

Anhang

Bestimmung der kristallographischen Achsen und der effektiven SH -Koeffizienten

Wie in Kapitel 3 beschrieben, hat SBN in der ferroelektrischen Phase die tetragonale Punktsymmetrie $4mm$. Zur Bestimmung der kristallographischen Achsen und der effektiven nichtlinearen Koeffizienten wurde die Winkelabhängigkeit der SH -Intensität von der Polarisation der Grundwelle untersucht.

Dazu wird die Grundwelle in x -Richtung eingestrahlt und deren Polarisation in der yz -Ebene in Schritten um 360° gedreht (Abb. A1). Ein Winkel $F = 0^\circ$ entspricht also einer z -polarisierten $[x(zi)x]$ und $F = 90^\circ$ einer y -polarisierten Grundwelle $[x(yi)x]$. Die SH -Intensität wird dann mit einer Analysatorstellung in y - $[x(iy)x]$ bzw. z -Richtung $[x(iz)x]$ aufgenommen. Aus diesen charakteristischen Kurven lassen sich die kristallographischen Achsen bestimmen, wie die folgende Analyse für die x -Einstrahlrichtung zeigt.

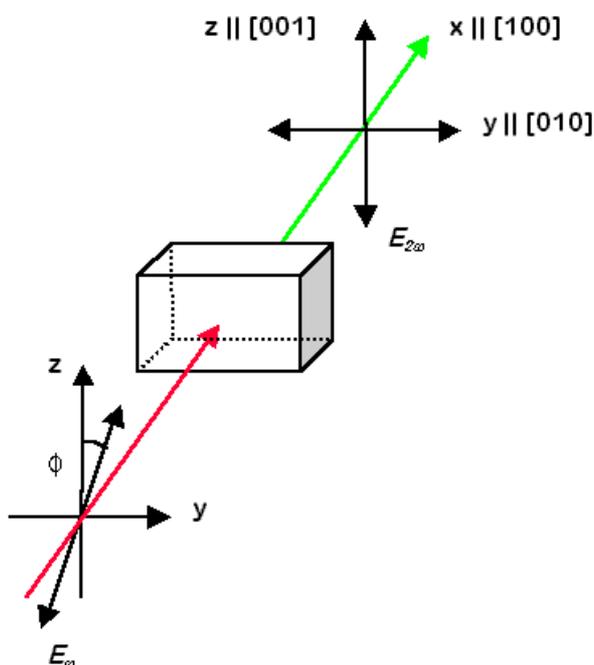


Abbildung A1: Geometrie bei den Winkelmessungen.

Nach Gl. 4.2.1 gilt für die *SH*-Polarisation mit dem nichtlinearen Suszeptibilitätstensor für die tetragonale Punktgruppe 4mm (Gl. 4.2.3) in der Voigt-Notation (Gl. 4.2.2):

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = 2\mathbf{e}_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} = d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_1^2 \\ E_2^2 \\ E_3^2 \\ 2E_2E_3 \\ 2E_3E_1 \\ 2E_1E_2 \end{pmatrix}. \quad (\text{A1})$$

Zusammen mit dem Vektor des elektrischen Feldes $\mathbf{E} = E_0 \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \mathbf{F} \\ \cos \mathbf{F} \end{pmatrix}$ und der

Kleinman-Beziehung^[105] $d_{24} \approx d_{32}$ ergeben sich die frequenzverdoppelten Intensitäten für die *y*- bzw. *z*-Analysatorstellung:

$$\begin{aligned} I_x &\propto P_x^2 = 0 \\ I_y &\propto P_y^2 = 16\mathbf{e}_0^2 E_0^4 d_{31}^2 \sin^2 \mathbf{F} \cos^2 \mathbf{F} \\ I_z &\propto P_z^2 = 4\mathbf{e}_0^2 E_0^4 (d_{31}^2 \sin^4 \mathbf{F} + 2d_{31}d_{33} \sin^2 \mathbf{F} \cos^2 \mathbf{F} + d_{33}^2 \cos^4 \mathbf{F}) \end{aligned} \quad (\text{A2})$$

Die Abb. A2 zeigt die typischen Meßkurven für SBN in *x*- und *z*-Einstrahlrichtung. Eine analoge Rechnung bestätigt, daß bei letzterer keine *SH*-Intensität zu erwarten ist. Zur Bestimmung der effektiven *SH*-Koeffizienten d_{eff}^{SBN} wurde eine Kalibration mit einem phasenangepassten LiNbO₃ Kristall durchgeführt, dessen effektiver *SH*-Koeffizient bekannt ist ($d_{eff}^{LNO} = 5,3 \text{ pm/V}$). LiNbO₃ wurde gewählt, weil die Brechungsindizes mit denen des SBN vergleichbar sind und daher auch die Reflektivitäten beider Systeme gleich sind. Aus diesem Grund ist die effektive *SH*-Intensität S_{ijk} nach Gl. 4.2.4 in vereinfachter Form darstellbar

$$S_{ijk} = \frac{I_{ijk}^{SBN}}{I^{LNO}} = \left(\frac{d_{ijk}^{SBN} \cdot l^{SBN}}{d_{eff}^{LNO} \cdot l^{LNO}} \right)^2. \quad (\text{A3})$$

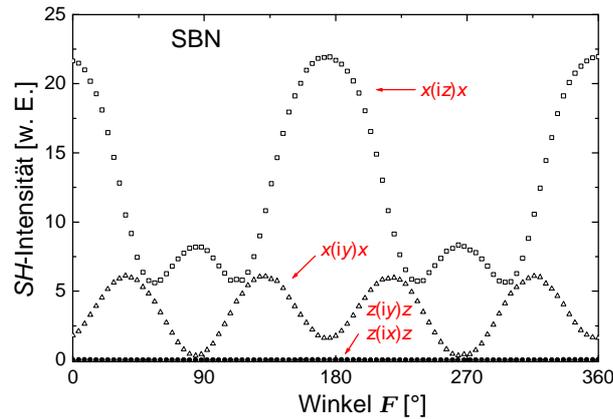


Abbildung A2: SH -Intensität in Abhängigkeit von der Polarisation der Grundwelle in x - und z -Einstrahlrichtung für reines SBN.

Die Abb. A3 zeigt die gemessenen Winkelabhängigkeiten in $x(iz)x$ - und $x(iy)x$ -Streu-
geometrie für SBN: Ce_x mit $x = 0, 0,0066$, und $0,0113$ (Punkte und Dreiecke). Die
Linien sind das Ergebnis einer Anpassung der Daten nach Gl. A2. Aus diesen lassen
sich mit Hilfe von Gl. A3 die effektiven SH -Koeffizienten bestimmen. Die Ergebnisse
befinden sich in Tab. A1. Abb. A3(a) enthält zusätzlich die Daten für das $LiNbO_3$
(Quadrate) und deren Anpassung (Linie).

Die Werte für das undotierte System stimmen mit denen der Theorie im Rahmen der
Fehlergrenzen gut überein.^[106] Sie wurden bei dieser aus den Gitterparametern von SBN
berechnet und ergaben $d_{31} = 5,0 \pm 3,0$ bzw. $d_{33} = 12,8 \pm 3,6$ relativ zum SH -Koeffi-
zienten d_{36} von KDP (Kaliumdihydrogenphosphat). Mit $d_{36}^{KDP} = 0,63 \pm 0,13 \text{ pm/V}$ ^[107]
ergeben sich $d_{33} = 7,4 \pm 3,0$ und $d_{31} = 2,9 \pm 1,74$. Mit steigender Ce^{3+} -Dotierung werden
die Werte für die SH -Koeffizienten jedoch zunehmend kleiner, was eigentlich nicht zu
erwarten ist. Die nichtlinearen Koeffizienten sollten unabhängig von derart kleinen
Dotierungen sein und nur das Verhalten des Wirtsgitters widerspiegeln. Die Ursache
hierfür dürfte im wesentlichen in der nicht vernachlässigbaren Absorption von SBN:Ce
liegen. Mit steigender Dotierung werden die Kristalle dunkelviolet, während das
undotierte System farblos ist. Abb. A4 zeigt den Absorptionskoeffizienten α_e für außer-
ordentlich polarisiertes Licht.^[108]

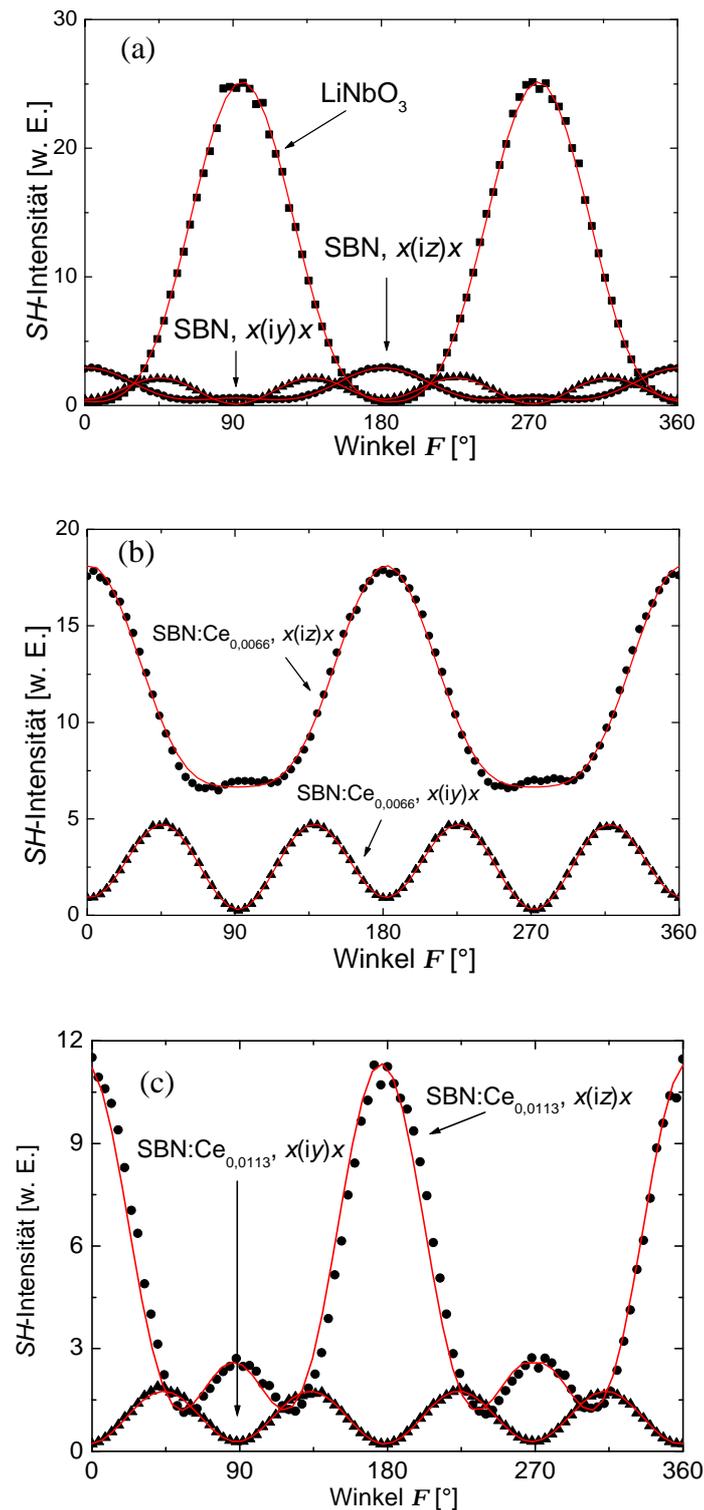


Abbildung A3: Winkelabhängigkeiten der SH -Intensität für SBN:Ce_x mit $x = 0$ (a), 0,0066 (b) und 0,0113 (c) für $x(iy)x$ - und $x(iz)x$ -Streugeometrien. Die Linien repräsentieren die Anpassungen nach Gl. A2.

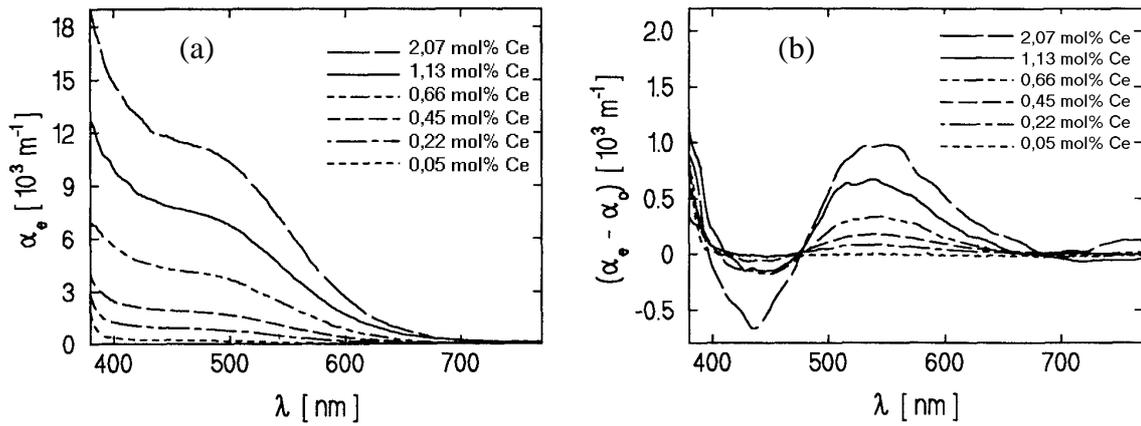


Abbildung A4: (a) Absorptionskoeffizient α_e für außerordentlich polarisiertes Licht in Abhängigkeit der Wellenlänge λ für SBN:Ce_x. (b) Differenz der Absorptionskoeffizienten von außerordentlich und ordentlich polarisiertem Licht, $\alpha_e - \alpha_o$.^[108]

Korrigiert man die effektiven SH -Koeffizienten mit diesen Absorptionsdaten für die Oberwelle ($\lambda = 532 \text{ nm}$), dann kommen die Werte in die Größenordnung der Werte des undotierten Systems. Nach dem Lambertschen Gesetz muß dazu die SH -Intensität I_{ijk}^{SBN} in Gl. A3 ersetzt werden durch $I_0^{SBN} = I_{ijk}^{SBN} \exp(\alpha \cdot l^{SBN})$. Die verbliebenen Abweichungen im Vergleich zu den Werten des undotierten Systems dürften im wesentlichen auf die Absorption der Grundwelle ($\lambda = 1064 \text{ nm}$) zurückzuführen sein. Leider stehen hierfür aber keine Daten über den Absorptionskoeffizienten zur Verfügung. Ungünstiges QPM -Verhalten kann natürlich auch nicht ausgeschlossen werden, was sich an dieser Stelle jedoch nicht überprüfen läßt (siehe Kapitel 7.2). Die absorptionskorrigierten SH -Koeffizienten, d^{abs} sind ebenfalls in Tab. A1 eingetragen.

$x(\text{Ce}^{3+})$	d_{33}^{eff} [pm/V]	d_{13}^{eff} [pm/V]	d_{33}^{abs} [pm/V]	d_{13}^{abs} [pm/V]
0	6,95	3,75	-/-	-/-
0,0066	1,44	0,58	6,44	2,59
0,0113	0,79	0,30	5,23	1,99

Tabelle A1: Ermittelte effektive und absorptionskorrigierte SH -Koeffizienten, d^{eff} und d^{abs} .