

2. Methode der SHG

In diesem Kapitel sollen die Grundlagen der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG : second harmonic generation) in Reflexion und die sich daraus ergebenden makroskopisch meßbaren Größen vorgestellt werden. Dabei wird die Darstellung immer dann, wenn es sich anbietet, auf die in den späteren Kapiteln vorzustellenden Messungen ausgerichtet werden. Zuerst sollen die zur Frequenzverdopplung führenden Prozesse dargelegt werden, dann wird der Einfluß einer Magnetisierung auf die Erzeugung der zweiten Harmonischen eingeführt und als letztes die makroskopisch meßbaren Größen vorgestellt. An dieser Stelle sei auf die vielfältige einführende Literatur zur nichtlinearen Optik verwiesen [27, 28, 29, 30].

2.1 Grundlagen der Frequenzverdopplung

Setzt man ein Medium einem äußeren elektrischen Feld \vec{E} aus, so läßt sich für nicht zu große elektrische Felder ($I \leq 10^{10} \text{W/m}^2$) die dadurch in dem Medium erzeugte Polarisation schreiben als (s. z.B.[31]):

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{\chi}(\vec{r}, \vec{q}, \tau) \cdot \vec{E}(\vec{q}, t - \tau) d^3q d\tau \quad , \quad (2.1)$$

mit der sogenannten Suszeptibilität $\vec{\chi}$ des Mediums (lat.: suscipere = empfangen). Wie aus der Gleichung 2.1 ersichtlich ist, enthält die Suszeptibilität räumlich und zeitlich nichtlokale Beiträge, d. h., daß die lokal zur Zeit t am Ort \vec{r} induzierte Polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ von Feldstärken zu vergangenen Zeiten ($t - \tau$) und von Feldstärken an anderen Orten \vec{q} mitbestimmt wird. Die Suszeptibilität ist eine für das jeweilige Medium charakteristische Materialfunktion. Sie ist die Antwortfunktion (response function) des Systems und ein Maß für das „Gedächtnis“ für Feldstärken, die zu vergangenen Zeiten auf das System eingewirkt haben. Damit das Kausalitätsprinzip gewahrt bleibt, muß die Suszeptibilität für negative τ identisch verschwinden. Die Suszeptibilität ist ein Tensor zweiter Stufe, woran man ablesen kann, daß die erzeugte Polarisation nicht notwendigerweise dieselbe Orientierung besitzen muß wie das sie erzeugende Feld.

Für stärkere elektrische Felder gilt dieser lineare Zusammenhang zwischen Polarisation und elektrischem Feld nicht mehr. Es treten anharmonische Elektronenbewegungen auf, so daß Terme höherer Ordnung in \vec{E} der Form :

$$\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \dots \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{\chi}^{(n)}(\vec{r}, \vec{q}_1, \dots, \vec{q}_n, \tau_1, \dots, \tau_n) : \vec{E}_1(\vec{q}_1, t - \tau_1) \cdot \dots \cdot \vec{E}_n(\vec{q}_n, t - \tau_n) d^3\vec{q}_1 \dots d^3\vec{q}_n d\tau_1 \dots d\tau_n, \quad (2.2)$$

in einer Potenzreihenentwicklung der Polarisation berücksichtigt werden müssen :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_{n=1}^{\infty} \vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t) \quad , \quad (2.3)$$

wobei der Suszeptibilitätstensor n . Ordnung $\vec{\chi}^{(n)}$ ein Tensor $(n + 1)$. Stufe ist. Strenggenommen müßten bei den weiteren Betrachtungen neben der intrinsischen Nichtlokalität der Suszeptibilitäten auch die nichtlokalen Beiträge aufgrund der Gradienten der elektrischen Felder $\vec{E}_n(\vec{q}_n, t - \tau_n)$ mitberücksichtigt werden. Innerhalb einer Taylorentwicklung entspräche dieses der Berücksichtigung von elektrischen Quadrupol- und magnetischen Dipoltermen, wie es zum Beispiel in [32] vorgestellt wird. In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten ergeben sich allerdings keine Hinweise auf einen meßbaren Einfluß der nichtlokalen Beiträge. Daher erscheint es legitim, von dieser Stelle an die Nichtlokalität in den Gleichungen nicht weiter mit zu berücksichtigen, wodurch sich die Übersichtlichkeit erhöht. Bezüglich der elektrischen Felder entspricht dieses der Dipolnäherung.

Die Gleichungen 2.1 bis 2.3 gelten im Zeitraum; praktischer ist aber die Darstellung im Frequenzraum. Durch die Fouriertransformation ist eine eindeutige Abbildung der beiden Räume aufeinander gegeben. Durch Fouriertransformation der Gleichung 2.2 ergibt sich unter der Annahme ebener Wellen der Form $\vec{E}_n(t) = \vec{E}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} + c.c.$ für die Polarisation n . Ordnung in der Frequenzdarstellung [31] :

$$\vec{P}^{(n)}(\omega_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} \dots \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{\chi}^{(n)}(\omega_0; \omega_1, \dots, \omega_n) : \vec{E}(\omega_1) \dots \vec{E}(\omega_n) d\omega_1 \dots d\omega_{n-1} \quad , \quad (2.4)$$

wobei $\omega_0 = \omega_1 + \dots + \omega_n$ ist. An der Gleichung 2.4 läßt sich ablesen, daß die bei verschiedenen Frequenzen eingestrahlt elektrischen Felder $\vec{E}(\omega_n)$ zu Polarisationsanteilen führen, die mit Linearkombinationen der Grundfrequenzen schwingen können und damit elektrische Felder generieren. Es ergeben sich also Frequenztransformationen der eingestrahlt Felder, was die Nichtlinearität in der nichtlinearen Optik ausmacht.

Im allgemeinen liegt ein diskretes Frequenzspektrum vor, so daß die Integration in der Gleichung 2.4 in eine Summation über alle zur Verfügung stehenden diskreten Frequenzen übergeht. Diese sind im allgemeinen voneinander verschieden, worauf zum Beispiel die Summenfrequenzmischung beruht (SFG: sum frequency generation, s. z. B. [1]). Ein sehr wichtiger Spezialfall ist ein Frequenzspektrum aus nur einer Frequenz ω . Dabei ergibt sich für die Polarisierung die folgende Form :

$$\vec{P}(\omega_0) = \sum_{n=1}^{\infty} \vec{P}^{(n)}(\omega_0) \quad , \quad (2.5)$$

wobei für die Polarisierung n . Ordnung gilt :

$$\vec{P}^{(n)}(\omega_0) = \vec{\chi}^{(n)}(\omega_0; \omega, \dots, \omega) : \vec{E}(\omega) \dots \vec{E}(\omega) \quad . \quad (2.6)$$

Das Medium ist damit in der Lage, elektrische Felder mit der n . harmonischen Frequenz der einfallenden Strahlung zu erzeugen. Dabei wird auch die zweite Harmonische der eingestrahlten Grundfrequenz generiert (SHG: second harmonic generation) :

$$\vec{P}^{(2)}(2\omega) = \vec{\chi}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) : \vec{E}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad , \quad (2.7)$$

welche in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten zur Anwendung kommt.

Symmetrieeigenschaften

Aus der Symmetrie eines Mediums ergeben sich nun weitere weitreichende Konsequenzen. Nach dem von Neumann'schen Prinzip [33] muß jede eine Materialeigenschaft beschreibende Größe dieselbe Symmetrie wie das Material besitzen. Bei zentrosymmetrischen Medien, wie zum Beispiel kubischen Kristallgittern, in denen Inversionssymmetrie herrscht, muß der Suszeptibilitätstensor n . Ordnung $\vec{\chi}^{(n)}$ invariant gegenüber einer Koordinatentransformation der Form $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ sein, d. h. :

$$\vec{\chi}^{(n)}(\vec{r}) = \vec{\chi}^{(n)}(-\vec{r}) \quad . \quad (2.8)$$

Da ein Tensor $(n+1)$. Stufe aber unter einer orthogonalen Transformation wie das $(n+1)$ -fache Produkt der Koordinaten transformiert, muß ebenso gelten :

$$\vec{\chi}^{(n)}(\vec{r}) = (-1)^{n+1} \cdot \vec{\chi}^{(n)}(-\vec{r}) \quad , \quad (2.9)$$

was für gerade n nur erfüllt werden kann durch $\vec{\chi}^{(n)} \equiv \vec{0}$.

In zentrosymmetrischen Materialien verschwinden in Dipolnäherung also alle geraden Ordnungen der Suszeptibilität. Bei Brechung der Inversionssymmetrie, wie

z. B. an der Oberfläche des Mediums, ist die Erzeugung geradzahlicher Harmonischer aber wieder möglich. Bei Metallen entspricht dieses dem Bereich, in welchem die Elektronendichte noch nicht den Bulkwert angenommen hat, also dem Bereich der Friedeloszillationen des Elektronengases [34], welchem größenordnungsmäßig etwa $5/k_F$ entsprechen (Fermivektor: $k_F^{-1} \approx 1 \cdot 10^{-10}$ m), also die ersten vier bis fünf Atomlagen. Daher ist es üblich, eine effektive Wechselwirkungslänge δz von einigen Atomlagen zu definieren [35], innerhalb derer die geradzahlichen Harmonischen generiert werden.

In elektrischer Dipolnäherung ist bei zentrosymmetrischen Medien die Erzeugung der zweiten Harmonischen also beschränkt auf die Oberfläche des Mediums, wobei mit Oberfläche hier wie im folgenden die obersten, ca. fünf Atomlagen des Mediums gemeint sind.

Die Suszeptibilität $\vec{\chi}^{(2)}$ zweiter Ordnung ist ein Tensor dritter Stufe, d. h. er enthält im allgemeinen 27 Tensorelemente $\chi_{ijk}^{(2)}$, wobei für die i . Komponente der Polarisation zweiter Ordnung gilt :

$$P_i^{(2)} = \delta z \cdot \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k \quad , \quad (2.10)$$

wobei die Summenkonvention verwendet wurde, d. h. über jeweils gleiche Indizes wird summiert. Die Indizes i, j, k durchlaufen dabei die kartesischen Koordinaten x, y, z . Die Reihenfolge der letzten beiden Indizes j und k ist dabei vertauschbar, denn sie beziehen sich jeweils auf elektrische Felder, deren Photonen bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen ununterscheidbar sind. Somit gilt $\chi_{ijk} = \chi_{ikj}$, womit sich die Anzahl unabhängiger Tensorelemente auf 18 reduziert. Der Suszeptibilitätstensor dritter Stufe läßt sich somit durch eine (3×6) -Matrix darstellen. In Dipolnäherung ergibt sich damit für die Polarisation zweiter Ordnung :

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \delta z \cdot \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & \chi_{xzy} & \chi_{xzx} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yzy} & \chi_{yzx} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zzy} & \chi_{zxx} & \chi_{zxy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

In Abhängigkeit von der speziellen Symmetrie eines betrachteten Systems läßt sich die Anzahl der unabhängigen Tensorelemente noch weiter reduzieren. Eine (001)-Oberfläche, welche in einem Teil der Experimente verwendet wird, besitzt 4mm-Symmetrie, so daß lediglich drei unabhängige, nichtverschwindende Tensorelemente übrig bleiben (s. [29]) :

$$\chi_{zzz} \quad , \quad \chi_{zxx} = \chi_{zyy} \quad , \quad \chi_{xzx} = \chi_{yzy} \quad . \quad (2.12)$$

Mit einer optischen Größe, die durch einen Tensor n . Stufe beschrieben wird, können maximal bis zu n -zählige Symmetrien unterschieden werden. Höherzählige Symmetrien sind damit untereinander nicht mehr unterscheidbar. Mit dem Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung, einem Tensor dritter Stufe, können höhere als vierzählige Symmetrien nicht mehr unterschieden werden. Daher kann die Erzeugung der zweiten Harmonischen eine dreizählige (111)-Oberfläche von einer vierzähligen (001)-Oberfläche unterscheiden, aber eine (001)-Oberfläche nicht mehr von einer polykristallinen oder amorphen Oberfläche. Daher können zur Beschreibung der Effekte an den verwendeten polykristallinen und amorphen Proben die für eine 4mm-Symmetrie geltenden Beziehungen übernommen werden, und es gilt für alle in dieser Arbeit untersuchten Oberflächen :

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \delta z \cdot \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{xxx} & 0 & 0 \\ \chi_{xxx} & \chi_{xxx} & \chi_{xxx} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}. \quad (2.13)$$

Mikroskopische Struktur

In der Abbildung 2.1 sind die an der Frequenzverdopplung beteiligten Übergänge und Zustände einmal schematisch dargestellt.

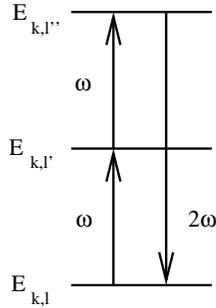


Abbildung 2.1:

Schematische Darstellung der drei beteiligten Übergänge und Zustände bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen in Dipolnäherung.

Auf der Grundlage theoretischer Arbeiten läßt sich ein allgemeiner Ausdruck für die mikroskopische Struktur der einzelnen Tensorkomponenten $\chi_{ijk}^{(2)}$ angeben (s. z. B. [36]) :

$$\chi_{ijk} = \frac{-ie^3}{2q^3\Omega} \sum_{\mathbf{k},l,l',l''} \frac{\langle \Psi_{\mathbf{k},l} | r_i | \Psi_{\mathbf{k},l'} \rangle \langle \Psi_{\mathbf{k},l'} | r_j | \Psi_{\mathbf{k},l''} \rangle \langle \Psi_{\mathbf{k},l''} | r_k | \Psi_{\mathbf{k},l} \rangle}{E_{\mathbf{k},l''} - E_{\mathbf{k},l} - 2\hbar\omega + i\hbar\alpha_{l'l}} \left[\frac{f(E_{\mathbf{k},l''}) - f(E_{\mathbf{k},l'})}{E_{\mathbf{k},l''} - E_{\mathbf{k},l} - \hbar\omega + i\hbar\alpha_{l'l'}} - \frac{f(E_{\mathbf{k},l'}) - f(E_{\mathbf{k},l})}{E_{\mathbf{k},l'} - E_{\mathbf{k},l} - \hbar\omega + i\hbar\alpha_{l'l}} \right], \quad (2.14)$$

mit der Energie $E_{\mathbf{k},l}$ des Zustandes mit dem Index l und dem Impuls \mathbf{k} , dem Photonenimpuls q , der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion $f(E)$, der einfallenden Photonenenergie $\hbar\omega$, den Dämpfungsfaktoren $\alpha_{\nu l}$, dem polarisierten Volumen Ω und den Übergangsmatrixelementen $\langle \Psi_{\mathbf{k},l} | r_i | \Psi_{\mathbf{k},l'} \rangle$, mit $r_i = x, y, z$. Wie an der Gleichung 2.14 abzulesen ist, wird die Stärke eines Überganges zum einen von den Übergangsmatrixelementen, zum anderen von der jeweiligen Besetzungszahldifferenz der beteiligten Zustände, gewichtet durch deren Energienenner, bestimmt. Das zeigt, daß die Effizienz der Erzeugung der zweiten Harmonischen sehr empfindlich von der gegebenen elektronischen Struktur eines Mediums abhängt. So kann es zum Beispiel resonante Überhöhungen geben, wenn die fundamentale oder die verdoppelte Photonenergie mit einem realen Übergang übereinstimmt. Auf der anderen Seite zeigt sich aber auch, daß dynamische Änderungen in der elektronischen Struktur relativ deutliche Änderungen in der Erzeugung der zweiten Harmonischen bewirken können. Solche Änderungen können zum Beispiel durch Änderung der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion oder der Energienenner induziert werden.

2.2 Einfluß einer Magnetisierung

Wie weiter oben ausgeführt, ist die Erzeugung der zweiten Harmonischen an zentrosymmetrischen Medien in Dipolnäherung auf die Ober- bzw. Grenzflächen beschränkt. Die Existenz einer Magnetisierung \vec{M} bricht diese Inversion nicht, da \vec{M} ein axialer Vektor ist, und als solcher seine Orientierung bei einer Inversion beibehält. Aber eine Magnetisierung \vec{M} reduziert die Symmetrie der Oberfläche, was zum Auftauchen neuer nichtverschwindender Tensorelemente führt [9, 10]. So ergeben sich zum Beispiel für den Fall einer (001)-Oberfläche mit der Magnetisierung in der Einfallsebene ($\vec{M} \parallel x$, longitudinale Konfiguration, s. Abb. 2.2) insgesamt zehn unabhängige nichtverschwindende Tensorkomponenten :

$$\chi_{xx}, \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{xy}, \chi_{yx}, \chi_{yy}, \chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{zx}, \chi_{zy} . \quad (2.15)$$

In [9] wird nun gezeigt, daß sich diese Tensorkomponenten in zwei Gruppen aufteilen, wobei die einen ihr Vorzeichen bei einer Magnetisierungskehr wechselt und daher ungerade (odd) genannt werden :

$$\chi_{\text{odd}}^{(2)}(\vec{M}) = -\chi_{\text{odd}}^{(2)}(-\vec{M}) , \quad (2.16)$$

die anderen das Vorzeichen nicht wechseln und daher gerade (even) genannt werden :

$$\chi_{\text{even}}^{(2)}(\vec{M}) = \chi_{\text{even}}^{(2)}(-\vec{M}) . \quad (2.17)$$

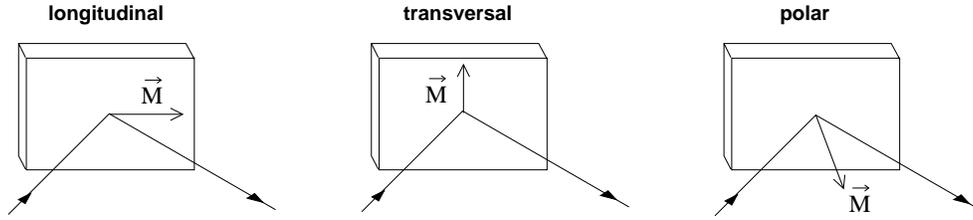


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der longitudinalen, transversalen und polaren Kerr-Geometrie.

Als gerade Tensorcomponenten ergeben sich für die (001)-Oberfläche genau jene, die auch ohne Magnetisierung vorhanden sind, wenn auch zum Teil entartet. Damit läßt sich die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung insgesamt schreiben als :

$$\chi^{(2)}(\vec{M}) = \chi_{\text{even}}^{(2)}(\vec{M}) + \chi_{\text{odd}}^{(2)}(\vec{M}) \quad , \quad (2.18)$$

wobei für die (001)-Oberfläche gilt :

$$\underline{\vec{M} \parallel \hat{x}, \hat{y}, \hat{z}} : \chi_{\text{even}}^{(2)}(\vec{M}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xzx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yzy} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

$$\underline{\vec{M} \parallel \hat{x}} : \chi_{\text{odd}}^{(2)}(\vec{M}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{zzy} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

$$\underline{\vec{M} \parallel \hat{y}} : \chi_{\text{odd}}^{(2)}(\vec{M}) = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yyx} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zzx} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

$$\underline{\vec{M} \parallel \hat{z}} : \chi_{\text{odd}}^{(2)}(\vec{M}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{xzy} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxz} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

2.3 Meßgrößen der SHG

In den vorhergehenden Abschnitten 2.1 und 2.2 wurde untersucht, welche Tensor­komponenten bei einer gegebenen Probensymmetrie prinzipiell auftreten können. Diese beschreiben die Möglichkeit des Materials, auf ein von außen angelegtes Feld mit einer Polarisation zu antworten. Zusätzlich entscheiden die experimentellen Parameter, wie Einfallswinkel, Polarisation, usw. , darüber, ob mit einer bestimmten experimentellen Anordnung überhaupt eine Frequenzverdopplung beobachtbar ist, und wenn ja, welche Tensor­komponenten zur Ausbeute an zweiter Harmonischer beitragen. Außerdem bestimmen sie für eine gegebene Probe wie stark das äußere Feld an einem bestimmten Ort innerhalb der Probe ist, an welchem die zweite Harmonische generiert wird, und wieviel von der erzeugten Frequenzverdoppelten das Material auch wieder verlassen kann. Diese experimentellen Parameter lassen sich in sogenannten Fresneffaktoren berücksichtigen, die vom komplexen Brechungsindex des Probenmaterials $n = n + ik$, dem Einfallswinkel ϑ , dem Polarisationswinkel der Fundamentalen φ und dem Polarisationswinkel der zweiten Harmonischen Φ abhängen, und für jede einzelne Tensor­komponente spezifisch sind. In der Abbildung 2.3 sind die geometrischen Verhältnisse schematisch dargestellt. Der ein- und der ausfallende Strahl spannen dabei die sogenannte Einfallsebene auf. Ein Polarisationswinkel von 0° entspricht dabei einem parallel zur Einfallsebene liegenden Vektor des elektrischen Feldes, und wird daher mit p-Polarisation bezeichnet. Ein Polarisationswinkel von 90° entspricht einem Vektor des elektrischen Feldes, der senkrecht auf der Einfallsebene steht, und wird daher s-Polarisation genannt. Für das generierte elektrische Feld der zweiten Harmonischen läßt sich im Rahmen eines phänomenologischen Modells [35] in Dipolnäherung schreiben :

$$\vec{E}(2\omega) = \frac{2i\omega}{c} \cdot \vec{F}(2\omega) \cdot \chi^{(2)} \cdot \vec{f}(\omega) \cdot |\vec{E}(\omega)|^2 \cdot \delta z \quad , \quad (2.23)$$

mit der in 2.1 definierten effektiven Wechselwirkungslänge δz . Die Größen $\vec{F}(2\omega)$ und $\vec{f}(\omega)$ sind die eben schon zitierten Fresneffaktoren, für welche gilt [35] :

$$\vec{F}(2\omega) = \begin{pmatrix} A_p F_c \cos \Phi \\ A_s \sin \Phi \\ A_p N^2 F_s \cos \Phi \end{pmatrix}, \quad \vec{f}(\omega) = \begin{pmatrix} f_c^2 t_p^2 \cos^2 \varphi \\ t_s^2 \sin^2 \varphi \\ f_s^2 t_p^2 \cos^2 \varphi \\ 2f_s t_p t_s \cos \varphi \sin \varphi \\ 2f_c f_s t_p^2 \cos^2 \varphi \\ 2f_c t_p t_s \cos \varphi \sin \varphi \end{pmatrix}, \quad (2.24)$$

mit den Abkürzungen :

$$\begin{aligned}
 f_s &= \frac{\sin \vartheta}{n(\omega)}, & t_p &= \frac{2 \cos \vartheta}{n(\omega) \cos \vartheta + f_c}, & A_{p/s} &= \frac{2\pi T_{p/s}}{\cos \vartheta} \\
 f_c &= \sqrt{1 - f_s^2}, & t_s &= \frac{2 \cos \vartheta}{\cos \vartheta + n(\omega) f_c}, & N &= n(2\omega)
 \end{aligned}
 \tag{2.25}$$

Kleine Buchstaben beziehen sich dabei auf Größen, die zur eingestrahlenen Fundamentalen gehören; große Buchstaben beziehen sich auf Größen, die zur zweiten Harmonischen gehören. $F_{s/c}$ und $T_{p/s}$ werden dabei analog zu $f_{s/c}$ und $t_{p/s}$ mit N gebildet.

Aus der Gleichung 2.23 wird deutlich, daß in den nichtlinearen Respons einer Probe über die Fresnelkoeffizienten auch lineare optische Eigenschaften mit eingehen. Daher muß man zum Beispiel bei zeitaufgelösten Messungen der zweiten Harmonischen immer auch die Änderungen der linearen optischen Größen berücksichtigen, um eine Aussage über die Änderung der nichtlinearen Größen treffen zu können [37, 38].

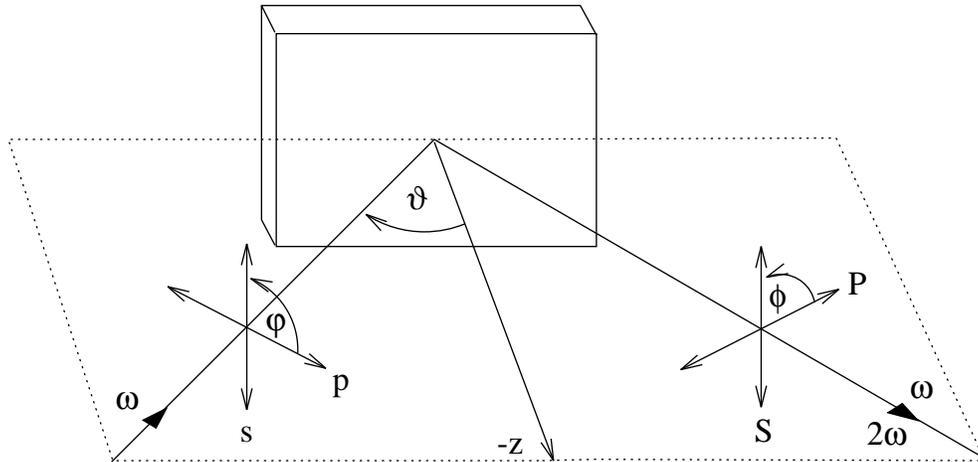


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des ein- und des ausfallenden Strahls. Die Polarisation der Fundamentalen wird mit p oder s bezeichnet, die der Verdoppelten mit P oder S. Gestrichelt ist die Einfallsebene angedeutet.

In Verbindung mit den Gleichungen 2.18 -2.22 lassen sich nun mit der Gleichung 2.23 für alle möglichen Kombinationen der Polarisationswinkel der Fundamentalen φ und der zweiten Harmonischen Φ die beobachtbaren Tensorcomponenten mit ihren spezifischen Fresnel Faktoren für den Fall einer magnetisierten (001)-Oberfläche berechnen. In der Tabelle 2.1 sind die beobachtbaren Tensorcomponenten für die häufigsten Polarisationskombinationen und Magnetfeldrichtungen angegeben, wobei zum Beispiel $s \rightarrow P$ bedeutet, daß die Fundamentale s polarisiert ist und von der zweiten Harmonischen der p-polarisierte Anteil detektiert wird. Dieses wird im folgenden auch oft nur mit s-P oder s-P-Polarisationskombination bezeichnet.

Mit der Polarisation „mix“ ist dabei ein Polarisationswinkel von 45° gemeint. Zur besseren Übersichtlichkeit sind in der Tabelle 2.1 die Bezeichnungen für gerade und ungerade auf „e“ bzw. „o“ verkürzt und oben rechts an die Symbole gestellt.

	$s \rightarrow P$	$s \rightarrow S$	$p \rightarrow P$	$p \rightarrow S$	mix $\rightarrow P$	mix $\rightarrow S$
even $M = 0$	χ_{zyy}^e		$\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e,$ χ_{xzx}^e		$\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e,$ $\chi_{xzx}^e, \chi_{zyy}^e$	χ_{yzy}^e
even $M \neq 0$	χ_{zyy}^e		$\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e,$ χ_{xzx}^e		$\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e,$ $\chi_{xzx}^e, \chi_{zyy}^e$	χ_{yzy}^e
odd $M \parallel \hat{x}$		χ_{yyy}^o		$\chi_{yxx}^o, \chi_{yzz}^o$	$\chi_{xxy}^o, \chi_{zzz}^o$	$\chi_{yxx}^o,$ $\chi_{yyy}^o, \chi_{yzz}^o$
odd $M \parallel \hat{y}$	χ_{xyy}^o		$\chi_{xxx}^o,$ $\chi_{xzz}^o, \chi_{zzx}^o$		$\chi_{xxx}^o, \chi_{xyy}^o,$ $\chi_{xzz}^o, \chi_{zzx}^o$	χ_{yxy}^o
odd $M \parallel \hat{z}$				χ_{yxz}^o	$\chi_{xzy}^o, \chi_{zxy}^o$	χ_{yxz}^o

Tabelle 2.1: Gerade (even) und ungerade (odd) Tensorkomponenten einer (001)-Oberfläche für verschiedene Polarisationskombinationen und verschiedene Magnetisierungsrichtungen.

In einem Experiment zur Erzeugung der zweiten Harmonischen werden nun Intensitäten detektiert, wobei gilt :

$$I(2\omega) = |\vec{E}(2\omega)|^2 \quad . \quad (2.26)$$

Bei einer magnetisierten Probe ergeben sich durch den Vorzeichenwechsel der ungeraden Tensorelemente bei der Magnetisierungsumkehr unterschiedlich hohe Intensitäten für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen. Es ergibt sich :

$$I^{\uparrow\downarrow}(2\omega) \propto |A\chi_{\text{even}}^{(2)} \pm B\chi_{\text{odd}}^{(2)}|^2 I^2(\omega) \quad , \quad (2.27)$$

wobei $\chi_{\text{even}}^{(2)}$ bzw. $\chi_{\text{odd}}^{(2)}$ den geraden bzw. ungeraden Anteil der Suszeptibilität zweiter Ordnung gemäß der Gleichungen 2.19 - 2.22 darstellen und A bzw. B die zugehörigen Fresnelfaktoren sind. Die hochgestellten kleinen Pfeile beziehen sich auf die Umkehrung der Magnetisierung und $I(\omega)$ ist die Intensität der Fundamentalen. Im allgemeinen setzen sich $A\chi_{\text{even}}^{(2)}$ und $B\chi_{\text{odd}}^{(2)}$ dabei aus mehreren Tensorkomponenten mit ihren jeweiligen Fresnelfaktoren zusammen. Für die p-P-Polarisationskombination mit einer Magnetisierung entlang \hat{y} ergeben sich zum Beispiel jeweils drei Tensorkomponenten (s. Tab. 2.1).

Bis zu diesem Punkt hat sich die Diskussion auf linear polarisierte einfallende elektrische Felder beschränkt. Da in einem später vorzustellenden Experiment mit zirkular polarisierter Fundamentalenergie eingestrahlt wird, soll dieser Fall abschließend noch kurz angesprochen werden.

Allgemein läßt sich das fundamentale elektrische Feld schreiben als [39] :

$$\vec{E}(\omega) = |\vec{E}(\omega)| \cdot (\vec{s} \cdot \sin \varphi + e^{i\delta_{sp}} \cdot \vec{p} \cdot \cos \varphi) e^{-i\omega t} \quad , \quad (2.28)$$

wobei \vec{s} und \vec{p} Einheitsvektoren entlang der s- bzw. der p-Polarisationsrichtung sind, δ_{sp} der Phasenwinkel der s- und p-Anteile und φ der Polarisationswinkel der Fundamentalenergie ist. Für $\delta = 0^\circ$ ergibt sich linear polarisiertes Licht ($\varphi = 0^\circ$: p-polarisiert, $\varphi = 90^\circ$: s-polarisiert). Für $\delta = \pm 90^\circ$ und $\varphi = 45^\circ$ ist das Licht rechts- bzw. linkszirkular polarisiert.

Bei linear polarisiertem Licht vereinfacht sich die Darstellung dadurch, daß in den Gleichungen 2.24 wechselseitig entweder die Terme mit $\sin \varphi$ oder die Terme mit $\cos \varphi$ verschwinden. Dieses ist bei zirkularer Polarisation nicht mehr der Fall, und es werden alle Tensorkomponenten, die bei einer gegebenen Symmetrie nicht verschwinden, gleichzeitig angesprochen.

Ohne die länglichen Rechnungen hier vorzuführen, seien die Konsequenzen für den allgemeinen Fall genannt. Eine Magnetisierungsumkehr führt demzufolge zu einem Kontrast, und ein Wechsel der Helizität bei gleicher Magnetisierungsrichtung bewirkt ebenfalls einen Kontrast. Allerdings führt auch schon eine Absorption im Material, also komplexe Anteile in den Fresnelfaktoren, zu unterschiedlichen Intensitäten der zweiten Harmonischen für unterschiedliche Drehrichtung der Fundamentalenergie, außer es wird genau in p- oder s-Richtung analysiert. Von dem Auftreten eines Kontrastes in den Intensitäten zwischen der Anregung mit links- oder rechtszirkular polarisierter Fundamentalenergie allein, kann also nicht direkt auf eine Magnetisierung als Ursache geschlossen werden. Im Gegensatz zum linearen magnetischen Zirkulardichroismus sind bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen die Umkehr der Magnetisierungsrichtung und die Umkehr der Helizität nicht äquivalent.

