamentalwellen zwischen dem Auf- und Abkonversionsprozess ist die zurückkonvertierte Fundamentalwelle um einen konstanten Phasenterm gegenüber dem Anteil der nichtkonvertierten Fundamentalwelle verschoben. Da die Intensität der rückkonvertierten Welle von der Intensität der einfallenden Welle abhängt, erleidet das Gesamt-Fundamentalfeld (als Ergebnis des kaskadierten $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesses) eine intensitätsabhängige Phasenverschiebung $\Delta\Phi_{NL}^{\chi^{(2)}:\chi^{(2)}}$.

2.3 Die nichtlineare Phasenverschiebung via phasenfehlangepasster Typ I SHG

Nach den Überlegungen des vorherigen Abschnitts ermöglicht die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SH) und deren Rückkonversion in die Fundamentalwelle (FW) die Erzeugung einer, dem optischen Kerr-Effekt ähnlichen, nichtlinearen Phasenverschiebung der Fundamentalwelle. Beide elementaren $\chi^{(2)}$ -Prozesse (SHG, DFG) erfolgten dabei in zwei räumlich getrennten nichtlinearen Materialien (*dünne Scheibchen*). Voraussetzung dafür, dass die Leistung der generierten SH in dem darauffolgenden Prozess in die FW zurückfließt, ist die Erzeugung einer zusätzlichen konstanten Phasenverschiebung zwischen der SH und der FW. Diese konstante Phasenverschiebung wird in dem vorherigen Modell durch ein zusätzliches (drittes) lineares Medium zwischen den beiden nichtlinearen Scheibchen gewährleistet.

Aus praktischen Gesichtspunkten ist es jedoch deutlich eleganter und einfacher, wenn beide aufeinanderfolgenden Prozesse innerhalb eines einzelnen nichtlinearen Kristalls stattfinden. Dies ist möglich, wenn sich die FW sowie die SH in dem nichtlinearen Material selbst mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten v_{ph}^{ω} bzw. $v_{ph}^{2\omega}$ ausbreiten. Im Unterschied zu Abschnitt 2.2 wird daher nun ein phasenfehlangepasstes nichtlineares Material betrachtet. Die sogenannte Phasenfehlanpassung Δk ist dabei im folgenden definiert durch:

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot (n_{\omega} - n_{2\omega}) = 2\omega \left(\frac{1}{v_{ph}^{\omega}} - \frac{1}{v_{ph}^{2\omega}} \right) \quad (2.19)$$

Dabei bezeichnen k_1 bzw. k_2 die Wellenvektoren der FW bzw. der SH im Medium.

Nach einer Propagationslänge von $l_c = \pi/\Delta k$ ist die an der Eintrittsfläche $z=0$ des Mediums erzeugte SH gerade um die konstante Phase $\Delta k l_c = \pi$ gegenüber der einfallenden Fundamentalwelle verschoben. Dabei bezeichnet l_c die sogenannte Kohärenzlänge des phasenfehlangepassten SHG-Prozesses (s. Abbildung 2.2). Für Positionen $z > l_c$ wird daher die SH nicht weiter aufgebaut sondern kontinuierlich in die FW zurückkonvertiert. Nach einer Propagationslänge von $2l_c$ ist die Leistung der SH vollständig ab- und die FW aufgebaut.

Im Allgemeinen ist die Länge L des nichtlinearen Materials größer als die doppelte Kohärenzlänge, sodass eine Vielzahl von Auf und Abkonversionszyklen über die gesamte Kristalllänge auftreten. Die in dieser Arbeit als Ordnungszahl m bezeichnete Größe