



Erzeugung der Dritten Harmonischen in Silizium
und Photonischen Kristallen aus makroporösem Silizium
im spektralen mittleren IR-Bereich

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt der

Naturwissenschaftlichen Fakultät II
der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

von

Kerstin Mitzschke

geb. am 17.08.1964 in Halle(Saale)

Gutachter:

1. Prof. Dr. Heinrich Graener
2. Prof. Dr. Helmut Föll
3. Prof. Dr. Ralf B. Wehrspohn

Halle(Saale), April 2007

Tag der Verteidigung: 01. November 2007

urn:nbn:de:gbv:3-000012694

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=nbn%3Ade%3Agbv%3A3-000012694>]

Inhaltsverzeichnis

1	Wissenschaftliche Motivation	1
2	Photonische Kristalle	3
2.1	Einführung	3
2.2	Theoretische Grundlagen der Photonischen Kristalle	4
2.2.1	Maxwell-Gleichungen in periodisch dielektrischen Medien	4
2.2.2	Kristallgitter und reziprokes Gitter	5
2.2.3	Symmetrien und Polarisation im 2D-Kristall	6
3	Nichtlineare optische Wechselwirkungen	9
3.1	Nichtlineare Polarisation	9
3.2	Nichtlineare Wellengleichung	12
3.3	Suszeptibilität höherer Ordnungen	14
3.4	Suszeptibilität dritter Ordnung	17
3.4.1	Intensitätsabhängiger Brechungsindex	18
3.4.2	Selbstfokussierung	19
3.4.3	Selbstphasenmodulation	19
3.4.4	Erzeugung der Dritten Harmonischen	20
3.4.5	Theoretische Ausführungen zum Experiment	27
4	Die untersuchten Photonischen Kristalle	37
4.1	Der Silizium-Kristall	37
4.2	Herstellung der Photonischen Kristalle	38
4.3	Charakterisierung der untersuchten Proben	39
4.3.1	Brechung und Reflexion im nichtlinearen Medium	43
5	Experimenteller Aufbau und praktische Durchführung der Experimente	45
5.1	Erzeugung und Verkürzung der Laserimpulse	45
5.2	Impulsverstärkung	47
5.3	Erzeugung durchstimmbarer Infrarot-Impulse	48
5.3.1	Parametrische Drei-Photonen-Prozesse und Phasenanpassung	49
5.3.2	Der optische-parametrische Generator (OPG)	50
5.3.3	Der optische-parametrische Verstärker (OPA)	51
5.4	Messaufbau und Detektion	52
5.4.1	Ausrichtung der Proben	53
5.4.2	Bestimmung der Fokusposition	54
5.4.3	Detektion nichtlinearer Prozesse	55
5.4.4	Polarisationsaufgelöste Detektion	57
5.4.5	Spektrale Eigenschaften	59

5.5	Verarbeitung der Messdaten	63
5.5.1	Abschätzung der Messgenauigkeit und Normierung der Messdaten . .	63
5.5.2	Bestimmung der Bündeldurchmesser des IR und der Dritten Harmonischen	67
6	Messergebnisse und Diskussion	71
6.1	Kristallines Silizium	75
6.2	Photonische Kristalle	82
6.2.1	Photonische Kristalle mit hexagonaler Struktur	84
6.2.2	Photonische Kristalle mit quadratischer Struktur	95
6.2.3	Theta-Abhängigkeiten	100
6.2.4	Frequenz-Abhängigkeiten	101
7	Zusammenfassung und Ausblick	103
	Literaturverzeichnis	108
A	Berechnung der photonischen Bandstruktur	i
B	Nichtlineare Effekte zweiter Ordnung	v
B.1	Frequenzverdopplung und optische Gleichrichtung	v
B.2	Frequenzmischung	vi
C	Gaußsche Bündel	vii

Kapitel 1

Wissenschaftliche Motivation

Licht ist die große Hoffnung für die Informationsübertragung, denn es bewegt sich wesentlich schneller als Elektronen. Bisher allerdings müssen die Lichtsignale in den Netzknoten in elektrische Signale umgewandelt werden, da es noch kein geeignetes Halbleitermaterial für Licht gibt. Seit Erfindung des Lasers lassen sich jedoch Fortschritte in der Photonik - der Informationsverarbeitung mit Photonen - an der Entwicklung neuartiger optischer Werkstoffe erkennen. Dies eröffnet neue Möglichkeiten, Licht gezielt zu beeinflussen. Ein Werkstoff hierfür sind Photonische Kristalle. Die einzigartigen Eigenschaften von Photonischen Kristallen erlauben eine Kontrolle über die Propagation von Licht auf kleinsten Längen. Sie sind damit für zukünftige Anwendungen beispielsweise in der Kommunikations- und Informationstechnik prädestiniert. Allgemein bekannt ist der Erfolg der Glasfaserkabel in der Kommunikationstechnik. Informationen können damit schneller, weniger störanfällig und in größeren Mengen als durch Kupferleitungen transportiert werden. Die Kommunikationstechnik basiert bisher auf der Elektronik, da Elektronen aufgrund ihrer Ladung leichter zu handhaben sind. Mit Hilfe von Photonischen Kristalle ergibt sich jedoch die Möglichkeit, solche elektronischen Bauteile rein optisch zu verwirklichen. Deshalb liegt ein Schwerpunkt der Forschung in der Untersuchung solcher Bauelemente auf der Basis von Photonischen Kristallen.

Photonische Kristalle besitzen optische Eigenschaften, über die natürlich vorkommenden Materialien nicht verfügen. Diese Eigenschaften können für ganz spezielle Einsatzgebiete genutzt werden. Von besonderem Interesse ist die Untersuchung der nichtlinearen optischen Eigenschaften der Photonischen Kristallen. So sind über nichtlineare optische Prozesse in Photonischen Kristallen eine schnelle, reversible Änderung des Brechungsindex und des Absorptionskoeffizienten möglich. Dieser Effekt könnte Grundlage eines rein optischen Computers werden, da man darauf einen optischen Schalter aufbauen kann. Dieser Rechner wäre dann deutlich schneller als elektronische Systeme aufgrund paralleler Datenbearbeitung.

Eine Standardanwendung der nichtlinearen Optik ist die Frequenzkonversion der optischen Strahlung, und im besonderen die Erzeugung Höherer Harmonischer. Solche Untersuchungen sind erst seit der Entwicklung leistungsstarker Lasersysteme möglich. Die Kombination kurzer Laserimpulse mit hohen Repetitionsraten und moderaten Energien ermöglicht es, unterhalb der Zerstörschwelle an Oberflächen von Halbleitern und in diesen selbst Höhere Harmonische zu generieren.

Die Analyse von Oberflächen-, oberflächennahen und Bulk-Eigenschaften von Festkörpern durch Techniken der nichtlinearen Optik ist gut bekannt. Neben nichtlinearen Prozessen dritter Ordnung wie Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation ist die Erzeugung Dritter Harmonischer (*THG-Third Harmonic Generation*) ein einfacher Prozess, der zur Charakterisierung von Materialien genutzt werden kann. So diente die THG schon 1986 Moss et al. [Mos86] als diagnostisches Instrument zur Strukturcharakterisierung von Festkörpern. Sie

zeigten, dass die THG eine geeignete nicht-invasive und hochauflösende optische Methode ist, um Informationen von Bulk oder Oberflächenstrukturen von Silizium zu erhalten. Sie untersuchten im sichtbaren Spektralbereich die Winkelabhängigkeit der THG in (100)-orientiertem kristallinem Silizium und erhielten damit Aussagen über die Bulkigenschaften.

Experimente, die die Dritte Harmonische erzeugen, lassen sich relativ leicht ausführen, da alle zentrosymmetrischen Materialien TH-aktiv sind und das detektierte TH-Signal spektral sehr weit von der Fundamentalwellenlänge entfernt ist [Lue91]. Bis jetzt wurden die meisten Untersuchungen an Silizium im sichtbaren Spektralbereich durchgeführt, da sie durch die linearen Absorptionsverluste begrenzt wurden. So erweist sich eine Ausdehnung der Dritten Harmonischen auf den infraroten Spektralbereich als überaus nützlich. Dies erlaubt natürlich neben der Untersuchung von Silizium auch die Untersuchung von Photonischen Kristallen, wobei hier gerade Frequenzen in der Nähe der Bandlücken von großem Interesse sind.

In der vorliegenden Arbeit wurden 2D- und 3D-Photonische Kristalle aus makroporösem Silizium optisch untersucht. Makroporöses Silizium stellt ein geeignetes Materialsystem für die Herstellung Photonischer Kristalle mit hohem Brechungsindexkontrast dar. Durch Lithographie und einen anschließenden photoelektrochemischen Ätzprozess [Leh90] lässt sich eine relativ langreichweitige Periodizität eines Porengitters auf einem Silizium-Wafer herstellen. In solchen Kristallen wird bei Transmission die Lichtpropagation ausschließlich durch die Kristallstruktur beeinflusst. Die photonische Bandlücke der untersuchten Strukturen liegt im mittleren IR-Bereich.

Ziel der Arbeit ist es, mit Hilfe nichtlinearer optischer Methoden und dabei bevorzugt mittels THG, die erzeugten Strukturen Photonischer Kristalle zu analysieren sowie das Verhalten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von unterschiedlichen Parametern und die prinzipiellen Eigenschaften Photonischer Kristalle experimentell zu untersuchen.

Die Einführung in die theoretischen Grundlagen im nachfolgenden Kapitel umfasst die Beschreibung Photonischer Kristalle sowie eine Darstellung über die für diese Arbeit genutzten nichtlinearen optischen $\chi^{(3)}$ -Prozesse mit einem Überblick über den Stand der Forschung auf diesem Gebiet bis heute. An die Kapitel 4 und 5, die die Charakterisierung der verwendeten Kristalle sowie des experimentellen Aufbaus beinhalten, schließt sich ein Kapitel mit den Ergebnissen der Experimente mit Photonischen Kristallen und deren Interpretation an. Im letzten Kapitel wird eine Zusammenfassung und ein Ausblick für weitergehende Experimente und Untersuchungen gegeben.

Kapitel 2

Photonische Kristalle

2.1 Einführung

In den letzten 20 Jahren entwickelten sich die Photonischen Kristalle zu einem bevorzugten Gegenstand der Grundlagenforschung aber auch der angewandten Forschung und Entwicklung. Sehr intensiv wird nach Werkstoffen gesucht, die die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen beeinflussen, gleich der Art und Weise wie in Halbleiterkristallen, in denen die Bewegung der Elektronen durch ein periodisches Potential und die Existenz von erlaubten und verbotenen Energiebändern bestimmt wird. Die Idee der Photonischen Kristalle wurde erstmalig 1987 von Yablonovich [Yab87] und John [Joh87] unabhängig voneinander theoretisch beschrieben. Es handelt sich hierbei um künstlich hergestellte, dielektrische Medien, in denen der Brechungsindex räumlich periodisch variiert. Die besondere Eigenschaft der Photonischen Kristalle besteht darin, dass sie in Analogie zur Ausbildung der elektronischen Bandstruktur bei Halbleitern eine photonische Bandstruktur besitzen. Diese Bandstruktur besitzt Bereiche, in denen elektromagnetische Wellen innerhalb des Kristalls nicht propagieren können. Diese Intervalle der verbotenen Frequenzen nennt man photonische Bandlücken (PBG = englisch *photonic bandgap*). Die Abwesenheit erlaubter propagierender Moden innerhalb der Struktur verspricht die Realisierbarkeit von optischen Phänomenen wie die Unterdrückung der spontanen Emission, hochreflektierende, omnidirektionale Spiegel oder die verlustarme Wellenführung. Man unterscheidet 1D-, 2D- und 3D-Photonische Kristalle in Abhängigkeit der möglichen Raumrichtungen, in denen der Brechungsindex variiert bzw. der Kristall beim Lichteinfall eine Bandlücke aufweist.

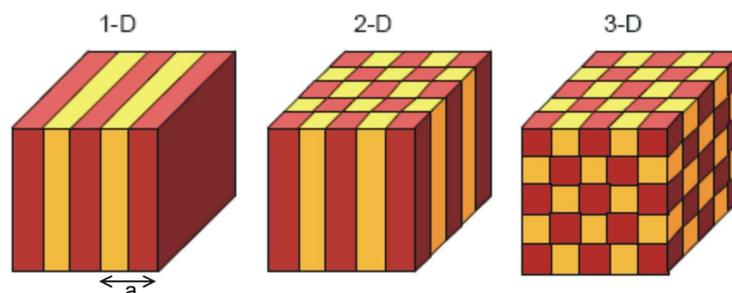


Abbildung 2.1: Beispiele für 1D-, 2D- und 3D-Photonische Kristalle, a -Gitterkonstante nach [Joa95]

Eine elektromagnetische Welle, die auf einen Photonischen Kristall trifft, wird aufgrund der Brechungsindexänderungen an den Grenzflächen gestreut. Ist die Wellenlänge viel größer als die Gitterkonstante des Kristalls, stellt der Kristall für die Welle ein effektives Medium mit

einem mittleren Brechungsindex dar. Wird jedoch die Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung vergleichbar oder kleiner als die Gitterkonstante, tritt Bragg-Streuung auf, und es kommt somit zur Interferenz der gestreuten Wellen.

Bereiche, denen man einer Frequenz einen Wellenvektor zuordnen kann, nennt man Bänder. Ist dies nicht möglich, so kann eine Welle der entsprechenden Frequenz im Kristall nicht propagieren und man spricht von einem Stopband bzw. einer Bandlücke. Aus den Maxwell-Gleichungen ist bekannt, dass sich die spektrale Position der Photonischen Bandlücke linear zur Gitterkonstante des Photonischen Kristalls verhält [Weh03].

2.2 Theoretische Grundlagen der Photonischen Kristalle

2.2.1 Maxwell-Gleichungen in periodisch dielektrischen Medien

Grundlage für die Beschreibung der Ausbreitung des Lichts in Photonischen Kristallen sind die Maxwell-Gleichungen. Diese müssen für eine Struktur mit periodisch variierenden Brechungsindex eines (für eine elektromagnetische Welle) transparenten Mediums betrachtet werden. Dies beschreibt die räumlich periodische Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r} + \vec{R})$. \vec{R} ist ein beliebiger Gittervektor im Kristall. Das zugehörige Eigenwertproblem setzt sich aus den Maxwell-Gleichungen

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \varepsilon(\vec{r}) \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (2.2)$$

zu

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) \right) = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.3)$$

zusammen. Dabei ist \vec{E} das elektrische Feld, \vec{H} das magnetische Feld und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ($c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$). Die Zeitabhängigkeit lässt sich für einen unendlich ausgedehnten Kristall mit dem Ansatz harmonischer Wellen $\vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{H}(\vec{r}, \omega) e^{i\omega t}$ separieren und man erhält

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, \omega) \right) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (2.4)$$

Im Gegensatz zu Elektronen in kristallinen Festkörpern wird dieses Eigenwertproblem nicht durch eine skalare Funktion (Schrödinger-Gleichung $\psi(\vec{r})$) sondern durch ein Vektorfeld $\vec{H}(\vec{r})$ beschrieben. Die Lösungen der Eigenwertgleichung (2.4) können auch hier, wie in der Festkörperphysik üblich, nach dem Bloch-Theorem zu

$$\vec{H}(\vec{r}, \omega) = e^{i\vec{k}\vec{r}} u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) \quad (2.5)$$

mit

$$u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) = u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r} + \vec{R}) \quad (2.6)$$

gefunden werden.

Als direkte Folge von (2.5) können nur Lösungen für (2.4) auftreten, die sich aus einer ebenen Welle $e^{i\vec{k}\vec{r}}$ und einer gitterperiodischen Funktion $u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r})$ zusammensetzen.

2.2.2 Kristallgitter und reziprokes Gitter

Ein Kristall zeichnet sich dadurch aus, dass seine Bausteine (i. a. Atome), aus denen er aufgebaut ist, räumlich periodisch angeordnet sind. Auch für die Beschreibung der Periodizität im Photonischen Kristall nutzt man Kristallgitter. Punkte, deren Koordinaten sich um einen Gittervektor \vec{R} unterscheiden, besitzen die gleichen Kristalleigenschaften. Dabei ist \vec{R} ein beliebiger Gittervektor im Kristall mit den primitiven Translationsvektoren \vec{a}_1 , \vec{a}_2 und \vec{a}_3 ($\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3$). Aus dieser Definition geht klar hervor, dass man mit diesem Formalismus zunächst unendlich ausgedehnte Kristallsysteme betrachtet. Die kleinste Raumeinheit, die die vollständige Information über den Kristall enthält, heißt Wigner-Seitz-Zelle. Durch Aneinandersetzen von Wigner-Seitz-Zellen kann man den gesamten Kristall aufbauen. Anstatt das Kristallgitter im realen oder Ortsraum für die weitere Berechnung zu verwenden, ist es meist zweckmäßig, sich auf das zugehörige Gitter im reziproken Raum (\vec{k} -Raum) zu beziehen, das von den primitiven Vektoren \vec{b}_i aufgespannt wird. Diese ergeben sich aus den Translationsvektoren des Realraumgitters wie folgt:

$$\begin{aligned} \vec{b}_1 &= 2\pi \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \\ \vec{b}_2 &= 2\pi \frac{\vec{a}_3 \times \vec{a}_1}{\vec{a}_2 \cdot (\vec{a}_3 \times \vec{a}_1)} \\ \vec{b}_3 &= 2\pi \frac{\vec{a}_1 \times \vec{a}_2}{\vec{a}_3 \cdot (\vec{a}_1 \times \vec{a}_2)} \end{aligned}$$

Für das Produkt aus einem Gittervektor und einem reziproken Gittervektor \vec{G} gilt:

$$\vec{G} \cdot \vec{R} = m \cdot 2\pi \quad \text{mit} \quad m = 0, \pm 1, \pm 2 \dots \quad (2.7)$$

In Analogie zur Wigner-Seitz-Zelle definiert man die 1. Brillouin-Zone (1. BZ) als Elementarzelle des reziproken Gitters, auf die man die Lösung des Eigenwertproblems (2.4) beschränkt. Aufgrund der Periodizität im Ortsraum genügt es zur vollständigen Beschreibung, die erhaltene Dispersionsrelation für die \vec{k} -Vektoren in der ersten Brillouin-Zone ($\vec{k} \leq \frac{\pi}{a}$) zu bestimmen. \vec{k} -Vektoren, die außerhalb der Brillouin-Zone liegen, können mittels der reziproken Gittervektoren auf diese zurückgefaltet werden.

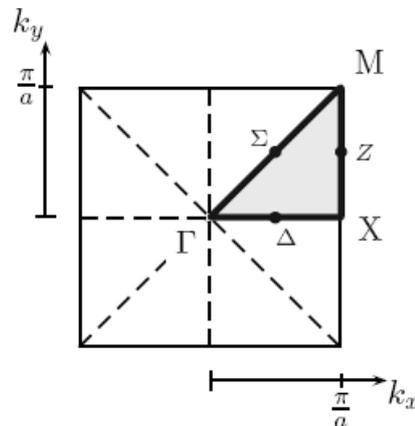


Abbildung 2.2: Brillouin-Zone für ein Quadratgitter mit Hochsymmetriepunkten. Die markierte Dreiecksfläche entspricht der irreduziblen BZ. Die Berechnung der Bandstruktur erfolgt für die \vec{k} -Werte entlang der fett gedruckten Linien nach [Sak01].

In zwei- und dreidimensionalen Photonischen Kristallen treten neben der Translationssymmetrie zusätzlich noch Rotationssymmetrien auf. Mit ihnen kann der Bereich der verwendeten \vec{k} -Vektoren noch weiter eingeschränkt werden. Den kleinsten Bereich, aus dem durch Symmetrioperationen alle \vec{k} -Vektoren gewonnen werden können, bezeichnet man als irreduzible Brillouin-Zone. In Abbildung 2.2 entspricht diese der markierten Dreiecksfläche. Man beschränkt sich bei der Darstellung auf \vec{k} -Werte, die auf den Linien zwischen Hochsymmetriepunkten liegen. Im Quadratgitter sind dies die Punkte Γ , X und M. Dies ermöglicht die im Anhang A in Abbildung A.1 dargestellte eindimensionale Auftragung der Bandstruktur [Die03]. Da die Bandstrukturberechnung für diese Arbeit nicht unmittelbar genutzt wird, sei auf den Anhang A verwiesen.

2.2.3 Symmetrien und Polarisation im 2D-Kristall

2D-Kristalle bestehen meistens aus parallel angeordneten, in eine Richtung unendlich ausgehenden Zylindern (Abbildung 2.3) bzw. aus einer Struktur, bei der Poren in ein Substrat eingelassen wurden. Für zweidimensionale Kristalle kommt es aus Symmetrieüberlegungen zu einer Entkopplung der Polarisationsfreiheitsgrade.

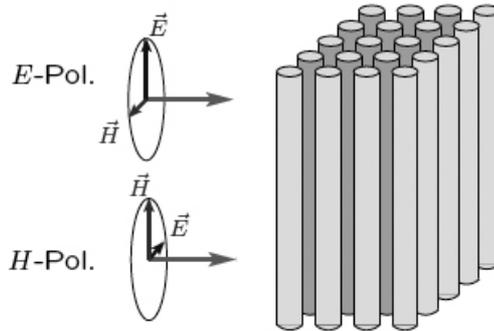


Abbildung 2.3: E- und H-Polarisation für einen 2D-Kristall nach [Die03]

Zur Definition der H- und E-Polarisation wird ein Photonischer Kristall betrachtet, der aus Zylindern aufgebaut ist. Die Zylinder seien parallel zur y-Achse unendlich ausgehend. Die Propagation findet in der x-z-Ebene ($y = 0$) statt. Damit existieren für dieses System zwei verschiedene Polarisationen:

- H-Polarisation: $\vec{H} = (0, H_y, 0)^T$ parallel zu den Zylindern, $\vec{E} = (E_x, 0, E_z)^T$ in der Propagationsebene
- E-Polarisation: $\vec{E} = (0, E_y, 0)^T$ parallel zu den Zylindern, $\vec{H} = (H_x, 0, H_z)^T$ in der Propagationsebene

Die Argumentation beruht darauf, dass ein in der x-z-Ebene liegendes Feld aufgrund der auftretenden Streuung immer eine longitudinale Komponente bezüglich des einfallenden \vec{k} -Vektors (ebenfalls in der x-z-Ebene) entwickelt. Ein parallel zu den Zylindern ausgerichtetes Feld steht jedoch immer senkrecht auf dem einfallenden \vec{k} -Vektor und behält seine Transversalität bei.

Für beide Polarisationen ergibt sich eine eigene Bandstruktur, die Bandlücken aufweisen kann. Wenn die Bandlücken von H- und E-Polarisation überlappen, spricht man von vollständiger 2D-Bandlücke. Elektromagnetische Wellen mit einer Frequenz innerhalb dieser kompletten Bandlücke können sich damit nicht im 2D-Kristall parallel zur x-z-Ebene ausbreiten. Befindet

man sich mit der gewählten Frequenz in einem Stoppband genügt es, die Richtung der einfallenden Welle zu ändern, um Propagation zu erreichen. In einer Bandlücke hingegen muss man hierfür die Orientierung der Felder ändern. In vollständigen Bandlücken gibt es keine Möglichkeit, für eine gegebene Frequenz Propagation zu erreichen.

Kapitel 3

Nichtlineare optische Wechselwirkungen

3.1 Nichtlineare Polarisation

In einem dielektrischen Medium werden durch ein elektrisches Feld Dipolmomente erzeugt. Die Polarisation \vec{P} ergibt sich aus der Summe der Dipole in einem bestimmten Volumen. Wirkt ein Wechselfeld $\vec{E}(t)$, so entsteht eine zeitabhängige Polarisation, die wiederum ein Wechselfeld abstrahlt:

$$\vec{P}(t) = \chi \varepsilon_0 \vec{E}(t) \quad (3.1)$$

mit $\chi = \varepsilon - 1$, ε ist die Dielektrizitätskonstante des Mediums. Der Koeffizient χ heißt optische Suszeptibilität. Er kann als Antwort des Mediums auf die Störung durch das elektrische Feld aufgefasst werden. Mit der Entwicklung des Lasers in den 60iger Jahren konnte auch experimentell nachgewiesen werden, dass der lineare Zusammenhang zwischen elektrischem Feld \vec{E} und der dadurch in einem Medium erzeugten Polarisation \vec{P} nur für kleine Feldstärken zutrifft. Bei hohen Feldstärken gilt diese Proportionalität nicht mehr, da nun nichtlineare Anteile der Polarisation zu berücksichtigen sind. Aufgrund der kleinen Werte von χ kann die Polarisation als Potenzreihe nach dem elektrischen Feld entwickelt werden:

$$\begin{aligned} \vec{P} &= \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + (\chi^{(2)} \vec{E}) \vec{E} + ((\chi^{(3)} \vec{E}) \vec{E}) \vec{E} + \dots \right) \\ &= \vec{P}_L + \varepsilon_0 \left((\chi^{(2)} \vec{E}) \vec{E} + ((\chi^{(3)} \vec{E}) \vec{E}) \vec{E} + \dots \right) \\ &= \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \end{aligned} \quad (3.2)$$

Der erste Term beschreibt den linearen \vec{P}_L und der Rest den nichtlinearen Anteil \vec{P}_{NL} der Polarisation. Hierbei ist $\chi^{(1)}$ die lineare Polarisierbarkeit oder Suszeptibilität erster Ordnung und $\chi^{(q)}$ mit $q \geq 2$ die nichtlineare Polarisierbarkeit oder Suszeptibilität q-ter Ordnung.

Bloembergen [Blo92] hat das Modell des anharmonischen Oszillators genutzt, um die nichtlineare Polarisation, die durch ein starkes äußeres Feld hervorgerufen wird, zu diskutieren.

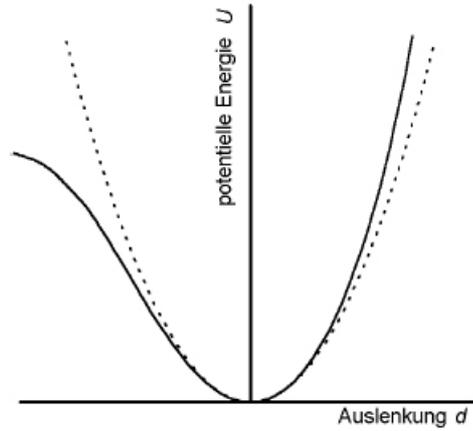


Abbildung 3.1: Vergleich eines harmonischen Potentials (gestrichelte Linie) mit dem realen, anharmonischen Potentials (durchgezogene Linie) eines elastisch gebundenen Elektrons nach [Boy03]

Die elektrische Feldstärke \vec{E} einer Lichtwelle der Frequenz ω übt eine Kraft \vec{F}_e auf die Elektronen im Medium aus. Die Elektronen oszillieren mit der Frequenz des einfallenden Lichts, was eine Auslenkung aus ihrer Ruhelage bewirkt. Die Summe der dadurch erzeugten Dipolmomente ist die Polarisation des Mediums, für die im linearen Fall Gleichung (3.1) gilt. Solange die Kräfte klein sind, sind die Auslenkungen proportional zu ihnen, $d \propto \vec{F}_e$ bzw. die Polarisation ist proportional zur elektrischen Feldstärke $\vec{P} \propto \vec{E}$. Die Bewegungsgleichung für die Elektronen im linearen Fall ist gegeben durch

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \omega_0^2 x = -\frac{e}{m} E(t) \quad (3.3)$$

wobei e und m die Elementarladung bzw. die Ruhemasse des Elektrons, ω_0 die Resonanzfrequenz und γ ein Term für die Dämpfung des in einem eingestrahlteten elektromagnetischen Feldes angetriebenen Elektrons darstellen. Mit dem Feld $\vec{E}(t) = E_0 \exp(i(\omega t - kr))$ lässt sich die Lösung von (3.3) folgendermaßen schreiben.

$$x(\omega, r) = \frac{e}{m} \frac{E_0}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma} \exp(i(\omega t - kr)) \quad (3.4)$$

Wird jedoch die Feldstärke des eingestrahlteten Lichts größer, so dass die Energie in die Nähe der Bindungsenergie der Elektronen gelangt, geht die parabolische Näherung des elektrischen Potentials in einen unsymmetrischen Verlauf über (durchgezogene Linie in Abbildung 3.1). Die Bewegungsgleichung für die Elektronen ist dann gegeben durch

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \omega_0^2 x + \lambda x^2 + \dots = -\frac{e}{m} E(t) \quad (3.5)$$

mit dem nichtlinearen Term der Rückstellkraft λx^2 .

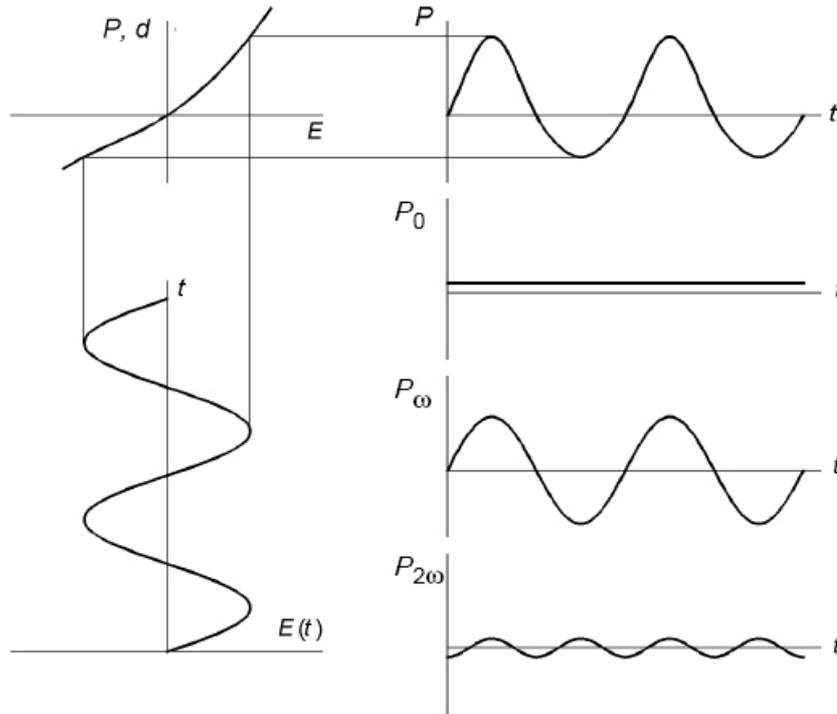


Abbildung 3.2: Nichtlineare Kennlinie des Elektrons (links oben)
Darstellung der Zerlegung der nichtlinearen Polarisation P (konstanter Anteil P_0 , Fundamental-Polarisation P_ω , Polarisation zweiter Ordnung $P_{2\omega}$) nach [Ber93]

Die Elektronen beginnen unter dem Einfluss der sinusförmigen Feldstärke anharmonisch zu schwingen, d.h. die nichtlineare Kennlinie des Elektrons bewirkt eine Umwandlung der eingestrahlten Sinuswelle in eine anharmonische Schwingung. In der Auslenkung und damit auch in der Polarisation treten nun Oberwellen auf. Die Polarisation ist nicht mehr linear und nun eine Funktion des elektrischen Feldes, die zusätzlich Terme höherer Ordnung besitzt. Die Zerlegung der Polarisation in ihre Grundwellen entspricht dem Auftreten von Termen mit Frequenzen von $q \cdot \omega$ ($q = 1, 2, \dots$). Es handelt sich dabei um die Erzeugung Höherer Harmonischer einer monochromatischen Lichtwelle, deren mikroskopische Ursache die nichtlinearen Suszeptibilitäten sind.

Die nichtlinearen Suszeptibilitäten stellen Tensoren des Grades $q+1$ dar, die die Vektorkomponenten des elektrischen Feldes \vec{E} mit der Polarisation \vec{P} verbinden:

$$P_i(E) = \varepsilon_0 \left(\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right) \quad (3.6)$$

Die Indizes j , k und l nehmen die Werte x , y , z (drei Raumrichtungen) zyklisch an. Die Wirkung dieser höheren Terme ruft die so genannten nichtlinearen optischen Effekte hervor. $\chi^{(q)}$ sind Materialparameter und meist anisotrop, wobei $\chi^{(1)}$ um Größenordnungen größer als $\chi^{(q)}$ ($\chi^{(2)} \sim 10^{-10} \frac{\text{cm}}{\text{V}}$ und $\chi^{(3)} \sim 10^{-17} \frac{\text{cm}^2}{\text{V}^2}$) ist.

Die räumlichen Symmetrien des Mediums spiegeln sich ebenfalls in den Symmetrieeigenschaften des Suszeptibilitätstensors wider. Der Term zweiter Ordnung tritt nur in nichtzentrosymmetrischen Kristallen auf, wohingegen $\chi^{(3)}$ prinzipiell immer vorhanden ist. Dies folgt daraus, dass in zentrosymmetrischen Kristallen eine Änderung der Vorzeichen der einfallenden elektrischen Felder eine Änderung des Vorzeichens der Polarisation nach sich zieht.

Für die Polarisierung

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k \quad (3.7)$$

folgt aus obiger Feststellung

$$\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_j E_k = -\varepsilon_0 \chi^{(2)} (-E_j) (-E_k) \quad (3.8)$$

Für $\chi^{(2)} = 0$ ist Gleichung (3.8) erfüllt. Eine analoge Formulierung für $\chi^{(3)}$ ergibt Gleichheit. Betrachtet man die Prozesse unter Rauminversion wird das oben genannte ebenfalls deutlich. Für isotrope Medien ändert sich die Umgebung der Atome und die Materialeigenschaften nicht, $\chi^{(2)}(x, y, z) = \chi^{(2)}(-x, -y, -z)$. Die Polarisierung \vec{P} und das elektrische Feld \vec{E} dagegen wechseln ihr Vorzeichen unter Rauminversion.

$$-\vec{P} = \varepsilon_0 \left(-\chi^{(1)} \vec{E} + (\chi^{(2)} \vec{E}) \vec{E} - ((\chi^{(3)} \vec{E}) \vec{E}) \vec{E} + \dots \right)$$

Diese Gleichung muss entsprechend (3.2) gültig sein. Dies ist wiederum nur möglich, wenn die Suszeptibilitäten gerader Ordnung Null sind. Die Polarisierung gerader Ordnung kann demzufolge nur in Medien ohne Inversionssymmetrie erzeugt werden. Zu beachten ist hierbei jedoch, dass an Oberflächen keine Inversionssymmetrie (bezüglich der Oberfläche) besteht, so dass hier auch nichtlineare Effekte gerader Ordnung ausgelöst werden können.

3.2 Nichtlineare Wellengleichung

Zur Beschreibung der Phänomene höherer Ordnung geht man wiederum von den vier Maxwell-Gleichungen, die zusammen mit den Materialgleichungen die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in einem nicht magnetischen Medium beschreiben, aus. Ohne äußere Ströme ($\vec{j} = 0$) und Ladungen ($\rho = 0$) und mit $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ für nichtmagnetische Materialien gilt

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (3.9)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (3.10)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (3.11)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.12)$$

Zwischen \vec{D} und \vec{E} besteht der materialabhängige Zusammenhang $\vec{D} = \vec{D}(\vec{E}) = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E})$. Die dielektrische Polarisierung ist durch Gleichung (3.2) oder in tensorieller Schreibweise durch (3.6) gegeben. Im allgemeinen hängt die dielektrische Polarisierung auch von \vec{B} ab. Dies wird hier ebenso vernachlässigt, wie das Auftreten der magnetischen Suszeptibilität ($\mu_r = 1$). Mit der linearen Dielektrizitätskonstante ε gelten folgende Beziehungen:

$$\vec{P}(\vec{E}) = \varepsilon_0(\varepsilon - 1)\vec{E} + \vec{P}_{NL} \quad (3.13)$$

$$\vec{D}(\vec{E}) = \varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}_{NL} \quad (3.14)$$

Der Term $(\varepsilon - 1)$ ist gleich $\chi^{(1)}$ (Gleichung (3.1)), und \vec{P}_{NL} enthält Terme höherer Ordnung. Zur Ableitung der nichtlinearen Wellengleichung setzt man nun Gleichung (3.14) in (3.11) und $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ in (3.9) ein.

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}_{NL}) = \varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_{NL}}{\partial t} \quad (3.15)$$

$$-\nabla \times \vec{E} = \frac{\partial}{\partial t}(\mu_0 \vec{H}) = \mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (3.16)$$

Die Rotation von Gleichung (3.16) und anschließendes Einsetzen in Gleichung (3.15) führt zu

$$-\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}_{NL}}{\partial t} \right) \quad (3.17)$$

Die Benutzung der Umformung $\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla(\nabla \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E}$ und Verwendung von Gleichung (3.10) impliziert, dass $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ für das Innere eines homogenen Mediums gilt¹, und es folgt mit $\varepsilon_0 \mu_0 = c^{-2}$

$$\Delta \vec{E} - \frac{\varepsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2 \varepsilon_0} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (3.18)$$

Dies ist die nichtlineare Wellengleichung. Der Term auf der rechten Seite ist der nichtlineare Quellterm. Wenn man $\vec{P}_{NL} = 0$ setzt, erhält man die lineare Wellengleichung. Die wichtigste Konsequenz für \vec{P}_{NL} ist, dass weder für die räumlichen noch für die zeitlichen Fourierkomponenten das Superpositionsprinzip gilt.

Die Lösung der inhomogenen Wellengleichung (3.18) stellen wie im Fall der homogenen Wellengleichung (ohne Quellterm) ebene Wellen dar. Wegen der Linearität der Gleichung kann die Lösung auf eine Superposition von beliebig vielen Wellen verschiedener Frequenzen verallgemeinert werden. Mit der Annahme, dass man von einer diskreten Frequenzverteilung auf eine kontinuierliche übergeht, kann nach Fourier ein Wellenpaket geformt werden, dass durch eine Einhüllende \vec{E}_E (=Amplitude) und die ebenen Trägerwellen beschrieben wird. Zusätzlich wird angenommen, dass die Propagation parallel zur x-Achse verläuft. So gilt:

$$\vec{E}_E(x, t) = \vec{E}(x, t) e^{i(kx - \omega t)} \quad (3.19)$$

Für die nichtlineare Polarisation kann ein analoger Ansatz gemacht werden:

$$\vec{P}_{E_{NL}}(x, t) = \vec{P}_{NL}(x, t) e^{-i\omega t} \quad (3.20)$$

Im Konzept der *slowly varying envelope approximation* (SVEA) wird angenommen, dass sich die Einhüllende des Wellenpaketes sowohl räumlich als auch zeitlich nur langsam gegenüber der Trägerwellen verändert. Damit können die zweiten Ableitungen der Einhüllenden vernachlässigt werden. Wegen der instantanen Antwort des Mediums fällt für die Polarisation die erste Ableitung nach der Zeit ebenfalls weg:

¹Dies ist gleichbedeutend damit, dass der dielektrische Zusammenbruch, bei dem freie Ladungen auftreten, ausgeschlossen ist. $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ gilt aber nur eingeschränkt. Aus (3.6) folgt $\nabla(\varepsilon_0 \varepsilon \vec{E} + \vec{P}_{NL}) = 0$, also $\nabla \cdot \vec{E} = -\frac{1}{\varepsilon_0 \varepsilon} \nabla \cdot \vec{P}_{NL}$. Für den Fall, dass die Polarisation linear vom elektrischen Feld abhängt, folgt $\nabla \cdot \vec{E} = -\frac{1}{\varepsilon_0 \varepsilon} \chi^{(1)} \nabla \cdot \vec{E}$ was nur erfüllt wäre, wenn $\nabla \cdot \vec{E} = 0$ ist. Für nichtlineare Medien verschwindet der Term $\nabla \cdot \vec{E}$ im allgemeinen nicht. Er ist aber klein und kann vernachlässigt werden und verschwindet für ebene Wellen. [Boy03]

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2}{\partial x^2} \vec{E}_E(x, t) &\sim \left(2ik \frac{\partial \vec{E}}{\partial x} - k^2 \vec{E} \right) e^{i(kx - \omega t)} \\ \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}_E(x, t) &\sim \left(-2i\omega \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} - \omega^2 \vec{E} \right) e^{i(kx - \omega t)} \\ \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}_{ENL}(x, t) &\sim -\omega^2 \vec{P}_{NL} e^{-i\omega t}\end{aligned}$$

So vereinfacht sich die Wellengleichung (3.18) nach einigen Umformungen und Substitution von k durch $k = \frac{n\omega}{c}$ zu

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial x} + \frac{n}{c} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = i \frac{\omega}{2\varepsilon_0 c n} \vec{P}_{NL} e^{-ikx} \quad (3.21)$$

Diese Gleichung muss für jede Frequenzkomponente erfüllt sein. Hierbei gilt, dass der Brechungsindex $n = n(\omega) = \sqrt{\varepsilon}$ ist. Der Term $\frac{n}{c}$ kann unter Berücksichtigung der Dispersion als $\frac{1}{v_g}$ mit der Gruppengeschwindigkeit $\frac{1}{v_g} = \frac{\partial k}{\partial \omega} = \left(\frac{n}{c} + \frac{\omega}{c} \frac{\partial n}{\partial \omega} \right)$ geschrieben werden. Die nichtlineare Polarisation wirkt demnach als treibender Term für die elektromagnetische Welle entsprechender Frequenz. Gleichung (3.21) beschreibt die Kopplung des elektrischen Feldes mit der Polarisation im nichtlinearen Medium.

3.3 Suszeptibilität höherer Ordnungen

Für eine vereinfachende Diskussion der Auswirkung der Nichtlinearitäten wird Gleichung (3.2) mit $E = \frac{1}{2} E_0 \cos(\omega t) + c.c.$ und die vektoriellen Größen als Skalare geschrieben:

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t) + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 [(1 + \cos(2\omega t))] + \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 [\cos(3\omega t) + 3 \cos(\omega t)] + \dots \quad (3.22)$$

Die Nichtlinearitäten führen dazu, dass die Polarisation mit verschiedenen Frequenzen schwingen kann (siehe auch Abbildung 3.2). Die Suszeptibilität 2. Ordnung verursacht einen zeitlich konstanten Anteil der Polarisation und einen Term, der mit der doppelten Frequenz 2ω schwingt. Der zeitlich konstante Anteil entspricht einer optischen Gleichrichtung des Feldes. $\chi^{(3)}$ bewirkt u.a. eine mit der dreifachen Frequenz 3ω schwingenden Polarisation. Die Prozesse zweiter Ordnung, die Frequenzverdopplung, Summen- und Differenzfrequenzerzeugung, werden im Experiment genutzt. Detailliertere Ausführungen dazu finden sich im Anhang B.

Für die Bestimmung der Konversionseffizienz der Erzeugung höherer Harmonischer, ihre Abhängigkeiten vom Grad der Suszeptibilität $\chi^{(q)}$ und der Wechselwirkungslänge L soll der Prozess der Frequenzverdopplung (*SHG-Second Harmonic Generation*) genutzt werden.

Bei Einstrahlung zweier elektromagnetischer Wellen der Frequenz $\omega_1 = \omega_2$ in ein nichtlineares Medium wird eine Welle mit der doppelten Frequenz $\omega = 2\omega_1$ erzeugt. Dabei wird angenommen, dass sich die einfallenden Wellen und die erzeugte Welle in x -Richtung ausbreiten. Alle Größen, die mit den einfallenden Wellen zusammenhängen, tragen den Index 1. Für die beiden Fundamentalfelder gilt damit

$$E_1(x, t) = E_1(x, \omega_1) \exp(i(k_1 x - \omega_1 t)) \quad (3.23)$$

Die nichtlineare Polarisation für die SHG ist dann

$$\begin{aligned}
 P_{NL} &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1(x, \omega_1) E_1(x, \omega_1) \exp(i(2k_1 x - 2\omega_1 t)) \\
 &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2 \exp(i(2k_1 x - 2\omega_1 t))
 \end{aligned} \tag{3.24}$$

Für die erzeugte Welle der Zweiten Harmonischen gilt

$$E(x, t) = E(x, \omega) \exp(i(kx - \omega t)) \tag{3.25}$$

Setzt man nun diese Gleichungen in die Wellengleichung (3.21) mit folgenden Annahmen ein:

- Für die erzeugte Welle kann die Änderung über die Zeit vernachlässigt werden $\frac{\partial E}{\partial t} = 0$
- Die Feldamplituden ändern sich über eine Wellenlänge wenig (SVEA).
- Die Feldstärken der eingestrahnten Wellen hängen nicht vom Ort ab, also $E_1(x, \omega_1) = E_1(\omega_1)$.

ergibt sich

$$2ik \exp(i(kx - \omega t)) \frac{\partial}{\partial x} E = \frac{1}{c^2} (2\omega_1)^2 \chi^{(2)} E_1^2 \exp(i(2k_1 x - 2\omega_1 t)) \tag{3.26}$$

Wegen der Energieerhaltung folgt $\omega = 2\omega_1$. Die so genannte Phasenfehlanpassung zwischen eingestrahelter und erzeugter Welle wird definiert als

$$\Delta k = 2k_1 - k$$

und es gilt weiter $\frac{\omega}{k} = v_g = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon}} = \frac{c}{n}$ wegen $n = \sqrt{\varepsilon}$. Nach Umstellen und Kürzen erhält man

$$\frac{\partial}{\partial x} E = i \frac{\omega}{2cn} \chi^{(2)} E_1^2 \exp(i\Delta k x) \tag{3.27}$$

Diese Gleichung wird von 0 bis zur Kristalllänge L mit der Annahme $\vec{E}(0) = 0$ integriert

$$E(L) = \frac{\omega}{2cn} \chi^{(2)} E_1^2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \tag{3.28}$$

Bildet man das Betragsquadrat des elektrischen Feldes, $I \propto |E|^2$, erhält man mit der trigonometrischen Umformung ² die Intensität I_{SH} der Zweiten Harmonischen

$$I_{SH} = \frac{\omega^2}{4c^2 n^2} (\chi^{(2)})^2 |E_1|^4 L^2 \cdot \text{sinc}^2(\Delta k L / 2) \tag{3.29}$$

In folgender Abbildung sind die Fälle $\Delta k = 0$ und $\Delta k \neq 0$ graphisch dargestellt.

² $2 \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2 = L^2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k L} \frac{e^{-i\Delta k L} - 1}{\Delta k L} = 2L^2 \frac{1 - \cos \Delta k L}{(\Delta k L)^2} = L^2 \frac{\sin^2 \Delta k L / 2}{(\Delta k L / 2)^2} = L^2 \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$

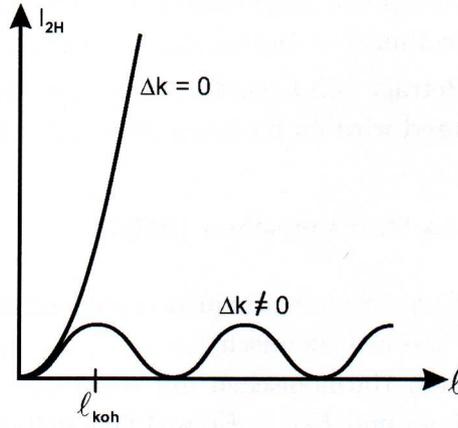


Abbildung 3.3: Intensität der Zweiten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge L nach [Boy03]

Ist die Phasenanpassung $\Delta k = 0$ (*phase matching*) gewährleistet, steigt die Intensität der erzeugten Zweiten Harmonischen quadratisch mit der Kristalllänge an. Für den Fall $\Delta k \neq 0$ ergibt sich ein oszillatorisches Verhalten mit der charakteristischen Länge L_{coh} . L_{coh} bezeichnet dabei die Kohärenzlänge [Boy03].

$$L_{coh} = 2/\Delta k$$

Sie bedeutet die maximal zulässige Länge, in der die neue gewünschte Frequenz durch Wechselwirkung der eingestrahnten Wellen erzeugt wird. Durch die unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten

$$v_{ph}(\omega) = \frac{c}{n(\omega)} \quad \text{und} \quad v_{ph}(2\omega) = \frac{c}{n(2\omega)}$$

von der Fundamentalen ω und der Zweiten Harmonischen 2ω kommt es zu einer Intensitätsmodulation. Sind beide Wellen über die gesamte Wechselwirkungslänge L nicht in Phase, interferieren die an verschiedenen Orten mit unterschiedlichen Phasen erzeugten Wellen destruktiv miteinander. Bei der doppelten Kohärenzlänge heben sich alle erzeugten Felder auf. Danach baut sich das Feld wieder auf bis zum erneuten vollständigen Abbau durch destruktive Interferenz. Demzufolge fließt die Energie zwischen den wechselwirkenden Wellen innerhalb der Kohärenzlänge hin und zurück, d. h. man hat über die Gesamtlänge des Kristalls eine periodische Ab- und Zunahme der Intensität der höheren Harmonischen.

Aus Gleichung (3.29) gehen die prinzipiellen Abhängigkeiten der Intensität der Zweiten Harmonischen hervor. Im absorptionsfreien Fall ist die Intensität der q -ten Harmonischen allgemein nach [Zür98a] gegeben durch:

$$I_q(\omega) \sim (\chi^{(q)}(q\omega))^2 I_\omega^q L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \quad (3.30)$$

mit

$$\Delta k = k_{q\omega} - qk_\omega = \frac{q\omega}{c} (n(q\omega) - qn(\omega)) \quad (3.31)$$

Bei Frequenzvervielfachungen handelt es sich um richtungsabhängige Prozesse, bei denen die Phasenbeziehungen des erzeugten Lichtes und der Fundamentalen eine wichtige Rolle spielen (siehe Kapitel 5.3.1). Mit

$$n(q\omega) = n(\omega) \quad (3.32)$$

erhält man die größtmögliche Effizienz zur Erzeugung Höher Harmonischer. Die Dispersion der Materialien erlaubt es allerdings nicht, dass die Bedingung (3.32) für die Fundamentalen und die erzeugten Höher Harmonischen erfüllt ist. Man macht sich hierbei jedoch eine optische Eigenschaft, die Doppelbrechung, die viele Kristalle besitzen, zu Nutze. Es existieren Frequenzen, für die die Bedingung (3.32) für den ordentlichen und außerordentlichen Strahl erfüllt ist. Durch Drehen des Kristalls oder durch Temperaturänderung lässt sich die Phasenbedingung zwischen ordentlicher und außerordentlicher Welle exakt einstellen. Im Photonenbild ist die Phasenanpassungsbedingung nichts anderes als die Erhaltungssätze für Impuls und Energie. Für den Fall der SHG bedeutet dies

$$\begin{aligned}\hbar\omega + \hbar\omega &= \hbar \cdot 2\omega \\ \hbar\vec{k} + \hbar\vec{k} &= \hbar\vec{k}_2\end{aligned}$$

3.4 Suszeptibilität dritter Ordnung

In Medien mit Inversionszentren ist die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung als niedrigste Nichtlinearität zu beachten. Es handelt sich bei $\chi^{(3)}$ um einen Tensor vierter Stufe. Dieser hat 81 ($= 3^4$) Elemente. Für kristalline Festkörper mit niedriger Symmetrie sind all diese 81 Elemente unabhängig und verschieden von Null. Für Materialien jedoch, die einen höheren Grad an räumlicher Symmetrie aufweisen, reduziert sich die Anzahl der unabhängigen Elemente sehr stark. Ein Grund dafür ist, dass sich die einfallenden Photonen nicht voneinander unterscheiden und es physikalisch damit keinen Sinn macht, dass der Tensor die dazugehörigen Polarisationsrichtungen unterscheidet. Eine andere Ursache für die Aufhebung der Tensorelemente liegt in der Symmetrie der betrachteten Kristalle. Dreht man z.B. einen Kristall mit dreifacher Drehsymmetrie um 120° , so liegt die gleiche physikalische Ausgangssituation vor. Die Erzeugungsrates für Höhere Harmonische darf sich dann auch nicht ändern, was der Tensor sicherstellen muss. Bei kubischen Kristallen verringert sich z. B. die Anzahl der unabhängigen Elemente aus Symmetriegründen auf nur 21 Elemente, davon sind 4 von Null verschieden. Es gilt beispielsweise für Kristalle, deren Gitter der Punktsymmetriegruppe $m3m$ angehören, für die Elemente von $\chi^{(3)}$ [Ban02]:

$$\begin{aligned}\chi_{xxxx}^{(3)} &= \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} \\ \chi_{xxyy}^{(3)} &= \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} = \chi_{yyzz}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{zzyy}^{(3)} \\ \chi_{xyxy}^{(3)} &= \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{yxyx}^{(3)} = \chi_{yzyz}^{(3)} = \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} \\ \chi_{xyyx}^{(3)} &= \chi_{xzzx}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} = \chi_{yzyz}^{(3)} = \chi_{zyyz}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)}\end{aligned}\tag{3.33}$$

Die Indizes beziehen sich auf die Kristallachsen und ihre Vertauschung stellt nur eine Umordnung der beteiligten elektrischen Felder dar. Es fällt auf, dass es nur eine geradzahlige Anzahl von Indizes gibt. Dies ist leicht verständlich, da beispielsweise $\chi_{xxyy}^{(3)}$ eine nichtlineare Antwort (response) in \hat{e}_x -Richtung aufgrund des einfallenden Feldes in der \hat{e}_y -Richtung hätte. Diese Rückantwort muss in isotropen Materialien Null werden, da es keinen Grund gibt, weswegen sie sich eher in $+\hat{e}_x$ - als in $-\hat{e}_x$ -Richtung ausbreiten sollte [Boy03].

$\chi^{(3)}$ koppelt drei einfallende und eine ausfallende elektromagnetische Welle miteinander. Diese sind durch Frequenz, Ausbreitungsrichtung und Polarisation gekennzeichnet. Es werden zusätzliche Polarisationswellen bei allen möglichen Mischfrequenzen erzeugt. Spektroskopische Messmethoden, die diesen Effekt ausnutzen, stellen somit eine Fülle von Informationen zur

Verfügung, die umfassender als die durch lineare Methoden erzielbaren Ergebnisse sind. Zu nennen wären hier der intensitätsabhängige Brechungsindex, Selbstphasenmodulation, stimulierte Streuprozesse oder das Vierwellenmischen. Detaillierte Beschreibungen dazu findet man in [Boy03] oder [Blo92]. An dieser Stelle sollen nur die wichtigsten Anwendungen erwähnt werden.

3.4.1 Intensitätsabhängiger Brechungsindex

Der Anteil 3. Ordnung in Gleichung (3.22) enthält zwei Terme. Der erste Term, der mit 3ω oszilliert, beschreibt die Erzeugung der Dritten Harmonischen, die für die Experimente in dieser Arbeit genutzt wird, während der zweite Term eine Oszillation mit der Frequenz der einfallenden Welle $\omega = \omega + \omega - \omega$ beschreibt. Die Polarisationswelle hierfür lautet

$$\vec{P}_{NL}(\omega) = 3\chi^{(3)}(\omega = \omega + \omega - \omega)\vec{E} \cdot \vec{E}^* \cdot \vec{E} \quad (3.34)$$

Dazu kommt die Polarisation aufgrund von $\chi^{(1)}$

$$\begin{aligned} \vec{P}_{gesamt} &= \chi^{(1)}\vec{E}(\omega) + 3\chi^{(3)}|\vec{E}(\omega)|^2 \cdot \vec{E}(\omega) \\ &= \chi_{eff}\vec{E}(\omega) \end{aligned} \quad (3.35)$$

mit

$$\chi_{eff} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|\vec{E}(\omega)|^2 \quad (3.36)$$

Mit der allgemeinen Beziehung $n^2 = 1 + \chi_{eff}$ ergibt sich

$$\begin{aligned} n^2 &= 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|\vec{E}(\omega)|^2 \\ &= n_0^2 + 3\chi^{(3)}|\vec{E}(\omega)|^2 \end{aligned} \quad (3.37)$$

wobei n_0^2 der normale lineare Brechungsindex ist. Man definiert den Koeffizienten n_2 für den nichtlinearen Brechungsindex, für kleine Brechungsindexänderungen, durch den allgemeinen Ansatz

$$n = n_0 + n_2 \cdot I \quad (3.38)$$

den man quadriert und bis zur 1. Ordnung in I entwickelt:

$$\begin{aligned} n^2 &= n_0^2 + n_2^2 \cdot I^2 + 2n_0n_2 \cdot I \\ &\sim n_0^2 + 2n_0n_2 \cdot I \end{aligned} \quad (3.39)$$

Ein Vergleich mit (3.37) ergibt

$$2n_0n_2 \cdot I = 3\chi^{(3)}|\vec{E}(\omega)|^2 \quad (3.40)$$

Mit dem Zusammenhang der zeitlich gemittelten Intensität und dem elektrischen Feld $I = \frac{n_0c}{2\pi}|\vec{E}(\omega)|^2$ ergibt sich der nichtlinearen Brechungsindex n_2

$$n_2 = \frac{3\pi\chi^{(3)}}{n_0^2c} \quad (3.41)$$

Dies zeigt, dass der kubische Term zu einem intensitätsabhängigen Brechungsindex führt. Für Dielektrika liegt n_2 dabei im Bereich zwischen 10^{-14} bis 10^{-16} cm^2/W .

3.4.2 Selbstfokussierung

Es wird nun ein intensiver Laserimpuls betrachtet, der räumlich begrenzt sein soll. Man beobachtet im Bündel ein gaußförmiges Intensitätsprofil. Im Zentrum befindet sich die höchste Intensität, die dann zu den Flanken hin abnimmt. Durchläuft dieser Impuls ein Dielektrikum, so wird sich der Brechungsindex $n(\vec{r})$ im Zentrum aufgrund der Nichtlinearitäten vergrößern, während die Flanken kaum Änderungen erfahren. Damit wird im Zentrum auch der optische Weg nach Durchlaufen einer Materiallänge L um $n_2 I_0 L$ größer als an den Flanken. Die Phasenflächen werden dadurch gekrümmt. Das Medium wirkt wie eine Linse und fokussiert das Lichtbündel, was zur weiteren Steigerung der Intensität im Zentrum und damit des Brechungsindex führt. Liegt der Fokus im Medium selbst, können die Lichtintensitäten so hoch werden, dass weitere Nichtlinearitäten bis hin zur Zerstörung des Mediums auftreten.

Selbstfokussierung tritt bei allen Hochleistungslasersystemen auf, bei denen hohe Intensitäten und lange Wege in optischen Komponenten notwendig sind. Die zerstörerische Wirkung der Selbstfokussierung lässt sich aber mit durchdachtem Design unter Verwendung von großen Strahldurchmessern vermeiden. Beginnende Selbstfokussierung wird aber auch als erwünschter optischer Schaltmechanismus eingesetzt, z. B. beim so genannten Kerr-Lens-Modelocking in Lasern zur Erzeugung von sehr kurzen Laserimpulsen bis zu 10 fs. Dieser Sachverhalt, die Behandlung des optischen Kerr-Effektes, wird in Kapitel 5.1 diskutiert. In beiden Fällen sind die Ursachen sehr ähnlich. Durch das elektrische Feld werden die Dipole des Mediums teilweise ausgerichtet, was zu einer Modifikation der einfallenden Lichtwelle führt, d. h. der Brechungsindex wird geändert. Im Falle der nichtlinearen Wechselwirkung wird diese Ausrichtung durch das intensive Laserfeld selbst erzeugt.

3.4.3 Selbstphasenmodulation

Extrem kurze Laserimpulse (im fs-Bereich) weisen hohe Spitzenintensitäten auf. Im nichtlinearen Medium wird dadurch der Brechungsindex an einem Ort x zeitlich variieren. In diesem Fall wirkt die Nichtlinearität des Brechungsindex über die Wellenzahl $k = 2\pi n/\lambda$ direkt auf die Phase der Laserimpulse. Man betrachtet einen Impuls an der Stelle x im Medium mit dem Feldverlauf

$$\vec{E}(x, t) = E_0(t) \cos(-\phi(x, t)) \quad (3.42)$$

und der Phase

$$\phi(x, t) = kx - \omega_0 t = \frac{2\pi n_0}{\lambda_0} x + \frac{2\pi n_2 I(t)}{\lambda_0} x - \omega_0 t \quad (3.43)$$

Wird die Momentanfrequenz $\omega(t)$ für das Feld berechnet, erhält man

$$\omega(t) = -\frac{\partial \phi(x, t)}{\partial t} = \omega_0 - \frac{2\pi n_2}{\lambda_0} \frac{\partial I(t)}{\partial t} x \quad (3.44)$$

Das bedeutet, die Frequenz des Laserimpulses wird zeitabhängig.

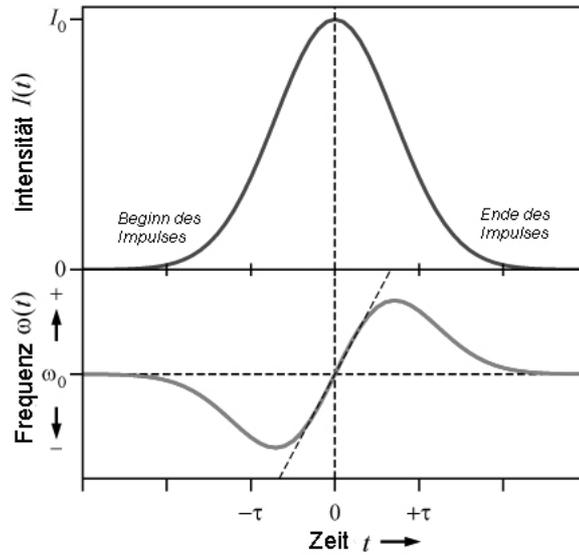


Abbildung 3.4: Selbstphasenmodulation [Zin98]

Da die Intensität von 0 auf einen Maximalwert ansteigt, wird der Impuls zu Beginn zu kleinen Frequenzen verschoben (Rotverschiebung $\frac{\partial I}{\partial t} > 0$). Im Bereich des Maximums nimmt die Frequenz wieder zu (Blauverschiebung $\frac{\partial I}{\partial t} < 0$) und fällt dann wieder am Ende mit $I = 0$ auf die ω_0 ab. Über die Selbstphasenmodulation wird das Spektrum des Laserimpulses verbreitert. Man kann dies in der Praxis dafür nutzen, um aus einem kurzen Impuls bei einer Frequenz ω_0 kurze Impulse in einem breiten Frequenzbereich zu erzeugen. Breite Laserimpulse erhält man für große Werte von $\frac{\partial I}{\partial t}$, also für kurze Impulse mit hohen Spitzenintensitäten. In der Praxis lassen sich so bei Verwendung von sichtbarem Licht mit einer Energie von wenigen μJ und Pulsdauern von etwa 100 fs ultrakurze Impulse im gesamten sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich erzeugen.

3.4.4 Erzeugung der Dritten Harmonischen

Die Erzeugung der Dritten Harmonischen (*THG - Third Harmonic Generation*) stellt einen Spezialfall dar. Die einfallenden Felder mit der Frequenz ω_1 wechselwirken mit dem System und erzeugen aufgrund der nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ eine Polarisation mit der Frequenz $3\omega_1$. Im Photonenbild ausgedrückt, bedeutet dies, dass 3 Photonen einer Frequenz zu einem Photon der dreifachen Frequenz kombinieren.

$$\omega = 3\omega_1 \quad \text{mit} \quad \omega_1 = \omega_2 = \omega_3 \quad (3.45)$$

Nach Gleichung (3.30) ergibt sich für die Intensität der Dritten Harmonischen (3H oder TH für *Third Harmonic*).

$$I_{TH} \sim (3\omega\chi^{(3)})^2 I_1^3 L^2 \cdot \text{sinc}^2(\Delta k L/2) \quad (3.46)$$

Die Phasenanpassung ist analog zu der der SHG definiert:

$$\Delta k = 3k_\omega - k_{3\omega} = \frac{3\omega}{c} (n(\omega) - n(3\omega)) \quad (3.47)$$

Gleichung (3.46) gilt für den absorptionsfreien Fall für Fundamentale und Dritter Harmonischer.

Im Wellenlängenbereich der durchgeführten Experimente werden die Dritten Harmonischen im Absorptionsbereich des Siliziums generiert, wohingegen die Fundamentale keine Absorption im Medium erfährt.

Ausgehend von der Beschreibung der Felder Höher Harmonischer nach Zürl et al. [Zür98a] soll das Feld $E_{3\omega}$ bzw. die Intensität $I_{3\omega}$ der Dritten Harmonischen mit einem Absorptionskoeffizienten $\alpha_{3\omega}$ bei der Frequenz 3ω berechnet werden. Mit der Annahme, dass die Propagation der Felder in z-Richtung verläuft und die Gleichung um den Absorptionsterm der Dritten Harmonischen erweitert wird, erhält man:

$$\frac{dE_{3\omega}}{dz} \propto -\frac{\alpha_{3\omega}}{2} E_{3\omega}(z) + 3\omega \cdot \chi^{(3)} E_0^3 e^{i\Delta kz} \quad (3.48)$$

$E_{3\omega}$ bezeichnet das Feld der erzeugten Dritten Harmonischen bzw. E_0 das Feld der einstrahlten Fundamentale. Mit dem Produktansatz

$$E_{3\omega}(z) = \tilde{E}_{3\omega}(z) \cdot e^{-\frac{\alpha_{3\omega}}{2} z} \quad (3.49)$$

dessen Ableitung nach dem Ort z in (3.48) eingesetzt wird und nach Integration über z ergibt sich für $\tilde{E}_{3\omega}$ nach einer Propagationslänge L in der Probe

$$\tilde{E}_{3\omega} \propto 2 \cdot 3\omega \cdot \chi^{(3)} E_0^3 \cdot \frac{e^{\frac{\alpha_{3\omega}}{2} L + i\Delta k L} - 1}{\alpha_{3\omega} + 2i\Delta k} \quad (3.50)$$

Dies wird in Gleichung in (3.49) eingesetzt. Das Feld der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Propagationslänge berechnet sich damit zu

$$E_{3\omega} \propto 2 \cdot 3\omega \cdot \chi^{(3)} E_0^3 \cdot \left(\frac{e^{\frac{\alpha_{3\omega}}{2} L + i\Delta k L} - 1}{\alpha_{3\omega} + 2i\Delta k} \right) e^{-\frac{\alpha_{3\omega}}{2} L} \quad (3.51)$$

Die anschließende Multiplikation mit der konjugiert Komplexen führt zur Intensität der TH im Medium

$$I_{3\omega} \propto 4 \cdot (3\omega)^2 \cdot \chi^{(3)2} I_0^3 \left(\frac{1 + e^{\alpha_{3\omega} L} - 2e^{\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}} \cos(\Delta k L)}{\alpha_{3\omega}^2 + 4\Delta k^2} \right) e^{-\alpha_{3\omega} L} \quad (3.52)$$

Die Intensität ist abhängig vom *phase mismatch* Δk , der Absorption $\alpha_{3\omega}$ und der Propagations- bzw. Kristalllänge L . Zur Veranschaulichung und Darstellung der Abhängigkeiten wird für $\Delta k = 0,5 \mu\text{m}^{-1}$ und für den Absorptionskoeffizienten $\alpha_{3\omega} = 0,02 \mu\text{m}^{-1}$ angenommen. Das Bündel der Fundamentale soll über eine Länge von $L = 800 \mu\text{m}$ im nichtlinearen Medium propagieren.

Abbildung 6.5 zeigt den entsprechenden Graphen. Die starke Oszillation ist auf den $\cos(\Delta k L)$ -Term und deren exponentielle Abnahme mit steigender Propagationslänge auf den Dämpfungsterm $e^{-\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}}$ zurückzuführen. $\alpha_{3\omega}$ ist verantwortlich für die Absorptionslänge und Δk führt dazu, dass die Oszillation nicht auf Null absinkt, da die neu generierte TH mit der absorbierten TH nicht mehr vollständig destruktiv interferiert und so ein Rest übrig bleibt. Dieses Verhalten pflanzt sich über die Weglänge fort. Die starke Modulation wird immer schwächer und nähert sich asymptotisch einem konstanten Wert.

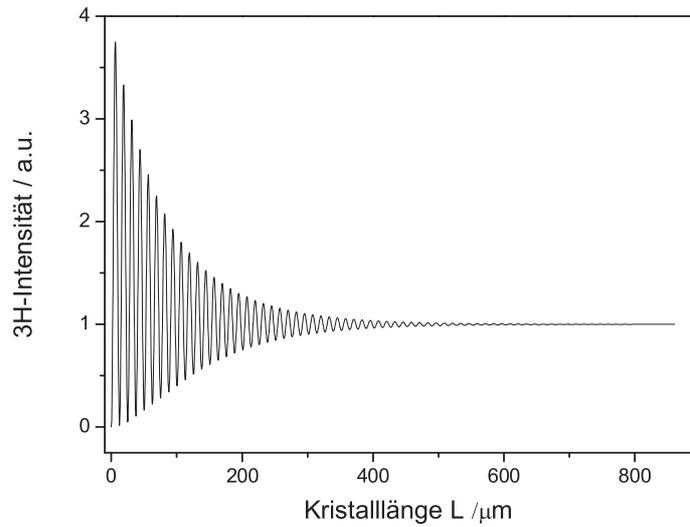


Abbildung 3.5: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge L

Verkleinert sich Δk bei gleichbleibender Absorption, wird die Periodenlänge der Oszillation größer. Geht Δk gegen Null, ist *phase matching* erreicht, und die Intensität steigt bis zu einem Maximalwert, der ab einer bestimmten Kristalllänge konstant bleibt.

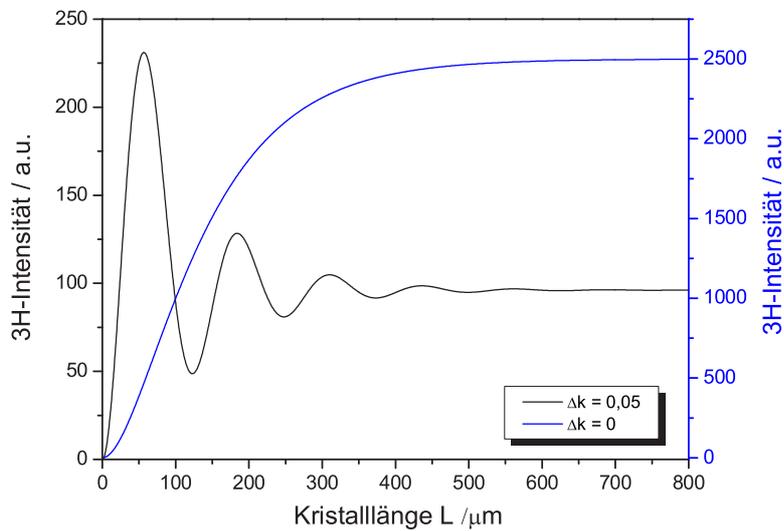


Abbildung 3.6: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge L bei verschiedenem Δk

Wird die Absorption bei gleichem Δk größer, oszilliert die Intensität über eine wesentlich kürzere Strecke im Kristall und stellt sich schon bei einer kürzeren Kristalllänge auf einen konstanten Wert ein. Kommt $\alpha_{3\omega}$ in den Bereich von Δk und wird sogar größer, oszilliert die Dritte Harmonische nur über sehr kurze Längen im Kristall. Sie erfährt ein Intensitätsmaxi-

mum, das jedoch aufgrund der hohen Absorption sofort wieder auf einen Wert, der kleiner als bei den oben aufgeführten Fällen ist, abfällt und konstant bleibt.

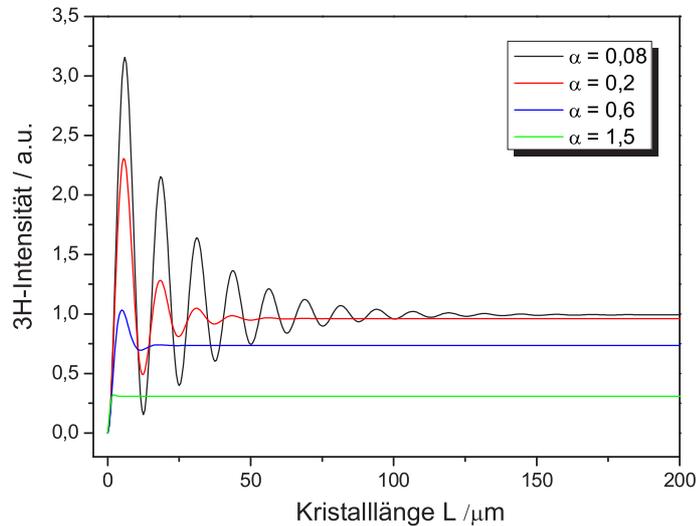


Abbildung 3.7: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge L bei verschiedenem α

Der sich einstellende Intensitätswert wird mit steigender Absorption erwartungsgemäß immer schwächer bis er ganz auf Null abfällt, was die vollständige Absorption der Dritten Harmonischen bedeutet. Bei großen Absorptionen ist die Absorptionslänge groß, so dass der Fall eintreten kann, dass das im Kristall generierte Feld vollständig absorbiert und nicht emittiert wird. Solange die Absorption gleich oder kleiner als das *phase mismatch* ist, wird immer Dritte Harmonische erzeugt, die, um die Absorption vermindert, mit noch messbarer Intensität aus dem Kristall austritt. Abbildung 3.7 zeigt aber auch, dass die Absorption, aufgrund ihrer Absorptionslänge stark abhängig von der Kristalllänge ist.

Physikalisch kann das Verhalten der Dritten Harmonischen über die Kristalllänge wie folgt erklärt werden. Die Intensität der Dritten Harmonischen erfährt mit Eintritt der Fundamentalen bei $z = 0$ in den Kristall ihre Maximalintensität, die mit fortschreitender Propagation der TH aufgrund der Absorption exponentiell abnimmt. Entlang der z -Achse generiert die Fundamentale an jedem Ort z Dritte Harmonische, die jeweils auf einem mittleren Intensitätswert absorbiert werden. Die generierten und absorbierten Wellen erfahren je nach Phasenbeziehung zueinander durch konstruktive oder destruktive Interferenz Verstärkung oder Abschwächung bzw. Auslöschung auf dem Weg durch den Kristall. Dies spiegelt sich in der Oszillation der Intensität während der Propagation der Wellen durch den Kristall wider. Ab einer bestimmten Propagationslänge im Kristall, die kürzer als die Absorptionslänge l_α ist, wird die nun generierte Dritte Harmonische nicht mehr vollständig absorbiert. Dieser Anteil der Dritten Harmonischen tritt aus dem Kristall aus.

Es soll nun die Erzeugung der TH unter bestimmten Anfangsbedingungen betrachtet werden. Es wird angenommen, dass schon bei $z = 0$ ein Feld $E_{3\omega}^0$ vorliegt, das gemeinsam mit der Fundamentalen in den Kristall eindringt.

Zum Differential von $\tilde{E}_{3\omega}(z)$ wird nach erfolgter Ableitung (Gleichung (3.50)) die Anfangsbedingung

$$E_{3\omega}^0(0) = E_{3\omega}^0 e^{i\phi} \quad (3.53)$$

hinzugefügt, wobei $e^{i\phi}$ einen Phasenterm darstellt. Dies führt mit Gleichung (3.49) zum Feld der Dritten Harmonischen am Kristallende:

$$E_{3\omega} \propto 2 \cdot 3\omega \cdot \chi^{(3)} E_0^3 \cdot \left(\frac{e^{\frac{\alpha_{3\omega}}{2} L + i\Delta k L} - 1}{\alpha_{3\omega} + 2i\Delta k} + E_{3\omega}^0 e^{i\phi} \right) e^{-\frac{\alpha}{2} L} \quad (3.54)$$

Wird Gleichung (3.54) mit ihrer konjugiert Komplexen multipliziert, erhält man die Intensität mit der Anfangsbedingung $E_{3\omega}^0$.

$$\begin{aligned} I_{3\omega} \propto & 4 \cdot (3\omega)^2 \cdot \chi^{(3)2} I_0^3 \cdot \left[\frac{1 + e^{-\alpha_{3\omega} L} - 2e^{-\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}} \cos \Delta k L}{\alpha_{3\omega}^2 + 4\Delta k^2} + \right. \\ & \frac{E_{3\omega}^0 e^{-\alpha_{3\omega} L} \cdot (2\alpha_{3\omega} (e^{\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}} \cos(\phi - \Delta k L) - \cos \phi) - 4\Delta k (e^{\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}} \sin(\phi - \Delta k L) + \sin \phi))}{\alpha_{3\omega}^2 + 4\Delta k^2} \\ & \left. + e^{-\alpha_{3\omega} L} (E_{3\omega}^0)^2 \right] \quad (3.55) \end{aligned}$$

Abbildung 3.8 zeigt den Graphen mit $\Delta k = 0,5$ bzw. $\alpha_{3\omega} = 0,02$. Die Amplitude von $E_{3\omega}^0$ wird mit 1 und $\phi = 0$ angenommen.

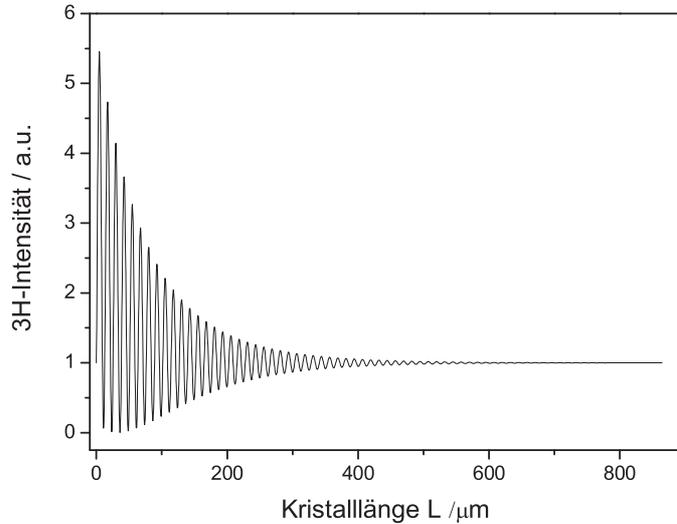


Abbildung 3.8: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge mit zusätzlich eingestrahltm Eingangsfeld $E_{3\omega}^0$

Ist $E_{3\omega}^0$ gleich Null, erhält man wieder Gleichung (3.52). Abbildung 3.8 zeigt ähnliches Verhalten wie im diskutierten Fall ohne Anfangsbedingung. Ein Unterschied besteht darin, dass aufgrund der Amplitude von $E_{3\omega}^0$ die Anfangsintensität der TH höher ist. Die am Kristallende austretende TH entspricht der der ohne eintretendes TH-Feld. Die Oszillation aufgrund der Winkelfunktionen wird wiederum durch die Dämpfungsterme $e^{-\frac{\alpha_{3\omega} L}{2}}$ abgeschwächt.

Mit Verkleinerung von Δk verbreitert sich die Periode. Bei Phasenanpassung Steigt die Intensität zunächst an bis sie sich bei einer bestimmten Kristalllänge auf einen Maximal- bzw. Sättigungswert einstellt.

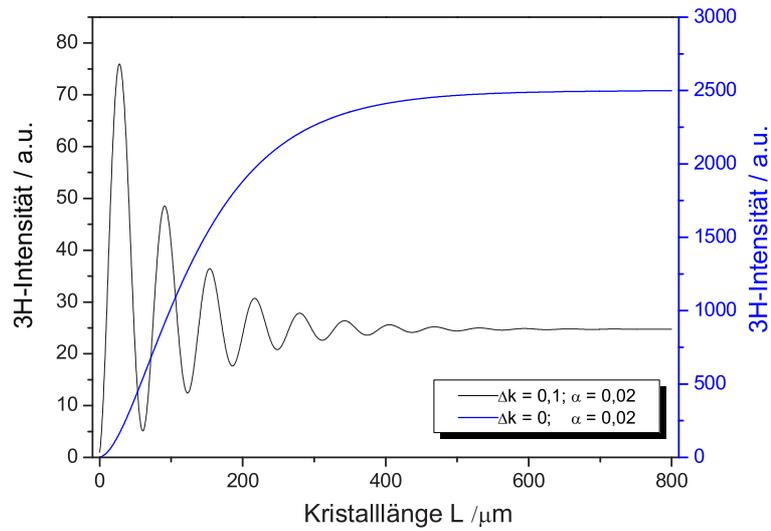


Abbildung 3.9: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge mit zusätzlich eingestrahlem Eingangsfeld $E_{3\omega}^0$ mit verschiedenem Δk

Wird $\alpha_{3\omega}$ kleiner, oszilliert die Dritte Harmonische über eine immer größer werdende Wegstrecke im Kristall. Bei kleinen Absorptionen ist die Intensität stark abhängig von der Kristall- oder Propagationslänge. Bei großem $\alpha_{3\omega}$ oszilliert die TH über eine kurze Strecke und stellt sich aufgrund der Absorption nach einer kurzen Weglänge auf einen Wert ein.

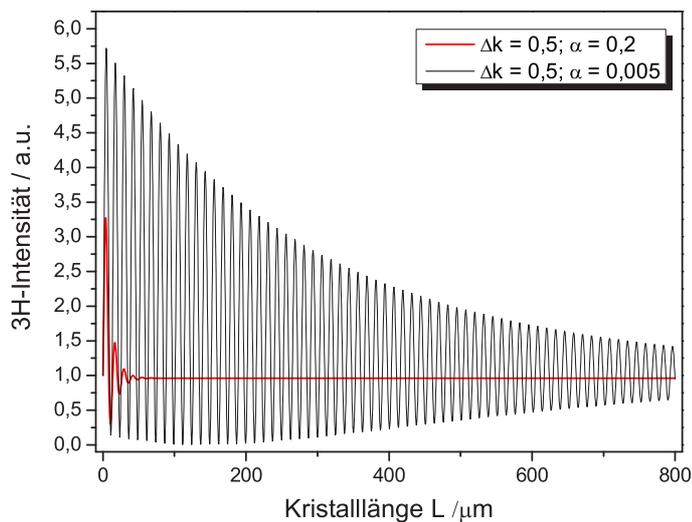


Abbildung 3.10: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge mit zusätzlich eingestrahlem Eingangsfeld $E_{3\omega}^0$ mit verschiedenem α

Bei Variation von ϕ , verhält sich die Intensität ähnlich wie in Abbildung 3.8 dargestellt, es ändert sich nur die jeweilige Anfangsintensität nach Eintritt in den Kristall. Dies ist verständlich, da bei einem von Null verschiedenem ϕ die Fundamentale und $E_{3\omega}^0$ nicht phasengleich in den Kristall eintreten und aufgrund von Interferenzprozessen zwischen dem $E_{3\omega}^0$ -Feld und der generierten Harmonischen eine Änderung der Intensität eintritt. In Abbildung 3.11 sind die Intensitäten der TH mit um ϕ zum Fundamentalfeld phasenverschobenen Eingangsfeldern dargestellt. Es ist erkennbar, dass die Einhüllende mit variablem ϕ steiler abfällt und sich die Intensität bei einer kürzeren Propagationslänge auf einen konstanten Wert einstellt.

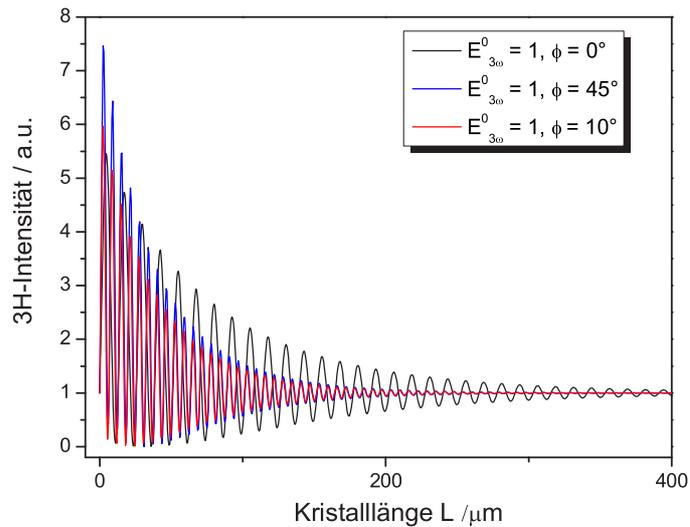


Abbildung 3.11: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge mit zusätzlich eingestrahlttem Eingangsfeld $E_{3\omega}^0$ mit verschiedenem ϕ

Hat das Eingangsfeld eine sehr große Amplitude zeigt sich das in Abbildung 3.12 dargestellte Verhalten. Hier wurde eine Amplitude von 10 angenommen. Bei weiterer Vergrößerung der Amplitude wird die Oszillation immer mehr unterdrückt, bis man schließlich einen exponentiellen Abfall der Intensität erhält.

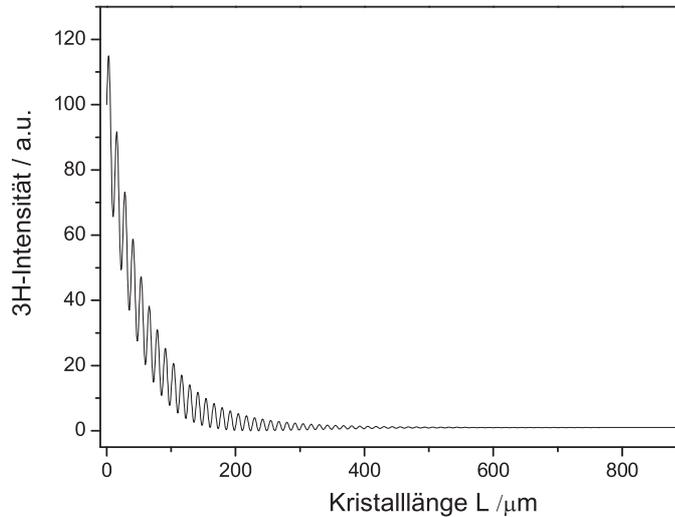


Abbildung 3.12: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge mit zusätzlich eingestrahltm Eingangsfeld $E_{3\omega}^0$ hoher Amplitude

Ein mit der Fundamentalen in den Kristall eintretendes TH-Feld, das nicht viel größer als die generierte TH ist, beeinflusst demzufolge das Verhalten und den Output der Dritten Harmonischen nicht. Die Intensität der Dritten Harmonischen ist aufgrund des Superpositionsprinzips elektromagnetischer Wellen bei Eintritt in den Kristall von beiden Bündeln sehr hoch, wird aber wegen der Absorption abgeschwächt. Ohne Eingangsfeld beginnt die Oszillation bei Null und mit $E_{3\omega}^0$ bei einem Wert größer als Null. Über die Propagationslänge findet eine Oszillation der Intensitäten der Bündel aufgrund von Interferenzprozessen statt.

3.4.5 Theoretische Ausführungen zum Experiment

Nichtlineare optische Untersuchungen an kristallinem und porösem Silizium, wie sie auch in dieser Arbeit vorgestellt werden, sind schon lange Gegenstand der Grundlagenforschung. Die optischen Eigenschaften dieses Materials bieten zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten in der Photonik.

Der Silizium-Kristall ist isotrop aufgrund seines flächenzentrierten kubischen Gitters. Durch eine poröse Modifikation kann jedoch eine starke Anisotropie innerhalb der Kristallebenen auftreten [Sob05]. Poröses Silizium stellt eine Verbundstruktur aus kristallinem Silizium und Strukturen von beispielsweise Poren in der Größenordnung von Nano- oder Mikrometern dar. Ausgangssubstrate für die Herstellung von porösem Silizium sind kommerziell erhältliche Silizium-Wafer, wie sie standardmäßig in der Halbleiterindustrie Verwendung finden. Die poröse Struktur wird auf das kristalline Silizium durch elektrochemisches Ätzen aufgebracht (siehe Punkt 4.2). Diese Materialien können sich wesentlich in ihren optischen Eigenschaften von kristallinem Silizium unterscheiden [Zab05].

Eine theoretische Beschreibung der Polarisation der Dritten Harmonischen wurde erstmals durch Armstrong et al. [Arm62] gegeben und die Wellen, die durch diese Polarisation entweder in Transmission oder Reflexion entstehen, von Bloembergen und Pershan [Blo62] diskutiert. Die Symmetrieeigenschaften von $\chi^{(3)}$ beschrieb 1962 Terhune [Ter62]. Zahlreiche experimen-

telle und theoretische Untersuchungen zur Erzeugung der Dritten Harmonischen im sichtbaren Spektralbereich, d. h. in der Nähe der Systemresonanzen des Siliziums, wurden durchgeführt. Eine Ausdehnung der Experimente auf das mittlere Infrarot erlaubt Experimente im Transparenzbereich vom Silizium und in der Nähe der Photonischen Bandlücke von Photonischen Kristallen, deren Strukturen im Mikrometer-Bereich liegen.

In den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten wird die Intensität der Dritten Harmonischen bei einem konstanten Einfallswinkel beobachtet, während die Proben um ihre Oberflächennormale gedreht werden. Das THG-Signal wird als Funktion des Azimutwinkels gemessen. Die resultierende Kurve ist die so genannte THG-Anisotropiekurve. Die Anisotropie ist eine relative Größe und wird nicht nur durch die Symmetrie des Kristalls, sondern durch ihre Empfindlichkeit gegenüber den mikroskopischen elektrischen Eigenschaften der Festkörper bestimmt [Buh94]. Durch Drehung der Probe, d. h. durch Variation des Winkels φ zwischen dem elektrischen Feldvektor und einem Einheitsgittervektor der Kristalloberfläche wird der Suszeptibilitätstensor einer Rotationstransformation unterworfen.

Da die Erzeugung der Dritten Harmonischen vom $\chi^{(3)}$ -Tensor vierter Ordnung beherrscht wird, wird eine höhere Symmetrie-Auflösung für diese Art von Experimenten erwartet. Der Suszeptibilitätstensor führt zu einer anisotropen Erzeugung Dritten Harmonischer, bei der die Intensität des emittierten Bündels mit der relativen Orientierung der Kristallachsen und der Polarisation der Fundamentalbündel variiert [Lue94].

Die untersuchten Silizium-Kristalle sind kubische Kristalle mit der Punktgruppensymmetrie $m3m$ [Wan86]. Der $\chi^{(3)}$ -Tensor hat nur 4 von Null verschiedene unabhängige Elemente

$$\chi_{1111}^{(3)}, \chi_{1212}^{(3)}, \chi_{1122}^{(3)}, \chi_{1221}^{(3)} \quad (3.56)$$

wobei nach [Wyn69] und [Bur71] gilt

$$\chi_{1212}^{(3)} = \chi_{1122}^{(3)} = \chi_{1221}^{(3)} \quad (3.57)$$

Die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung berechnet sich mit den Fundamentalfeldern zu

$$P_i^{(3\omega)} = \chi_{ijkl}^{(3)} E_k^{(1)} E_l^{(2)} E_m^{(3)} \quad (3.58)$$

$E^{(i)}$ ist das i -te Feld und $E_k^{(i)}$ ist die k -te Komponente des i -ten Feldes. Die Entwicklung von (3.58) ergibt folgende Komponenten für die Polarisation:

$$\begin{aligned} P_x = & \chi_{1111}^{(3)} E_x^{(1)} E_x^{(2)} E_x^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_x^{(1)} E_y^{(2)} E_y^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_x^{(1)} E_z^{(2)} E_z^{(3)} + \\ & \chi_{1212}^{(3)} E_y^{(1)} E_x^{(2)} E_y^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} E_z^{(1)} E_x^{(2)} E_z^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} E_y^{(1)} E_y^{(2)} E_x^{(3)} + \\ & \chi_{1221}^{(3)} E_x^{(1)} E_z^{(2)} E_x^{(3)} \end{aligned} \quad (3.59)$$

$$\begin{aligned} P_y = & \chi_{1111}^{(3)} E_y^{(1)} E_y^{(2)} E_z^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_y^{(1)} E_x^{(2)} E_x^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_y^{(1)} E_z^{(2)} E_z^{(3)} + \\ & \chi_{1212}^{(3)} E_x^{(1)} E_y^{(2)} E_x^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} E_z^{(1)} E_y^{(2)} E_z^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} E_x^{(1)} E_x^{(2)} E_y^{(3)} + \\ & \chi_{1221}^{(3)} E_z^{(1)} E_z^{(2)} E_y^{(3)} \end{aligned} \quad (3.60)$$

$$\begin{aligned} P_z = & \chi_{1111}^{(3)} E_z^{(1)} E_z^{(2)} E_z^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_z^{(1)} E_x^{(2)} E_x^{(3)} + \chi_{1122}^{(3)} E_z^{(1)} E_y^{(2)} E_y^{(3)} + \\ & \chi_{1212}^{(3)} E_x^{(1)} E_z^{(2)} E_x^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} E_y^{(1)} E_z^{(2)} E_y^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} E_x^{(1)} E_x^{(2)} E_z^{(3)} + \\ & \chi_{1221}^{(3)} E_y^{(1)} E_y^{(2)} E_z^{(3)} \end{aligned} \quad (3.61)$$

Für die x-Komponente folgt damit

$$P_x^{(3\omega)} = E_x^{(1)} \left(\vec{E}^{(2)} \vec{E}^{(3)} \right) \chi_{1122}^{(3)} + E_x^{(2)} \left(\vec{E}^{(1)} \vec{E}^{(3)} \right) \chi_{1212}^{(3)} + E_x^{(3)} \left(\vec{E}^{(1)} \vec{E}^{(2)} \right) \chi_{1221}^{(3)} + (\chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)} - \chi_{1221}^{(3)}) E_x^{(1)} E_x^{(2)} E_x^{(3)} \quad (3.62)$$

Entsprechendes gilt für die y- und z-Komponente der Polarisation. Die Gleichungen (3.59) - (3.61) können somit in Vektor-Form geschrieben werden

$$\vec{P}^{(3\omega)} = \vec{E}^{(1)} (\vec{E}^{(2)} \vec{E}^{(3)}) \chi_{1122}^{(3)} + \vec{E}^{(2)} (\vec{E}^{(1)} \vec{E}^{(3)}) \chi_{1212}^{(3)} + \vec{E}^{(3)} (\vec{E}^{(1)} \vec{E}^{(2)}) \chi_{1221}^{(3)} + \chi_d I^{(4)} \cdot \vec{E}^{(1)} \circ \vec{E}^{(2)} \circ \vec{E}^{(3)} \quad (3.63)$$

$I^{(4)}$ stellt den Einheitstensor vierter Ordnung dar, und χ_d ist mit (3.56) definiert als

$$\chi_d = \chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)} - \chi_{1221}^{(3)} = \chi_{1111}^{(3)} - 3\chi_{1212}^{(3)} \quad (3.64)$$

Für die Erzeugung der Dritten Harmonischen in Silizium sind die einfallenden Felder gleich $\vec{E}^{(1)} = \vec{E}^{(2)} = \vec{E}^{(3)}$ und man erhält für die Polarisation

$$\vec{P}^{(3\omega)} = 3\vec{E}(\vec{E}\vec{E})\chi_{1212}^{(3)} + \chi_d I^{(4)} \cdot \vec{E} \circ \vec{E} \circ \vec{E} \quad (3.65)$$

Die Felder auf der rechten Seite stellen die Fundamentalen innerhalb des Mediums dar. Der erste Term in Gleichung (3.65) ist nur ein Produkt mit einer Konstanten und zeigt daher keine Anisotropie bei Rotation des Kristalls um seine Oberflächennormale. Für isotrope Materialien ist die TH-Polarisation immer parallel zum einfallenden Fundamentalfeld. Diese Terme sind für alle Kristallebenen gleich, unabhängig von der Kristallorientierung. Die Bedingung für die Isotropie lautet $\chi_{1111}^{(3)} = 3\chi_{1212}^{(3)}$.

Der letzte Term beinhaltet eine Differenz der Elemente von $\chi^{(3)}$. Er zeigt daher anisotropes Verhalten unter Rotation des Kristalls um seine Oberflächennormale. Für verschiedene Kristallachsenorientierungen wird dieser Term komplexer, enthält aber nur die eine von Null verschiedene anisotrope Suszeptibilitäts-Komponente nach Gleichung (3.64). Es lässt sich der Anisotropie-Parameter [Lue91], [Gol03] definieren, der für isotrope Medien verschwindet.

$$\sigma = \frac{\chi_d}{\chi_{1111}^{(3)}} = 1 - \frac{3\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}} \quad (3.66)$$

Für den anisotropen Anteil der Polarisation können nun die Felder für die ordentliche (das Feld der Fundamentalen ist parallel zur erzeugten Dritten Harmonischen polarisiert) und außerordentliche (die Felder sind senkrecht zueinander polarisiert) Komponente der Dritten Harmonischen berechnet werden. Die von Null verschiedenen Komponenten des $\chi^{(3)}$ -Tensors sind nach (3.56) bzw. (3.57) $\chi_{1111}^{(3)}$ und $3\chi_{1212}^{(3)}$.

Zur Beschreibung der Rotation eines Kristalls um seine Oberflächennormale müssen die Elemente von $\chi^{(3)}$, von den kubischen Kristallachsen, $\hat{e}_1, \hat{e}_2, \hat{e}_3$, in das Laborkoordinatensystem x, y, z transformiert werden. Es soll hier die Rotation um die z-Achse (wie im Experiment), die parallel zur Einfallsebene liegt, mit dem Azimutwinkel φ definiert werden. Dann sind auch die Einheitsvektoren \hat{e}_1 und \hat{e}_2 senkrecht zu x und y . Für eine Rotation des Kristalls mit φ um z lässt sich $\chi_{pqrs}^{(3)}$ wie folgt transformieren:

$$\chi_{ijkl}^{(3)} = R_{ip}(\varphi) R_{jq}(\varphi) R_{kr}(\varphi) R_{ls}(\varphi) \chi_{pqrs}^{(3)}$$

$\{R_{ij}(\varphi)\}$ ist die Transformationsmatrix zwischen dem kubischen Kristall- und dem Laborkoordinatensystem und hat folgende Form:

$$\{R_{ij}(\varphi)\} = \begin{pmatrix} \cos \varphi & -\sin \varphi & 0 \\ \sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Für den Fall, dass die einfallenden Felder in y-Richtung polarisiert (p) sind, $\vec{E} = (0, E_y, 0)$, erhält man nach Rotation um die z-Achse für die Komponenten des Feldes der Dritten Harmonischen $\vec{E}^{3\omega}$

$$E_x^{(3\omega)} = \vec{E}_y^3 (-\sin \varphi (-\sin^2 \varphi \cos \varphi (\chi_{1212}^{(3)} - \chi_{1111}^{(3)}) + \chi_{1212}^{(3)} \cos \varphi \cos 2\varphi) + \cos \varphi (\cos^2 \varphi \sin \varphi (-\chi_{1212}^{(3)} + \chi_{1111}^{(3)}) - \chi_{1212}^{(3)} \sin \varphi \cos 2\varphi))$$

$$E_y^{(3\omega)} = \vec{E}_y^3 (\cos \varphi (2\chi_{1212}^{(3)} \cos \varphi \sin \varphi^2 + \cos \varphi (\chi_{1111}^{(3)} \cos \varphi^2 + \chi_{1212}^{(3)} \sin \varphi^2)) - \sin \varphi (-2\chi_{1212}^{(3)} \cos \varphi^2 \sin \varphi - \sin \varphi (\chi_{1212}^{(3)} \cos \varphi^2 + \chi_{1111}^{(3)} \sin \varphi^2))$$

$$E_z^{(3\omega)} = 0$$

Für die y-Komponente der Dritten Harmonischen (das Feld der Fundamentalen ist parallel (p) zum Feld der TH) ergibt sich nach Umformen und Auflösen Gleichung (3.67):

$$\vec{E}_{p-p}^{(3\omega)} = \frac{3\chi_{1111}^{(3)} + 3\chi_{1212}^{(3)}}{4} \vec{E}_y^3 + \frac{\chi_{1111}^{(3)} - 3\chi_{1212}^{(3)}}{4} \vec{E}_y^3 \cos(4\varphi) \quad (3.67)$$

Die senkrecht (s) zur Fundamentalen polarisierte Komponente (x-Komponente) des Feldes der Dritten Harmonischen kann in zusammengefasster Form geschrieben werden:

$$\vec{E}_{p-s}^{(3\omega)} = \frac{\chi_{1111}^{(3)} - 3\chi_{1212}^{(3)}}{4} \vec{E}_y^3 \sin(4\varphi) \quad (3.68)$$

Die gewonnenen Gleichungen (3.67) und (3.68) zur Beschreibung der Felder der Dritten Harmonischen für den (100)-orientierten Silizium-Kristall findet man auch in der Literatur (beispielsweise [Mos86], [Wan86], [Tsa95] oder [Sip87]).

Da für die untersuchten Proben $\chi_{1111}^{(3)}$ und $3\chi_{1212}^{(3)}$ nicht bekannt sind, werden die Vorfaktoren vor den Winkelfunktionen für die Berechnung der Felder ersetzt durch

$$C = \frac{\chi_{1111}^{(3)} - 3\chi_{1212}^{(3)}}{4} \quad (3.69)$$

und

$$D = \frac{3\chi_{1111}^{(3)} + 3\chi_{1212}^{(3)}}{4} \quad (3.70)$$

Im Umkehrschluss lassen sich aus diesen Parametern dann wiederum die relativen $\chi^{(3)}$ -Elemente, $\chi_{1111}^{(3)}$ und $3\chi_{1212}^{(3)}$, bzw. ihr Verhältnis zueinander für die jeweilige Probe bestimmen. Man erhält nach Umstellung der Gleichungen (3.69) und (3.70) folgende Beziehungen für die $\chi^{(3)}$ -Elemente

$$\chi_{1111}^{(3)} = C + D \quad (3.71)$$

$$3\chi_{1212}^{(3)} = D - 3C \quad (3.72)$$

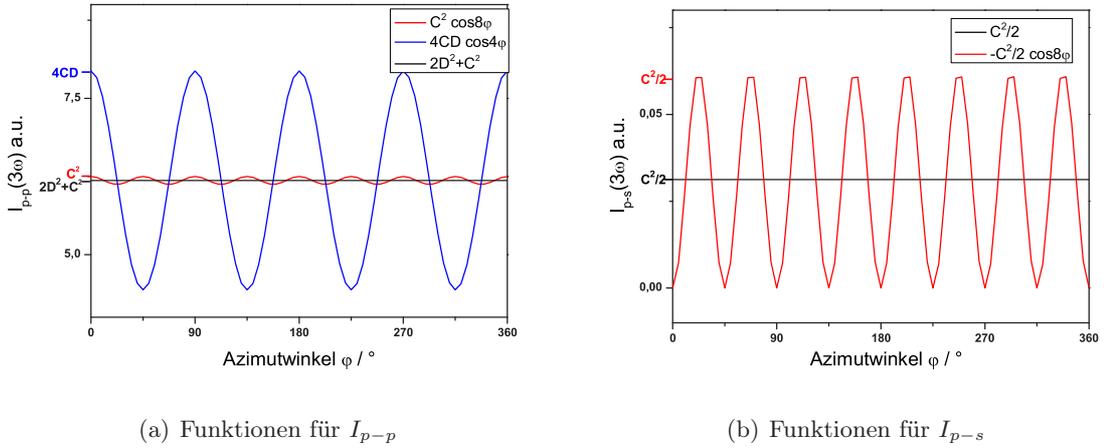
Nach Einsetzen von C und D in (3.67) und (3.68) und Quadrieren folgen die Intensitäten der Dritten Harmonischen ³

$$\begin{aligned} I_{p-p}(3\omega) &\propto (C \cos 4\varphi + D)^2 \\ &= C^2 \cos 8\varphi + 4CD \cos 4\varphi + 2D^2 + C^2 \end{aligned} \quad (3.73)$$

$$I_{p-s}(3\omega) \propto (C \sin 4\varphi)^2 = \frac{C^2}{2}(1 - \cos 8\varphi) \quad (3.74)$$

Es soll vorab geklärt werden, unter welchen Bedingungen $I_{p-p}(3\omega)$ auch eine 8-zählige Modulation zeigen kann und in welchem Verhältnis die Elemente von $\chi^{(3)}$ zueinander stehen.

Die Winkelfunktionen oszillieren mit unterschiedlichen Amplituden um die konstanten Werte $(2D^2 + C^2)$ und $\frac{C^2}{2}$. In Gleichung (3.73) ist der Faktor C^2 für die Amplitude der 8-Zähligkeit und $4CD$ für die Amplitude der 4-Zähligkeit verantwortlich. Trägt man die Terme einzeln in ein Diagramm auf, ergeben sich die in Abbildung 3.13 gezeigten Abhängigkeiten.



(a) Funktionen für I_{p-p}

(b) Funktionen für I_{p-s}

Abbildung 3.13: Darstellung der einzelnen Terme der Intensitäten der Dritten Harmonischen nach den Gleichungen (3.73) und (3.74)

Bei einem Winkel von $\varphi=45^\circ$ haben die Funktionen $\cos 4\varphi$ und $\cos 8\varphi$ ein Maximum bzw. ein Minimum. Aufgrund der Summation der Terme in Gleichung (3.73) verkleinert sich die Gesamtamplitude, und die Krümmung am Scheitel muss flacher werden. Wie stark dies auftritt, ist abhängig von den Amplitudenverhältnissen. Dafür wird der Krümmungsradius bei $\varphi=45^\circ$ berechnet, indem man von Gleichung (3.73) die 2. Ableitung bildet und erhält:

$$f''(\varphi) = -64 \cdot C^2 \cos 8\varphi - 64 \cdot CD \cos 4\varphi \quad (3.75)$$

³ $\cos^2 x = \frac{1}{2}(1 + \cos 2x)$ und $\sin^2 x = \frac{1}{2}(1 - \cos 2x)$

Für einen Sattelpunkt (Krümmungsradius gleich Null) muss die 2. Ableitung Null werden. Nach Umstellen und Auflösen erhält man für C und D folgende Beziehung.

$$C = D \quad \text{bzw.} \quad \frac{C}{D} = 1 \quad (3.76)$$

In Abbildung 3.14 ist der Krümmungsradius gleich Null. Dies bedeutet, dass bei Gleichheit von C und D ein Schwellwert erreicht ist, der keine 8-Zähligkeit zulässt. Die Gleichheit von C und D bedeutet aber auch, dass in Gleichung (3.65) der anisotrope Term Null wird und die Polarisation nur einen isotropen Term besitzt, die TH-Polarisation immer parallel zur einfallenden Fundamentalen ist, woraus die Bedingung für die Isotropie folgt $\chi_{1111}^{(3)} = 3\chi_{1212}^{(3)}$.

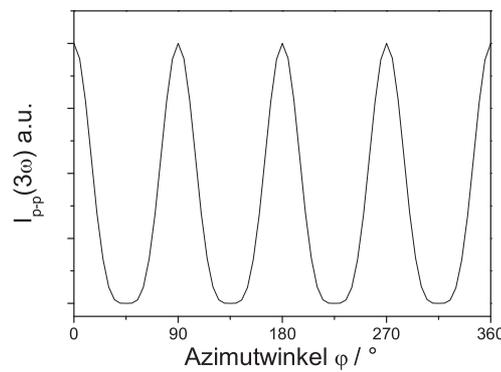


Abbildung 3.14: Grafische Darstellung Intensitäten der Dritten Harmonischen bei Gleichheit von C und D

Ist C größer als D , zeigt Abbildung 3.15a eindeutig den Beginn der 8-Zähligkeit. Wird die Differenz von C und D weiter vergrößert, verdeutlicht sich dieser Effekt noch stärker. Je kleiner D bei gleichem C ist, umso mehr gleichen sich die Amplituden an, bis die 4-Zähligkeit vollkommen unterdrückt ist und nur eine 8-zählige Modulation gleicher Amplitude erhalten bleibt.

Die 4-fach Modulation dominiert immer nur, wenn D größer als C ist (Abbildung 3.15b). Der Anteil der 8-zähligen Komponente wird vollkommen unterdrückt.

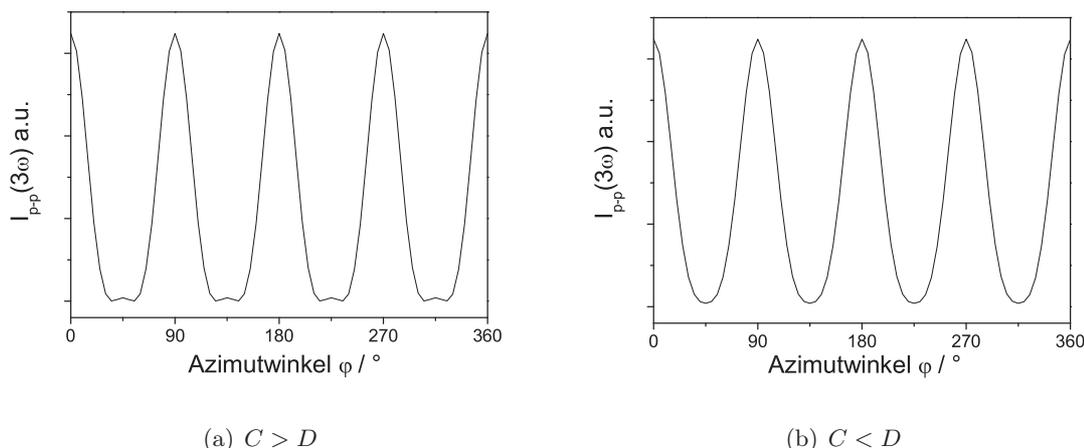


Abbildung 3.15: Grafische Darstellung Intensitäten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von C und D

Das Wissen um die Abhängigkeiten der Parameter zueinander und deren Bedeutung in den Messkurven, erleichtert die Anpassung der Fitkurven an die erhaltenen Messdaten und die Interpretation der Ergebnisse. Dies wird später für die Bestimmung der relativen Größe der Anisotropie genutzt.

Die vorgenannten Erläuterungen gelten für den senkrechten Einfall der Fundamentalfelder auf die Kristalloberfläche des (100)-orientierten Siliziums, für die Einstrahlung in [100]-Kristallrichtung. Eine unter einem Winkel θ einfallende Fundamentale, beeinflusst das Verhalten der Dritten Harmonischen bei Rotation des Kristalls, da sich die Propagationsrichtungen der Fundamentalen und der TH bezüglich der Kristallachsen ändern. Wird beispielsweise der (100)-Kristall um 45° um seine [001]-Kristallachse gedreht, propagiert das Fundamentalbündel in der (110)-Kristallachsenrichtung. Hierfür ergeben sich dann zwangsläufig andere Vorfaktoren für die $\chi^{(3)}$ -Elemente der Felder der Dritten Harmonischen (Gleichung (3.67) und (3.68)).

Buhleier et al.[Buh94] und Lüpke [Lue91] untersuchten das Verhalten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit vom Azimutwinkel für verschiedene Kristallorientierungen des Siliziumkristalls und beschrieben theoretisch die Vorfaktoren für die $\chi^{(3)}$ -Elemente. Das unterschiedliche Verhalten der TH von (100)-, (110)- und (111)-orientiertem Silizium wurde experimentell im sichtbaren Spektralbereich nachgewiesen. Die Vorfaktoren der anisotropen $\chi_{ijkl}^{(3)}$ -Komponenten bezüglich des Laborkoordinatensystems für einen (100)-orientierten Kristall in Abhängigkeit vom Azimutwinkel φ sind in folgender Tabelle nach Buhleier und Lüpke aufgelistet.

Tabelle 3.1: Anisotrope $\chi_{ijkl}^{(3)}$ -Komponenten bezüglich der (100)-Oberfläche

i/jkl	xxx	yyy	zzz	xyx	yyx
x	$\frac{1}{4}(3 + \cos(4\varphi))$	$-\frac{1}{4}\sin(4\varphi)$	0	$\frac{1}{4}\sin(4\varphi)$	$\frac{1}{4}(1 - \cos(4\varphi))$
y	$\frac{1}{4}\sin(4\varphi)$	$\frac{1}{4}(3 + \cos(4\varphi))$	0	$\frac{1}{4}(1 - \cos(4\varphi))$	$-\frac{1}{4}\sin(4\varphi)$
z	0	0	1	0	0

Diese Elemente der Matrix beschreiben nur die Orientierung der Kristallfundamentalzelle im Laborkoordinatensystem. Mit diesen Daten sind die Komponenten von $\chi^{(3)}$ bei Rotation

bestimmbar. Bei einer gegebenen Position erscheinen nur Summen geradzahlicher oder ungeradzahlicher wechselnder Anordnung erscheinen. Für den senkrechten Einfall verschwinden alle ungeradzahlichen abhängigen Amplituden im resultierendem nichtlinearem Signal, da die z-Komponente des fundamentalen Feldes verschwindet.

Tsang [Tsa95] beschrieb, sich auf die Arbeiten von Moss et al. [Mos89] beziehend, theoretisch das azimutale Verhalten der p- und s-polarisierten Felder der erzeugten Dritten Harmonischen von (100)-orientierten Silizium-Wafern und bestätigt die Ergebnisse im Reflexionsexperiment, in dem eine monochromatische linear p-polarisierte Welle der Frequenz ω unter einem Einfallswinkel θ auf den Kristall auftrifft.

Sein Experiment zeigte für die ordentlich polarisierte Komponente der Intensität der Dritten Harmonischen eine 4-fach Symmetrie und für die außerordentlich polarisierte Komponente eine 8-fach Symmetrie. Moss et al. begründen die 4fach Symmetrie mit der (100)-Orientierung des Kristalls, während die Modulationstiefe mit der Anisotropie von $\chi^{(3)}$ zusammenhängt. Diese 4-Symmetrie bei Rotation des Kristalls um seine Oberflächennormale wurde auch von anderen beobachtet [Wan86] oder [Zab04]. Bei einer senkrecht zur Oberfläche auf (001)-orientiertes Silizium einfallenden Fundamental beobachteten Lüpke et al. [Lue94] ebenfalls eine Intensität der Dritten Harmonischen, die mit einer Abhängigkeit von $\cos^2(4\varphi)$, mit φ als Azimutwinkel zur Oberfläche, variiert. Die [001]-Orientierung entspricht der um 90° gedrehten [100]-Kristallorientierung.

Des weiteren beobachtete Tsang [Tsa95], dass bei Reflexion an Metallen oder Halbleiter-Oberflächen die TH meistens im Bulkmaterial generiert wird. Schwache elektrische Dipole erlauben an der Luft-Dielektrikum-Grenzfläche THG-Prozesse, die nützliche Oberflächenmerkmale enthalten können. Der Symmetriebruch an der Grenzschicht führt zu einem Anstieg der induzierten nichtlinearen Polarisation, die alle höheren nichtlinearen Suszeptibilitäts-Tensoren enthält. Die TH wird aufgrund des größeren Anregungsvolumens als an der Oberfläche hauptsächlich im Bulk generiert.

Zu den gleichen Schlussfolgerungen wie Tsang kommt auch Saeta [Sae01]. Er untersuchte an ultradünnen Silizium-Schichten mit allmählicher Variation der Schichtdicke die Winkel- und Dickenabhängigkeit der Dritten Harmonischen in Transmission. Die Rotations-Scans der THG stimmen mit denen der Bulk-Kristallsymmetrie überein. Sie ist konsistent mit einem bulkdominierten THG-Prozess in Silizium.

Sipe, Moss und van Driel [Sip87] präsentierten eine Theorie für die anisotrope Erzeugung Zweiter und Dritter Harmonischer, die sie in Reflexionsexperimenten an der Oberfläche und im Bulk von zentrosymmetrischen Kristallen beobachteten. Sie zeigen für den Fall der THG in Reflexion, dass die Bulk-Beiträge die Oberflächen-Beiträge dominieren, wobei es nicht möglich ist, in kubischen zentrosymmetrischen Kristallen die Oberflächen- von den Bulkeffekten zu separieren. Oberflächenbeiträge rühren größtenteils von der SHG her, da die Inversionssymmetrie an der Grenzschicht unterbrochen ist. Mit dem Faktor d/a mit d als Eindringtiefe der Fundamental, bei der TH erzeugt wird und a als Gitterkonstante ist ein Maß für die relative Anzahl der beitragenden Schichten für die Oberflächen- oder Bulk-Beiträge gegeben, die auf möglichen elektrischen Dipol-Effekten basieren. Diese Effekte sind aufgrund des wesentlich größeren Volumens im Bulk größer als an der Oberfläche. Ziel ihrer Arbeit ist es deshalb, die relative Größe der Bulk- und Oberflächenbeiträge in zentrosymmetrischen Materialien abzuschätzen. Sie gehen bei ihrer Theorie für die THG von rein symmetrischen Erwägungen aus und berechnen die isotropen und anisotropen Anteile der Felder und gelangen zu gleichen Abhängigkeiten wie oben erwähnt. Ein Vergleich von Oberflächen- und Bulkbeiträgen führt zur Unterscheidung von THG- und SHG-Beiträgen. Für die THG kommen die dominanten Beiträge vom Bulk, weshalb die THG nützliche Informationen zur Bulk-Kristall-Struktur liefert.

Ein kleiner Anteil der TH entsteht auch unmittelbar an der Oberfläche. Die SHG dagegen liefert nur Beiträge der Oberfläche.

Bisherige Untersuchungen der Dritten Harmonischen im sichtbaren Spektralbereich an kristallinem (100)-orientiertem Silizium und Experimente in Reflexion weisen demnach Modulationen in Abhängigkeit des Azimutwinkels des Kristalls auf. Die ordentlichen Polarisationsanteile der Dritten Harmonischen zeigen eine 4-zählige und die außerordentlichen Beiträge eine 8-zählige Modulation, wobei beide hauptsächlich aus dem Bulkmaterial herrühren.

Kapitel 4

Die untersuchten Photonischen Kristalle

Die verwendeten Photonischen Kristalle wurden vom Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik Halle hergestellt und für die Untersuchungen zur Verfügung gestellt. Die Kristalle bestehen aus n-dotiertem (Phosphor) makroporösem Silizium. Diese Nomenklatur bezieht sich auf die geometrische Größe der Struktur. Nach den Konventionen der International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) bezeichnet "makroporös" Strukturen mit mittleren Porendurchmessern größer als 50 nm, "mesoporös" Strukturen zwischen 2 und 50 nm und "mikroporös" Strukturen kleiner als 2 nm [Mue72].

Bevor die untersuchten Proben charakterisiert werden, soll auf die Kristalleigenschaften von Silizium eingegangen und das hier eingesetzte Verfahren zur Herstellung von Photonischen Kristallen beschrieben werden.

4.1 Der Silizium-Kristall

Eine Reihe wichtiger Halbleitermaterialien, wie Silizium oder Germanium, kristallisieren in der Diamantstruktur. Das Raumgitter ist ein flächenzentriertes kubisches (fcc)-Gitter.

Die Basis von Silizium besteht aus zwei Atomen und ist auf dem fcc-Gitter periodisch fortgesetzt. Deshalb besteht das Kristallgitter aus zwei ineinander verschachtelten fcc-Gittern, die entlang der Raumdiagonalen der Elementarzelle (Kantenlänge a) um $\frac{1}{4}$ ihrer Länge verschoben sind.

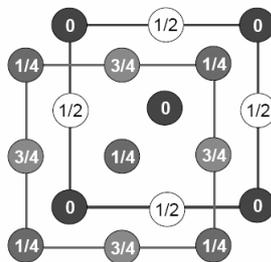


Abbildung 4.1: Zweidimensionale Darstellung des Gitters eines Silizium-Kristalls nach [Lüt03]

In einer Elementarzelle befinden sich acht Atome auf den Würfecken, sechs auf den Flächenmitten und vier im Inneren. Damit hat die kubische Zelle insgesamt $\frac{8 \cdot 1}{8} + \frac{6 \cdot 1}{2} + 4 = 8$ Atome

und jedes von ihnen 4 nächste und 12 übernächste Nachbarn.

Siliziumkristalle können je nach ihrer Lage im Schmelzbad verschieden kristallographisch orientiert sein. Diese unterschiedlichen Orientierungen haben besondere Vorteile, die jeweils in verschiedenen Arten von Chips genutzt werden. So findet z.B. die (100)-Orientierung Anwendung in MOS-Chips, während die (111)-Orientierung oft für bipolare Produkte verwendet wird.

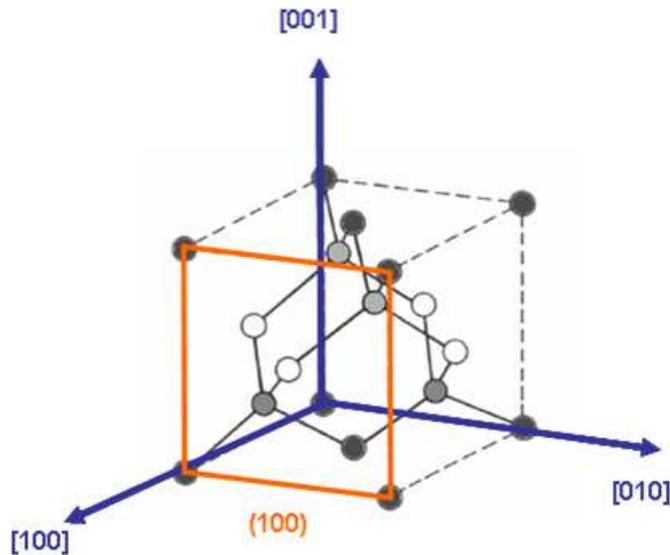


Abbildung 4.2: Kristallstruktur von Silizium mit Angabe der speziellen Kristallrichtungen [100], [010] und [001] und der dazugehörigen Kristallebene nach [Lüt03]

Abbildung 4.2 zeigt das Raumgitter eines Silizium-Kristalls. Die Gitterkonstante beträgt 0,543 nm. Eingezeichnet sind die Kristallrichtungen. Senkrecht auf den Richtungen stehen die entsprechenden Kristallebenen. Die Kristalle, die untersucht wurden, sind in der rot gekennzeichneten (100)-Ebene geschnitten.

4.2 Herstellung der Photonischen Kristalle

Zur Herstellung der Photonischen Kristalle wurden die Silizium-Wafer lithographisch vorstrukturiert. Dies ist für ein geordnetes und wohldefiniertes Makroporenwachstum notwendig. Lehmann [Leh90] beschreibt ein geordnetes Makroporenwachstum in [100]-Kristallrichtung in n-dotiertem (100)-orientiertem Silizium. Dafür wird die Silizium-Scheibe mit einer dünnen SiO_2 -Schicht und Fotolack überzogen. Man belichtet lithographisch ein beliebiges zweidimensionales Gitter in den Fotolack, das anschließend entwickelt wird. Mit Flußsäure (HF) wird dieses Gitter in die SiO_2 -Schicht übertragen und hinterher der Fotolack entfernt. Danach ätzt man Silizium mit wässriger Kaliumlauge (KOH) und erhält aufgrund der stark unterschiedlichen Ätzraten invertierte Pyramiden im Silizium. Der Ätzprozess mit KOH ist ein anisotroper Prozess, das bedeutet, dass die Ätzrate in [100]-Richtung größer als die in [010]-Richtung ist. Dadurch entsteht die Pyramidenstruktur. Jede invertierte Pyramide eines 2D lithographisch definierten Gitters auf der Silizium-Oberfläche agiert als Ausgangspunkt einer Pore. Diese Startpunkte sind notwendig für das anschließende Porenwachstum zur Herstellung der Photonischen Kristalle.

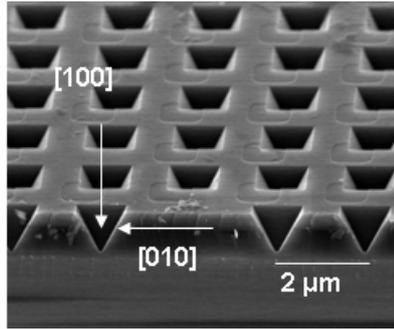


Abbildung 4.3: REM-Aufnahme eines vorstrukturierten Si-Wafers
Die Pyramidentiefe beträgt ca. 700 nm; die Seitenkanten der invertierten Pyramiden sind parallel zu den Achsen des Quadratgitters, die Kristallrichtungen sind eingezeichnet; Foto: *MPI für Mikrostrukturphysik Halle*

Die so hergestellten Wafer sind ca. $508 \mu\text{m}$ dick und entlang der (100)-Fläche der Silizium-Kristallstruktur geschnitten. Das anschließende Porenwachstum ([100]) geschieht senkrecht zu dieser Fläche. Die Wafer werden an einer Kante abgeflacht, woran man die Kristall-Orientierung erkennt. Unterschiedliche Abflachungen weisen auf die jeweilige Kristallorientierung hin.

Eine detaillierte Beschreibung zur Herstellung der Photonischen Kristalle findet man u.a. in [Bir01], [Foe02] oder [Mat05]. Es soll hier daher nur kurz auf den photoelektrochemischen Ätzprozess zur Herstellung der Photonischen Kristalle eingegangen werden.

Die vorstrukturierten (100)-orientierten Silizium-Wafer werden an der strukturierten Seite mit wässriger Flußsäure (HF) in Kontakt gebracht und von der Rückseite mit sichtbarem Licht beleuchtet. Zwischen der Rückseite des Silizium-Wafers und dem Elektrolyten wird mittels eines Platinum-Drahtes eine anodische Spannung angelegt. Aufgrund der Rückseitenbeleuchtung des Wafers werden in Abhängigkeit von der Lichtintensität unterschiedlich viele Elektronen-Loch-Paare generiert. Diese diffundieren durch den Wafer zur Silizium-Elektrolyt-Grenzschicht. An dieser Grenzschicht bildet sich eine so genannte Raumladungszone [Leh90] aus. Sie wirkt auf die Elektronen-Loch-Paare, reichert diese hauptsächlich an den Porenspitzen an und fördert dort die elektrochemische Auflösung des Siliziums. Infolgedessen wachsen die Poren geradlinig in [100]-Richtung. Die räumliche Anordnung der Poren wird durch die Maske kontrolliert, während ihr Durchmesser durch die Intensität der Beleuchtung bestimmt wird. Mit voreingestellten Parametern für diesen Ätzprozess erhält man so Photonische Kristalle mit bestimmten Porendurchmessern und -längen und Porenabständen, die den Gitterkonstanten a der Kristalle entsprechen. Es entstehen Photonische Kristalle mit einer Porenstruktur unterschiedlicher Länge auf Bulkmaterial aus unstrukturiertem, massiven Silizium.

4.3 Charakterisierung der untersuchten Proben

Die untersuchten Kristalle besitzen Makroporenfelder mit Porenabständen von 2 bzw. $1,5 \mu\text{m}$. Im Vergleich zu ihrem Abstand weisen die Poren eine relativ große Tiefe von bis zu $400 \mu\text{m}$ auf. Die Tiefe der quadratischen und hexagonalen Strukturen entspricht durchschnittlich dem 6 bis 20fachen der verwendeten Wellenlänge. So kommen die untersuchten Kristalle der Idee eines echten, unendlich ausgedehnten Photonischen Kristalls sehr nahe.

Die 2D-Photonischen Kristalle mit einer quadratischen Gitterstruktur haben Poren mit einem Durchmesser von jeweils $1 \mu\text{m}$ und unterschiedlicher Porenlänge von 50, 100, 200 und 400

μm . Der Porenabstand beträgt $2 \mu\text{m}$ (Gitterkonstante $a = 2 \mu\text{m}$). Die Bulkdicke (massives Silizium) ist bei allen Kristallen gleich und beträgt $108 \mu\text{m}$.

Die lithographisch vorstrukturierten Wafer weisen eine Gesamtdicke von $508 \mu\text{m}$ und eine Tiefe der Pits von ca. 700 nm auf. In Abbildung 4.4 sind sehr gut die in Kapitel 4.2 beschriebenen invertierten Pyramiden zu erkennen.

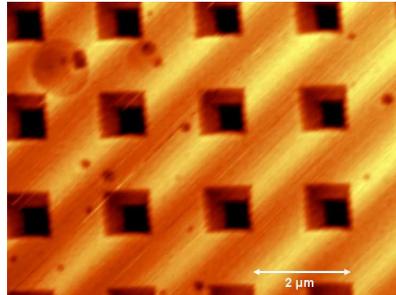


Abbildung 4.4: SNOM-Aufnahme von einem Wafer mit quadratischem Gitter
Probe: lithographisch vorstrukturiertes Si, Gitterkonstante $2 \mu\text{m}$, Porendurchmesser $1 \mu\text{m}$

In folgenden Abbildungen sind Mikroskop-Aufnahmen mit 100facher Vergrößerung einer Probe mit quadratischer Porenanordnung in verschiedenen Ansichten zu sehen. Die Porenlänge beträgt $100 \mu\text{m}$. Abbildung 4.5a stellt einen Ausschnitt in Porenrichtung ($[100]$ -Richtung) und Abbildung 4.5b einen Ausschnitt senkrecht zu den Poren ($[010]$ -Richtung) dar. Beim letzteren ist der Übergang zum Bulk sehr gut zu erkennen.

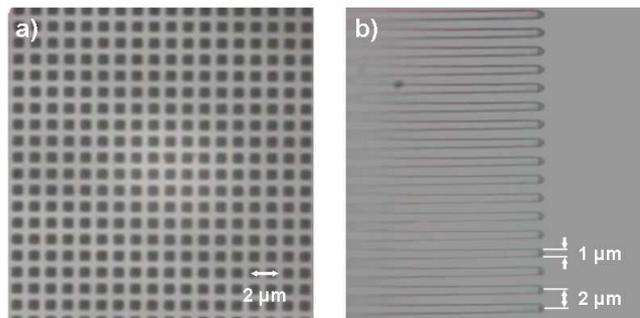


Abbildung 4.5: Mikroskop-Aufnahme der A2-207-Probe mit quadratischem Gitter
Gitterkonstante $2 \mu\text{m}$, Porendurchmesser $1 \mu\text{m}$, Porenlänge $100 \mu\text{m}$
a) Draufsicht in $[100]$ -Richtung
b) Längsschnitt - Sicht senkrecht zu den Poren in $[010]$ -Richtung

Die Photonischen Kristalle mit hexagonaler Struktur zeichnen sich durch eine hexagonale Anordnung der Poren (hexagonale Gitterstruktur) aus. Der Abstand der Poren zueinander beträgt hier $1,5 \mu\text{m}$. Die Porenlängen variieren zwischen 100 und $150 \mu\text{m}$.

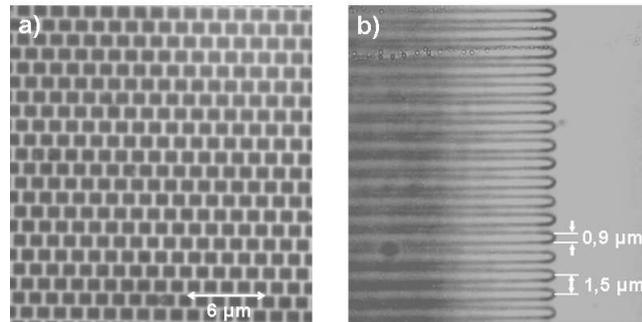


Abbildung 4.6: Mikroskop-Aufnahme der A15-033-Probe mit hexagonalem Gitter
 Gitterkonstante $1,5 \mu\text{m}$, Porendurchmesser $0,9 \mu\text{m}$
 a) Draufsicht in $[100]$ -Richtung
 b) Längsschnitt - Sicht senkrecht zu den Poren in $[010]$ -Richtung

In Abbildung 4.6 ist sehr gut zu erkennen, dass die Porenwände bei diesen Proben aufgrund der hexagonalen Anordnung der Poren und der kleineren Gitterkonstante wesentlich dünner als bei den quadratischen Proben sind.

Zusätzlich wurden auch dreidimensionale hexagonale Proben untersucht. Die Gitterkonstante betrug 700 nm und die größten Porendurchmesser ergaben sich zu 300 nm . Die Dreidimensionalität zeigte sich in der Modulation der Poren, das bedeutet, dass entlang der Porenachse, die Poren periodisch unterschiedliche Durchmesser haben. Die Strukturtiefe der Proben ergab sich zu ca. $10 \mu\text{m}$ bei 10 Modulationen.

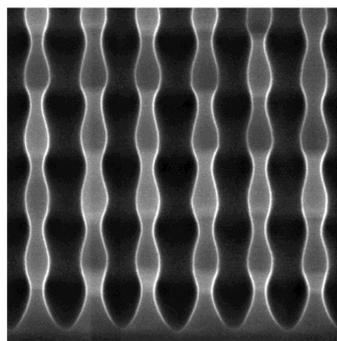


Abbildung 4.7: REM-Aufnahme eines Längsschnittes eines 3D-Photonischen Kristalls mit Modulation der Poren; Foto: [Sch02]

Transmissions-Messungen mit dem FTIR-Spektrometer dieser dreidimensionalen photonischen Kristalle zeigen deutliche Bandstrukturen bzw. Photonische Bandlücken (PBG *photonic band-gap*).

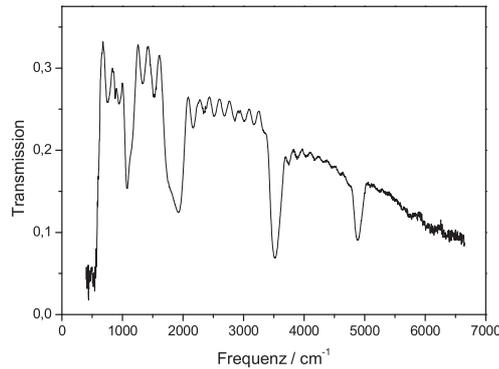
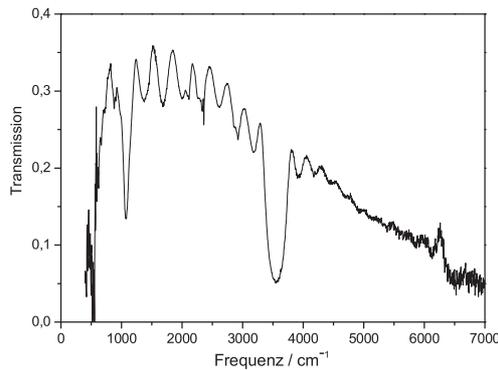
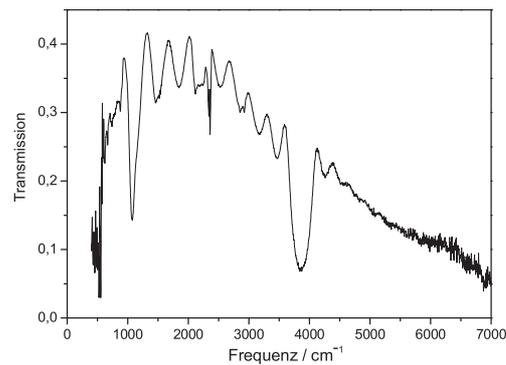


Abbildung 4.8: Transmissionsmessung mit dem FTIR-Spektrometer
 Probe: A07-002 mit hexagonalem Gitter

Hier sind mehrere Bandlücken zu erkennen. Interessant für die anschließenden Messungen im mittleren Infrarot-Bereich ist aber nur die Bandlücke um 3500 cm^{-1} . Andere Proben zeigen nur eine ausgeprägte Bandlücke im gesamten Infrarot-Bereich.



(a) Probe: A07-052; PBG bei $\tilde{\nu} = 3548\text{ cm}^{-1}$



(b) Probe: A07-054; PBG bei $\tilde{\nu} = 3874\text{ cm}^{-1}$

Abbildung 4.9: Transmissionsmessung mit dem FTIR-Spektrometer weiterer Proben
 mit hexagonalem Gitter

Für die geplanten Experimente war es von Bedeutung, die Lage der Bandlücke zu kennen, um für die Experimente Wellenlängen außerhalb dieser zu wählen.

Eine Beantwortung der Fragen, welche Eigenschaften die Dritten Harmonischen der Photonischen Kristalle im Bereich der Bandlücke aufweisen sowie ob und in welcher Weise die photonische Bandlücke die THG beeinflusst, können nur Experimente im Bereich um und in der Bandlücke geben. Aus diesem Grund sind Untersuchungen im mittleren Spektralbereich des Infrarot sehr interessant.

Als Referenzprobe dienen Silizium-Wafer ohne lithographische Vorstrukturierung. Diese Wafer sind ebenfalls n-dotiert, haben eine (100)-Kristallorientierung und eine Dicke von $508\text{ }\mu\text{m}$.

4.3.1 Brechung und Reflexion im nichtlinearen Medium

In nichtlinearen Medien spielen die Phasenbeziehungen zwischen den propagierenden Wellen eine dominante Rolle. Dieser Aspekt wird besonders an der Grenzfläche von dielektrischen Medien interessant. Die Phasenfehlanpassung (*phase mismatch*) an der Grenzfläche wird bestimmt durch ihre Orientierung und die Dispersion des Mediums [Blo62].

Im Experiment durchlaufen die Fundamentale und damit auch die Dritte Harmonische mehrere Grenzflächen. Beim Eintritt in den Kristall wird die Fundamentale unter einem Winkel gebrochen, sie propagiert und erfährt in Transmission an der Grenzfläche Bulk/Struktur bzw. Struktur/Bulk aufgrund der Brechungsindex-Änderung eine Änderung der Propagationsrichtung. Der Austritt der Wellen aus dem Kristall geschieht wieder unter einem bestimmten Winkel in Abhängigkeit von Wellenlänge und Brechungsindex. In Reflexion ist nur die Grenzfläche Luft/Photonischer Kristall zu beachten. Die bekannten Gesetze der Brechung und Reflexion des Lichts in linearen Medien können auf nichtlineare Medien ausgeweitet werden und somit zur Bestimmung von Phasenbeziehungen zwischen den propagierenden Feldern bzw. der Eintritts- und Austrittswinkel der Felder dienen.

4.3.1.1 Berechnung der Wechselwirkungslänge des IR in der Probe bei Reflexion

Bei den Experimenten in Reflexion wird die Dritte Harmonische nahe unter der Oberfläche des Kristalls generiert, deren Tiefe von der effektiven Wechselwirkungslänge des Fundamentalfeldes bzw. der *escape*-Tiefe der generierten Dritten Harmonischen abhängt. Bei Variation der Wellenlängen der Fundamentalen können verschiedene Wechselwirkungslängen im ausstrahlenden Bereich erhalten werden [Wan86]. Das IR-Bündel wechselwirkt nur über eine kleine Distanz mit dem Kristall, während in Transmission die gesamte Kristalllänge als Wechselwirkungslänge zur Verfügung steht. Diese Wechselwirkungslänge des IR im Kristall wird über die Phasenfehlanpassung mit $\Delta k = \frac{\Delta\omega \cdot \Delta n}{c}$ berechnet (Gleichung (3.31)).

$$\Delta k = 3k(\omega_0) - k(3\omega_0) = \frac{3n(\omega_0) \cdot \omega_0}{c} - \frac{n(3\omega_0) \cdot 3\omega_0}{c} \quad (4.1)$$

Wobei c die Vakuumlichtgeschwindigkeit und λ_0 bzw. ω_0 die Wellenlänge bzw. die Frequenz der eingestrahlten Welle und $3\omega_0$ die der Dritten Harmonischen bezeichnet. Analoges gilt für die Brechungsindizes $n(\omega_0)$ und $n(3\omega_0)$. Mit $\frac{\omega_0}{c} = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ und nach Einsetzen in (4.1) ergibt sich

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda_0} 3(n(\omega_0) - n(3\omega_0)) = \frac{6\pi}{\lambda_0} \cdot \Delta n \quad (4.2)$$

so dass sich für verschiedene Fundamentalwellenlängen jeweils Δk ermitteln lässt. Die Brechungsindizes für die verschiedenen Wellenlängen von Silizium findet man in [Nik97].

Mit der Beziehung

$$\Delta k \cdot L = 1 \quad (4.3)$$

ergibt sich effektive Wechselwirkungslänge L für das Infrarot-Bündel in den Kristall [Kem99]. Die meisten Messungen wurden bei einer Wellenlänge des IR von $\lambda_0 = 2,857 \mu\text{m}$ ($\tilde{\nu} = 3500 \text{ cm}^{-1}$) durchgeführt. Für die Wechselwirkungslänge folgt damit $1,433 \mu\text{m}$. Für den gesamten in diesem Experiment nutzbaren Wellenlängenbereich von $3,33 \mu\text{m}$ bis $2,5 \mu\text{m}$ ($\tilde{\nu} = (3000 - 4000) \text{ cm}^{-1}$) ergeben sich damit Längen von $1,531$ bis $1,298 \mu\text{m}$. Die Poren der Photonischen Kristalle hatten Tiefen von $6 - 400 \mu\text{m}$, weshalb davon ausgegangen werden kann, dass die in Reflexion gemessenen Dritten Harmonischen wirklich nur in der Struktur erzeugt wurden und keine Anteile vom Bulk-Silizium enthalten. Die detektierten Dritten Harmonischen aus den Transmissionsmessungen enthalten zwangsläufig Anteile aus beiden, Struktur und Bulk.

4.3.1.2 Polarisationsanteile bei Reflexion

Die Berechnung der reflektierten Polarisationsanteile der Dritten Harmonischen erfolgt mit Hilfe der Fresnelschen Formeln. Der Reflexionsgrad hängt von der Änderung des Brechungsindex, also vom relativen Brechungsindex n , ab.

Die Fresnel-Gleichungen lauten:

$$R_{\perp} = \left(\frac{\sin(\theta_i - \theta_b)}{\sin(\theta_i + \theta_b)} \right)^2 \quad (4.4)$$

$$R_{\parallel} = \left(\frac{\tan(\theta_i - \theta_b)}{\tan(\theta_i + \theta_b)} \right)^2 \quad (4.5)$$

Aus dem Brechungsgesetz $\sin \theta_i \cdot n_i = \sin \theta_b \cdot n_b$ ergibt sich der Brechungswinkel θ_b . Die Indizes i stehen für die einfallende und b für die gebrochene Welle im entsprechendem Medium.

Für eine grobe Abschätzung der Reflexionsanteile wird zunächst von unstrukturiertem Silizium mit einem Brechungsindex $n_b = 3,4376$ bei $\tilde{\nu} = 3500 \text{ cm}^{-1}$ ausgegangen. Der Einfallswinkel θ_i beträgt 30° . Mit dem berechneten Brechungswinkel und den obigen Werten lassen sich R_{\perp} und R_{\parallel} und damit auch die Intensitätsanteile der Dritten Harmonischen ermitteln.

$$\begin{aligned} R_{\perp}^{3H} &= (R_{\perp})^3 = 0,0439 \\ R_{\parallel}^{3H} &= (R_{\parallel})^3 = 0,0158 \end{aligned}$$

Dies entspricht einem Intensitätsunterschied von einem Faktor von 2,8 der beiden Reflexionsanteile.

Geht man nun von einem mittleren Brechungsindex $\Delta n = 2,2$ der Struktur (Poren aus Luft wechseln sich mit Porenwänden aus Silizium periodisch ab) aus, folgt für

$$\begin{aligned} R_{\perp}^{3H} &= (R_{\perp})^3 = 0,0058 \\ R_{\parallel}^{3H} &= (R_{\parallel})^3 = 0,0011 \end{aligned}$$

und man erhält einen Intensitätsunterschied von einem Faktor 5.

Die berechneten Faktoren stimmen mit den experimentell beobachteten gut überein.

Kapitel 5

Experimenteller Aufbau und praktische Durchführung der Experimente

Für die Untersuchung der nichtlinearen optischen Eigenschaften von photonischen Kristallen aus makroporösem Silizium wurde ein nichtkommerzielles Lasersystem verwendet, das durchstimmbare Laserimpulse im mittleren Infrarot-Bereich von 2500 bis 4000 nm liefert. Einen schematischen Überblick über das Experiment gibt Abbildung 5.1. Die Impulserzeugung erfolgt in einem Festkörper-Laserresonator, wobei eine gleichzeitige Modenkopplung zur Verkürzung der Impulse führt. Anschließend werden die Impulse in einem mehrstufigen Verstärkerprozess verstärkt und durchlaufen verschiedene Frequenzkonversionsstufen. Am Ende steht ein Impuls im mittleren infraroten Spektralbereich zur Verfügung.

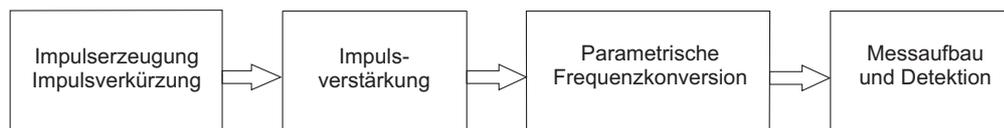


Abbildung 5.1: Schematischer Aufbau des Experimentes

5.1 Erzeugung und Verkürzung der Laserimpulse

Die Erzeugung der kurzen Laserimpulse erfolgt in einem blitzlampengepumpten Festkörper-Laserszillator. Der Oszillator ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Als aktives Lasermaterial dient mit Neodym dotiertes Lithium-Yttrium-Fluorid (Nd:YLF), die Dotierung liegt bei ca. 1%. Im Experiment wurde der Laser auf der π -Linie (1047 nm) [Nik97] betrieben, das elektrische Feld im Resonator schwingt parallel zur optischen Achse des Kristalls.

Der Resonator wird aus zwei planen Endspiegeln (S1) und (S2) gebildet, die jeweils eine Reflektivität von 99% besitzen. Die geometrische Länge beträgt 1,4 m. Dies entspricht einem optischen Weg von 1,5 m zwischen den beiden Endspiegeln.

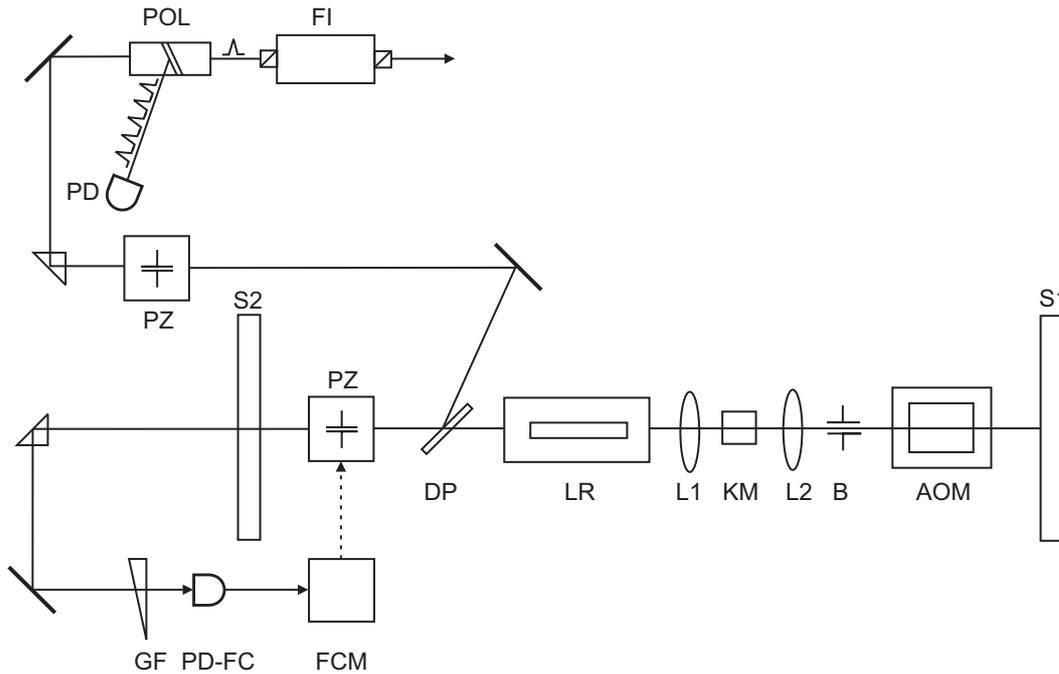


Abbildung 5.2: Aufbau und Komponenten des Laseroszillators

S1 und S2 Endspiegel, AOM Akusto-optischer, Modulator, B Kerr-Lens-Blende, L1 und L2 Kerr-Lens-Teleskop, KM Kerr-Medium (Kohlenstoffdisulfid), LR Laserpumpkopf mit Lasermedium und Xenon-Blitzlampe, DP Dünnschichtpolarisator, PZ Pockelszelle, GF Graufilter, PD-FC Photodiode (für FCM-Regelung), POL Glan-Thomson-Polarisator, FI Faraday-Isolator, PD Photodiode zur Restimpulszug-Detektion

Das Lasermaterial wird mit einer Xenon-Blitzlampe gepumpt. Dadurch wird die für die stimulierte Emission notwendige Besetzungsinversion erreicht. Es bilden sich im Oszillator linear polarisierte Impulse mit einer Fundamentalwellenlänge von 1047 nm aus, deren Energie durch den Regelmechanismus des Feedback-Control-Modelockings (FCM) [Wol91] auf ein nahezu konstantes Niveau stabilisiert wird. Diese Regeleinheit besteht aus der Pockelszelle (PZ), der Photodiode (PD), einem variablen Graufilter (GF), der schnellen Regelelektronik (FC) und dem Dünnschichtpolarisator (DP).

Die FCM-Regelung führt zu langen Impulszügen mit kontrollierter Amplitude. Für die Feedback-Kontrolle werden ca. 1% der im Oszillator zirkulierenden Impulse auf die Photodiode (PD) ausgekoppelt. Mit der Regelelektronik wird die von der Diode detektierte Impulsenergie mit einem vorgegebenen Sollwert verglichen, und in Abhängigkeit vom Ergebnis verändert die Pockelszelle (PZ) die Polarisationsdrehung des Laserfeldes. Der Impulszug durchläuft also zweimal die Pockelszelle (PZ). Nach dem zweiten Durchlauf wird der parallele Anteil über den Dünnschichtpolarisator wieder in den Oszillator transmittiert (für weitere Umläufe und Verstärkung). Der Dünnschichtpolarisator ist so orientiert, dass der π -Übergang von Nd:YLF transmittiert und der senkrechte Anteil des Impulszuges ausgekoppelt wird. Die Güte des Resonators wird hiermit verändert. Die Regelelektronik arbeitet im Bereich von 10 ns. Dies entspricht der Umlaufzeit der Impulse im Resonator. So wirkt sich die Regelung schon auf den nächsten umlaufenden Impuls aus.

Innerhalb des Oszillators werden die Impulse durch Modenkopplung verkürzt. Dies erfolgt in zwei Stufen, wobei durch die aktive Modenkopplung mittels eines akusto-optischen Modula-

tors (AOM) die Voraussetzung für die passive Modenkopplung, dem Kerr-Lens-Modelocking (KLM), geschaffen wird. Der akusto-optische Modulator arbeitet wie ein optischer Schalter, der die Güte des Resonators im Takt der Umlaufzeit der Impulse moduliert. Die optische Länge des Resonators gibt dabei den Abstand der einzelnen Impulse von 10 ns vor. Es steht daher nur ein enges Zeitfenster zur Verfügung, innerhalb dessen die Verstärkung der Umlaufverluste vorherrscht. Dies führt zu einer Verkürzung der im Oszillator umlaufenden Impulse bis zu 100 ps. Die passive Modenkopplung, hier das Kerr-Lens-Modelocking, ermöglicht eine weitere Verkürzung der Impulse.

Die Abhängigkeit des Brechungsindex in einem nichtlinearen Medium von der Intensität wird bei m KLM ausgenutzt. Bedingt wird dies durch die sich im elektrischen Feld orientierenden induzierten Dipole der Moleküle des Kerr-Mediums (Kerr-Effekt/Selbstfokussierung - ein $\chi^{(3)}$ -Prozess, Punkt 3.4.2). Es gilt dabei nach Gleichung (3.38):

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

n_2 bezeichnet die Nichtlinearität des Kerr-Mediums. Innerhalb eines Teleskopes mit den Linsen (L1) und (L2) befindet sich eine Küvette mit Kohlenstoffdisulfid (CS_2) als Kerr-Medium (KM). Die räumlich gaußförmige Lasermode führt zu einem gaußförmigen Brechungsindexprofil im nichtlinearen Medium. Das Kerr-Medium wirkt als Linse, deren Brennweite von der Intensität des transmittierten Impulses abhängt. Dadurch erfolgt für Anteile mit hoher Intensität des umlaufenden Impulses eine stärkere Fokussierung als für Anteile niedriger Intensität. Die Verluste an der Blende (B) sind für die intensive Spitze des umlaufenden Impulses kleiner als für seine Flanken, d.h. das Zentrum des Impulses wird effizienter verstärkt als seine Flanken. Der Impuls verkürzt sich zeitlich bis zu 4 ps.

Die im Resonator umlaufenden Impulse bilden Impulszüge von ca. 800 Einzelimpulsen, was bei einem Einzelimpulsabstand von 10 ns einer Gesamtlänge von ca. 8 μs entspricht. Die Repetitionsrate, der Impulszüge beträgt 60 Hz.

Für das Experiment wird aber nur ein Einzelimpuls benötigt. Dieser wird vom Impulszug abgetrennt, bevor er die Verstärker und die Frequenzkonversionsstufen durchläuft. Die Abtrennung des Einzelimpulses vom Impulszug erfolgt polarisationsoptisch, mit Hilfe einer Doppelpockelszelle (PZ) in Verbindung mit einem Polarisator mit hohem Unterdrückungsverhältnis. Die so erzeugten Einzelimpulse besitzen eine zeitliche Dauer von ca. 4 ps, eine Wellenlänge von 1047 nm und eine Einzelimpulsenergie von ca. 0,5 bis 1 μJ bei einer Repetitionsrate von 60 Hz.

5.2 Impulsverstärkung

Die Energie der Laserimpulse aus dem Resonator ist für die nachfolgende Erzeugung durchstimmbarer Impulse im Infraroten mit genügender Energie und Intensität nicht ausreichend. Deshalb ist eine Nachverstärkung der Oszillatorimpulse notwendig. Dies erfolgt mit zwei hintereinander geschalteten Nd:YLF-Verstärkern. Die Anordnung zeigt Abbildung 5.3.

Den Eingang der Verstärkeranordnung bildet der Faraday-Isolator (FI). Er unterbindet die Rückkopplung von Laserstrahlung aus dem Vorverstärker in den Oszillator durch Drehung der Eingangspolarisation des Laserimpulses um 90° . Anschließend durchläuft der Impuls den Vorverstärker (SPA1). Dieser ist wie auch der Nachverstärker (SPA2) ein Xenon-Blitzlampengepumpter Nd:YLF-Verstärker. Der Vorverstärker wird im Vierfachdurchlauf betrieben, dabei ist der Kristall so orientiert, dass seine c-Achse parallel zur Polarisationsrichtung des Impulses

verläuft. Die geometrische Trennung von Hin- und Rücklauf erfolgt mit einem Dachkantenprisma. Im Gegensatz zu den sonst üblichen 90° -Prismen wird hier ein $89,6^\circ$ -Prisma verwendet. Der Vorteil dieses Prismas besteht darin, dass der Hin- und Rücklauf des Impulses nicht parallel sondern schräg durch den Verstärkerkristall verläuft. Auf diese Weise wird eine Verlängerung des optischen Weges durch den Kristall und dadurch eine größere Ausnutzung des Verstärkervolumens erreicht.

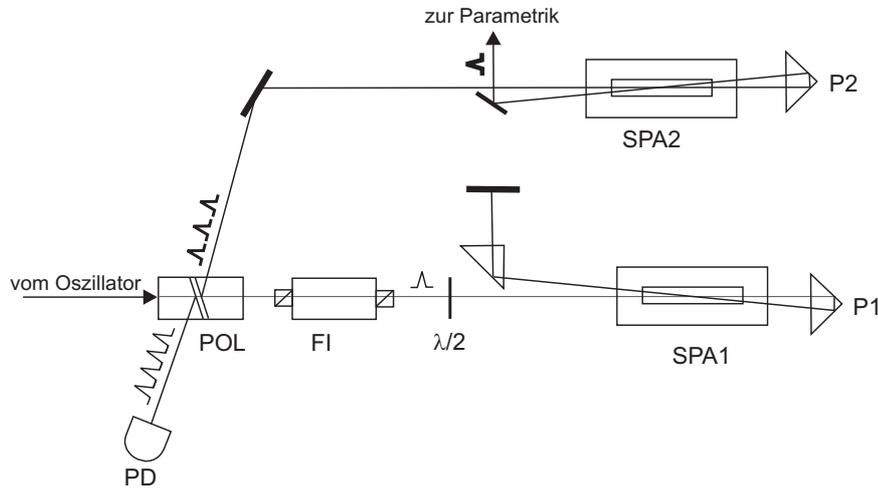


Abbildung 5.3: Verstärkeranordnung

POL Glan-Thomson-Polarisator, FI Faraday-Isolator, PD Photodiode (Detektion des Restimpulszuges), $\lambda/2$ Verzögerungsplatte, SPA1 Vorverstärker (Vierfachdurchlauf), SPA2 Endverstärker (Zweifachdurchlauf), P1 und P2 $89,6^\circ$ -Prismen

Nach dem Vierfachdurchlauf durch den Vorverstärker wird die Polarisation durch das Zusammenspiel von $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte (Rechtsdrehung) und Faraday-Isolator (Linksdrehung) nicht geändert. Sie ist daher gegenüber der Ausgangspolarisation um 90° gedreht. Die vorverstärkten Einzelimpulse besitzen Energien von jeweils etwa 300 bis 500 μJ . Eine weitere Verstärkung erfolgt im Nachverstärker. Dieser wird im Zweifachdurchlauf betrieben. Die geometrische Trennung von Hin- und Rücklauf erfolgt wieder mit einem Dachkantenprisma ($89,6^\circ$).

Die zweistufige Verstärkeranordnung bietet den Vorteil, dass die Impulsenergien in den einzelnen Verstärkern moderat und somit das Risiko der Beschädigung der optischen Elemente, insbesondere der Verstärkerkristalle, klein gehalten werden. Am Ausgang der Verstärkeranordnung besitzen die Einzelimpulse Energien von 0,9 - 2 mJ. Die Impulsdauer hat sich durch „spectral gain narrowing“ [Yar95] von etwa 4 ps auf 5 ps verlängert.

5.3 Erzeugung durchstimmbarer Infrarot-Impulse

Für Experimente zur Untersuchung der Photonischen Bandlücke und der Frequenzabhängigkeit von Photonischen Kristallen ist die Durchstimmbarkeit der Frequenz in einem relativ weiten Spektralbereich ($3000 \text{ cm}^{-1} \pm 1000 \text{ cm}^{-1}$) notwendig. Dies wird durch die Frequenzkonversion der verstärkten Infrarot-Impulse realisiert. Hierfür wurden verschiedene Konzepte entworfen [Wol93], [Lae98], [Yod91]. Ein zweistufiger Konversionsprozess hat sich dabei als vorteilhaft erwiesen. Zuerst wird ein durchstimmbarer Impuls im nahen Infrarot erzeugt, der dann in einer parametrischen Verstärkerstufe in den mittleren Infrarot-Bereich konvertiert wird. Ausgenutzt werden hierbei so genannte parametrische 3-Photonen-Prozesse ($\chi^{(2)}$ -

Prozesse) in optisch nichtlinearen Materialien. In dem hier vorgestellten Experiment erfolgt die Erzeugung des durchstimmbaren Impulses im nahen Infrarot in einem optisch-parametrischen Generator (OPG). Anschließend wird dieser Impuls in einem optisch-parametrischen Verstärker (OPA) verstärkt.

5.3.1 Parametrische Drei-Photonen-Prozesse und Phasenanpassung

Bei der Frequenzmischung wird aus zwei Photonen durch Summen- oder Differenzbildung (SFG oder DFG) ein drittes erzeugt. Es kann aber auch der umgekehrte Prozess beobachtet werden. Bei diesem optisch-parametrischen Prozess zerfällt ein so genanntes *pump*-Photon in zwei Photonen, das *signal* - und das *idler*-Photon, wobei für die Feldfrequenzen

$$\omega_p > \omega_s > \omega_i$$

gilt. Gleichzeitig müssen Energie- und Impulserhaltung erfüllt sein:

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (5.1)$$

$$\vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_i \quad (5.2)$$

Als optisch-parametrischen Generator (OPG) wird der Prozess bezeichnet, bei dem durch eine in das nichtlineare Medium eingestrahlte intensive *pump*-Welle bei ω_p zwei neue Wellen bei ω_s und ω_i erzeugt werden. Strahlt man zusätzlich zur *pump*-Welle ω_p noch eine der entstehenden Wellen ω_s oder ω_i in den Kristall ein, spricht man von einem optisch-parametrischen Verstärker (OPA). Der wesentliche Unterschied zwischen DFG und OPA liegt in der Verstärkung der zusätzlich zur *pump*-Welle eingestrahlten Welle bei ω_s . Im Gegensatz zum OPA benötigt der OPG sehr hohe Pumpintensitäten, die nur mit kurzen Impulsen erreichbar sind.

Bei diesem nichtlinearen Wechselwirkungsprozess entstehen immer nur solche *signal-idler*-Paare, für die die Energieerhaltung (5.1) erfüllt ist. Die beiden Bedingungen unterscheiden sich darin, dass Impulserhaltung im Kristall gilt und dabei der Brechungsindex bei der jeweiligen Frequenz berücksichtigt werden muss. Die Einhaltung von (5.2) nennt man auch Phasenanpassung. Sie ist entscheidend für die Effizienz des parametrischen Prozesses verantwortlich. Bei kollinear (skalare Phasenanpassung) Ausbreitung der wechselwirkenden Wellen kann man mit $k = \frac{\omega \cdot n}{c_0}$ die Gleichung (5.2) umschreiben:

$$n_p \omega_p = n_s \omega_s + n_i \omega_i \quad (5.3)$$

In isotropen und anisotropen Kristallen lässt sich (5.3) mit gleich polarisierten wechselwirkenden Wellen mit unterschiedlicher Ausbreitungsgeschwindigkeit $c(\omega_n)$ und verschiedener Brechungsindizes $n(\omega_n)$ aufgrund der normalen Dispersion nicht einhalten. Die Bedingung kann nur in doppelbrechenden Kristallen erfüllt werden, da hier der Brechungsindex nicht nur von der Frequenz sondern auch von der Polarisation der Welle abhängt. Man unterscheidet ordentliche (o) und außerordentliche (e) Polarisation.

In einachsigen Kristallen gibt es eine Vorzugsrichtung, die optische Achse genannt wird. Die Ebene, die von der optischen Achse und dem \vec{k} -Vektor gebildet wird, nennt man Hauptebene. Der \vec{k} -Vektor weist dabei in Ausbreitungsrichtung der Welle. Der senkrecht zur Hauptebene polarisierte Strahl heißt ordentlicher Strahl (o-Strahl), während der als außerordentlich bezeichnete Strahl (e-Strahl) in der Hauptebene polarisiert ist. Der Brechungsindex n_o vom o-Strahl hängt im Gegensatz zu dem vom e-Strahl nicht von der Ausbreitungsrichtung ab. Die Differenz der Brechungsindizes für den o- und e-Strahl bezeichnet man als Doppelbrechung Δn . Sie verschwindet entlang der optischen Achse und ist maximal senkrecht zu ihr.

Um Phasenanpassung für 3-Photonen-Prozesse erreichen zu können, werden verschieden polarisierte Wellen verwendet. Man unterscheidet Typ I- oder Typ II-Phasenanpassung:

- Typ I - *signal*- und *idler*-Welle sind gleich polarisiert, jedoch verschieden von der Polarisation der *pump*-Welle
- Typ II - die Polarisation von *signal*- und *idler*-Welle sind verschieden und die Polarisation der *pump*-Welle entspricht entweder der der *signal*- oder der der *idler*-Welle

Die optimale Phasenanpassung ist abhängig von den verwendeten Feldern und den Dispersionsrelationen für ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex des jeweiligen Materials.

5.3.2 Der optische-parametrische Generator (OPG)

Den Aufbau des optisch-parametrischen Generators für die Erzeugung der nah- infraroten Strahlung zeigt Abbildung 5.4. Im ersten Schritt werden ca. 30% der Energie des verstärkten Eingangsimpulses ($\lambda = 1047$ nm), weiter mit *Fundamentale* bezeichnet, frequenzverdoppelt (Second Harmonic Generation-SHG). Dazu wird ein 2 mm dicker BBO-Kristall (β -BaB₂O₄) mit Typ-I-Phasenanpassung (eoo) verwendet.

Am Strahlteiler (ST1) erfolgt die Trennung von *Fundamentaler*, die als *pump*-Welle für die letzte parametrische Stufe genutzt wird, und Zweiter Harmonischer ($\lambda = 523,5$ nm). Diese wird von (ST1) transmittiert und über den Strahlteiler (ST2) in den parametrischen Generator eingekoppelt, wo sie als *pump*-Impuls dient. Der OPG besteht aus einem 10 mm dicken KTP-Kristall (KTiOPO₄), der im x-z-Schnitt vorliegt. Aufgrund der Rückreflexion am planen Silberspiegel (S2) wird der Generator zweimal durchlaufen. In Typ-II-Phasenanpassung werden im KTP-Kristall aus der Zweiten Harmonischen (*pump*-Welle) aus dem Rauschen heraus *signal* und *idler* generiert, das bedeutet, die *pump*-Welle und die generierte *idler*-Welle sind senkrecht und die *signal*-Welle parallel zur x-z-Ebene (oeo) polarisiert. In OPG's wird der parametrische Prozess durch die spontane parametrische Fluoreszenz initiiert. Daher benötigen sie auch höhere Pumpintensitäten als beispielsweise optisch-parametrische Verstärker (OPA). Die Frequenzen der erzeugten Strahlung können durch Drehung des KTP-Kristalls variiert werden. Aufgrund der Polarisationsgeometrie des Prozesses ist hierbei nur die *signal*-Komponente durch den Winkel zwischen Einstrahlrichtung und der Oberflächennormalen des Kristalls definiert [Zür98b]. Die Frequenz der *idler*-Komponente ergibt sich aus der Energieerhaltung. Mit einer Verdrehung des Kristalls bis zu 30° erhält man einen Durchstimmbereich von 1170 bis 1980 nm.

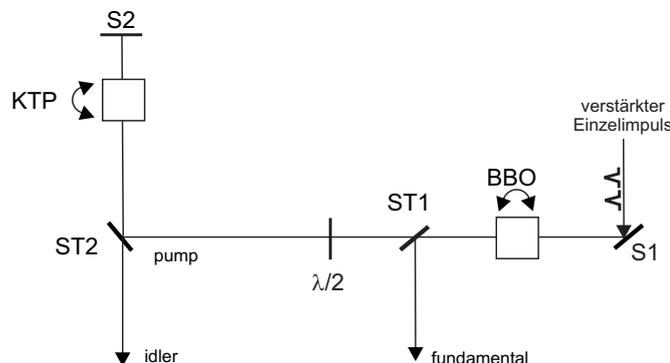


Abbildung 5.4: Aufbau des OPG

S1 Goldspiegel, S2 Silberspiegel, BBO nichtlinearer Kristall (drehbar), ST1 dichroitischer Strahlteiler (HR 1047 nm, HT 523,5 nm), $\lambda/2$ Verzögerungsplatte, ST2 dichroitischer Strahlteiler (HR 523,5 nm, HT 1100-1700 nm), KTP nichtlinearer Kristall (drehbar)

5.3.3 Der optische-parametrische Verstärker (OPA)

Zur weiteren Frequenzkonversion ins mittlere Infrarot wird ein optisch-parametrischer Verstärker eingesetzt, dessen Aufbau in Abbildung 5.5 ersichtlich ist. Dafür werden paarweise angeordnete einachsige doppelbrechende Lithiumniobat-(LiNbO₃)-Kristalle verwendet.

Der Strahlteiler (ST1) reflektiert den aus dem OPG kommenden *idler*-Impuls. Dieser wird hier zum *signal* und mit der *Fundamentalen*, die als *pump* dient, räumlich und zeitlich überlagert und in den parametrischen Verstärker eingekoppelt. Die Überlagerung beider Impulse wird mit einer variablen Verzögerungsstrecke (Delay) eingestellt. Beim Durchgang durch den Verstärkerkristall wird unter Erzeugung der Differenzfrequenz beider Impulse der *signal* verstärkt. Ergebnis ist ein *idler*-Impuls im mittleren spektralen Infrarot-Bereich. Durch Variation der *signal*-Wellenlänge (Drehung des KTP) kann die *idler*-Wellenlänge abgestimmt werden. Es gelten hierbei nach (5.1) und (5.2) Energie- und Impulserhaltung für die *idler*-Frequenz:

$$\omega_i = \omega_p - \omega_s \quad (5.4)$$

Für die Phasenanpassung werden die zwei Kristalle gegeneinander gedreht. Durch den zwei-stufigen Aufbau wird der Parallelversatz ("walk off" - der ordentliche und außerordentliche Strahl verlassen den Kristall räumlich versetzt), der bei der Drehung der Kristalle entsteht, für die zu verstärkende Komponente kompensiert. Im Gegensatz zum OPG entspricht hier die Phasenanpassung dem Typ I. Die Kristalle sind so angeordnet, dass der außerordentliche Brechungsindex nur die Ausbreitung der *pump*-Welle beeinflusst, das bedeutet, sie ist außerordentlich und *signal*- und *idler*-Welle sind ordentlich (eoo) polarisiert. Mit den LiNbO₃-Kristallen lässt sich ein Durchstimmbereich von 2500 bis 4000 cm⁻¹, das entspricht Wellenlängen von 4 bis 2,5 μm, realisieren. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes und für eine stabile Frequenzkonversion werden alle Kristalle mit einer geregelten Heizung auf einer konstanten Temperatur von etwa 70°C gehalten.

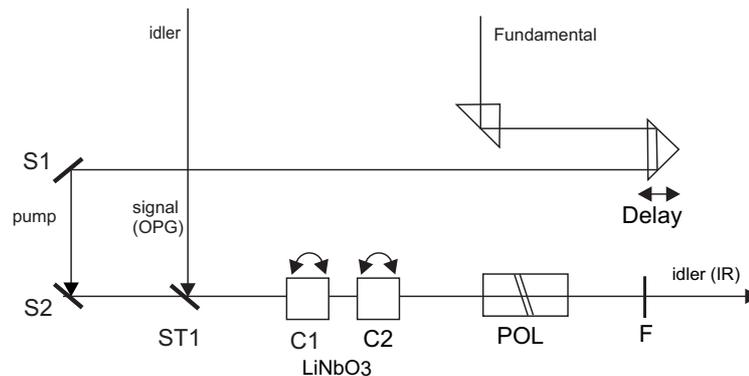


Abbildung 5.5: Aufbau des OPA

S1 und S2 Goldspiegel, ST1 dichroitischer Strahlteiler (HR 1100 - 1700 nm, HT 1047 nm), C1 und C2 nichtlineare Kristalle LiNbO₃ (drehbar), POL Rochon-Prisma, F Germanium-Langpassfilter

Die Impulse durchlaufen anschließend ein Rochon-Prisma (POL), das hier als Polarisator verwendet wird und zur polarisationsoptischen Abtrennung der *signal*- und *idler*-Welle von der *pump*-Welle dient. Hiermit wird eine exakt vertikale Polarisation des IR und OPG-Bündels (ordentliche Komponente) gewährleistet. Geringe Anteile des vertikal polarisierten IR-Impulses und der horizontal polarisierten *Fundamentalen* (außerordentliche Komponente) werden zur Kontrolle der Energien mittels eines PbSe-Detektors herangezogen.

Der Germanium-Filter (F) transmittiert nur die *idler*-Welle mit einer Wellenlänge im mittleren Infrarot-Bereich.

Am Ende der parametrischen Prozesse steht ein durchstimmbarer, vertikal (senkrecht zur Einfallsebene auf die Probe) polarisierter Infrarot-Impuls im Bereich zwischen 2500 bis 4000 cm^{-1} zur Verfügung. Die Impulse haben eine Dauer von ca. 4 ps und eine Einzelimpulsenergie zwischen 5 und 15 μJ .

5.4 Messaufbau und Detektion

Für die Experimente wurde ein Messaufbau entwickelt, der der Forderung zur Variation mehrerer Parameter für die einzelnen Messungen entspricht. Dabei erachtete es sich als zweckmäßig, Messungen in Transmission und Reflexion durchzuführen. Hierbei war es wichtig, dass für beide Bahnen die Parameter der Linsen und optischen Wege erhalten blieben.

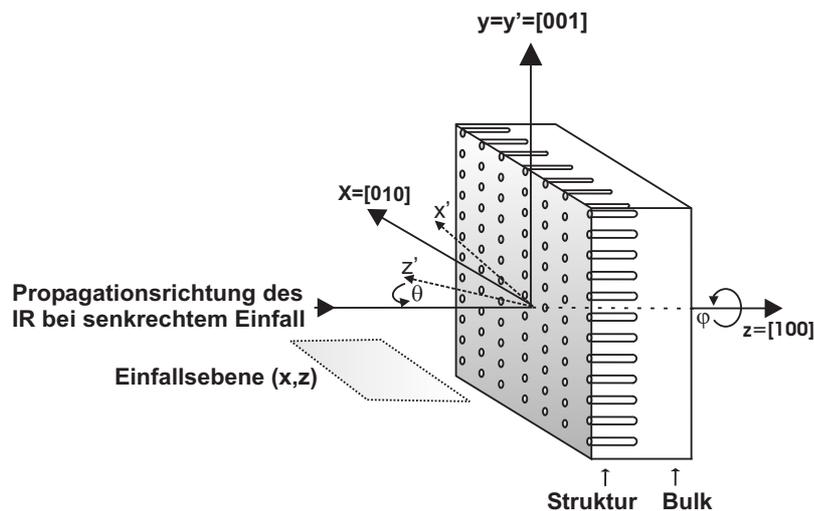


Abbildung 5.6: Definition der x , y , z -Koordinaten und Azimut- und Einfallswinkel bezüglich der Kristallobehfläche in der Einfallsebene

Der Aufbau eines Probentisches mit x -, y - und z -Verstellung (z -Ausbreitungsrichtung der Lichtwellen, x -Rechts-/Linksverschiebung und y -Höhenveränderung) ermöglichte eine exakte und definierte Positionierung der Probe. Zusätzlich zur linearen Verschiebung sollte die Probe um ihre eigene Achse (Azimutwinkel φ) drehbar und der Einfallswinkel θ variierbar sein (Abbildung 5.6). Dies wurde mit einem Drehtischaufbau, der für die beiden Drehrichtungen genauso wie für die Translationsverschiebungen jeweils mit einem Schrittmotor betrieben wird, realisiert.

Den gesamten Messaufbau mit zugehöriger Detektionsanordnung zeigt Abbildung 5.7. Die ZnSe-Sammellinse L1 ($f = 100$ mm) fokussiert den IR-Impuls auf die Probe. Die von der Probe transmittierten oder reflektierten Bündel werden von der Sammellinse L2 oder L3 ($f = 200$ mm) auf ein Rochon-Prisma, hier als Analysator, abgebildet. Auf diese Weise ist eine polarisationsaufgelöste Detektion der generierten Bündel möglich.

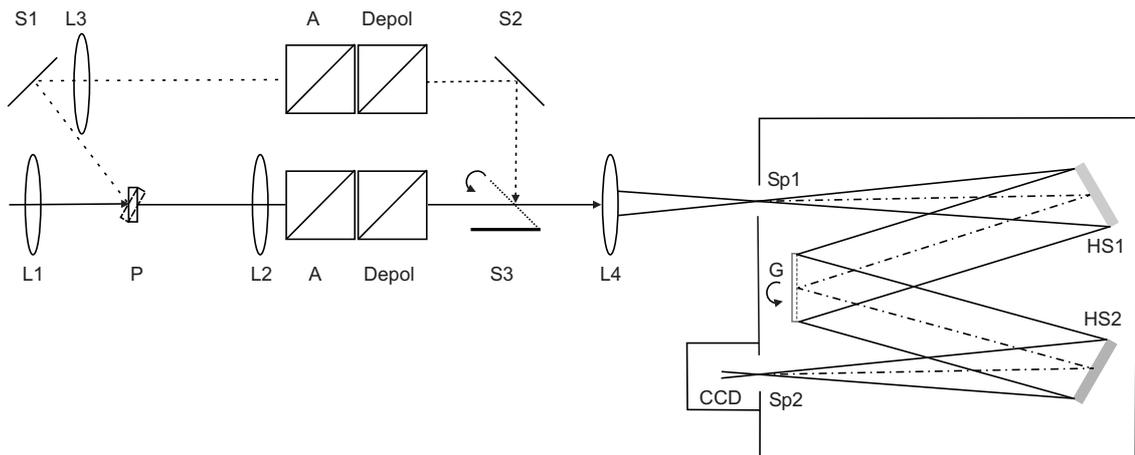


Abbildung 5.7: Messaufbau und Detektion

L1 ZnSe-Linse ($f=100$), P Probe, L2 und L3 Linsen, A- Rochon-Prisma als Analysator (5° , AR 450-630), Depol Depolarisator (AR 450-630), S1 bis S3 Umlenkspiegel für Reflexionsmessung (gestrichelte Linie), L4 Achromat (AR vis, $f=200$), Spektrometer: Sp1 Eintrittsspalt, Sp2 Austrittsspalt, HS1 und HS2 Hohlspiegel, G Gitter (150l/mm), CCD CCD-Kamera

Zum Ausgleich der Polarisationsabhängigkeiten des Gitterspektrometers und der Detektion befindet sich hinter dem Analysator ein Depolarisator im Strahlengang. Der an das Öffnungsverhältnis des Gitterspektrometers ($f = 640 \text{ mm}$, $f/5.7$) angepasste Achromat (L4) fokussiert das Bündel auf den Eintrittsspalt des Spektrometers. Das eintreffende Bündel tritt durch den Eintrittsspalt (Sp1) ein und wird durch den Hohlspiegel (HS1) in paralleles Licht umgewandelt. Das Gitter zerlegt das auftreffende Bündel in seine spektralen Anteile. Der Hohlspiegel (HS2) fokussiert das Bündel auf den Austrittsspalt. Hinter diesem befindet sich der Detektor. Das das Spektrometer durchlaufende Bündel wird mit einer CCD-Kamera detektiert.

Die eigentliche Detektor der hochempfindliche CCD-Kamera (Princeton Instruments) besteht aus einem Chip mit 1100×330 Pixel ($26,4 \text{ mm}$ Breite, $7,92 \text{ mm}$ Höhe) mit einer Größe von jeweils $24 \mu\text{m} \times 24 \mu\text{m}$ auf p-dotiertem Siliziumsubstrat (Angaben zur Kamera aus [Dat94]). Durch Kühlung der Kamera mit flüssigen Stickstoff auf -70°C wird das Dunkelstromrauschen auf ein Minimum reduziert.

5.4.1 Ausrichtung der Proben

Zur Untersuchung der Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel wurden die Proben jeweils zentrisch und in (100)-Kristallorientierung auf dem Proben­tisch gehalten.

Bei senkrechtem Einfall der Fundamentalen zur Kristalloberfläche entspricht dies der z-Achse des Laborkoordinatensystems, die in diesem Fall mit der kristallographischen Richtung [100] übereinstimmt. Die kartesische x- und y-Achse entsprechen den Kristallrichtungen [010] und [001]. Die Propagationsrichtung der Dritten Harmonischen stimmt bei Transmission mit der der Fundamentalen überein.

Eine Änderung des Einfallswinkels θ (Drehung der Probe um θ in der x-z-Ebene, y bleibt unverändert) zieht eine Änderung der Richtung des Einfallsbündels bezüglich der Kristallkoordinaten nach sich. Es gilt dann für die neuen Koordinaten:

$$\begin{aligned} x' &= x \cos \theta + z \sin \theta \\ y' &= y \\ z' &= -x \sin \theta + z \cos \theta \end{aligned}$$

Die dadurch entstehenden Auswirkungen auf das azimutale Verhalten der Dritten Harmonischen, deren Ursache im $\chi^{(3)}$ -Tensor liegen, müssen bei der Auswertung der Messergebnisse berücksichtigt werden. Zusätzliche Amplitudenfaktoren werden über die relative Größe dieser Elemente Aufschluss geben. Bei den Transmissionsmessungen in Abhängigkeit von θ wurden die Kristalle in beide Richtungen nach links (-) oder nach rechts (+) um die y-Achse gedreht. Für die Reflexionsmessungen wurde ein Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$ gewählt.

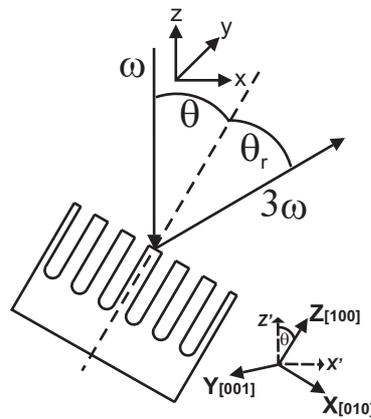


Abbildung 5.8: Schematische Darstellung der Bündelverläufe bei Drehung des Kristalls mit Bezeichnung der Koordinaten des Labor- bzw. Kristallsystems

Die exakte und präzise Ausrichtung der Proben auf ihre Kristallorientierung und Rotationsachse war kritisch zu justieren.

Die Kontrolle für einen exakt senkrechten Einfall der Fundamentalen bei $\theta = 0^\circ$ erfolgte mit dem Rückreflex. War dieser überlagert mit dem einfallenden Bündel, wurde diese Position als Nullposition für die Drehung der Probe um die y-Achse festgelegt.

Die Halterung hinsichtlich des Azimutwinkels war weniger kritisch, da die Probe um 360° gedreht wurde, und somit bei nicht genau senkrechter Halterung zu den Kristallachsen nur eine Verschiebung um diesen "Fehl"-Winkel in den Spektren auftrat. Aus den Spektren war dieser ersichtlich, so dass die Probe entweder gedreht oder die Messdaten um diesen Winkel korrigiert wurden.

Die Justiergenauigkeit der Proben hinsichtlich ihrer Ausrichtung ist mit einem Fehler von 1° behaftet. Amplitudenschwankungen sind auf die Imperfektion der Photonischen Kristalle und die Winkelfehler zurückzuführen.

5.4.2 Bestimmung der Fokusposition

Nach Ausrichtung der Probe auf ihre Nullstellung von θ und φ war ebenfalls die Bestimmung der genauen Fokusposition notwendig. Diese wurde mit einem so genannten z-Scan ermittelt. Hierdurch war gewährleistet, dass sich die Proben während der Messungen genau im Fokus befanden. Für den z-Scan wurde die Probe in Ausbreitungsrichtung des IR durch den Fokus gefahren.

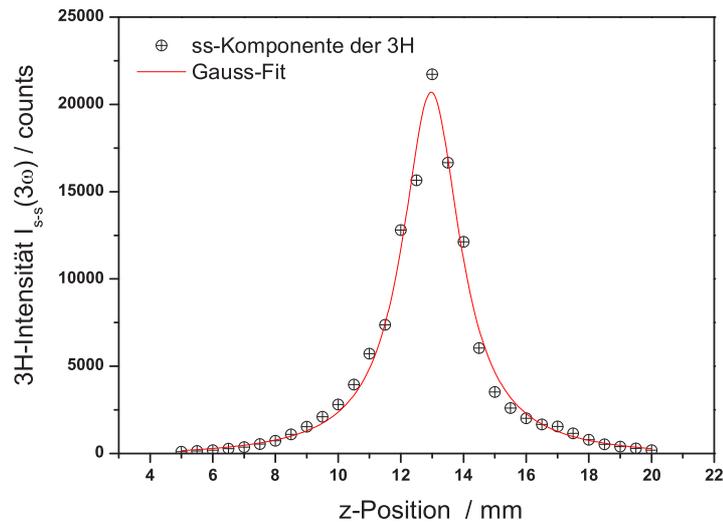


Abbildung 5.9: Beispiel einer Messung der Fokusposition mittels z-scan
 Probe Silizium-Kristall, $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Die Intensität der Dritten Harmonischen wurde in Abhängigkeit von der z-Position aufgetragen. An die erhaltenen Messwerte wurde eine Gauß-Funktion angepasst. Das Maximum der Kurve entspricht der jeweiligen z-Position für den Fokus. Für die Messungen wurden die Proben in die entsprechende Position gefahren.

5.4.3 Detektion nichtlinearer Prozesse

Für die Untersuchung der Erzeugung der Dritten Harmonischen in Photonischen Kristallen war es zunächst sinnvoll, zu prüfen, ob und mit welcher Genauigkeit mit der vorhandenen Detektionsanordnung nichtlineare Prozesse reproduzierbar sind.

Für dieses Experiment wurde der IR-Impuls im Bereich von $\tilde{\nu} = 3000 - 4000 \text{ cm}^{-1}$ durchgestimmt. Abbildung 5.10 zeigt für eine Messung am Silizium-Kristall die Abhängigkeit der Frequenz der Dritten Harmonischen von der des einfallenden Infrarot-Bündels. Die doppelten Messdaten im Bereich von $\tilde{\nu} = 3350 - 3450 \text{ cm}^{-1}$ stellen einen Überlapp der Frequenzen bei verschiedenen Gitterpositionen dar. Für die Detektion über den gesamten Frequenzbereich muss das Gitter im Spektrometer verstellt werden, so dass sich die frequenzabhängigen Messungen aus zwei Messungen zusammensetzen. Der Überlapp-Bereich wurde gewählt, um eine Mittelung der Daten bzw. einen fließenden Übergang der beiden Messreihen zu gewährleisten. Die vernachlässigbaren Abweichungen im genannten Frequenzbereich in Abbildung 5.10 lassen auf eine jeweils korrekte Gitterstellung im Spektrometer schließen.

Die lineare Regression liefert den erwarteten Anstieg von 3. Diese Art von Messung diente zur Bestimmung der Messgenauigkeit der Durchstimmbarkeit des Infrarot.

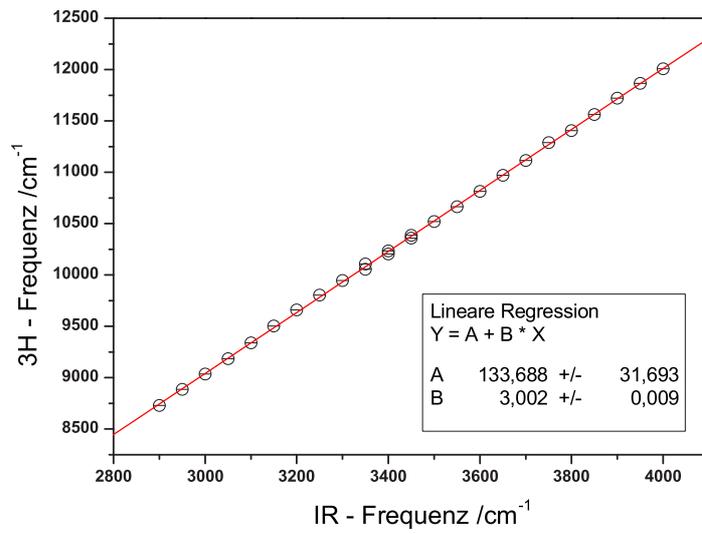


Abbildung 5.10: Abhängigkeit der Frequenz der Dritten Harmonischen von der Frequenz der Fundamentalen; Probe Silizium-Kristall

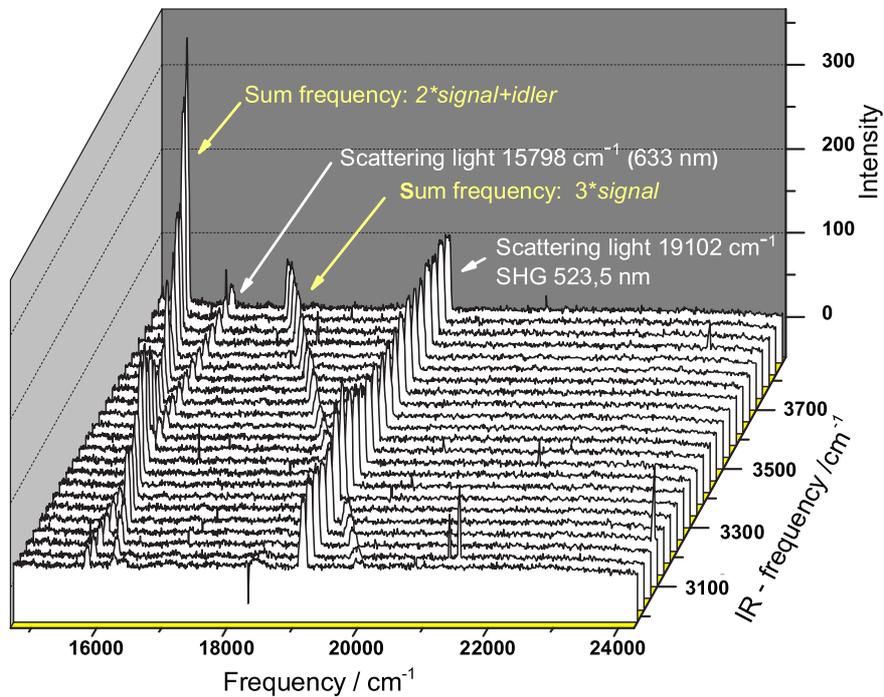


Abbildung 5.11: Detektion von Summenfrequenzen und Streulicht; Probe Silizium-Kristall

Der beschriebene Detektionsaufbau in Verbindung mit dem verwendeten Gitter ermöglichte

es, neben der Dritten Harmonischen, auch die Laser-Fundamentale, Summenfrequenzen von *signal* und *idler* in verschiedenen Variationen und vorhandenes Streulicht simultan spektral zu selektieren. Abbildung 5.11 zeigt eine typische Messung, bei der das Infrarot in einem Bereich von 2900 bis 4000 cm^{-1} durchgestimmt wurde. Zu erkennen sind die sich verändernden Summenfrequenzen und das spektral konstante Streulicht, das auf den Eintrittsspalt fällt.

Die Möglichkeit, die Fundamentale über einen weiten Bereich durchzustimmen, diene als Kontrollelement, die Linien im Spektrum von Streulicht und Prozessen 3. Ordnung zu unterscheiden.

5.4.4 Polarisationsaufgelöste Detektion

Für das Experiment steht ein vertikal polarisierter Infrarot-Impuls zur Verfügung. Aus der Theorie ist bekannt, dass die Dritte Harmonische eine vertikal und eine horizontal polarisierte Komponente bezüglich der Eingangspolarisation besitzt. Das Experiment erlaubt eine simultane Detektion beider Polarisationskomponenten der TH.

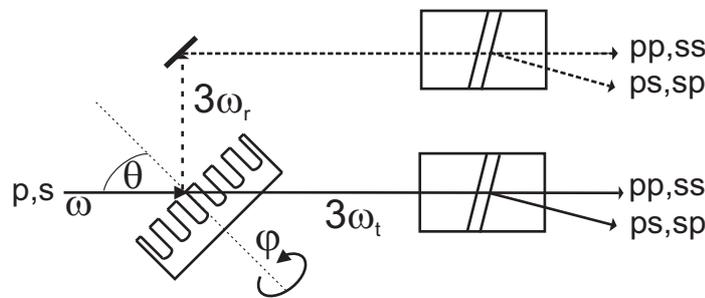


Abbildung 5.12: Schematische Darstellung der Polarisationsauflösung;
Transmission durchgezogene und Reflexion gestrichelte Linie

Bei allen Experimenten bezieht sich die Polarisation des einfallenden IR-Impulses auf die Einfall- bzw. Reflexionsebene des Bündels bezüglich des Kristalls (x - z -Ebene). Für den Analysator, der aus dem THG-Bündel eine Polarisation auswählt, gilt dasselbe. So bezeichnet ein s -polarisiertes IR-Bündel, eine linear senkrechte Polarisation zur Einfallsebene. Analoges gilt für die p -Polarisation (\vec{E} parallel zur Einfallsebene). Die in den Abbildungen und Graphen verwendeten Bezeichnungen der Polarisationsrichtungen werden wie folgt benutzt. Es bedeuten jeweils bei pp und ps bzw. ss und sp das Erstgenannte die Eingangspolarisation der Fundamentalen und das Zweitgenannte den Polarisationsanteil der detektierten Dritten Harmonischen (Abbildung 5.12).

In Abbildung 5.13 ist die Eintrittsspaltebene des Gitterspektrometers mit den beiden Bündeln der TH dargestellt. Das vom Analysator aufgespaltene TH-Bündel wird über die Linse in die Spaltebene des Spektrometers fokussiert. Der Divergenzwinkel, α , des Analysators beträgt $0,5^\circ$. Mit der Linse der Brennweite $f = 200$ und der Beziehung

$$\tan\alpha = \Delta x/f$$

berechnet sich der Abstand der Bündel in der Spaltebene zu 1,745 mm. Da das Spektrometer eine spektrale 1:1-Abbildung macht, muss der Abstand der Bündel auf dem CCD-Chip genauso groß sein wie die Größe in der Eintrittsspaltebene.

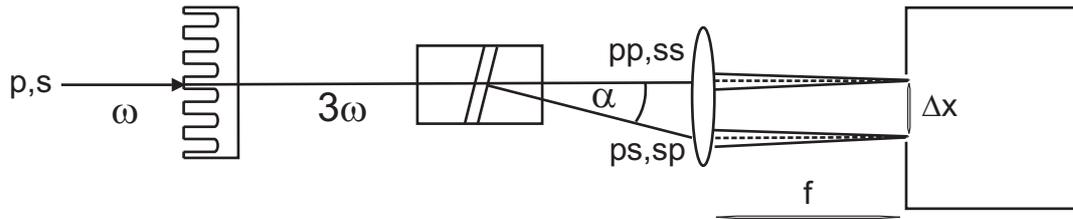


Abbildung 5.13: Darstellung der Spaltebene

Zur Messung von Polarisationsabhängigkeiten der Dritten Harmonischen von der Eingangspolarisation der Fundamentalen wurde ein $\lambda/2$ -Plättchen vor der Probe in den Strahlengang positioniert. So war beispielsweise eine Änderung der Polarisation der Fundamentalen von vertikal auf horizontal möglich.

Abbildung 5.14 zeigt die Dritten Harmonischen auf dem CCD-Chip in Abhängigkeit der Eingangspolarisation des IR. Im oberen Bild ist die Fundamentale (IR) s- ($\lambda/2$ -Plättchen auf Null gestellt) und im mittleren Bild p-polarisiert ($\lambda/2$ -Plättchen um 45° gedreht). Der Chip zeigt jeweils gleiche Intensitäten und nur die ordentlichen Komponenten der Dritten Harmonischen. Bei exakt vertikal oder horizontal polarisierten IR-Impulsen sind die Intensitäten der außerordentlichen Anteile der TH zu schwach, um auf dem Chip dargestellt zu werden. Beim unteren Bild ist das $\lambda/2$ -Plättchen in $22,5^\circ$ -Stellung, so dass die Fundamentale genau gleiche Anteile beider Polarisierungen enthält. Die Intensitäten beider Anteile der TH sind ebenfalls gleich und geringer, als die der oberen Darstellungen auf dem Chip. Hier ist die Wirkungsweise des Analysators, der die Polarisationsanteile in Intensitätsverhältnisse umwandelt, erkennbar. Der Abstand der Bündel auf dem Chip beträgt 73 Pixel, dies entspricht 1,752 mm. Dieser Wert stimmt gut mit dem zuvor berechneten überein.

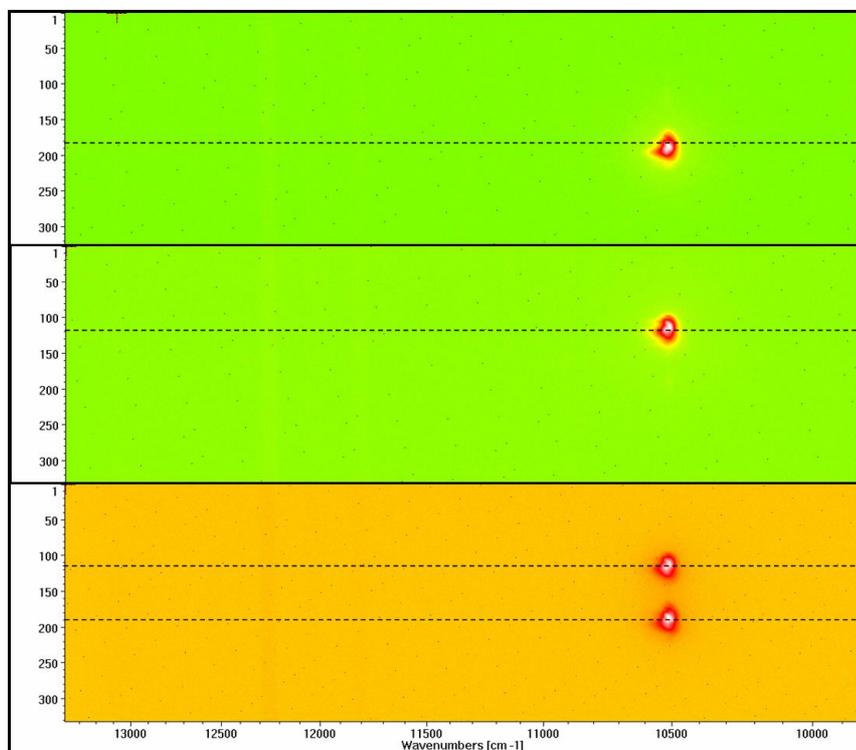


Abbildung 5.14: Darstellung der Polarisation der Dritten Harmonischen auf dem CCD-Chip

Die detektierten Signale auf dem Chip werden in Streifen eingeteilt, und anschließend wird über die gesamte Chipbreite integriert. Somit erhält man die Spektren, die zur Auswertung herangezogen wurden.

Für die Untersuchung der Abhängigkeit der Polarisations-Komponenten der TH von der Eingangspolarisation wurde das $\lambda/2$ -Plättchen in 5° -Schritten gedreht. Erwartungsgemäß ergibt sich in Transmission sowie in Reflexion bei Drehung der Polarisation der Fundamentalen um 360° eine Intensität der Dritten Harmonischen mit gegenläufigem Modulationsverhalten beider Polarisationsanteile. Stellvertretend für alle Messungen mit Photonischen Kristallen und dem Bulk-Silizium sei folgende Polarisations-Abhängigkeit eines Photonischen Kristalls mit quadratischer Gitterstruktur in Transmission gezeigt.

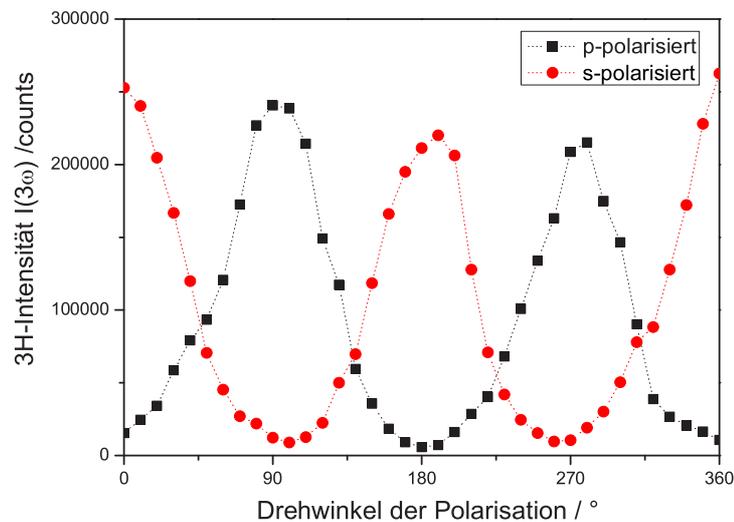


Abbildung 5.15: Abhängigkeit der Polarisation der Dritten Harmonischen von der Eingangspolarisation; Probe PC mit quadratischem Gitter (A2-207); $\tilde{\nu} = 3700 \text{ cm}^{-1}$

Vergleicht man Abbildung 5.15 mit den Chip-Aufnahmen, so ist deutlich erkennbar, dass beispielsweise bei einer senkrechten Eingangspolarisation der parallel polarisierte Anteil der Dritten Harmonischen ein absolutes Minimum hat und umgekehrt. Enthält die Eingangspolarisation beide Polarisierungen, dann verschieben sich die Anteile der Intensitäten der Dritten Harmonischen entsprechend. Bei gleichen Anteilen paralleler und senkrechter Eingangspolarisation, jeweils bei 45° , sind auch die beiden Polarisations-Komponenten der Dritten Harmonischen gleich groß; die Darstellung auf dem Chip (5.14) verdeutlicht dies ebenfalls.

5.4.5 Spektrale Eigenschaften

Der hier eingesetzte Detektor besitzt im gesamten sichtbaren Spektralbereich eine Quanteneffizienz von 70%. Zusätzlich treten Verluste am Eintrittsspalt des Spektrometers und am Gitter auf.

Für die Messungen wurde ein Gitter mit 150 Linien pro Millimeter (150 l/mm) genutzt. Die Breite des Eintrittsspalt muss auf die Größe bzw. Pixel des CCD-Chips angepasst sein, um eine optimale Empfindlichkeit des Detektors zu erreichen. Ein Pixel auf dem Chip entspricht $25 \mu\text{m}$. Zur Bestimmung des Auflösungsvermögens der Detektionsanordnung bei verschiedenen

Spaltbreiten wurde die Dritte Harmonische in Abhängigkeit von der Breite des Eintrittspalts gemessen. Für dieses Experiment wurde mit einer Fundamentalen von $\tilde{\nu} = 3300 \text{ cm}^{-1}$ eingestrahlt und die Dritte Harmonische bei $\tilde{\nu} = 9900 \text{ cm}^{-1}$ generiert. Entsprechend wurde die Gitterstellung für den Spektralbereich von 8230 bis 10562 cm^{-1} gewählt. Abbildung 5.16 zeigt die Spektren; die Laserfundamentale bei $\tilde{\nu} = 9551 \text{ cm}^{-1}$ ist ebenfalls schwach zu erkennen.

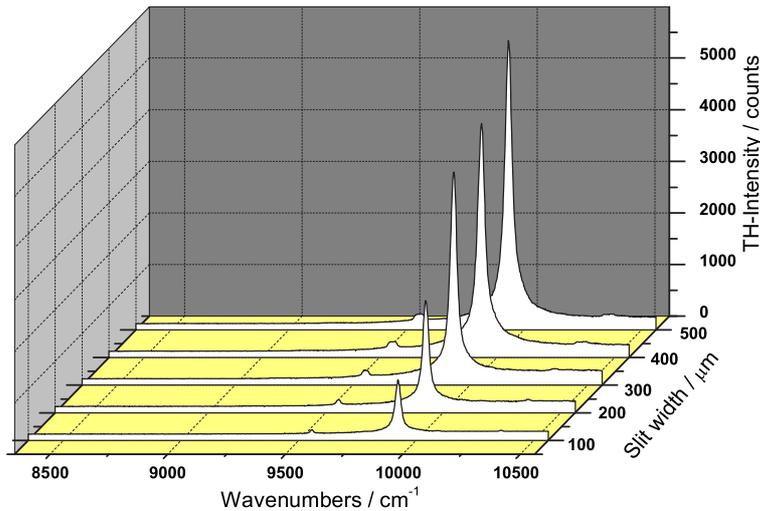


Abbildung 5.16: Detektion der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Spaltbreite; Probe PC mit quadratischem Gitter

An jedes gemessene Spektrum wurde eine Gauß- bzw. Lorentz-Funktion gelegt und somit die Zentralfrequenz (x_c), die Halbwertsbreite (w) und die Fläche bzw. Amplitude (A) des Peaks bestimmt. Die Parameter der beiden Anpassungen unterscheiden sich nur in ihren Amplitudenwerten, da bei der Anpassung mit der Lorentz-Funktion über einen breiteren x-Achsenbereich integriert wird. Die Wahl der Anpassung war abhängig von der Peakform. Für die Messungen der Abhängigkeit von der Spaltbreite erwies sich der Fit über die Lorentz-Funktion als geeigneter. Die Werte der Laserfundamentalen, ihre Halbwertsbreiten (FWHM_{LF}) bzw. die Frequenzen wurden ebenfalls ermittelt. In Abbildung 5.17 sind die Anpassungen für die verschiedenen Spaltbreiten dargestellt.

Die Intensitäten bzw. Amplituden der detektierten Dritten Harmonischen und die Halbwertsbreiten (FWHM) nehmen mit kleiner werdender Breite des Eintrittspaltes ab; eine spektrale Verschiebung ist nicht zu beobachten. Die Schwankungsbreiten der Amplituden werden ebenfalls immer kleiner. Je größer der Eintrittsspalt um so mehr Licht fällt auf den Detektor und um so größer sind die Fehler. Die Zentralfrequenz der Dritten Harmonischen ist etwas größer als die erwarteten 9900 cm^{-1} . Ursache hierfür ist, dass nicht exakt bei 3300 cm^{-1} sondern bei ca. 3304 cm^{-1} eingestrahlt wurde. Das entsprechende Auflösungsvermögen für die verschiedenen Spaltbreiten ist Tabelle 5.1 zu entnehmen.

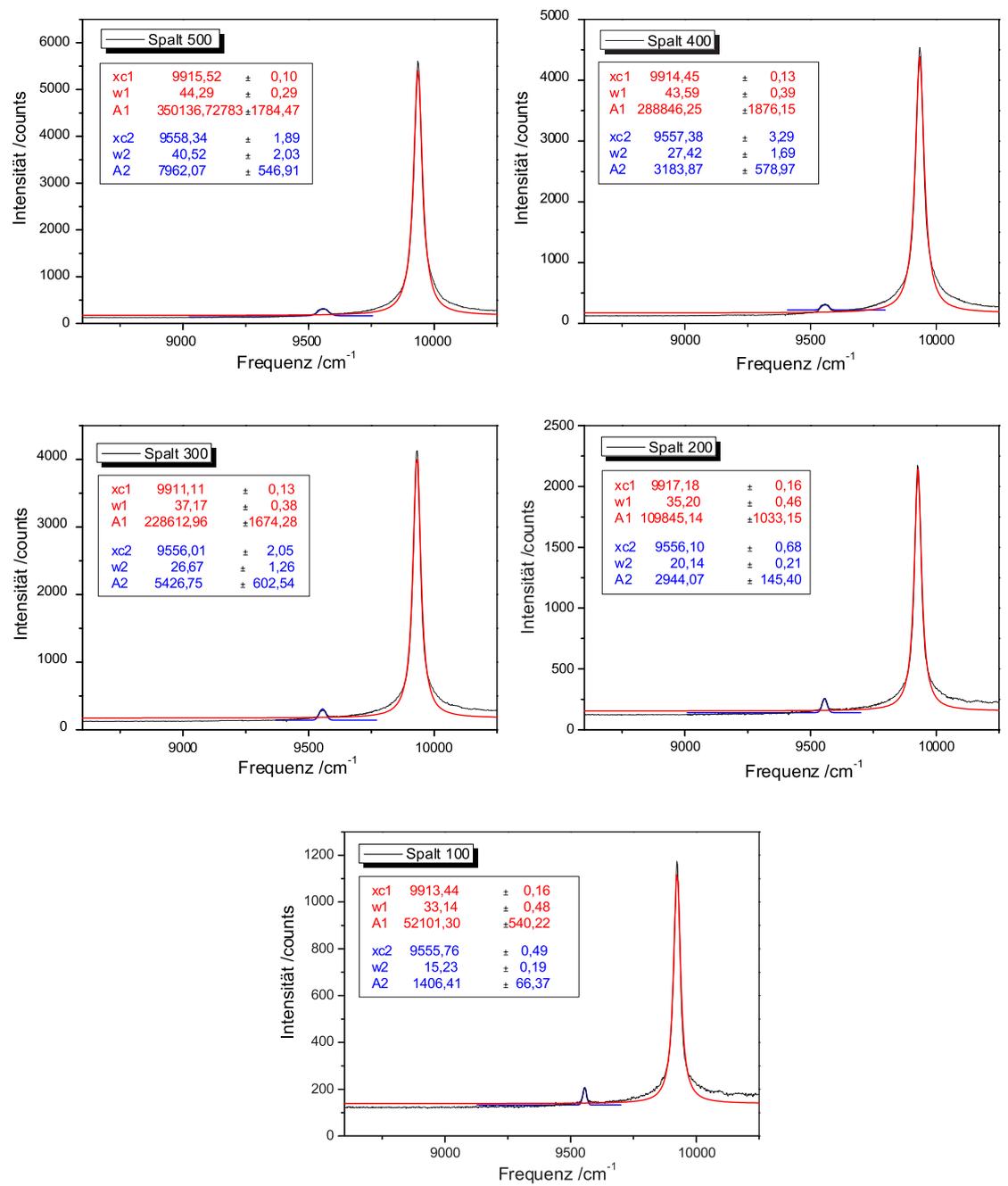


Abbildung 5.17: Anpassung der Spektren; rot - Lorentz-Fit an die Dritten Harmonischen; blau - Gauß-Fit an die Laserfundamentale

Tabelle 5.1: Auflösungsvermögen bei variablen Breiten des Eintrittsspalt

Spaltbreite	Pixel auf Chip	Intensität/counts gemessen	FWHM in cm^{-1}	FWHM _{LF} in cm^{-1}	Auflösungsvermögen/ cm^{-1}
500 μm	20	5605	44,29	40,52	46,52
400 μm	16	4583	43,59	27,42	37,09
300 μm	12	4130	37,17	26,67	27,84
200 μm	8	2174	35,20	20,14	18,09
100 μm	4	1174	33,14	15,23	8,55

Für eine optimale spektrale Auflösung der Anordnung wurde für die weiteren Messungen eine typische Breite des Eintrittsspalt von 200 μm gewählt. Einige Experimente erforderten allerdings aufgrund der zu geringen Intensität des Messsignals Spaltbreiten bis zu 500 μm . Da jedoch die Dritte Harmonische eindeutig spektral von anderen Frequenzen selektiert werden konnte, sind auch diese Ergebnisse aussagekräftig. Im Bereich extrem kleiner Amplituden war allerdings eine Bestimmung des Signals nicht möglich, da dies im Rauschen unterging.

5.5 Verarbeitung der Messdaten

5.5.1 Abschätzung der Messgenauigkeit und Normierung der Messdaten

Alle Messungen, die in dieser Arbeit durchgeführt wurden, sind relative Messungen. Bevor die gemessenen Daten der Experimente für die Auswertung und Interpretation herangezogen wurden, wurden sie auf ihre Reproduzierbarkeit und Genauigkeit geprüft. Dies diente gleichzeitig dazu, die während der Experimente aufgetretenen Instabilitäten des Lasers und die damit verbundenen Schwankungen des Infrarots und der Intensitäten der Dritten Harmonischen abzuschätzen. Die Bestimmung der Streuung um einen mittleren Intensitätswert, eine mittlere Zentralfrequenz sowie einer mittleren Halbwertsbreite der gemessenen TH erfolgte mit Wiederholungsmessungen bei feststehenden Parametern. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 5.18 dargestellt. Hier wurde mit einer Eingangsfrequenz von $\nu = 3400 \text{ cm}^{-1}$ eingestrahlt, die Spaltbreite betrug $200 \text{ }\mu\text{m}$.

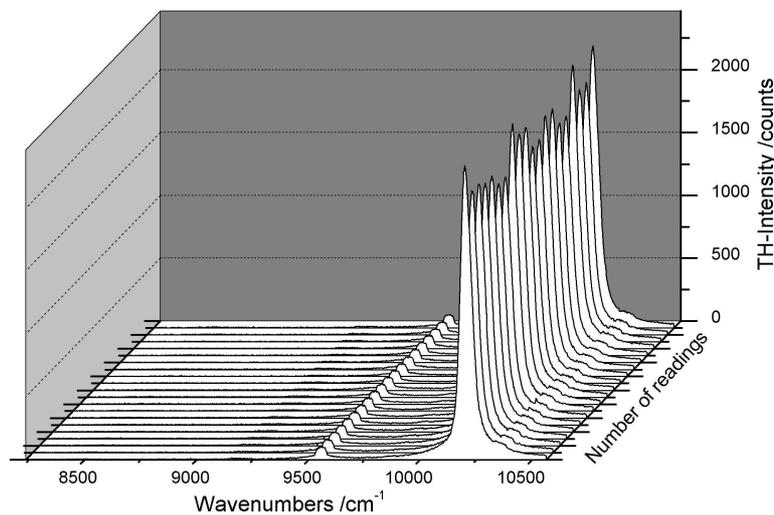


Abbildung 5.18: 3D-Plot einer Messreihe zur Bestimmung der Intensitätsschwankung der Dritten Harmonischen aufgrund von Laserinstabilitäten; Probe: PC mit quadratischem Gitter

Jedes Spektrum in Abbildung 5.18 wurde mit einer Gauß-Kurve angepasst. Über die erhaltenen Amplituden, Zentralfrequenzen und Halbwertsbreiten wurde gemittelt und daraus der relative Fehler bestimmt. Die Abbildungen 5.19, 5.20 und 5.21 zeigen die Ergebnisse dieser Auswertung. Für die Amplituden konnte eine Schwankungsbreite von maximal 5% der Intensitäten der 3H ermittelt werden.

Die Schwankungen der Frequenzen sind abhängig von der Position der Zentralfrequenz im Spektrum, die durch die Gauß-Anpassung erfolgt. Es ist eine Streuung um den Mittelwert 10400 cm^{-1} von $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$ zu erkennen. Die Position der Zentralfrequenz ist gleichzeitig ein Kontrollelement für die Qualität der Messung. Auch die Halbwertsbreiten schwanken um einen Mittelwert von $40,1 \text{ cm}^{-1}$ mit maximal $\pm 1,5 \text{ cm}^{-1}$. Diese Auswertung zeigt, dass sich die Schwankungen für vorgenannte Messung in einem vernachlässigbaren Bereich bewegen. Die Auswertung anderer weniger stabiler Messungen weisen dagegen Schwankungsbreiten von bis zu $\pm 5 \text{ cm}^{-1}$ auf. Es wird daher für alle Messreihen ein Toleranzbereich von $\pm 5 \text{ cm}^{-1}$ für die Halbwertsbreiten und die Lage der Zentralfrequenzen der Dritten Harmonischen angenommen.

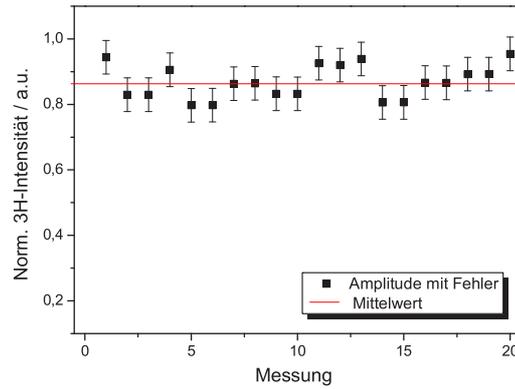


Abbildung 5.19: Schwankung der Amplituden der Dritten Harmonischen

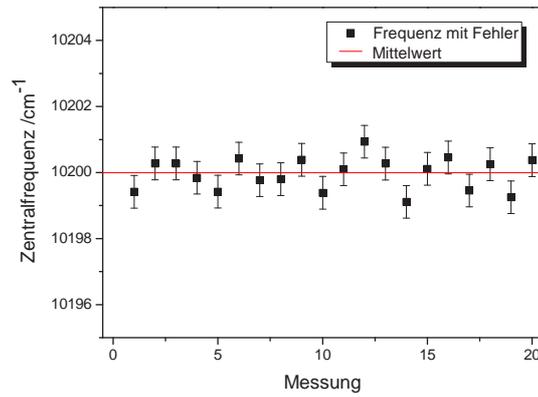


Abbildung 5.20: Schwankung der Zentralfrequenz der Dritten Harmonischen

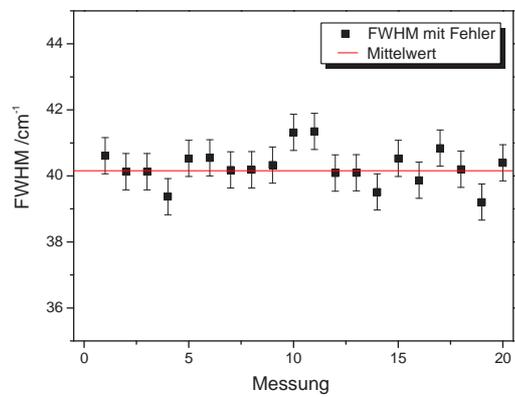


Abbildung 5.21: Schwankung der Halbwertsbreiten der Dritten Harmonischen

Die Überprüfung der Fluktuation von Halbwertsbreite, Amplituden und Zentralfrequenzen ist Voraussetzung für die weitere Bewertung der Messdaten. Für die Auswertung wurden lediglich Messdaten, die innerhalb der oben bestimmten Fehlergrenzen liegen, berücksichtigt. Messdaten, die außerhalb dieses Bereichs lagen, wurden verworfen. Im folgenden werden daher nur Ergebnisse solcher Anpassungen diskutiert.

Aufgrund der simultanen Messung beider Polarisationsanteile der Dritten Harmonischen enthält jede Messung zwei Spektren. Exemplarisch sei hier ein Beispiel für die Anpassung von Gauß-Fits an die gemessenen Spektren für die ordentliche und außerordentliche TH-Komponente gezeigt.

Die erhaltenen Werte, FWHM und Amplitude bzw. Fläche, entsprechen jeweils w und A in Abb. 5.22 und sind Ausgangswerte für weitere Anpassungen. x_c ist die Zentralfrequenz der Dritten Harmonischen.

Die berechneten Werte aus den Gauß-Anpassungen, die Halbwertsbreite (w) und die Wellenzahl (x_c) der Dritten Harmonischen, wurden für jedes Spektrum verglichen und die Standardabweichungen bestimmt.

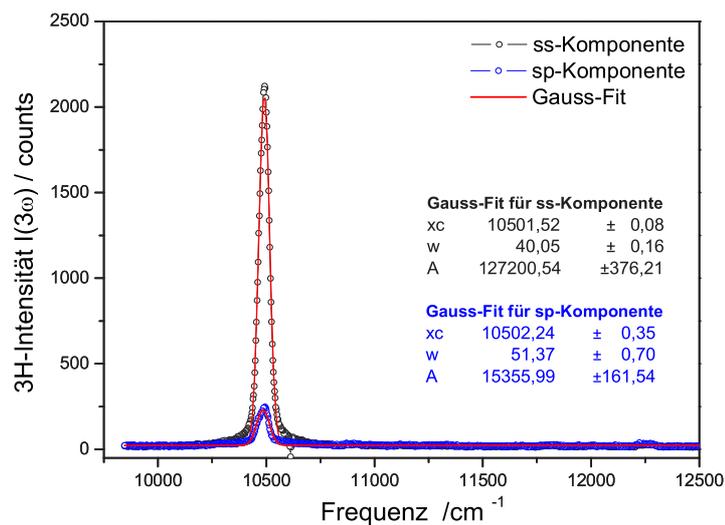


Abbildung 5.22: Beispiel eines Spektrums einer Messreihe mit Gauß-Fit
Probe: Silizium-Kristall, $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Abbildung 5.23 zeigt die Streuung der Zentralfrequenzen und Abbildung 5.24 die der Halbwertsbreiten um einen Mittelwert für beide Anteile der Dritten Harmonischen von vorgenannter Messung. Alle Werte sind den Gauß-Anpassungen entnommen.

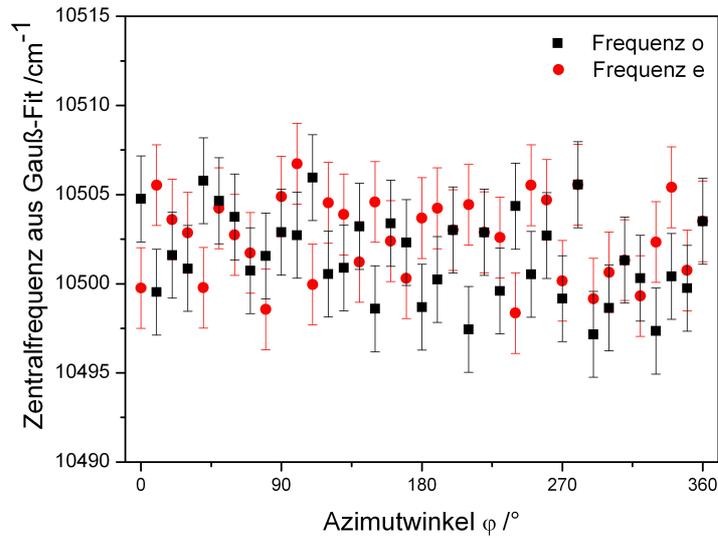


Abbildung 5.23: Abhängigkeit der Zentralfrequenzen ($3\tilde{\nu}$) der TH vom Azimutwinkel Probe: Silizium-Kristall, $\tilde{\nu}=3500\text{ cm}^{-1}$

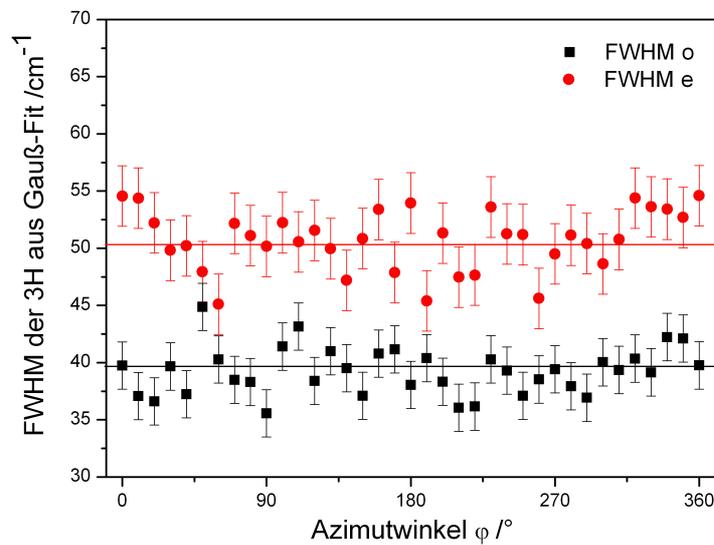


Abbildung 5.24: Abhängigkeit der FWHM der TH vom Azimutwinkel Probe: Silizium-Kristall, $\tilde{\nu}=3500\text{ cm}^{-1}$

Die Frequenzen der ordentlichen Komponente schwanken um den Mittelwert $\tilde{\nu} = 10501,5\text{ cm}^{-1}$ mit einem Fehler von $\pm 2,4\text{ cm}^{-1}$. Die Frequenzen der außerordentlichen Komponente liegen teilweise über denen der ordentlichen Komponente. Hier beträgt der Mittelwert $\tilde{\nu} = 10502,35\text{ cm}^{-1}$ und die mittlere Abweichung $\pm 2,26\text{ cm}^{-1}$. Andere Messreihen ergeben analoge Schwankungsbreiten. Beide Werte liegen jedoch im Toleranzbereich von $\pm 5\text{ cm}^{-1}$ für die Lage der Zentralfrequenzen der Dritten Harmonischen.

Bei Betrachtung der Halbwertsbreiten fällt ebenfalls jeweils eine Streuung um einen Mittelwert auf. Allerdings zeigen hier die außerordentlichen Komponenten im Mittel eine größere Halbwertsbreite als die ordentlichen Komponenten der Dritten Harmonischen. Andere Messungen bestätigen ebenso eine um 10 bis 15 cm^{-1} größere FWHM der außerordentlichen gegenüber der ordentlichen Komponente. Die Ursache für die breiteren Linien liegt in den wesentlich kleineren Amplituden und dem bestehenden Offset. Die Streuung um die mittlere FWHM von 50,75 cm^{-1} für diese Messung der außerordentlichen Komponente beträgt $\pm 2,65 \text{ cm}^{-1}$. Die FWHM der ordentlichen Komponente schwankt mit $\pm 2,07 \text{ cm}^{-1}$ um einen mittleren Wert von 39,23 cm^{-1} . Auch hier bewegen sich die Werte im vorgenannten Fluktuationsbereich.

Zur Kompensation von Intensitätsschwankungen der Fundamentalen bzw. Ausfällen von Laserschüssen wurden anschließend die gemessenen Amplituden auf die jeweilige Energie der Dritten Harmonischen normiert. Dafür wurde die Energie der Fundamentalen für jedes Spektrum während der Messung detektiert, wobei über die Integrationszeit (Anzahl der Laserschüsse N pro Sekunde, im Mittel 60 Schüsse/Sekunde) summiert und der Mittelwert gebildet wird. Diese Werte erlauben eine Berechnung der mittleren Energie der Fundamentalen sowie der Dritten Harmonischen:

$$\overline{E^{IR}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^n (E_i^{IR}) \quad (5.5)$$

$$\overline{E^{IR^3}} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^n (E_i^{IR})^3 \quad (5.6)$$

Alle Messdaten wurden nun durch den mit Gleichung (5.6) berechneten Energiemittelwert der Dritten Harmonischen dividiert. Somit konnte davon ausgegangen werden, dass für die folgenden Auswertungen für jede Messreihe die eingestrahlte Fundamentalenergie immer gleich und dadurch die einzelnen Daten vergleichbar sind.

5.5.2 Bestimmung der Bündeldurchmesser des IR und der Dritten Harmonischen

Für die Bestimmung der Fokaldurchmesser des IR-Impulses und der generierten Dritten Harmonischen werden, wie in der Strahlen- und Wellenoptik üblich, Gaußsche Bündel (Anhang C) angenommen. Ein Gauß-Strahl zeichnet sich durch ein transversales Intensitätsprofil gemäß einer Gauß-Kurve (die Amplitude des elektromagnetischen Feldes nimmt mit dem Abstand zur Ausbreitungsachse z exponentiell ab) aus.

Der Bündelquerschnitt der generierten Dritten Harmonischen ist auf dem CCD-Chip zu sehen. Abbildung 5.25 zeigt den Querschnitt eines generierten TH-Bündels bei $\tilde{\nu} = 9000 \text{ cm}^{-1}$. Der rotationssymmetrische Querschnitt sowie die Abnahme der Intensität von innen nach außen sind gut erkennbar und rechtfertigen die Annahme eines Gaußschen Bündels.

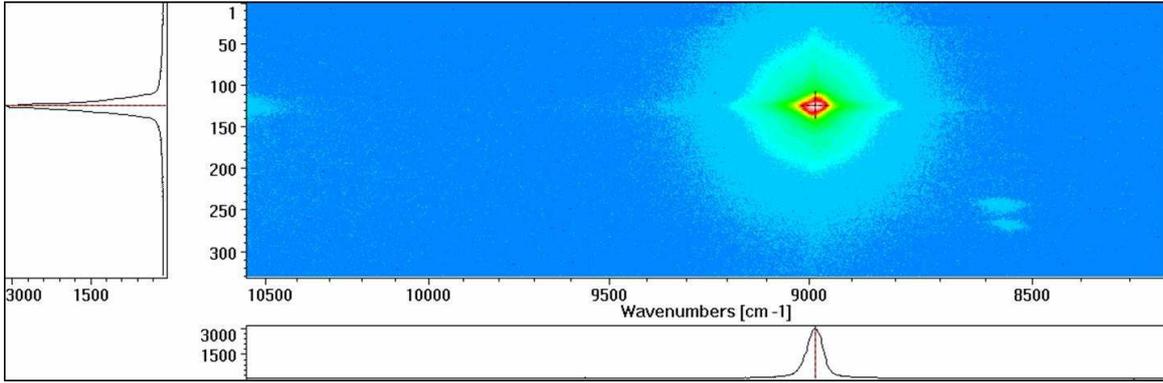


Abbildung 5.25: Bündelquerschnitt der Dritten Harmonischen

Für die Berechnung der Bündeltaile und des Bündeldurchmessers an einer beliebigen Stelle z der Dritten Harmonischen wird davon ausgegangen, dass diese ebenfalls in z -Richtung propagiert. Aus der Gleichung der Intensität für Gaußsche Bündel (C.2) ergibt sich für die Intensität der Dritten Harmonischen:

$$I^{3H}(r, z) = (I(r, z))^3 = I_0^3 \left(\frac{w_0}{w(z)} \right)^6 \left(\exp \left(-\frac{2r^2}{w(z)^2} \right) \right)^3 \quad (5.7)$$

Aus Gleichung (5.7) folgt, dass die Intensitätskurve der in der Probe generierten Dritten Harmonischen schmäler und somit auch die Bündeltaile im Fokus kleiner werden muss als die des eingestrahlteten Infrarot-Impulses. Geht man zur Berechnung der Bündeltaile von Gleichung (C.11) aus und berücksichtigt, dass die Wellenlänge der Dritten Harmonischen um einen Faktor 3 kleiner als die der Fundamentalen ist, folgt für die Bündeltaile der Dritten Harmonischen

$$w_0^{3H} = \sqrt{\frac{z_0 \cdot \lambda}{\pi \cdot 3}} = \frac{w_0}{\sqrt{3}} \quad (5.8)$$

Für die Rayleigh-Länge ergibt sich unter Berücksichtigung der Wellenlänge keine Änderung.

$$z_0^{3H} = \frac{3\pi (w_0^{3H})^2}{\lambda} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} = z_0 \quad (5.9)$$

Mit diesen Angaben berechnet sich der Bündelradius der Dritten Harmonischen an einer beliebigen Position z zu:

$$w^{3H}(z) = \frac{w_0}{\sqrt{3}} \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{w_0^2\pi} \right)^2} \quad (5.10)$$

für $z \gg z_0$ gilt

$$w^{3H}(z) = \frac{w_0}{\sqrt{3}} \frac{z\lambda}{w_0^2\pi} = \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{z\lambda}{w_0\pi} \quad (5.11)$$

Die Ermittlung des Fokaldurchmessers bzw. der Bündeltaile des Infrarot-Impulses erfolgte mit Hilfe der Klängenmethode (*moving edge*). Dazu wurde eine bewegliche Klinge senkrecht

zur Ausbreitungsrichtung des IR-Bündels hinter der Probe (hier Chloroform CHCl_3) durch das generierte 3H-Bündel gefahren. Die detektierte Intensität der Dritten Harmonischen wurde als Funktion der Klappenposition x_k gemessen und aufgetragen. Es kann hieraus die lokale Energieverteilung in der Ebene der Klinge berechnet werden.

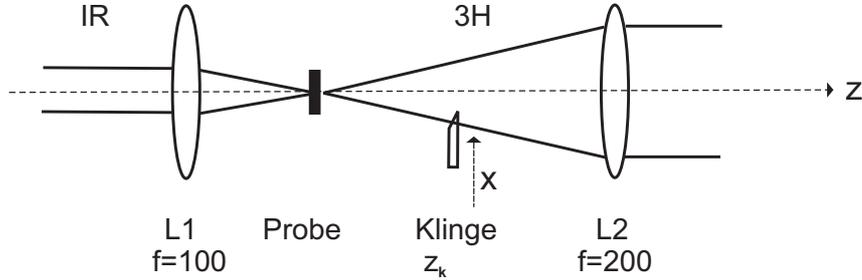


Abbildung 5.26: Klappenmethode und Verlauf des IR- und 3H-Bündels

Die Intensität des IR-Bündels ist unter Annahme eines Gauß-Bündels durch Gleichung (C.2) gegeben. Vereinfachend und mit $r^2 = x^2 + y^2$ kann geschrieben werden:

$$I(x, y) \propto I_0 \exp\left(-\frac{2(x^2 + y^2)}{w^2}\right) \quad (5.12)$$

Da jedoch die Dritte Harmonische detektiert wurde, muss für die Intensität nach (5.7) und mit obigen Vereinfachungen folgendes geschrieben werden

$$I^{3H}(x, y) \propto (I(x, y))^3 \propto I_0^3 \exp\left(-\frac{6(x^2 + y^2)}{w^2}\right) \quad (5.13)$$

Die Integration der Intensität über den Bündelquerschnitt ergibt die Leistung

$$P^{3H} = \int_0^\infty \int_0^\infty I_0^3 \exp\left(-\frac{6(x^2 + y^2)}{w^2}\right) dx dy = \frac{1}{12} I_0^3 \pi w^2 \quad (5.14)$$

Für die Berechnung der Transmission eines Gauß-Strahles in Abhängigkeit der Klappenposition x_k dient das Integral

$$T(x_k) = \frac{1}{P^{3H}} \int_0^{x_k} \int_0^\infty I_0^3 \exp\left(-\frac{6(x^2 + y^2)}{w^2}\right) dx dy \quad (5.15)$$

Blockt nun eine in x-Richtung (über y wird voll integriert) in das Bündel hinein bewegte Klinge den Strahl bis zur Breite x_k ab, ergibt sich für die detektierte Transmission folgendes:

$$T(x_k) = \frac{6}{\pi w} \sqrt{\frac{\pi}{6}} \int_0^{x_k} \exp\left(-\frac{6x^2}{w^2}\right) dx = \text{Erf}\left[\frac{\sqrt{6}x_k}{w}\right] \quad (5.16)$$

Analytische Lösungen für die Fehlerfunktion (Erf) sind tabelliert. Die Fehlerfunktion liefert u. a. einen Wert bei 0,84 und 0,16 der Intensität. Der Strahlradius an der Stelle z ergibt sich aus der Differenz dieser beiden Werte [Eic04]. Dies entspricht einem Bündelradius der Dritten Harmonischen am Ort der Klinge von $w^{3H}(z_k) = 3,101$ mm (siehe Abbildung 5.27). Mit dieser Methode lässt sich an jeder beliebigen Position der Bündelradius bestimmen.

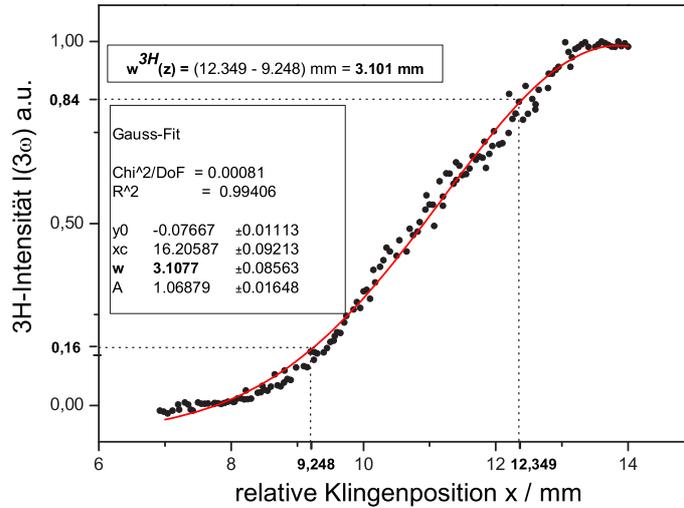


Abbildung 5.27: Messung des Fokaldurchmessers mittels Klingenmethode;
Probe CHCl_3 ; $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Zusätzlich wurde an die Messdaten eine Gauß-Kurve angepasst. Die volle Halbwertsbreite ergibt einen Bündelradius an der Stelle z_k von $w^{3H} = (3,1077 \pm 0,0856) \text{ mm}$. Man erkennt leicht die gute Übereinstimmung beider Methoden. Für $z = 0$ lässt sich nun die Bündeltaile des IR durch Umstellen der Gleichung (5.11) errechnen. Daraus folgt eine Bündeltaile des Infraroten im Fokus von $(27,40 \pm 0,75) \mu\text{m}$. Dieser Wert wurde durch wiederholtes Messen bestätigt. Je nach Wellenlänge des IR gab es entsprechende Abweichungen. Das IR hatte in Abhängigkeit von der verwendeten Wellenlänge einen durchschnittlichen Fokaldurchmesser von 54 bis 60 μm auf der Probe.

Für die Berechnung des Bündeldurchmessers der Dritten Harmonischen auf der Sammellinse L2 wurden folgende Überlegungen angestellt. Nach der Probe divergiert das Bündel und trifft auf die Linse. Dabei ist es wichtig, zu gewährleisten, dass der Durchmesser der Linse ausreichend für den Bündeldurchmesser der generierten Dritten Harmonischen ist, damit das gesamte Bündel auf den Eingangsspalt des Spektrometers abgebildet werden kann (Abbildung 5.26).

Nach Einsetzen der ermittelten Größen in Gleichung (5.11) ($w_0 = 27,40 \mu\text{m}$ für die errechnete Strahltaile des IR und $z = 195 \text{ mm}$ (Abstand Probe - Linse L2)) ergibt sich ein Bündelradius der Dritten Harmonischen von $(3,71 \pm 0,05) \text{ mm}$ auf der Linse. Man sieht hieraus auch, je kleiner die Bündeltaile in der Probe, umso schneller bzw. mit umso höherer Divergenz läuft das Bündel auseinander. In Abhängigkeit der Wellenlänge, vergrößert oder verkleinert sich der Bündelradius der Dritten Harmonischen entsprechend des Abstandes z von der Bündeltaile.

Kapitel 6

Messergebnisse und Diskussion

Für die Auswertung und Interpretation der experimentellen Ergebnisse wurden die erhaltenen Daten jeder Messreihe zunächst auf den Mittelwert der ordentlichen Komponente normiert, ausgenommen Amplitudenvergleiche verschiedener Messreihen. Sämtliche Anpassungsparameter stellen daher relative Werte dar. Die gesamte Auswertroutine wird beispielhaft an kristallinem Silizium (Silizium-Wafer ohne lithographische Vorstrukturierung) dargestellt. Entsprechend wurde mit allen Messreihen verfahren. Falls Messreihen eine andere Vorgehensweise notwendig machten, ist dies im Text explizit erwähnt und erläutert.

Ziel der Experimente war, Unterschiede im Verhalten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von quadratischer und hexagonaler Struktur Photonischer Kristalle bzw. kristallinem Silizium herauszustellen. Modelle zur Beschreibung der Ergebnisse werden vorgestellt und bewertet.

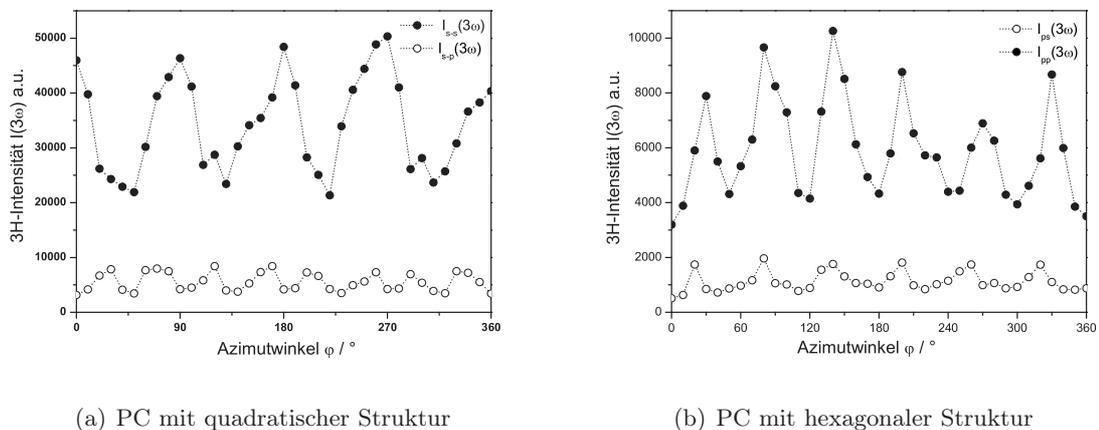


Abbildung 6.1: Azimutale Abhängigkeit der Dritten Harmonischen bei verschiedenen Photonischen Kristallen

Betrachtungen zur Absorption

Im Wellenlängenbereich der durchgeführten Experimente werden die Dritten Harmonischen im Absorptionsbereich des Siliziums generiert. Silizium ist ab einer Wellenlänge von 1140 nm transparent. Für die Diskussion der Ergebnisse muss die jeweilige Absorptionslänge bekannt sein bzw. die Absorption der Dritten Harmonischen im Kristall berücksichtigt werden. Der Absorptionskoeffizient α ist über das Absorptionsgesetz definiert,

$$I(l) = I_0 e^{-\alpha l}$$

das die Intensität $I(l)$ des Lichts als Funktion der Eindringtiefe l in den Kristall beschreibt. Hieraus ergibt sich als Maß für die charakteristische Eindringtiefe die Absorptionslänge

$$l_\alpha = \alpha^{-1}$$

Es handelt sich hierbei um die Länge, bei der die Intensität des einfallenden Lichts auf $1/e$ abfällt. Für die TH im Bereich von 833 bis 1111 nm, variiert die Absorption von $2,70 \cdot 10^{-4}$ bis $6,47 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}^{-1}$, und die entsprechenden Absorptionslängen im Material in Abhängigkeit von der Wellenlänge von 3,7 mm bis 15,46 μm . Die Bestrahlung der Proben erfolgte meistens bei einer Frequenz von 3500 cm^{-1} . Die Dritte Harmonische wird dann bei $\tilde{\nu} = 10500 \text{ cm}^{-1}$ bzw. $\lambda = 952 \text{ nm}$ generiert. Daraus folgt eine zu berücksichtigende Absorptionslänge l_α von 63,7 μm .

In Reflexion entsteht die Dritte Harmonische bei den vorgestellten Experimenten ausschließlich in der Struktur der Kristalle nahe der Oberfläche, deren Tiefe durch die Wechselwirkungslänge der Fundamentalen bzw. der *escape depth* der generierten TH bestimmt wird. In diesem Fall sind die Absorptionslängen um mindestens eine Größenordnung höher als die Wechselwirkungslänge der Fundamentalen, so dass bei diesen Experimenten die Absorption eine untergeordnete Rolle spielt.

Die Lösung (3.51) der Differentialgleichung (3.48) beschreibt allgemein das Feld der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Absorption, dem *phase mismatch* und der Kristalllänge. Für eine typische Länge der Kristalle von 508 μm , die im Experiment verwendet wurden und dem aus der Berechnung der Wechselwirkungslänge bekannten $\Delta k = 0,7 \mu\text{m}^{-1}$ ist die Abhängigkeit der Intensität der TH von der Absorption in Abbildung 6.2 dargestellt.

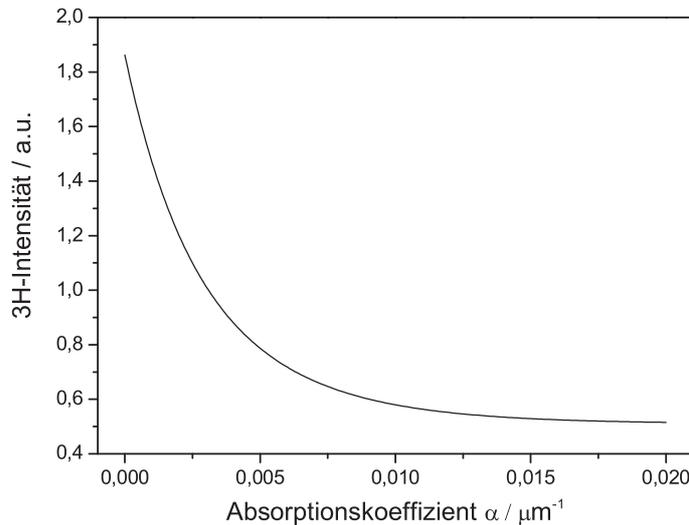
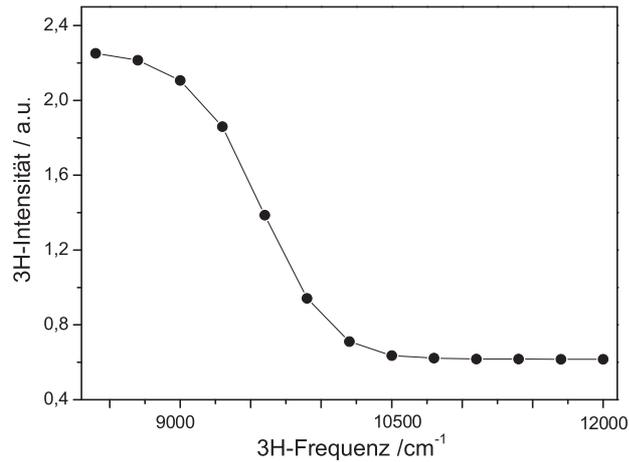


Abbildung 6.2: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Absorption α

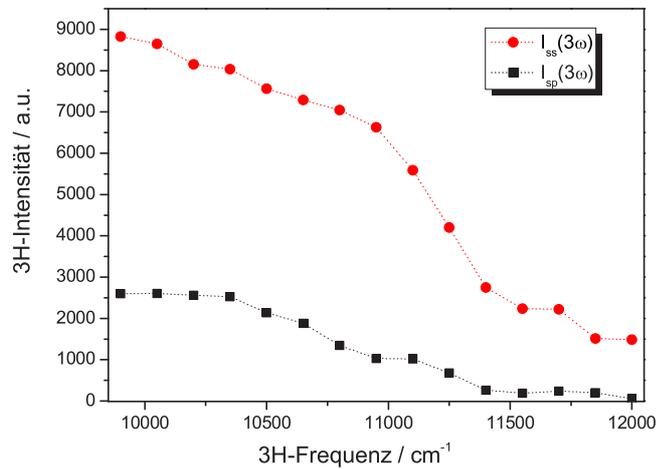
Die Aussagen aus dieser Abhängigkeit sind bedeutend für die Experimente, bei denen die Fundamentale über einen Frequenzbereich durchgestimmt wird. Für Diskussionen von frequenzab-

hängigen Messungen müssen die gemessenen Intensitäten um den jeweiligen Absorptionsanteil korrigiert werden.

Abbildung 6.3 zeigt die Abhängigkeit der Intensität Dritten Harmonischen von ihrer Frequenz für den Silizium-Wafer. Die Absorption ist wellenlängenabhängig und nimmt für Silizium im sichtbaren Spektralbereich zu. Durchgeführte Experimente, bei denen die Fundamentalfrequenz über einen Bereich von $\nu = 3300 - 4000 \text{ cm}^{-1}$ gestimmt wurde, bestätigen die Theorie.



(a) Theorie



(b) Experiment

Abbildung 6.3: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der ihrer Frequenz $\tilde{\nu}$

Δk ist ebenfalls abhängig von der Frequenz und zusätzlich vom Brechungsindex. Mit steigender Frequenz wird der Brechungsindex größer. Abbildung 6.4 zeigt für den im Experiment genutzten Frequenzbereich die Änderung *phase mismatch* Δk .

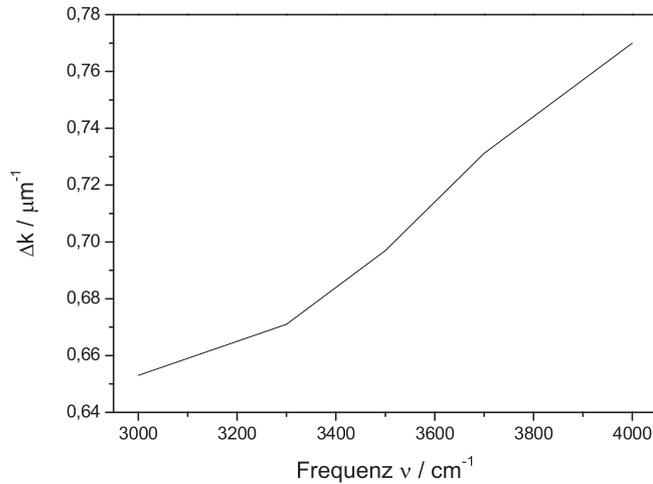


Abbildung 6.4: Δk in Abhängigkeit von der eingestrahelten Frequenz

Für die Erzeugung der Dritten Harmonischen bei $\tilde{\nu} = 10500 \text{ cm}^{-1}$ sind für das kristalline Silizium $\Delta k = 0,7 \mu\text{m}^{-1}$ und die Absorption $\alpha = 0,0157 \mu\text{m}^{-1}$ bekannt. Mit dem Vorfaktor aus Gleichung (3.52) als Konstante ($\chi^{(3)}$, Frequenz und Intensität der Fundamentalen ändern sich während der Propagation nicht) kann die generierte Intensität der 3H für den zu untersuchenden Silizium-Kristall dargestellt werden (Abbildung 6.5).

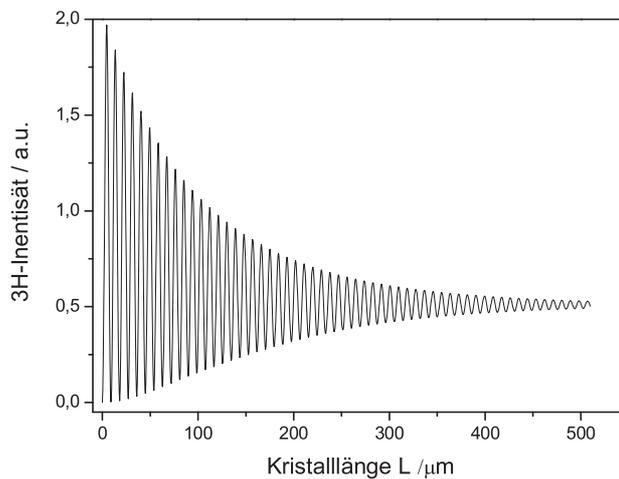


Abbildung 6.5: Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Kristalllänge L

Die theoretische Kurve enthält keinerlei Strukturmerkmale. Es ist ersichtlich, dass trotz Absorption und der damit verbundenen Absorptionslänge am Kristallende Dritte Harmonische emittiert wird. Die Intensität stellt sich asymptotisch auf einen konstanten Wert ein. Die Oszillation ist Ausdruck für die Phasenbeziehungen der im Kristall propagierenden Felder.

6.1 Kristallines Silizium

Erste Experimente wurden an den unstrukturierten Silizium-Wafern, den Silizium-Kristallen mit einer Dicke von $508\ \mu\text{m}$ durchgeführt. Die Messung der azimutalen Abhängigkeit der Dritten Harmonischen in Transmission bei senkrechtem Einfall der p-polarisierten Fundamentalen auf die Kristalloberfläche ergab die in Abbildung 6.6 dargestellte Abhängigkeit.

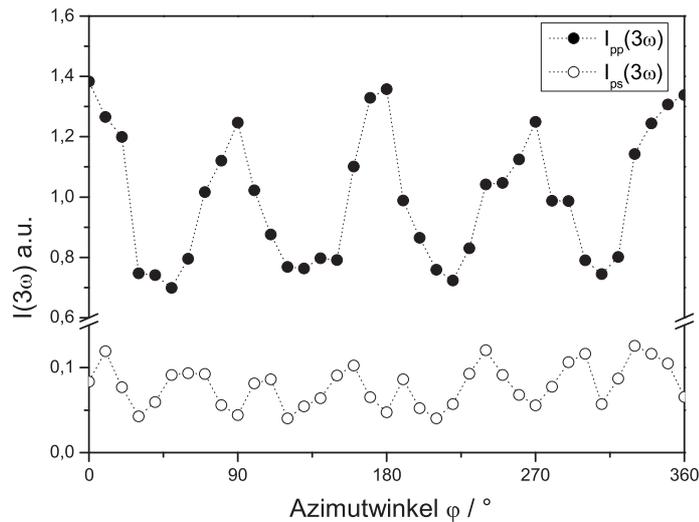


Abbildung 6.6: Abhängigkeit der 3H vom Azimutwinkel in Transmission
Einfallrichtung senkrecht zur Oberflächennormalen;
Probe: Silizium-Wafer, $\tilde{\nu}=3500\ \text{cm}^{-1}$

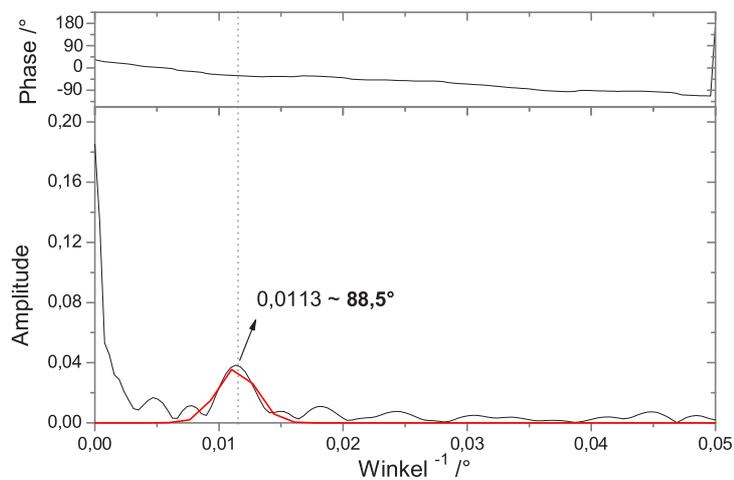


Abbildung 6.7: FFT-Plot der pp-Komponente der TH

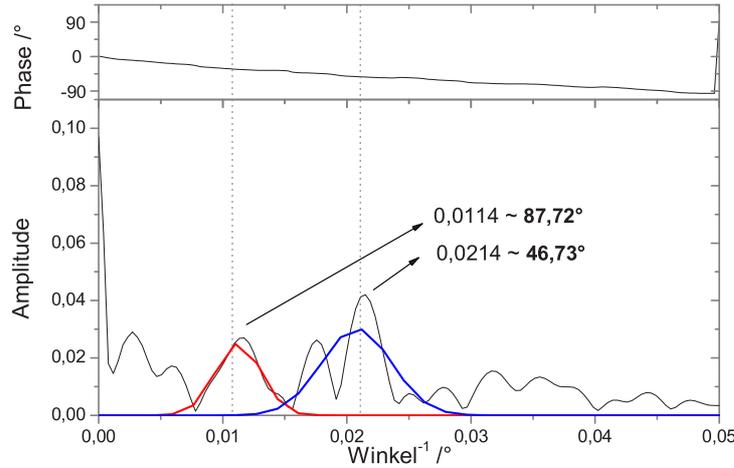


Abbildung 6.8: FFT-Plot der ps-Komponente der TH

Die Fouriertransformation (FFT *Fast Fourier Transformation*) in den Abbildungen 6.7 und 6.8 lieferten für beide Polarisationsanteile der Dritten Harmonischen Phasen- und Amplituden- und somit Symmetrie-Informationen der gemessenen Kurven. Man erhält hieraus Aussagen über die Periodizität des Systems.

Die Plots zeigen für die pp-Komponente der TH ca. eine 90° -Symmetrie. Dies entspricht der 4-Zähligkeit. Bei der ps-Komponente tritt zusätzlich zur 90° - eine 45° -Symmetrie auf. Aus der Phaseninformation ergibt sich, dass beide um $22,5^\circ$ phasenverschoben sind. Dies erklärt die 8-Zähligkeit für die außerordentliche TH-Intensität.

Eine erste Anpassung der Messergebnisse soll nach den Gleichungen (3.73) und (3.74) erfolgen. Aus den Graphen in Abbildung 6.6 werden dafür die Parameter C und D aus den Faktoren C^2 , $4CD$ und $2D^2 + C^2$ für die pp-Anteile und $\frac{C^2}{2}$ für die ps-Anteile der Dritten Harmonischen bestimmt. Die Berechnung der Amplituden erfolgt aus der Differenz von Maximum und Minimum geteilt durch 2, während die Konstante den Mittelwert der Messdaten darstellt.

$$C^2 = \frac{x_{max} - x_{min}}{2} \quad (6.1)$$

$$4CD = \frac{x_{max} - x_{min}}{2} \quad (6.2)$$

$$2D^2 + C^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad (6.3)$$

$$\frac{C^2}{2} = \frac{x_{max} - x_{min}}{2} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad (6.4)$$

Mit der Bestimmung von C und D aus den Messkurven erhält man die Startwerte für die Kurvenanpassungen.

Die Ausführungen in Punkt 3.4.5 definieren ganz klar, welche Bedingungen für die jeweilige Modulation gelten müssen. Es ergibt sich hier für den pp-Anteil ein Wertepaar $C < D$. Die Ergebnisse zeigt Abbildung 6.9.

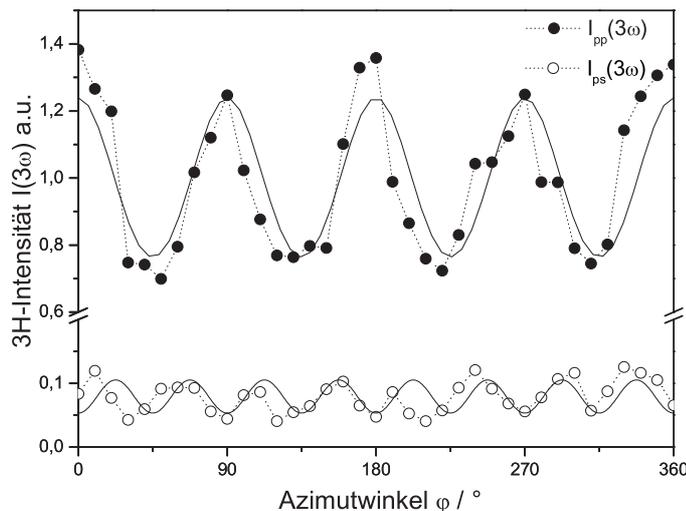


Abbildung 6.9: Abhängigkeit der 3H vom Azimutwinkel in Transmission mit den entsprechenden theoretischen Kurven (durchgezogene Linien) Probe: Silizium-Wafer, $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Die manuell berechneten Werte stimmen, Rundungsfehler vernachlässigt, mit den Parametern der Anpassfunktionen überein. Bei der ps-Komponente wurde noch ein Offset-Term hinzugefügt, dessen Startwert für die Anpassung den Messdaten entnommen wurde. Das Verhältnis der $\chi^{(3)}$ -Elemente und der Anisotropie-Parameter σ lassen sich nun nach (3.71), (3.72) und (3.66) aus den C - und D -Parametern bestimmen. Für die Anisotropie ergibt sich damit ein Wert von $\sigma = 0,4297$.

Die Ergebnisse bestätigen die in der Literatur beschriebenen Abhängigkeiten bei senkrechtem Einfall der Fundamentalen auf die Kristalloberfläche auch für den Infrarot-Bereich. Es besteht Übereinstimmung sowohl der Messkurven mit der erwarteten 4-fach bzw. 8-fach Symmetrie des kubischen Silizium-Kristalls als auch der bestimmten Anisotropie für (100)-Silizium mit dem in der Literatur angegebenen Wert $\sigma = 0,43$ [Mos90].

Werden nun die bekannten Werte für Δk und α bei einer Fundamentalfrequenz von $\tilde{\nu} = 3500 \text{ cm}^{-1}$ und die ermittelten $\chi^{(3)}$ -Elemente in die Lösung (3.51) der in Punkt 3.4.4 diskutierten Differentialgleichung eingesetzt und diese damit um die Strukturmerkmale des Siliziums in Abhängigkeit des Azimutwinkels ergänzt, erhält man, von Amplitudenfaktoren abgesehen, eine Übereinstimmung mit dem Experiment (Abbildung 6.10).

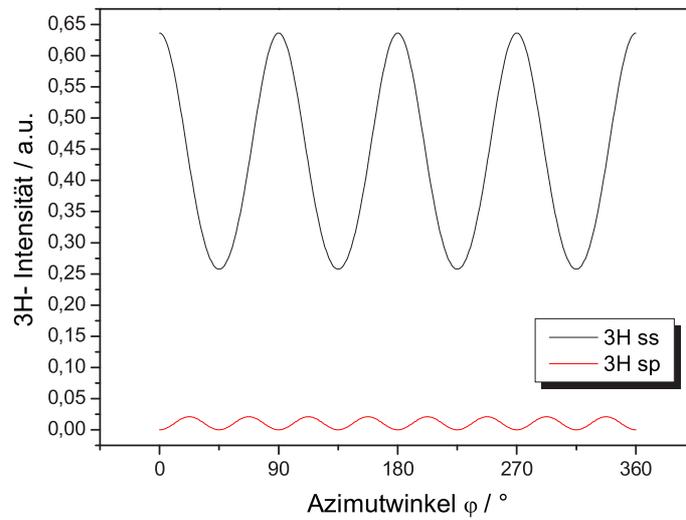


Abbildung 6.10: Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel in Transmission nach Gleichung (3.51)

Das Reflexionsexperiment einer s-polarisierten Fundamentalen unter einem Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$ ergab analoge Kurven und Anpassungen. C und D wurden wieder nach den Gleichungen (6.2) und (6.3) für den ss- bzw. sp-Anteil der Dritten Harmonischen manuell berechnet, wobei ebenfalls für den sp-Anteil ein Offset-Term hinzugefügt werden musste. Die experimentellen Werte stimmen mit der theoretischen Anpassung überein.

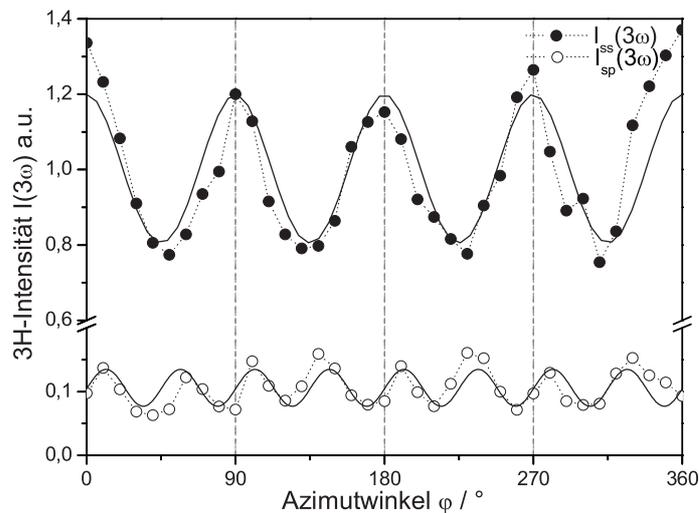


Abbildung 6.11: Abhängigkeit der 3H vom Azimutwinkel in Reflexion bei einem Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$ mit den entsprechenden theoretischen Kurven (durchgezogene Linien)
Probe: Silizium-Wafer, $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Die für die Reflexion empirisch bestimmte Anisotropie ist mit $\sigma = 0,3611$ kleiner als bei der Transmissionsmessung.

Auffallend ist, dass die außerordentlich gegenüber der ordentlich polarisierten TH-Komponente um $\Delta\varphi = 12^\circ$ phasenverschoben ist. Der interne Winkel für die Fundamentale im Kristall liegt bei $\theta_i = 8,36^\circ$. Für die Fundamentale kommt es zu einer Änderung der Kristallorientierung und damit zu zusätzlichen Symmetrie-Beiträgen von $\chi^{(3)}$.

Die Effekte bei nicht senkrechtem Einfall der Fundamentalen auf die Kristalloberfläche sind noch deutlicher in Transmission. Die ordentlich polarisierten Komponenten zeigten das gleiche Verhalten wie oben beschrieben. Die 8-fach Modulation der sp- bzw. ps-Anteile ist ebenfalls zu sehen, es zeigt sich jedoch neben der Phasenverschiebung eine zusätzliche periodische Änderung der Amplitude. Diese Periode ist abhängig von der Drehrichtung des Kristalls (links (+) oder rechts (-)). Aus Symmetriegründen der Kristallstruktur kann dies auch erwartet werden. In den Abbildungen 6.12a und 6.12b ist das entsprechende Verhalten mit den Fit-Kurven dargestellt.

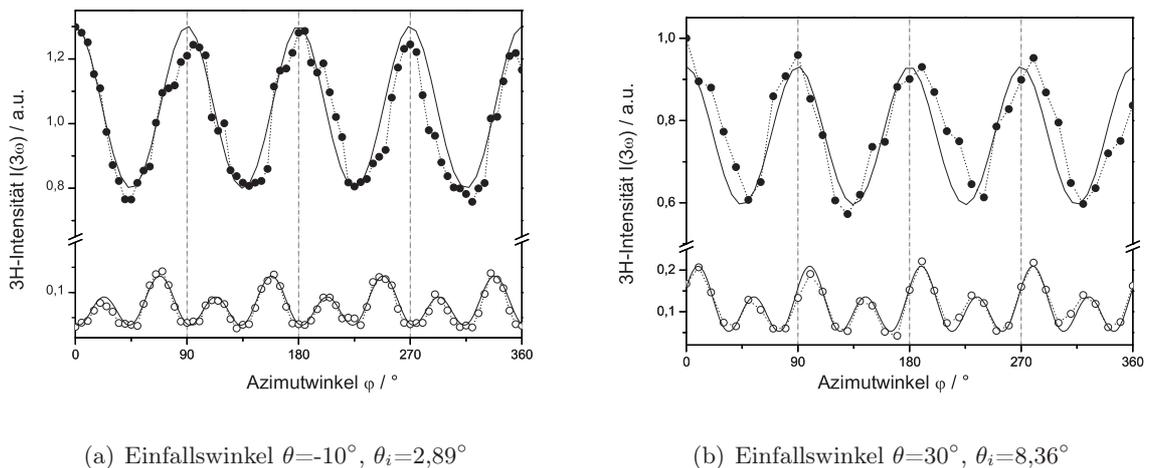


Abbildung 6.12: Abhängigkeit der 3H vom Azimutwinkel in Transmission bei verschiedenen Einfallswinkeln θ mit den entsprechenden theoretischen Kurven (durchgezogene Linien)
Fundamentale s-polarisiert; Probe: Silizium-Wafer, $\tilde{\nu} = 3500 \text{ cm}^{-1}$

Grundsätzlich zeigen die Messungen, dass eine Änderung des Einfallswinkels nur Einfluss auf die außerordentlich polarisierten Komponenten der Dritten Harmonischen hat. Die ordentlichen Komponenten erfahren keine Modulation ihrer Amplitude. Betrachtet man das Kristallsystem, so ist dies leicht verständlich. Für die ordentlichen Polarisationsanteile bleiben die Polarisations-Verhältnisse unverändert. Die geometrischen und somit die Symmetrie-Verhältnisse der Kristallstruktur ändern sich gleichermaßen für die einfallenden und austretenden Bündel, so dass das Verhalten der TH in Abhängigkeit von φ sich nicht ändert. Bei den außerordentlichen Polarisationsanteilen der TH sind die einfallenden und austretenden Bündel senkrecht zueinander polarisiert. Die Änderung der Kristallorientierung verursacht eine zusätzliche Polarisations-Komponente in z-Richtung (Propagationsrichtung der Wellen). Dies verursacht die Modulation der Amplituden, wobei die Periode um 90° bzw. 45° erhalten bleibt.

Zu bemerken ist allerdings, dass bei Reflexion die beobachtete Modulation nicht auftritt. Die relativ kleine effektive Wechselwirkungslänge von ca. $1,5 \mu\text{m}$ ist im Gegensatz zu den Wechselwirkungslängen bei Transmission ($514 \mu\text{m}$ bei $\theta = 30^\circ$ und $509 \mu\text{m}$ bei $\theta = 10^\circ$) nicht ausreichend, um eine Modulation der Amplituden auszubilden.

Die Phasenverschiebung der beiden TH- Komponenten zueinander verkleinert sich mit kleinerem Einfallswinkel, bei $\theta = -10^\circ$ beträgt sie $\Delta\varphi = 3^\circ$ und bei $\theta = 30^\circ$ ebenfalls wie im Reflexionsexperiment $\Delta\varphi = 12^\circ$. Die internen Winkeln θ_i entsprechen bis auf kleine Abweichungen dem Phasenshift. Der Phasenshift ist als Indikator für einen nicht senkrechten Einfall der Fundamentalen auf die Kristalloberfläche zu verstehen. Δk ist von der eingestrahlten Frequenz bzw. von den Brechungsindizes abhängig und hat keinen Einfluss auf den Phasenshift bzw. die Modulation. Die Ursachen dafür sind demzufolge nur in den $\chi^{(3)}$ -Elementen zu suchen.

Die aufbereitete Theorie zur Beschreibung der Felder der Dritten Harmonischen muss um den von Null verschiedenen Einfallswinkel erweitert werden. Erste Experimente zur Variation des Einfallswinkels wurden durchgeführt und sind im Punkt 6.2.3 dargestellt.

Abschließend werden an dieser Stelle die aus den erhaltenen C - und D - Werten errechneten $\chi^{(3)}$ -Elemente und Anisotropie-Parameter der vorgestellten Messungen zusammengestellt. Aus Symmetriegründen und der Richtungsabhängigkeit von $\chi^{(3)}$ sollten sich die Elemente der Transmissionsmessungen unterschiedlicher Einfallswinkel von denen der Reflexionsmessung unterscheiden. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die empirisch erhaltenen $\chi^{(3)}$ -Elemente für die unstrukturierte Silizium-Probe.

Tabelle 6.1: Übersicht über die relativen $\chi^{(3)}$ -Elemente für den Silizium-Wafer

Art der Messung		$\chi_{1111}^{(3)}$	$\chi_{1212}^{(3)}$	$\frac{3\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}}$	σ
Transmission	$\theta = -10^\circ$	$1,1409 \pm 0,0023$	$0,2158 \pm 0,0010$	$0,5674 \pm 0,0054$	0,4326
Transmission	$\theta = 0^\circ$	$1,1133 \pm 0,0028$	$0,2116 \pm 0,0103$	$0,5703 \pm 0,0292$	0,4297
Transmission	$\theta = 30^\circ$	$1,0942 \pm 0,0154$	$0,2346 \pm 0,0068$	$0,6422 \pm 0,0292$	0,3578
Reflexion	$\theta = 30^\circ$	$1,0952 \pm 0,0172$	$0,2333 \pm 0,0076$	$0,6389 \pm 0,0308$	0,3611

Die unterschiedlichen $\chi^{(3)}$ -Elemente liegen für alle Messungen in einem nahezu identischen Bereich.

Die geringfügigen Unterschiede von $\chi_{1212}^{(3)}$ ergeben sich aus Messfehlern. $\chi_{1212}^{(3)}$ ist verantwortlich für den isotropen Anteil der Polarisation, der keine Änderung bei Rotation des Kristalls erfährt. Die $\chi_{1111}^{(3)}$ -Elemente hingegen unterscheiden sich wesentlich stärker, da sie einen Beitrag zur Anisotropie liefern und dadurch empfindlicher auf eine veränderte Orientierung der Kristallachsen reagieren.

Die Werte von Transmission und Reflexion bei identischem Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$ bestätigen die gleichartig vorliegende Kristallsymmetrie für die Fundamentale für beide Messungen.

Die Unterschiede der Anisotropie hängen damit zusammen, dass für die Berechnung der $\chi^{(3)}$ -Elemente von einem Einfall in [100]-Kristallorientierung ausgegangen wurde. Bei Variation des Einfallswinkels ändern sich die Kristallorientierungen für die einfallenden Felder. Es gelten dann andere Abhängigkeiten für die $\chi^{(3)}$ -Elemente. Der Einfallswinkel von $\theta = 30^\circ$ stellt beispielsweise eine Kristallorientierung zwischen der [100]- und der [110]-Orientierung dar.

In den Arbeiten von Buhleier et al. [Buh94] und Lüpke [Lue91] ist eine Auflistung der $\chi^{(3)}$ -Komponenten in Abhängigkeit vom Azimutwinkel für verschiedene Kristallorientierungen gegeben.

Die theoretischen Ausführungen der Dritten Harmonischen in den Punkten 3.4.4 sowie 3.4.5 werden durch die Experimente bestätigt. Die Absorption der TH der untersuchten Proben liegt in einem Bereich, in dem Dritte Harmonische mit messbarer Intensität emittiert wird.

Eine Ausdehnung der Experimente auf Frequenzen im mittleren Infrarot-Bereich zeigt daher trotz der vorhandenen Absorption für den (100)-orientierten Silizium-Kristall die gleichen Abhängigkeiten der Dritten Harmonischen, wie sie auch im sichtbaren Spektralbereich zu finden sind. Eine Variation des Einfallswinkels weist ein verändertes Verhalten der außerordentlich polarisierten Komponente der Dritten Harmonischen auf. Die 8-zählige Symmetrie bleibt erhalten, zusätzlich tritt eine Modulation auf, die abhängig von der Drehrichtung des Kristalls ist und sich erst bei einer Mindestwechselwirkungslänge im Kristall auf das Intensitätsverhalten der Dritten Harmonischen auswirkt.

6.2 Photonische Kristalle

Vorausschickend muss erwähnt werden, dass die Wellenlängen, mit denen die Photonischen Kristalle bestrahlt werden, in einem Bereich von 2,5 bis 4 μm liegen. Die Dimensionen der Strukturen sind mit 2 bis 0,7 μm kleiner, so dass aufgrund der Strukturgröße die Fundamentale eine Dämpfung erfährt.

Die Absorption für Silizium ist bekannt. Die Absorption der photonischen Struktur muss kleiner sein, da der Volumen-Füllfaktor kleiner und damit die Summe der Einzelemittler reduziert ist. In nullter Näherung wird davon ausgegangen, dass zwischen Füllfaktoren und der Absorption ein linearer Zusammenhang besteht. Unter Vernachlässigung von Beugungseffekten kann somit für die photonische Struktur die Absorption berechnet werden.

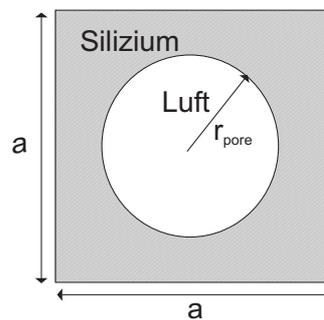
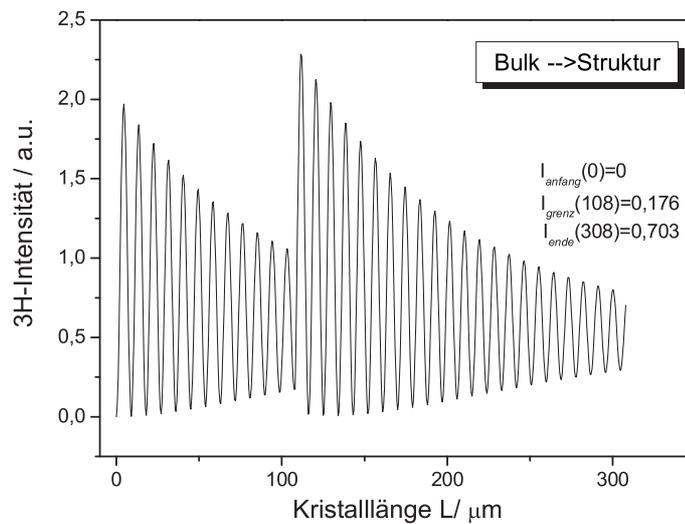


Abbildung 6.13: Darstellung der Draufsicht auf eine Volumen-Einheitszelle eines Photonischen Kristalls; a - Gitterkonstante

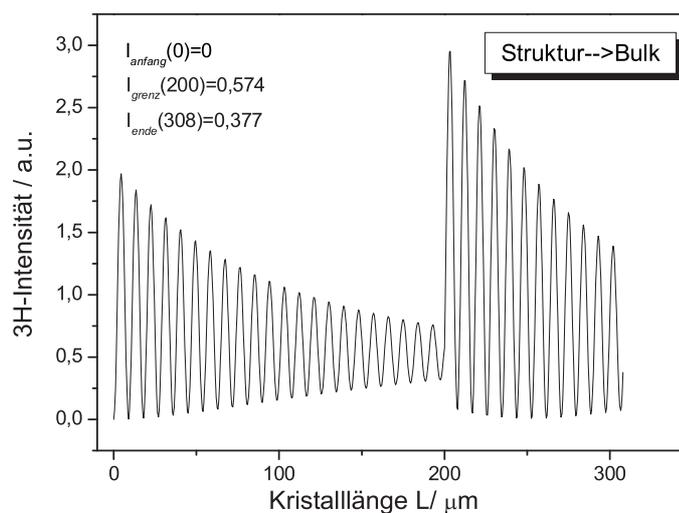
Für kleine Strukturen mit kurzer Porenlänge ändert sich daher die Absorption der Photonischen Kristalle wenig. Wird die Dimension der Struktur größer (höhere Porendurchmesser und -längen, kleinere Gitterkonstanten), sinkt die Absorption.

Die Lösung der Differentialgleichung (3.51) und die dazu geführte Diskussion zur Absorption der Dritten Harmonischen in Punkt 3.4.4 bezieht sich auf homogene Medien, wie es der Silizium-Kristall darstellt. Im Experiment werden Photonische Kristalle untersucht, die sich aus photonischer Struktur und Bulk-Silizium zusammensetzen. Dementsprechend erfordert die Inhomogenität des Materials eine Herangehensweise, die einmal die THG mit und ohne Eingangsfeld betrachtet und zum anderen die unterschiedlichen Strukturmerkmale berücksichtigt. Die Fundamentale durchläuft zwei verschiedene Medien. Je nach Propagationsrichtung der Fundamentalen (Bulk/Struktur oder Struktur/Bulk) wird zunächst die Erzeugung der Dritten Harmonischen im ersten Medium nach Gleichung (3.52) beschrieben. Diese generierte TH tritt mit der Fundamentalen gemeinsam in das zweite Medium ein, wofür Gleichung (3.55) mit der Anfangsbedingung genutzt wird.

Wird zunächst angenommen, dass sich die Absorption und $\chi^{(3)}$ von Silizium und Photonischem Kristall nicht unterscheiden und dass die Fundamentale bei einer gegebenen Eingangsfrequenz senkrecht zur Kristalloberfläche eingestrahlt wird, ist die jeweils generierte Intensität der TH an der Grenzfläche zwischen Bulk und Struktur und am Ende des Kristalls stark abhängig von der Propagationslänge. Eine Längenänderung von wenigen μm kann zu einem Intensitätssprung von einem Maximum zu einem Minimum oder umgekehrt führen. Die Abbildungen 6.14 zeigen je ein Beispiel für unterschiedliche Längen von Bulk ($l_B = 108\mu\text{m}$) und Struktur ($l_S = 208\mu\text{m}$) in Abhängigkeit von der Einstrahlrichtung.



(a) Einstrahlrichtung Bulk



(b) Einstrahlrichtung Struktur

Abbildung 6.14: Abhängigkeit der Intensität der Dritten Harmonischen von der Propagationslänge im Kristall

Es ist ersichtlich, dass die jeweils emittierte Intensität der Dritten Harmonischen an der Grenzfläche und am Kristallende unterschiedlich sind. Charakteristische Strukturmerkmale der beiden Medien wurden hierbei noch nicht berücksichtigt. Unter Einbeziehung der Struktursymmetrie der Materialien muss sich diese in der Dritten Harmonischen niederschlagen.

6.2.1 Photonische Kristalle mit hexagonaler Struktur

Die Experimente an Photonischen Kristallen mit hexagonaler Struktur lieferten interessante Unterschiede zu den Ergebnissen des Silizium-Kristalls. Die verwendeten Proben stellen eine Kombination aus hexagonaler Anordnung der Poren und der quadratischen Gitterstruktur des Bulk-Siliziums dar. Der Einfluss der Struktur auf das Verhalten der Dritten Harmonischen bei Rotation des Kristalls war hier von besonderem Interesse. Zur Gewährleistung, nur Informationen aus der Struktur zu erhalten, wurden die ersten Messungen im Reflexionsmodus durchgeführt. Die Strukturtiefe der Poren beträgt $10\ \mu\text{m}$ (3D-Kristalle) bzw. $150\ \mu\text{m}$ (2D-Kristalle). Sie ist demnach größer als die berechnete Wechselwirkungslänge der Fundamentalen.

Beide Kristallarten (2D und 3D) zeigen eine 6-fach Symmetrie der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit vom Azimutwinkel. Aufgrund der kristallographischen Anordnung der Poren konnte dies erwartet werden. Abbildung 6.15 zeigt eine Beispielmessung.

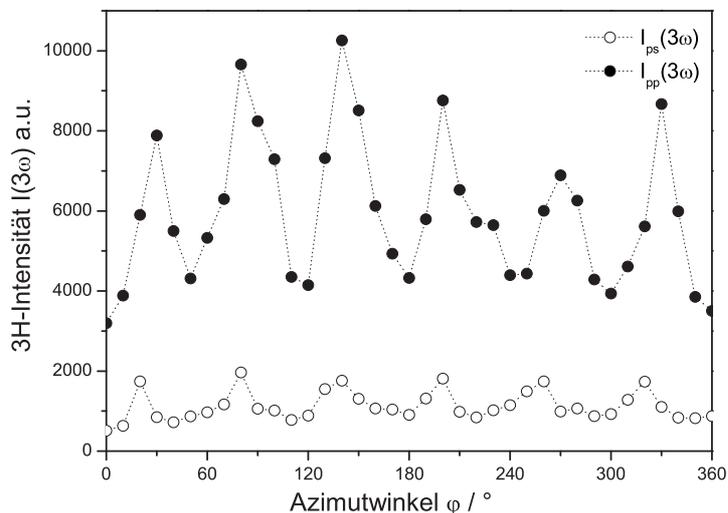


Abbildung 6.15: Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel in Reflexion bei einem Einfallswinkel von $\theta=30^\circ$; Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054); $\tilde{\nu} = 3700\ \text{cm}^{-1}$

Die durchgeführte Fouriertransformation bestätigt die Periodizität von 60° . In Abbildung 6.16 sind die FFT-Plots dargestellt. Die Hexagonalität liefert eine 6-fach Symmetrie bei Rotation der Kristalle um ihre Oberflächennormale für beide Polarisationsanteile der Dritten Harmonischen.

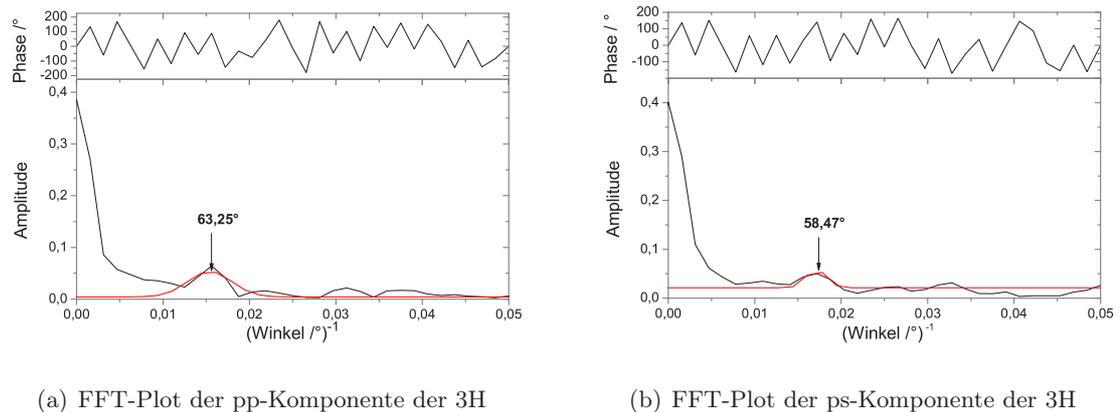


Abbildung 6.16: Darstellung der Fouriertransformationen der Messdaten;
Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054)

Zur Beschreibung des 6-zähligen Verhaltens der Dritten Harmonischen dient Gleichung (3.74) als Basis. In Anlehnung daran wird für die Anpassung der Parameter C_{hex} aus der mittleren Amplitude der Messkurve (Abbildung 6.15) bestimmt und die Winkelfunktion entsprechend gewählt. C_{hex} enthält die $\chi^{(3)}$ -Elemente für hexagonale Strukturen.

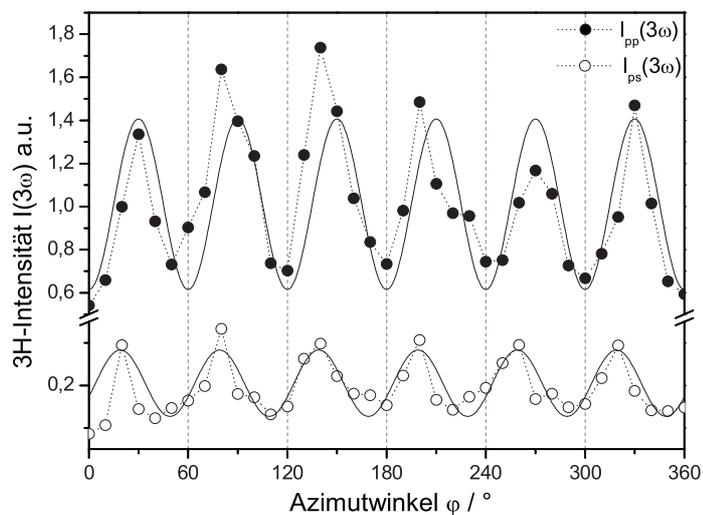


Abbildung 6.17: Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel in Reflexion bei einem Einfallswinkel von $\theta=30^\circ$ mit den entsprechenden theoretischen Kurven (durchgezogene Linien); Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054); $\tilde{\nu}=3700\text{ cm}^{-1}$

Die Intensität der Dritten Harmonischen für die hexagonalen Photonischen Kristallen wird somit wie folgt beschrieben:

$$I^R(3\omega) \propto (C_{hex} \sin(3\varphi))^2 \quad (6.5)$$

Außerordentliche und ordentliche Komponente zeigen das gleiche Verhalten, weswegen für

beide Anteile der Dritten Harmonischen Gleichung (6.5) für die Anpassung herangezogen wird. Abbildung 6.17 zeigt die Messdaten mit den entsprechenden Fitkurven.

Auffallend ist auch hier, dass der von Null verschiedene Einfallswinkel nur die außerordentlich polarisierte Komponente der TH, in Form der bereits diskutierten Phasenverschiebung, beeinflusst. Die Phasenverschiebung der außerordentlichen gegenüber der ordentlichen Komponente beträgt $\Delta\varphi = 19^\circ$. Die eingezeichneten Gitternetzlinien veranschaulichen den Shift. Die größere Empfindlichkeit gegenüber Richtungsänderungen der Fundamentalen hinsichtlich der Kristallorientierung wurde ebenfalls beim Silizium-Kristall beobachtet.

Die berechneten Parameter $C_{hex(p-p)} = 0,8917 \pm 0,0523$ und $C_{hex(p-s)} = 0.3956 \pm 0.0273$, stellen bei Betrachtung mit Gleichung (6.5) nur Amplitudenfaktoren dar, die sich um einen Faktor 2,28 unterscheiden. Eine Übereinstimmung mit den zuvor gemachten Berechnungen aus Punkt 5.4.4 kann festgestellt werden.

Aussagen dazu, welche $\chi^{(3)}$ -Elemente in C_{hex} und mit welchem Beitrag enthalten sind, lassen sich mit der Beschreibung durch Gleichung (6.5) schwer treffen. $\chi^{(3)}$ reflektiert als Eigenschaft des Kristalls dessen strukturelle Symmetrie und ist daher ein Materialparameter. Für hexagonale Kristalle hat der $\chi^{(3)}$ -Tensor 4 unabhängige von Null verschiedene Elemente [Pop95].

Für den untersuchten hexagonalen Photonischen Kristall bleibt die mikroskopisch kubische Kristallstruktur des Siliziums erhalten. Die makroskopische Struktur ist hexagonal. Der Vorfaktor des isotropen Anteils der nichtlinearen Polarisation aus Gleichung (3.65), $\chi_{1212}^{(3)}$, hat sich für den hexagonalen Kristall nicht geändert. Dieser muss demzufolge in C_{hex} enthalten sein. Die für die Anisotropie verantwortlichen $\chi^{(3)}$ -Elemente sind nicht bekannt. Zaboltnov et. al [Zab05] beschreiben ein Ansteigen der Anisotropie mit zunehmender Porosität. Für den hexagonalen Kristall wird deshalb aufgrund der aufgeprägten Struktur eine quantitative Zunahme der Anisotropie gegenüber dem Silizium-Kristall angenommen.

Messungen in Reflexion mit anderen hexagonalen Photonischen Kristallen bei verschiedenen Wellenlängen und beider Polarisationen der Fundamentalen ergaben vergleichbare Ergebnisse im Verhalten der TH und von C_{hex} . Absorptionsverluste sind infolge des geringeren Anregungsvolumens kleiner und deshalb vernachlässigbar.

Wechselt man zum Transmissionsmodus, so ergeben sich interessante Abweichungen. Hier erhält man eine Überlagerung von 6-zähliger Symmetrie der Struktur und 4-zähliger Symmetrie des Bulks. Zusätzlich sind die beobachteten Effekte abhängig von der Stellung des Photonischen Kristalls zum einfallenden IR-Bündel.

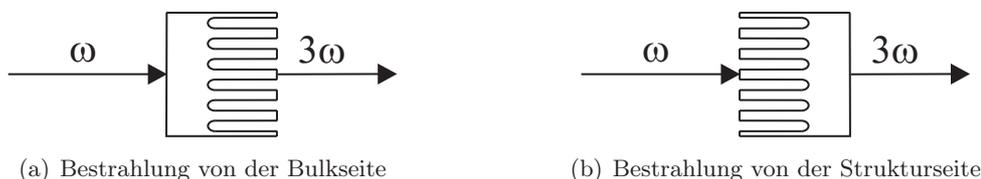
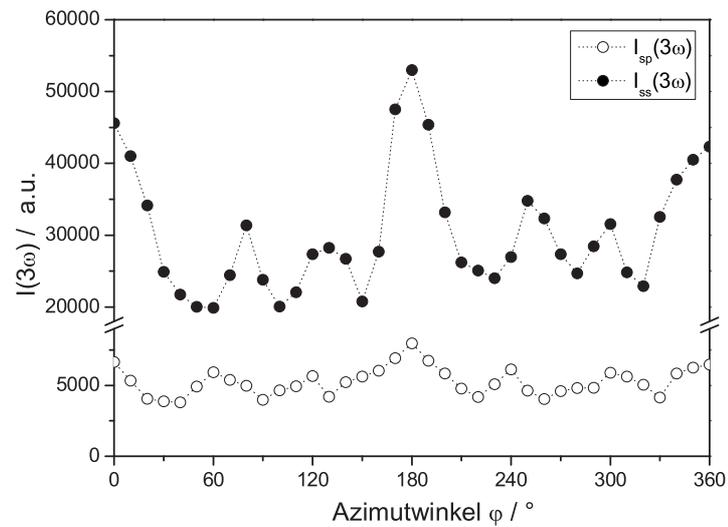
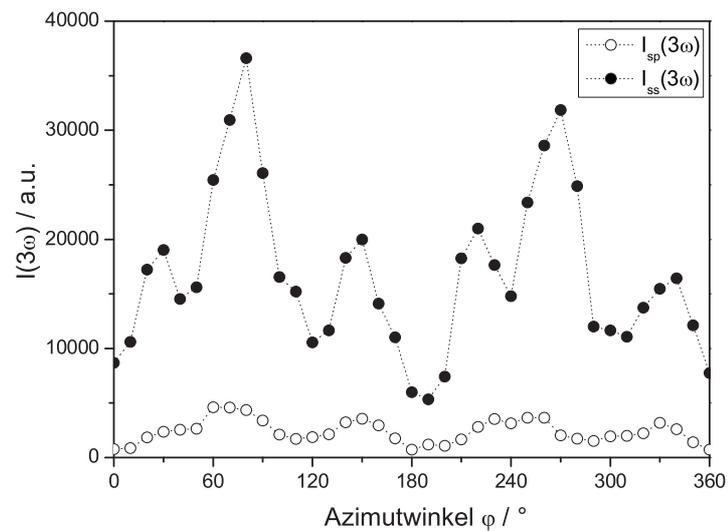


Abbildung 6.18: Einstrahlrichtungen der Fundamentalen in den Photonischen Kristall

Die Abbildungen (6.19a und b) zeigen typische Messergebnisse.



(a) Bestrahlung von der Bulkseite



(b) Bestrahlung von der Strukturseite

Abbildung 6.19: Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel bei senkrechtem Einfall des IR in Transmission; Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054), $\tilde{\nu} = 3400 \text{ cm}^{-1}$

Es ist erkennbar, dass bei beiden Einstrahlrichtungen die 6-Zähligkeit vorherrscht. Die 4-fach Symmetrie des Bulkmaterials beeinflusst jedoch die 6-fach Symmetrie der Struktur. Ausdruck hierfür ist die Modulation der Amplituden. Auffallend ist, dass zwei Maxima stärker ausgeprägt sind als die anderen. Die weitere Analyse der gewonnenen Ergebnisse mit Hilfe der Fouriertransformation (Abbildung 6.20 und 6.21) gibt Aufschluss über die vorhandenen Symmetrien dieser Systeme.

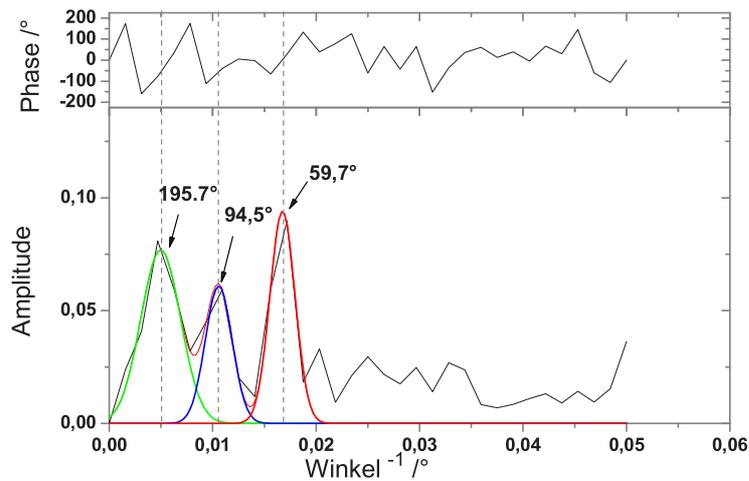


Abbildung 6.20: Fouriertransformation der Messung mit Einstrahlung von der Bulkseite

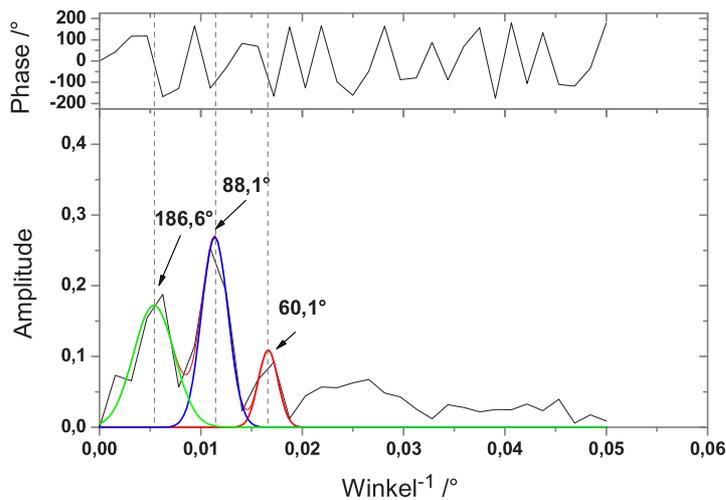


Abbildung 6.21: Fouriertransformation der Messung mit Einstrahlung von der Strukturseite

Aus den FFT-Plots ist eindeutig eine Periodizität bei 90° und 60° erkennbar. Das bedeutet die gleichzeitige Auswirkung der 4-Zähligkeit des Bulks und der 6-Zähligkeit der Struktur auf das azimutale Verhalten der TH. Zusätzlich fällt die Symmetrie bei 180° auf, die aus den Messkurven ebenfalls ersichtlich ist. Die Anteile von Bulk und Struktur sind jeweils um 45° phasenverschoben. Die Amplitudenverhältnisse der FFT-Plots stimmen mit denen der Messungen überein.

Geeignete Modelle, die diese Effekte beschreiben, erfordern die Berücksichtigung der Superposition von Struktur und Bulk.

Die Gesamtlänge der Photonischen Kristalle mit hexagonaler Struktur beträgt $508 \mu\text{m}$. Die Strukturen weisen bei oben gezeigten Messungen eine Tiefe von $10 \mu\text{m}$ auf. Aufgrund der

Absorptionslänge wird angenommen, dass nur die Dritte Harmonische emittiert wird, die am Ende des Kristalls generiert wird. Das bedeutet, dass das Verhalten der TH entweder durch Bulk oder Struktur dominiert wird. Die Experimente weisen jedoch für beide Einstrahlrichtungen eine 6-zählige Symmetrie auf. Dies deutet darauf hin, dass die 6-fach Modulation der generierten Dritten Harmonischen der Struktur bei Einstrahlung in die Struktur während der Propagation im Bulk nicht vollständig unterdrückt wird.

Zunächst soll die Einstrahlung der Fundamentalen von der Bulkseite betrachtet werden. Die THG ist ein bulkdominanter Prozess. Ihre Effizienz ist im Bulkmaterial aufgrund des höheren Anregungsvolumens größer. Nach Eindringen der Fundamentalen in das Bulkmaterial erzeugt sie Dritte Harmonische. Diese und die Fundamentale propagieren weiter in Richtung Struktur. An der Grenzfläche zur Struktur kommt es aufgrund der bereits generierten TH zu einem Intensitätssprung. Gleichzeitig tritt infolge der verschiedenen Brechungsindizes eine Richtungsänderung bzw. Phasenverschiebung der Felder auf. Durch destruktive Interferenz der Felder und Absorption innerhalb der Struktur kommt es zu einer Verminderung der nun generierten TH. Das kleinere Anregungsvolumens in der Struktur ist verantwortlich für eine geringere Effizienz der Dritten Harmonischen. Ausgehend von diesen Betrachtungen wird für eine erste Modellbeschreibung des Systems folgender Ansatz gemacht: Die Gesamtintensität der Dritten Harmonischen am Ende des Kristalls drückt sich in der Verminderung der Intensität des Bulkanteils (Gleichung (3.73)) um die Intensität der hexagonalen Struktur $((C_{hex} \sin 3\varphi)^2)$ aus.

$$I_B^T(3\omega) \propto (C \cos 4\varphi + D)^2 - (C_{hex} \sin 3\varphi)^2 \quad (6.6)$$

Abbildung 6.22 zeigt den Graphen von Gleichung (6.6).

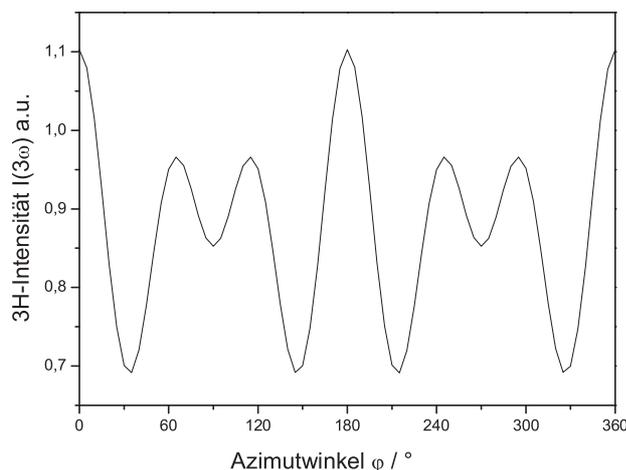


Abbildung 6.22: Theoretische Abhängigkeit der 3H bei Einfall der Fundamentalen in das Bulkmaterial bei Transmission

Die Anwendung dieser Beschreibung auf die Messergebnisse führen in 1. Näherung zu einer Übereinstimmung. Abbildung 6.23 zeigt jeweils die Messdaten einer s- bzw. p-polarierten Fundamentalen mit der Modellbeschreibung (6.6).

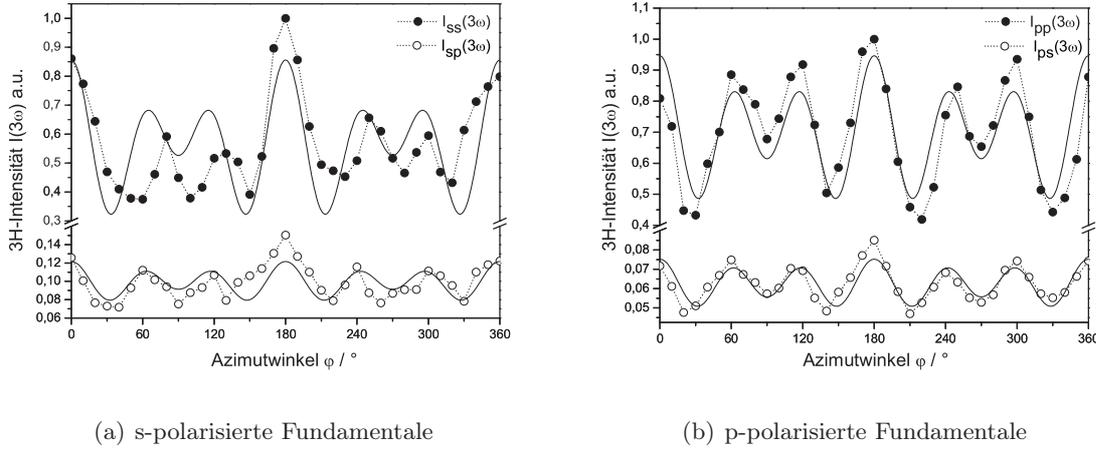


Abbildung 6.23: Transmission: senkrechter Einfall der s-polarisierten Fundamentalen zur Einfallsebene; Einstrahlung von der Bulkseite; theoretische Kurve - durchgezogene Linie; Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054); $\tilde{\nu} = 3400 \text{ cm}^{-1}$

Die Maxima bei $\varphi = 180^\circ$, $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 360^\circ$ sowie die Nebenmaxima decken sich mit den experimentellen Ergebnissen.

Bei Betrachtung der Parameter C , D und C_{hex} aus den Anpassungen fällt auf, dass der Faktor der Amplitude der Struktur (C_{hex}) immer größer ist als der, der für die Amplitude des Bulks ($4CD$) verantwortlich ist. Eine Erklärung hierfür ist, dass die Struktur eine stärkere Modulation der Amplituden verursacht. Die folgende Tabelle gibt einen Überblick über die aus den Fitparametern resultierenden $\chi^{(3)}$ -Elemente für das Gesamtsystem (Photonische Struktur auf Bulksilizium).

Tabelle 6.2: $\chi^{(3)}$ -Elemente, σ und Fitparameter nach Gleichung (6.6) bei Einstrahlung von der Bulkseite

	$\chi_{1111}^{(3)}$	$\chi_{1212}^{(3)}$	$\frac{\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}}$	σ	C_{hex}
s-s	0,9252	0,2108	0,2279	0,7721	$0.5741 \pm 0,0124$
s-p	0,3487	0,0101	0,2909	0,7091	$0.1741 \pm 0,0078$
p-p	0,9729	0,2663	0,2737	0,7263	$0.5762 \pm 0,0383$
p-s	0,2743	0,0837	0,3051	0,6949	$0.1398 \pm 0,0080$

C_{hex} bewegt sich für beide Polarisierungen im gleichen Bereich. Die Berechnung der Anisotropie aus dem Verhältnis der $\chi^{(3)}$ -Elemente, führt zu einem durchschnittlichen σ von 0,7256. Die Abweichungen sind mit Messungenauigkeiten zu erklären. Die Anisotropie ist größer als beim kristallinem Silizium. Dies entspricht der zuvor gemachten Aussage, dass sich aufgrund der Struktur die Anisotropie σ vergrößert.

Für die Beschreibung bei Einstrahlung der Fundamentalen von der Strukturseite gelten die gleichen Überlegungen, nur dass sich hier die Propagationsrichtung umkehrt. Die Fundamentale erzeugt in der Struktur Dritte Harmonische und wird durch die Struktur moduliert. Beide

Felder propagieren in das Bulkmaterial, wobei es an der Grenzfläche wieder zu einem Intensitätssprung kommt. Im Bulk führt das größere Anregungsvolumen zu einer höheren Effizienz der THG. Das bedeutet, dass sich die Intensitäten der Dritten Harmonischen von Struktur und Bulkmaterial summieren (Abbildung 6.24).

$$I_S^T(3\omega) \propto (C_{hex} \sin 3\varphi)^2 + (C \cos 4\varphi + D)^2 \quad (6.7)$$

Vergleicht man die Graphen der Gleichungen (6.6) und (6.7), so ist ersichtlich, dass beide Funktionen um 90° phasenverschoben sind.

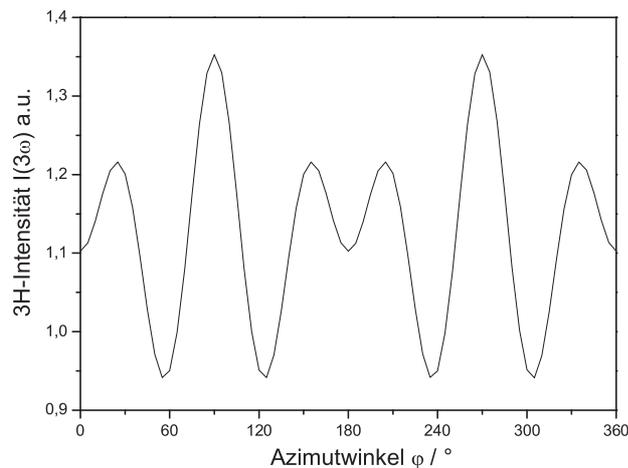


Abbildung 6.24: Theoretische Abhängigkeit der 3H bei Einfall der Fundamentalen in die Struktur bei Transmission nach Gleichung (6.7).

Die Anwendung von Gleichung (6.7) auf die experimentellen Daten ist in den Abbildungen von 6.25 dargestellt. Es wird jeweils eine Messung mit einer s- und eine mit einer p-polarisierten Fundamentalen gezeigt.

Aus den Graphen ist erkennbar, dass sich die vorgenannten Überlegungen sehr gut in die experimentellen Ergebnisse einfügen. Die Anpassungen ergeben ebenfalls, dass jeweils für beide Komponenten $C_{hex} > 4CD$ gilt, das heißt, auch hier dominiert der Struktur- den Bulkanteil. Tabelle 6.3 gibt einen Überblick über die erhaltenen Werte.

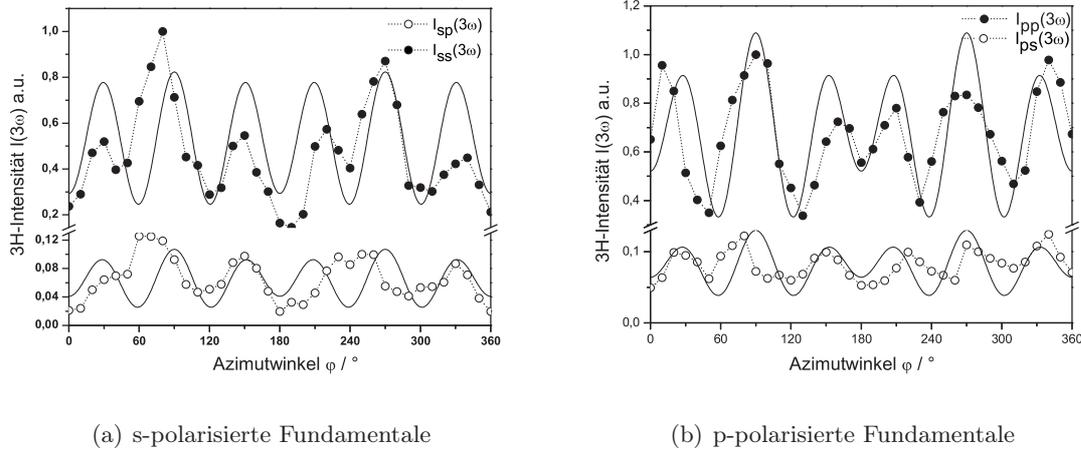


Abbildung 6.25: Transmission: senkrechter Einfall der s-polarisierten Fundamentele zur Einfallsebene; Einstrahlung von der Strukturseite; theoretische Kurve - durchgezogene Linie; Probe: Photonischer Kristall mit hexagonalem Gitter (A07-054); $\tilde{\nu} = 3400 \text{ cm}^{-1}$

Tabelle 6.3: $\chi^{(3)}$ -Elemente, σ und Fitparameter nach Gleichung (6.6) bei Einstrahlung von der Strukturseite

	$\chi_{1111}^{(3)}$	$\chi_{1212}^{(3)}$	$\frac{\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}}$	σ	C_{hex}
s-s	0,5926	0,0894	0,4526	0,5474	$0,7283 \pm 0,0699$
s-p	0,2025	0,0308	0,4567	0,5433	$0,2570 \pm 0,0028$
p-p	0,7129	0,1081	0,4512	0,5488	$0,7514 \pm 0,0013$
p-s	0,2534	0,0375	0,4470	0,5530	$0,2566 \pm 0,0024$

Eine Erklärung für die kleineren Anisotropie ist in der Dämpfung der modulierten Dritten Harmonischen aus der Struktur während der Propagation durch das Bulk zu suchen.

Obwohl diese Modellbeschreibung in erster Näherung zu einer Übereinstimmung mit den experimentellen Daten führt, kann sie nicht als vollständige Beschreibung der Systeme der photonischen Struktur auf Bulk-Silizium gelten. Die vorgeschlagenen Modelle stellen eine separate und voneinander unabhängige Betrachtung der Felder in den Medien dar. Der Einfluss der verschiedenen Medien auf beide generierte Felder wurde bisher nicht berücksichtigt.

Eine Darstellung des Systems mit der Differentialgleichung (3.51) aus Punkt 3.4.4 führt zu Berechnungen der Felder mit einer Anfangsbedingung und berücksichtigt die Material bzw. die Strukturparameter jedes Mediums. An der Grenzfläche Bulk/Struktur bzw. Struktur/Bulk kommen die Betrachtungen zum Tragen, die eingangs in diesem Kapitel geführt wurden. Der Photonische Kristall stellt so, wie er hier untersucht wurde, ein inhomogenes Medium mit zwei verschiedenen Strukturen dar. An der Grenzfläche zwischen diesen Medien muss bei Propagation der Fundamentele das zusätzlich generierte TH-Feld aus dem ersten Medium und die verschiedenen Absorptionen und Phasen Anpassungsbedingungen berücksichtigt werden.

Für die weitere Betrachtung tragen alle materialabhängigen Größen, die sich auf des Bulk beziehen den Index b und alle Strukturgrößen den Index s. Die Länge des Bulks beträgt L_b und

die der Struktur L_s . Die Gesamtlänge des Kristalls ist daher $L = L_s + L_b$. Werden die Felder der Dritten Harmonischen nach Gleichung (3.51) mit den entsprechenden Strukturmerkmalen in Abhängigkeit vom Azimutwinkel geschrieben, berechnet sich das Feld für das Bulk-Silizium zu

$$\begin{aligned} E(\varphi)^b &\propto (C \cdot \cos(4\varphi) + D) \cdot E_0^3 \left(2 \cdot \frac{e^{\frac{\alpha_b}{2} L_b + i\Delta k_b L_b} - 1}{\alpha_b + 2i\Delta k_b} \right) e^{-\frac{\alpha_b}{2} L_b} \\ &= (C \cdot \cos(4\varphi) + D) \cdot E_0^3 \left(2 \cdot \frac{e^{i\Delta k_b L_b} - e^{-\frac{\alpha_b}{2} L_b}}{\alpha_b + 2i\Delta k_b} \right) \end{aligned} \quad (6.8)$$

und das Feld für die Struktur zu

$$\begin{aligned} E(\varphi)^s &\propto C_{hex} \cdot \sin(3\varphi) \cdot E_0^3 \left(2 \cdot \frac{e^{\frac{\alpha_s}{2} L_s + i\Delta k_s L_s} - 1}{\alpha_s + 2i\Delta k_s} \right) e^{-\frac{\alpha_s}{2} L_s} \\ &= C_{hex} \cdot \sin(3\varphi) \cdot E_0^3 \left(2 \cdot \frac{e^{i\Delta k_s L_s} - e^{-\frac{\alpha_s}{2} L_s}}{\alpha_s + 2i\Delta k_s} \right) \end{aligned} \quad (6.9)$$

Die Parameter C , D und C_{hex} enthalten die $\chi^{(3)}$ -Elemente.

Für den Fall, dass die Fundamente zuerst in die photonische Struktur des Kristalls eindringt, ergibt sich für das Feld der Dritten Harmonischen nach Propagation von $z = 0$ bis zum Ende der Struktur $z = L_s$ an der Grenzfläche Gleichung (6.9).

Das in der Struktur generierte Feld $E(\varphi)^s$ tritt nun mit der Fundamentalen in das Bulk-Silizium ein und propagiert von L_s bis zum Kristallende bei L_b . Am Ende des Kristalls wird das Feld der Dritten Harmonischen $E(\varphi)^{S-B}$ emittiert.

$$\begin{aligned} E(\varphi)^{S-B} &\propto \left(2 \cdot C_{hex} \cdot \sin(3\varphi) e^{i\phi} (e^{i\Delta k_s L_s} - e^{-0.5\alpha_s L_s}) \frac{e^{-0.5\alpha_b L_b}}{\alpha_s + 2i\Delta k_s} \right) + \\ &\quad \left(2 \cdot (C \cdot \cos(4\varphi) + D) \cdot \frac{e^{i\Delta k_b L_b} - e^{-0.5\alpha_b L_b}}{\alpha_b + 2i\Delta k_b} \right) \end{aligned} \quad (6.10)$$

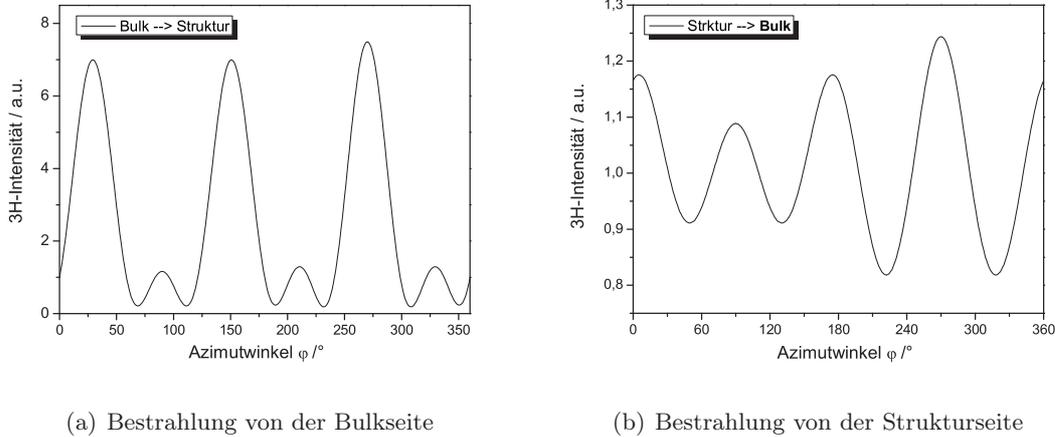
Bei Einstrahlung in das Bulk ergibt sich für das emittierte TH-Feld $E(\varphi)^{B-S}$ Gleichung (6.11).

$$\begin{aligned} E(\varphi)^{B-S} &\propto \left(2 \cdot (C \cdot \cos(4\varphi) + D) e^{i\phi} (e^{i\Delta k_b L_b} - e^{-0.5\alpha_b L_b}) \frac{e^{-0.5\alpha_s L_s}}{\alpha_b + 2i\Delta k_b} \right) + \\ &\quad \left(2 \cdot C_{hex} \cdot \sin(3\varphi) \cdot \frac{e^{i\Delta k_s L_s} - e^{-0.5\alpha_s L_s}}{\alpha_s + 2i\Delta k_s} \right) \end{aligned} \quad (6.11)$$

Die jeweiligen Intensitäten berechnen sich aus den Betragsquadraten der Felder.

Für die graphischen Darstellungen wurden die Werte für C , D und C_{hex} aus obigen Anpassungen und die bekannten Absorptionen und Δk hinzugezogen. Zunächst wurde davon ausgegangen, dass sich die Absorptionen und Δk von Bulk und Struktur nicht unterscheiden. Die Graphen ergeben bei Einstrahlung von der Strukturseite eine 4-Zähligkeit, die in Abhängigkeit der gewählten Parameter C , D und C_{hex} eine Modulation aufweist. Der Graph der Bulkeinstrahlung zeigt immer 6-zähliges Verhalten. Dies geht konform mit der eingangs

gemachten Überlegung, dass aufgrund der Absorptionslänge die am Ende des Kristalls generierte Dritte Harmonische emittiert wird. Mit den bekannten Materialparametern für das Bulk-Silizium und empirisch bestimmten Parametern für die photonische Struktur ergeben sich mit obiger Beschreibung folgende Graphen.



(a) Bestrahlung von der Bulkseite

(b) Bestrahlung von der Strukturseite

Abbildung 6.26: Intensitäten der Dritten Harmonischen nach den Gleichungen (6.11) und (6.10)

Eine Variation von α_s zu kleineren Werten zeigt kaum Einfluss auf das Verhalten der 3H. Eine Änderung von Δk_s hat dagegen eine stärkere Modulation der Amplituden zur Folge. Trotz verschiedentlicher Modifikation der Parameter lassen sich die gemessenen Ergebnisse nicht darstellen. Die durchgeführten Fouriertransformationen obiger Graphen zeigen jedoch bei Einstrahlung von der Strukturseite neben der ausgeprägten 90° -Symmetrie eine schwache 60° -Symmetrie und bei Bulkeinstrahlung ebenfalls beide Symmetrien. Fundierte Betrachtungen dieser Systeme erfordern deshalb die genaue Kenntnis der optischen Konstanten des Photonischen Kristalls.

Festzustellen ist jedoch, dass die Intensitäten der Dritten Harmonischen bei gleichen Parametern bei Einstrahlung von der Bulkseite immer höher sind als bei Einstrahlung von der Strukturseite. Dieses Verhalten bestätigt sich in den Experimenten.

Auf der Grundlage des derzeitigen Wissensstandes, das heißt, der gegenwärtig nicht bekannten tatsächlichen $\chi^{(3)}$ -Elemente für das Gesamtsystem und der Größen der Struktur, können die Beschreibungen (6.10) und (6.11) zunächst nur als Lösungsansatz angesehen werden. Zur vollständigen Darstellung muss die Bestimmung der notwendigen Parameter Gegenstand weiterer Untersuchungen sein.

Schlussfolgernd wird festgestellt, dass die Messergebnisse zeigen, dass der Prozess der Erzeugung der Dritten Harmonischen als diagnostisches Werkzeug zur Bestimmung von Kristallstrukturen und -orientierungen genutzt werden kann. Die Auswirkung der hexagonalen Struktur auf das Verhalten der Dritten Harmonischen wurde sowohl in Reflexion als auch in Transmission bewiesen. Ein Ansatz zur Beschreibung der Dritten Harmonischen bei Superposition der quadratischen Kristallstruktur des Bulks und der photonischen hexagonalen Struktur konnte gemacht werden.

6.2.2 Photonische Kristalle mit quadratischer Struktur

Experimente an photonischen Kristallen mit quadratischer Struktur liefern identische Symmetrien der TH in Abhängigkeit vom Azimutwinkel zu denen von unstrukturiertem Silizium. Aufgrund der fcc-Gitterstruktur des Bulk-Siliziums, in das die quadratische Struktur, nämlich die periodische Anordnung von Poren, deren Wände wiederum aus Silizium mit einem fcc-Gitter bestehen, geätzt wurde, kann dies auch erwartet werden. Die photonische und die kristallographische Struktur stimmen hier überein und sind aufeinander ausgerichtet. Alle untersuchten Photonischen Kristalle haben die gleiche Gitterstruktur, unterscheiden sich jedoch in ihrer Porenlänge. Ein Beispiel für eine Reflexionsmessung mit einem Photonischen Kristall, Porenlänge $100\ \mu\text{m}$, zeigt Abbildung 6.27.

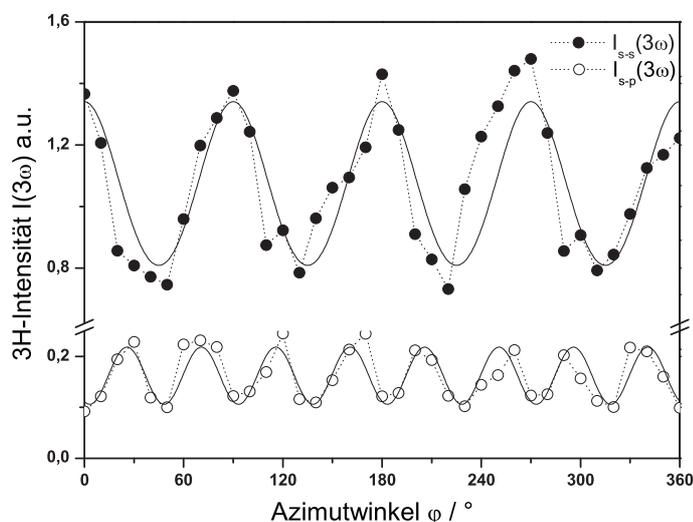


Abbildung 6.27: Abhängigkeit der Dritten Harmonischen vom Azimutwinkel in Reflexion bei einem Einfallswinkel von $\theta=30^\circ$ mit den entsprechenden theoretischen Kurven (durchgezogene Linien); Probe: Photonischer Kristall mit quadratischer Struktur (A2-207); $\tilde{\nu}=3500\ \text{cm}^{-1}$

Aufgrund der identischen Abhängigkeiten wie für Silizium wurden die gleichen Anpassungen genutzt. Auf den ersten Blick erkennt man keinen Unterschied zwischen Photonischem Kristall und kristallinem Silizium. Vergleicht man jedoch die Kurven genauer und untersucht das Verhalten der Parameter C und D bzw. die Amplituden der Modulation, ergibt sich ein Einfluss infolge der Struktur.

In Abbildung 6.28 sind die relativen Amplituden dargestellt. Es ist die stärkere Modulation der Fitkurve des Photonischen Kristalls erkennbar. Vergleicht man die Parameter C und D beider Anpassungen, finden sich hier entsprechende Unterschiede. Aus den Anpasskurven ergeben sich für den unstrukturierten Silizium-Kristall $C_{Si} = 0,0989 \pm 0,0173$ und $D_{Si} = 0,9963 \pm 0,0124$ und für den Photonischen Kristall $C_{PC} = 0,1511 \pm 0,0206$ und $D_{PC} = 0,9923 \pm 0,0146$. D ist für alle Messungen nahezu konstant, da D in Gleichung (3.73) eine Konstante darstellt, die nicht vom Azimutwinkel abhängig ist.

Bei gleicher Eindringtiefe der Fundamentalen in den Kristall und in das Silizium stellt sich ein Unterschied in der Modulationstiefe dar.

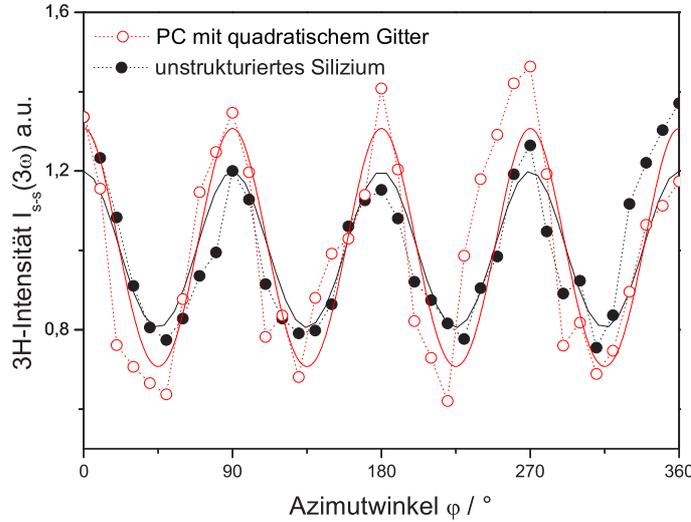


Abbildung 6.28: Vergleich der relativen Amplituden in Reflexion von kristallinem Silizium und einem Photonischen Kristall (PC); Proben: Silizium-Wafer, A2-207; $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$. Die durchgezogenen Linien stellen die angepassten Kurven dar.

Entsprechende Ergebnisse zeigen auch die anderen Photonischen Kristalle quadratischer Struktur. Aufgrund ihrer gleichartigen Dimensionen bezüglich des Gitters ($a = 2 \mu\text{m}$ und $d_{\text{Pore}} = 1 \mu\text{m}$) verhalten sich die Amplituden wie oben beschrieben. Daraus folgt, dass die Eindringtiefe der Fundamentalen in die Photonischen Kristalle bei Reflexion immer gleich sein muss und dass die Dritte Harmonische ausschließlich in der Struktur generiert wird und daher keinen Bulkanteil besitzt. Die abweichenden C -Werte des Siliziums und des Photonischen Kristalls lassen aufgrund seiner stärker ausgeprägten Struktur auf eine höhere Anisotropie des Photonischen Kristalls schließen. In Tabelle 6.4 sind die berechneten $\chi^{(3)}$ -Elemente und die daraus folgende Anisotropie ersichtlich.

Tabelle 6.4: Vergleich von $\chi_{1111}^{(3)}$ und $\chi_{1212}^{(3)}$ von kristallinem Silizium und Photonischem Kristall mit quadratischer Struktur in Reflexion

Probe	$\chi_{1111}^{(3)}$	$\chi_{1212}^{(3)}$	$\frac{3\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}}$	σ
Silizium	$1,0952 \pm 0,0172$	$0,2333 \pm 0,0076$	$0,6389 \pm 0,0308$	$0,3611 \pm 0,0102$
PC	$1,1434 \pm 0,0352$	$0,1796 \pm 0,0157$	$0,4712 \pm 0,0558$	$0,5288 \pm 0,0558$

Messungen in Transmission ergeben gleiche Abhängigkeiten. Zunächst wurde von der Strukturseite eingestrahlt. Der unstrukturierte Silizium-Kristall weist die kleinste relative Amplitude auf. Weiterhin wird beobachtet, dass mit Anwachsen der Porenlänge der Photonischen Kristalle die Stärke der Modulation zunimmt.

Der Vergleich von C und D ergibt, dass C mit steigender Porenlänge zunimmt und D wiederum aufgrund seiner Unabhängigkeit vom Azimutwinkel nahezu konstant ist. Aus diesen Parametern lassen sich die $\chi^{(3)}$ -Elemente sowie σ bestimmen (Tabelle 6.5).

Tabelle 6.5: Vergleich der $\chi^{(3)}$ -Elemente und der Anisotropie von kristallinem Silizium und Photonischen Kristallen mit quadratischer Struktur bei Einstrahlung von der Strukturseite in Transmission

Probe	$l_{Pore}/\mu\text{m}$	$\chi_{1111}^{(3)}$	$\chi_{1212}^{(3)}$	$\frac{3\chi_{1212}^{(3)}}{\chi_{1111}^{(3)}}$	σ
Silizium	0	$1,1133 \pm 0,0028$	$0,2116 \pm 0,0100$	$0,5703 \pm 0,0292$	$0,4297 \pm 0,0018$
A2-208	50	$1,1224 \pm 0,0380$	$0,2004 \pm 0,0168$	$0,5367 \pm 0,0631$	$0,4633 \pm 0,0631$
A2-207	100	$1,1381 \pm 0,0278$	$0,1813 \pm 0,0130$	$0,4812 \pm 0,0443$	$0,5187 \pm 0,044$
A2-206	400	$1,1563 \pm 0,0333$	$0,1701 \pm 0,0115$	$0,4420 \pm 0,0424$	$0,5609 \pm 0,047$

Der Zusammenhang zwischen Strukturtiefe und den Elementen von $\chi^{(3)}$ zeigt sich deutlich. Mit größer werdender Porenlänge nimmt der isotrope Anteil $\chi_{1212}^{(3)}$ ab, der relative Bulkanteil wird im Verhältnis zur Struktur kleiner. Die Komponente, die für den anisotropen Anteil verantwortlich ist, $\chi_{1111}^{(3)} - 3\chi_{1212}^{(3)}$, wird mit steigender Strukturtiefe größer, somit auch die Anisotropie. Hierbei kann jedoch nicht genau definiert werden, welchen Beitrag jeweils Struktur und Bulk zur Erzeugung der Dritten Harmonischen liefern. Golovan et al. [Gol03] berichten aufgrund ihrer Experimente ebenfalls von einer Abnahme der TH-Intensität und einem Ansteigen der nichtlinearen Anisotropie mit steigender Porosität. Wird die Fundamentele von der Bulkseite eingestrahlt, ergeben sich gleichartige Abhängigkeiten, die Anisotropie steigt mit zunehmender Porenlänge, ist aber bei dieser Einstrahlrichtung um jeweils ca. 0,1 kleiner. Die gleiche Beobachtung wurde bei den hexagonalen Kristallen gemacht.

Parallel dazu wird beobachtet, dass mit steigender Kristalldicke, aufgrund der zunehmenden Strukturtiefe, die Effizienz der THG abnimmt. Bei den durchgeführten Transmissionsmessungen ist bei allen Photonischen Kristallen die Länge des Bulkanteils gleich ($l_{Bulk}=108 \mu\text{m}$). Die Kristalle unterscheiden sich lediglich in der Strukturtiefe und besitzen daher unterschiedliche Dicken bzw. Wechselwirkungslängen. Wehrspohn [Weh03] beschreibt ebenfalls einen Abfall der Transmission mit größer werdender Kristalldicke.

Die Effizienz der Dritten Harmonischen ist zusätzlich abhängig von der Einstrahlrichtung der Fundamentele auf den Photonischen Kristall. Untersuchungen dazu ergaben jeweils eine höhere Intensität der Dritten Harmonischen bei Einstrahlung von der Bulkseite verglichen mit der Einstrahlung von der Strukturseite. Stellvertretend für den Vergleich zwischen der Einstrahlung von Bulk- und Strukturseite sei die Messung in Abbildung 6.29 gezeigt.

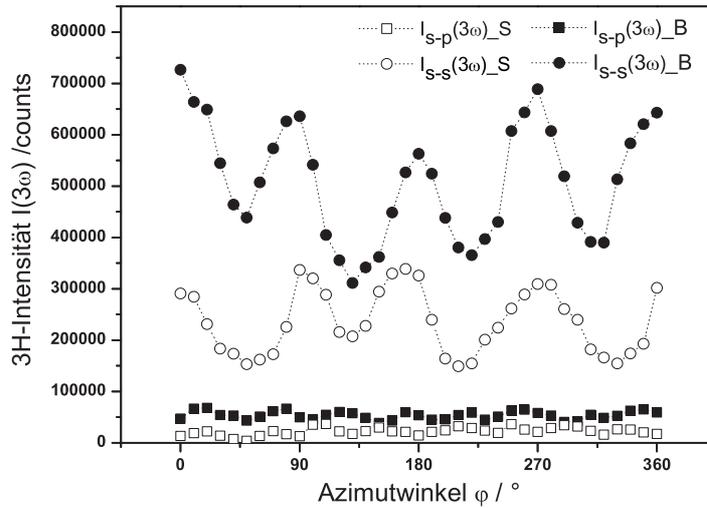


Abbildung 6.29: Vergleich der Intensitäten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Einstrahlrichtung der Fundamentalen; geschlossene Punkte: Einstrahlung von der Bulkseite; offene Punkte: Einstrahlung von der Strukturseite; Probe: A2-208 ($l_{pore} = 50 \mu\text{m}$); $\tilde{\nu}=3500 \text{ cm}^{-1}$

Tabelle 6.6 zeigt das Verhältnis Bulk-/Strukturlänge zur jeweiligen Intensität (I_B^{3H} , I_S^{3H}). Bei fast gleichen Dicken von Bulk und Struktur unterschieden sich die Intensitäten der generierten Harmonischen nur wenig, das gleiche gilt, wenn die Strukturen wesentlich kürzer als die des Bulks sind, was bei den lithographisch vorstrukturierten Proben der Fall ist.

Tabelle 6.6: Vergleich der Intensitäten bei Einstrahlung von der Bulk- und Strukturseite in Abhängigkeit von der Porentiefe

Probe	Bulklänge $L_B/\mu\text{m}$	Strukturtiefe $L_S/\mu\text{m}$	$L_B : L_S$	$I_B^{3H} : I_S^{3H}$
Si-vorstrukturiert	508	0,7	1:0,0014	$I_B^{3H} \simeq I_S^{3H}$
A2-208	108	50	1:05	$I_B^{3H} \simeq 2 \cdot I_S^{3H}$
A2-207	108	100	1:1	$I_B^{3H} \simeq I_S^{3H}$
A2-208	108	400	1:4	$I_B^{3H} \simeq 4 \cdot I_S^{3H}$

Ein graphischer Vergleich der Intensitäten ist in Abbildung 6.30 zu sehen.

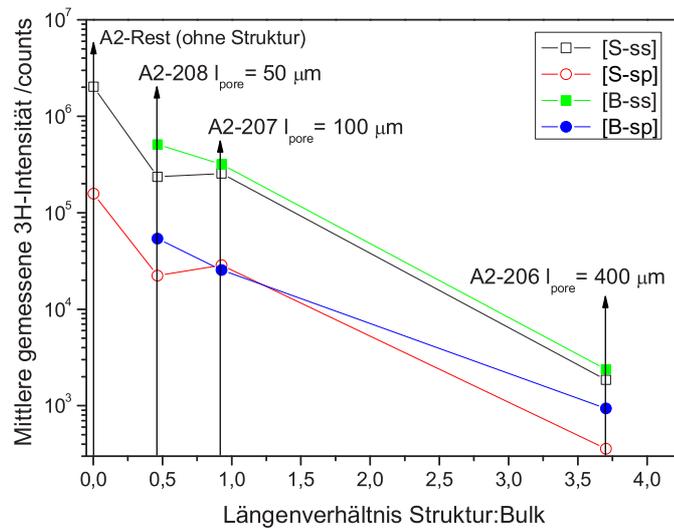


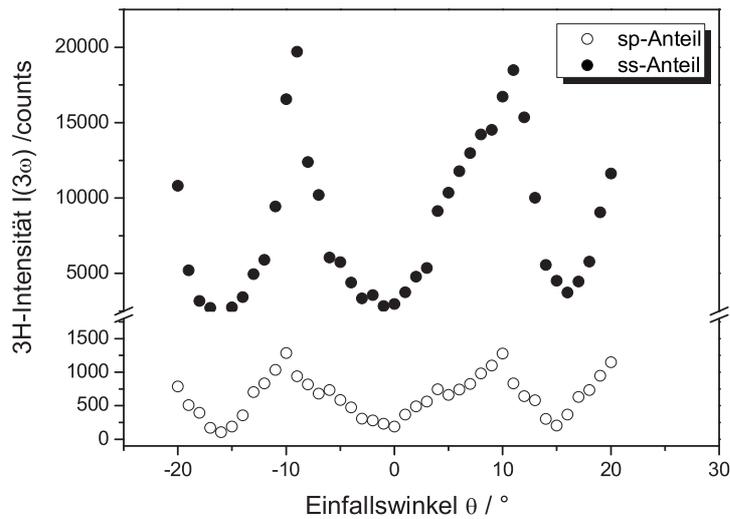
Abbildung 6.30: Darstellung der Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit vom Längenverhältnis Struktur/Bulk

Eine Erklärung für die Abnahme der Intensität der Dritten Harmonischen mit zunehmender Porentiefe ist in der Bulk-dominierten Erzeugung der Dritten Harmonischen zu suchen. Die in der Struktur generierte Dritte Harmonische wird. Dies wurde ebenfalls bei den Photonischen Kristallen hexagonaler Struktur beobachtet. Die Einstrahlung von der Bulkseite der Kristalle führt zu einer höheren Effizienz der THG.

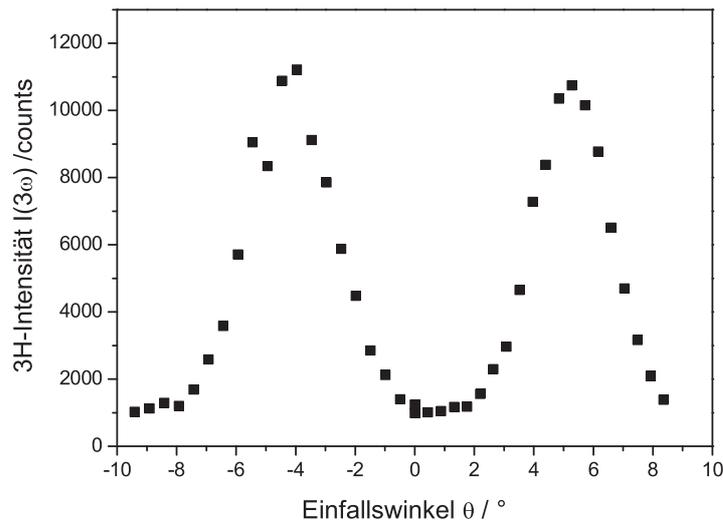
Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die azimutale Abhängigkeit der Dritten Harmonischen in Photonischen Kristallen mit quadratischer Struktur der von kristallinem Silizium entspricht. Die 4-fach Symmetrie resultiert aus der (100)-Orientierung des Kristalls, während die Modulationstiefe in Beziehung mit der Anisotropie von $\chi^{(3)}$ steht [Mos89].

6.2.3 Theta-Abhängigkeiten

Experimente in Abhängigkeit des Einfallswinkels konnten beim bestehenden experimentellen Setup nur in Transmission durchgeführt werden. Erste Messungen zeigten, dass bei senkrechtem Einfall der Fundamentalen zur Kristalloberfläche, $\theta = 0$, ein Minimum vorliegt und rechts und links davon ein Anstieg der Intensitäten der 3H zu verzeichnen ist. Dieses Verhalten wird auch in der Literatur beschrieben [Sob05]. Beispiele für dieses Experiment sind in Abbildung 6.32 dargestellt. Es wurde jeweils der Kristall um $\pm 20^\circ$ bzw. um $\pm 10^\circ$ um seine [001]-Kristallachse gedreht.



(a) PC mit hexagonaler Struktur; $\tilde{\nu} = 3700 \text{ cm}^{-1}$



(b) PC mit quadratischer Struktur; $\tilde{\nu} = 3400 \text{ cm}^{-1}$

Abbildung 6.31: Abhängigkeit der 3H vom Einfallswinkel in Transmission

Der senkrechte Einfall der Fundamentalen auf die (100)-Ebene des Kristalls bei $\theta = 0$ entspricht der Kristallrichtung [100]. Wird der Kristall gedreht, ändern sich für die Fundamentale die Einstrahlrichtungen bezüglich der Kristallorientierungen. Eine Modulation im Verhalten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit des Einfallswinkels ist zu erwarten und im Graphen auch zu sehen.

Die Modulation der Dritten Harmonischen bedeutet, dass Komponenten anderer Kristallebenen und damit andere Beiträge der $\chi^{(3)}$ -Elemente für die THG zum Tragen kommen. Aus den Abbildungen ist ersichtlich, dass es für die Kristalle bestimmte Richtungen gibt, bei deren Einfall der Fundamentalen die Erzeugung der Dritten Harmonischen eine besonders hohe Effizienz aufweist.

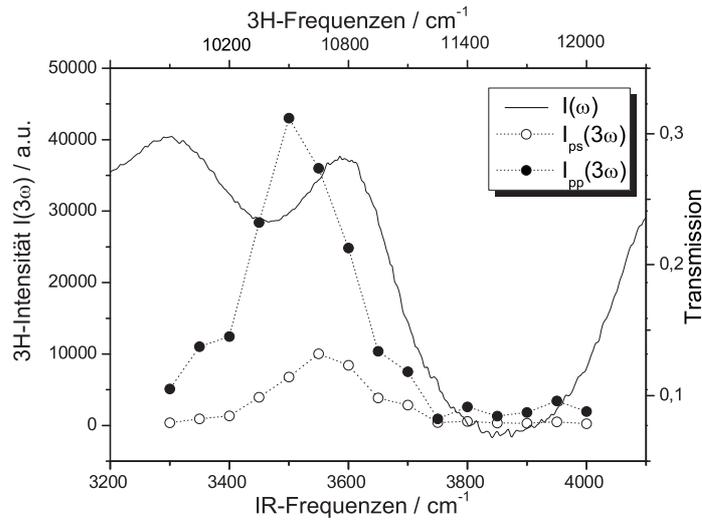
Eine andere mögliche Erklärung für die Modulation der Intensität der Dritten Harmonischen ist die Veränderung der Propagationslänge durch den von Null verschiedenen Einfallswinkel. Geht man wiederum von Gleichung (3.52) oder (3.54) aus, ist die Abhängigkeit der Intensität von Propagationslänge und Δk ersichtlich.

Bei einem gegebenen Δk verändern sich die Intensitäten der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit des Einfallswinkels. Untersuchungen dazu können Gegenstand weiterer Experimente sein.

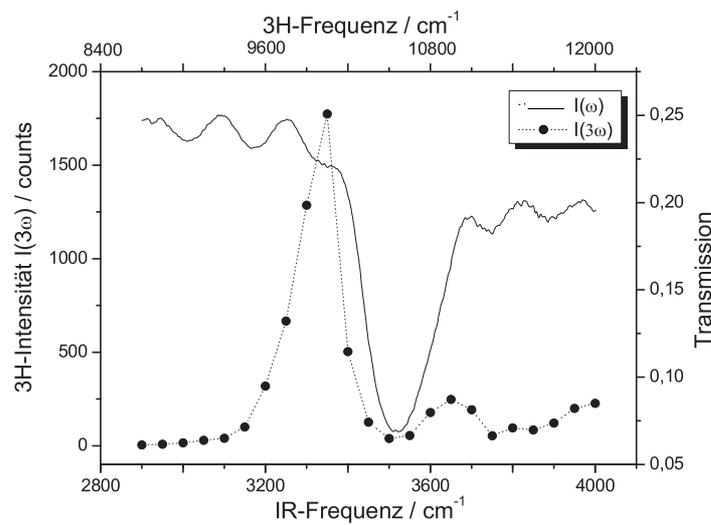
6.2.4 Frequenz-Abhängigkeiten

Frequenzabhängige Experimente, bei denen die Fundamentale über die Photonische Bandlücke gestimmt wurde, zeigen die erwarteten Ergebnisse, nämlich ein Absinken der Intensität der TH aufgrund der Absorption der einfallenden Bündel im Bandlückenbereich.

Die Abbildungen in 6.32 zeigen entsprechende Messergebnisse bei verschiedenen Bandlücken. Es sind jeweils Photonische Kristalle mit einer ausgeprägten Bandlücke dargestellt. Die durchgezogenen Linien sind die im FTIR-Spektrometer gemessenen Transmissionen.



(a) PC mit hexagonalem Gitter (A07-054)



(b) PC mit hexagonalem Gitter (A07-002)

Abbildung 6.32: Dritte Harmonische in Abhängigkeit von der Frequenz

An der langwelligen Seite der Bandkante ist eine Überhöhung der Intensität der 3H erkennbar. Die Intensitätsverstärkung der TH an der Bandkante wird durch das direkte Koppeln der drei Fundamentalfelder durch $\chi^{(3)}$ verursacht. Nach Korrektur der gemessenen TH um die jeweilige Absorption kann die Überhöhung der Intensität an der Bandkante nur mit Δk in Zusammenhang stehen. In der Literatur wird die THG-Verstärkung als Ergebnis der effektiven Kompensation der Phasenfehlanspassung interpretiert. In der Nähe der Bandkante ändert sich die Gruppengeschwindigkeit. Aufgrund der kleinen Gruppengeschwindigkeit der Fundamentalen wird die Phasenfehlanspassung kompensiert [Mar04].

Auch hier geben weitere Experimente Aufschluss über die Einflüsse von Δk und der damit verbundenen Gruppengeschwindigkeit v_g auf die Dritte Harmonische im Bandlückenbereich.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Bisherige Untersuchungen der Dritten Harmonischen an Silizium wurden im sichtbaren Spektralbereich durchgeführt. Eine Ausdehnung dieser auf den mittleren Infrarot-Bereich lieferte trotz der vorhandenen Absorption für die TH aussagefähige Ergebnisse.

Es wurde das azimutale Verhalten der Dritten Harmonischen in Photonischen Kristalle aus makroporösem Silizium untersucht. Die Ergebnisse lassen eine Einschätzung zu, dass sich die Struktur Photonischer Kristalle auf nichtlineare Effekte auswirkt. Es konnte festgestellt werden, dass sich die Strukturen aufgrund ihrer Symmetrien und Kristallorientierungen im Verhalten der Dritten Harmonischen widerspiegeln. Somit haben die Experimente gezeigt, dass mit Hilfe des nichtlinearen Prozesses der THG die Kristallorientierung bestimmt werden kann.

Die Methode mit Hilfe der Differentialgleichung (3.51), die Intensität der Dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Absorption und der Kristalllänge zu berechnen, ist ein geeignetes Element, um vorab das Verhalten der TH bei verschiedenen Phasenanpassungsbedingungen, Absorptionen, Kristalllängen mit und ohne Anfangsbedingung zu analysieren. Die durchgeführten Berechnungen wurden experimentell bestätigt.

Weitere Aspekte, die hier noch nicht berücksichtigt wurden, wie die Phasenbedingungen an den Grenzflächen oder strukturelle Materialparameter der Medien stellen einen nächsten Schritt in der Betrachtung dar.

Für den Silizium-Kristall wurden die in der Literatur beschriebenen Abhängigkeiten auch für den mittleren spektralen Infrarot-Bereich bestätigt. In den Transmissions- und Reflexionsmessungen ergaben sich jeweils aufgrund der (100)-Kristallorientierung der verwendeten Probe die 4- bzw. 8-zählige Symmetrie der beiden Polarisationskomponenten der Dritten Harmonischen. Eine Änderung des Einfallswinkels der Fundamentalen bewirkt eine Änderung der Modulation der außerordentlichen Komponente der Dritten Harmonischen. Die Propagationslänge der Fundamentalen ist vom Einfallswinkel abhängig. Durch den nicht senkrechten Einfall in den Kristall haben weitere Beiträge der $\chi^{(3)}$ -Elemente Einfluss auf die Erzeugung der Dritten Harmonischen im Silizium-Kristall.

Die Photonischen Kristalle mit quadratischer Struktur zeigten erwartungsgemäß das gleiche Verhalten wie der Silizium-Kristall. Messungen in Reflexion bewiesen, dass ausschließlich die quadratische photonische Struktur eine 4-Zähligkeit aufweisen. Die Effizienz der THG war jedoch geringer bei den Photonischen Kristallen, während die Modulationstiefe der Amplituden stärker war. Aufgrund der gleichen Eindringtiefe der Fundamentalen in den Kristall, wurden für die verschiedenen Proben gleiche Modulationsstärken ermittelt. Dies veränderte sich bei den Messungen in Transmission. Interessant waren hier die weiteren Abhängigkeiten, die beobachtet wurden. Aufgrund des Probenaufbaus kam es hierbei zur Superposition der Auswirkungen

von photonisch wirksamer Struktur und der Struktur des Bulkmaterials aus Silizium. Betrachtet man die Amplituden, so beobachtet man eine stärkere Modulation bei Erhöhung der Strukturtiefe und Einstrahlung von der Strukturseite. Gleichzeitig jedoch verringert sich die Effizienz der TH. Betrachtet man die Intensitäten, so sind diese jeweils höher bei Einstrahlung von der Bulkseite. Gleichzeitig steigen sie mit sinkender Porenlänge. Die 4- und 8-zählige Symmetrie der Intensitäten der Dritten Harmonischen zeigten sich in beiden Experimenten.

Die Kristalle mit hexagonaler Struktur stellten eine Superposition von quadratischem Kristallgitter des Siliziums und hexagonaler photonischer Gitterstruktur dar. Bei diesen Proben waren die Einflüsse von Struktur und Bulk gut unterscheidbar, jedoch sind keine quantitativen Aussagen zu deren Beiträgen möglich. Aufgrund der hexagonalen Struktur zeigten die Reflexionsmessungen eine 6-zählige Symmetrie für beide Komponenten der Dritten Harmonischen. Eine Beschreibung für das Verhalten der Felder der Dritten Harmonischen im hexagonalen Photonischen Kristall wurde entworfen. Im Transmissionsmodus müssen beide Anteile, die der Struktur und des Bulks, berücksichtigt werden. Die Richtung der Einstrahlung der Fundamentalen auf die Probe, ob von der Bulk- oder von der Strukturseite, beeinflusst ebenfalls das Verhalten der Dritten Harmonischen. Für die unterschiedlichen Fälle wurden physikalischen Erklärungen vorgeschlagen und Ansätze zur mathematischen Beschreibung gemacht.

Im Ergebnis der Auswertung wird festgestellt, dass die vorgestellten Experimente den Unterschied der Beträge der Tensorelemente von $\chi^{(3)}$ und damit der Anisotropie von kristallinem Silizium und Photonischen Kristallen mit quadratischer und hexagonaler Struktur zeigen. Die Erzeugung Dritter Harmonischer erweist sich als diagnostisches Instrument zur Analyse von Kristallstrukturen und deren Orientierungen.

Auf Grundlage der durchgeführten Experimente und deren Ergebnisse wird das weitere Betreiben der Erforschung nichtlinearer Effekte in Photonischen Kristallen im Spektralbereich des Infrarots als erfolgsversprechend eingeschätzt. Beim jetzigen Wissensstand ist jedoch eine zeitnahe wirtschaftliche Nutzbringungs der Forschungsergebnisse noch nicht gegeben. Künftige Untersuchungen sollten den Charakter einer breit angelegten Grundlagenforschung haben und unter Variation wichtiger Versuchsparameter durchgeführt werden.

Die dargestellten Ergebnisse verstehen sich als Basis für weitere Untersuchungen von nichtlinearen Effekten an Photonischen Kristallen. Im Laufe der Experimente ergaben sich immer wieder neue Untersuchungsmöglichkeiten, die Aufschlüsse über Strukturen und Abhängigkeiten geben können. Im Hinblick darauf, dass innerhalb der nächsten Monate ein neuer fs-Laser in Betrieb genommen wird, der mit einer höheren Repetitionsrate und besserer Stabilität arbeitet, können weitere Experimente, die eine wesentlich höhere Messgenauigkeit bieten, durchgeführt werden. Dazu gehören Untersuchungen der Winkelabhängigkeiten beispielsweise bei einem festen φ und variablen θ .

Untersuchungen der Summenfrequenzen können Antworten darauf geben, wie ihr Verhalten bei Rotation durch die Kristallstruktur und -orientierung beeinflusst wird.

Frequenzabhängige Messungen, die das Verhalten der TH untersuchen, wenn diese im spektralen Bereich der photonischen Bandlücke generiert werden, geben Aufschluss über die Eigenschaften der Photonischen Kristalle im Bandlückenbereich.

Literaturverzeichnis

- [Arm62] ARMSTRONG JA, BLOEMBERGEN N, DUCUING J, PERSHAN PS: *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev. 127(6):1918-1939, 1962.
- [Ban02] BANAEI MG, COWAN AR, YOUNG JF: *Third-order nonlinear influence on the specular reflectivity of two-dimensional waveguide-based photonic crystals*. Technical Report, Department of Physics and Astronomy, Advanced Materials and Process Engineering Laboratory, University of British Columbia, Vancouver, 2002.
- [Ber93] BERGMANN-SCHÄFER: *Lehrbuch der Experimentalphysik - Band III*, 9. Aufl. Walther de Gruyter-Verlag, Berlin - New York, 1993.
- [Bir01] BIRNER A, WEHRSPORN RB, GÖSELE UM, K. BUSCH: *Silicon-based Photonic Crystals*. Adv. Mater. 13(6):377-88, 2001.
- [Blo62] BLOEMBERGEN N, PERSHAN PS: *Light waves at the boundary of nonlinear media*. Phys. Rev. 128(2):606-622, 1962.
- [Blo92] BLOEMBERGEN N: *Nonlinear Optics*. Addison-Wesley Publishing Co. Inc., 1992.
- [Boy03] BOYD RW: *Nonlinear Optics*. Academic Press Amsterdam-London-New York-Paris-Tokio, 2. Edition, 2003.
- [Buh94] BUHLEIER R, LUEPKE G, MAROWSKY G, GOGOLAK Z, KUHL J: *Anisotropic interference of Degenerate 4-Wave-Mixing in crystalline silicon*. Phys. Rev. B 50(4):2425-2431, 1994.
- [Bur71] BURNS WK, BLOEMBERGEN N: *Third-Harmonic Generation in absorbing media of cubic or isotropic symmetry*. Phys. Rev. B 4(10):3437-50, 1971.
- [Cow05] COWAN AR, YOUNG JF: *Nonlinear optics in high refractive index contrast periodic structures*. Semicond. Sci. Technol. 20:41-56, 2005.
- [Dat94] DATENBLATT: *Fa. Spectroscopy Instrument GmbH*. Technischer Bericht, 1994.
- [Die03] DIEM M: *Beschreibung der optischen Eigenschaften periodisch strukturierter dünner dielektrischer Filme mit Methoden der diffraktiven Optik*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 2003.
- [Eic98] EICHLER J, EICHLER HJ: *Laser*. Springer Verlag, Berlin, 1998.
- [Eic04] EICHLER J, DÜNKEL L, EPPICH B: *Strahlqualität von Lasern*. Laser-Journal 2(10):63-66, 2004.
- [Foe02] FOELL H, CHRISTOPHERSEN M, CARSTENSEN J, HASSE G: *Formation and application of porous silicon*. Materials Science and Engineering R280:1-49, 2002.

- [Gol03] GOLOVAN LA, KUZNETSOVA LP, FEDOTOV AB, KONOROV SO, SIDOROV-BIRYUKOV DA, TIMOSHENKO VY, ZHELTIKOV AM, KASHKAROV PK: *Nanocrystal-size-sensitive third-harmonic generation in nanostructured silicon*. Appl. Phys. B - Lasers and Optics 76(4):429–433, 2003.
- [Joa95] JOANNOPOULOS J, MEADE R und WINN J: *Photonic crystals: Molding the flow of light*. Technical report, Princeton University Press, 1995.
- [Joh87] JOHN S: *Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices*. Phys. Rev. Lett. 58(23):2487–9, 1987.
- [Kem99] KEMPF RW, WILSON PT, CANTERBURY JD, MISHINA ED, AKTSIPETROV OA, DOWNER MC: *Third and fourth harmonic generation at Si-SiO₂ interfaces and in Si-SiO₂-Cr MOS structures*. Appl. Phys. B 68:325–35, 1999.
- [Lae98] LAENEN R, SIMEONIDIS K, LAUBEREAU A: *Parametric generation of synchronized, independently tunable subpicosecond pulses in the midinfrared with adjustable pulse duration*. J. Opt. Soc. Am. B - Opt. Phys. 15(3):1213–1217, 1998.
- [Leh90] LEHMANN V, FOELL H: *Formation mechanism and properties of electrochemically etched trenches in n-type silicon*. J. Electrochem. Soc. 137(2):653–659, 1990.
- [Lue91] LUEPKE G, MAROWSKY G: *3rd-order processes and their relation to structural symmetry*. Appl. Phys. B - Photophysics and Laser Chemistry 53(2):71–81, 1991.
- [Lue94] LUEPKE G, BOTTOMLEY DJ, VAN DRIEL HM: *Second- and third-harmonic generation from cubic centrosymmetric crystals with vicinal faces: phenomenological theory and experiment*. J. Opt. Soc. Am. B, 11(1):33–44, 1994.
- [Lüt03] LÜTH T: *Mikrotechnische Sensoren/Aktoren*. Vorlesung, Technische Universität München, Lehrstuhl für Mikrotechnik und Medizingerätetechnik, 2003.
- [Mar04] MARTEMYANOV MG, KIM EM, DOLGOVA TV, FEDYANIN AA, AKTSIPETROV OA, MAROWSKY G: *Third-harmonic generation in silicon photonic crystals and microcavities*. Phys. Rev. B 70(7):–, 2004.
- [Mat05] MATTHIAS S: *Herstellung und Charakterisierung von 3D-photonischen Kristallen aus makroporösem Silizium*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 2005.
- [Mos86] MOSS DJ, VAN DRIEL HM, SIPE JE: *3rd Harmonic-Generation as a structural diagnostic of ion-implanted amorphous and crystalline silicon*. Appl. Phys. Lett. 48(17):1150–1152, 1986.
- [Mos89] MOSS DJ, VAN DRIEL HM, SIPE JE: *Dispersion in the anisotropy of optical 3rd-harmonic generation in silicon*. Opt. Lett. 14(1):57–59, 1989.
- [Mos90] MOSS DJ, GHAHRAMANI E, SIPE JE, VAN DRIEL HM: *Band-structure calculation of dispersion and anisotropy in $\chi^{(3)}$ for 3rd-Harmonic Generation in Si, Ge, and GaAs*. Phys. Rev. B 41(3):1542–1560, 1990.
- [Mue72] MUELLER P: *IUPAC Manual of Symbols and Technology*. Pure Appl. Chem. 31:578, 1972.

- [Nik97] NIKOGOSYAN DN: *Properties of Optical and Laser-related Materials*. John Wiley & Sons, Chichester, 1997.
- [Pop95] POPOV SV, SVIRKO YP, ZHELUDEV NI: *Susceptibility Tensors for Nonlinear Optics*. Institute of Physics Publishing, Bristol-Philadelphia, 1995.
- [Ric04] RICHTER S: *Periodische Punktdefektstrukturen und Quantenpunktemitter in zwei-dimensionalen Photonischen Kristallen*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle Wittenberg, 2004.
- [Sae01] SAETA PN, MILLER NA: *Distinguishing surface and bulk contributions to third-harmonic generation in silicon*. Appl. Phys. Lett. 79(17):2704–2706, 2001.
- [Sak01] SAKODA K: *Optical Properties of Photonic Crystals*, Band 80 der Reihe *Optical Sciences*. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 2001.
- [Sch02] SCHILLING HJ: *Herstellung und optische Eigenschaften von 2D- und 3D-photonischen Kristallen aus makroporösem Silizium*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 2002.
- [Sip87] SIPE JE, MOSS DJ, VAN DRIEL HM: *Phenomenological theory of optical 2nd-harmonic and 3rd-harmonic generation from cubic centrosymmetric crystals*. Phys. Rev. B 35(3):1129–1141, 1987.
- [Sob05] SOBOLEVA IV, MURCHIKOVA EM, FEDYANIN AA, AKTSIPETROV OA: *Second- and third-harmonic generation in birefringent photonic crystals and microcavities based on anisotropic porous silicon*. Appl. Phys. Lett. 87:241110 (1–3), 2005.
- [Ter62] TERHUNE RW, MAKER PD, SAVAGE CM: *Optical harmonic generation in calcite*. Phys. Rev. Lett. 8(10):404–6, 1962.
- [Tri04] TRIPPENBACH M, MATUSZEWSKI M, INFELD E, VAN CL, TASGAL RS, BAND YB: *Enhancement of third harmonic generation by wave vector mismatch to counter phase-modulation*. Opt. Comm. 229(1-6):391–395, 2004.
- [Tsa95] TSANG TYF: *Optical 3rd-harmonic generation at interfaces*. Phys. Rev. A 52(5):4116–4125, 1995.
- [Wan86] WANG CC, BOMBAK JJ, DONLON WT, HUO CR, JAMES JV: *Optical third-harmonic generation in reflection from crystalline and amorphous samples of silicon*. Phys. Rev. Lett. 57(13):1647–50, 1986.
- [Weh03] WEHRSPORN RB und SCHILLING HJ: *A model system for photonic crystals: macroporous silicon*. Phys. Stat. Sol. (a), 197(3):673–87, 2003.
- [Wol91] WOLFRUM K, HEINZ P: *Feedback-controlled mode-locking operation of a Nd:YLF laser at 1.047 nm*. Opt. Comm. 84(5,6):290–4, 1991.
- [Wol93] WOLFRUM K, LAENEN R, LAUBEREAU A: *Intense bandwidth-limited and diffraction-limited picosecond pulses with large tuning range*. Opt. Comm. 97(1-2):41–46, 1993.
- [Wyn69] WYNNE JJ: *Optical third-order mixing in GaAs, Ge, Si and InAs*. Phys. Rev., 178(3):1295, 1969.

- [Yab87] YABLONOVITCH E: *Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics*. Phys. Rev. Lett. 58(20):2059–62, 1987.
- [Yar95] YARIV A: *Quantum Electronics*. Wiley, New York, 1995.
- [Yod91] YODH AG, TOM HWK, AUMILLER GD und MIRANDA RS: *Generation of tunable midinfrared picosecond pulses at 76 Mhz*. J. Opt. Soc. Am. B - Opt. Phys. 8(8):1663–1667, 1991.
- [Zab04] ZABOTNOV SV, KONOROV SO, GOLOVAN SA, FEDOTOV AB, ZHELTIKOV AM, TIMOSHENKO VY, KASHKAROV PK und ZHANG H: *Phase-matched third-harmonic generation in anisotropically nanostructured silicon*. J. Exp. Theoret. Phys. 99(1):28–36, 2004.
- [Zab05] ZABOTNOV SV, KONOROV SO, GOLOVAN LA, FEDOTOV AB, TIMOSHENKO VY, ZHELTIKOV AM, KASHKAROV PK: *Modification of cubic susceptibility tensor in birefringent porous silicon*. Physica Status Solidi a-Applications and Materials Science 202(8):1673–1677, 2005.
- [Zin98] ZINTH U, KÖRNER HJ: *Physik III*. R. Oldenbourg Verlag München-Wien, München, 3. Auflage, 1998.
- [Zin05] ZINTH W, ZINTH U: *Optik Lichtstrahlen-Wellen-Photonen*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, München, 2005.
- [Zür98a] ZÜRL R, GRAENER H: *High-harmonic generation of mid-IR pulses in simple liquids*. Appl. Phys. B 66:213–16, 1998.
- [Zür98b] ZÜRL R: *Pikosekunden-Ramanspektroskopie nach selektiver Schwingungsanregung*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, 1998.

Anhang A

Berechnung der photonischen Bandstruktur

Ausgehend von den Maxwell-Gleichungen kann die Ausbreitung des Lichts in Photonischen Kristallen beschrieben werden. Man betrachtet diese nun für eine Struktur mit periodisch variierendem Brechungsindex. Da es sich um nichtmagnetisierende Materialien handelt, ist die Permeabilität gleich 1 ($\mu = 1$). Der Kristall besteht aus isotropen Materialien, so dass $\vec{E}(\vec{r}, t)$ und $\vec{D}(\vec{r}, t)$ über eine skalare Größe $\varepsilon(\vec{r}, \omega)$ zusammenhängen. Die Dielektrizität ist eine räumlich variierende skalare Funktion, die frequenzunabhängig ist $\varepsilon(\vec{r}, \omega) = \varepsilon_\omega(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r})$, d.h. es tritt keine Dispersion der Brechungsindizes der Materialien auf. Wird noch die Absorption vernachlässigt, so ist die Dielektrizitätskonstante rein reell. Unter Berücksichtigung all dieser Einschränkungen vereinfachen sich die Maxwell-Gleichungen bezogen auf den Photonischen Kristall wie folgt:

$$\nabla \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = \nabla \varepsilon(\vec{r}) \varepsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.1})$$

$$\nabla \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \nabla \cdot \vec{H}(\vec{r}, t) = 0 \quad (\text{A.2})$$

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (\text{A.3})$$

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \varepsilon(\vec{r}) \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (\text{A.4})$$

Dabei sind \vec{E} das elektrische Feld, \vec{D} die dielektrische Verschiebung, \vec{H} das magnetische Feld und \vec{B} die magnetische Flussdichte. Durch Eliminieren von $\vec{E}(\vec{r}, t)$ oder $\vec{H}(\vec{r}, t)$ in den Gleichungen (A.3) und (A.4) erhält man die Wellengleichungen für das E- bzw. H-Feld:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\varepsilon_0}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (\text{A.5})$$

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) \right) = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (\text{A.6})$$

c steht hier für die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ($c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$). Die Gleichungen (A.5) und (A.6) müssen nun für den Photonischen Kristall gelöst werden. Für einen unendlichen Kristall lässt sich die Zeitabhängigkeit mittels des Ansatzes harmonischer Wellen separieren:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r}, \omega) e^{i\omega t} \quad (\text{A.7})$$

$$\vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{H}(\vec{r}, \omega) e^{i\omega t} \quad (\text{A.8})$$

Für die Wellengleichungen (A.5) und (A.6) ergibt sich damit

$$\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, \omega) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (\text{A.9})$$

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, \omega) \right) - \frac{\omega^2}{c^2} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (\text{A.10})$$

Die Lösungen dieser Gleichungen bilden die Grundlage für die Beschreibung des unendlichen Kristalls. Es ist ausreichend, nur eine der beiden Wellengleichungen (A.9) oder (A.10) zu lösen. Die Lösung für das andere Feld kann unter Berücksichtigung von (A.3) und (A.4) erhalten werden. Aufgrund der Hermitizität ist es vorteilhaft, die Gleichung (A.10) für das magnetische Feld zu lösen. Dies ist eine Eigenwertgleichung mit dem Operator $\Theta = \nabla \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \nabla \times$ und den reellen Eigenwerten $\frac{\omega^2}{c^2}$. Die Eigenwerte und die Eigenfunktionen $\vec{H}(\vec{r})$ bilden ein vollständig orthogonales System.

Des weiteren besitzt Gleichung (A.10) die Eigenschaft der Skaleninvarianz. Streckt man die bekannte Anordnung der dielektrischen Medien im Photonischen Kristall um einen Faktor s , so erhält man:

$$\epsilon'(\vec{r}') = \epsilon(\vec{r}'/s) \quad \vec{r}' = s\vec{r}, \nabla' \rightarrow \nabla/s \quad (\text{A.11})$$

Die Frequenzen der photonischen Bandstruktur und die Feldverteilung werden ebenfalls reskaliert gemäß

$$\vec{H}'(\vec{r}') = \vec{H}(\vec{r}'/s) \quad (\text{A.12})$$

$$\omega' = \omega/s \quad (\text{A.13})$$

Man muss demzufolge nur die Eigenfunktionen und die Frequenzen mit dem gleichen Faktor s strecken und erhält sofort alle Informationen über das neue System.

Ein unendlich ausgedehnter Kristall wird durch die räumlich periodische Funktion $\varepsilon(\vec{r})$ beschrieben, für die gilt $\varepsilon(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r} + \vec{R})$. \vec{R} ist dabei ein beliebiger Gittervektor im Kristall. Wegen der Periodizität von $\varepsilon(\vec{r})$ erweist sich für die Lösung von (A.9) oder (A.10) das in der Festkörperphysik angewandte Blochtheorem als sehr nützlich. Dies besagt, dass sich die um einen Gittervektor verschobenen Wellen von den ursprünglichen Wellen nur um einen Phasenfaktor unterscheiden können. Für die Maxwell-Gleichungen kann dann wie folgt formuliert werden: für eine periodisch modulierte Dielektrizität $\varepsilon(\vec{r})$ lassen sich die Lösungen für das elektrische $\vec{E}(\vec{r}, \omega)e^{i\omega t}$ oder das magnetische Feld $\vec{H}(\vec{r}, \omega)e^{i\omega t}$ als ebene Welle $e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)}$ beschreiben, die von einer gitterperiodischen Funktion, der Blochfunktion $u_{\vec{k}}(\vec{r})$, moduliert ist. Die durch einen Kristall propagierenden Blochzustände lassen sich alle durch einen Wellenvektor \vec{k} , der innerhalb der ersten Brillouin-Zone im reziproken Gitter liegt, beschreiben [Cow05]. $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ ist eine Funktion, die invariant unter Translationen um einen Gittervektor, d.h. einer Linearkombination der primitiven Translationen, ist. Jeder Eigenmode mit einer Frequenz ω ist demnach ein Gittervektor \vec{k} zugeordnet. Für das magnetische Feld kann nun geschrieben werden:

$$\vec{H}(\vec{r}, \omega) = e^{i\vec{k}\vec{r}} u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) \quad (\text{A.14})$$

Die Eigenzustände des magnetischen Feldes sind demnach charakterisiert durch ihren Wellenvektor \vec{k} und den Bandindex n . Aufgrund der Translationsinvarianz des Gitters sind die Lösungen durch die erste Brillouin-Zone bestimmt und u wird beschrieben durch:

$$u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) = u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r} + \vec{R}) \quad (\text{A.15})$$

Für die Berechnung der Dispersionsrelation, dem Zusammenhang zwischen der Frequenz ω und dem Wellenvektor \vec{k} , benutzt man die Entwicklung nach ebenen Wellen (plane wave expansion method). Setzt man die Blochfunktion in die Wellengleichung (A.10) ein, so ergibt sich

$$\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})}(\vec{i}\vec{k} + \nabla) \times \left((\vec{i}\vec{k} + \nabla) \times u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) \right) = \frac{\omega^2}{c^2} u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) \quad (\text{A.16})$$

Wegen ihrer Gitterperiodizität kann man $\varepsilon(\vec{r})$ und $u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r})$ in Analogie zur Festkörperphysik in Fourierreihen entwickeln,

$$\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} = \sum_{\vec{G}} \zeta_{\vec{G}} e^{i\vec{G}\vec{r}} \quad (\text{A.17})$$

$$u_{n,\vec{k}}^H(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} u_{\vec{G}} e^{i\vec{G}\vec{r}} \quad (\text{A.18})$$

wobei \vec{G} einen reziproken Gittervektor und $u_{\vec{G}}$ und $\zeta_{\vec{G}}$ die Fourierkoeffizienten darstellen. Gleichung (A.17) und (A.18) werden nun in (A.16) eingesetzt und ein Koeffizientenvergleich durchgeführt. Man erhält ein homogenes Gleichungssystem, das aus N Gleichungen besteht. Die Eigenwerte $\omega_{n,\vec{k}}$ bestimmt man aus der Koeffizientendeterminante. Wählt man einen bestimmten Pfad innerhalb der ersten Brillouin-Zone, für dessen \vec{k} -Werte man die Frequenzen $\omega_{n,\vec{k}}$ berechnet, so können die erhaltenen Lösungen in einem Banddiagramm (siehe Abbildung A.1) dargestellt werden.

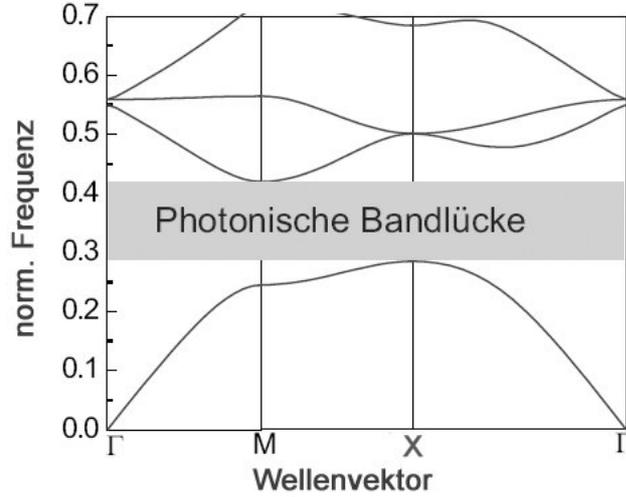


Abbildung A.1: Photonische Bandstruktur eines 2D-Kristalls mit quadratischem Gitter.

Die Darstellung erfolgt entlang der fett gedruckten Linien in Abb.2.2 (normierte Frequenz $f_{norm} = \frac{\omega a}{2\pi c} = \frac{a}{\lambda}$) nach [Ric04].

Auf der Abszisse trägt man die normierten \vec{k} -Werte des Pfades und auf der Ordinate die normierten Frequenzen $\frac{\omega a}{2\pi c}$ auf. Die Lösungen $\omega_{n,\vec{k}}$ bilden für feste n Bänder entlang des Pfades aus. Die Bandstruktur entspricht der Dispersionsrelation $\omega(\vec{k})$ für elektromagnetische Wellen innerhalb des photonischen Kristalls. Aus den Maxwell-Gleichungen folgt, dass sich die spektrale Position der Bandlücke linear zur Gitterkonstanten des Photonischen Kristalls verhält [Weh03].

Anhang B

Nichtlineare Effekte zweiter Ordnung

Der lineare Zusammenhang zwischen elektrischem Feld \vec{E} und der dadurch in einem Medium erzeugten Polarisation \vec{P} gilt nur für kleine Feldstärken.

Der zweite Term in (3.22) beschreibt Effekte zweiter Ordnung, zu denen Frequenzverdopplungsprozesse und Frequenzmischungsprozesse gehören. $\chi^{(2)}$ ist ein Tensor dritter Ordnung mit 27 verschiedenen Elementen. Aufgrund der Vertauschbarkeit der elektrischen Felder lässt sich diese Zahl auf 18 unabhängige Komponenten reduzieren. Dritte und höhere Ordnungen werden für die Beschreibung parametrischer Konversionsprozesse nicht benötigt.

B.1 Frequenzverdopplung und optische Gleichrichtung

Betrachtet man eine monochromatische Welle $E = E_0 \cos(\omega t)$ im verlustfreien nichtlinearen Medium, dann ist, wenn man nur den 2. Term der Polarisation berücksichtigt:

$$P = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t) + (\chi^{(2)} E_0 \cos(\omega t)) E_0 \cos(\omega t) \right) \quad (\text{B.1})$$

Nach Anwendung des Additionstheorems ¹ ergibt sich:

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t) + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left((\chi^{(2)} E_0) E_0 + (\chi^{(2)} E_0) E_0 \cos(2\omega t) \right) \quad (\text{B.2})$$

Die Polarisation enthält neben dem bekannten linearen Anteil P_1 , der mit der gleichen Frequenz ω wie die einfallende Welle schwingt, einen konstanten Term P_0 . Man spricht von optischer Gleichrichtung.

$$P_1 = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E_0 \cos(\omega t) \right) \quad (\text{B.3})$$

$$P_0 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left((\chi^{(2)} E_0) E_0 \right) \quad (\text{B.4})$$

Gleichzeitig erhält man einen Term, der mit der doppelten Frequenz variiert.

$$P_2 = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left((\chi^{(2)} E_0) E_0 \cos(2\omega t) \right) \quad (\text{B.5})$$

Die schwingenden Dipole strahlen wegen P_2 Licht mit der doppelten Frequenz ab, d.h. man er-

¹ $\cos \alpha \cos \beta = \frac{1}{2} (\cos(\alpha - \beta) + \cos(\alpha + \beta))$

hält Frequenzverdopplung. Man nennt dies auch Erzeugung der Zweiten Harmonischen (SHG). Im Photonenbild ausgedrückt, bedeutet dies, dass zwei Photonen der Frequenz ω zu einem Photon der Frequenz 2ω kombinieren. Es sei noch darauf hingewiesen, dass Frequenzverdopplung in Kristallen mit Inversionssymmetrie nicht möglich ist. Ist $\vec{P}(\vec{E})$ für ein bestimmtes Medium eine ungerade Funktion, d.h. dass sich bei einer Richtungsumkehr des elektrischen Feldes gleichzeitig die Richtung von \vec{P} umkehrt, so verschwinden die geraden Potenzen von \vec{E} .

B.2 Frequenzmischung

Werden nun zwei Felder $E_1 = E_{01} \cos(\omega_1 t)$ und $E_2 = E_{02} \cos(\omega_2 t)$ der Frequenz ω_1 und ω_2 eingestrahlt ($\omega_1 > \omega_2$), so treten neben den Oberwellen der Frequenzen ω_1 und ω_2 auch Summen- und Differenzterme $\omega_{3,4} = \omega_1 \pm \omega_2$ auf. Bei Betrachtung des Terms 2. Ordnung in (B.2) ist dies ersichtlich:

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_{01}^2 \cos^2(\omega_1 t) + E_{02}^2 \cos^2(\omega_2 t) + 2E_{01}E_{02} \cos(\omega_1 t) \cos(\omega_2 t)) \quad (\text{B.6})$$

Benutzt man wieder das Additionstheorem ², so erhält man aus (B.6):

$$P = \varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_{01}^2 \cos^2(\omega_1 t) + E_{02}^2 \cos^2(\omega_2 t) + \varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_{01}E_{02} \cos((\omega_1 + \omega_2)t) + E_{01}E_{02} \cos((\omega_1 - \omega_2)t))) \quad (\text{B.7})$$

Die beiden letzten Terme bezeichnen Beiträge bei der Summen- und Differenzfrequenz. (Summenfrequenzerzeugung (SFG) und Differenzfrequenzerzeugung (DFG)).

² $\cos \alpha \cos \beta = \frac{1}{2} (\cos(\alpha - \beta) + \cos(\alpha + \beta))$

Anhang C

Gaußsche Bündel

Für die mathematische Beschreibung eines Gaußstrahles wird angenommen, dass die Ausbreitungsrichtung entlang der z -Achse erfolgt und der Strahlradius bei $z = 0$ einen minimalen Durchmesser, die Strahltaile, aufweist. Für die Feldverteilung gilt in Abhängigkeit des Abstandes r von der Achse mit $r^2 = x^2 + y^2$ und der Entfernung z zur Taille:

$$E(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right) \exp(-ikr + i\Phi(z)) \quad (\text{C.1})$$

Gleichung (C.1) besitzt eine Amplitude, die in r -Richtung durch eine Gauß-Funktion $\exp(-\frac{r^2}{w^2})$ beschrieben wird. Die örtliche Intensitätsverteilung $I \sim |E|^2$ zu dieser Feldstärke ist dann

$$I(r, z) = I_0 \left(\frac{w_0}{w(z)}\right)^2 \exp\left(-\frac{2r^2}{w(z)^2}\right) \quad (\text{C.2})$$

Dabei sind $k = 2\pi/\lambda$ die Wellenzahl, E_0 bzw. I_0 die Werte an der Stelle $r = 0$ bzw. $z = 0$. Die Größe $w(z)$ stellt ein Maß für den lokalen Radius des Gaußschen Strahls entlang der optischen Achse dar. Das elektrische Feld ist für $r = w(z)$ auf $\frac{1}{e}E_0$ abgefallen und die Intensität auf $\frac{1}{e^2}I_0$. $R(z)$ ist der Krümmungsradius und $\Phi(z)$ die räumliche Phasenänderung, die so genannte Gouy-Phase, jeweils an der Stelle z .

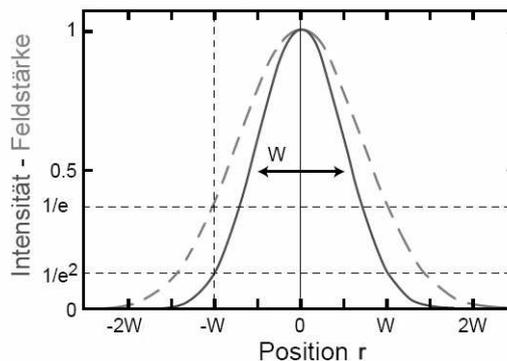


Abbildung C.1: Intensitätsprofil eines Gaußbündels nach [Zin05] (gestrichelt - Feldstärke, durchgezogen - Intensität)

Die volle Halbwertsbreite, d. h. die Stelle, an der die Intensität um die Hälfte ihres Maximalwertes gesunken ist, entspricht dem 0,849-fachen der Bündeltaile im Fokus, was im folgenden bewiesen wird:

Die Intensität des Gaußbündels berechnet sich durch

$$I(r) \propto I_0 \exp\left(-2\frac{r^2}{w(z)^2}\right), \quad (\text{C.3})$$

wobei r für die radiale Ausdehnung und $w(z)$ für einen bestimmten Radius in der Position z steht. Für die Halbwertsbreite wird angenommen

$$I(r) \propto I_0 \exp\left(-\alpha\frac{r^2}{r_H^2}\right) = \frac{1}{2} \quad (\text{C.4})$$

$r_H = 2r$ steht für die volle Halbwertsbreite. Der Faktor α muss nun ermittelt werden. Nach Einfügen von r_H und Auflösung der Gleichung (C.4) nach α ergibt sich

$$\alpha = 4\ln 2 \quad (\text{C.5})$$

Nach Einsetzen erhält man die Gleichung der Intensität bei der Halbwertsbreite

$$I(r) \propto I_0 \exp\left(-4\ln 2\frac{r^2}{r_H^2}\right) \quad (\text{C.6})$$

Durch Gleichsetzen der Gleichungen (C.3) und (C.6) ergibt sich

$$I_0 \exp\left(-2\frac{r^2}{w(z)^2}\right) = I_0 \exp\left(-4\ln 2\frac{r^2}{r_H^2}\right) = \frac{1}{2} \quad (\text{C.7})$$

$$r_H^2 = 2\ln 2 w(z)^2 \quad (\text{C.8})$$

Setzt man nun für $w(z) = w_0$ und löst Gleichung (C.8) nach der Bündeltaile auf, so ergibt sich für die Bündeltaile w_0 :

$$w_0 = 0,849 \cdot r_H \quad (\text{C.9})$$

Für $z = 0$ weist der Gaußsche Strahl einen minimalen Durchmesser auf. Der charakteristische Radius $w(z)$ wird dort gleich w_0 , die Strahltaile. Dies ist der Fokus des Strahls. Die Änderung des Bündelradius entlang der Ausbreitungsachse z berechnet sich wie folgt

$$w(z) = \sqrt{\frac{2}{kz_0}} \sqrt{z^2 + z_0^2} = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}} \quad (\text{C.10})$$

mit

$$w_0 = \sqrt{\frac{2z_0}{k}} = \sqrt{\frac{z_0\lambda}{\pi}} \quad (\text{C.11})$$

für

$$z \gg z_0 \text{ gilt } w(z) = w_0 \frac{z}{z_0} \quad (\text{C.12})$$

Daraus ergibt sich der Divergenzwinkel θ des Bündels in Ausbreitungsrichtung:

$$\theta = \lim_{z \gg z_0} \frac{w(z)}{z} = \arctan \frac{w_0}{z_0} = \arctan \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad (\text{C.13})$$

Die Abhängigkeit des Strahlradius von der Ausbreitungsordinate z ist in Abbildung C.2 dargestellt.

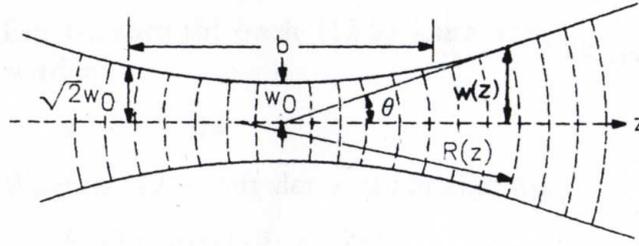


Abbildung C.2: Axiales Profil eines Gaußbündels.

Änderung des Strahlradius $w(z)$ und bei senkrechtem Einfallswinkel der s-polarisierten Fundamentalen zur Einfallsebene des Krümmungsradius $R(z)$ der Wellenfronten [Eic98]

Für den Krümmungsradius folgt:

$$R(z) = z + \frac{z_0^2}{z} \quad (\text{C.14})$$

wobei für $z \gg z_0$ gilt $R(z) = z$
 und für $z \rightarrow 0$ gilt $R(z) \rightarrow \infty$

Die z -Position, an der sich die transversale Intensitätsverteilung auf den $\sqrt{2}$ -fachen Radius aufgeweitet hat, nennt man Rayleigh-Länge z_0 . Sie ist bei gegebener Wellenlänge λ durch die Bündeltaile w_0 über Gleichung (C.15) festgelegt

$$z_0 = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} \quad (\text{C.15})$$

Der Abstand zwischen dem linken und rechten Punkt mit $|z| = z_0$ wird konfokaler Parameter b genannt:

$$b = 2z_0 = \frac{2\pi \cdot w_0^2}{\lambda} \quad (\text{C.16})$$

Je schmaler die Strahltaile ist, umso kleiner ist auch die Rayleigh-Länge und umso schneller divergiert der Strahl (Gleichung (C.13)).

Die Gouy-Phase $\Phi(z)$ liefert einen Phasenunterschied von π beim Übergang von $z < z_0$ zu $z > z_0$.

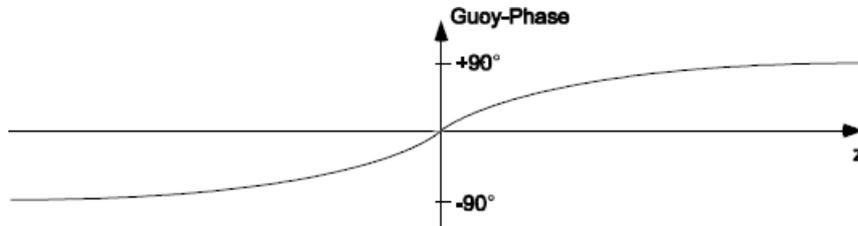


Abbildung C.3: Gouy-Phase

$$\Phi(z) = \arctan \frac{z}{z_0} \quad (\text{C.17})$$

Mit der Annahme, dass sich die Welle in $+z$ -Richtung ausbreitet, liegt für $z < 0$ und genügend großem Abstand zur Strahltaile eine konvergente und für $z > 0$ eine divergente Welle vor. Im

Punkt $z = 0$ (Fokus oder Strahltaile) wechselt also der Krümmungsradius sein Vorzeichen (negativ für konvergent, positiv für divergent). Bei $z = 0$ selbst liegt eine ebene Welle mit gerader Phasenfront vor. Im Fernfeld, d. h. für $z \gg z_0$, nimmt der Strahldurchmesser linear zu, wie man aus Gleichung (C.11) für $w(z)$ entnehmen kann.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation eigenständig und ausschließlich unter Zuhilfenahme der angegebenen Quellen angefertigt habe. Den benutzten Werken wörtlich oder inhaltlich entnommene Stellen sind als solche gekennzeichnet.

Eine Anmeldung der Promotionsabsicht habe ich an keiner anderen Fakultät einer Universität oder Hochschule beantragt.

Halle (Saale), 29.04.2007

Kerstin Mitzschke

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name: Mitzschke, Kerstin
Geburtsdatum/-ort: 17. August 1964 in Halle (Saale)
Adresse: Carl-von-Ossietzky-Str. 9, 06114 Halle

Bildungsweg

1971 - 1981 Polytechnische Oberschule in Halle
1981 - 1983 Abitur an den Spezialklassen für Chemie
an der Technischen Hochschule "Carl Schorlemmer"
Leuna-Merseburg
1983 - 1988 Studium der Physik
an der Technischen Hochschule "Carl Schorlemmer"
Leuna-Merseburg
Diplomarbeit: Röntgenkleinwinkelstreuung an
Kern-Schale-Partikeln

Beruflicher Werdegang

1988 - 1994 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Strahlen-
und Isotopeninstitut an der Akademie der
Wissenschaften der DDR in Leipzig
1994 - 1996 Mitarbeiterin im Reisebüro "Go & Fly" in Halle
1996 - 1999 Assistentin der Niederlassungsleitung
der Wendeln Brot Halle-Leipzig GmbH & Co. KG
in Halle
1999 - 2001 Wissenschaftliche Mitarbeiterin bei der
SWU Gesellschaft für Umwelttechnik mbH in Halle
und Assistentin der Geschäftsleitung
2001 - 2003 Projektkoordinatorin an der Kinderklinik der
Medizinischen Fakultät der Martin-Luther-Universität
Halle-Wittenberg
2003 - 2006 Wissenschaftliche Mitarbeiterin an der Naturwissen-
schaftlichen Fakultät II der MLU, Institut für Physik/Optik
seit 12/2006 Tätigkeit als Projektleiterin
für die Fa. SCHWIND eye-tech-solutions GmbH & CO.KG
in Kleinostheim / Betriebsstätte Halle

Halle(Saale), 29.04.2007

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die mich in den letzten Jahren unterstützten und zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Heinrich Graener für die Betreuung meiner Dissertation und die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Physik durchführen zu können. Ich danke ihm für die zahlreichen motivierenden Diskussionen und für seine Anregungen bei experimentellen und theoretischen Problemen und die daraus entstandenen Lösungsansätze.

Herrn Prof. Dr. Wolfram Hergert danke ich für die Berechnungen zur Beschreibung der Experimente sowie für hilfreiche Diskussionen zu theoretischen Fragen.

Herrn PD Dr. Gerhard Seifert danke ich für seine Diskussionsbereitschaft bei vielen fachlichen Fragen, seine wertvollen Tipps und die kompetente Unterstützung in jeder Hinsicht.

Herrn Dr. Sven Matthias und Herrn Dipl. Phys. Andreas Langner möchte ich für die Herstellung und Bereitstellung der Photonischen Kristalle und die nützlichen Diskussionen über deren Struktur danken.

Herrn Dr. Marko Bartel möchte ich ganz besonders danken für seine Einführung in das Laser-Setup, die Bereitstellung seines Erfahrungsschatzes bezüglich des Lasers und seine stets sofortige Hilfe und Unterstützung bei experimentellen Fragen.

Herrn Dipl. Phys. Stefan Arnold danke ich für die Unterstützung bei der Erstellung der Arbeit mittels LaTeX, das eine erhebliche Erleichterung des Schreibens darstellte und für seine Bereitschaft zeitnah für aufgetretene Fragen eine Lösung zu finden.

Frau Ingrid Otten danke ich für die Erstellung der Spektren am FTIR-Spektrometer und ihre Geduld bei der Halterung der oft winzigen Proben.

Den Mitarbeitern der Elektronik-Werkstatt danke ich an dieser Stelle für ihre ständige Bereitschaft, die elektronischen Geräte auf Fehler zu prüfen und schnellstmöglichst in Stand zu setzen.

Den Mitarbeitern der Mechanik-Werkstatt möchte ich für die schnelle und präzise Anfertigung verschiedener Bauteile, Drehtische und Probenhalterungen danken, ohne die die Experimente nicht in dieser Art und Weise hätten durchgeführt werden können.

Abschließend gilt mein Dank allen Mitarbeitern der Fachgruppe Optik für die kollegiale Zusammenarbeit und die angenehme Arbeitsatmosphäre.