

О ГЕНЕРАЦИИ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В НЕСОРАЗМЕРНЫХ ФАЗАХ КРИСТАЛЛОВ

К. С. Александров, А. Н. Вторин¹⁾, В. Ф. Шабанов

Путем экспериментальных исследований генерации второй гармоники обнаружена асимметрия тензора нелинейной восприимчивости в несоразмерной фазе кристалла $(\text{NH}_4)_2\text{BeF}_4$. Этот эффект объясняется пространственной модуляцией структуры вдоль оси a .

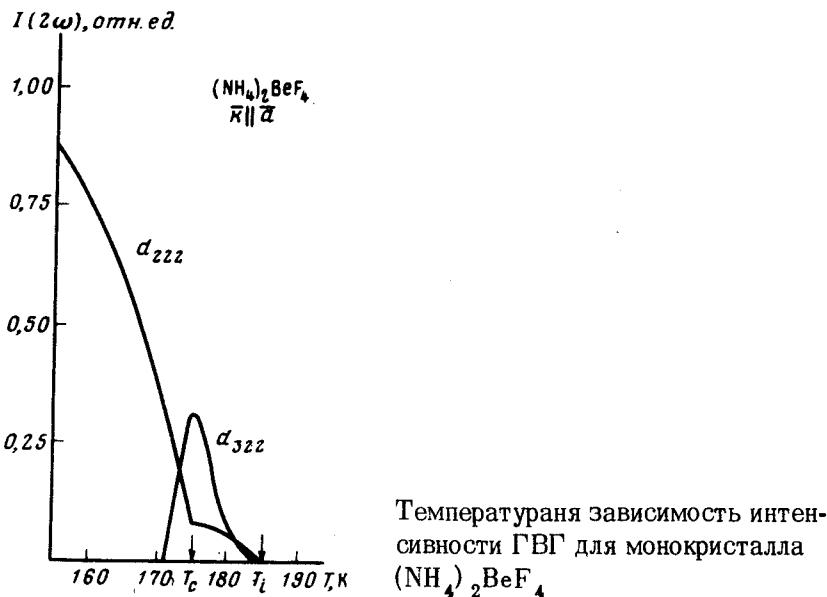
Метод генерации второй оптической гармоники (ГВГ) позволяет с большой точностью определять наличие или отсутствие центра симметрии в кристаллах, в связи с чем он широко используется при изучении сегнетоэлектрических фазовых переходов [1].

За последнее время в целом ряде кристаллов между сегнетоэлектрической и паразелектрической фазами были обнаружены так называемые несоразмерные фазы. В настоящей работе на монокристаллах фторбериллата аммония ($(\text{NH}_4)_2\text{BeF}_4$) проведено изучение ГВГ в несоразмерной фазе. Она существует в интервале температур от $T_c = 175$ К до $T_i = 185$ К. Модуляция структуры параллельна оси a кристалла. В [2] было высказано предположение, что пространственные группы несораз-

мерной и сегнетоэлектрической фаз совпадают, а макроскопополяризация отсутствует вследствие полной ее компенсации на длине волны, кратной волне модуляции.

Эксперимент был проведен на ориентированных монокристаллах по методике, описанной в [3]. Было обнаружено, что при распространении возбуждающего лазерного излучения ($\lambda = 1,06 \text{ мкм}$) вдоль осей b и c в несоразмерной фазе имеют ненулевые значения все те (и только те) компоненты тензора нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка d_{ijl} , которые соответствуют симметрии сегнетоэлектрической фазы. Их появление в несоразмерной фазе обусловлено тем обстоятельством, что в любом сечении d_x , перпендикулярном оси модуляции a , локальное значение поляризации отлично от нуля.

В соразмерных фазах тензор d_{ijl} симметричен относительно перестановок j и l , и одна и та же компонента d_{ijl} может быть измерена в двух разных геометриях эксперимента [4]. В то же время при распространении излучения вдоль оси a в несоразмерной фазе $(\text{NH}_4)_2\text{BeF}_4$ были обнаружены новые ненулевые компоненты d_{ijl} . На рисунке представлено температурное поведение интенсивности ГВГ в компоненте d_{322} , которая проявляется только в несоразмерной фазе, если излучение первой гармоники распространяется вдоль оси a . Для сравнения относительных интенсивностей на том же рисунке приведена температурная зависимость компоненты d_{222} , разрешенной симметрией сегнетоэлектрической фазы.



Температурная зависимость интенсивности ГВГ для монокристалла $(\text{NH}_4)_2\text{BeF}_4$

Наблюдаемый эффект можно объяснить, если учесть влияние модуляции структуры на нелинейную поляризацию среды $P^{(2)}(\mathbf{R}, t)$, которая определяет интенсивность ГВГ ($I(2\omega)$). Согласно [4]:

$$P_i^{(2)}(\mathbf{R}, t) = 4 d_{ijl} E_j(\mathbf{R}) E_l(\mathbf{R}) e^{-i(2\omega t - 2kR)}, \quad (1)$$

где $E_j(\mathbf{R})$ – амплитуда, ω – частота, \mathbf{k} – волновой вектор поля первой гармоники. В простейшем случае модуляцию структуры можно учесть путем замены \mathbf{R} на $\mathbf{R} + \mathbf{r}$, где

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}^{(o)} \sin \delta \mathbf{R} a^*. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{r} – модулированные смещения, $\mathbf{r}^{(o)}$ – глубина модуляции, δ – параметр несоразмерности, a^* – вектор обратной решетки, причем $(\mathbf{r} \mathbf{a}) = 0$ [2]. Учитывая, что $|\mathbf{r}| \ll |\mathbf{R}|$, величину $P_i^{(2)}(\mathbf{R} + \mathbf{r}, t)$ в первом приближении можно записать в виде суммы $P_i^{(2)}(\mathbf{R}, t)$ и членов, содержащих величины $D_{ijlm} \equiv (\partial d_{ijl} / \partial r_m)_{\mathbf{r}=0}$. Тогда при $\mathbf{k} \parallel \mathbf{a}$:

$$I(2\omega) \sim |E_i^{(2)}(\mathbf{R}_L)|^2 = d_{ijl}^2 \left| \frac{32 \omega^2 E_j(\mathbf{R}) E_l(\mathbf{R}) \sin p}{k_2 c^2 \Delta k} \right| + \\ + \left| \frac{32 \omega^2 E_j(\mathbf{R}) E_l(\mathbf{R})}{L k_2 c^2 (p^2 - q^2)} \right|^2 \left\{ d_{ijl} D_{ijl} \left[\frac{q}{p} (1 + \cos q) \sin p + \right. \right. \\ \left. \left. + (1 - \cos p) \sin q \right] + D_{ijl}^2 q^2 \left[\left(\frac{p}{q} \sin q + \sin p \right) + (\cos p + \cos q)^2 \right] \right\}, \quad (3)$$

где $D_{ijl} = r_m^{(o)} D_{ijlm}$, $\Delta k = k_2 - 2k$, $p = \Delta k L$, $q = \frac{\delta}{a} L$, k_2 – волновой вектор излучения второй гармоники, $E_i^{(2)}(\mathbf{R}_L)$ – амплитуда поля второй гармоники при выходе из кристалла, L – длина образца. Как видно из формулы (3), в этом случае возможно появление компонент $I(2\omega)$, даже если $d_{ijl} \equiv 0$. При $\mathbf{k} \perp \mathbf{a}$ все члены, содержащие D_{ijlm} при усреднении по объему кристалла исчезают.

Из проведенного рассмотрения следует, что эффективный тензор d_{ijl} оказывается несимметричным и его вид позволяет определить направление модуляции структуры. Значения новых компонент этого тензора определяются глубиной модуляции $r^{(o)}$ и величинами D_{ijlm} . Таким образом, ГВГ может стать одним из методов детального изучения несоразмерных структур в сегнетоэлектриках.

Институт физики
Академии наук СССР
Сибирское отделение

Поступила в редакцию
26 июня 1978 г.

Литература

- [1] H.Vogt. Appl. Phys., 5, 85, 1974.
- [2] M.Iizumi, J.D.Axe, G.Shirane, K.Shimaoka. Phys. Rev. B, 15, 4392, 1977.

[3] А.Т.Анистратов, В.Ф.Шабанов, И.С.Кабанов, А.В.Замков, К.С.Александров. Известия АН СССР, сер. физ., 41, 562, 1977.

[4] Н.Бломберген. Нелинейная оптика. М., изд. Мир, 1966.
