

Szélessávú magneto-optikai spektrométer kifejlesztése

DIPLOMAMUNKA

KOCSIS VILMOS

TÉMAVEZETŐ: DR. KÉZSMÁRKI ISTVÁN
Egyetemi docens
BME Fizika Intézet,
Fizika Tanszék



Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem
Fizika Tanszék

2011

Tartalomjegyzék

1. Bevezetés	2
2. Magneto-optikai effektusok elméletének áttekintése	4
2.1. A Magneto-optikai Kerr-effektus (MOKE) fenomenológikus magyarázata	5
2.2. A Magneto-optikai aktivitás mikroszkópikus elmélete	9
3. Polarizáció modulációs mérés technikák	14
3.1. A polarizáció modulációs technika elvi háttere	15
3.2. Polarizáció modulációs spektroszkópia	20
4. Szélessávú MOKE spektrométer fejlesztése	26
4.1. Rácsos monokromátoron alapuló MOKE spektrométer	27
4.2. Fourier-transzformációs MOKE spektrométer	34
4.3. Optikai kriosztát átalakítása MOKE mérésekhez	35
5. Mérési eredmények	37
5.1. Mérési eredmények CuCr_2Se_4 spinell mintán	41
5.2. A spektrométer pontossága és a mérések reprodukálhatósága	46
6. Összefoglalás	52
Függelék	53
A. Spektrométer felépítése	54

1. fejezet

Bevezetés

Az optikai abszorpciós spektroszkópia a kristályos anyagok kutatásának széles körben elterjedt kísérleti eszköze. Segítségével feltérképezhetjük az anyag elektronszerkezetét, vizsgálhatjuk a kristályrács rezgéseit és az elektronok spinjének gerjesztéseit.

További információhoz juthatunk, ha a fény elnyelődésén túl vizsgáljuk polarizációjának megváltozását is az anyaggal való kölcsönhatást követően. Mágneses anyag felületéről való visszaverődés illetve a kristályon való áthaladás során a lineárisan polarizált fény polarizációs síkja elfordul, általános esetben elliptikusan polarizált lesz, melyet magneto-optikai Kerr-effektusnak (MOKE) illetve Faraday-effektusnak nevezünk. A polarizáció elfordulás a gerjesztő fény elektromos terére merőlegesen rezgő, indukált elektromos polarizáció következménye. Tehát ezen jelenségek a Hall-effektus optikai analógjai. Az egyenáramú elektromos transzport jelenségekhez hasonlóan a véges mágnesezettség hatására az optikai vezetőképesség tenzorban is mágneses térben páratlan nem diagonális komponensek jelennek meg.

Magneto-optikai Kerr-effektus felhasználásával vizsgálhatóak az anyagok felületi mágneses tulajdonságai, mivel a polarizáció elfordulás arányos a minta mágnesezettségével. A mágnesezettség optikai úton történő detektálásához nincs szükség szélessávú spektroszkópiára, már egy adott hullámhosszon történő méréssel meghatározhatjuk a minta mágnesezettségének hőmérséklettől vagy mágneses tértől való függését. A módszer egyik előnye, hogy a szokványos indukciót, fluxust vagy forgatónyomatékok mérő módszerekkel ellentétben, itt nem a tömbi, hanem a felületi mágnesezettséget mérjük. Ezért a MOKE ultravékony mágneses filmek vizsgálatára kiváló módszer.

A napjainkban dinamikusán fejlődő MOKE mikroszkópia lehetőséget ad a mágnesezettség és spin dinamika mikronos térbeli felbontású, továbbá piko szekundumos időfelbontású vizsgálatára [1, 2]. Azaz a MOKE mikroszkópiával feltérképezhetjük az anyagok felületi mágneses szerkezetét mikrométeres skálán, amely lehetőséget adott a spin Hall-effektus közvetlen kimutatására [3], sőt, megfigyelhetjük a mágnesezettség relaxációját és spin diffúziós folyamatokat. Félvezető struktúrákban spin állapotok preparációjára és kiolvasására is lehetőség nyílik magneto-optikai módszerekkel. Utóbbiak a spin-alapú kvantum információközlés egy alapvető funkcióját valósítják meg [4].

A polarizációs spektroszkópia különböző válfajai ennél jóval szerteágazóbb kutatásokhoz biztosítanak jó kísérleti módszert. A cirkuláris kettőstörés és dikroizmus spektroszkópia a

mágneses anyagok vizsgálatán túl a fehérjék térszerkezetének kutatásában is igen elterjedt eszköz [5]. A lineáris kettőtörés / dikroizmus spektroszkópiát pedig anizotróp kristályok, polimerek, optomechanikai effektusok vizsgálatában alkalmazzák széles körben [6].

Megemlíthetnék egy biológiai, orvostudományi témát, melyben magneto-optikai vizsgálatok is szerepet kaptak. A malária fertőzés hatására a vérben kicsapódó malária pigmentben a vas mágneses állapota megváltozik, diamágnesesből paramágneses lesz, mely alkalmassá teszi a magneto-optikai vizsgálatok számára és új utat nyithat egy nagy érzékenyséű diagnosztikai eszköz kifejlesztése felé [7].

A szilárdtestfizikai és biológiai alkalmazások mellett, csillagászati vizsgálatokban is mérnek polarizáció változást széles spektrális tartományban; nagy érzékenyséű polarizáció modulációs mérés technikát alkalmaznak asztrofizikai mérések esetén. Müller és Stokes polarimetriával a távoli fényforrások polarizációs tulajdonságait derítik fel. A csillagokból származó fény lényegében polarizálatlan, azonban hosszú ideig tartó mérések kiértékelése során nettó, szekulárisan változó polarizáltságot tapasztaltak. A fény polarizáció változásából következtethetnek az intersztelláris anyag mágneses állapotára, illetve az egyes csillagokat körülvevő mágneses tér tulajdonságaira [8].

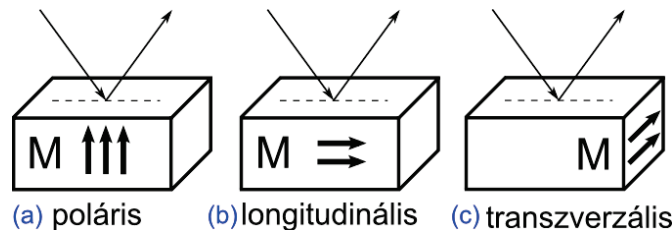
Visszatérve az általam kutatni kívánt szűkebb területre, a szélessávú magneto-optikai spektroszkópia új alternatívákat ad a kristályos anyagok vizsgálatára és új mágneses anyagok kutatására. Segítségével olyan fontos fizikai jellemzőket tanulmányozhatunk, mint a spin függő állapotsűrűség, a spin-pálya és spin-rács csatolás, a kristálytér felhasadás és a kicserélődési kölcsönhatások. Diplomamunkám elsődleges célja egy szélessávú magneto-optikai spektrométer megépítése, mely segítségével jó energia felbontással és nagy pontossággal mérhető az anyagok magneto-optikai aktivitása nagy energiefelbontással és széles, a távoli-infravöröstől ultraibolyáig terjedő foton energia tartományban.

2. fejezet

Magneto-optikai effektusok elméletének áttekintése

Véges mágnesezettséggel rendelkező anyagok felszínére érkező lineárisan polarizált fény polarizációja a visszaverődést követően elfordul, általános esetben elliptikusan polarizálttá válik. Ez a jelenség magneto-optikai Kerr-effektus (MOKE) néven ismert [9], melynek szemléletes magyarázata a következő. A mágneses minta felszínére eső lineárisan polarizált fény felbontható a jobbra és a balra cirkulárisan polarizált állapotok egyenlő arányú, koherens szuperpozíciójára. Ferromágneses anyagok sértik az időtükrözési invarianciát, ezért a két cirkuláris állapotra, melyek egymás időtükrözött párjai, a reflexiók együtttható eltérő lesz. A jobbra és a balra cirkulárisan polarizált fény relatív fázisa és amplitúdója megváltozik a visszaverődő nyalámban, ezért a fény polarizációja elfordul ill. elliptikusan polarizált lesz.

Dolgozatom során mindvégig azzal az esettel fogok foglalkozni, amikor a mágnesesen rendezett minta felszínére közel merőlegesen beérkező fénynyaláb irányába mutat a minta mágnesezettség vektora, azaz a poláris MOKE effektust fogom vizsgálni.



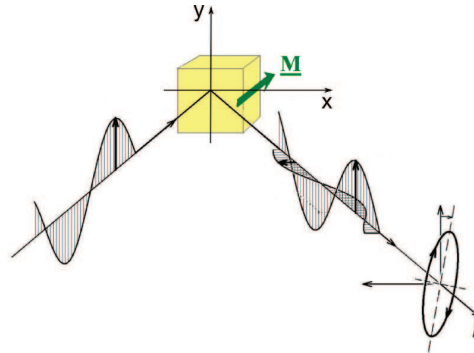
2.1. ábra. Az ábra a különböző elrendezésű mágneses-optikai Kerr-effektustokat mutatja be.

2.1. A Magneto-optikai Kerr-effektus (MOKE) fenomenológikus magyarázata

Mágneses tulajdonságokat mutató közeg és elektromágneses sugárzás kölcsönhatása a Maxwell-egyenletek segítségével követhető nyomon (CGS-egységben):

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \mathbf{D} &= 4\pi\rho, \\ \operatorname{rot} \mathbf{E} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} &= 0, \\ \operatorname{div} \mathbf{B} &= 0, \\ \operatorname{rot} \mathbf{H} - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} &= \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}. \end{aligned} \quad (2.1)$$

Vizsgáljuk meg, hogyan változik a fény polarizációja egy mágnesesen rendezett anyag felszínéről való visszaverődést követően. Helyezkedjen el a ferromágneses anyag felszíne az xy -síkban, az anyag a negatív féltérben, míg a pozitív féltérben vákuum van (2.2 ábra). A minta mágnesezettsége merőleges a minta felszínére és közel párhuzamos a bejövő és kimenő fénynyalábok terjedési irányával.



2.2. ábra. Az ábra a magneto-optikai Kerr-effektust mutatja be. A negatív z értékekhez tartozó féltérrel kitöltő, M mágnesezettségű ferromágneses anyag felületére beérkező lineárisan polarizált fény polarizációja a visszaverődést követően elfordul, elliptikussá válik.

A Maxwell egyenletek megoldását az alábbi, komplex amplitúdójú ($\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}, \mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} \in \mathbb{C}^3$) síkhullám alakban keressük:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}, \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}, \end{aligned} \quad (2.2)$$

ahol $\mathbf{q}$ és ω a monokromatikus síkhullám hullámszámvektora és körfrekvenciája.

A Maxwell-egyenleteket az anyagi egyenletek egészítik ki, melyek a különböző közegek elektromágneses tulajdonságait adják meg:

$$\begin{aligned} \mathbf{D}_{\mathbf{q},\omega} &= \hat{\epsilon}(\omega) \mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} = [1 + 4\pi \hat{\chi}_{EE}(\omega)] \mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}, \\ \mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} &= \hat{\mu}(\omega) \mathbf{H}_{\mathbf{q},\omega} = [1 + 4\pi \hat{\chi}_{HH}(\omega)] \mathbf{H}_{\mathbf{q},\omega}. \end{aligned} \quad (2.3)$$

Az úgy nevezett optikai tartományban, mely alatt jellemzően a spektrum infravöröstől ultraibolyáig terjedő részét értik, a mágneses permeabilitás értéke általában egységnyiinek vehető [10], mivel mágneses gerjesztések általában ennél alacsonyabb frekvencián vannak csak jelen. Az $\hat{\epsilon}$ komplex dielektromos tenzoron keresztül definiálható a szigetelő anyagok $\hat{\sigma}$ optikai vezetőképesége is. Tekintsük a polarizációs áramsűrűséget, amely a szigetelő dielektrikum esetén megadja a polarizációváltozás során fellépő áramsűrűséget $\mathbf{j} = \text{rot}\mathbf{H} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}$ összefüggés szerint, mely Fourier-térben a következő alakú:

$$\mathbf{j}_{\mathbf{q},\omega} = c\mathbf{q} \times \mathbf{M}_{\mathbf{q},\omega} - i\omega\mathbf{P}_{\mathbf{q},\omega} = c\mathbf{q} \times (\hat{\chi}_{HH}\mathbf{H}_{\mathbf{q},\omega}) - i\omega(\hat{\chi}_{EE}\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}) := 4\pi\hat{\sigma}_{\mathbf{q},\omega}\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}.$$

A polarizáció vektor megváltozása és a külső tér által keltett áramsűrűségek között nem teszünk különbséget, bár a szokásos tárgyalásban az egyenáramú határesetben szigetelő anyagok esetén az előbbi lép fel, vezetők esetén pedig csak az utóbbi; ez általánosítja a vezetőképeség fogalmát időben változó terek esetére. Feltéve, hogy $\hat{\mu} \equiv 1$ az érintett frekvencia tartományban, a szigetelő anyagok komplex dielektromos tenzora és optikai vezetőképeség tenzora között az alábbi kapcsolat lesz érvényes:

$$\hat{\epsilon} = 1 + i\frac{4\pi}{\omega}\hat{\sigma}. \quad (2.4)$$

Behelyettesítve a feltételezett síkhullám megoldásokat és az anyagi egyenleteket, az alábbi Fourier-térbeli Maxwell-egyenletekhez jutunk:

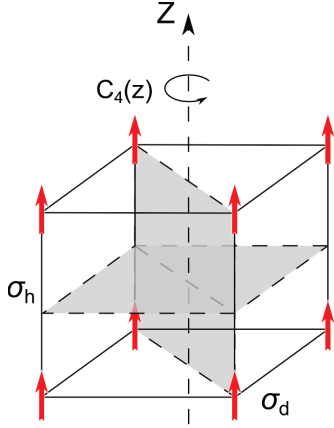
$$\begin{aligned} i\mathbf{q}\hat{\epsilon}\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} &= 0, \\ i\mathbf{q} \times \mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} - \frac{i\omega}{c}\mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} &= 0, \\ i\mathbf{q}\mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} &= 0, \\ i\mathbf{q} \times \mathbf{B}_{\mathbf{q},\omega} + \frac{i\omega}{c}\hat{\epsilon}\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} &= 0. \end{aligned} \quad (2.5)$$

Az első egyenlet a töltéssűrűségekre vonatkozó kontinuitási egyenletet is magába foglalja ($i\omega\rho - i\mathbf{q}\hat{\sigma}\mathbf{E} = 0$). A második és negyedik egyenletek segítségével az alábbi, adott $\mathbf{q}$ esetén $\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}$ -ra vonatkozó lineáris egyenlet rendszert, az úgynevezett hullámegyenletet kapjuk:

$$\mathbf{q} \times (\mathbf{q} \times \mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}) + \frac{\omega^2}{c^2}\hat{\epsilon}\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega} = 0. \quad (2.6)$$

Ez a lineáris egyenletrendszer határozza meg adott $\mathbf{q}$ hullámszámvektor esetén, a törésmutatókat és a hozzájuk rendelhető polarizációs állapotokat. Izotróp közeg esetén a törésmutató tetszőleges terjedési irányra azonos, vagyis az $\hat{\epsilon}$ tenzor egyetlen skalár mennyiséggel jellemezhető. Hasonlóan, kristályos anyagok esetén, a szimmetriák kapcsolatot teremtenek az anyag optikai tulajdonságait leíró $\hat{\epsilon}$ komplex dielektromos tenzor elemei között, csökkentik a független tenzorelemek számát.

Tekintsünk egy köbös kristályt, melynek z tengely irányú mágnesezettsége van, vagyis az időtükrözés nem szimmetriája a rendszernek. Ebben az esetben a 2.3 ábrán látható szimmetriaműveletek fogják invariánsan hagyni a minta mágnesezettség axiálvektorát. Feltéve, hogy megengedjük az időtükrözés kombinálását térbeli szimmetriákkal, ezen műveletek megfeleltethetők a D_{4h} pontcsoport elemeinek.



Szimmetriák:

- E: identitás,
- $2C_4(z)$: z tengelyű, négyfogású forgatás,
- $C_4^2(z)$ és $2C_4^2 \odot T$: z tengelyű, kétfogású forgatás és x, y tengelyű kétfogású forgatások az időtükrözéssel együtt alkalmazva,
- i: inverzió,
- $2S_4(z) = 2i \odot C_4(z)$: z tengelyű forgatás inverzióval kombinálva,
- $\sigma_h(z)$ és $2\sigma_h \odot T$: z normálisú tükörsík és x, y normálisú tükörsíkok az időtükrözéssel együtt alkalmazva,
- $2\sigma_d(z) \odot T$: a z tengelyt tartalmazó átlós síkra való tükrözés és időtükrözés együttes alkalmazása.

2.3. ábra. A mágnesesen rendezett köbös elemi cella szimmetriái z tengellyel párhuzamos mágnesezettség esetén.

Ezen szimmetriában a Neumann-elv alapján a dielektromos tenzor az alábbi alakot fogja öltetni:

$$\hat{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx}^s & \epsilon_{xy}^a & 0 \\ -\epsilon_{xy}^a & \epsilon_{xx}^s & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz}^s \end{bmatrix}, \quad (2.7)$$

ahol az "s" felső index jelenti a mágneses térben szimmetrikus $\epsilon^s(M) = \epsilon^s(-M)$ részt, míg az "a" felső index jelenti a mágneses térben anti-szimmetrikus $\epsilon^a(M) = -\epsilon^a(-M)$ részt

A magneto-optikai aktivitást létrehozó mágneses térben antiszimmetrikus, nem diagonális elemek létéért a minta mágnesezettsége a felelős, ugyanis ha $\mathbf{M}=0$, akkor ezen elemek eltűnnek. Amennyiben a mintára érkező fény z tengellyel párhuzamosan terjed, azaz a nyaláb párhuzamosan halad a mágnesezettséggel, Faraday geometriáról beszélünk. Ekkor a 2.6 hullámegyenlet megoldásával az alábbi komplex törésmutatókat kapjuk:

$$N_{\pm}(\omega) = n_{\pm}(\omega) + i \cdot k_{\pm}(\omega) = \sqrt{\epsilon_{xx}(\omega) \pm i \cdot \epsilon_{xy}(\omega)}, \quad (2.8)$$

illetve az ezen törésmutatókhoz tartozó polarizációs sajátállapotok a következők lesznek:

$$\mathbf{E}_{\mathbf{q},\omega}^{\pm} = \begin{pmatrix} 1 \\ \pm i \\ 0 \end{pmatrix} E_{\mathbf{q},\omega}. \quad (2.9)$$

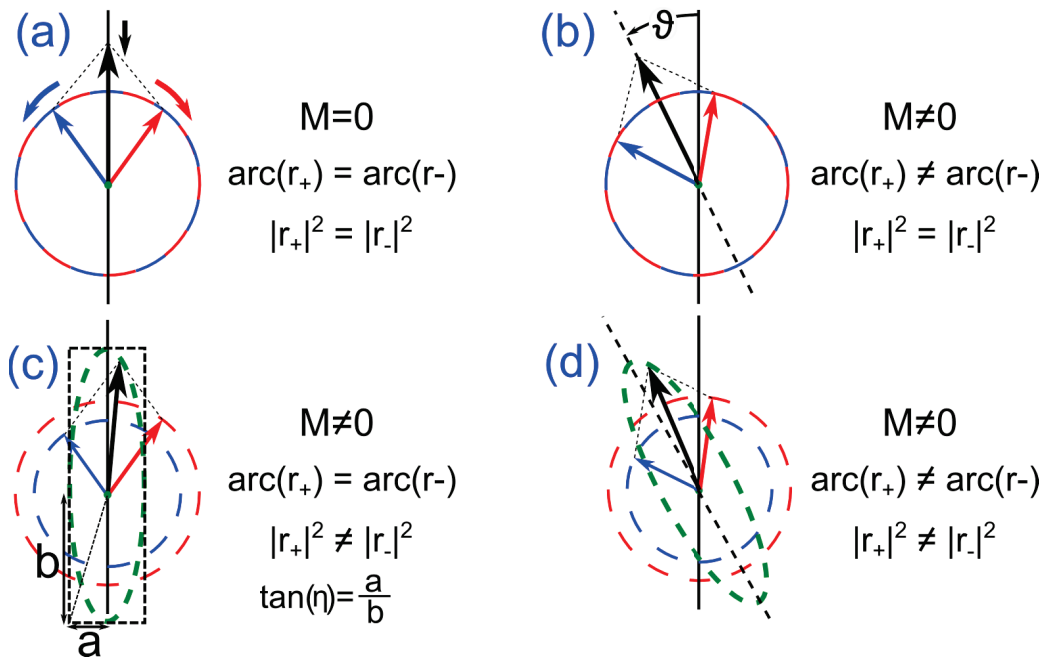
Ezek nem mások, mint az elektromágneses tér helicitás sajátállapotai, azaz a jobbra és balra cirkulárisan polarizált állapotok. A vákuum-minta határfeltételek illesztésével a komplex reflexiók együtthatók ($r_{\pm}$) meghatározhatóak, melyek a visszavert fény amplitúdó- és fázisváltozását írják le a két cirkuláris polarizációra. A reflexiók együttható a törésmutató ismeretében a Fresnel formulák segítségével kiszámolható, merőleges beesést feltételezve,

$$r_{\pm} = \frac{1 - N_{\pm}}{1 + N_{\pm}}. \quad (2.10)$$

A ferromágneses mintára beérkező lineárisan polarizált fény polarizációs állapota megváltozik hiszen a 2.8 egyenletnek megfelelően a két helicitás sajátállapot terjedése eltérő lesz az anyagban. Ha a minta jobbra és balra cirkulárisan polarizált fényre vonatkozó komplex reflexiók együtthatóinak csak a fázisai különböznek, a visszavert nyaláb polarizációs iránya elfordul de megőrzi lineárisan polarizált jellegét. Míg, ha csak az abszolút értékeik különböznek, akkor a visszavert nyaláb elliptikusan polarizálttá válik (2.4 ábra). Ezek alapján a reflexiók együtthatókkal kifejezhetők a Kerr paraméterek:

$$\vartheta_{Kerr} = \frac{\arccos(r_-) - \arccos(r_+)}{2}, \quad (2.11)$$

$$\eta_{Kerr} = \frac{1}{2} \cdot \frac{|r_+|^2 - |r_-|^2}{|r_+|^2 + |r_-|^2}. \quad (2.12)$$



2.4. ábra. (a) A beérkező lineárisan polarizált fény polarizációja nem mágneses mintáról történő visszaverődést követően nem változik. A visszavert jobbra (kék) és balra (piros) cirkulárisan polarizált komponensek összege lineárisan polarizált (fekete) marad. (b) Ha a minta mágnesezettsége véges és $\arccos(r_+) \neq \arccos(r_-)$ de $|r_+|^2 = |r_-|^2$, vagyis a két cirkuláris komponens relatív fázisa megváltozik, és ezért a mintáról visszavert fény polarizációjának síkja a bejövő nyalábéhoz képest elfordul. (c) Ellenben, ha a mágneses mintáról visszavert ellentétes helicitású nyalábok azonos fázisban vannak, de amplitúdójuk eltér, szuperpozíciójuk elliptikusan polarizált lesz. (d) Általános esetben mind a polarizáció síkja, mint az ellipticitás megváltozik [11].

A Kerr paraméterek jelentése a következő: a beeső fény polarizációja és a visszavert nyaláb polarizációs ellipszisének nagy tengelye által bezárt szög a Kerr elfordulás (ϑ_{Kerr}), míg az ellipszis kis és nagy tengelyének aránya a Kerr-ellipticitás (η_{Kerr}) tangensével egyenlő. Ez utóbbinak az előjelét az ellipticitás körbe járási iránya definiálja.

A fény polarizációs állapotának megváltozását jellemző ϑ_{Kerr} és η_{Kerr} paraméterek (kis értékek esetén), egy válaszfüggvény valós és képzetes részét képviselik, a köztük fennálló

Kramers-Kronig reláció az alábbi alakot ölti [12, 13]:

$$\vartheta_{Kerr}(\omega) \approx \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega'}{\omega'^2 - \omega^2} \eta_{Kerr}(\omega') d\omega', \quad (2.13)$$

$$\eta_{Kerr}(\omega) \approx -\frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty \frac{\omega}{\omega'^2 - \omega^2} \vartheta_{Kerr}(\omega') d\omega'. \quad (2.14)$$

Ez a mágnesesen modulált polarizáció változás azt jelenti, hogy Faraday konfigurációban a lineáris polarizációjú, beeső fény esetén a térerősség irányára merőlegesen is indukálódik elektromos polarizáció az anyagban, vagyis az optikai vezetőképesség tartalmazhat nem diagonális elemeket (2.4 egyenlet). Ezek egyértelműen kötődnek a Kerr paraméterekhez, kis szögek esetén az alábbi összefüggés érvényes [11]:

$$\Phi_{Kerr} = \vartheta_{Kerr} + i \cdot \eta_{Kerr} \approx -\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx} \sqrt{1 + i \frac{4\pi}{\omega} \sigma_{xx}}} = -\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx} \sqrt{\epsilon_{xx}}}. \quad (2.15)$$

2.2. A Magneto-optikai aktivitás mikroszkópikus elmélete

A fenomenologikus elektrodinamikai leírás, noha rámutat arra, hogy a vezetőképesség tenzor nem diagonális elemei okozzák a mágneses-optikai aktivitást, nem ad információt az optikai vezetőképesség tenzor mikroszkópikus eredetéről. A vezetőképesség tenzor kiszámításához, meg kell vizsgálni a fény és a kristályrács elektronrendszerének kölcsönhatását. Ha a fény intenzitása kicsi, a fény rezgő elektromos mezeje perturbációként kezelhető. Ebben az esetben lineáris optikáról beszélünk, és az optikai vezetőképesség tenzor elemei a lineáris válasz elmélet segítségével határozhatóak meg.

A fény anyag kölcsönhatás mikroszkópikus elméletéhez tekintsük az alábbi Hamilton-operátort:

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_o + \hat{\mathcal{H}}_{int},$$

ahol az egyensúlyban lévő anyagot leíró nem perturbált Hamilton-operátor az alábbi alakú:

$$\hat{\mathcal{H}}_o = \frac{1}{2m} \sum_i \mathbf{p}_i^2 + \sum_{i,j} V_j(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j) + \frac{1}{2} \sum_{i,i'} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_{i'}|} + \hat{\mathcal{H}}_{Zeemann} + \hat{\mathcal{H}}_{SO},$$

míg $\hat{\mathcal{H}}_{int}$ tartalmazza a perturbáló sugárzás hatását. A $\hat{\mathcal{H}}_o$ Hamilton operátor figyelembe veszi a mag-elektron, az elektron-elektron, az elektronok egy külső mágneses térrel való kölcsönhatását és a rácsperiódikus spin-pálya kölcsönhatást. A fény elektromágneses tere által keltett perturbáció, elhanyagolva a Landau-féle diamágneses tagot, az alábbi összefüggésre vezet:

$$\hat{\mathcal{H}}_{int} = \frac{e}{2mc} \sum_i [\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_i, t) + \mathbf{A}(\mathbf{r}_i, t) \cdot \mathbf{p}_i] = -\frac{1}{c} \int \mathbf{J}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) d\mathbf{r},$$

ahol a $\mathbf{J}(\mathbf{r})$ áramsűrűség operátor alakja a következő:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}) = -\frac{e}{2m} \sum_i [\mathbf{p}_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) + \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \mathbf{p}_i]. \quad (2.16)$$

Bevezethetjük mind az áramsűrűség operátor, mind a vektorpotenciál Fourier-transzformáltját:

$$\mathbf{J}(\mathbf{q}) = \frac{1}{\Omega} \int \mathbf{J}(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r}, \quad \mathbf{A}(\mathbf{q}, t) = \frac{1}{\Omega} \int \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r},$$

ahol Ω a kristály elemi cellájának térfogata. Ezáltal a perturbációt leíró Hamilton-operátor szorzat alakra hozható:

$$\hat{\mathcal{H}}_{int} = -\frac{1}{c} \mathbf{J}(\mathbf{q}) \cdot \mathbf{A}(-\mathbf{q}, t),$$

ahol a $\mathbf{A}(-\mathbf{q}, t)$ klasszikus fizikai térmennyiség. A Kubo-formula segítségével meghatározható az áramsűrűség-áramsűrűség válaszfüggvény, mely adiabatikus bekapcsolás esetén [14]:

$$\hat{\chi}_{\mathbf{J},\mathbf{J}}(\mathbf{q}, \omega) = -\lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} \frac{i}{\hbar} \int_0^\infty \langle [\mathbf{J}(\mathbf{q}, 0), \mathbf{J}(-\mathbf{q}, t)] \rangle_o e^{-i\omega t + \epsilon t} dt, \quad (2.17)$$

ahol $\mathbf{J}(\mathbf{q}, t)$ az áramsűrűség operátor kölcsönhatás-képbeli alakja. A kapott áramsűrűség-áramsűrűség válaszfüggvény és az optikai vezetőképesség között az alábbi összefüggés érvényes:

$$\hat{\sigma}(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{i\omega\Omega} \hat{\chi}_{\mathbf{J},\mathbf{J}}(\mathbf{q}, \omega).$$

A 2.17 egyenletnek megfelelően, kristályos anyag elektron gerjesztésének vizsgálata esetén a Fermi-statisztika felhasználásával hosszú hullámhosszú közelítésben ($\mathbf{q} = \mathbf{0}$) megkaphatjuk a frekvenciafüggő vezetőképesség Kubo-Greenwood kifejezését [15, 16]:

$$\sigma_{\alpha\beta}(\omega) = \frac{\pi e^2}{m^2 \omega \Omega} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{nn'} \frac{f(\epsilon_{n\mathbf{k}}) - f(\epsilon_{n'\mathbf{k}})}{\omega_{nn'}(\mathbf{k})} \frac{\langle n', \mathbf{k} | \mathbf{J}_\alpha(\mathbf{0}) | n, \mathbf{k} \rangle \langle n, \mathbf{k} | \mathbf{J}_\beta(\mathbf{0}) | n', \mathbf{k} \rangle}{\omega - \omega_{nn'}(\mathbf{k}) + i\gamma_{nn'}}, \quad (2.18)$$

ahol $f(\epsilon_{n\mathbf{k}})$ a Fermi függvény, $|n, \mathbf{k}\rangle$, $|n', \mathbf{k}\rangle$ Bloch állapotok az n -edik illetve n' -edik sávokból $\mathbf{k}$ kváziimpulzussal, $\hbar\omega_{nn'}(\mathbf{k}) = \epsilon_{n\mathbf{k}} - \epsilon_{n'\mathbf{k}}$ az $\epsilon_{n\mathbf{k}}$ egyrészecske energiák különbsége, γ egy szórási ráta (inverz élettartam), mely leírja a gerjesztett Bloch állapotok véges élettartamát. A hosszú hullámú közelítés azt jelenti, hogy a sugárzás hullámhossza az optikai tartományban jóval nagyobb, mint a rácsállandó ($A(\mathbf{q}, t) \approx A(\mathbf{0}, t)$), ezért az elektromágneses teret homogénnek tekinthetjük.

Az $\langle n', \mathbf{k} | \mathbf{J}_\alpha(\mathbf{0}) | n, \mathbf{k} \rangle$ mátrixelemek az egyes gerjesztések erősségét, azaz a kiválasztási szabályokat fogják meghatározni. A kiválasztási szabályokra vonatkozó általános elvek megfogalmazhatók a csoportelmélet segítségével [17]. A perturbálatlan rendszer $\hat{\mathcal{H}}_o$ Hamilton operátorának szimmetria csoportja $\mathcal{G}$, melynek irreducibilis ábrázolásait Γ^α -val jelölöm a továbbiakban. Továbbá tételezzük fel, hogy az átmenetet leíró O_j operátor irreducibilis skalár operátor (vagy vektor illetve tenzor operátor egy komponense), amely a $\mathcal{G}$ csoport Γ^j irreducibilis reprezentációjához tartozik. A $\langle n'_i | O_j | n_k \rangle$ mátrixelemről megmutatható, hogy a szimmetriaműveletek hatására a $\Gamma^i \otimes \Gamma^j \otimes \Gamma^k$ direktszorzat ábrázolások szerint fog transzformálódni, ahol Γ^i , Γ^j , Γ^k a kristály szimmetria csoportjának irreducibilis ábrázolásai, melyek jellemzik az $|n_i\rangle$, O_j és $|n_k\rangle$ transzformációját. A mátrixelem akkor nem lesz zérus, ha a direktszorzatra teljesül az alábbi ekvivalens állítások valamelyike:

- $\Gamma^i \in \Gamma^j \otimes \Gamma^k$,
- $\Gamma^k \in \Gamma^i \otimes \Gamma^j$,

- $A_1 \in \Gamma^i \otimes \Gamma^j \otimes \Gamma^k$, azaz a mátrixelem ábrázolása tartalmazza a triviális ábrázolást.

Például elektromos dipól átmenetek ábrázolása páratlan (ungerade). Ennek átmeneti mátrix-eleme csak akkor nem zérus, ha ellentétes paritású állapotok között történik meg az átmenet. Abban a speciális esetben, ha a rendszer állapotait jól írja le a szabad ion kép, akkor ez lényegében azt jelenti, hogy az átmenetek során az impulzusmomentum kvantumszáma ± 1 -gyel változhat.

A továbbiakban érdemes áttérni a cirkuláris állapotok bázisára, mely segít értelmezni a 2.18 egyenlet esetén a nem diagonális elemek jelentését. Legyen p_+ a jobbra és p_- a balra cirkulárisan polarizált elektron állapotok impulzusa:

$$p_{\pm} = p_x \pm ip_y.$$

A $\sigma_{xy}(\omega)$ nem diagonális vezetőképességben megjelenő impulzusok szorzatai (lásd 2.16 egyenlet) felírhatóak ezen cirkuláris bázisban:

$$p_x p_y = \frac{1}{4i} (p_+^2 - p_-^2),$$

amellyel a vezetőképesség 2.18 egyenlete az alábbi egyszerűbb alakra hozható:

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{\pi e^2 \hbar}{4m^2 \omega \Omega} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{nn'} \frac{f(\epsilon_{n\mathbf{k}}) - f(\epsilon_{n'\mathbf{k}})}{\epsilon_{n\mathbf{k}} - \epsilon_{n'\mathbf{k}}} \frac{|\langle n' | p_+ | n \rangle|^2 - |\langle n' | p_- | n \rangle|^2}{\omega - \omega_{nn'}(\mathbf{k}) + i\gamma_{nn'}}. \quad (2.19)$$

Ezen összefüggésben az $|\langle n', \mathbf{k} | p_{\pm} | n, \mathbf{k} \rangle|$ alakú mátrixelemek a cirkulárisan polarizált fénnnyel gerjesztett elektromos dipól átmeneteket írnak le. Mivel $[L_z, p_{\pm}] = \pm \hbar p_{\pm}$, így:

$$L_z p_{\pm} |l, m\rangle = \hbar (m \pm 1) p_{\pm} |l, m\rangle,$$

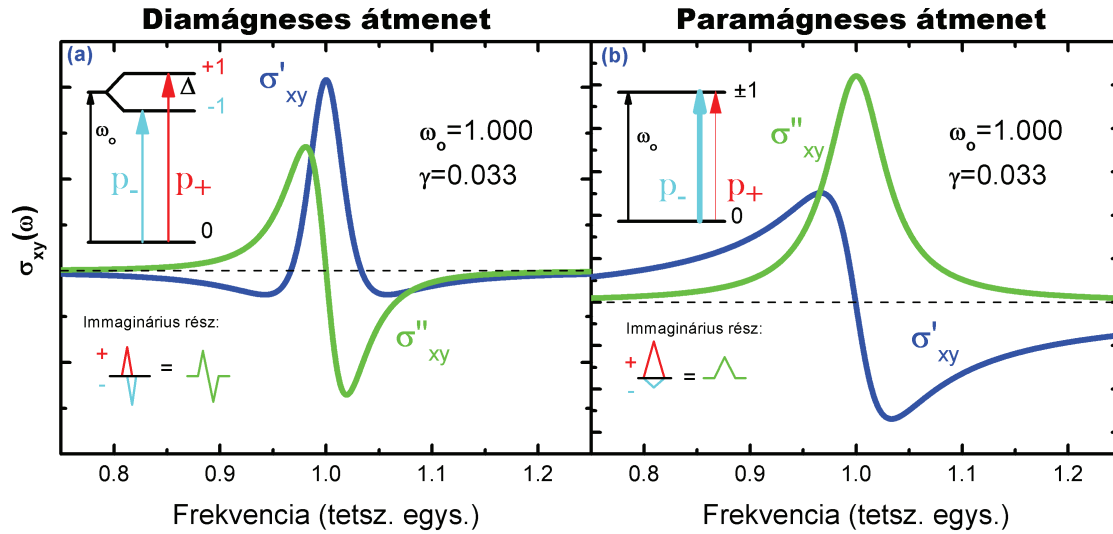
azaz csak olyan átmenetek lehetségesek, melyek során az impulzusmomentum z-irányú komponensének megváltozása $\pm \hbar$. A magneto-optikai jelenségek magyarázata a 2.19 egyenlet szerint az, hogy a jobb- és balkezes fotonokra nézve az átmeneti mátrixelemek különböznek, azaz:

$$|\langle n' | p_+ | n \rangle|^2 \neq |\langle n' | p_- | n \rangle|^2.$$

Vizsgáljuk meg, hogyan változik a nem diagonális vezetőképesség ha a tökéletesen spin polarizált pálya szinglet alapállapotból az $L_z = \pm \hbar$ gerjesztett állapotba történik átmenet. A gerjesztett állapot véges átmenetét γ félértékszélességű Lorentz-görbékkel vegyük figyelembe az optikai vezetőképesség spektrumában. Először tekintsük a 2.5 ábra (a) részét, amely az úgynevezett diamágneses átmenet esetét szemlélteti! Mágneses tér hatására a $\hat{\mathcal{H}}_0$ Hamilton operátorban szereplő Zeemann tag Δ mértékben felhasítja a degenerált, gerjesztett állapot energianívóit azok m mágneses kvantumszámai szerint. Az $L_z = 0 \rightarrow +1$ átmenet során az elnyelt jobb cirkuláris állapotú foton időtükrözött párja nem gerjesztheti ugyanezt az átmenetet a kiválasztási szabályok értelmében. Míg balkezes fotonok csak a másik, $L_z = 0 \rightarrow -1$ folyamat során nyelődhetnek el. A két átmenet energiája eltér, melynek mértéke [18]:

$$\Delta(B) = g_J \mu_B B$$

Ferromágneses anyagok esetén a Δ felhasadást dominánsan a kicserélődési energia adja. Feltesszük, hogy a különböző helicitású fénnnyel indukált átmenetek valószínűségei megegyeznek, azaz: $|\langle 0 | p_+ | 1 \rangle|^2 = |\langle 0 | p_- | 2 \rangle|^2 := \frac{f^2}{4}$, továbbá az eltérő mágneses kvantumszámú



2.5. ábra. Két különböző cirkuláris polarizációval rendelkező átmenet (p_+ jobbra és p_- balra cirkulárisan polarizált átmenetek) vázlatos szemléltetése és a frekvenciafüggő vezetőképesség tenzor xy komponensének valós (σ'_{xy}) és képzetes részei (σ''_{xy}). A modell rendszerben az atom az $L_z=0 \rightarrow +1$ átmenet során jobb helicitású fotont nyel el, míg a $L_z=0 \rightarrow -1$ átmenetet csak balra cirkulárisan polarizált fénnyel lehet gerjeszteni. A bal panel mutatja azt az esetet, amikor a spin-pálya kölcsönhatás miatt az $L_z=+1$ illetve -1 állapotban történő átmenet energiája különböző, míg az átmeneti mátrixelemek nagysága megegyezik. A jobb oldali panel esetén az $L_z=\pm 1$ végállapotok deneneráltak maradnak, de a gerjesztések erőssége eltérő lesz.

állapotok szeparációja pedig kicsi az átmenetek ω_o átlagos energiájához képest. Ebben az esetben a frekvenciafüggő optikai vezetőképesség képzetes és valós része az alábbi alakot veszi fel [19]:

$$\sigma'_{xy} = C \cdot f^2 \cdot \Delta(B) \cdot \frac{\gamma^2 - (\omega_o^2 - \omega)^2}{((\omega_o^2 - \omega)^2 + \gamma^2)^2},$$

$$\sigma''_{xy} = C \cdot f^2 \cdot \Delta(B) \cdot \frac{2\gamma(\omega_o - \omega)}{((\omega_o^2 - \omega)^2 + \gamma^2)^2}.$$

Az optikai vezetőképesség valós részének maximuma, míg a képzetes részének zérushelye van ω_o frekvencián, a csúcs szélességét a γ paraméter jellemzi, míg a $C \cdot f^2$ tag átmenet az oszcillátor erőssége (2.5 ábra).

A másik határeset a 2.5 ábra (b) részén látható, melyet paramágneses átmenetnek neveznek. Abban az esetben, ha a gerjesztett állapot Δ felhasadása kicsi, vagy a gerjesztések élettartama nagy, a két különböző cirkuláris állapotú foton elnyeléséhez tartozó átmenet létrejöhet ugyanabba a gerjesztett állapotba, csak eltérő valószínűséggel. Legyenek ezek az

átmeneti valószínűségek: $|\langle 0 | p_+ | 1 \rangle|^2 = f_+^2$ és $|\langle 0 | p_- | 1 \rangle|^2 = f_-^2$. Ebben az esetben a frekvenciafüggő vezetőképességre más spektrális alakot kapunk [19]:

$$\begin{aligned}\sigma'_{xy} &= C \cdot (f_- - f_+) \cdot \frac{\omega \cdot (\omega_o^2 - \omega^2 - \gamma^2)}{\omega_o [(\omega_o^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + (2\omega\gamma)^2]}, \\ \sigma''_{xy} &= C \cdot (f_- - f_+) \cdot \frac{\gamma \cdot (\omega_o^2 + \omega^2 + \gamma^2)}{\omega_o [(\omega_o^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + (2\omega\gamma)^2]}.\end{aligned}$$

Diamágneses átmenet esetében a valós rész diszperzív jellegű, és a képzetes rész disszipatív, míg a paramágneses átmenet esetében a valós rész disszipatív és a képzetes rész diszperzív.

3. fejezet

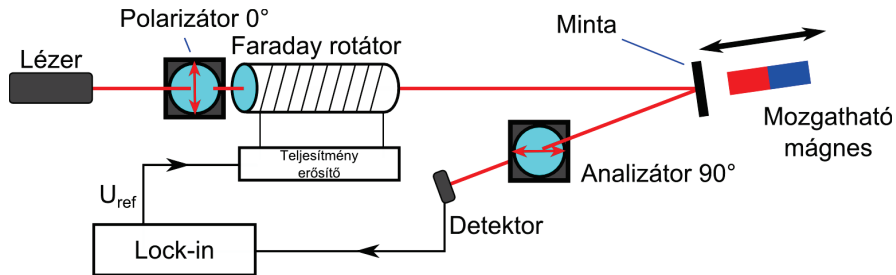
Polarizáció modulációs mérés technikák

A mágneses cirkuláris kettőtörésnek és dikroizmusnak köszönhető polarizáció változás mértéke a legtöbb anyag esetén olyan csekély, mindössze néhány ezred vagy század fok, hogy rendkívül kifinomult mérési technikát követel meg a detektálása. Fotoelasztikus elven működő polarizáció modulációs technikák széles körben alkalmazhatóak az anyagok polarizációs effektusainak érzékeny detektálására. Bár az általam fejlesztett polarizációs spektrométer ezen metodikára épül, ennek ismertetése előtt, néhány alternatív technikát érintek röviden.

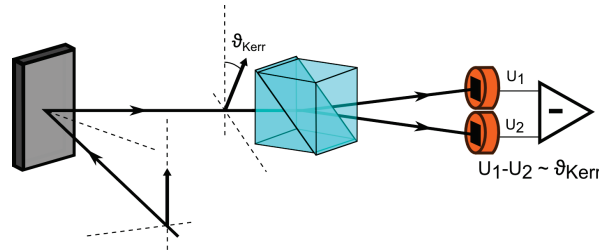
A következőkben egy egyszerű, polarizáció elfordulás mérésére alkalmas módszert mutatok be, mely betekintést nyújt a modulációs technikák működésébe. Célunk, hogy a kezdetben lineáris polarizációval rendelkező és a mintáról visszaverődő fénynek a polarizáció elfordulását mérjük. Ehhez célszerű a mintára eső fény polarizációs síkját periodikusan „billegtetni”, melyet végezhetünk az ún. Faraday-rotátorral (3.1 ábra). Ez egy szolenoid belsejébe helyezett átlátszó optikai kristály, mely a rajta keresztülhaladó lineárisan polarizált fény polarizációs irányát forgatja el a hosszanti irányban keltett mágneses tér nagyságával arányosan, a Faraday-effektusnak köszönhetően. Harmonikusan változó árammal meghajtva a Faraday-rotátor tekercsét, az a lineárisan polarizált fény polarizációját billegteti, így a minta által visszavert és az analizátoron keresztül jutó fény intenzitása lock-in technikával érzékenyen detektálható. A polarizátor és az analizátor egymáshoz képest 90° -os szöget zárnak be, ezért a minta polarizáció forgatása a harmonikus meghajtással azonos frekvenciájú intenzitás oszcillációt okoz a detektoron. Ha a minta mágneses, a polarizáció elfordulás a magneto-optikai Kerr-effektus következménye. Ezen módszerrel 10^{-3} fok pontossággal lehet a Kerr-forgatást megmérni.

A Kerr elfordulás (ϑ_{Kerr}) igen pontos mérése lehetséges az ún. kiegyensúlyozott fotodióda híd alkalmazásával is (3.2 ábra), melynek pontossága elérheti a $10^{-5} - 10^{-4}$ fokot [20]. A mintáról visszaverődő, megváltozott polarizációs állapotú fény egy Rochon polarizátoron halad keresztül. Ez a polarizátor a rá eső fényt két, a mintára beeső fény eredeti polarizációs síkjához képest $\pm 45^\circ$ -ban álló lineárisan polarizált komponensre bontja fel és eltéríti. A térben különvált fénysugarak egy-egy fotodiódára esnek, melyek különbségi jelét mérjük. Abban az esetben, ha a vizsgált minta nem mágneses, a különbségi jel zérus, hiszen a visszavert nyaláb továbbra is, egyenlő mértékben tartalmazza a két, $\pm 45^\circ$ -ban álló komponens. Ezzel szemben ha a minta Kerr-forgatása véges a Rochon prizmából kilépő $\pm 45^\circ$ -ban polarizált nyalábok intenzitása eltérő, a differenciál erősítő kimenetén véges feszültség jelenik meg.

A fenti módszerek hátránya, hogy segítségükkel nem lehet közvetlenül a Kerr-ellipticitás spektrumát mérni, annak meghatározása csak Kramers-Kronig transzformációval lehetséges



3.1. ábra. Polarizáció elfordulás mérésére alkalmas mérési összeállítás. A polarizátoron átjutó lineárisan polarizált fény polarizációs irányát a Faraday-rotátor időben szinuszosan forgatja el. A mintáról visszavert fény az analízátoron keresztül jut a detektorra. A polarizátor és az analízátor egymáshoz képest 90° -os szöget zár be. A detektor intenzitásában a Faraday-rotátor meghajtásával megegyező harmonikust, mely a minta polarizáció forgatásával arányos, a lock-in erősítő szűri ki.



3.2. ábra. A mintáról visszaverődő ϑ_{Kerr} mértékben, elfordult polarizációjú fényt a Rochon polarizátor két külön detektor irányába téríti el. Ha a mintának nincs Kerr-forgatása, a különbségi jel zérus.

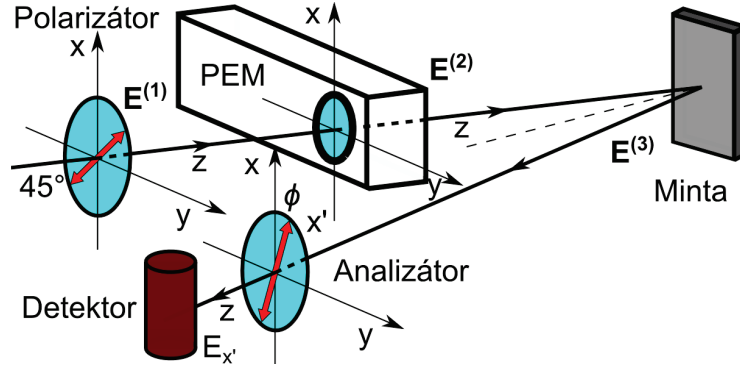
(lásd 2.13 és 2.14 egyenlet). Ehhez azonban a Kerr-forgatást rendkívül széles foton energia tartományban kell meghatároznunk. A másik lehetőség a magneto-optikai ellipszometria, mellyel a Kerr-forgatás és ellipticitás (a komplex polarizáció változás) egyszerre mérhető. Ennek fotoelasztikus modulátorral történő megvalósítását fogom a következőkben tárgyalni.

3.1. A polarizáció modulációs technika elvi háttere

Diplomamunkám során egy polarizáció modulációs elven működő spektrométer kifejlesztésében vettem részt, mely segítségével 10^{-3} fok pontossággal egyszerre mérhető a Kerr paraméterek (ϑ_{Kerr} , η_{Kerr}) spektruma nagy energia felbontással és széles foton energia tartományban.

A polarizáció modulációs technika elvének megértéséhez tekintsük a 3.3 sematikus ábrát! Minden optikai elemhez egy saját koordináta rendszert rögzítünk, melynek z tengelye a fény terjedési irányába mutat, az x és y tengely a beesési síkban fekvő függőleges és vízszintes irány.

A fényforrásból kollimált, polarizálatlan monokromatikus nyaláb érkezik az első polarizátorhoz, melynek polarizációs iránya az x tengelyhez képest 45° -os szögben elforgatva áll. Mivel a vákuumban terjedő fénynek nem lehet longitudinális rezgési komponense, elegendő csak a terjedési irányra merőleges xy síkban levő polarizációs állapotaival foglalkozni. Ezt



3.3. ábra. A polarizáció modulációméréstechnika optikai elrendezésének sematikus vázlata. A polarizátorhoz, mely függőlegeshez képest 45° -ban elforgatva áll, polarizálatlan fény érkezik. A modulátor a rajta áthaladó polarizált fény y irányú komponensének fázisát δ -val eltolja az x irányú komponens fázisához képest. Végül a mintáról visszaverődő fény, mely a magneto-optikai Kerr-effektusnak köszönhetően polárizáció változást szenved el, a ϕ szögben álló analízátoron keresztül jut a detektorra. [21]

a 2 dimenziós Jones-vektorokkal írhatjuk le [22], így a polarizátoron az alábbi polarizációs állapottal jut keresztül a fény:

$$\mathbf{E}_{xy}^{(1)} = \frac{E_o}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}.$$

Itt az xy alsó index azt jelenti, hogy az xyz Descartes bázisban írtuk fel a Jones-vektort.

A fotoelasztikus modulátor (PEM) egy nagy tisztaságú, téglatest alakú, optikailag izotróp kristályt tartalmaz (ZnSe , CaF_2 , Fused Silica, ...), mely mechanikai deformáció hatására kettőtörővé válik. Az optikai kristályt harmonikusan gerjeszti egy piezo-elektromos kristály. Ez a gerjesztés nagy frekvencián (tipikusan 10-100 kHz) történik, amely megegyezik a teljes rendszer (optikai és piezoelektromos kristály) mechanikai sajátfrekvenciájával; ez egy stabil „oszillátort” eredményez. A kristály szabályos alakjának és tisztaságának köszönhetően a szinuszos gerjesztésre adott válaszában nem jelennek meg felharmónikusok, mely szintén fontos a mérés technika szempontjából. A kristály y tengelye mentén létrejövő időben harmonikusan változó deformáció modulus miatt az y irányú polarizációval rendelkező fényre vonatkozó törésmutató oszcillál, vagyis ezen komponens $\delta = \delta_o \cdot \sin(2\pi f \cdot t)$ fázistolást szenved az x irányú polarizációhoz képest. A δ_o fázis modulációs amplitúdót retardációnak is szokás nevezni.

A PEM-en keresztül jutó fény polarizációja a fenn leírtak alapján:

$$\mathbf{E}_{xy}^{(2)} = \frac{E_o}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ e^{i\delta} \end{bmatrix}. \quad (3.1)$$

Az előző fejezet 2.10 és 2.8 egyenletei megmutatják, hogy ha a mintára érkező fény polarizációs állapotainak leírására a cirkuláris állapotok bázisát választjuk, abban egy cirkuláris kettőtörést mutató anyag reflexiók együtthatóját egy komplex elemű, diagonális mátrixal írhatjuk le:

$$\hat{r} = \begin{bmatrix} \hat{r}_+ & 0 \\ 0 & \hat{r}_- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{o,+} \cdot e^{i\vartheta_+} & 0 \\ 0 & r_{o,-} \cdot e^{i\vartheta_-} \end{bmatrix}. \quad (3.2)$$

A fenti összefüggésben r_+ és r_- komplex értékek a mintának a jobbra és balra cirkulárisan polarizált fényre vonatkozó komplex törésmutatói, melyeket a 2.10 egyenlet ad meg. A cirkuláris bázisra való áttérést és az onnan való visszatérést az alábbi bázis transzformációk valósítják meg:

$$\hat{T}_{xy \rightarrow rl} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & i \\ 1 & -i \end{bmatrix}, \quad \hat{T}_{rl \rightarrow xy} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ -i & i \end{bmatrix}. \quad (3.3)$$

A cirkuláris bázisban felírt reflexiós mátrix paramétereinek segítségével a komplex Kerr-szög komponensei:

$$\vartheta_{Kerr} = \frac{\vartheta_- - \vartheta_+}{2}, \quad \eta_{Kerr} = \frac{1}{2} \cdot \frac{r_{o,+}^2 - r_{o,-}^2}{r_{o,+}^2 + r_{o,-}^2}. \quad (3.4)$$

A 3.1 és a 3.3 a PEM-en keresztül jutó fény polarizációja a cirkuláris bázisban felírva:

$$\mathbf{E}_{rl}^{(2)} = \frac{E_o}{2} \begin{bmatrix} 1 - e^{i\delta} \\ 1 + e^{i\delta} \end{bmatrix},$$

míg a mintáról visszaverődő fény polarizációja, felhasználva a 3.2 összefüggést,

$$\mathbf{E}_{rl}^{(3)} = \frac{E_o}{2} \begin{bmatrix} r_+ (1 - e^{i\delta}) \\ r_- (1 + e^{i\delta}) \end{bmatrix} \quad (3.5)$$

alakú lesz. A 3.3 egyenleteknek megfelelően visszatranszformálva a mintáról visszavert fény polarizáció vektorát a Descartes bázisba, a ϕ szögben álló analizátort követően a detektorra eső térerősség nagysága:

$$\begin{aligned} E_{x'} &= E_x^{(3)} \cdot \cos(\phi) + E_y^{(3)} \cdot \sin(\phi) = \\ &= \frac{E_o}{2\sqrt{2}} \left[r_+ (1 - e^{i\delta}) e^{i\phi} + r_- (1 + e^{i\delta}) e^{-i\phi} \right], \end{aligned} \quad (3.6)$$

melyből az $I = \varepsilon/4\pi \cdot |E_{x'}|^2$ összefüggéssel meghatározható a detektor által érzékelt fény intenzitása:

$$I = \frac{\varepsilon E_o^2 (r_{o,+}^2 + r_{o,-}^2)}{32\pi} [1 + 2\eta_{Kerr} \cdot \sin \delta(t) + \sin(2\vartheta_{Kerr} + 2\phi) \cdot \cos \delta(t)]. \quad (3.7)$$

A detektor által érzékelt időfüggő intenzitás Fourier komponensei az alábbi alakúak:

$$\begin{aligned} \sin \delta(t) &= \sin(\delta_o \cdot \sin(2\pi f \cdot t)) = 2J_1(\delta_o) \cdot \sin(2\pi f \cdot t) + \dots, \\ \cos \delta(t) &= \cos(\delta_o \cdot \sin(2\pi f \cdot t)) = J_0(\delta_o) + 2J_2(\delta_o) \cdot \sin(4\pi f \cdot t) + \dots \end{aligned}$$

A kifejtésben megjelenik egy időben állandó, egy f frekvenciával és egy $2f$ frekvenciával oszcilláló komponens. A detektálás során a magasabb felharmonikusokat kiszűrjük, így a mért intenzitás egyszerűsített formája:

$$I = I_{dc} + I_f \cdot \sin(2\pi f \cdot t) + I_{2f} \cdot \sin(4\pi f \cdot t).$$

Ennek alapján a fázist moduláló frekvencia felharmonikusai szerint az alábbi összefüggésekhez jutunk:

$$\begin{aligned}\frac{I_f}{I_{dc}} &= A \frac{4J_1(\delta_o) \cdot \eta_{Kerr}}{1 + J_o(\delta_o) \cdot \sin(2\vartheta_{Kerr} + 2\phi)}, \\ \frac{I_{2f}}{I_{dc}} &= B \frac{2J_2(\delta_o) \cdot \sin(2\vartheta_{Kerr} + 2\phi)}{1 + J_o(\delta_o) \cdot \sin(2\vartheta_{Kerr} + 2\phi)}.\end{aligned}$$

Az A és B konstansokat, melyek értékét a detektorok előerősítői és az elektronikai mérőrendszer átviteli függvényei szabnak meg, kalibrációval határozzuk meg. Kihasználva, hogy a mért ϑ_{Kerr} , η_{Kerr} szögek általában kicsik, érvényesek az alábbi közelítő formulák:

$$\frac{I_f}{I_{dc}} \approx 4AJ_1(\delta_o) \cdot \eta_{Kerr}, \quad (3.8)$$

$$\frac{I_{2f}}{I_{dc}} \approx 4BJ_2(\delta_o) \cdot (\vartheta_{Kerr} + \phi). \quad (3.9)$$

A fenti két összefüggés alapján elmondható, hogy az analízátor $\phi = 0$ fokos állásánál a komplex Kerr-szög valós és képzetes része arányos a moduláló frekvencia második felharmonikusával és alapharmonikusával oszcilláló fényintenzitással.

Abban az esetben, ha a különböző optikai elemeken nem merőlegesen halad keresztül a fény, azok kettőstörővé válnak és a mágneses tértől független alapvonalat adnak a mért forgatás és ellipticitás spektrumban. A 2.7 egyenletben szereplő ε_{xy}^a elemek, amelyek a magneto-optikai effektust okozzák, a mágneses térben antiszimmetrikusak, ezért nagy mágneses térben vizsgálva a mintát nem csak a poláros MOKE feltételeit lehet kielégíteni, hanem a mágneses tér irányának megfordításával egyszerű antiszimmetrizálás segítségével az optikai elrendezés elemei által okozott komplex polarizáció változást is ki lehet küszöbölni.¹ Ezek alapján a minta komplex Kerr-forgatása a $\pm B$ mágneses indukcióban mért feszültségválasz spektrumokból:

$$\vartheta_{Kerr,minta} = \frac{1}{2} \frac{\frac{I_{2f}}{I_{dc}}(+B) - \frac{I_{2f}}{I_{dc}}(-B)}{4BJ_2(\delta_o)}, \quad (3.10)$$

$$\eta_{Kerr,minta} = \frac{1}{2} \frac{\frac{I_f}{I_{dc}}(+B) - \frac{I_f}{I_{dc}}(-B)}{4AJ_1(\delta_o)}. \quad (3.11)$$

A modulációs technika legnagyobb előnye, hogy egy adott hullámhosszon egyszerre meg lehet mérni a komplex Kerr-szög képzetes és valós részét a fényút és az elektronika megváltoztatása nélkül. Továbbá, lock-in detektálás révén a Kerr paramétereket $\sim 10^{-3}$ fok pontossággal megmérhetjük. (Itt jegyzem meg, hogy a detektorok a fény frekvenciájából adódó 1 THz frekvenciánál gyorsabb oszcillációt nem képesek követni, ezen az időskálán kiátlagolják az intenzitást.)

¹Megjegyezném, hogy például a mintatartó ablakát ért szórt mágneses tér a Faraday-effektus révén szintén létrehoz egy mágneses tértől függő alapvonalat a Kerr spektrumokban, melytől antiszimmetrizálással nem lehet megszabadulni. Ezen alapvonal csökkenthető az ablak minta távolság növelésével, vagy nem mágneses minta mérésével meghatározható.

A ϑ_{Kerr} -re vonatkozó képlet egyszerű kalibrációs eljárást szolgáltat a B meghatározására, hiszen az analízátor állásszöge azonos szereppel bír, mint ϑ_{Kerr} . A detektor által mért intenzitás második felharmonikusát mérve az analízátor kicsi $\pm\phi_o$ állásánál, az alábbi összefüggést kapjuk:

$$\frac{1}{2\phi_o} \left[\left(\frac{I_{2f}}{I_{dc}} \right)_{+\phi_o} - \left(\frac{I_{2f}}{I_{dc}} \right)_{-\phi_o} \right] = 4BJ_2(\delta_o). \quad (3.12)$$

Az ellipticitás kalibrációja hasonlóan elvégezhető, ha a fotoelasztikus modulátort követően egy $\lambda/4$ -es fázistoló lemezt helyezünk el, ami a monokromatikus fény x és y polarizációjú komponensének fázisát egymáshoz képest $\frac{\pi}{2}$ -vel tolja el, így az intenzitás:

$$I = \frac{\varepsilon E_o^2 (r_{o,+}^2 + r_{o,-}^2)}{32\pi} [1 - 2\eta_{Kerr} \cdot \cos \delta(t) + \sin(2\vartheta_{Kerr} + 2\phi) \cdot \sin \delta(t)]. \quad (3.13)$$

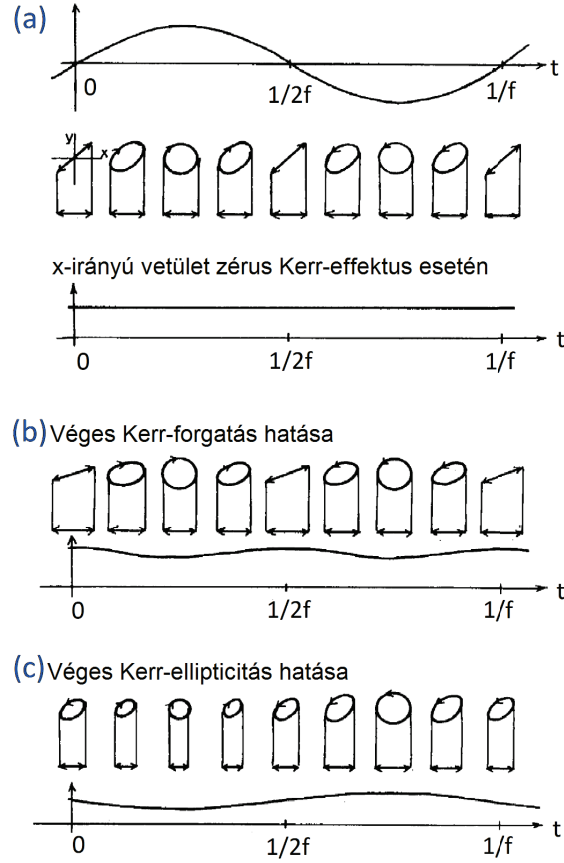
Mivel a ϑ_{Kerr} -t tartalmazó tag ebben az esetben $\sin \delta(t)$ együtthatója, így a sorfejtés 3.8 egyenletbeli formája módosul:

$$\frac{I_f}{I_{dc}} = A \frac{2J_1(\delta_o)}{1 - 2\eta_{Kerr} J_o(\delta_o)} \approx 4AJ_1(\delta_o) \cdot (\vartheta_{Kerr} + \phi). \quad (3.14)$$

Ekkor az első harmonikus jel mérésével és az analízátor $\pm\phi_o$ szögű elforgatásával, az előzővel azonos módon kalibrálható a η_{Kerr} paraméter, 3.8 kifejezésben szereplő A konstans:

$$\frac{1}{2\phi_o} \left[\left(\frac{I_f}{I_{dc}} \right)_{+\phi_o} - \left(\frac{I_f}{I_{dc}} \right)_{-\phi_o} \right] = 4AJ_1(\delta_o). \quad (3.15)$$

A polarizáció modulációs mérés technika további szemléltetésével a 3.4 ábra szolgál. Az ábra (a) részén a fotoelasztikus modulátor által létrehozott fázistolás időfüggése látható. A retardáció $\delta_o = \frac{\pi}{2}$ értéke esetén, a fotoelasztikus modulátort elhagyó fény polarizációját az időfüggő jel alatt láthatjuk. Ha a fázistolás zérus, a PEM-et elhagyó fény lineárisan polarizált marad. Míg $\pm\frac{\pi}{2}$ fázistolás esetén a nyaláb balra illetve jobbra cirkulárisan polarizálttá válik. Köztes esetekben a polarizáció elliptikus. A minta által visszavert fény polarizációjának x irányú vetülete, ha nincs MOKE effektus, időben állandó, ezt szemlélteti az ábra (a) részének harmadik szegmense. Abban az esetben, ha a mintának van Kerr-forgatása, de nincs Kerr-ellipticitása, a visszavert fény polarizációjának alakját az ábra (b) részén láthatjuk. Ebben az esetben a fény polarizációs iránya (általánosan polarizációs ellipszise) elfordul az eredeti 45° -os irányhoz képest és ennek köszönhetően megváltozik a térerősség x irányú vetületének nagysága. Az időben állandó komponenshez hozzáadódik egy $2f$ frekvenciával oszcilláló tag. Ennek az a magyarázata, hogy az x irányú vetület nem tudja megkülönböztetni a balra és jobbra cirkulárisan poláros állapotokat ezért ennek az oszcillációnak periódusideje fele akkora, mint a gerjesztő frekvenciáé, ahogy ezt a (b) rész második szegmense szemlélteti. Más a helyzet akkor, amikor a mintának van Kerr-ellipticitása, de nincs Kerr-forgatása. Ebben az esetben a mintáról visszavert jobbra és balra cirkulárisan polarizált fények amplitúdója közt lesz eltérés, így ennek változása f frekvenciájú oszcillációként jelenik meg a térerősség nagyságában (illetve az intenzitásban), melyet a 3.4 ábra (c) része szemléltet.



3.4. ábra. Annak sematikus illusztrációja, hogy miért az f frekvenciával (alapharmonikus) oszcilláló jel lesz arányos a Kerr-ellipticitással és miért a $2f$ frekvenciás komponens adja a Kerr-szöget [21].

3.2. Polarizáció modulációs spektroszkópia

Ebben a fejezetben bemutatom a diszperzív és a Fourier transzformációs spektrométerek működési elvét és a polarizáció modulációs módszer adaptációját ezen eszközökre.

A diszperzív spektrométerekben egy optikai rács, prizma vagy foto-akusztikus moduláció (esetünkben holografikus rács) térben szeparálja a belépő fehér fényt a különböző hullámhosszú összetevők szerint. A térben felbontott spektrumból egy keskeny rés segítségével kiválasztunk egy $[\lambda, \lambda + d\lambda]$ hullámhossz intervallumot, mellyel elvégezzük az optikai mérést. Ezen hullámhossz ablak változtatásával mérjük meg a spektrumot. A spektrométer $d\lambda$ felbontása arányos a rés szélességével, ezért a jobb felbontás eléréséhez érdemes kisebb réssel dolgozni. Ezzel szemben a rés szélességének csökkentésével csökken a rajta keresztül jutó fény intenzitása, emiatt romlik a jel-zaj viszony.²

²A rácsos monokromátorok felbontását a kalibrációs eljárás során szokták meghatározni és nm/mm egységben megadják a felbontás / rés szélesség arányt.

A rácsos optikai spektrométereket leginkább az ultraibolya, a látható és a közeli infravörös tartományokon lehet eredményesen használni. Ennek legfőbb oka az, hogy rendelkezésre állnak megfelelően nagy intenzitású szélessávú fényforrások, amelyek esetében nem okoz gondot, hogy az aktuálisan vizsgált $[\lambda, \lambda + d\lambda]$ intervallumon kívül eső spektrális intenzitás elvész.

A fotoelasztikus modulátorral végzett polarizáció változás mérések egyszerűen megoldhatóak a rácsos spektrométerek használatával. A PEM elektronikus vezérlő egysége a hullámhossz ismeretében kiszámítja, hogy hogyan kell megváltoztatni a mechanikai gerjesztés amplitúdóját ahhoz, hogy a modulátor δ_o fázistolása közel állandó maradjon a hullámhossz változása esetén [6]. Így az I_f, I_{2f} értékeket egy adott hullámhosszon, a lock-in erősítő megfelelő idejű átlagolásával meghatározhatjuk, majd megváltoztatjuk a hullámhosszt $d\lambda$ -val és a mérést megismételhetjük.

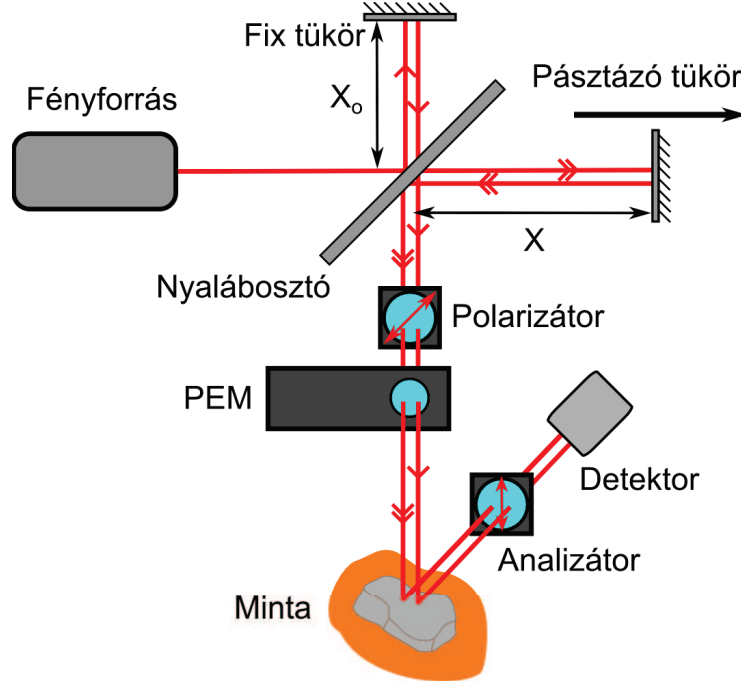
Az infravörös spektroszkópiában felmerülő legnagyobb technikai nehézség, hogy nincs olyan szélessávú fényforrás, melynek intenzitása nagyságrendekkel meghaladja a környezetből származó, termikus eredetű infravörös zaj mértékét. Ez a távoli infravörös tartományon már rendkívüli módon megnehezíti a diszperziós módszer alkalmazását. A Fourier-transzformációs spektroszkópia előnye ezzel szemben, hogy kihasználja a fényforrás teljes intenzitását és a teljes spektrumot „egyszerre méri”.

A Fourier-transzformációs spektrométerek optikai alapegysége egy interferométer (3.5 ábra). A forrásból kilépő fényt a nyalábosztó két részre osztja, az egyik egy nem mozgatható, a másik egy mozgatható, ún. pásztázó tükörrre esik merőlegesen. A tükrökről visszavert fénysugarak a nyalábosztón áthaladva illetve visszaverődve ismét egyesülnek és eljutnak a mintára. Ideális nyalábosztó esetén a két ágban ugyanazok az események történnek a fénynyalábokkal, egyszer keresztülmennek a nyalábosztón, egyszer visszaverődnek a tükrökön, tehát csak az úthossz különbség számít a két nyaláb által létrehozott interferenciában, mely a pásztázó tükör mozgása révén időben változik. A mintára egy időben változó „interferenciakép” jut el és onnan visszaverődve leképeződik a detektorra. Ezt az intenzitás görbét, melyet a pásztázó tükör pozíciójának függvényében határozunk meg, interferogramnak nevezzük. A minta mérésénél reflexiós geometriát feltételezve vizsgáljuk meg, hogy a detektor mit érzékel! Jelölje $\mathbf{E}(t)$ a kettéosztott nyaláb rögzített tükörrre eső komponensére a térerősség időfüggését. Ekkor a pásztázó tükörrre eső nyaláb térerőssége $\mathbf{E}(t + \tau)$, hisz $\tau = 2(x - x_o)/c$ időkéésben van az előbbihez képest, ahol c a fénysebesség, x és x_o a mozgó illetve az álló tükrök pozíciója. A detektor az interferáló nyalábok intenzitásának időátlagát méri, mivel nem tudja követni a fény gyorsan oszcilláló térerősségét:

$$I(\tau) = \left\langle \frac{1}{2} \left| [\mathbf{E}(t) + \mathbf{E}(t + \tau)] \right|^2 \right\rangle_t = \frac{1}{2} \left\langle |\mathbf{E}(t)|^2 \right\rangle_t + \frac{1}{2} \left\langle |\mathbf{E}(t + \tau)|^2 \right\rangle_t + \left\langle \text{Re} [\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{E}^*(t + \tau)] \right\rangle_t, \quad (3.16)$$

ahol a $\langle \rangle_t$ jelenti a T ideig tartó mérés alatti időátlagolást. Kifejtve a fenti egyenletet:

$$I(\tau) = \langle I_o \rangle_t + \text{Re} \left[\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{\omega'} e^{i\omega' t} \cdot \mathbf{E}_{\omega''}^* e^{-i\omega''(t+\tau)} d\omega' d\omega'' dt \right].$$



3.5. ábra. Fourier transzformációs MOKE spektrométer sematikus rajza. A két nyílas fénynyaláb a fix tükörről verődik vissza, a három nyílas fénynyaláb pedig a mozgó tükörről. Az ismételt egyesített és interferáló nyalábok keresztülhaladnak a polarizátor PEM analizátor elemeken, majd a mintáról visszaverődő fény a detektorra jut.

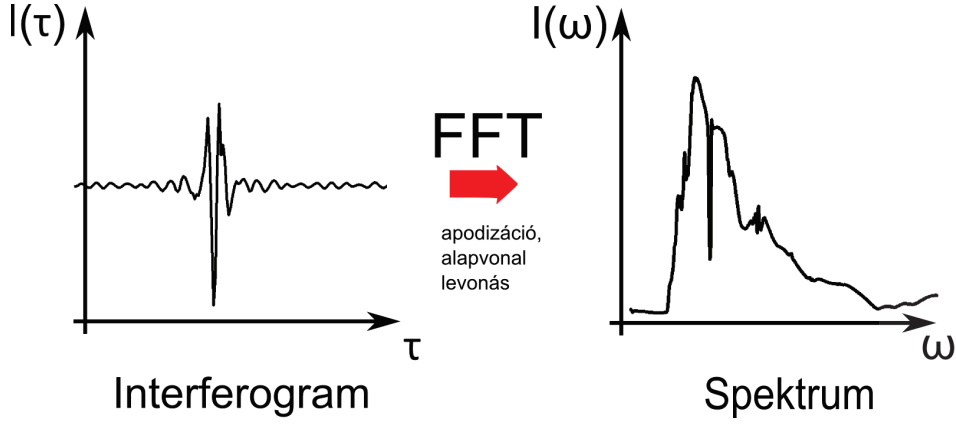
Elvégezve a Fourier-transzformációt és az időátlagolást a Wiener-Khinchin tétel:

$$\begin{aligned}
 I(\omega) &= \langle I_o \rangle_t \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega\tau} d\tau + \\
 &+ \operatorname{Re} \left[\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{\omega'} e^{i(\omega' - \omega'')t} \cdot \mathbf{E}_{\omega''}^* e^{-i(\omega + \omega'')\tau} d\omega' d\omega'' d\tau dt \right] = \\
 &= \langle I_o \rangle_t \delta(\omega) + \operatorname{Re} \left[\int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{\omega'} \cdot \mathbf{E}_{\omega''}^* \delta(\omega' - \omega'') \delta(\omega + \omega'') d\omega' d\omega'' \right] = \\
 &= \langle I_o \rangle_t \delta(\omega) + \operatorname{Re} [\mathbf{E}_{-\omega} \cdot \mathbf{E}_{-\omega}^*] = \langle I_o \rangle_t \delta(\omega) + \mathbf{E}_{\omega} \cdot \mathbf{E}_{\omega}^*. \quad (3.17)
 \end{aligned}$$

Összefoglalva elmondhatjuk, hogy az $I(\omega)$ teljesítmény spektrum a fény autokorrelációs függvényének Fourier transzformáltja. Az $I(\tau)$ interferogramból a τ -tól független alapvonal levonásával az $\langle I_o \rangle_t \delta(\omega)$ járuléktól megszabadulhatunk (3.6 ábra).

Eddig a detektor által közvetlenül érzékelt interferogramról volt szó. Abban az esetben, ha egy minta r_{ω} reflexiós együttható spektrumát kívánjuk meghatározni, a térerősségek és a detektort érő intenzitás a következőképpen módosul:

$$\mathbf{E}_{minta}(t) = \int r_{\omega'} \mathbf{E}_{bees\delta, \omega'} e^{i\omega' t} d\omega' \quad \text{és} \quad \mathbf{E}_{minta}^*(t + \tau) = \int r_{\omega''}^* \mathbf{E}_{bees\delta, \omega''}^* e^{-i\omega'(t+\tau)} d\omega'',$$



3.6. ábra. Az interferogrammból alapvonal levonás, apodizáció és Fourier transzformáció segítségével számolható ki a mintáról visszavert fény teljesítmény spektruma.

$$I_{minta}(\omega) = (r_{\omega} \mathbf{E}_{\omega}) (r_{\omega}^* \mathbf{E}_{\omega}^*), \quad (3.18)$$

amely polarizálatlan esetben:

$$I_{minta}(\omega) \approx R(\omega) \mathbf{E}_{\omega} \mathbf{E}_{\omega}^*, \quad (3.19)$$

itt $R(\omega)$ az ω frekvenciás fényintenzitásnak a minta által visszavert részét jelenti. Ahhoz, hogy megkapjuk a mintát jellemző reflektivitás spektrumot, viszonyítanunk kell a mintán mért teljesítmény spektrumot egy referencia anyagéhoz, melynek a mérési tartományon állandó és egységnyihez közeli a reflektivitása (például arany, ezüst vagy alumínium tükrök spektrumához). Erre azért van szükség, mert a mért teljesítmény spektrum erősen függ a lámpa fényességének spektrális eloszlásától, az egyes optikai elemek diszperziójától és a detektor érzékenységének hullámhosszfüggésétől. Vagyis a minta frekvenciafüggő reflexiója, kihasználva a Fourier-transzformáció linearitását:

$$R(\omega) = \frac{I_{minta}(\omega)}{I_{referencia}(\omega)}. \quad (3.20)$$

Az egzakt Fourier transzformációhoz végtelen hosszú távolságot kellene a mozgó tükörnek bejárni. Vizsgáljuk meg a pásztázó tükör véges maximális elmozdulásának hatását abban az esetben, ha a detektálni kívánt nyaláb monokromatikus, azaz $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_o \cos \omega_o t$, tehát a spektrum csak $\pm \omega_o$ frekvenciás Fourier komponenseket tartalmazza, vagyis:

$$I_{elméleti}(\omega) = \frac{|\mathbf{E}_{\omega_o}|^2}{2} [\delta(\omega_o + \omega) + \delta(\omega_o - \omega)].$$

Ezzel szemben, ha a mozgó tükör maximális elmozdulásához tartozó időskála T_{Max} , a valóságos spektrum egy kiszélesedett, negatív mellékcúcsokat is tartalmazó jel lesz:

$$I_{mért}(\omega) = \frac{|\mathbf{E}_{\omega_o}|^2}{2} \left[\frac{\sin((\omega_o + \omega)T_{Max})}{\omega_o + \omega} + \frac{\sin((\omega_o - \omega)T_{Max})}{\omega_o - \omega} \right].$$

Megfelelő ablakfüggvénnyel a negatív értékek kiküszöbölhetők (apodizáció), de a kiszélesedés nem kezelhető. A vonalak ilyen típusú kiszélesedése limitálja a felbontást, mely fordítottan arányos T_{Max} értékével.

A gyakorlatban a tükör pozícióját az interferométeren a fehér fényű nyalábbal párhuzamosan áthaladó referencia lézer által létrehozott interferogrammal mérjük. A kísérletben mért interferogramból numerikus Fourier transzformációval számíthatjuk ki a spektrumot [23]. A mérésnél detektálható legnagyobb frekvenciát pedig az határozza meg, hogy a tükör mozgása során milyen T_{min} időközönként mintavételezünk.

A Fourier-transzformációs technika némileg előnytelen a polarizáció modulációs mérések szempontjából. Szembetűnő, hogy ezen technika alkalmazása esetén nem egy jól definiált hullámhosszúságú fény halad át a fotoelasztikus modulátoron, így nem érhetjük el, hogy a PEM minden hullámhosszon ideális mértékű retardációt adjon. Ezen nehézség ellenére a technika használható marad, hiszen ez formálisan csak a 3.8 és a 3.9 kifejezésekben megjelenő A, B együtthatók hullámhosszfüggését eredményezi, ami a kalibráció során meghatározható. Kihasználva a Fourier-transzformáció linearitását, a modulált jel felharmónikusainak mérésével meghatározhatóak a Kerr paraméterek:

$$\vartheta_{Kerr}(\omega) \sim \frac{I_{2f}(\omega)}{I_{dc}(\omega)} \sim \frac{\int I_{2f}(\tau)e^{-i\omega\tau}d\tau}{\int I_{dc}(\tau)e^{-i\omega\tau}d\tau},$$

$$\eta_{Kerr}(\omega) \sim \frac{I_f(\omega)}{I_{dc}(\omega)} \sim \frac{\int I_f(\tau)e^{-i\omega\tau}d\tau}{\int I_{dc}(\tau)e^{-i\omega\tau}d\tau},$$

ahol $I_f(\tau)$ és $I_{2f}(\tau)$ az intenzitás alap és második harmonikusához tartozó interferogramok, míg $I_{dc}(\tau)$ a „szokványosan mért” teljes intenzitáshoz tartozó interferogram.

A technika alkalmazhatóságának további korlátai akkor ismerhetők fel, ha megvizsgáljuk a különböző eszközök működését jellemző időskálákat. Ezt a konkrét mérőrendszert jellemző számadatok példáján keresztül fogom bemutatni. A mérések során használt fotoelasztikus kristály sajátfrekvenciája, ami esetünkben $f=50$ kHz behatárolja a többi elektronikai eszköz időállandóját. Ezek szerint a moduláció $T_{mod}=20$ μ s-os periódus idejénél gyorsabb detektort kell választani. Az általunk használt MCT detektor (beleértve erősítőjének sávszélességét) $T_{det} \approx 1$ μ s-os periódus idővel rendelkezik, amelyhez tartozó 1 MHz-es sávszélesség biztosította, hogy még a $2f$ modulált jelet is kellőképpen gyakran tudja mintavételezni.

A spektrométer térbeli mintavételezési gyakorisága (az interferogram x -beli felbontása) a detektálni kívánt legnagyobb energiát fogja meghatározni. Abban az esetben ha az a célunk, hogy az interferométerrel $E_{Max}=1$ eV foton energiáig lehessen mérni, a v sebességgel mozgó tükör pozícióját a már említett T_{min} időközönként kell mintavételezni:

$$T_{min} = \frac{c \cdot h}{v \cdot E_{Max}}.$$

Fourier-transzformációs eszközök vezérlő programjaiban több különböző v tükör sebesség közül lehet választani (nagyobb sebesség gyorsabb mérést jelent), azonban a lehetőségekhez mérten ezen modulációs technikához lassú tükör mozgást érdemes választani. Esetünkben ez legyen $v=0,15$ $\frac{cm}{s}$, mely beállítással $T_{min}=800$ μ s.

A lock-in időállandóját úgy kell megválasztani, hogy lehetőség legyen a modulált jelek átlagolására, azonban a tükörpozíció ez idő alatt ne változzon jelentős mértékben. Ez alapján a $T_{lock-in}=30-100$ μ s-os időállandók tűnnek elfogadható választásnak. A $T_{lock-in}=30$ μ s-os időállandó választása esetén a lock-in kevésszer tud átlagolni, a mérés nagyobb mértékű zajt is tartalmazhat. $T_{lock-in}=100$ μ s esetén a mért jel kevésbé zajos, azonban magasabb frekvenciás komponensei kiátlagolódnak, ami azt okozza, hogy a számított spektrumban magasabb

energiák felé a mért jel amplitúdója csökken illetve romolhat a jel-zaj arány.³ A spektrum nagy frekvenciájú részének, mely az interferogram gyorsan oszcilláló komponenseinek felel meg, kiátlagolódása annak a következménye, hogy a lock-in számára az időállandó 5-10-szerese szükséges ahhoz, hogy a mért jel stabil legyen. Ez az idő esetünkben (még a lassan mozgó tükör esetén is) megközelíti T_{min} -t.

Mint láttuk, a Fourier-transzformációs mérés technika alkalmazhatóságának korlátját épp a T_{mod} és T_{min} által megszabott szűkös időablak okozza. Növelve a spektrális energia tartományt az időablak szűkül, ezáltal a mérések látható fény energia tartományaira történő kiterjesztését lehetetlenné teszi.

Az interferometrikus alapegység foton energia felbontását a pásztázó tükör mozgásának tágassága szabja meg. Ha a felbontás $\delta E = 4$ meV, ami a molekulák spektroszkópiájában szokásosan alkalmazott 0,5 meV felbontáshoz képest durva, a tükör mozgásának összideje:

$$T_{Max} = \frac{c \cdot \hbar}{v \cdot \delta E} \approx 210 \text{ ms},$$

azaz a pásztázótükör 0,3 mm-es távolságot fut be ez idő alatt. Ez azt jelenti, hogy egy 1 perc időtartamú mérés esetén ~ 100 interferogrammot átlagolhatunk össze.

³Lásd 5.12 ábra.

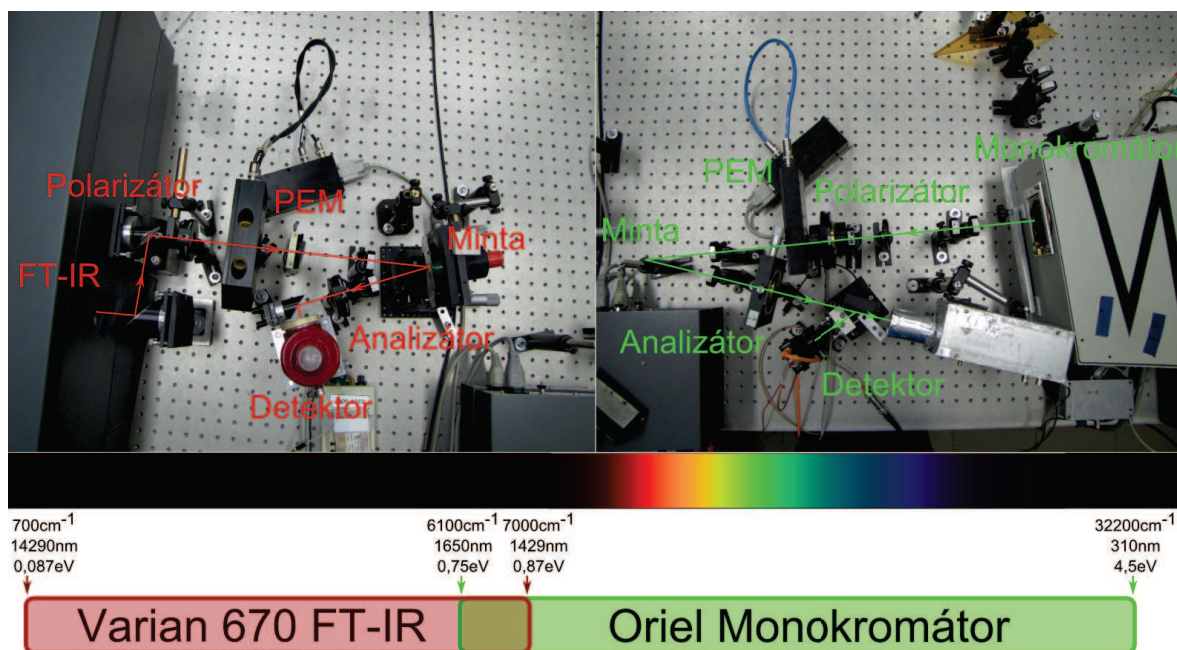
4. fejezet

Szélessávú MOKE spektrométer fejlesztése

A magneto-optikai módszerekkel történő anyagvizsgálat, mint azt a bevezető fejezetekben láttuk, széles körben alkalmazható. Ennek ellenére a kereskedelmi forgalomban nem létezik olyan kompakt spektroszkópai eszköz, mellyel az infravöröstől az ultraibolyáig lehetne az anyagok MOKE spektrumát mérni. Ennek egyik fő magyarázata az, hogy a magneto-optikai effektusok infravörös tartományban (Fourier transzformációs spektrométerekkel) történő detektálása komoly mérés technikai kihívást jelent. Másrészt, ilyen kapacitású eszközökre főként az alapkutatások terén mutatkozik kereslet, ahol az anyagok tág spektrumú vizsgálata fontos.

A világon mindössze néhány kutató laboratóriumban fejlesztettek ki olyan MOKE spektrométert, amely az infravöröstől az ultraibolyáig terjedő tartományon képes a Kerr paraméterek nagy pontosságú mérésére polarizáció modulációs technikával. Témavezetőm a Tokyo-i Egyetemen már megépített egy ilyen speciális spektrométert. Diplomamunkám célja, hogy ezen tapasztalatok felhasználásával egy unikális, még szélesebb energia tartományt lefedő MOKE spektrométert építsek. A saját fejlesztésű mérőrendszernek megvan az az előnye is, hogy flexibilis, tetszőlegesen módosítható a kísérleti igények szerint. Például használhatjuk reflexiós és transzmissziós üzemmódban, szobahőmérsékleti vagy alacsony hőmérsékleti kriogén környezetben zajló mérésekre és integrálhatjuk nagy terű szupravezető mágnessel.

Szélessávú magneto-optikai spektroszkópia esetén a nagy pontosság és felbontás eléréséhez feltétlenül szükséges több spektrométer alkalmazása, kombinálva számos, eltérő típusú fényforrással, detektorral, fotoelasztikus modulátorral és egyéb optikai elemekkel. Diplomamunkám során olyan szélessávú magneto-optikai mérőrendszer megépítésében és optimalizációjában vettem részt, mely egy rácsos monokromátor és egy Fourier transzformációs spektrométer integrációjával, polarizáció modulációs technikával méri az anyagok Kerr paramétereit (ϑ_{Kerr} és η_{Kerr}). Az eszköz, jelenlegi állapotában 87 meV - 4,5 eV energia tartományban alkalmas magneto-optikai spektrumok detektálására (4.1 ábra).



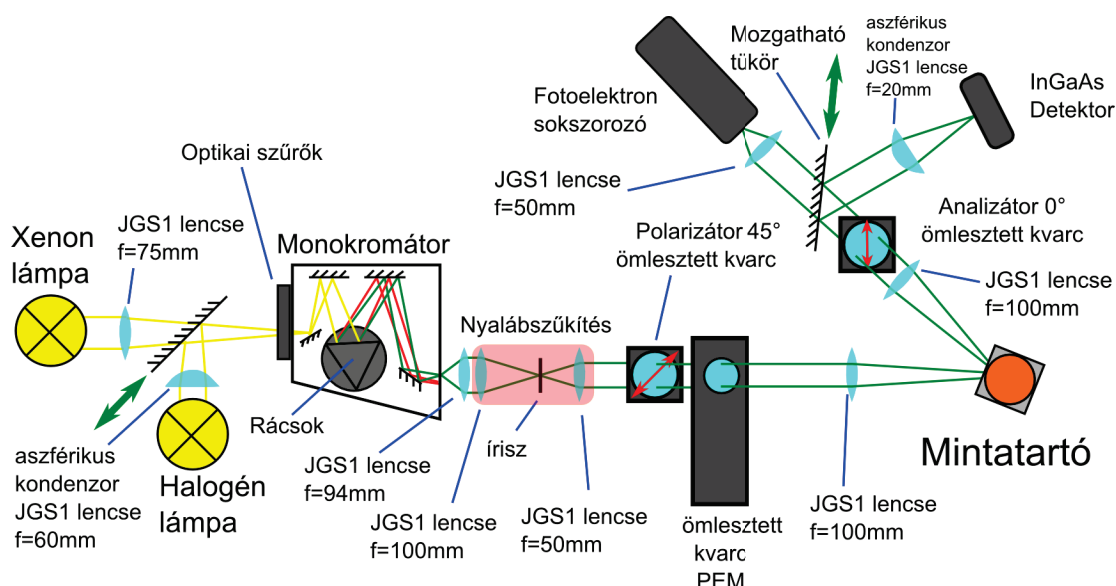
4.1. ábra. A MOKE mérőrendszer Fourier transzformációs szpektrométeren és rácson alapuló alapegységei és működési tartományuk.

A különböző foton energia tartományok esetén a fényút kialakításához eltérő anyagú lencsét és ablakokat kell választani. A rácson alapuló monokromátor esetén UV grade Fused Silica (JGS1) anyagú elemeket érdemes használni, mivel ezen anyag 0,5-6,5 eV energia tartományon belül (UV-VIS-NIR) nagy mértékben átlátszó. Az FT-IR szpektrométer tartományában pedig ZnSe alapú lencsét és PEM-et alkalmaztam, ugyanis ezen anyag 60 meV és 2,1 eV között átlátszó (NIR-MIR). A mérőrendszerben használt optikai anyagokat jellemző transzmissziós spektrumokat a Függelék A.1 ábrája tartalmazza.

4.1. Rácson alapuló MOKE szpektrométer

Az ORIEL Cornerstone 260 típusú rácson alapuló alapegység optikai elrendezését, mellyel jelen állapotában az $E=0,75-4,5$ eV tartományon lehet mérni mágneses-optikai paramétereket, a 4.2 ábra mutatja.

Az ultraibolya és látható tartományon xenon lámpát alkalmaztam, mely az $E=1,6-7,3$ eV energia tartományon rendkívül intenzív fényforrás. Nagyobb hullámhosszak felé a xenon lámpa emissziójának éles csúcsai vannak és intenzitása csökken, amely megnehezíti a mérések reprodukálhatóságát, ezért az $E=0,75-1,8$ eV tartományon halogén izzót használtam.



4.2. ábra. Az ORIEL Cornerstone 260 monokromátorra alapozott polarizáció modulációs MOKE elrendezés optikai vázlata. A monokromátor előtti és az analizátort követő tükrök elmozdításával lehet a különböző fényforrások és detektorok között váltani. A monokromátor belsejében található három optikai rács, melynek mozgását és cseréjét egy léptető motor végzi.

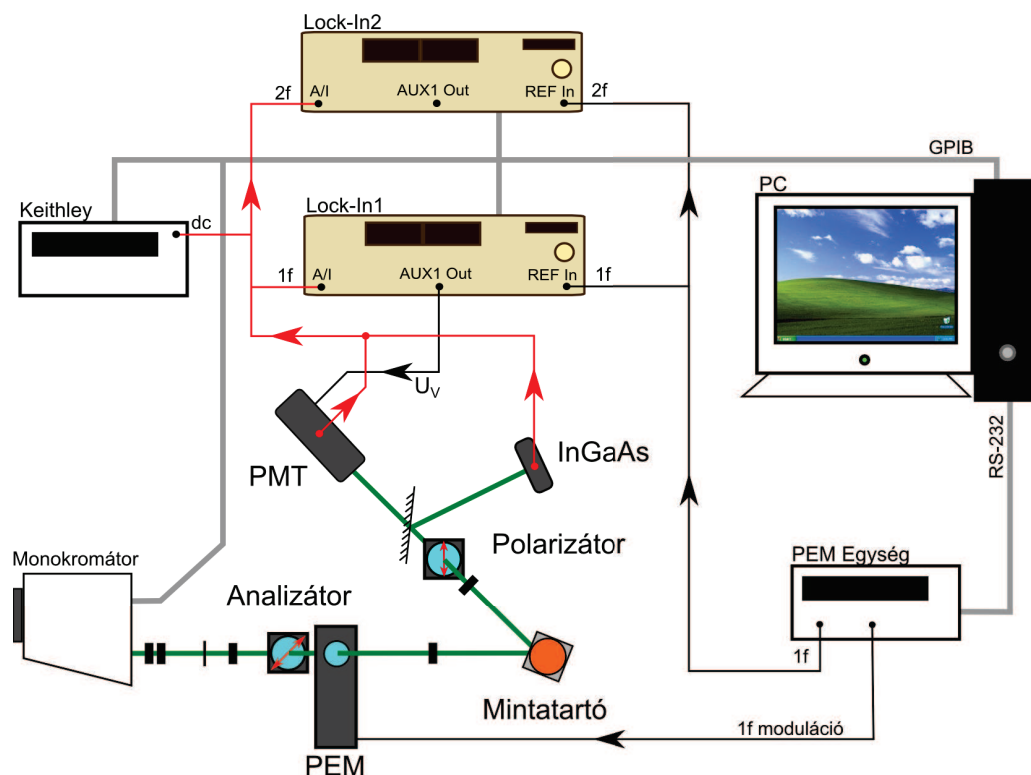
A fényforrásokból érkező fényt az optikai rácsos monokromátor bontja fel különböző λ hullámhosszokra. A monokromátor előtt cserélhető, hullámhosszban felüláteresztő optikai szűrők vannak, melyek megakadályozzák azt, hogy a rács által diffraktált első rendű főmaximum átfedjen rövidebb hullámhosszú fényre kapott második rendű maximummal és így az utóbbi is elhagyhassa a monokromátort. A fehér fény felbontását a különböző energia tartományokon három cserélhető optikai rács végzi, melyek állásszögével folytonosan változtatható a monokromátorból kilépő fény hullámhossza. A szűrők és a rácsok cseréjét számítógép vezérli. Részletes specifikációjukat a Függelék A.1 és A.2 táblázatai tartalmazzák. A rácsok diszperziója és a rés szélessége adja meg a monokromátor hullámhossz felbontását, ezek aránya az ún. reciprok diszperzió.

A polarizátorok anyaga kalcit, kioltási hányadosuk 10^{-6} . Ha a polarizátorra lineárisan polarizált fény esik, ez a szám megadja a minimálisan és maximálisan átjutó intenzitás arányát a polarizátor szögének változtatásával. A UV grade Fused Silica anyagú fotoelasztikus kristályt (I/FS50) egy PEM-90 vezérlőegység modulálja $f=50$ kHz-el, amely szintén számítógéppel programozható.

A mérési elrendezésben használt fényút pontos kialakítását a 4.2 ábrán mutatom be. A xenon és a halogén lámpákból kilépő fényt rendre egy $f=75$ mm-es plano konvex (síkdomború) és egy $f=60$ mm-es fókusz távolságú aszférikus kondenzor lencse fókuszálta a monokromátor bemeneti nyílására. A fényforrások között egy mozgatható síktükörrel lehetett váltani. A monokromátorból kilépő λ hullámhosszúságú fényt egy $f=94$ mm-es lencse kollimálja. A kilépő fény nyaláb átmérőjét, mivel a PEM keresztmetszetéhez képest túl nagy, egy nyalábszűkítő elrendezéssel (eltérő fókusz távolságú lencsék) a felére zsugorítottam. Az analizátoron és PEM-en átjutott nyalábot $f=100$ mm-es lencsével fókuszáltam a minta felszínére és az onnan visszavert nyalábot $f=100$ mm-es bikonvex lencsével tettem ismét kollimálttá. Az analizátort követően

egy mozgatható tükrrel lehetett váltani a két lehetséges detektor, egy fotoelektron sokszorozó (PMT) és egy InGaAs detektor között. A fotoelektron sokszorozó nagy kiterjedésű érzékelő felületére egy bikonvex $f=50$ mm-es JGS1 lencse fókuszált. Az InGaAs foto-érzékeny felülete rendkívül kis méretű ($\lesssim 1$ mm²), ezért ezen detektorra egy $f=20$ mm-es aszférikus kondenzor lencsével fókuszáltam a beérkező nyalábokat.

A fény intenzitásának mérésére az $E=1,4-4,5$ eV energia tartományon fotoelektron sokszorozót, míg $E=0,75-1,6$ eV tartományon InGaAs detektort használtam (A.3 táblázat, A.2 ábra). A PMT által kiadott áramjelet, a dinódák előfeszítettségén keresztül egy vezérlőfeszültséggel erősíthetjük (a vezérlőfeszültség maximum 1 V lehet). A detektor kimeneti áramát egy 100 kHz-es sáv szélességű 10^6 -os erősítésű I/V konverter alakítja át feszültség jellé. A PMT vezérlőfeszültségét mindig olyan nagyságúra kell választani, hogy a kiadott fotoáram ne haladja meg a $10 \mu\text{A}$ -t, máskülönben a PMT sérülhet. Ezt a korlátot figyelembe véve a kedvező jel-zaj viszony érdekében érdemes mindig olyan vezérlőfeszültséget választani, hogy a spektrumon végighaladva a PMT jele minél nagyobb és lehetőség szerint közel hullámhosszfüggetlen legyen.



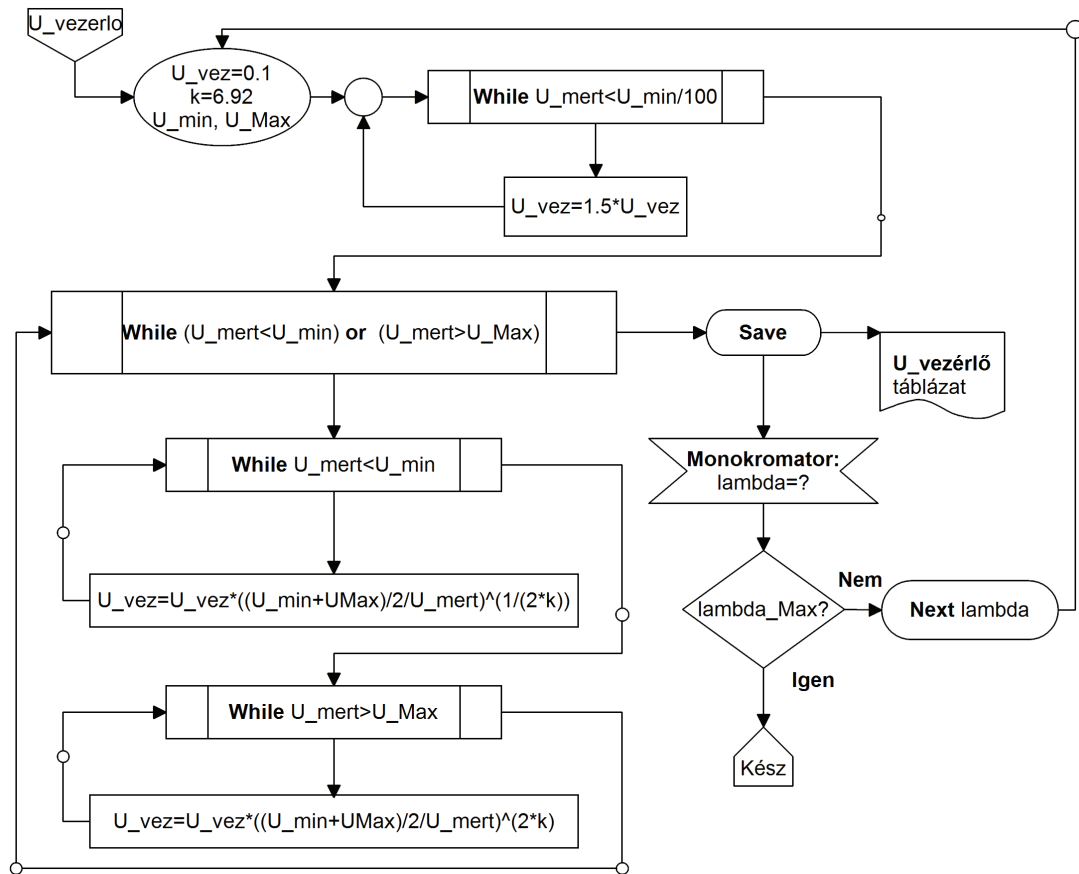
4.3. ábra. Az ORIEL Cornerstone 260 monokromátorral megvalósított polarizáció modulációs MOKE elrendezés elektronikai vázlata.

A rácsos monokromátoron alapuló MOKE egység elektronikai kapcsolásának vázlata látható a 4.3 ábrán. A detektorok által kiadott feszültség dc komponensét a Keithley gyártmányú multiméter, f és $2f$ frekvenciájú komponensét két SR-830 típusú lock-in erősítő méri, melyek GPIB-n keresztül kommunikálnak a számítógép felé. A fotoelektron sokszorozó U_V vezérlő feszültségét az f frekvenciájú komponens mérő lock-in erősítő szabályozza.

Mérésvezérlő program

Minden elektronikai egységet egy, általam és Szaller Dávid által közösen fejlesztett program vezérel. Ezen, saját fejlesztésű programunk működését ismertetem a következőkben.

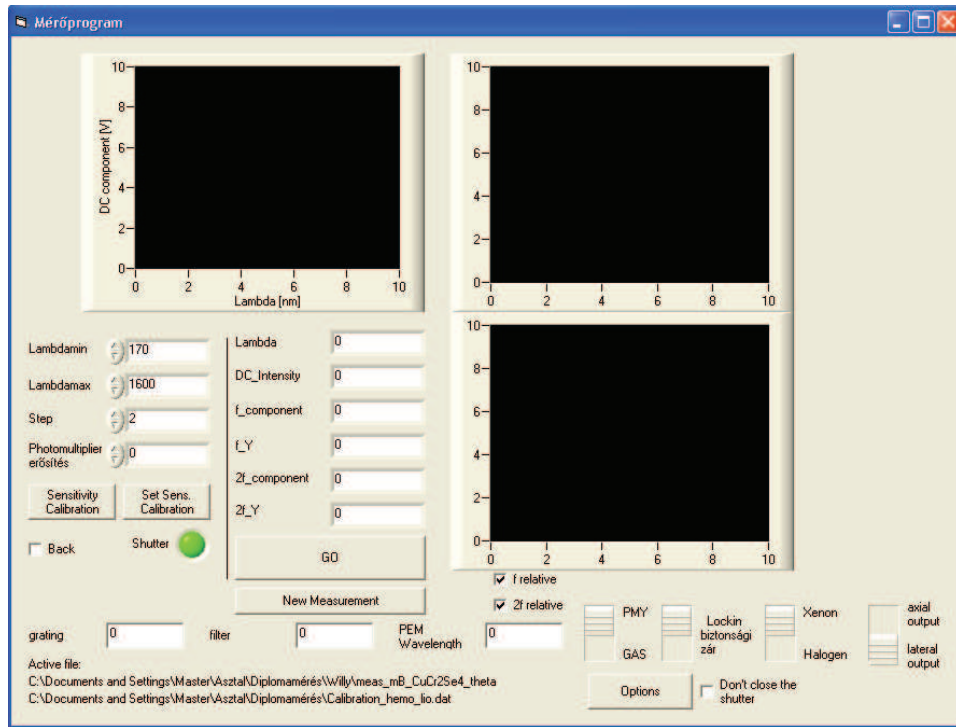
A program elsődleges célja, hogy a felhasználó kényelmesen és effektíven, az egyes mérőeszközök fizikai konfigurálása nélkül tudja méréseit elvégezni, menet közben eredményeit ábrázolni és eltárolni. Kiemelt részfeladat az érzékeny PMT detektor védelme az esetleges nagy fényintenzitásoktól és az érzékenységet meghatározó ideális vezérlőfeszültség beállítása. A program, egy optimalizációs mérés során kiszámolja a PMT ideális vezérlőfeszültségét. Az éles mérés során megadja a PEM-90 modulációs hullámhosszát, lépteti a monokromátort, és a szűrőket illetve menti és ábrázolja a mérés során kapott feszültségek különböző komponenseit.



4.4. ábra. A PMT vezérlőfeszültségének hullámhosszfüggését mérő algoritmus. Minden λ hullámhosszhoz olyan vezérlőfeszültséget keres, mely alkalmazása esetén a PMT-n mért feszültség egyenáramú komponense közel hullámhosszfüggetlen.

Mindezen funkciók lényegi részét három eljárás végzi el (**meres**, **Setwavelength** és **U_vezerlo**), melyek vázlatos blokkdiagrammja a 4.4 és a 4.6 ábrákon láthatók. Elsőként ez utóbbi eljárást ismertetem, mivel egy mérés során legelőször az **U_vezerlo** eljárással kell a PMT-nél alkalmazandó vezérlőfeszültséget meghatározni. Az eljárások kódja a felhasználó

számára nem jelennek meg, az csak a kezelőfelülettel találkozók, melyet a 4.5 ábra mutat. Ezen algoritmusok tájékoztatják is a felhasználót minden eseményről, azonban az eljárások bemutatása során a felhasználó felé történő állapot jelentéseket, az egyszerűség kedvéért részletesen nem ismertetem.



4.5. ábra. A mérésvezérlő program grafikus felhasználói felülete.

A vezérlőfeszültség kalibrációja, tehát az **U_vezerlo** alkalmazása során a fényutat nem szabad megváltoztatni, az éles mérés során fennálló feltételeket kell biztosítani. Az **U_vezerlo** függvény (4.4 ábra) a felhasználótól egy U_{min} és U_{Max} értékeket kér, melyek közé a PMT detektoron mért feszültség dc komponensének nagyságát fogja beállítani minden λ hullámhosszon. A fotoelektron sokszorozó árama a vezérlő feszültségnek hatványfüggvénye $k=6,92$ kitevővel, melyet a spektrométer építését megelőzőleg mérések segítségével határoztam meg. Az algoritmus első lépésként $U_{vez}=0,1$ V feszültséget ad a PMT-nek és ezt addig emeli, lépésenként mindig másfélszeresére, amíg a detektoron mért feszültség U_{mert} dc komponense el nem éri az U_{min} századát. Ezek után a PMT elér a hatványfüggvénnyel leírható működési tartományba, így az ideális feszültség megtalálására használható a alábbi összefüggés:

$$U_{vez} = U_{vez} \cdot \left[\frac{U_{Max} + U_{min}}{2U_{mert}} \right]^{\frac{1}{2k}}, \quad \text{ha } U_{mert} < U_{min},$$

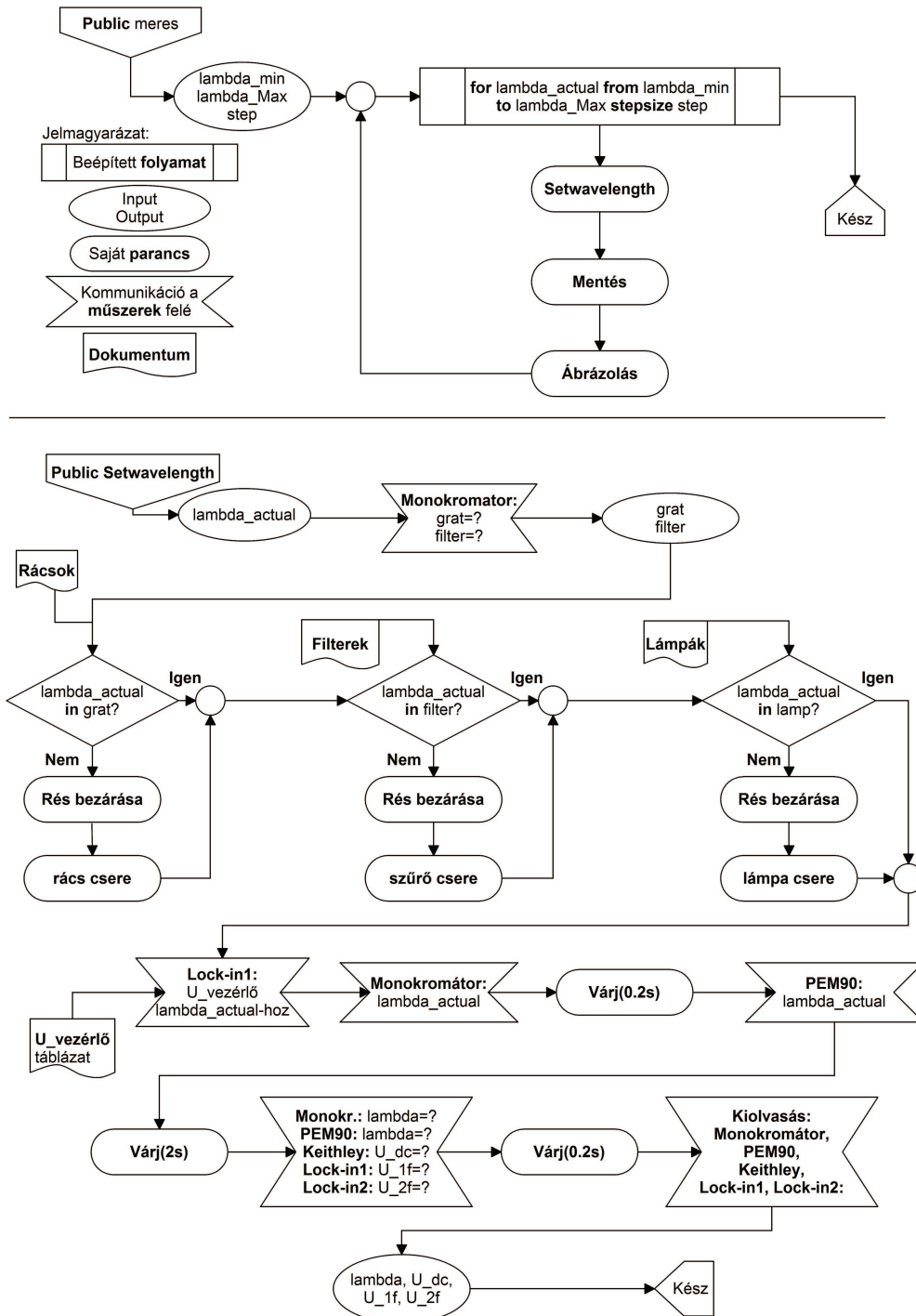
$$U_{vez} = U_{vez} \cdot \left[\frac{U_{Max} + U_{min}}{2U_{mert}} \right]^{2k}, \quad \text{ha } U_{Max} < U_{mert}.$$

A legkülső **while** ciklusból akkor kerülhet ki az algoritmus, ha a U_{mert} az U_{min} és U_{Max} közti értéket vesz fel. Ekkor a függvény egy fájlba táblázatosan menti az adott

λ hullámhosszhoz tartozó U_vez értéket, majd a monokromátort utasítja, hogy a lépjen a következő hullámhosszra.

A mérést végző **meres** és **Setwavelength** algoritmusok vázlatos blokkdiagrammjai a 4.6 ábrán láthatóak. Mérés indítása előtt a felhasználó megadja, hogy milyen λ_{min} és λ_{Max} hullámhosszúságok között, mekkora step lépésközzel történjen meg a mérés, ekkor valójában a **meres** függvényt indítja el. Az algoritmus **for** ciklussal lépteti a hullámhosszakat, minden alkalommal meghívja a **Setwavelength**, eljárást, menti és ábrázolja a mérési eredményeket. Felhasználói beavatkozás esetén a **meres** algoritmus megállítható, szüneteltethető.

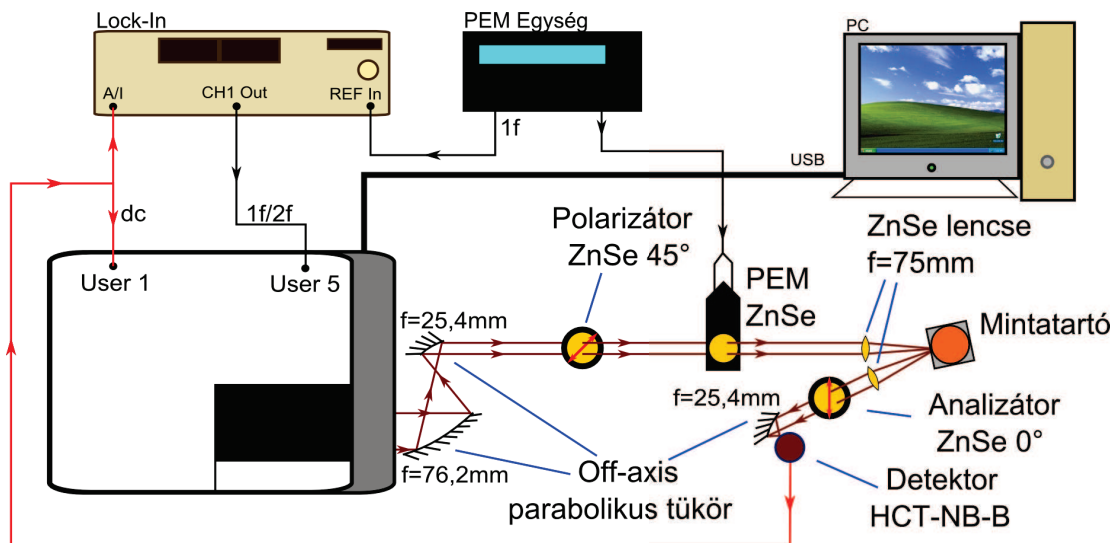
Mérőeszközökkel való kommunikációt és a mérést a **Setwavelength** függvény végzi. Bemeneti paramétere a λ_{actual} értéke, az a hullámhossz, ahol a következő mérési pontot akarja a **meres** függvény felvenni. Első lépésként lekéri a monokromátortól azt, hogy pillanatnyilag melyik rácsot és filtert használja. A válaszok alapján három **if** ág segítségével eldönti, hogy szükség van-e rács, filter vagy lámpa váltásra. Azt, hogy az λ_{actual} hullámhosszhoz milyen rács, filter és fényforrás tartozik három, a felhasználó által létrehozott szöveges dokumentum alapján dönti el a program. Például, ha λ_{actual} hullámhosszhoz más rács tartozik, akkor a program bezárja a monokromátor részét, hogy megóvja a PMT-t az esetleges nagy intenzitású szórt fénytől, majd rácsot vált. Azt követően, hogy végzett a monokromátor beállításainak és a fényforrások ellenőrzésével, az algoritmus utasítja a Lock-in1-et, hogy az **U_vezerlo** függvény által készített táblázat alapján adja meg a PMT-nek a λ_{actual} -hoz tartozó vezérlőfeszültséget. Csak ezt követően lépteti a monokromátort a λ_{actual} hullámhosszra, és miután várt 0,2 másodpercet, a PEM-90 vezérlőegységét is beállítja ugyanerre. Két másodpercnyi várakozási idő elteltével a hullámhossz változtatásából adódó minden tranziens megszűnt, így a függvény a mérőeszközök kiolvasásával elvégzi a mérést. Ellenőrzésképpen a monokromátorból és a PEM-90 vezérlőegységből kiolvassa azt, hogy milyen hullámhosszon állnak. A Keithley multimétertől az egyenáramú, a Lock-in1 erősítőtől az 1f-es, a Lock-in2 erősítőtől a 2f-es modulált feszültséget kérdezi le. Miután globális változóiban tárolta a mérési eredményeket, a függvény visszaadja a vezérlést a **meres**-nek.



4.6. ábra. A rácisos monokromátoron alapuló spektrométert vezérlő, saját fejlesztésű program mérési algoritmusának blokkdiagrammja.

4.2. Fourier-transzformációs MOKE spektrométer

A Varian FS670 interferométerre épülő alegység optikai és elektronikai vázlatát mutatja be a 4.7 ábra. A spektrométerben a fényforrás egy izzó szilícium-karbid rúd (Globar), amely a kellő fényességet az $E=50-1000$ meV energia tartományon biztosítja. A készülék Michaelson-interferométert tartalmaz KBr nyálábosztóval.



4.7. ábra. A Varian FS670 interferométerrel megvalósított polarizáció modulációs MOKE FT-IR elrendezés elektronikai és optikai vázlata.

ZnSe hordozóra párologtatott fémrácsos (wire-grid) polarizátorokat használtam, melyek kioltási hányadosa $3 \cdot 10^{-3}$. A fotoelasztikus modulátorban a ZnSe kristályt egy PEM-100-as egység modulálja $f=50$ kHz-es szinuszos jellel. Mivel ezen technika alkalmazása esetén a PEM-en keresztülhaladó fény nem monokromatikus, így a retardációt nem egy adott λ hullámhosszra, hanem egy tartományra kell optimalizálni. A δ_o retardációt úgy kell megválasztani, hogy a 3.10 és a 3.11 egyenletekben sem a $J_1(\delta_o)$, sem a $J_2(\delta_o)$ kifejezés ne legyen zérus a vizsgált energia tartomány egyik pontjában sem (függelék A.3 ábrája).

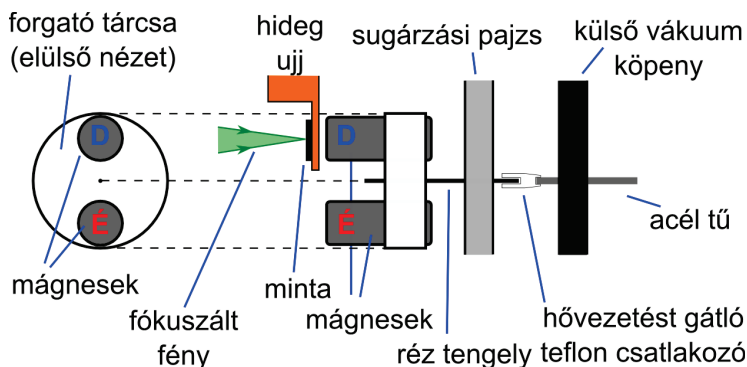
Az interferométerből kilépő kollimált infravörös fény keresztmetszetét egymást követő $f=76,2$ mm-es és $f=25,4$ mm-es off-axis parabolikus tükrökkel, mint nyalábszűkítővel csökkenttem a PEM átmérőjének méretére. A mintára érkező illetve onnan visszavert fényt $f=75$ mm-es ZnSe lencsékkel fókuszáltam illetve tettem ismét kollimálttá. Az analizátoron keresztüljutó infravörös nyalábot egy újabb, $f=25,4$ mm-es off-axis parabolikus tükrökkel gyűjtöttem a detektor fényérzékeny felületére.

Ebben az elrendezésben a mintáról visszavert fényt egy MCT (HCT-NB-B) detektorral mértem. Ahhoz, hogy a modulálatlan és modulált intenzitáskomponensekhez (I_{dc} , I_f és I_{2f}) tartozó interferogramokat párhuzamosan mérhessük, a spektrométer két csatornás analóg-digitális átalakítóval rendelkezik, amely egyéni felhasználói igényinkhez alkalmazkodó kialakítás. Az átalakító egyik csatornája a USER1 bemeneten közvetlenül megkapja a detektor jelét, amely így az I_{dc} modulálatlan komponenshez tartozó interferogramot méri. A másik

csatorna a lock-in által feldolgozott, I_f vagy I_{2f} modulált komponensekhez tartozó interferogramokat a USER5 bemeneten keresztül méri. Azt hogy melyik modulált interferogramot kapja meg a csatorna, a lock-in erősítő átváltásával lehet kiválasztani. A rácsos monokromátoros elrendezéssel ellentétben itt csak az I_{dc} és I_f illetve I_{dc} és I_{2f} komponensek együttes mérésére van lehetőség. A spektrométerhez tartozó szoftverrel (Varian ResolutionsPro) magukat a mért interferogramokat mentettem és egy külső java alkalmazással (FTMoke.jar) számítottam ki a modulálatlan és modulált spektrumokat [24].

4.3. Optikai kriosztát átalakítása MOKE mérésekhez

Mivel a vizsgálni kívánt anyagok jelentős része csak alacsony hőmérsékleteken mágneses, a MOKE spektrumok hőmérséklet függésének vizsgálata céljából egy már meglévő vákuumozható optikai kriosztátot alakítottam át (4.9 ábra). A kriosztátba a 4.9 ábrán látható csonkon,



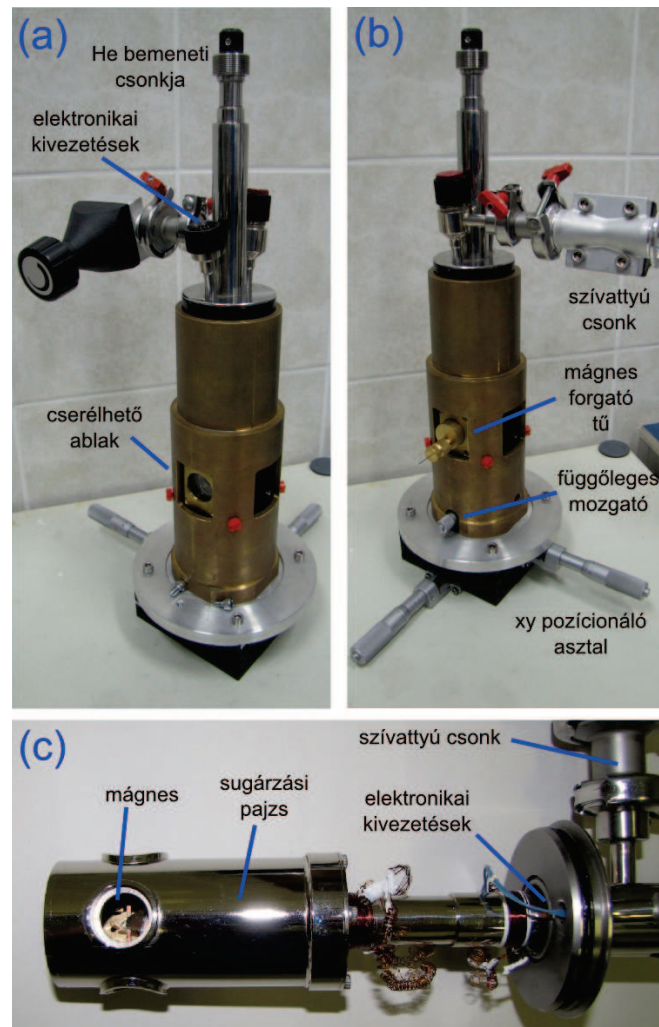
4.8. ábra. A mágnesstartó tárcsa előlnézeti és oldalnézeti sematikus vázlata. A tárcsa a mintát tartó hideg ujj mögött helyezkedik el. A tárcsa forgatásával a mágnesek megcserélhetőek. A tengelyt kívülről a teflon csatlakozóval ellátott acéltűvel lehet forgatni.

egy duplafalú transzfercsővön keresztül jut be a 4,2 K hőmérsékletű folyékony hélium (LHe). A transzfercső egy zárt üregbe ér bele, mely végén az ún. hideg ujj található, amely rendszerint jó hővezető anyagból készül. Az elforrt hélium a transzfercső külső hőszigetelt köpenyén, egy szivattyú segítségével létrehozott nyomáskülönbség eredményeképpen távozik. Ezt a szakaszt visszatérő ágnak nevezik. A szivattyú alkalmas arra, hogy a parciális gőznyomás csökkentésével akár 1,4 K hőmérsékleteket is elérhessünk, azonban ennek alkalmazása nagyobb LHe fogyasztással jár.

A hideg ujj, mely felületére rögzíthető a minta és a hőmérsékleti szenzor egy az előbbi He-körből teljesen elkülönített vákuumtérben helyezkedik el. A vákuumtérből a mintatartó oldalán látható vákuumcsonkon keresztül a levegő kiszivattyúzható és benne a nyomás szobahőmérsékleten $p \sim 10^{-5}$ mbar-ra csökkenthető. A visszatérő ág kriosztáton belüli részéhez csatlakozik a sugárzási pajzs mely szintén a vákuumtérben található. Ennek az elemnek a hőmérséklete körülbelül 70 K és azt a célt szolgálja, hogy a mintát ne a külső, 300 K-es környezetből származó termikus sugárzás érje, mely elősegíti a minta hűtését. A mintatartó optikai ablakai a különböző mérési tartományoknak megfelelően cserélhetőek.

A spektrumok mérésekor fontos, hogy könnyedén, nagy pontossággal lehessen megfordítani a mágneses tér irányát. Továbbá, a mágneses tér elegendően nagy kell legyen ahhoz, hogy a

mintát mágnesesen rendezett állapotba hozza. Mivel jelenleg csak állandó mágnesek állnak rendelkezésünkre erre a célra, a sugárzási pajzson belülről, közvetlenül a hideg ujj mögé egy kör alakú tárcsát helyeztem el. Ennek két ellentétes oldalára, a forgástengellyel párhuzamosan ellentétes pólussal két a minta helyén $B \approx 500 \text{ mT}$ indukció sűrűséget létrehozó NdFeB mágnest rögzítettem (4.8 ábra). A mágneseket tartó tárcsa a sugárzási pajzson fűrt lyukon keresztül egy könnyen elforduló tengelyen foroghat. A mágnesek pont úgy helyezkednek el, hogy a tárcsa forgatásával egyszer a mágnes északi, ellentétes állásban pedig a déli pólusa van a minta mögött. A tengelyt kívülről egy, a vákuum köpenyén vastag O-ring-es tömítéssel kivezetett, teflon csatlakozóval ellátott acéltű segítségével lehet forgatni. Ezáltal a vákuumtér megőrzésével biztosítva van az, hogy a kriosztátot szükség esetén gyorsan és könnyen szét lehessen szerelni, továbbá a teflon csatlakozónak köszönhetően a külső környezettel való hőkontaktus minimális.



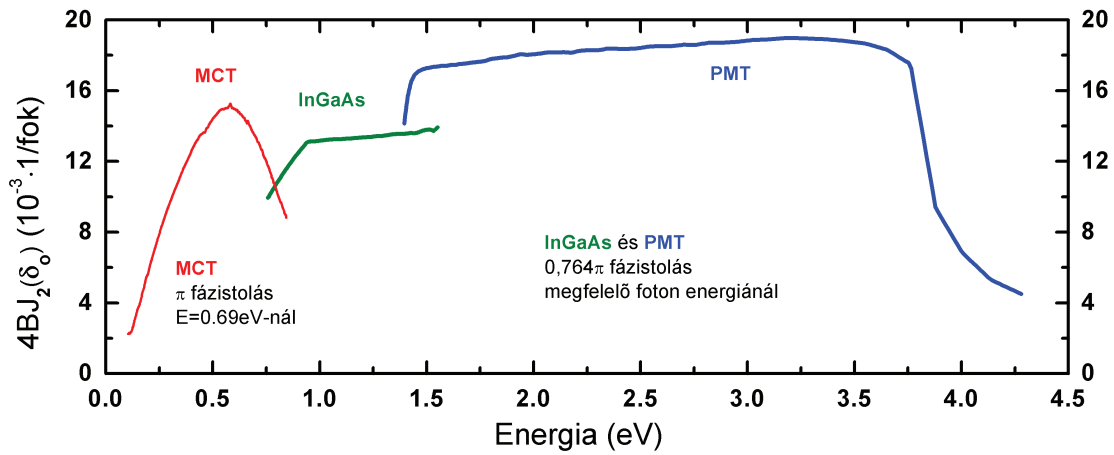
4.9. ábra. A vákuumozható kriosztát (a) előlről és (b) hátulról, ahol jól látható a mágnes forgató tű. A kriosztát ablaka cserélhető, attól függően, hogy milyen energia tartományon történik a mérés. A kriosztát (c) belső részében található a minta és a forgatható mágnes a minta mögött.

5. fejezet

Mérési eredmények

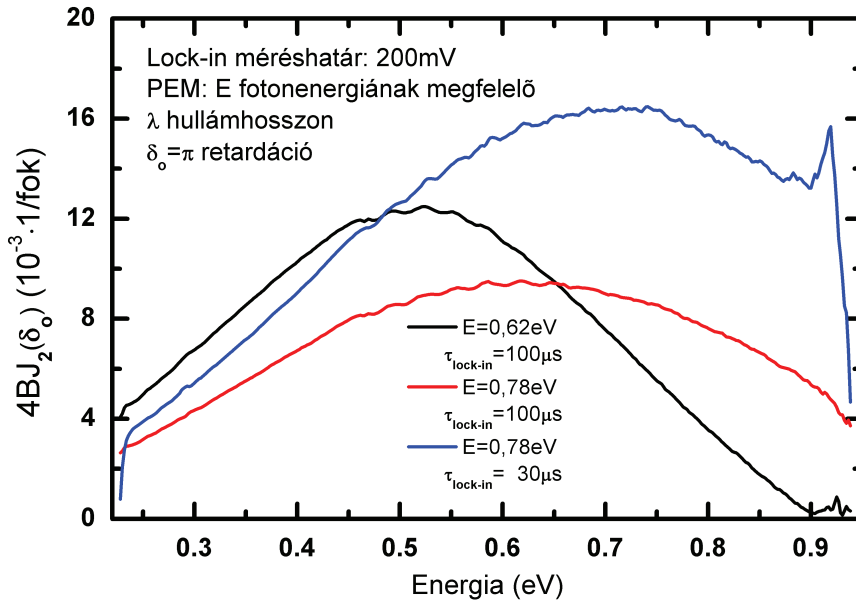
A spektrométer helyes működésének és pontosságának vizsgálata céljából ellenőrző méréseket végeztem CuCr_2Se_4 spinell kristályon. A CuCr_2Se_4 Curie hőmérséklete $T_c=450\text{K}$ [25], MOKE spektruma $E=110\text{meV}-3,75\text{eV}$ energia tartományban ismert [26, 27, 28]. Ez az anyag az $E=0,5-1,5\text{eV}$ tartományban nagy mértékű komplex Kerr-forgatással rendelkezik [29].

A minta magneto-optikai Kerr spektrumának meghatározása előtt, a harmadik fejezetben ismertetett módon, kalibrációs méréseket végeztem. A műszer kalibrációja és használata során a fotoelasztikus modulátor által létrehozott fázistolást úgy kell megválasztani, hogy a 3.10 és a 3.11 egyenletekben a hullámhosszfüggő $4AJ_1(\delta_o)$ és $4BJ_2(\delta_o)$ konstansok a lehető legnagyobbak legyenek, hiszen a minta Kerr paraméterei ekkor hozzák létre a legnagyobb intenzitás modulációt. Kerr-forgatás mérése esetén a A.3 ábrán látható Bessel-függvények szerint az ideális retardáció épp $\delta_o = \pi$, míg ellipticitás mérés esetén $\delta_o = \frac{\pi}{2}$. Abban az esetben, ha a Kerr paraméterek mérése egyszerre történik érdemes egy köztes retardációt választani. Speciálisan a $\delta_o = 0,764\pi$ mértékű retardáció választása a legjobb kompromisszum mind a ϑ_{Kerr} , mind az η_{Kerr} kalibrációja szempontjából, ugyanis a J_2 és J_1 Bessel-függvények ebben a pontban megegyező értékűek, és ezzel összhangban tapasztalatom szerint A és B konstansok közelítőleg egyenlőek $J_o(\delta_o = 0,764\pi) = 0$.



5.1. ábra. A ϑ_{Kerr} Kerr-forgatáshoz tartozó $4BJ_2(\delta_o)$ kalibrációs görbék a különböző detektorok által lefedett energia tartományokon.

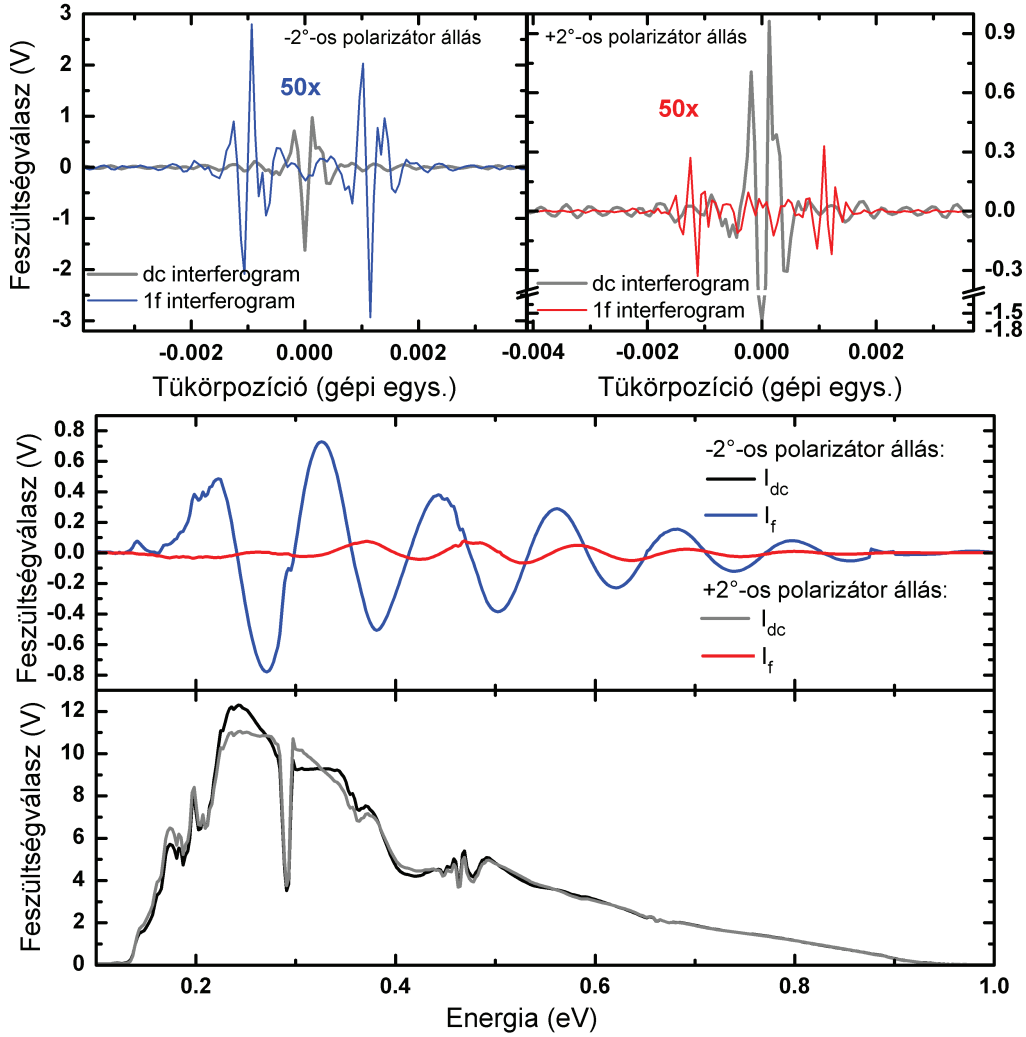
A ϑ_{Kerr} Kerr-forgatásra vonatkozó hullámhosszfüggő $4BJ_2(\delta_o)$ kalibrációs konstans spektruma az 5.1 ábrán látható, melyet a 3.12 egyenlet szerint számoltam ki. A rács-monokromátoros spektrométer esetében, mivel a PMT és InGaAs detektorokhoz eltérő elektronikus beállítások tartoznak, így a két detektorhoz tartozó kalibráció szintén külön végzendő el. Mivel ezen eszköz segítségével a Kerr paraméterek mérése egyszerre is végezhető, így a köztes, $\delta_o = 0,764\pi$ mértékű retardációt választottam az aktuálisan a mintára eső foton energiájának megfelelő λ hullámhosszon. Mivel a Fourier-transzformációs spektrométerrel a teljes intenzitás mellett az egyik Kerr paraméterhez tartozó modulált intenzitást lehet mérni, a ϑ_{Kerr} méréshez az $\delta_o = \pi$ fázistolást választottam. A PEM vezérlőegységét úgy állítottam be, hogy a retardáció ezt az értéket a mérési tartomány belsejében, $E=0,69$ eV-os foton energiánál érje el. Ez a beállítás a következő optimalizáció eredménye.



5.2. ábra. Eltérő lock-in időállandó és PEM beállítások ϑ_{Kerr} kalibrációs görbére gyakorolt hatásait szemléltető ábra.

Az 5.2 szemléltető ábrán különböző ϑ_{Kerr} kalibrációs görbék láthatunk eltérő lock-in időállandó és PEM beállítások mellett. A fekete és piros kalibrációs görbék esetében megegyező, $T_{lock-in}=100 \mu s$ -os időállandót alkalmaztam. A PEM vezérlő egységét úgy állítottam be, hogy a $\delta_o = \pi$ retardációt az előbbi esetén $E=0,62$ eV foton energián, az utóbbinál pedig $E=0,78$ eV foton energiának megfelelő hullámhosszon biztosítsa. Az ábrán jól látható, hogy a $4BJ_2(\delta_o)$ konstans spektrumai a PEM vezérlőegységében beállított foton energia környékén maximummal rendelkeznek, hiszen $\delta_o = \pi$ helyen a J_2 Bessel függvénynek maximuma van. A harmadik fejezetben említett módon, nagy energiák felé haladva a modulált spektrum amplitúdója csökken, mivel a magasabb frekvenciájú Fourier-komponensek kiátlagolódnak a $T_{lock-in}=100 \mu s$ -os idő alatt. Az időállandó ezen hatását közvetlenül is megfigyelhetjük a piros és a kék kalibrációs görbék összehasonlításával. Mindkét görbe esetében a PEM vezérlőegységét azonos beállítások mellett működtettem, azonban az utóbbi esetében a lock-in erősítő időállandóját $T_{lock-in}=30 \mu s$ -ra állítottam be. Láthatjuk, hogy az időállandónak a spektrum

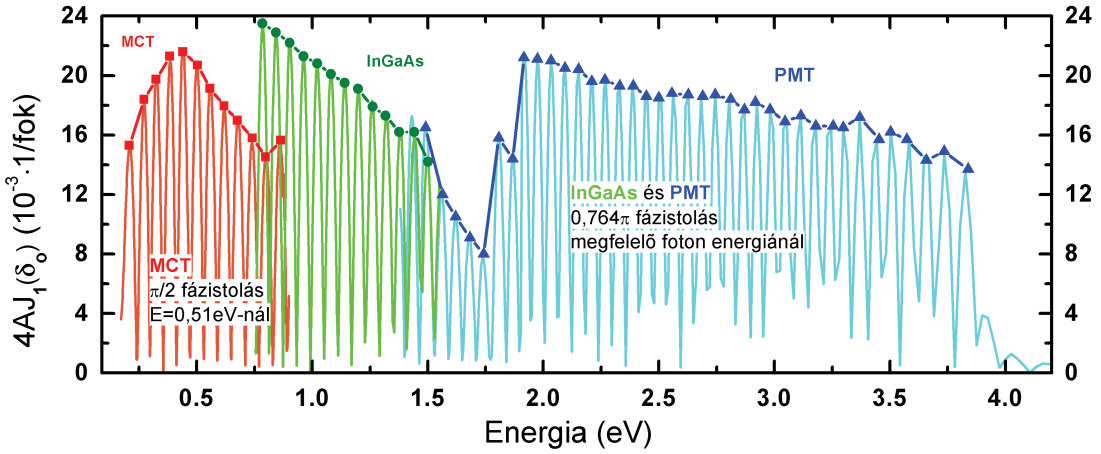
magasabb energiás részeiben okozott csillapítása csökkent, továbbá a kalibrációs görbe maximuma pontosan a PEM vezérlőegységén beállított $E=0,78$ eV foton energiánál van. A lock-in ezen beállítása mégsem előnyös, ugyanis az egész spektrumra nézve romlott a kalibráció jel-zaj viszonya, amely magasabb energiák felé haladva már számottevő mértékű. Összefoglalva a tapasztalataimat, a mérések során a fenn említett PEM beállítások mellett $T_{lock-in}=100\text{ }\mu\text{s}$ -os lock-in időállandót érdemes választani.



5.3. ábra. Az η_{Kerr} Kerr-ellipticitás kalibrációja során mért interferogramok $\pm 2^\circ$ -os szögek esetén és az ezekből számolt teljesítmény spektrum. A grafikonon ábrázolt modulált interferogramokat és spektrumokat az interferométer dolgozta fel, a valóságosnál 50-szer nagyobb amplitúdóval rendelkeznek.

A Kerr-ellipticitás kalibrációs folyamatának példáján keresztül bemutatom, hogy az FT-IR módban hogyan zajlik a spektrumok kiszámítása. A kalibráció során kapott $\pm 2^\circ$ -os polarizátor állás mellett mért modulálatlan dc és f modulációs frekvenciához tartozó interferogramokat az 5.3. ábra felső részén láthatjuk. A mérés során a lock-in erősítőn 200 mV-os

méréshatárt állítottam be, azonban az erősítő a maximális kimeneti jelet méréshatártól függetlenül 10 V-ra skálázza. Ennek értelmében a modulált interferogramokat az interferométer USER5 csatornája 50-szer nagyobbban méri, azonban az ábrákon az egyszerűség kedvéért az interferométer által érzékelt felerősített spektrumokat tüntetem fel (ezt a megfelelő színnel bejelöltem az ábrán). Az interferogramokból Fourier-transzformáció segítségével meghatároztam az I_{dc} modulálatlan és I_f modulációs feszültségválasz spektrumokat, melyeket az 5.3 ábra alsó része mutat be. Ezen feszültségválasz spektrumokból lehetett kiszámolni a $4AJ_1(\delta_o)$ kalibrációs görbéket (5.4 ábra) a 3.15 egyenlet alapján.



5.4. ábra. A η_{Kerr} Kerr-ellipticitáshoz tartozó $4AJ_1(\delta_o)$ kalibrációs görbék, a különböző detektorok által lefedett energia tartományokon a mért oszcilláló görbék burkolói.

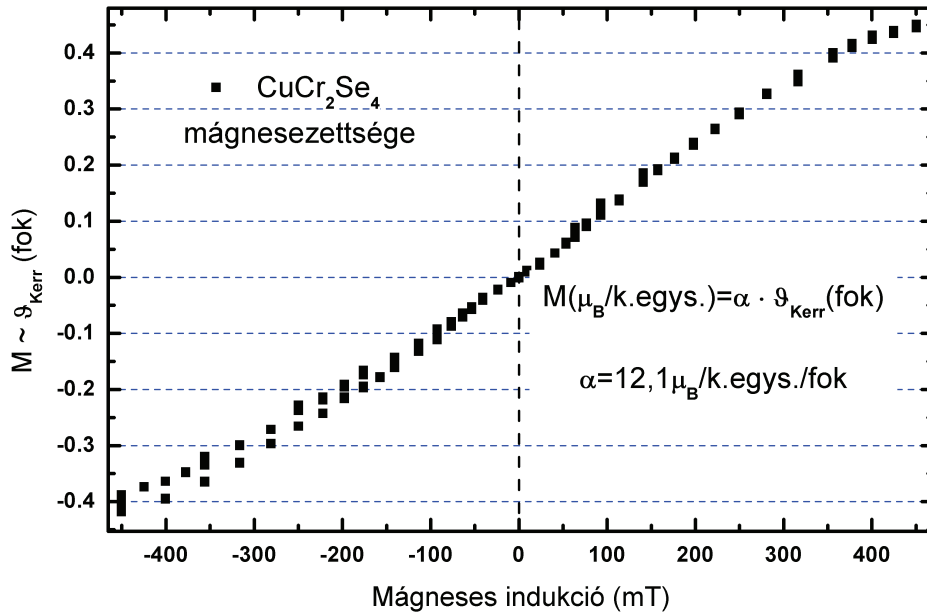
A Kerr-ellipticitás mérés kalibrációs folyamata némileg eltér a harmadik fejezetben ismertetett elképzeléstől, mely csak egy adott λ hullámhosszhoz tartozó $\lambda/4$ -edes fázistoló lemezzel működik pontosan. Ehelyett egy $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$ anyagú, más néven LSAT lemezt használtam, amely erősen lineáris kettőtörő és széles energia tartományban átlátszó. Mivel az anyag kettőtörésének mértéke hullámhosszfüggő és a fázistolás a fény rezgési periódusának sokszorosa, a lemez fázistolása a fény hullámhosszának függvényében folytonosan változik. Ennek eredményeként az η_{Kerr} kalibrációs görbéjében jellegzetes oszcilláció fedezhető fel (5.4 ábra). A „valódi” kalibrációs görbe, amely abban az esetben lenne mérhető, ha minden λ hullámhosszhoz megfelelő fázistoló $\lambda/4$ -edes lemezt alkalmaznánk, ahogy azt a 3.15 egyenlet feltételezi, ezen oszcilláló jel burkolója [31]. Forgatás kalibrációhoz hasonlóan a Fourier-transzformációs eszköz energia tartományán az ellipticitás méréséhez a vizsgált tartomány belsejében $E=0,51$ eV-nál ideális $\delta_o = \frac{\pi}{2}$ fázistolást választottam.

Mind a ϑ_{Kerr} , mind a η_{Kerr} 5.1 és 5.4 kalibrációs görbéjén megfigyelhető, hogy a különböző elektronikai összeállítással rendelkező energia tartományokon a kalibrációs görbék jelentősen eltérnek, hiszen az A és B tényezők függetlenek az eszközök dc , f és $2f$ frekvenciákon jellemző erősítési tényezőitől.

5.1. Mérési eredmények CuCr_2Se_4 spinell mintán

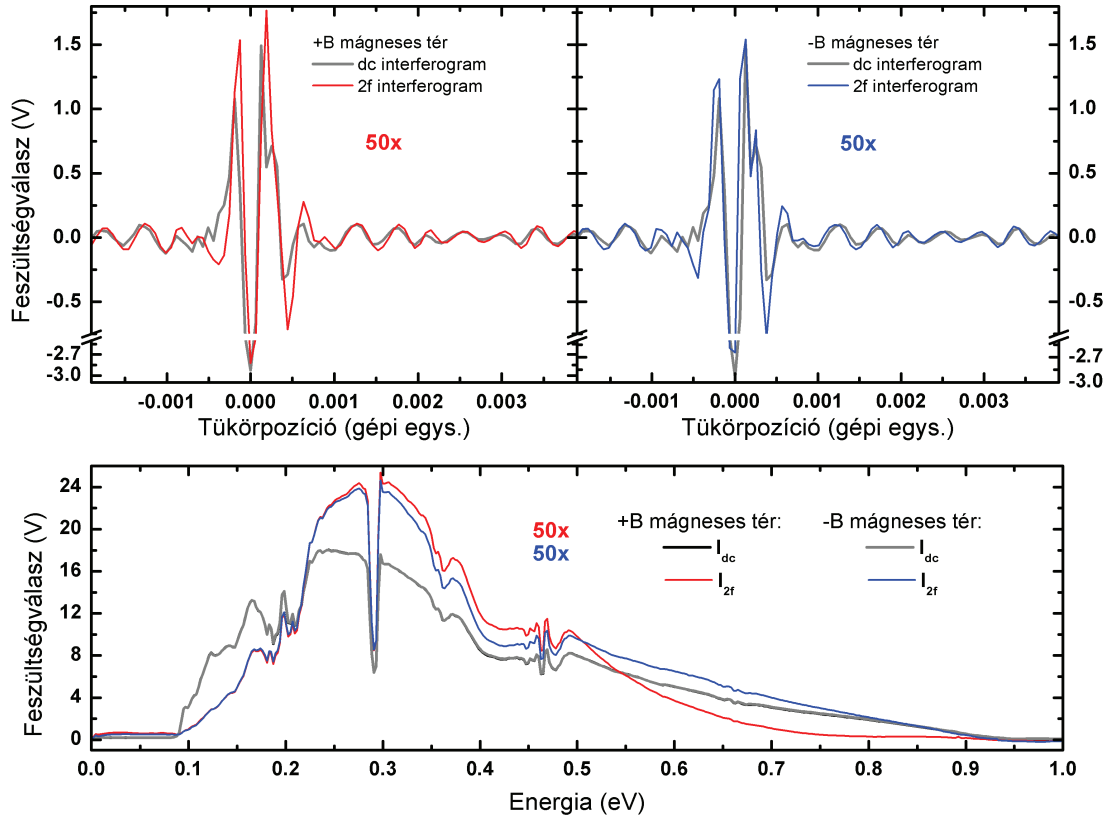
Az általam vizsgált CuCr_2Se_4 egykristály mintákat CVT (Chemical Vapour Transport) módszerrel növesztette Dr K. Ohgushi [30]. A magneto-optikai spektrumot a kristály természetesen növő (111) felületén mértem poláris geometriában [30], $B=\pm 400$ mT mágneses indukció mellett. A minta vékony, háromszög alapú lapka, tipikus méretei $3 \times 3 \times 0,2$ mm³.

Spektrális vizsgálatokat megelőzőleg, a harmadik fejezetben ismertetett Faraday rotátoron alapuló technikával szobahőmérsékleten megmértem a CuCr_2Se_4 egykristály Kerr-forgatását a mágneses tér függvényében (3.1 ábra). Kihasnálva, hogy a Kerr-effektus során fellépő polarizáció forgatás a legtöbb anyag esetén jó közelítéssel arányos a minta mágnesezettségével [11], egy $\lambda=635$ nm-es LASER dióddal végzett méréssel a minta mágnesezettségének térfüggését határoztam meg (5.5 ábra). Kis mágneses terekben a mágnesezettség az alkalmazott indukcióval egyenesen arányosan nő, majd ~ 350 mT felett telítődik, összhangban az irodalomból (111) felületű mintán mért mágnesezettségi görbével [26]. A mágnesezettség $M_{\text{sat}}=5,5 \mu_B/\text{képlet egység}$ értékéből az is meghatározható, hogy hogyan kell a mért ϑ_{Kerr} értékeket átskálázni ahhoz, hogy megkapjuk a minta mágnesezettségét. A mérési eredmények alapján az $M(\mu_B/\text{k.egys.}) = \alpha \cdot \vartheta_{\text{Kerr}}(\text{fok})$ átváltási összefüggésben $\alpha=12,1 \frac{\mu_B/\text{k.egys.}}{\text{fok}}$. Bár a tömbi CuCr_2Se_4 könnyű mágnesezési iránya a (111), hasonló geometriájú vékony minták esetén ismeretes, hogy a mágneses momentum a síkban fekszik zérus mágneses térben. A mágnesezettség lineáris növekedéséért a síkban fekvő momentum (111) irányban alkalmazott mágneses tér hatására történő kiforgatása felelős. Az ábrán látható szobahőmérsékleti mágnesezettség mérés alapján elmondható, hogy a következőkben a Kerr paraméterek spektrumának mérésénél alkalmazott $B=\pm 400$ mT mágneses tér esetén a minta mágneses szerkezete lényegében teljesen rendezett, a poláris MOKE elrendezéstől való eltérés minimális.

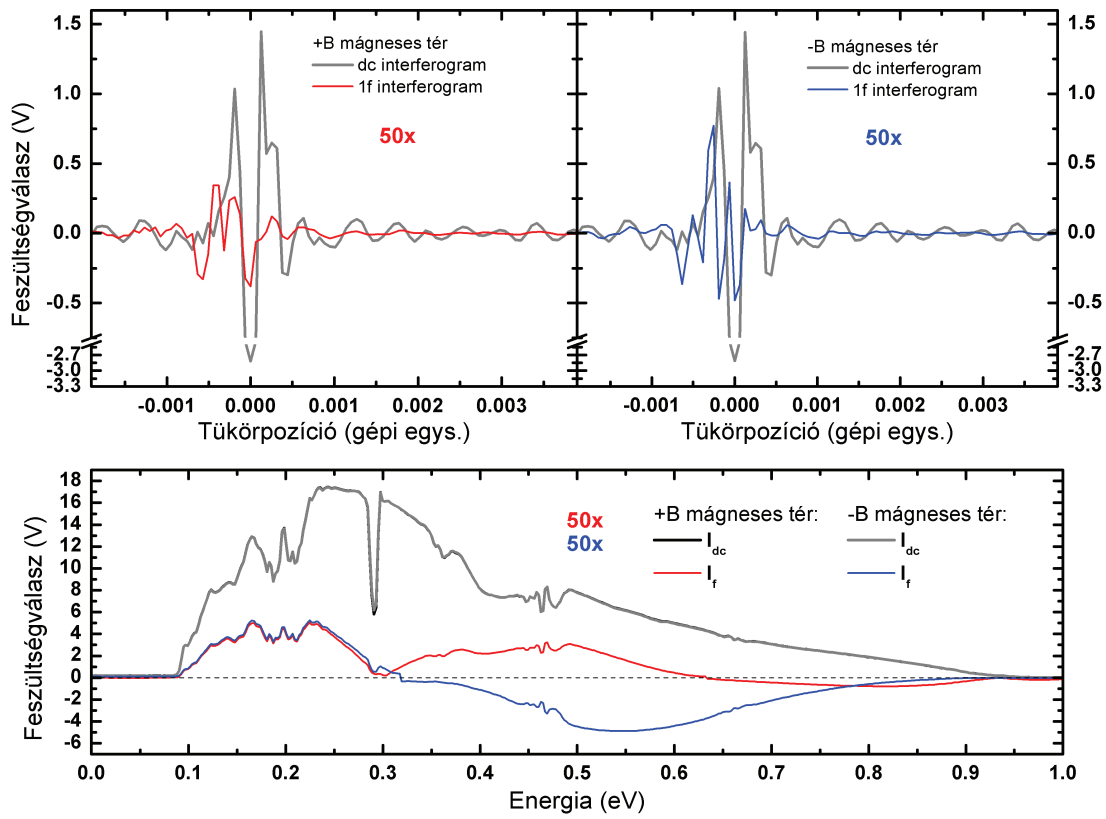


5.5. ábra. A CuCr_2Se_4 M - B görbéje az (111) lágy mágneses irányban alkalmazott külső térben.

CuCr₂Se₄-en szélessávú magneto-optikai spektrum méréseimet szobahőmérsékleten végeztem, melyből származó (I_{dc} , I_f és I_{2f}) interferogramok illetve a Fourier-transzformáció után kapott, spektrumok az 5.6 és az 5.7 ábrákon láthatóak. A ϑ_{Kerr} és η_{Kerr} spektrumok számítása a $\pm B$ mágneses térben mért forgatás és ellipticitás spektrumok különbségéből történik. (A $\pm B$ térben mért görbék átlaga jellemzi a fényút más részein fellépő, nem mágneses eredetű polarizáció változásokat.)

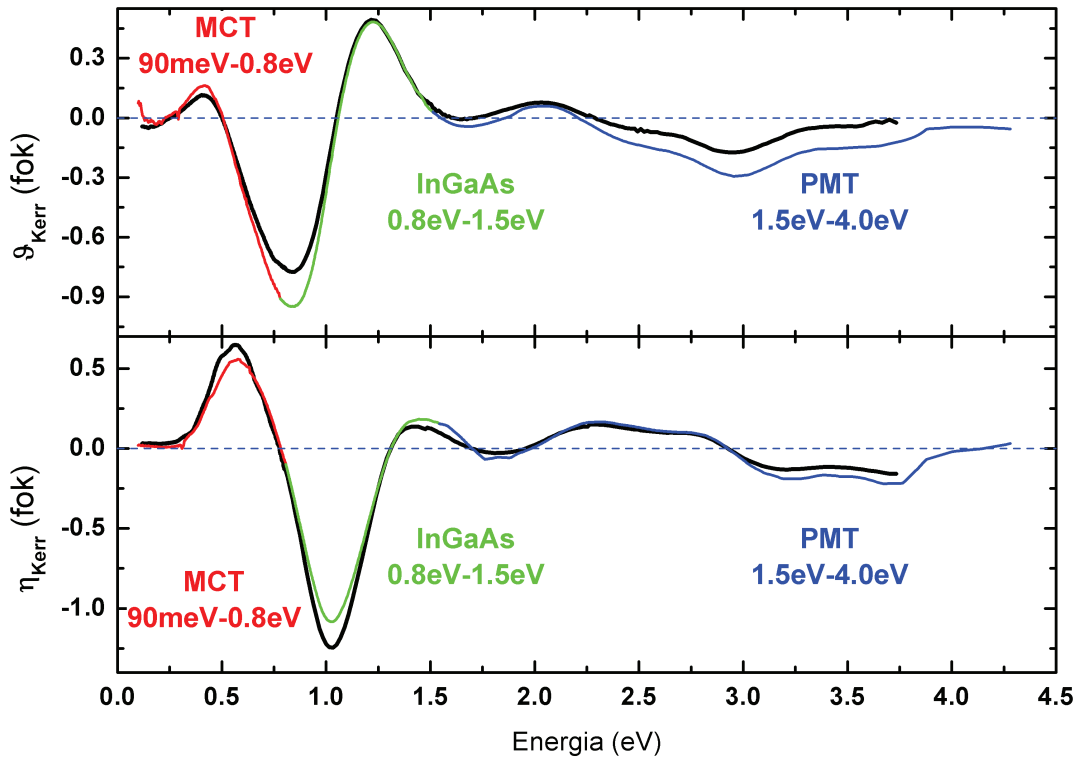


5.6. ábra. A ϑ_{Kerr} Kerr-forgatás mérésekor kapott I_{dc} és I_{2f} interferogramok és a numerikus Fourier transzformációval belőlük számított spektrumok $\pm B$ mágneses térben, ahol $B \gtrsim 400$ mT. A ϑ_{Kerr} spektrum a $\pm B$ mért görbék különbségével arányos. A grafikonon ábrázolt modulált interferogramokat és spektrumokat az interferométer dolgozta fel, a valóságosnál 50-szer nagyobb amplitúdóval rendelkeznek.



5.7. ábra. A η_{Kerr} Kerr-forgatás mérésekor kapott I_{dc} és I_f interferogramok és a numerikus Fourier transzformációval belőlük számított spektrumok $\pm B$ mágneses térben, ahol $B \gtrsim 400 \text{ mT}$. A η_{Kerr} spektrum a $\pm B$ mért görbék különbségével arányos.

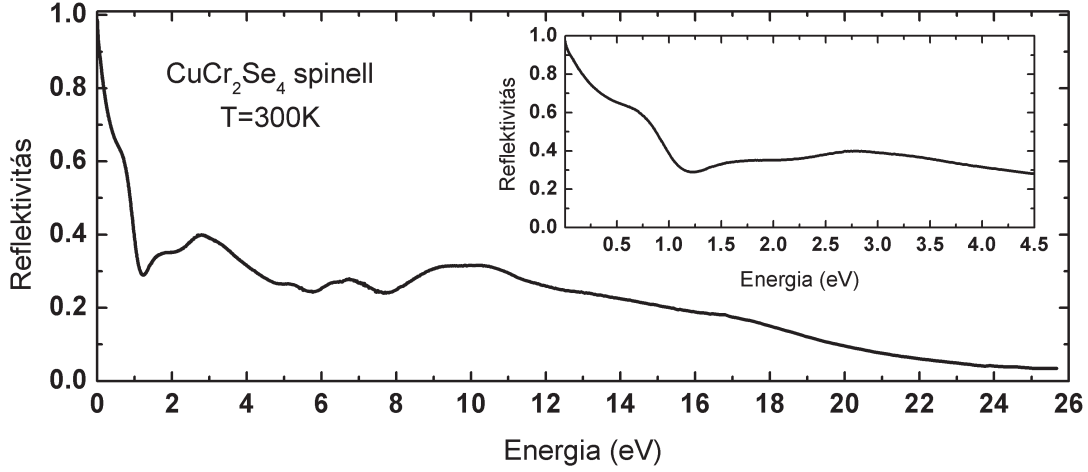
A rácsos monokromátoros elrendezés esetén 2 mm-es rés szélességet használtam, tehát a spektrométer hullámhosszfelbontása legalább 13 nm, ami az $E=0,75-4,5$ eV energia tartományon legalább $\Delta E=10$ meV felbontásnak felel meg (A.2 táblázat). A Fourier-transzformációs spektrométer esetén a felbontást $\Delta E=4$ meV-nak választottam. A 3.10 és a 3.11 egyeletek szerint a kalibráció felhasználásával és a $\pm B$ térben történt mérések kivonását követően az 5.6 és az 5.7 ábrák „nyers” spektrumaiból számolt komplex Kerr-szögek az 5.8 ábrán láthatóak. $E=87$ meV - 1,5 eV tartományban mind a ϑ_{Kerr} Kerr-forgatás, mind a η_{Kerr} ellipticitás spektrumban kiemelkedően nagy MOKE jel figyelhető meg. Az ábrán eltérő színekkel jelöltem a különböző detektorokhoz és spektrométer részekhez tartozó mérési eredményeket.



5.8. ábra. CuCr_2O_4 egykristály $[111]$ normálisú felületén mért szobahőmérsékelti ϑ_{Kerr} és η_{Kerr} spektrumok poláris MOKE elrendezésben $B \approx 400$ mT térben. Összehasonlításképp fekete színnel van feltüntetve az irodalmomban közölt, azonos körülmények között mért MOKE spektrum [27].

Piros színnel jelöltem a Fourier-transzformációs elrendezésben, MCT detektorral, zöld és kék színnel pedig a rácsos monokromátoros összeállítással az InGaAs és PMT detektorok tartományában kapott mérési eredményeket. Az eredmények megbízhatóságának szemléltetése érdekében fekete színnel feltüntettem a CuCr_2Se_4 irodalmomban közölt, azonos körülmények mellett mért ϑ_{Kerr} és η_{Kerr} spektrumát [27].

Az irodalmi eredmények körülbelül $E=100$ meV-től $E=3,75$ eV-ig megbízhatóak. Az új spektrométeren kapott mérési eredmények a különböző tartományok határain szakadás és törés nélkül illeszkednek egymáshoz. Az általam mért ϑ_{Kerr} és η_{Kerr} spektrumok simítatlanok, míg

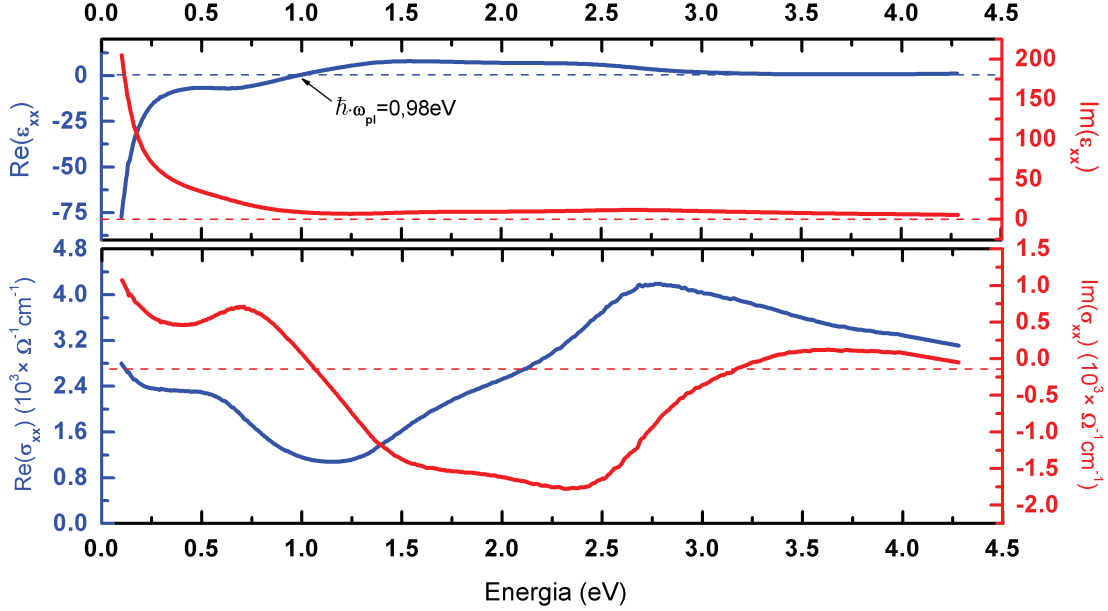


5.9. ábra. A CuCr_2Se_4 spinell reflektivitás spektruma szobahőmérsékleten [32].

az irodalmi görbe infravörös tartományában simítást alkalmaztak a spektrum ~ 100 szomszédos pontjára. Ez az előny az általam alkalmazott FT-IR spektrométer nagy fényességének köszönhető.

A komplex Kerr-szög mérésével lehetőség nyílik a CuCr_2Se_4 nem diagonális $\sigma_{xy}(\omega)$ vezetőképességének meghatározására a poláris MOKE elrendezésben a 2.15 egyenlet segítségével. Ehhez ismerni kell az anyag $\sigma_{xx}(\omega)$ diagonális vezetőképesség spektrumát. A Kenya Ohgushi által széles energia tartományban mért [32] reflektivitás spektrum felhasználásával (5.9 ábra) Kramers-Kronig transzformációval kiszámoltam a $\sigma_{xx}(\omega)$ diagonális vezetőképesség spektrumot. A Kramers-Kronig transzformációt megelőzően extrapolálnom kellett a CuCr_2Se_4 reflektivitásának a mérési tartományon kívül eső részét. Alacsony energián a reflektivitás egyhez tart, ezért a a fémek reflektivitását jól közelítő $R = 1 - A \cdot \sqrt{\omega}$ Hagen-Rubens törvénnyel összhangban végeztem a kiterjesztést, míg $E=25$ eV felett a szabad elektron gázokra jellemző modellt alkalmaztam. A kapott komplex reflektivitásból meghatároztam a $\epsilon_{xx}(\omega)$ komplex dielektromos állandó és a $\sigma_{xx}(\omega)$ komplex vezetőképesség tenzorok diagonális elemét, amelyet az 5.10 ábra mutat be.

A 2.15 egyenlet segítségével kiszámolt nem diagonális $\sigma_{xy}(\omega)$ vezetőképesség spektrum képzetes és valós részeit az 5.11 ábra veti össze a [27] cikkben közölt eredményekkel. Saját mérési eredményeim és az irodalomban közölt spektrumok jó egyezést mutatnak, kivéve az $E=2,5$ eV - 4 eV energia tartományt, ahol az eltérés már jelentősnek mondható. A nagy energiákon fellépő eltérés már jelen van a komplex Kerr paraméterek spektrumában is. A saját mérési eredményeimet, megbízhatóbbnak tartom, ugyanis mind a jel-zaj viszony, mind a mérések reprodukálhatósága jobb az általam épített rendszernél. Az utóbbi kategóriában kiemelném az alkalmazott mágneses tér pontosságát és reprodukálhatóságát, melyre külön kitérek a következő fejezetben.



5.10. ábra. A CuCr_2Se_4 diagonális ϵ_{xx} dielektromos állandójának és σ_{xx} vezetőképességének valós és képzetes részei.

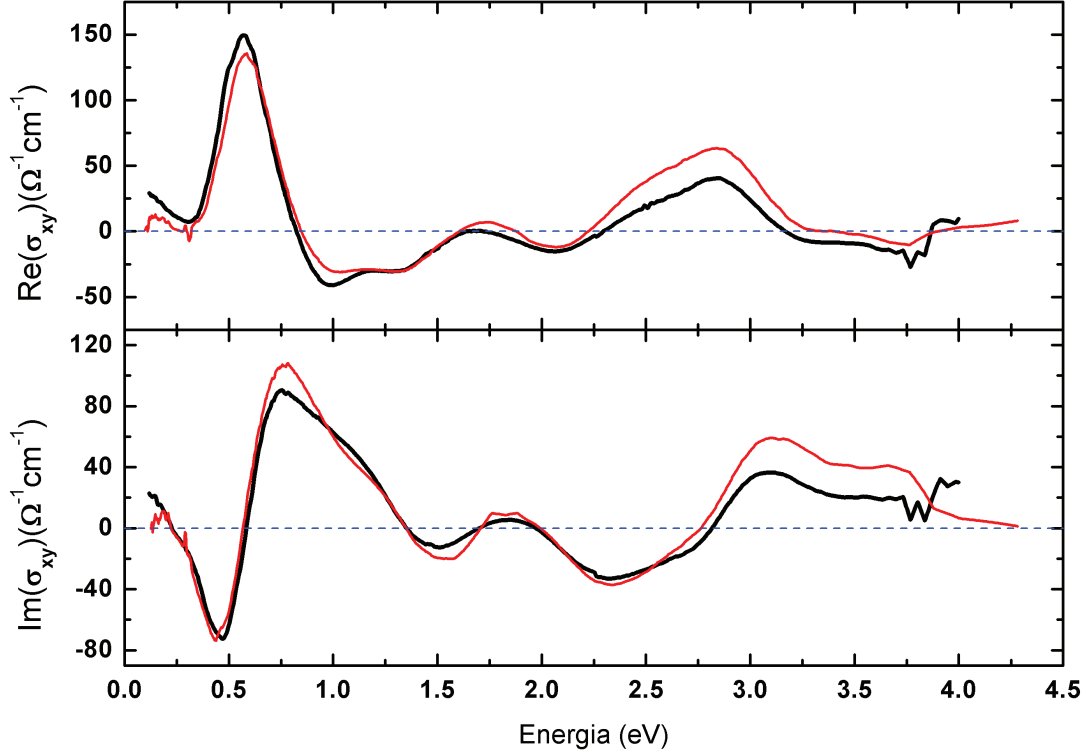
5.2. A spektrométer pontossága és a mérések reprodukálhatósága

A spektrométer építése során a jel-zaj viszony optimalizálásán túl fontos szempont volt a mérések reprodukálhatóságának biztosítása is.

Egyszerű példán keresztül mutatom be, hogy egy magneto-optikai mérés során milyen forrásokból származnak hibák. Tegyük fel, hogy ϑ_{Kerr} mérése során nem sikerül a $+B$ mágneses térrel azonos nagyságú, de ellentétes irányú $-B$ mágneses teret létrehozni. Az eltérés mértéke legyen δB , amely egy szisztematikus hibát eredményez. A mért spektrumok a szisztematikus hibákon kívül elektronikus és egyéb természetes forrásokból (lámpák intenzitásingadozása, mechanikus rezgések okozta változás a fényútban) származó statisztikus zajokat is tartalmaznak. Ennek szemléltetésére a mért jelet bontsuk, az ideális jel, a szisztematikus hiba és a statisztikus zaj összegére:

$$\begin{aligned} \vartheta_{Kerr, minta} &= \frac{\vartheta_{Kerr}(+B) + \delta - \vartheta_{Kerr}(-B + \delta B) + \delta}{2} = \\ &= \underbrace{\frac{\vartheta_{Kerr}(+B) - \vartheta_{Kerr}(-B)}{2}}_{\text{ideális jel}} + \underbrace{\frac{\partial \vartheta}{\partial B} \delta B}_{\text{szisztematikus hiba}} + \underbrace{\delta}_{\text{zaj}} + \dots \quad (5.1) \end{aligned}$$

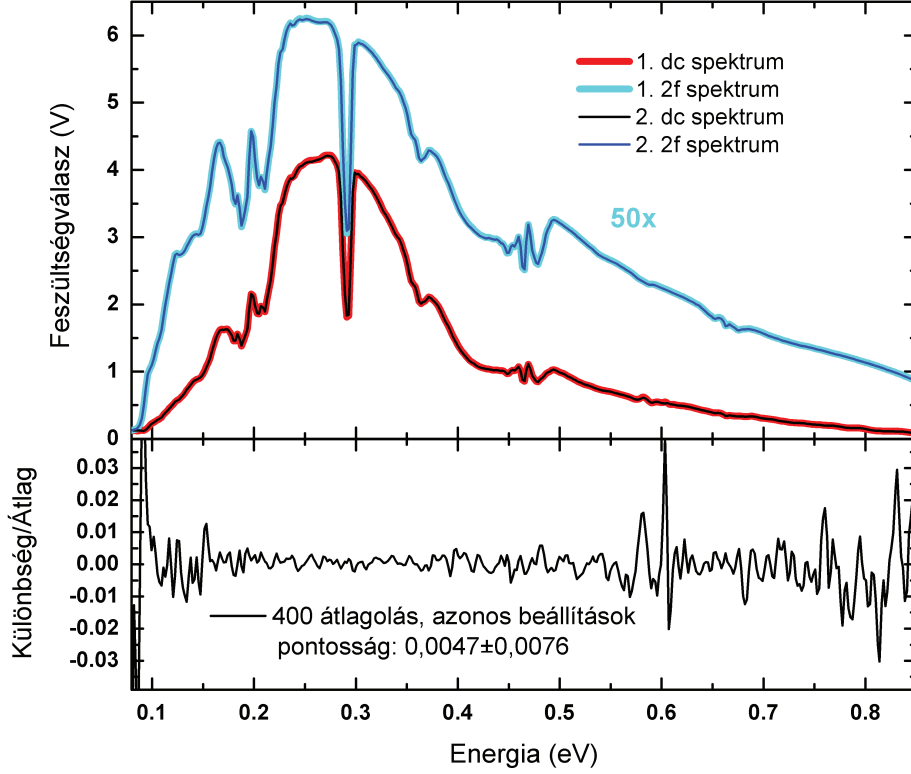
Amennyiben a Kerr forgatás az egyes hullámhosszakon eltérően függ a mágneses tértől, a szisztematikus hiba hullámhosszfüggő tényezőként módosíthatja a mért spektrumot.



5.11. ábra. A $\sigma_{xy}(\omega)$ nem diagonális vezetőképesség spektrum komplex és valós része. Pirossal a saját mérési eredményeimből számolt vezetőképességet, a feketével az irodalmi eredményeket jelöltem [27].

Egyébként csak a jel nagyságában okoz eltérést az egész tartományon egységesen. A mágneses tér pontos beállítását mikrométercsavarral ellátott mozgató állvánnyal oldottam meg, mely elősegítette a mérési feltételek nagyobb reprodukálhatóságát. A mi rendszerünkkel ellentétben a japánban található spektrométer esetén a különböző mérési tartományokon eltérő mintatartókat alkalmaznak. Ez a mi esetünkben nem áll fenn, így a mérési körülmények újbóli előállítása nagyobb pontosságú.

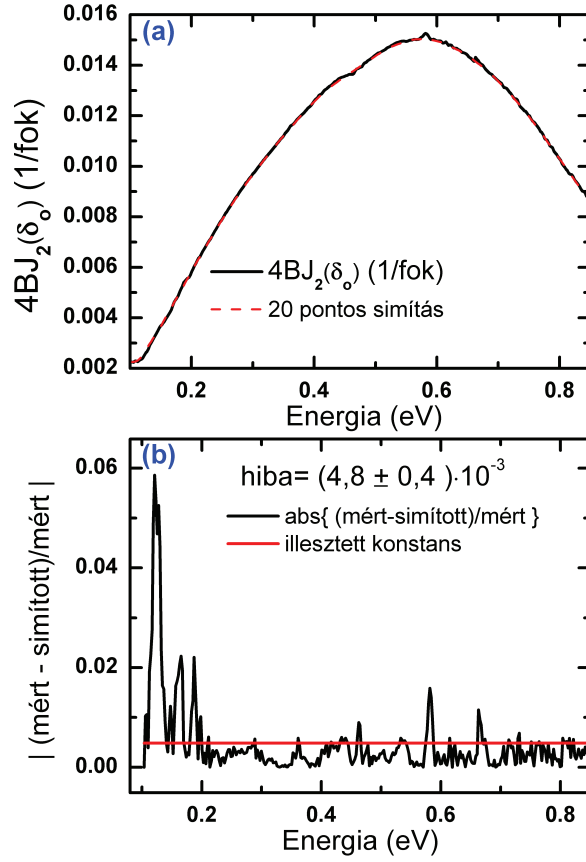
A szisztematikus hiba arról nem ad információt, hogy a spektrumok mérése során mekkora az a minimális Kerr-szög változás, amit még meg lehet mérni. A spektrométer pontosságát az jellemzi legjobban, hogy változatlan mérési feltételek mellett mennyire „stabil” a mért jel, amely a statisztikus zajokhoz köthető. Ahhoz, hogy megadjam a legkisebb ϑ_{Kerr} forgatás különbséget, amit még biztosan meg lehet különböztetni mérőrendszerünkkel. A forgatás spektrumot, azonos beállítások mellett, két egymást követő mérés során rögzítettem és összehasonlítottam. Ilyen, egymás utáni méréseket hasonlít össze az 5.12 ábra, amely a Fourier-transzformációs alapegység pontosságát becsli meg. A Fourier-transzformációs eszköz mindkét mérés esetében 400 spektrumot átlagolt össze a zaj csökkentése érdekében. Arra az eredményre jutottam, hogy a statisztikus zaj mértéke ilyen körülmények között 0,5%-nál nem nagyobb. Ez azt jelenti, hogy a Fourier-transzformációs spektrométer rész abszolút pontossága Kerr-szög mérése esetén $5 \cdot 10^{-3}$ fok.



5.12. ábra. Felső panel: Két modulálatlan és 2f moduláció frekvencia komponenshez tartozó spektrum, melyeket azonos beállítások mellett, egymást követően. Vékony vonallal a második mérés spektrumait rajzoltam fel az összehasonlítás kedvéért. Az alsó panelen a modulált és a modulálatlan spektrumok hányadosainak két mérésbeli különbségét viszonyítottam az átlagukhoz. A Fourier-transzformációs eszköz pontossága (a relatív eltérés átlaga) ezek alapján a spektrum 87 meV és 0,9 eV közötti tartomány jelentős részén $\sim 5 \cdot 10^{-3}$ fok.

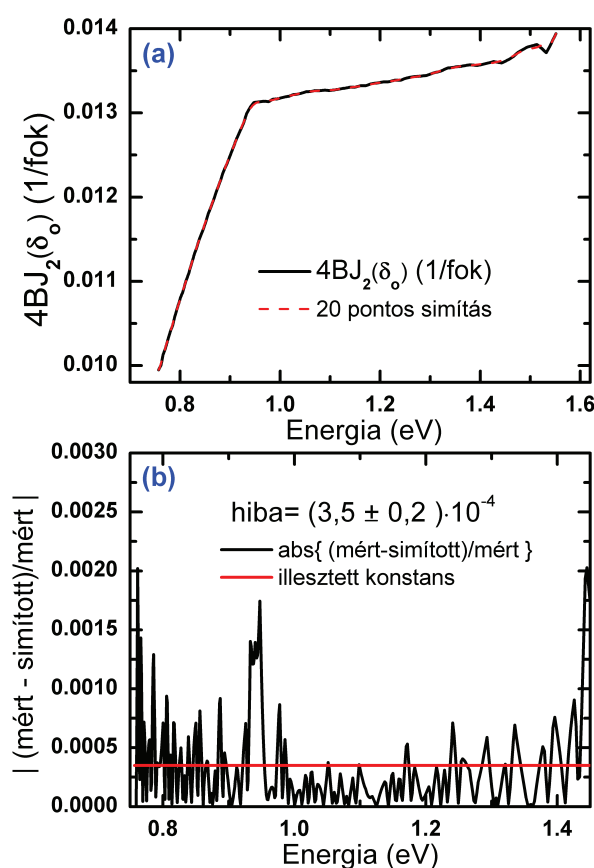
Nem csak a mérésekből származik szisztematikus és statisztikus hiba, hanem a kalibrációból is. A kalibráció során a polarizátorok állásszögeit $0,2^\circ$ -os pontossággal lehetett beállítani, amely szisztematikus hibaként jelenik meg a mérésekben. A polarizátorok beállításainak pontatlansága hullámhosszfüggetlen konstans szorzóval változtathatja meg a mért spektrumot, mely nem indokolja a nagy energiákon tapasztalt eltéréseket az általam mért és az irodalomban közölt spektrumokban.

A spektrumok rövidtávú zaját azzal becsülhetjük, hogy a foton energia függvényében szűk tartományban megjelenő ingadozásokat vizsgáljuk. Ehhez az adott intervallumon kiátlagolt görbéket összehasonlítottam a nyers mérési eredményekkel. Ezért a ϑ_{Kerr} kalibrációs görbéit, 20 pontos simítással (ami 80 meV tartományra átlagol) levontam a mért értékekből, majd a különbséget a mért értékhez viszonyítottam. A Fourier-transzformációs spektrométer esetén ezen relatív különbségi görbe abszolút értéke látható az 5.13 ábra alsó részén. A relatív eltérés drasztikusan megnő az adott eszköz mérési tartományainak határain. A teljes tartományra nézve az interferometrikus eszköz forgatás mérésben megjelenő relatív zajára szintén $\lesssim 5 \cdot 10^{-3}$ fok adódik.

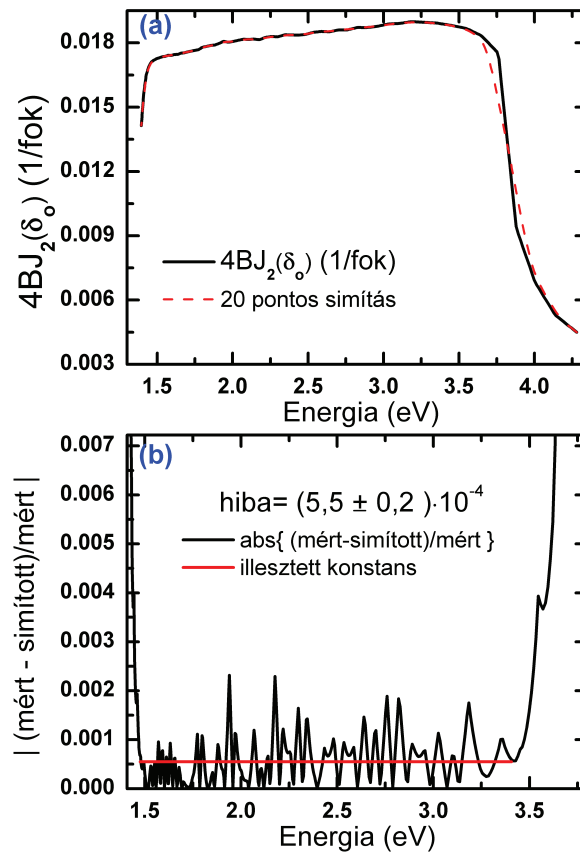


5.13. ábra. Az ábra (a) részén a ϑ_{Kerr} kalibrációs görbét 20 pontos csúszó-átlagolási módszerrel simítottam. Látható, hogy a mért kalibráció számottevő szórással rendelkezik. A (b) részben kiszámoltam a kalibrációs spektrum relatív eltérését a simított spektrumtól, mellyel a mérés pontossága becsülhető. A spektrométer hibája (a relatív eltérés átlaga) a spektrum 90 meV és 0,9 eV közötti részére nem haladja meg a 0,5%-ot, azaz az $5 \cdot 10^{-3}$ fok értéket.

Összegezve, a Kerr forgatás mérésének pontossága a közép infravörös tartományon $5 \cdot 10^{-3}$ fok. A rácsos monokromátorral megvalósított rész pontosságát a fotoelektron sokszorozó tartományán 0,06%-osra (1 fokos forgatás mellett $6 \cdot 10^{-4}$ fokra), az InGaAs detektor esetében pedig 0,04%-osra ($4 \cdot 10^{-4}$ fokra) becsülöm, mely megközelíti az érzékeny kiegyensúlyozott fotodióda hidak pontosságát (5.14 és 5.15 ábrák).



5.14. ábra. Az ábra (a) részén a ϑ_{Kerr} az InGaAs detektor kalibrációs görbéje látható, amelyet 20 pontos csúszó-átlagolási módszerrel simítottam (szaggatott piros vonal). A (b) részben ábrázoltam a nyers kalibrációs spektrum relatív eltéréseinek abszolút értékét a simított spektrumtól, mellyel az InGaAs detektor rövid távú zajának mértéke 0,04% körüli becsülhető.



5.15. ábra. A ábra (a) részén a ϑ_{Kerr} kalibrációs görbéje látható az PMT detektor használata esetén, amelyet 20 pontos csúszó-átlagolási módszerrel simítottam (szaggatott piros). A mérés pontossága 0,06% körülire becsülhető.

6. fejezet

Összefoglalás

Diplomamunkám során a BME Fizika Tanszékén résztvettem egy unikális polarizációs spektrométer megépítésében. Az eszköz egy nagy frekvenciás polarizáció modulációs technika optikai rácsos és Fourier transzformációs spektrométerekre történő adaptációja révén képes az $E=87\text{meV}-4,5\text{eV}$ széles foton energia tartományban kis mértékű polarizáció változások mérésére nagy energia felbontással. Általa lehetőség nyílik az anyagok kettőtörés és dikroizmus spektrumának párhuzamos detektálására. A spektrométer két eltérő méréstechnika, rács-monokromátoros és Fourier-transzformációs eszközök alkalmazásával készült. Annak érdekében, hogy az egyes energia tartományokban a legjobb jel-zaj viszonyt érhessem el, a spektrométerek különálló fényutakkal rendelkeznek. Az elkészült mérőrendszerrel teszt-méréseket végeztem, melyek során a CuCr_2Se_4 itineráns ferromágnes magneto-optikai Kerr forgatásának és ellipticitásának spektrumát határoztam meg. A kapott eredmények az irodalomban közöltekkel [27] összevetve jó egyezést mutatnak, azaz a spektrométer megbízhatóan működik. A mérés pontossága a Kerr-elfordulást és ellipticitást illetően $\sim 0,005$ fok az egész energia tartományon. Mindezen felül a mérések pontos reprodukálhatóságot mutatnak, mely magneto-optikai mérések szempontjából kiemelten fontos.

A felépített spektrométer magneto-optikai kutatásokon kívül, alkalmas természetes optikai aktivitás és lineáris kettőtörés illetve dikroizmus mérésére is.

A spektrométerben, noha világszínvonalon nézve is rendkívül széles sávon alkalmas a magneto-optikai aktivitás mérésére, ilyen irányban még több lehetőség rejlik. A Fourier-transzformációs rész sáv szélességét erősen korlátozza a levegőben található vízpára és széndioxid miatti abszorpció. Abban az esetben, ha fényutat elzárjuk a külső környezettől és nitrogén atmoszférába helyezzük a berendezést, a sáv szélesség alsó határa 60meV -ig tolható ki. A rács-monokromátoros elrendezés esetében a felhasznált optikai elemek további optimalizálásával a mérés foton energia tartományát $7,3\text{eV}$ -ig is kiterjeszthetjük.

A spektrométer építésén túl átalakítottam egy vákuumozható, átfolyó ^4He folyadékkal hűtött optikai-kriosztátot alacsony hőmérsékletű magneto-optikai mérésekre. Ezen eszköz kombinálva a magneto-optikai mérőrendszerrel lehetővé teszi anyagok magneto-optikai Kerr spektrumának vizsgálatát a $T=3-300\text{K}$ hőmérséklet tartományban és maximálisan $B=0,7\text{T}$ mágneses térben.

Köszönetnyilvánítás

Elsőként témavezetőmnek, Dr. Kézsmárki Istvánnak szeretnék köszönetet mondani, hogy megismerttetett a magneto-optikai spektroszkópiával és konstruktív észrevételeivel elősegítette diplomamunkám jelenlegi formájának kialakulását.

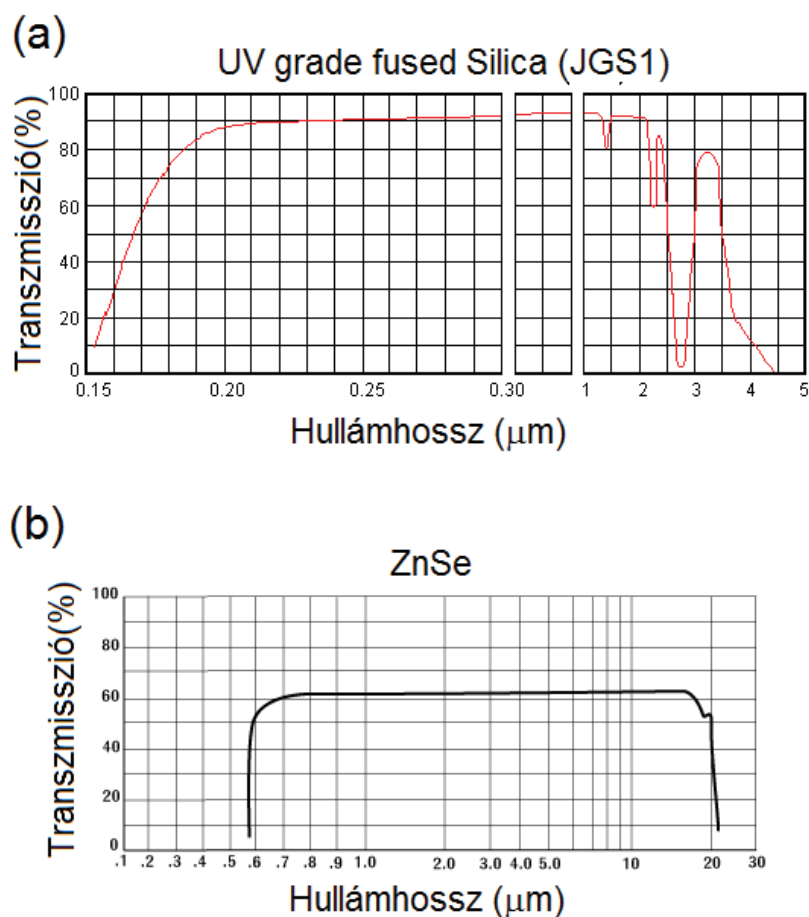
Szeretném hasonlóan megköszönni Bordács Sándornak, hogy MSc-s éveim alatt segítette kísérleti munkámat és diplomamunkám létrejöttét.

Ezen felül megemlíteném Szaller Dávid MSc-s évfolyamtársam, akivel közösen dolgoztam a rácsos monokromátoron alapuló spektrométer vezérlőprogramján.

Hálával tartozom a Fizika Tanszék Műhelyében dolgozó Bacsá Sándor, Halász Tibor és Horváth Béla technikusoknak, akik nagy körültekintéssel készítették el a spektrométer egyes elemeinek tartószerkezeteit.

A. Függelék

Spektrométer felépítése



A.1. ábra. (a) A rács-monokromátoros MOKE spektrométerben használt optikai elemek (lencsék, PEM) anyagául szolgáló JGS1 transzmissziós spektruma. (b) A Fourier-transzformációs interferométer fényútjában alkalmazott optikai elemekhez használt ZnSe transzmissziós görbéje.

FÜGGELÉK A. SPEKTROMÉTER FELÉPÍTÉSE

A.1. táblázat. Az Oriel Cornerstone 260 monokromátorban különböző hullámhossz tartományokon használt optikai szűrők.

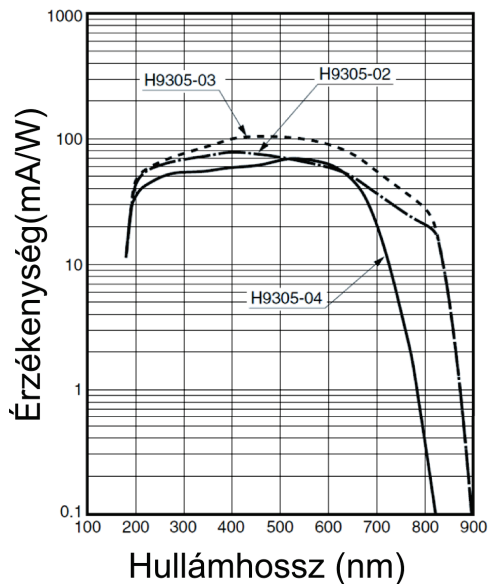
Filter száma	Hullámhossz tartomány (nm)
nincs	180-320
51250	320-440
51282	440-650
51320	650-840
51352	840-1640

A.2. táblázat. Az Oriel Cornerstone 260 monokromátorban használt optikai rácsok adatai. Rácsok esetén a reciprok diszperzió adja meg a monokromátor hullámhossz felbontását 1 mm széles rés esetén.

Rács száma	Vonalsűrűség (1/mm)	Típus	Reciprok diszperzió (nm/mm)	Hullámhossz tartomány (nm)
74060	2400	holografikus	1,6	180-700
74061	1800	holografikus	2,1	300-925
74067	600	karcolt	6,4	600-2500

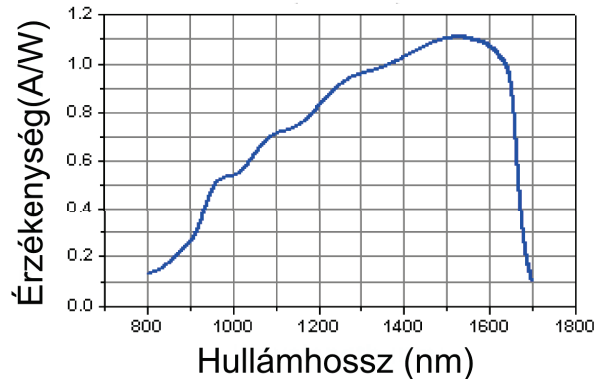
A.3. táblázat. A teljes mérőrendszerben (FT-IR és rácsos monokromátor) használt detektorok adatai.

Detektor	Típus	Energia tartomány (eV)	Felfutási idők
PMT	Hamamatsu, H9305-03	1,4-4,5	1,4 ns
InGaAs	Thorlabs, PDA10CS	0,75-1,6	10 ms
MCT	HCT-NB-B	0,05-0,8	1 μ s

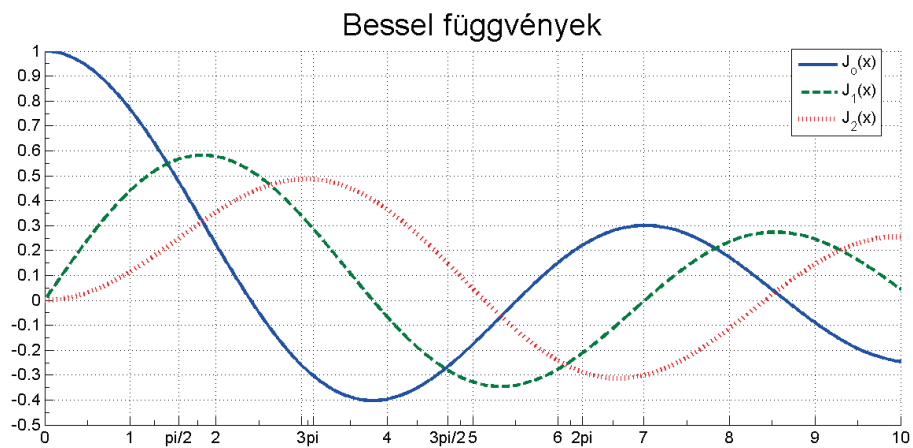


← H9305-03 (PMT) Detektor

PDA10CS (InGaAs) Detektor



A.2. ábra. A PMT és InGaAs detektorok érzékenység görbéi.



A.3. ábra. A $J_0(x)$, a $J_1(x)$ és a $J_2(x)$ Bessel függvények a 0-10 intervallumon.

Irodalomjegyzék

- [1] M. Terao, Y. Tokunaga, M. Tokunaga, T. Tamegai, *Physica C* **426-431**, 94-98 (2005)
- [2] S. A. Crooker, M. Furis, X. Lou, C. Adelman, D. L. Smith, C. J. Palmstrom, P. A. Crowell, *Nature* **431**, 49 (2004)
- [3] S. A. Crooker, *et al.*, *Science* **309**, 2191 (2005)
- [4] H. Kosaka, T. Inagaki, Y. Rikitake, H. Imamura, Y. Mitsumori, K. Edamatsu, *Nature* **457**, 07729 (2009)
- [5] L. D. Barron, Molecular Light Scattering and Optical Activity *Cambridge University Press*, Cambridge (2004)
- [6] T. Oakberg, PEM90-Műszerkönyv *HINDS Instruments* (1998)
- [7] D. M. Newman, J. Heptinstall, R. J. Matelon, L. Savage, M. L. Wears, J. Beddow, M. Cox, H. D. F. H. Shallig, P. F. Mens *Biophysical Journal* **95**, 994 (2008)
- [8] <http://www.hindsinstruments.com/applications/polarization/astronomical-polarization/astronomical-source-measurement/>
- [9] J. Kerr, *Philos. Mag.* **3**, 321 (1877)
- [10] L. D. Landau, E. M. Lifsic, Elméleti Fizika VIII: Folyotonos Közegek Elektrodinamikája, *Tankönyvkiadó*, Budapest, **407** (1986)
- [11] S. Sugano, N. Kojima, Magneto-Optics *Springer-Verlag*, Berlin (2000)
- [12] S. E. Schnatterly, *Phys. Rev.* **183**, 664 (1969)
- [13] D. Y. Smith, *J. Opt. Soc. Am.* **66**, 547 (1976)
- [14] R. Kubo, *J. Phy. Soc. Jpn.* **12**, 570 (1957)
- [15] V. Antonov, B. Harmon, A. Yaresko, Electronic Structure and Magneto-Optical Properties of Solids *Kluwer Acad. Publ.*, Dordrecht (2004)
- [16] C. S. Wang, J. Callaway, *Phys. Rev. B* **9**, 4897 (1974)
- [17] M. Tinkham, Group Theory and Quantum Mechanics *McGraw-Hill Publishing Company* New York (1964)

- [18] J. Sólyom, A modern szilárdtestfizika alapjai: Szerkezet és dinamika *ELTE Eötvös kiadó*, Budapest (2009)
- [19] S. Wittekoek, T. J. Popma, J. M. Robertson, P. F. Bongers, *Phys. Rev. B* **12**, 7 (1974)
- [20] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004)
- [21] K. Sato, *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, 12 (1981)
- [22] R. M. A. Azzam, N. M. Bashara: Ellipsometry and polarized light, *North-Holland Personal Library*, Amsterdam (2001)
- [23] J. Kauppinen, J. Partanen: Fourier Transforms in Spectroscopy, *Springer-Verlag*, Berlin (2001)
- [24] T. Ogasawara: *Személyes közlés: FTMoke.jar*
- [25] C. Colominas, *Phys. Rev.* **153**, 558 (1967)
- [26] K. Ohgushi, Y. Okimoto, T. Ogasawara, S. Miyasaka, Y. Tokura, *J. Phy. Soc. Jpn.* **77**, 3 (2008)
- [27] S. Bordács, I. Kézsmárki, K. Ohgushi, Y. Tokura, *New J. Phys.* **12**, 053039 (2010)
- [28] H. Brandle, J. Schoenes, P. Wachter, F. Hulliger, W. Reim, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2602 (1990)
- [29] H. Feil, C. Haas, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 65 (1987)
- [30] K. Ohgushi: *Személyes közlés a kristály orientációját illetően.*
- [31] K. Sato, H. Hidetoshi, H. Ikekame, Y. Tosaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 989 (1993)
- [32] K. Ohgushi: *Személyes közlés: Reflektivitás spektrum*