

ДИСПЕРСИЯ КВАДРАТИЧНОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ КРИСТАЛЛОВ НИОБАТА ЛИТИЯ И НИОБАТА БАРИЯ НАТРИЯ

Л.М.Дорожкин, В.А.Кизель, В.Д.Шигорин, Г.П.Шипуло

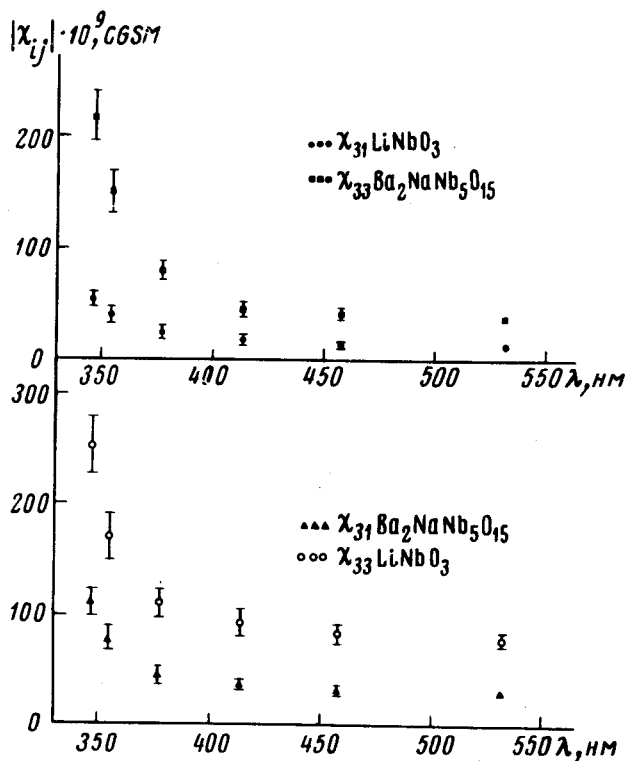
Впервые измерена дисперсия компонент χ_{31} и χ_{33} монокристаллов ниобата лития и ниобата бария натрия в видимой и ближней УФ областях спектра. Показано, что она определяется зависимостью дисперсии квадратичной поляризуемости связей Nb – O от их длины.

1. Квадратичная оптическая восприимчивость сегнетоэлектриков изучалась во многих работах, однако данные по ее частотной дисперсии вблизи электронных полос поглощения в литературе отсутствуют. В связи с этим нами была исследована дисперсия некоторых компонент тензора квадратичной восприимчивости χ хорошо известных кристаллов ниобата лития LiNbO_3 (НЛ) и ниобата бария натрия $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ (НБН) в видимой и ближней УФ областях спектра. Полученные результаты интерпретированы с точки зрения дисперсии эффективной нелинейной поляризуемости связей Nb – O.

2. В экспериментах использовалось излучение лазера на алюмо-иттриевом гранате с неодимом ЛТИПЧ-7 и его второй гармоники, а также излучение лазера на рубине и возбуждаемых им в жидком азоте первых двух стоксовых компонент ВКР. Определялись компоненты χ_{31} и χ_{33} кристаллов НЛ и НБН для процессов удвоения ($\lambda_{\text{ВГ}} = 347, 415, 532 \text{ нм}$) и сложения ($\lambda_{\text{сум}} = 355, 378, 458 \text{ нм}$) частот. Измерения χ_{ij} осуществлялись по клиновой методике [1] относительно кристаллического кварца, который имеет в рассматриваемом нами интервале длин волн $\chi_{11} = 0,8 \cdot 10^{-9}$ CGSE [2]. Интенсивность преобразованного излучения I регистрировалась с помощью ФЭУ-39 и осциллографа.

Измерения дисперсии квадратичной восприимчивости проводились при комнатной температуре на монокристаллических образцах конгруэнтного состава, для которых предварительно определялись показатели поглощения α и преломления N обыкновенного и необыкновенного лучей (кристаллы НБН практически одноосны [3]). Для длин волн основного и преобразованного излучений показатели преломления находились интерполяцией и экстраполяцией их значений, измеренных нами методом призм на длинах волн 355, 405, 408, 436, 492, 546, 577, 589, 633 нм. Величины χ_{ij} определялись по I , α и N , аналогично [1, 2], причем длины когерентности вычислялись по показателям преломления.

Зависимость компонент тензора квадратичной восприимчивости χ_{ij} кристаллов НЛ и НБН от длины волны преобразованного излучения λ представлена на рисунке. Полученные нами для $\lambda = 532$ нм значения χ_{ij} в пределах ошибок измерений совпадают со значениями, приведенными



в [3, 4].

3. Квадратичная оптическая восприимчивость кристаллов ниобатов обуславливается в основном нелинейной поляризуемостью β связей Nb – O, которые при этом рассматриваются как одномерные электронные распределения с $\beta \approx \beta_{11} \gg \beta_1$ [4]. Зная направляющие косинусы n_k k-й связи Nb – O в элементарной ячейке объемом V_0 и считая β_k макроскопическими величинами, для компонент χ_{31} и χ_{33} кристаллов НЛ и НБН, можно составить следующие уравнения:

$$\chi_{ij} = V_0^{-1} \sum_k \beta_k n_{ki} n_{kj}^2; i = 3, j = 1, 3. \quad (1)$$

Тогда частотная дисперсия χ_{ij} будет определяться дисперсией эффективной нелинейной поляризуемости β отдельных связей Nb – O и их геометрическими факторами.

С помощью простейшей модели, описывающей движение электронов связи Nb – O как движение в одномерной потенциальной яме [5], мож-

но показать, что более сильная дисперсия β должна наблюдаться у связей большей длины L : для $L_2 > L_1$

$$\frac{\beta(L_2, \lambda'')}{\beta(L_2, \lambda')} > \frac{\beta(L_1, \lambda'')}{\beta(L_1, \lambda')} \quad \text{при } \lambda'' < \lambda'. \quad (2)$$

Такая ситуация, действительно, имеет место, например, в кристаллах НЛ, причем в длинноволновом приближении, в соответствии с [6],

$$\kappa_{pq}(\lambda) \equiv \frac{\beta(L_p, \lambda)}{\beta(L_q, \lambda)} = \left(\frac{L_p}{L_q} \right)^\sigma, \quad (3)$$

где $p = 2, q = 1, \sigma = 2$.

Выделяя в кристаллах НЛ две группы связей Nb - O с длинами $L_1 = 1,889 \pm 0,003 \text{ \AA}$, $L_2 = 2,112 \pm 0,004 \text{ \AA}$, а в кристаллах НБН три группы связей Nb - O с $L_3 = 1,815 \pm 0,028 \text{ \AA}$, $L_4 = 1,975 \pm 0,011 \text{ \AA}$, $L_5 = 2,214 \pm 0,029 \text{ \AA}$, найдем, используя рентгеноструктурные данные [7, 8] и равенства (1), что $\chi_{31}(\lambda)/\chi_{33}(\lambda)$ определяется выражением

$$\frac{1,11 \kappa_{21}(\lambda) - 1,10}{1,80 \kappa_{21}(\lambda) - 0,64}$$

в случае НЛ и выражением

$$\frac{0,14 \beta(L_4, \lambda)}{0,75 \beta(L_5, \lambda) - 0,74 \beta(L_3, \lambda)} < \frac{0,14 \kappa_{53}(\lambda)}{0,75 \kappa_{53}(\lambda) - 0,74}$$

в случае НБН. Из вышеприведенных уравнений и неравенства $\kappa_{pq}(\lambda'') > \kappa_{pq}(\lambda')$ при $\lambda'' < \lambda'$, равносильного неравенству (2), следует, что для кристаллов НЛ величина компоненты χ_{31} должна быть меньше, а ее относительное изменение с длиной волны - больше, чем у компоненты χ_{33} , в то время как для кристаллов НБН и сама величина компоненты χ_{31} и ее относительное изменение с длиной волны должны быть меньше, чем у компоненты χ_{33} . Этот вывод также полностью согласуется с экспериментальными значениями $\chi_{ij}(\lambda)$ (см. рисунок).

Отметим, что изменение параметра κ_{pq} с длиной волны преобразованного излучения λ может быть описано соотношением (3) с коэффициентом σ , зависящим от λ , причем согласно экспериментальным данным для НЛ в диапазоне $\lambda = 532 \div 347 \text{ нм}$ $\sigma(\lambda)$ монотонно возрастает, примерно, от двух до трех. Используя формулы (1) и (3) с этими значениями $\sigma(\lambda)$, мы вычислили $\chi_{ij}(\lambda)$ кристаллов НБН. Сравнение таким образом полученных величин $\chi_{ij}(\lambda)$ НБН с их экспериментальными значениями показывает, что такой подход дает вполне удовлетворительные результаты, хотя мы и рассматриваем лишь эффективные квадратич-

ные поляризуемости связей, включающие в себя факторы локального поля.

Таким образом, учет кристаллической структуры НЛ и НБН и зависимости $\beta(\lambda)$ связей Nb — O от их длины хорошо объясняет наблюдаемые экспериментально особенности дисперсии компонент тензора квадратичной оптической восприимчивости этих сегнетоэлектриков вблизи электронных полос поглощения.

Авторы выражают благодарность В.А.Чикову за помощь в работе.

Московский
физико-технический институт

Физический институт им. П.Н.Лебедева
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
18 августа 1976 г.

Литература

- [1] G.D.Boyd, H.Kasper, J.H.McFee. IEEE J. Quantum Electron., QE-7, 563, 1971.
 - [2] B.F.Levine. IEEE J. Quantum Electron., QE-9, 946, 1973.
 - [3] S.Singh, D.A.Draeger, J.E.Geusic. Phys. Rev., B2, 2709, 1970.
 - [4] C.R.Jeggio, G.D.Boyd. J. Appl. Phys., 41, 2741, 1970.
 - [5] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. Квантовая механика, М., Физматгиз, стр. 87.
 - [6] B.F.Levine. Phys. Rev., B7, 2600, 1972.
 - [7] S.C.Abrahams, J.M.Reddy, J.L.Bernstein. J. Phys. Chem. Solids, 27, 997, 1966.
 - [8] P.V.Jamieson, S.C.Abrahams, J.L.Bernstein. J. Chem. Phys., 50, 4352, 1969.
-