

Motivation

Nichtlineare optische Spektroskopie liefert Informationen über elektronische und magnetische Eigenschaften von Festkörpern.

Die **Meßgröße** ist in der Regel die **Intensität** des von der Probe emittierten, transmittierten oder reflektierten Lichts.

Beispiel **Second Harmonic Generation (SHG)**:

$$I_{\text{SHG}} \sim |E_{\text{SHG}}|^2 \sim |P_{\text{SHG}}|^2 = |\epsilon_0 \chi E E|^2$$

Die **Suszeptibilität** χ ist eine komplexe Größe.

$$\chi = |\chi| e^{i\psi}$$

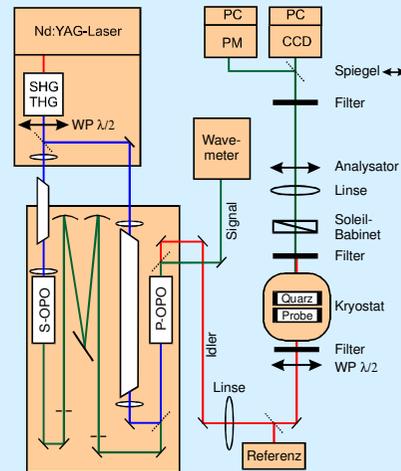
Die Information über die **Phase** ψ geht bei der Intensitätsmessung verloren.

Ziel: **Phasenmessung** durch Interferenz von E_{SHG} mit einem Referenzfeld E_{Ref}

Phasenmessung in antiferromagnetischen Halbleitern

In **antiferromagnetischen Halbleitern** ist die Information der Domänenstruktur in der Phase des SHG Signals enthalten.

Experimenteller Aufbau



Die Substanz Cr₂O₃

Kristallstruktur :
 Hexagonale Einheitszelle : a = 5.362Å, c = 13.6Å
 Kristallsymmetrie : 3m (D_{3d})

Antiferromagnetisch unterhalb T_N = 307 K
 Magnetische Symmetrie : 3̄m (D_{3d}(D₃))

Bedingt durch die antiferromagnetische Ordnung ist Cr₂O₃ unterhalb von T_N nicht mehr inversionssymmetrisch.
 => für T < T_N ist SHG in elektrischer Dipolnäherung erlaubt

$$P_{\text{SHG}} = \epsilon_0 \chi E E$$

SHG Beiträge nichtmagnetischen Ursprungs spielen in dem in dieser Arbeit untersuchten Spektralbereich keine Rolle.

χ Tensor Komponenten:

$$\begin{aligned} \chi_{yxx} &= -\chi_{yyy} = \chi_{xxy} = \chi_{xyx} \\ \chi_{xyz} &= \chi_{xzy} = -\chi_{yyz} = -\chi_{zyx} \end{aligned}$$

=> nichtlineare Polarisation für k || z :

$$P_{\text{SHG}} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 2\chi_{yxx} E_x E_y \\ \chi_{yxx} (E_x E_x - E_y E_y) \\ 0 \end{pmatrix}$$

Die Phase der Suszeptibilität χ ist abhängig von der makroskopischen Ordnung der Spins (Domänenstruktur).

Die Referenz

Zur Erstellung eines Interferogramms wird neben dem SH-Proben-signal ein Referenzsignal derselben Wellenlänge benötigt. Als Quelle für das Referenzsignal dient ein Kristall, der hinter der Probe aus der transmittierten Grundwelle SH Licht erzeugt.

Bedingungen für den Referenzkristall:

- der Kristall muß senkrecht zum Proben-signal polarisiertes SH Licht erzeugen,
- der Kristall muß transparent für die SHG Wellenlänge sein,
- die Intensitäten der beiden SH Signale müssen in derselbe Größenordnung liegen.

=> **geeignetes Material: kristalliner Quarz**

nichtlineare Polarisation von kristallinem Quarz:

$$P_{\text{Ref}} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 2\chi_{xyz} E_x E_z + \chi_{xxx} (E_x^2 - E_z^2) \\ -2\chi_{xyz} E_x E_z - 2\chi_{xxx} E_x E_y \\ 0 \end{pmatrix}$$

Abhängig von der Polarisation und der Intensität des Proben-signals werden **x, y oder z-cut-Quarze als Referenzkristall** verwendet.

Methode der SHG Phasenmessung

Dem zu untersuchenden **Probensignal** $E_{\text{SHG}}(\omega)$ wird ein dazu senkrecht polarisiertes **Referenzsignal** $E_{\text{Ref}}(\omega)$ überlagert.

Um die ursprüngliche Phasendifferenz $\psi = \psi_{\text{SHG}} - \psi_{\text{Ref}}$ zwischen den beiden Signalen zu messen, wird sie mittels eines **Phasenschiebers (Soleil-Babinet)** um den Wert ψ_{rel} variiert.

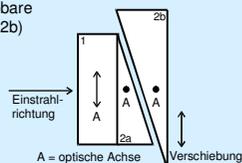
$$\Delta\psi = \psi + \psi_{\text{rel}}$$

Aufbau eines Soleil-Babinet:

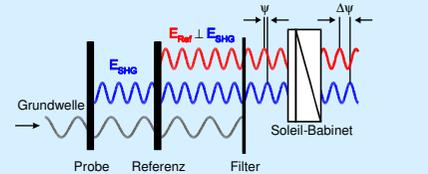
Kompensationskristall (1) + zwei gegeneinander verschiebbare keilförmige Quarzkristalle (2a, 2b)

Phasenverschiebung ψ_{rel} :

$$\psi_{\text{rel}} = \frac{2\pi}{\lambda} (d_2 - d_1) \Delta n$$

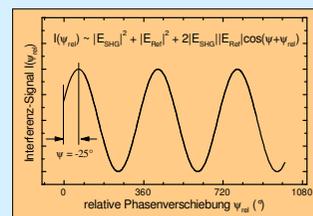
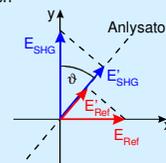


d₁ : Dicke des Kompensationskristalls
 d₂ : Dicke der Quarzkeile
 λ : Wellenlänge
 $\Delta n = n_o - n_e$: Brechungsindexdifferenz



Die Felder $E_{\text{SHG}}(\omega)$ und $E_{\text{Ref}}(\omega)$ werden mittels eines Analysators auf eine gemeinsame Polarisationsrichtung projiziert.

Es wird ein Interferogramm als Funktion der durch den Phasenschieber eingestellten relativen Phasenverschiebung ψ_{rel} aufgenommen.



Die relative Phase ψ_{rel} am ersten Maximum entspricht der Phasendifferenz $-\psi$ zwischen den Feldern $E_{\text{SHG}}(\omega)$ und $E_{\text{Ref}}(\omega)$.

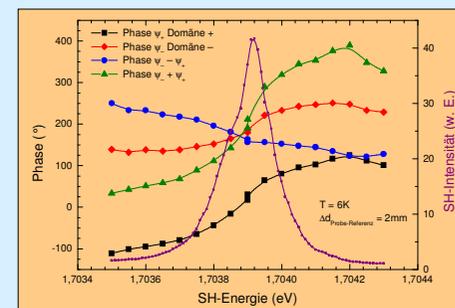
Phasenmessung an Cr₂O₃

Polarisation der Grundwelle entlang der x-Achse der Probe
 => $E_{\text{SHG}} \sim P_y = \epsilon_0 \chi_{yxx} E_x E_x$

y-Achse des Quarzkristalls parallel k-Richtung der Grundwelle
 => $E_{\text{Ref}} \sim P_x = \epsilon_0 \chi_{xxx} E_x E_x$

Messung der Phase zwischen E_{SHG} und E_{Ref} in Cr₂O₃ als Funktion der Energie.

Auf den unterschiedlichen Domänen wird für jede Energie die Phasendifferenz zwischen E_{SHG} und E_{Ref} mittels eines Interferogramms bestimmt.



Zusammenfassung

Vorgestellt wurde eine neue Methode zur ortsaufgelösten SHG-Phasenmessung.

Als erstes Beispiel einer Anwendung wurden die Ergebnisse der Messungen an antiferromagnetischem Cr₂O₃ präsentiert. Weitere Phasenmessungen an hexagonalem YMnO₃ liegen inzwischen vor.

Voraussetzungen für Anwendung dieser Methode:

- die Probe muß für die Anregungswellenlänge transparent sein
- das Probensignal muß linear polarisiert sein
- Probe und Referenzkristall müssen dicht beieinander stehen

Vorteile gegenüber anderen Verfahren zur Phasenmessung:

- das phasenschiebende Element (Soleil Babinet) befindet sich hinter der Probe und dem Referenzkristall
- geringer Platzbedarf
- keine hohen Anforderung an das Strahlprofil des Lasers
- Phasendifferenzmessungen zweier senkrecht zueinander polarisierter SH Komponenten möglich (interne Referenz).
- einfache Auswertung der Meßergebnisse
- kein Strahlversatz
- Intensitätsverhältnisse zwischen Proben- und Referenz-signal von 1:50 bis 50:1 möglich