

## АНИЗОТРОПИЯ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКОГО ОТКЛИКА МОНОКРИСТАЛЛА АЛЮМИНИЯ

*С.А.Ахманов, С.В.Говорков, Н.И.Коротеев,  
Г.И.Петров, И.Л.Шумай, В.В.Яковлев*

Обнаружена и теоретически рассчитана сильная анизотропия нелинейно-оптического отклика  $3s$ - и  $3p$ -электронов в монокристаллическом алюминии.

1. Изложены результаты экспериментального и теоретического исследования квадратичного по полю нелинейно-оптического отклика монокристалла алюминия. Нелинейный отклик оказался существенно анизотропным и относительно сильным – на 1,5 порядка превосходящим таковой для кремния. Дана количественная интерпретация экспериментальных данных, основанная на квантовомеханическом расчете отклика почти свободных  $3s$ - и  $3p$ -электронов. Обнаруженная анизотропия нелинейного отклика открывает новые возможности в исследовании динамики электронной структуры нормальных металлов и сверхпроводников.

2. Первые эксперименты по генерации оптических гармоник при отражении от поверхности металлов были выполнены в середине 60-х годов (см. <sup>1</sup> и библиографию к ней). В их теоретической интерпретации длительное время доминировала гидродинамическая модель изотропной плазмы свободных носителей вблизи поверхности металла <sup>2</sup>. Лишь недавно было обращено внимание на зависимость интенсивности второй гармоники (ВГ) от ориентации кристаллических осей при отражении от монокристаллов меди <sup>3</sup> и серебра <sup>4</sup>. Интерпретация этого факта содержится в <sup>3</sup>; авторы апеллируют к вкладу в нелинейный отклик  $d$ -электронов, сильно связанных с атомным остовом.

Нами в качестве объекта был избран алюминий, оптический отклик которого определяется  $s$ - и  $p$ - электронами. Выполненные нами исследования включают эксперимент по нелинейному отражению пикосекундных импульсов и количественную интерпретацию данных.

3. В наших экспериментах исследовалась генерация отраженной ВГ излучения лазера на АИГ :  $\text{Nd}^{3+}$  с длительностью импульсов  $3 \cdot 10^{-11}$  с<sup>5</sup>. Излучение лазера направлялось на поверхность кристалла под углом  $45^\circ$  к нормали. Регистрировалась зависимость интенсивности ВГ от угла поворота монокристалла вокруг нормали к поверхности. Поверхность кристалла готовилась путем механической (размер зерен до 0,25 мкм) и последующей электрохимической полировки. Применение пикосекундных импульсов позволяет получить хорошо регистрируемый сигнал ВГ при интенсивности излучения на 1 – 2 порядка ниже порога разрушения Al. На рис. 1 представлена зависимость интенсивности ВГ от угла поворота кристалла Al при отражении от поверхности среза (110). Симметрия этой зависимости соответствует кристаллической симметрии среза Al (110); структура решетки определяет анизотропию нелинейного отклика. Интенсивность ВГ в максимумах превосходила интенсивность квадрупольной ВГ от поверхности кремния более, чем в 20 раз.

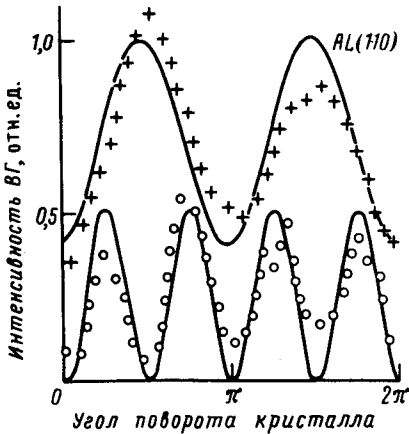


Рис. 1

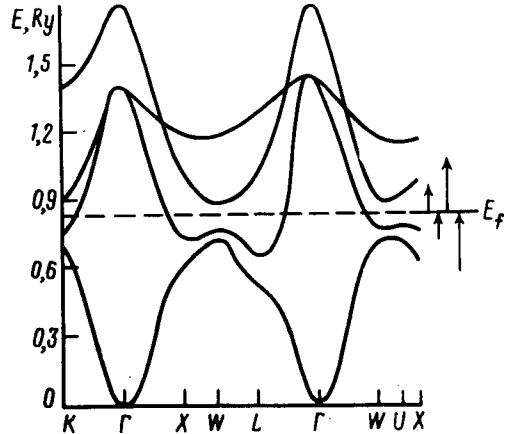


Рис. 2

Рис. 1. Ориентационные зависимости интенсивности ВГ для поверхности Al(110). Точки – экспериментальные зависимости: + – излучения основной частоты и ВГ поляризованы в плоскости падения; o – излучение ВГ поляризовано перпендикулярно плоскости падения; сплошные кривые проведены по формулам<sup>9</sup> в предположении  $|\xi / \chi_{1212}^{(2)} Q| = 1$

Рис. 2. Рассчитанная зонная структура Al. Справа для сравнения показаны стрелками энергии квантов  $\hbar\omega$ ,  $2\hbar\omega$  и уровень Ферми ( $E_F$ )

4. Линейные оптические свойства Al, как и любого другого кристалла кубической симметрии, изотропны. Влияние анизотропии кристаллической структуры на нелинейно-оптический отклик Al можно последовательно учесть путем суммирования вкладов внутри- и межзонных переходов электронов, принимая во внимание анизотропию зонной структуры. Нами проведен численный расчет оптической квадрупольной восприимчивости алюминия, основанный на квантовомеханической модели восприимчивости<sup>6</sup>; зонная структура и волновые функции электронов рассчитаны методом псевдопотенциала<sup>7</sup>. В одночастичном приближении с помощью нестационарной теории возмущений для тока электронов на удвоенной частоте в случае межзонных переходов имеем:

$$j_Q(2\omega) = - \frac{e^2}{2q^2 \hbar^3 c^2} \sum_{P, k, b, b', b''} P(b, b', b'') R(\omega, k, q) q (Aq)^2 (E_{b''} - E_b) \times \\ \times (E_{b''} - E_{b'}) (E_{b'} - E_b) \left( \langle b | \frac{\partial^2 | b'' \rangle}{\partial k^2} \right) \left( \frac{\partial \langle b'' |}{\partial k} | b' \rangle \right) \left( \frac{\partial \langle b' |}{\partial k} | b \rangle \right).$$

Здесь  $E_b$  и  $|b\rangle$  — энергия и волновая функция электрона в  $b$ -зоне с волновым вектором  $k$ ;  $A$  — векторный потенциал падающей электромагнитной волны с частотой  $\omega$  и волновым вектором  $q$  в среде;  $R(\omega, k, q)$  — резонансный множитель, учитывающий плотность состояний,  $P(b, b', b'')$  — оператор перестановки. Аналогичное выражение получено и для внутривозбужденных переходов.

Зонная структура Al, рассчитанная нами в рамках модели <sup>7</sup> представлена на рис. 2. Значения энергии в основных точках зоны Бриллюэна хорошо согласуются с известными данными. Интегрирование по зоне Бриллюэна проводилось с помощью приближенного метода тетраэдров <sup>8</sup>. В результате были получены следующие компоненты тензора нелинейной квадрупольной восприимчивости Al (в ед. СГСЭ) ( $\lambda(\omega) = 1,06$  мкм):  $\chi_{1111}^{(2)} Q = 7 \cdot 10^{-13}$ ,  $\chi_{1212}^{(2)} Q = 4 \cdot 10^{-13}$ ,  $\chi_{1122}^{(2)} Q = 3 \cdot 10^{-13}$ . Анизотропия тензора нелинейной восприимчивости определяется параметром  $\xi = \chi_{1111}^{(2)} Q - (2\chi_{1212}^{(2)} Q + \chi_{1122}^{(2)} Q)$ . В изотропной среде  $\xi = 0$ , в анизотропной величина  $\xi$  определяет зависящую от угла компоненту ориентационной зависимости <sup>9</sup>. В нашем расчете  $|\xi / \chi_{1212}^{(2)} Q| = 1$ , что хорошо согласуется с экспериментальной зависимостью (см. рис. 1).

5. Таким образом, теоретически и экспериментально показано, что монокристаллический Al обладает существенно анизотропным нелинейным откликом. Анизотропия обусловлена взаимодействием почти свободных  $3s$ - и  $3p$ -электронов Al с внутривозбужденным полем.

Следовательно, даже в отсутствие вклада  $d$ -электронов, нелинейный электронный отклик монокристалла металла содержит информацию о кристаллической структуре, что может быть использовано для пико- и фемтосекундной диагностики структурных превращений в монокристаллах нормальных металлов и сверхпроводников. Таким образом, нелинейно-оптическая диагностика может успешно конкурировать с использовавшейся ранее <sup>10</sup> пикосекундной электронографией.

Результаты настоящих экспериментов с монокристаллами металлов совместно с данными экспериментов с ВТСП пленками <sup>11</sup>, делают разумной постановку вопроса о применении нелинейно-оптических методов к анализу динамики электронной структуры ВТСП материалов, интенсивно обсуждаемой в последнее время (см., например, <sup>12, 13</sup>).

#### Литература

1. Bloembergen N., Chang R.K., Jha S.S., Lee C.H. Phys. Rev., 1968, 174, 813.
2. Sipe J.E., So V.C.Y., Fukui M., Stegeman G.I. Phys. Rev. B, 1980, 21, 4389.
3. Tom H.W.K., Aumiller G.D. Phys. Rev. B, 1986, 33, 8818.
4. Shannon V.L., Koos D.A., Richmond G.L. Appl. Opt., 1987, 26, 3579.
5. Абдуллаев А.Ю., Говорков С.В., Задков В.Н. и др. Вест. МГУ, сер. 3 (физика, астрономия), 1988, 29, 48.
6. Jha S.S., Warke C.S. Phys. Rev., 1967, 153, 751.
7. Хейне В., Козн М., Уэйр Д. Теория псевдопотенциала. М.: Мир, 1973.
8. Moss D.J., Sipe J.E., van Driel H.M. Phys. Rev. B, 1987, 36, 1153.
9. Sipe J.E., Moss D.J., van Driel H.M. Phys. Rev., B, 1987, 35, 1129.
10. Williamson S., Mourou G., Li J.C.M. Phys. Rev. Lett., 1984, 52, 2364.
11. Ахманов С.А., Говорков С.В., Коротеев Н.И. и др. Препринт №9, физического факультета МГУ, 1987.
12. Конаев Ю.В. Письма в ЖЭТФ, 1988, 47, 628.
13. Каплан М.Д., Хомский Д.И. Письма в ЖЭТФ, 1988, 47, 631.