

*Письма в ЖЭТФ, том 17, вып. 4, стр. 201 – 204.*      20 февраля 1973 г.

**ДИСПЕРСИЯ НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ  
МОНОКРИСТАЛЛА  $\text{TeO}_2$  В ОПТИЧЕСКОЙ ОБЛАСТИ СПЕКТРА**

*Л. М. Беллев, А. Б. Гильварг, Л. М. Дорожкин,  
В. А. Кизель, В. М. Ковалчук, С. П. Смирнов*

Методом регистрации второй гармоники (ВГ) света, в спектральном интервале  $0,35 - 0,53 \mu\text{м}$  измерена дисперсия нелинейной восприимчивости  $\text{TeO}_2$ , в котором согласно соотношению Клейнмана [1] генерация ВГ запрещена.

Соотношение Клейнмана возникает при анализе свойств симметрии тензора нелинейной восприимчивости  $d_{ijk}$ , ответственного за генерацию ВГ в кристаллах. В общем случае, без учета симметрии кристалла  $d_{ijk}$  обладает симметрией относительно перестановки только двух индексов:  $d_{ijk} = d_{ikj}$ . Клейнман предположил, что вдали от полос поглощения кристалла, когда дисперсией нелинейной восприимчивости можно пренебречь,  $d_{ijk}$  симметричен относительно перестановки трех индексов:  $d_{ijk} = d_{kij} = d_{kji} = \dots$ . Это соотношение симметрии Клейнмана уменьшает число независимых элементов  $d_{ijk}$  и обращает в нуль некоторые его элементы. Экспериментальная проверка показала, что соотношение симметрии Клейнмана хорошо выполняется. Однако, в последнее время сообщалось о небольших нарушениях этого соотношения в кристаллах иодата лития [2,3] и нитрита бария [3].

Кристаллы  $\text{TeO}_2$  относятся к нецентросимметричному классу 422 [4]. Согласно концепции Клейнмана в кристаллах этого класса генерация ВГ запрещена. Однако, недавно было открыто, что  $\text{TeO}_2$  может эф-

фективно удваивать частоту оптического излучения на длине волны  $\lambda = 1,064 \text{ мк}$  [5, 6]. Следовательно, соотношение Клейнмана не применимо к  $\text{TeO}_2$ . Мы предполагаем, что это связано с сильной частотной дисперсией нелинейной восприимчивости этого кристалла, которой нельзя пренебречь, как это делается при выводе соотношения Клейнмана.<sup>1</sup>

Для проверки этой гипотезы мы измерили дисперсию единственного независимого элемента  $d_{123}$  тензора нелинейной восприимчивости, который ответственен за генерацию ВГ в кристаллах класса 422 (учет соотношения Клейнмана дает  $d_{123} = 0$ ). ВГ возбуждалась рубиновым и неодимовым лазерами, а также первой и второй стоксовыми компонентами ВКР в жидким азоте.

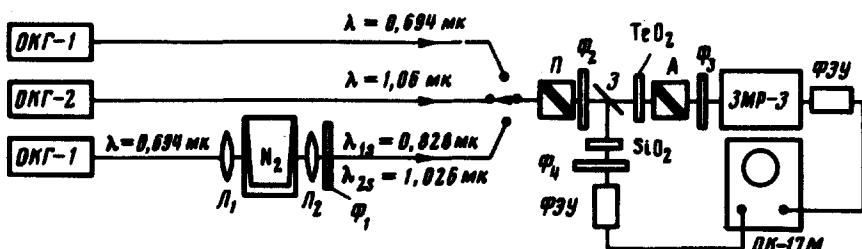


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: ОКГ-1, ОКГ-2 – рубиновый и неодимовый лазеры, соответственно,  $N_2$  – дюар с жидким азотом,  $L_1$ ,  $L_2$  – линзы для возбуждения ВКР,  $P$  – поляризатор,  $A$  – анализатор,  $\Phi_1$  – фильтр КС-19,  $\Phi_2$  – фильтр КС-13,  $\Phi_3$ ,  $\Phi_4$  – фильтры для выделения ВГ, 3 – полупрозрачное зеркало, ЗМР-3 – кварцевый монохроматор

Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Для повышения точности относительных измерений интенсивности ВГ применялась двухканальная схема регистрации. В основном канале ВГ возбуждалась в  $\text{TeO}_2$  или в кварце (эталонный кристалл), отделялась от основной частоты фильтром и монохроматором, регистрировалась ФЭУ-39 и наблюдалась на импульсном осциллографе ОК-17М. В опорном канале гармоника возбуждалась в кварце, регистрировалась ФЭУ и сигнал поступал на второй канал осциллографа.<sup>1</sup>

Компонента  $d_{123}$  ( $\text{TeO}_2$ ) измерялась относительно  $d_{111}$  (кварц) =  $= 1,2 \cdot 10^{-9}$  ед. CGSE [7], которая полагалась постоянной в исследуемом диапазоне частот. Измерения проводились при комнатной температуре, в стороне от направлений синхронизма, на клиновидных образцах  $\text{TeO}_2$ , по методике, описанной в [8]. Интенсивность ВГ, регистрируемая ФЭУ, в этом случае пропорциональна

$$I_{2\omega} \propto \left[ \frac{d l_k l_\omega}{(n_\omega + 1)^2 (n_{2\omega} + 1)} \right]^2,$$

где  $I_\omega$  – интенсивность возбуждающего излучения,  $d$  – компонента нелинейного тензора,  $l_k$  – длина когерентности,  $n_\omega$ ,  $n_{2\omega}$  – показатели преломления на основной частоте и частоте ВГ, соответственно.

Кристалл  $\text{TeO}_2$  был ориентирован на рентген-гониометре типа УРС-25 относительно кристаллографических осей  $x, y, z$  ( $z$  – оптическая ось) с точностью не хуже  $0,5$  град и вырезан перпендикулярно направлению [011]. Основное излучение падало нормально к поверхности кристалла. Вектор электрического поля  $E$  составлял угол  $45$  град с осями  $y, z$ . При этом вектор нелинейной поляризации направлен по оси  $x$  и равен  $P_{\text{нл}} = d_{123} E^2$ .

### Нелинейные оптические свойства $\text{TeO}_2$

| $\lambda, \text{\AA}$ | $d_{123}, 10^{-9} \text{ ед. CGSE}$ | $\ell_k, \text{мк}$ | $\delta_{123}, 10^{-8} \text{ ед. CGSE}$ |
|-----------------------|-------------------------------------|---------------------|--|
| 10600                 | 1,7                                 | 8,4                 | 5,5                                      |
| 10260                 | 1,6                                 | 6,9                 | 5,4                                      |
| 8280                  | 3,7                                 | 1,7                 | 7,0                                      |
| 6943                  | 4,7                                 | 0,61                | 6,9                                      |

Результаты эксперимента представлены в таблице. Когерентная длина  $\ell_k$  и миллеровский коэффициент  $\delta_{123}$  были рассчитаны на основании данных по дисперсии показателей преломления  $\text{TeO}_2$  [9].

На рис. 2 измеренные значения  $d_{123}$  сравниваются с теоретической кривой, вычисленной по формуле:  $d_{123} = \delta_{123}(n_{2\omega}^2 - 1)(n_\omega^2 - 1)^2/(4\pi)^3$ , в предположении независимости  $\delta_{123}$  от длины света. Наблюдаемые расхождения теории и эксперимента показывают, что  $\delta$ -коэффициент  $\text{TeO}_2$  обладает частотной дисперсией.

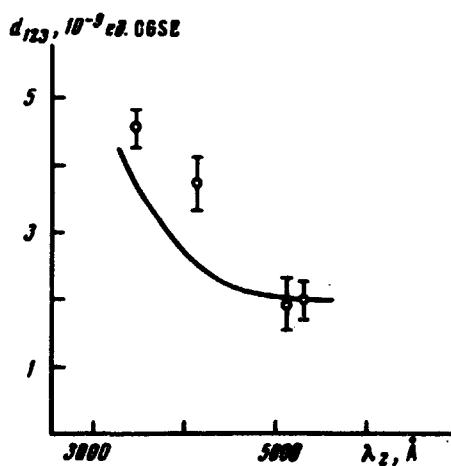


Рис. 2. Зависимость нелинейной восприимчивости  $\text{TeO}_2$  от длины волны второй гармоники

Полученные результаты демонстрируют весьма значительное нарушение соотношения Клейнмана в  $\text{TeO}_2$ , в особенности в коротковолновой области спектра, где нелинейный коэффициент  $\text{TeO}_2$  значительно больше, чем, например, в KDP. Вместе с тем, как показали наши из-

мерения, наличие сильной частотной дисперсии нелинейной восприимчивости  $\text{TeO}_2$  ставит под сомнение правомерность применения соотношения Клейнмана к этому кристаллу.

Московский  
физико-технический институт

Институт кристаллографии  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
15 января 1973 г.

### Литература

- [ 1 ] D. A. Kleinman. Phys. Rev., 126, 1977, 1962.
  - [ 2 ] M. Okada. S. Jeiri. Phys. Lett., 34A, 63, 1971.
  - [ 3 ] В.М.Ковальчук. Тезисы докладов на VI Всесоюзной конференции по нелинейной оптике, Минск 1972.
  - [ 4 ] J. Leciejewicz. Z. Kristal., 116, 345, 1961.
  - [ 5 ] S.Singh, W.A.Bonner, L.G. Van Uitert. Phys. Lett., 38A, 407, 1972.
  - [ 6 ] D.S.Chemla, J.Jerphagnon. Appl. Phys. Lett., 20, 222, 1972.
  - [ 7 ] R.Bechman, S.K.Kurtz. Landolt-Bornstein. Numerical Data and Functional Relationships. Group 3, v.2. Springer, Berlin, 1969.
  - [ 8 ] A.Savage. J. Appl. Phys., 36, 1496, 1965.
  - [ 9 ] N.Uchida. Phys. Rev., B4, 3736, 1971.
-