

УДК 535

© 1990

ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В МАГНИТОЭЛЕКТРИКЕ

 Cr_2O_3

С. Б. Борисов, Н. Н. Дадоенкова, И. Л. Любчанский, В. Л. Соболев

Проведен теоретико-групповой анализ тензора нелинейной оптической восприимчивости в магнитоэлектрике Cr_2O_3 . Найдены отличные от нуля компоненты этого тензора, индуцированные как антиферромагнитным упорядочением ионов хрома, так и внешним постоянным электрическим полем.

1. В работах [1, 2] сообщалось о наблюдении генерации второй оптической гармоники в магнитоупорядоченных кристаллах BiFeO_3 [1] и $(\text{YBi})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ [2]. Сегнетомагнетик феррит висмута нецентросимметричен (класс симметрии C_3 [3]), следовательно, в этом кристалле генерация второй гармоники (ГВГ) в дипольном приближении разрешена [4]. Магнитное упорядочение приводит к появлению дополнительных членов в тензоре нелинейной оптической восприимчивости (НОВ) χ_{ijk} , чем и объясняется возрастание сигнала ГВГ в BiFeO_3 при температуре $T < T_N$ (T_N — температура Нееля) [1]. Именно такая возможность усиления сигнала ГВГ в BiFeO_3 была отмечена в [5]. Кубический феррит-гранат иттрия центросимметричен (класс симметрии O_h) [6], следовательно, в $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ в дипольном приближении ГВГ запрещена [4]. Поскольку в исследованных в [2] эпитаксиальных пленках $(\text{YBi})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ионы Bi распределены неравномерно, то в образце могут возникать неоднородные деформации. Эти деформации, согласно предложенному в [7] механизму, индуцируют квадратичную оптическую нелинейность, которая и определяет ГВГ примесным центросимметричным кристаллом. Выводы об исчезновении инверсии в эпитаксиальных пленках $(\text{YBi})_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ были сделаны и в [8] на основании наблюдения электромагнитооптического эффекта (т. е. линейного по внешнему электрическому полю фарадеевского вращения).

Теоретико-групповой анализ тензора НОВ в центросимметричных магнитоупорядоченных кристаллах был проведен в [9, 10], где на примерах редкоземельного ортоферрита DyFeO_3 (пространственная группа симметрии D_{2h}^{16}) [9] и высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ в тетрагональной фазе (пространственная группа симметрии D_{4h}^1) [10] показано, что антиферромагнитное упорядочение ионов Dy^{2+} и Cu^{2+} соответственно приводит к снятию запрета на ГВГ в дипольном приближении. Аналогичное исследование индуцированной поверхностной намагниченностью ГВГ в центросимметричном кристалле выполнено в [11].

Существует целый класс магнитных кристаллов, в которых электрическая и магнитная подсистемы взаимодействуют между собой благодаря наличию магнитоэлектрического эффекта. Типичным представителем таких соединений является центросимметричный магнитоэлектрик Cr_2O_3 (класс симметрии D_{3d}) [6]. В таком веществе следует ожидать, что магнитное упорядочение приведет к снятию запрета на ГВГ в дипольном приближении.

Реализация ГВГ в центросимметричной среде возможна также во внешнем электрическом поле E_0 [12] (соответствующие эксперименты по наб-

людению ГВГ centrosимметричными кристаллами в поле E_0 описаны в [13, 14]).

Целью настоящей работы является исследование зависящего как от магнитного упорядочения, так и от внешнего электрического поля тензора НОВ в магнитоэлектрике Cr_2O_3 .

2. В элементарной ячейке Cr_2O_3 содержатся четыре магнитных иона Cr^{3+} , спины которых в основном состоянии при $T < T_N = 306$ К ориентированы вдоль оси третьего порядка и упорядочены антиферромагнитным образом [6] (см. рисунок). В этом случае отличной от нуля будет z-компонента вектора антиферромагнетизма L_2 , который определяется линейной комбинацией спиновых моментов ионов хрома M_i ($i=1, 2, 3, 4$) [6]

$$L_2 = M_1 - M_2 + M_3 - M_4.$$

При наложении на кристалл поля E_0 его магнитная подсистема перестроится благодаря магнитоэлектрическому эффекту. В Cr_2O_3 тензор статической магнитоэлектрической восприимчивости a_{ij} имеет вид [15]

$$a_{ij} = \begin{pmatrix} a_1 & 0 & 0 \\ 0 & a_1 & 0 \\ 0 & 0 & a_2 \end{pmatrix}.$$

Пусть вектор E_0 ориентирован вдоль оси OZ . При этом магнитные моменты каждой из подрешеток получают приращение ΔM_x

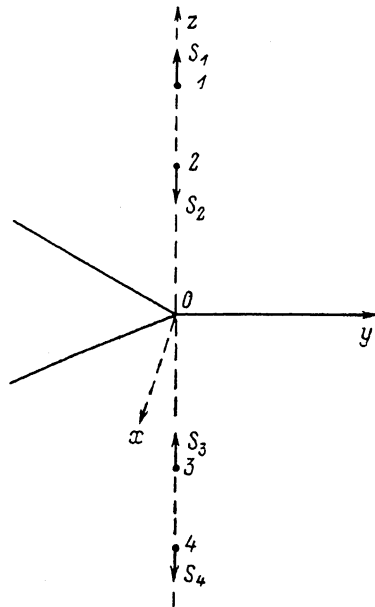
$$\Delta M_x = a_2 E_{0z},$$

а группа магнитной симметрии Cr_2O_3 понижается от D_{3d} (D_3) до C_{3v} (C_3). В кристалле появится слабый ферромагнитный момент F'_z [6], а векторы антиферромагнетизма L'_i не изменятся

$$F'_z = 4\Delta M_x, \quad L'_{1z} = L'_{3z} = L_{1z} = L_{3z} = 0, \\ L'_{2z} = L_{2z} = 4M_{0z}.$$

Тип магнитной структуры в Cr_2O_3 .

Сплошными линиями указаны 3 оси второго порядка (одна из которых совпадает с осью OY), расположенные в плоскости XOY . Ось третьего порядка совпадает с осью OZ . Стрелками указаны направления спинов ионов Cr^{3+} .



3. Нелинейная поляризация кристалла $P^{NL}(2\omega)$ имеет известный вид [4]

$$P_i^{NL}(2\omega) = \chi_{ijk}^{NL}(2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega), \quad (1)$$

где $E(\omega)$ — напряженность электрического поля электромагнитной волны с частотой ω . Следуя [9], тензор НОВ χ_{ijk} разделим на не зависящую и зависящую от магнитной подсистемы кристалла части $\chi_{ijk}^{(0)}$ и $\chi_{ijk}^{(m)}$ соответственно, а также выделим линейные и квадратичные по E_{0z} слагаемые

$$\chi_{ijk} = \chi_{ijk}^{(0)} + \chi_{ijk}^{(m)} + \chi_{ijkz}^{(0)} E_{0z} + \chi_{ijkz}^{(m)} E_{0z} + \chi_{ijkzz}^{(0)} (E_{0z})^2 + \chi_{ijkzz}^{(m)} (E_{0z})^2. \quad (2)$$

Определим ненулевые компоненты тензоров $\hat{\chi}^{(0)}$ и $\hat{\chi}^{(m)}$, ограничиваясь линейными и квадратичными по L_{2z} и a_2 слагаемыми. В отсутствие электрического поля ГВГ описывается тензорами $\chi_{ijk}^{(0)}$ и $\chi_{ijk}^{(m)}$. Поскольку пространственная группа симметрии Cr_2O_3 содержит инверсию, то все компоненты $\chi_{ijk}^{(0)}$ равны нулю [4]. Форму тензора $\chi_{ijk}^{(m)}$ исследуем по использованной в [9, 10] схеме. Рассмотрим вначале линейную по L_{2z} часть $\chi_{ijk}^{(m)}$. Учтем, что z-компонента вектора L_2 преобразуется по неприводимому представлению A_{1u} группы D_{3d} . Отличные от нуля компоненты тензора $\chi_{ijk}^{(m)}$ приведены в первой строке таблицы. Все компоненты квадратичной по L_{2z} части $\chi_{ijk}^{(m)}$ обращаются в нуль.

$\chi_{ijk}^{(m)}$	$\chi_{xxy}^{(m)} = \chi_{xyx}^{(m)} = \chi_{yxx}^{(m)} = -\chi_{yyy}^{(m)} = \chi_{\{3\}1}^{(m)}$ $\chi_{xzy}^{(m)} = \chi_{xyz}^{(m)} = -\chi_{yzx}^{(m)} = -\chi_{zyx}^{(m)} = \chi_{\{3\}2}^{(m)}$
$\chi_{ijkz}^{(0+m)} = \chi_{ijkz}^{(0)} + \chi_{ijkz}^{(m)}$	$\chi_{xxxz}^{(0+m)} = -\chi_{xyyz}^{(0+m)} = -\chi_{yxxz}^{(0+m)} = -\chi_{yyyz}^{(0+m)} = \chi_{\{4\}1}^{(0+m)}$ $\chi_{xxxz}^{(0+m)} = \chi_{xyyz}^{(0+m)} = \chi_{yxxz}^{(0+m)} = \chi_{yyyz}^{(0+m)} = \chi_{\{4\}2}^{(0+m)}$ $\chi_{zxzx}^{(0+m)} = \chi_{zyyz}^{(0+m)} = \chi_{\{4\}3}^{(0+m)}$ $\chi_{zzzz}^{(0+m)} = \chi_{\{4\}4}^{(0+m)}$
$\chi_{ijkz}^{(m)}$	$\chi_{xyyz}^{(m)} = \chi_{xyxzz}^{(m)} = \chi_{yxzz}^{(m)} = -\chi_{yyyz}^{(m)} = \chi_{\{5\}1}^{(m)}$ $\chi_{xzyz}^{(m)} = \chi_{xyzz}^{(m)} = -\chi_{yzxz}^{(m)} = -\chi_{yzzz}^{(m)} = \chi_{\{5\}2}^{(m)}$

При наложении на кристалл внешнего электрического поля E_{0x} (преобразующегося по представлению A_{2u} группы D_{3d}) возможна ГВГ как в парамагнитном, так и в магнитоупорядоченном состояниях Cr_2O_3 (тензоры $\chi_{ijkz}^{(0)}$, $\chi_{ijkz}^{(m)}$ и $\chi_{ijkz}^{(m)}$, $\chi_{ijkz}^{(m)}$ в (2) соответственно). Форму тензора $\chi_{ijkz}^{(0)}$ можно найти с помощью приложения Д. 22 из [16] (ненулевые компоненты $\chi_{ijkz}^{(0)}$ приведены во второй строке таблицы), а все компоненты $\chi_{ijkz}^{(0)}$ равны нулю в силу centrosymmetrichности структуры Cr_2O_3 . В тензоре $\chi_{ijkz}^{(m)}$ линейные по L_{2x} и a_2 слагаемые равны нулю, а компоненты, пропорциональные $(L_{2x})^2$ и $L_{2x}a_2$, приведены во второй строке таблицы (поскольку индексы ненулевых компонент тензоров $\chi_{ijkz}^{(0)}$ и $\chi_{ijkz}^{(m)}$ совпадают). Аналогичное исследование тензора $\chi_{ijkz}^{(m)}$ показывает, что билинейные по L_{2x} и a_2 компоненты обращаются в нуль, а линейные по L_{2x} и a_2 компоненты приведены в третьей строке таблицы.

Воспользовавшись формулами (1), (2) и значениями ненулевых компонент тензора НОВ из таблицы, выпишем вектор P^{NL} (2ω)

$$P_x^{\text{NL}}(2\omega) = 2(\chi_{\{3\}1}^{(m)} + \chi_{\{5\}1}^{(m)}(E_{0x})^2) E_x E_y + 2(\chi_{\{3\}2}^{(m)} + \chi_{\{5\}2}^{(m)}(E_{0x})^2) E_y E_x + [\chi_{\{4\}1}^{(m)}(E_x^2 - E_y^2) + \chi_{\{4\}2}^{(m)} E_x E_y] E_{0z}, \quad (3a)$$

$$P_y^{\text{NL}}(2\omega) = (\chi_{\{3\}1}^{(m)} + \chi_{\{5\}1}^{(m)}(E_{0x})^2)(E_x^2 - E_y^2) - 2(\chi_{\{3\}2}^{(m)} + \chi_{\{5\}2}^{(m)}(E_{0x})^2) E_x E_y - 2(\chi_{\{4\}1}^{(m)} E_x E_y - \chi_{\{4\}2}^{(m)} E_y E_x) E_{0z}, \quad (3b)$$

$$P_z^{\text{NL}}(2\omega) = [\chi_{\{4\}3}^{(m)}(E_x^2 + E_y^2) + \chi_{\{4\}4}^{(m)} E_x^2] E_{0z}. \quad (3b)$$

Из (3) видно, что не зависящие от внешнего электрического поля и квадратичные по E_{0x} компоненты тензора НОВ дают вклад в P^{NL} только в магнитоупорядоченной фазе Cr_2O_3 . Линейные по E_{0x} компоненты тензора НОВ определяют процесс ГВГ как в магнитоупорядоченном, так и в парамагнитном состоянии кристалла. Отметим, что z-компонента вектора P^{NL} появляется только во внешнем электрическом поле. В отсутствие E_0 , как следует из (3), компоненты P^{NL} имеют вид

$$P_x^{\text{NL}}(2\omega) = 2\chi_{\{3\}1}^{(m)} E_x E_y + 2\chi_{\{3\}2}^{(m)} E_y E_x, \\ P_y^{\text{NL}}(2\omega) = \chi_{\{3\}1}^{(m)}(E_x^2 - E_y^2) - 2\chi_{\{3\}2}^{(m)} E_x E_y, \\ P_z^{\text{NL}}(2\omega) = 0. \quad (4)$$

В отсутствие E_0 вектор P^{NL} , как следует из (4), лежит в плоскости HOY . Микроскопическое выражение для компонент тензоров $\hat{\chi}^{(m)}$ можно получить в рамках теории магнитоэкситонных поляритонов в магнитоэлектриках [17] по схеме, использованной в [18] при расчете тензора НОВ магнитного диэлектрика, или традиционными методами теории возмущений [11], или путем вычисления функции нелинейного магнитооптического отклика [19]. Задавая определенным образом поляризацию падающего на кристалл излучения, из (3) или (4) можно найти поляризацию сигнала второй гармо-

ники и вычислить напряженность электрического поля $E(2\omega)$ на частоте 2ω [5].

4. Интенсивность ГВГ $I_{\text{ГВГ}}$ определяется объемом кристалла $V_{\text{кв}}$, в котором происходит нелинейное взаимодействие электромагнитных волн ($I_{\text{ГВГ}} \sim V_{\text{кв}}^2$ [4]). Величина $V_{\text{кв}}$ зависит от площади освещенной поверхности и глубины проникновения излучения в образец. Для поглощающих сред в случае геометрии эксперимента «на отражение» $I_{\text{ГВГ}}$ является довольно малой величиной. Возможным путем увеличения сигнала ГВГ является использование в качестве возбуждающего излучения поверхностных электромагнитных волн [4, 20]. В этом случае объем взаимодействия света с кристаллом будет определяться характерной длиной свободного пробега поверхностного поляритона.

Авторы признательны Т. К. Соболевой за полезные советы, В. С. Горелику и Д. А. Есикову за предоставленную возможность ознакомиться с результатами экспериментов [1, 2] до их опубликования.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Агальцов А. М., Горелик В. С., Звездин А. К., Мурашов В. А., Раков Д. Н. // Кр. сообщ. по физике ФИАН. 1989. № 5. С. 37—39.
- [2] Акципетров О. А., Брагинский О. В., Есиков Д. А. // Квант. электр. 1990. Т. 18. № 3. С. 320—324.
- [3] Веневцев Ю. Р., Гагулин В. В., Любимов В. Н. Сегнетомагнетики. М.: Наука, 1982. 224 с.
- [4] Шен И. Р. Принципы нелинейной оптики. М.: Мир, 1989. 560 с.
- [5] Гиргель С. С., Демидова Т. В. // Опт. и спектр. 1987. Т. 6. № 1. С. 101—104.
- [6] Физика магнитных диэлектриков / Под ред. Г. А. Смоленского. Л.: Наука, 1974. 454 с.
- [7] Говорков С. В., Емельянов В. И., Коротеев Н. И., Петров Г. И., Шумай И. Л., Яковлев В. В. // ЖТФ. 1989. Т. 59. № 1. С. 98—106.
- [8] Кричевцов Б. Б., Павлов В. В., Писарев Р. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 7. С. 77—88.
- [9] Ахмедиев Н. Н., Борисов С. Б., Звездин А. К., Любчанский И. Л., Мелихов Ю. В. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 4. С. 1075—1078.
- [10] Борисов С. Б., Любчанский И. Л., Соболев В. Л. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 9. С. 174—178.
- [11] Ru-Pin Pan, Wei H. D., Shen Y. R. // Phys. Rev. B. 1989. V. 39. N 2. P. 1229—1234.
- [12] Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M. // Phys. Rev. Lett. 1962. V. 8. N 4. P. 404—407.
- [13] Lee C. H., Chang R. K., Blombergen N. // Phys. Rev. Lett. 1967. V. 18. N 5. P. 167—170.
- [14] Акципетров О. А., Мишина Е. Д. // ДАН СССР. 1984. Т. 274. № 1. С. 62—65.
- [15] Birrs R. R. Symmetry and Magnetism. Amsterdam: North-Holland Publ. Company, 1966. 252 p.
- [16] Сироткин Ю. И., Шаскольская М. П. Основы кристаллофизики. М.: Наука, 1975. 680 с.
- [17] Борисов С. Б., Любчанский И. Л., Соболев В. Л. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 5. С. 58—63.
- [18] Борисов С. Б., Любчанский И. Л. // Опт. и спектр. 1986. Т. 61. № 6. С. 1274—1278.
- [19] Hubner W., Benneman K.-H. // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. № 9. P. 5973—5979.
- [20] Stegeman G. I., Seaton C. T. // J. Appl. Phys. 1985. V. 58. N 12. P. R57—R78.

Донецкий физико-технический институт
АН УССР
Институт монокристаллов
АН УССР
Харьков

Поступило в Редакцию
28 марта 1990 г.
В окончательной редакции
1 августа 1990 г.