

Anleitung zum Fortgeschrittenen Praktikum:

Nichtlineare Optik in GaAs



Ansprechpartner:

Dipl.-Phys. Björn Braunschweig

B.Braunschweig@pe.tu-clausthal.de ; Tel: 05323/72-3117 ; Raum 214

1 Einleitung

Zur Untersuchung der Eigenschaften von Ober- und Grenzflächen werden meist Methoden angewandt, die nur unter speziellen Bedingungen wie z.B. Ultrahochvakuum funktionieren. Mit der in diesem Versuch verwendeten, nichtlinear optischen Methode der Erzeugung der zweiten Harmonischen (engl.: Second Harmonic Generation SHG) können Proben auch in situ untersucht werden. Weiterhin ermöglicht das Arbeiten mit kurzen Laserpulsen mit Pulsdauern im Pikosekunden- oder auch im Femtosekundenbereich eine sehr hohe Zeitauflösung für zu untersuchende zeitabhängige Prozesse.

Es sind aber gerade die Grenzflächeneigenschaften, welche maßgeblich für die Eigenschaften von elektronischen Bauteilen verantwortlich sind. Die Untersuchung der Grundlagen dieser Eigenschaften ist für den Bau verbesserter oder neuartiger elektronischer Bauelemente von essentieller Bedeutung.

Der in diesem Versuch untersuchte Halbleiter GaAs besitzt in der Optoelektronik eine wichtige Bedeutung. Gerade weil GaAs im Gegensatz zu Silizium ein direkter Halbleiter ist, wird es oder seine Legierungen in nahezu allen optoelektronischen Anwendungen eingesetzt, wie z.B. beim Bau von Laserdioden oder auch von Halbleiterdetektoren. Dadurch ist GaAs zum Objekt intensiver Forschung geworden.

Aber auch für die SHG-Spektroskopie selbst ist GaAs interessant, denn GaAs bildet auf Grund seiner hohen Symmetrie, die die höchst mögliche Symmetrie für einen Kristall ohne Inversionszentrum ist, ein Modellsystem für optische Frequenzverdopplung im Volumen.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen für den Praktikumsversuch vorgestellt. Eine ausführlichere Herleitung ist u.A. in [3, 4] zu finden.

Die dielektrische Suszeptibilität

3 Die lineare dielektrische Suszeptibilität

Betrachte zunächst in einem einfachen Modell ein schwingungsfähiges gedämpftes System, z.B. Elektronen in einem Atom, welches von außen durch Licht zum Schwingen angeregt werden kann. Eine solche Anregung kann durch ein externes elektrisches Feld $\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot e^{-i\omega t}$ wie z.B. das Laserfeld erfolgen. Die Elektronen im Atom werden zum schwingen angeregt bzw. es werden zeitabhängige Dipole induziert. Diesen Vorgang nennt man Polarisierung. Für die Auslenkung \vec{x} der Elektronen gilt folgende Differentialgleichung(DGL):

$$\frac{e\vec{E}_0 \cdot e^{-i\omega t}}{m} = \ddot{\vec{x}} + \gamma\dot{\vec{x}} + \omega_0^2\vec{x}$$

Mache nun für \vec{x} den Ansatz $\vec{x} = \vec{x}_0 \cdot e^{-i\omega t}$, setze diesen in obige DGL ein und bestimme so \vec{x}_0 .

$$\vec{x}_0 = \frac{e\vec{E}_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)}$$

Das betrachtete System bestehe weiter aus N Atomen im Volumen V , dann ist die gesamte Polarisation \vec{P} gegeben durch:

$$\vec{P} = \sum_{i=1}^N \vec{p}_i = Ne \cdot \vec{x} = \frac{Ne^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)} \vec{E} = N \cdot \alpha(\omega) \vec{E} = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}$$

wobei die Proportionalitätskonstanten α die Polarisierbarkeit des Materials und $\chi^{(1)}$ die lineare dielektrische Suszeptibilität sind. Die lineare dielektrische Suszeptibilität ist ein Tensor 2. Stufe, der betrachtete Fall wo $\chi^{(1)}$ lediglich als Skalar

$$\chi^{(1)} = \chi_{\alpha\beta}^{(1)} = \chi^{(1)} \delta_{\alpha\beta}$$

anzusehen ist gilt nur für kubische Kristalle sowie isotrope Stoffe. In einem anisotropen Material muss der Tensorcharakter von $\chi^{(1)}$ berücksichtigt werden, die Polarisation im Material hängt also von der Kristallrichtung ab. Der allgemeine Ausdruck für die lineare dielektrische Antwort eines polarisierbaren Systems ist daher:

$$P_\alpha = \epsilon_0 \sum_{\beta} \chi_{\alpha\beta}^{(1)} E_\beta$$

Da jedes physikalische System eine endliche Dämpfung besitzt und der Zustand eines Systems von dessen Vergangenheit abhängt (Kausalitätsprinzip), ist die Suszeptibilität also nicht nur eine Funktion der Feldstärke zur Zeit t und des Ortes \vec{r} , sondern auch eine Funktion der Feldstärke aller vorangegangenen Zeiten t' mit $t' < t$. Greift nun ein stark lokalisiertes elektrisches Feld am Ort \vec{r}' an einem Atom im Festkörper an, so wird dieses polarisiert. Die Ladungsverteilung zwischen diesem Atom und den Nachbaratomen verschiebt sich dadurch, und die hervorgerufene Polarisation ist nicht lokal auf den Ort \vec{r}' beschränkt. Die Polarisation am Ort \vec{r} hängt also auch vom elektrischen Feld an benachbarten Orten ab. Im folgenden soll aber diese Nichtlokalität im Ort der elektrischen Suszeptibilität in der sogenannten lokalen Näherung unberücksichtigt bleiben. Im allgemeinen, ist es auch sehr nützlich an dieser eine Fouriertransformation in der Zeit durchzuführen, es gilt somit dann:

$$P^{(1)}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \sum_{\beta} \chi_{\alpha\beta}^{(1)}(\omega) E_\beta(\vec{r}, \omega) \quad (1)$$

4 Definition der nichtlinearen Polarisation und der nichtlinearen Suszeptibilitäten

Unter der Voraussetzung, dass die elektrische Polarisation \vec{P} in eine Potenzreihe der elektrischen Feldstärke \vec{E} entwickelt werden kann ($\vec{E} \ll \vec{E}_{atomar}$), gilt für räumlich homogene Stoffe in lokaler Näherung:

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \dots + \vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (2)$$

mit

$$P_\alpha^{(1)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_{\beta} \int \chi_{\alpha\beta}^{(1)}(t - t') E_\beta(\vec{r}', t') \cdot dt' \quad (3)$$

$$P_\alpha^{(2)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \int \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(t - t_1, t - t_2) \cdot E_\beta(\vec{r}, t_1) E_\gamma(\vec{r}, t_2) \cdot dt_1 dt_2 \quad (4)$$

$$P_{\alpha}^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_{\beta_1 \dots \beta_n} \int \chi_{\alpha\beta_1 \dots \beta_n}^{(n)}(t - t_1, \dots, t - t_n) \cdot E_{\beta_1}(\vec{r}, t_1) \cdots E_{\beta_n}(\vec{r}, t_n) dt_1 \cdots dt_n \quad (5)$$

wobei $\chi_{\alpha\beta_1 \dots \beta_n}^{(n)}$ die Suszeptibilität n-ter Ordnung genannt wird. Die auftretenden Polarisationen sind dabei von elektrischen Feldern der Frequenz ω_i zur Zeit t_i am Ort \vec{r} induziert worden.

5 Nichtlinear optische Prozesse zweiter Ordnung

In diesem Abschnitt sollen nur Terme von $\vec{P}^{(2)}$ betrachtet werden. Das externe elektrische Feld enthalte nur die beiden Frequenzen ω_1 und ω_2 , welche den Frequenzen zweier Laser entsprechen deren Strahlen sich in einem nichtlinearen Medium überlagern. Die auftretenden Prozesse ("Frequenzmischung") sollen nun anhand der Definitionen aus Kap. 4 verdeutlicht werden. Das elektrische Feld sei also nun wie folgt gegeben:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r}, \omega_1) \cdot e^{-i\omega_1 t} + \vec{E}(\vec{r}, \omega_2) \cdot e^{-i\omega_2 t} + c.c. \quad (6)$$

Setzt man nun (6) in (4) ein, so ergibt sich durch Ausmultiplizieren folgender Ausdruck, dessen Terme im weiteren erläutert werden sollen.

$$\begin{aligned} \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) = & \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_1 - \omega_2) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} \\ & + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, 2\omega_1) e^{-2i\omega_1 t} + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, 2\omega_2) e^{-2i\omega_2 t} + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, 0) + c.c. \end{aligned} \quad (7)$$

mit:

- "Summenfrequenz-Polarisation"

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2) = 2\epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega_1) \vec{E}(\vec{r}, \omega_2) \quad (8)$$

- "Differenzfrequenz-Polarisation"

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, \omega_1 - \omega_2) = 2\epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_1, -\omega_2) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega_1) \vec{E}(\vec{r}, -\omega_2) \quad (9)$$

- Polarisation der zweiten Harmonischen

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, 2\omega_i) = \epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega_i, \omega_i) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) \quad (i = 1, 2) \quad (10)$$

- "Optische Gleichrichtung"

$$\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, 0) = \epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\vec{r}, \omega_i, -\omega_i) \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega_i) \vec{E}(\vec{r}, -\omega_i) \quad (i = 1, 2) \quad (11)$$

Man beachte, dass die Summenfrequenz-Polarisation (8) und Differenzfrequenz-Polarisation (9) gegenüber der Polarisation der zweiten Harmonischen (10) einen Faktor Zwei besitzen. Dieser kommt dadurch zustande, dass des Feldes (6) in jeweils beide Ausdrücke für das elektrische Feld in (4) eingesetzt werden müssen.

Durch Anregung des nichtlinearen Mediums mit den beiden Frequenzen ω_1 und ω_2 , wird also eine elektrische Polarisation $\vec{P}^{(2)}$ erzeugt, welche mit den neuen Frequenzen $2\omega_i$, $\omega_1 + \omega_2$, $|\omega_1 - \omega_2|$ und 0 schwingt. Man spricht daher auch von "optischer Frequenzmischung".

6 Erzeugung der zweiten Harmonischen in GaAs

Der Praktikumsversuch behandelt die Erzeugung der zweiten Harmonischen in GaAs. In diesem Abschnitt soll die allgemeine Form der nichtlinearen Wechselwirkungen auf die spezielle Form für die Erzeugung der zweiten Harmonischen an GaAs zugeschnitten werden. Dabei wird die Suszeptibilität $\chi_{ijk}^{(2)}$ in lokaler Näherung betrachtet d.h., dass die Polarisation am Ort \vec{r} nur von der elektrischen Feldstärke am gleichen Ort abhängt.

$$\overleftrightarrow{\chi}^{(2)}(\vec{r}, \omega, \omega) = \delta(\vec{r}) \cdot \overleftrightarrow{\chi}^{(2)}(\omega, \omega)$$

Die lokale Näherung gilt für den Fall, dass sich das elektrische Feld auf einer Längenskala ändert, die groß gegenüber den atomaren Abständen ist. Es werden hierbei nur Beiträge mit der Frequenz 2ω betrachtet, die durch die eingestrahlteten Felder mit der Frequenz ω hervorgerufen werden. Die nichtlineare lokale Polarisation ist dann in Dipolnäherung:

$$P_{\alpha}^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) = \epsilon_0 \sum_{\beta\gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_{\beta}(\vec{r}, \omega) E_{\gamma}(\vec{r}, \omega) \quad (12)$$

GaAs kristallisiert in der sogenannten Zinkblende-Struktur und besitzt eine $\bar{4}3m$ -Symmetrie, aber kein Inversionszentrum wie etwa Silizium.

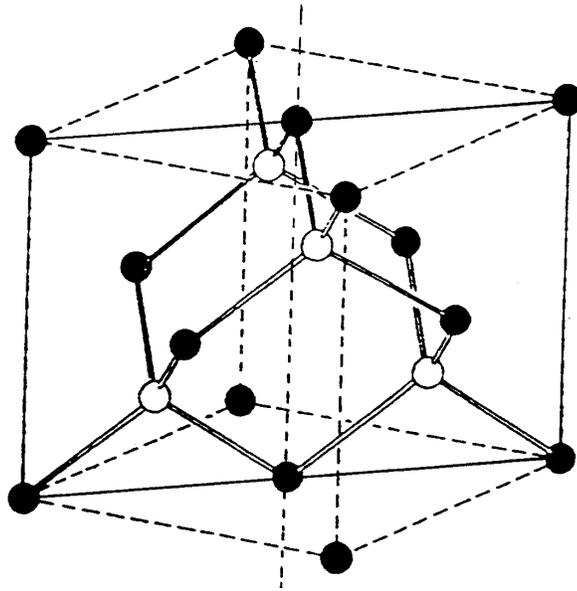


Abbildung 1: Kristallstruktur von GaAs

Einige der Punktsymmetrie-Operationen sind:

- 180° Drehungen um 4-fache Drehinversionsachsen (x-,y- und z-Achse)
- Spiegelung an den Diagonalebene (110), (101) und (011)

Wenden wir nun diese Symmetrie-Operationen auf (12) an. Die Polarisation des eingestrahlteten Lichts sei jeweils so gewählt, dass nur eine Komponente von $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega, \omega)$ zur Polarisation $P_{\alpha}^{(2)}(\vec{r}, 2\omega)$ beiträgt. Bei Anwendung der Operationen auf (12)

ändern sich zwar die Komponenten des \vec{E} -Feldes und der Polarisation, die Suszeptibilität ist jedoch unter diesen Symmetrie-Operationen invariant.

Fall a): Alle Tensorindizes sind gleich, z.B. $\chi_{xxx}^{(2)}(\omega, \omega)$. Dann ist

$$P_x^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) = \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_x(\vec{r}, \omega) E_x(\vec{r}, \omega) \quad (13)$$

nach einer Drehung von 180° um die z-Achse (oder y-Achse) mit $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y, z \rightarrow z$

$$\begin{aligned} -P_x^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) &= \epsilon_0 \chi_{xxx}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_x(\vec{r}, \omega) E_x(\vec{r}, \omega) \\ &\Leftrightarrow \chi_{xxx}^{(2)}(\omega, \omega) = 0 \end{aligned}$$

oder im allgemeinen

$$\boxed{\chi_{\alpha\alpha\alpha}^{(2)}(\omega, \omega) = 0} \quad (14)$$

Fall b): Zwei Tensorindizes gleich, z.B. $\chi_{xyy}^{(2)}(\omega, \omega)$

$$P_x^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) = \epsilon_0 \chi_{xyy}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_y(\vec{r}, \omega) E_y(\vec{r}, \omega) \quad (15)$$

und Drehung um 180° um die z-Achse

$$\Rightarrow \boxed{\chi_{\alpha\beta\beta}^{(2)}(\omega, \omega) = 0} \quad (16)$$

$$\Rightarrow \boxed{\chi_{\alpha\alpha\beta}^{(2)}(\omega, \omega) = 0} \quad (17)$$

Fall c): Alle Tensorindizes sind verschieden. Durch Spiegelung an einer der Diagonalebenen z.B. (110) mit $x \rightarrow y, y \rightarrow x, z \rightarrow z$ kann die Gleichheit der verbliebenen Tensorkomponenten gezeigt werden

$$\begin{aligned} P_x^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{xyz}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_y(\vec{r}, \omega) E_z(\vec{r}, \omega) \\ \Rightarrow P_y^{(2)}(\vec{r}, 2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{xyz}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot E_x(\vec{r}, \omega) E_z(\vec{r}, \omega) \\ \Rightarrow \boxed{\chi_{xyz}^{(2)} = \chi_{xzy}^{(2)} = \chi_{yzx}^{(2)} = \chi_{yxz}^{(2)} = \chi_{zxy}^{(2)} = \chi_{zyx}^{(2)}} &\quad (18) \end{aligned}$$

Auf Grund der Symmetrie von GaAs reduzieren sich also die 27 zur Polarisation beitragenden Komponenten von $\chi^{(2)}$ auf 6 von Null verschiedene Komponenten. Diese sind wie oben gezeigt nicht unabhängig von einander, sondern identisch.

Im allgemeinen können auch noch Terme höherer Ordnung zur zweiten Harmonischen beitragen. So liefern elektrostatische Felder \vec{E}^0 z.B. in Halbleiterrandschichten einen Beitrag 3. Ordnung zur Erzeugung der zweiten Harmonischen:

$$\propto \chi_{ijkl}^{(3)} E_j^\omega E_k^\omega E_l^0$$

Ein Beitrag 4. Ordnung wäre:

$$\propto \chi_{ijklm}^{(4)} E_j^\omega E_k^\omega E_l^\omega E_m^{-\omega}$$

u.s.w..¹

Speziell bei der Messung von eingestrahlt p-polarisiertem Licht und detektiertem p-polarisiertem Licht p/P zeigt sich bei GaAs eine Abweichung vom erwarteten Verhalten. Dieses Verhalten stammt von einem isotropen Oberflächenbeitrag, der allerdings im Vergleich zum Volumenbeitrag gering ist:

$$\chi_{g,zzz}^{(2)}, \chi_{g,xzx}^{(2)} = \chi_{g,xxz}^{(2)}, \chi_{g,zxx}^{(2)} \quad (19)$$

7 Azimutale Abhängigkeit des SHG(Second Harmonic Generation)-Signals von GaAs

Die bisherigen Betrachtungen fanden jeweils im Koordinatensystem des Kristalls statt. Im Experiment sind allerdings die Koordinatensysteme des Labors und des Kristalls verschieden, so dass zwischen diesen eine Koordinatentransformation durchgeführt werden muss. Im folgenden sollen der Einfachheit halber das elektrische Feld und die Polarisation direkt im Kristall betrachtet werden. Für eine Diskussion der Felder im Außenraum müssten noch die jeweiligen Fresnelkoeffizienten der Transmission berücksichtigt werden.

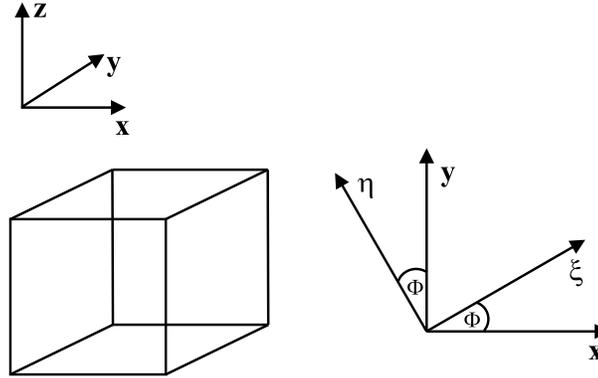


Abbildung 2: Darstellung der beiden Koordinatensysteme

Die Koordinaten transformieren sich dann wie folgt:

$$\begin{aligned} \hat{x} &= \cos \phi \cdot \hat{\xi} - \sin \phi \cdot \hat{\eta} \\ \hat{y} &= \sin \phi \cdot \hat{\xi} + \cos \phi \cdot \hat{\eta} \\ \hat{z} &= \hat{z} \end{aligned} \quad (20)$$

Auf Grund der Symmetrieüberlegungen aus 6 gilt im Kristallkoordinatensystem für die Polarisation der zweiten Harmonischen in GaAs

$$\begin{aligned} P_x^{(2)}(2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{xyz}^{(2)}(\omega, \omega) E_y^\omega E_z^\omega \\ P_y^{(2)}(2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{xyz}^{(2)}(\omega, \omega) E_x^\omega E_z^\omega \\ P_z^{(2)}(2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{xyz}^{(2)}(\omega, \omega) E_x^\omega E_y^\omega \end{aligned} \quad (21)$$

¹Im Praktikumsversuch werden Beiträge durch statische elektrische Felder durch die Verwendung semiisolierender Proben ausgeschlossen, und Beiträge höherer Ordnung können aufgrund der Abhängigkeit vom elektrischen Feld mit höherer Potenz ($\propto E^4, \propto E^6, \dots$) vernachlässigt werden

Wähle nun den einfallenden Strahl im Laborkoordinatensystem p-polarisiert $\vec{E}^\omega = E_{0\xi}^\omega \hat{\xi} + E_{0z}^\omega \hat{z}$, dann lassen sich die Komponenten des \vec{E} -Feldes im Kristallsystem durch die Komponenten im Laborsystem ausdrücken mit (20) ist dann:

$$\begin{aligned} E_x^\omega &= \vec{E}^\omega \cdot \hat{x} = (E_{0\xi}^\omega \hat{\xi} + E_{0z}^\omega \hat{z}) \cdot (\cos \phi \cdot \hat{\xi} - \sin \phi \cdot \hat{\eta}) = \cos \phi \cdot E_{0\xi}^\omega \\ E_y^\omega &= \vec{E}^\omega \cdot \hat{y} = (E_{0\xi}^\omega \hat{\xi} + E_{0z}^\omega \hat{z}) \cdot (\sin \phi \cdot \hat{\xi} + \cos \phi \cdot \hat{\eta}) = \sin \phi \cdot E_{0\xi}^\omega \\ E_z^\omega &= \vec{E}^\omega \cdot \hat{z} = E_{0z}^\omega \end{aligned} \quad (22)$$

Durch Transformation von $\vec{P}^{(2)}(2\omega)$ und einsetzen von (22) in (21) ergibt sich dann ein lineares Gleichungssystem für die Polarisation im Laborkoordinatensystem :

$$P_x^{(2)}(2\omega) = \vec{P}^{(2)}(2\omega) \cdot (\cos \phi \cdot \hat{\xi} - \sin \phi \cdot \hat{\eta}) = 2\epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \sin \phi \cdot E_{0\xi}^\omega E_{0z}^\omega \quad (23)$$

$$P_y^{(2)}(2\omega) = \vec{P}^{(2)}(2\omega) \cdot (\sin \phi \cdot \hat{\xi} + \cos \phi \cdot \hat{\eta}) = 2\epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cos \phi \cdot E_{0\xi}^\omega E_{0z}^\omega \quad (24)$$

$$\begin{aligned} P_z^{(2)}(2\omega) &= P_z^{(2)}(2\omega) = 2\epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot \cos \phi \sin \phi \cdot (E_{0\xi}^\omega)^2 \\ &= \epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot \sin 2\phi \cdot (E_{0\xi}^\omega)^2 \end{aligned}$$

Mit $[\cos \phi \cdot (23) + \sin \phi(24)]$ und $[-\sin \phi \cdot (23) + \cos \phi(24)]$ folgt dann:

$$\begin{aligned} P_\xi^{(2)}(2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot \sin 2\phi \cdot E_{0\xi}^\omega E_{0z}^\omega \\ P_\eta^{(2)}(2\omega) &= 2\epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot \cos 2\phi \cdot E_{0\xi}^\omega E_{0z}^\omega \\ P_z^{(2)}(2\omega) &= \epsilon_0 \chi_{\xi\eta z}^{(2)}(\omega, \omega) \cdot \sin 2\phi \cdot (E_{0\xi}^\omega)^2 \end{aligned} \quad (25)$$

8 In den Außenraum abgestrahltes Feld der zweiten Harmonischen in GaAs

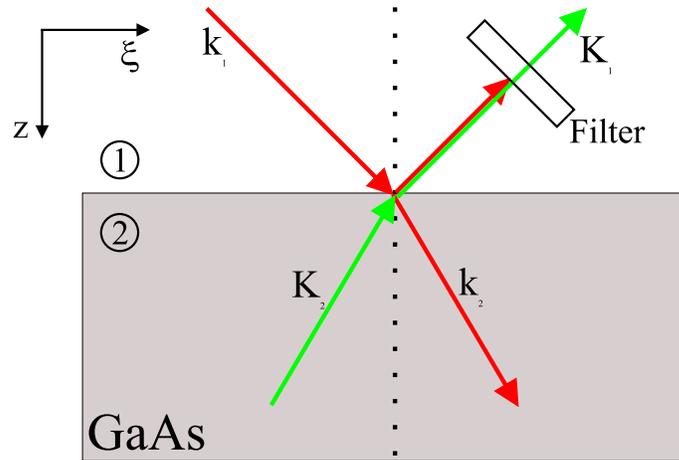


Abbildung 3: Verlauf der k-Vektoren in den Medien Luft und GaAs

Mit dem Ansatz $\vec{E}_s(\vec{r}, 2\omega) = A(\vec{r}, 2\omega) \cdot e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} \cdot \hat{\eta}$ für die s-polarisierte elektrische Feldstärke der zweiten Harmonischen im Volumen von GaAs gilt mit der "Näherung der schwach veränderlichen Amplitude", also dass sich die Amplitude auf einer Längenskala ändert, die klein gegenüber der Wellenlänge ist:

$$\left| \frac{\partial^2 A(z)}{\partial z^2} \right| \ll K_2 \left| \frac{\partial A(z)}{\partial z} \right|$$

Weiterhin soll wegen der Stetigkeit der Komponente parallel zur Oberfläche diese sich in x-Richtung nicht ändern.

Durch Lösen der Maxwell'schen Gleichungen unter Berücksichtigung der nichtlinearen Polarisation zweiter Ordnung folgt für das abgestrahlte s-polarisierte elektrische Feld

$$E_s(-0, 2\omega) \propto -\frac{(2\omega)^2}{\epsilon_0 c^2} P_\eta^{(2)}(2\omega) \quad , \quad (26)$$

wobei $P_\eta^{(2)}(2\omega)$ aus Gleichung (25) bekannt ist. Um nun das abgestrahlte Feld im Außenraum zu erhalten, müssen die Fresnelkoeffizienten für die Transmission der Fundamentalen von der Oberfläche ins GaAs und der Koeffizient für die Transmission der zweiten Harmonischen von GaAs in den Außenraum berücksichtigt werden. Es ergibt sich also

$$E_s(-0, 2\omega) = -\frac{8 \cdot (2\omega)^2}{\epsilon_0 c^2} \cdot F \cdot \chi_{xyz}^{(2)} E_p^2(-0, \omega) \quad (27)$$

mit $F = F(\omega) = const.$ für $\omega = const.$

9 Experimenteller Aufbau

9.1 Aufbau zur Erzeugung und Detektion der zweiten Harmonischen an Halbleitern

Für die SHG-Messungen an Halbleitern in Reflexion wird die Probe mit Pulsen aus dem regenerativen Nd:YAG-Laserverstärker (orange), hier als Fundamentale bezeichnet, bestrahlt und die Photonen der reflektierten zweiten Harmonischen (grün) mit einem Photomultiplier gemessen.

Farbglasfilter entfernen die in der Pockelszelle im regenerativen Verstärker erzeugte zweite Harmonische. Alle im Praktikumsversuch durchzuführenden Messungen werden unter einem Einfallswinkel von 55° durchgeführt. Der Aufbau erlaubt es zudem, mittels einer Schrittmotorverstellung den Azimutwinkel zu variieren. Mit Hilfe eines weiteren Filters wird die Fundamentale aus dem Strahlengang entfernt. Mit einem Analysator kann die zu detektierende Polarisation der zweiten Harmonischen gewählt werden. Detektiert wird die SHG-Strahlung mit einem Photomultiplier, dessen Signal mit einem Integrator aufgenommen und mittels A/D-Wandler digitalisiert wird. Ein vorgesetzter Monochromator filtert unerwünschte Strahlung insbesondere Streulicht heraus.

Mit einer Kombination aus $\lambda/2$ -Platte und einem Analysator kann die Intensität der Fundamentalen durch Drehen der $\lambda/2$ -Platte stufenlos variiert werden. Die $\lambda/2$ -Platte dreht dabei die Polarisation der Fundamentalen und der Analysator lässt nur die eingestellte Polarisation transmittieren. Am Strahlteiler aus Quarzglas wird dann ein Teil der Fundamentalen zum pyroelektrischen Detektor ("Molektron") reflektiert. Mit diesem kann gleichzeitig zur Aufnahme des SHG-Signals, die Pulsenergie dieses Strahls bestimmt werden, welche proportional zur Pulsenergie an der Probe ist. Es ist darauf zu achten, dass die Strecken zwischen Quarz-Platte und "Molektron" sowie Quarzplatte und Probe ungefähr gleich sind.

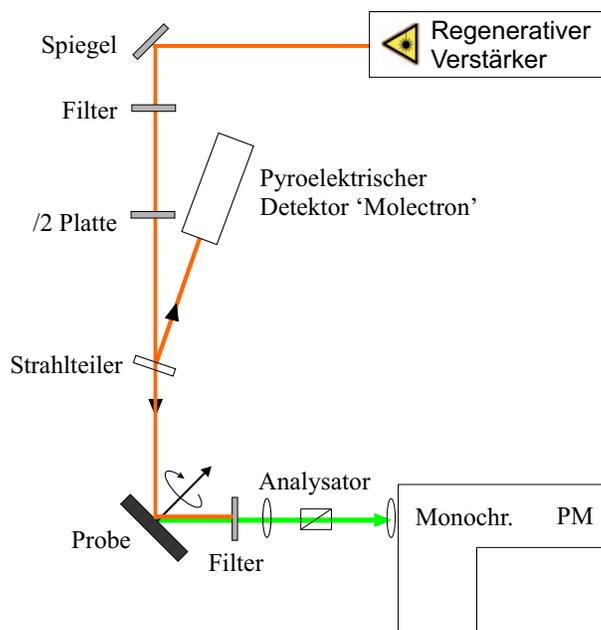


Abbildung 4: Aufbau zur Erzeugung und Detektion der zweiten Harmonischen an Halbleitern

9.2 Aufnahme und Digitalisierung des Messsignals

Die Aufnahme, Digitalisierung und Abspeicherung des Messsignals erfolgt unterstützt durch einen Personalcomputer automatisch. Das Signal des Photomultipliers und des "Molectrons" wird in einem Integrator innerhalb eines Zeitfensters, des sog. "Gates", integriert. Der Integrator liefert eine dem Integral über das Messsignal proportionale Spannung, die mit einem A/D-Wandler digitalisiert wird. Das Gate wird eingestellt, indem es zeitlich um den Messpuls gelegt wird. Messpuls und Gate lassen sich gleichzeitig am Oszilloskop darstellen. Das digitalisierte Messsignal wird vom A/D-Wandler über eine IEEE-Verbindung an den Messrechner übergeben, verarbeitet und abgespeichert. Die Messungen erfolgen mit einer Mittelung über typischerweise einige hundert Pulse für einen eingestellten Azimutwinkel oder eine vorgegebene Intensität. Die Mittelung über diese Pulse wird vom PC durchgeführt.

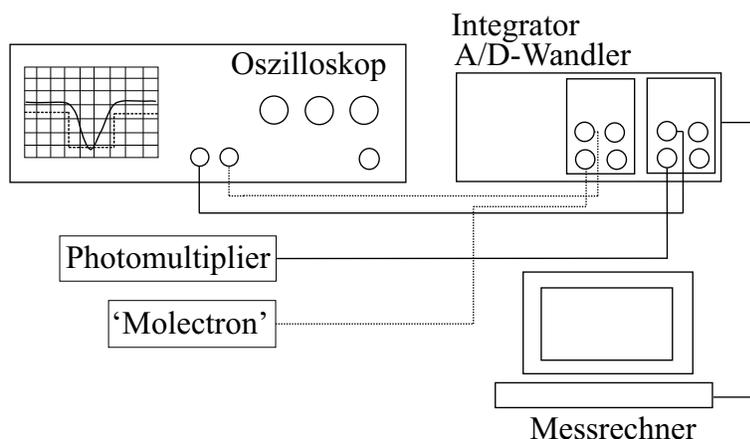


Abbildung 5: Schematische Darstellung der Signalaufnahme und Einstellen des "Gates"

10 Versuchsdurchführung

Zunächst sollen die Handhabung des experimentellen Aufbaus und einige Vorarbeiten diskutiert werden, die zur Durchführung des Praktikumsversuchs unerlässlich sind.

11 Durchführung der Messungen:

11.1 Ausrichtung der Probe im Halter

Unter Umständen ist die Probe nach dem Einbau im Probenhalter verkippt, so dass der Strahl bei einer Drehung "wandert". Um dieses Problem abzustellen, sind am Probenhalter zwei Stellschrauben angebracht, mit denen eine Justage erfolgen kann. Im folgenden ist darauf zu achten, dass der Laser(1064 nm) geblockt ist, und **nur** mit dem HeNe-Justierlaser gearbeitet wird.

Zum Justieren wird die Schutzverkleidung rechts vom Probenhalter entfernt, und der Probenmotor auf eine Position von ca. -70° gefahren. Mit einem an der Wand angebrachten Papier wird die Position des Strahls markiert. Beim Verfahren des Azimutmotors wandert der Strahl zu einer neuen Position. Justiert wird nun, so dass der Strahl in der Mitte zwischen den beiden Positionen liegt.

Beim weiteren Verfahren des Azimutmotors sollte der Strahl nun nicht mehr wandern, andernfalls muss die Prozedur wiederholt werden.

11.2 Umgang mit dem Photomultiplier

Um die Linearität der Photomultiplier zu gewährleisten, ist darauf zu achten, dass das am Oszilloskop abgelesene Messsignal kleiner als 10 mV beträgt. Im allgemeinen braucht die benötigte Hochspannung am Photomultiplier bei der Messung des SHG Volumensignals von GaAs nicht größer als 750V gewählt werden.

Es darf weiter auf keinem Fall die intensive Laserstrahlung der Fundamentalen an den Photomultiplier gelangen, da dieser dabei zerstört werden kann.

11.3 Erste Justage

Zum Auffinden des Messsignals empfiehlt es sich, den Aufbau zunächst einmal grob vorzujustieren. Dies kann zum Einem mit einem HeNe-Justierlaser geschehen. Zum Anderen wird in der Pockelszelle im regenerativen Verstärker schon die zweite Harmonische erzeugt, welche zum Justieren benutzt werden kann, aber beim eigentlichen Experiment herausgefiltert werden muss.

Zum Justieren mit diesem Signal wird die Hochspannung am Photomultiplier auf ca. 300-400 V eingestellt und dann das am Oszilloskop beobachtete Signal durch Verschieben der Linsen vor dem Signalmonochromator maximiert.

Es sollte aber in allen Fällen darauf geachtet werden, dass der Strahl die Mitte der Probe trifft, so dass bei den folgenden Azimutalmessungen der Strahl nicht durch die Probe abgeschnitten wird.

11.4 Einstellungen am Integrator

Nach Justage und Optimierung des Messsignals des Photomultipliers, muss das Gate am Integrator für das Signal eingestellt werden. Dazu werden Signal und Gate gleichzeitig auf dem Oszilloskop dargestellt. Das Gate wird dann so eingestellt, dass es möglichst schmal um den Signalpuls herum liegt.

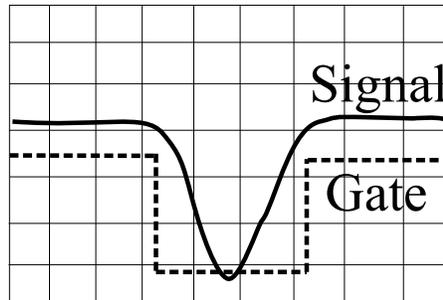


Abbildung 6: Signal und Gate am Oszilloskop

Die Breite des Gates lässt sich mit dem Drehschalter *width* einstellen, die zeitliche Position mit *delay*, und die Empfindlichkeit mit *signal*.



Abbildung 7: Schalter zum Einstellen des Gates

12 Aufgaben

Bestimmung der Abhängigkeit der Intensität der zweiten Harmonischen

In diesem Praktikumsversuch wird GaAs mit der nichtlinear-optischen Methode der Erzeugung der zweiten Harmonischen untersucht.

Untersuchen Sie die Intensitätsabhängigkeit der zweiten Harmonischen anhand des Volumensignals von GaAs. Welche Intensitätsabhängigkeit erwarten Sie?

Nehmen Sie dazu das SHG-Signal in Abhängigkeit von der Energie der anregenden Strahlung auf (Durch Variation der Energie mit einer $\lambda/2$ -Platte und einem Analysator).

Messung des Volumen-SHG-Signals von $\chi_{xyz}^{(2)}$ von GaAs

Messen Sie die Winkelabhängigkeit des SHG-Signals von semiisolierenden GaAs(100). Nehmen Sie dazu das p - und das s -polarisierte SHG-Signal für verschiedene Winkel $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$ bei Anregung mit p -polarisierter Strahlung auf. Sind die Symmetrien der p - und der s -polarisierten SHG-Strahlung von GaAs(100) gleich? Werten Sie die Messungen hinsichtlich ihrer Symmetrie (isotroper und n -zähliger anisotroper Anteil) aus.

Literatur

- [1] Bergmann-Schäfer. *Lehrbuch der Experimentalphysik - Optik*. de Gruyter, 9. Auflage (1993)
- [2] D.L. Mills. *Nonlinear optics: basic concepts*. Springer (1998)
- [3] Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, New York, (1984).
- [4] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).