

01;05;07;12

Спонтанная поляризация и нелинейная восприимчивость в различных протонообменных $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазах

© С.М. Кострицкий,¹ Ю.Н. Коркишко,² В.А. Федоров,² М.В. Прояева,² Е.А. Баранов²¹ Кемеровский государственный университет, 650043 Кемерово, Россия² Московский государственный институт электронной техники (Технический университет), 103498 Москва, Зеленоград, Россия
e-mail: korkishk@chem.miee.ru

(Поступило в Редакцию 7 августа 2000 г. В окончательной редакции 12 февраля 2001 г.)

На основе полученных экспериментальных данных о сдвиге края фундаментального поглощения для лучей различной поляризации и данных ИК отражения в области колебаний NbO_6 октаэдра проведен расчет изменений спонтанной поляризации и коэффициентов нелинейной восприимчивости в $H:LiNbO_3$ волноводах. Показано, что учет разупорядоченности кристаллической структуры приводит к хорошему согласованию расчетных величин с экспериментальными данными.

Ниобат лития ($LiNbO_3$) благодаря своим высоким нелинейно-оптическим свойствам и достаточно высокой технологичности является наиболее широко применяемым в современной нелинейной интегральной оптике материалом. Одним из основных методов получения оптических волноводов в этих кристаллах является протонный обмен (ПО) [1].

Несмотря на то что технология протонного обмена достаточно проста, получаемые волноводы характеризуются сложным структурным многообразием. Так, в наших работах [2–6] показано, что в зависимости от условий протонного обмена и постобменного отжига до семи различных кристаллографических фаз $H_xLi_{1-x}NbO_3$ могут формироваться в $H:LiNbO_3$ волноводах. Были построены зависимости приращения показателя преломления необыкновенного луча Δn_e от нормальной к поверхности пластины компоненты тензора деформаций ϵ''_{33} на поверхности волноводов. Такие зависимости мы назвали структурно-фазовыми диаграммами, где наглядно проявляются все фазовые переходы (рис. 1). Было установлено, что $\beta_4, \beta_3, \beta_2, \beta_1$ и α - $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы могут быть получены либо непосредственным протонным обменом в соответствующих расплавах или отжигом ранее полученной $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы с более высокой концентрацией протонов. В отличие от этих фаз κ_1 - и κ_2 -фазы не могут быть получены прямым протонным обменом, а формируются только путем постобменного отжига β_i -фаз.

Известно, что различные $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы обладают различными физическими и физико-химическими свойствами [6]. В работе [7] проведены прямые измерения квадратичных нелинейных коэффициентов d методом определения интенсивности второй гармоники при сканировании сфокусированным лазерным пучком ($\lambda = 1.06 \mu m$) по полированному торцу волновода. Было установлено, что фазы β_4, β_3 и β_1 обладают крайне низкой нелинейностью: $d_{33}(\beta_4, \beta_3 \text{ и } \beta_1) \leq 0.1d_{33}(LiNbO_3)$. В то время как нелинейно-оптические коэффициенты в β_2 -фазе существенно выше: $d_{33}(\beta_2) \approx 0.55d_{33}(LiNbO_3)$.

В сочетании с тем, что профиль показателя преломления в β_1 -фазах имеет прямоугольную форму [6], β_2 -фаза является привлекательной для создания волноводных элементов генерации второй гармоники на основе эффекта Вавилова–Черенкова.

В работе [7] было показано, что постобменный отжиг приводит к существенному увеличению интенсивности второй гармоники, однако значительное ухудшение качества отраженного пучка из-за светорассеяния не позволяет оценить величину нелинейно-оптических коэффициентов в κ_2, κ_1 и α -фазах, полученных постобменным отжигом. Исследования показали, что α - $H:LiNbO_3$ волноводы, полученные прямым протонным обменом при повышенных температурах [8], обладают нелинейно-оптическими свойствами, практически не отличающимися от исходного ниобата лития [7].

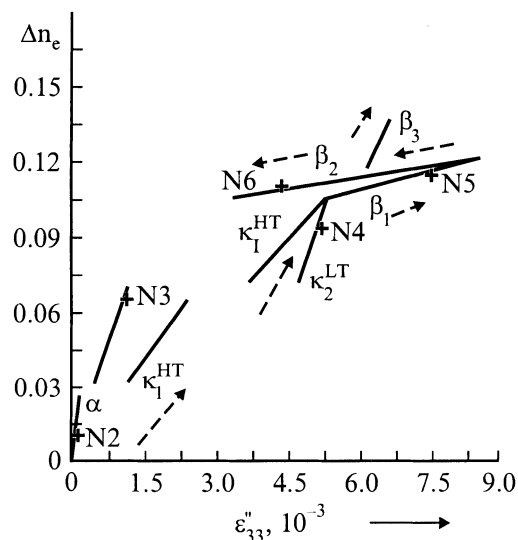


Рис. 1. Структурно-фазовая диаграмма для $H_xLi_{1-x}NbO_3$ волноводов на X-срезе $LiNbO_3$. На диаграмме указаны позиции исследованных образцов.

Таблица 1. Условия изготовления исследуемых образцов

№ образца	Источник ПО	Температура ПО, °С	Время ПО, h	Температура отжига, °С	Время отжига, h	Фаза на поверхности волновода
1	—	—	—	—	—	Чистый LiNbO ₃
2	Стеариновая кислота + стеарат лития (0.75 wt%)	350	8	—	—	α
3	Раствор KHSO ₄ в глицерине (4 g/l)	220	3	330	15	κ_1
4	Раствор KHSO ₄ в глицерине (4 g/l)	220	3	330	5	κ_2
5	Раствор KHSO ₄ в глицерине (1 g/l)	220	10	—	—	β_1
6	Раствор KHSO ₄ в глицерине (4 g/l)	220	5	—	—	β_2

В данной работе изучаются причины столь заметных различий нелинейно-оптических свойств различных $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фаз.

Изготовление образцов и методы их исследования

Протонообменные волноводы формировались на подложках ниобата лития X-среза. Условия процессов представлены в табл. 1.

Эффективные показатели преломления (ЭПП) волноводных мод измерялись на длине волны 633 nm с помощью призмного элемента связи. Профиль показателя преломления (ППП) по глубине многомодовых монофазных волноводов восстанавливался с помощью метода Венцеля–Крамерса–Бриллюэна (ВКБ), предложенного в работе [9].

Деформации кристаллической структуры определялись в соответствии с методикой [10] путем анализа рентгеновских кривых дифракционного отражения (кривых качания), полученных с помощью дифрактометра ДРОН-3. На основании измеряемых значений деформации ϵ_{33} и приращения показателя преломления Δn_e в соответствии со структурно-фазовой диаграммой [2,3] определялся фазовый состав волноводных слоев.

Спектры оптического пропускания в видимом и ближнем УФ диапазонах измерены с помощью двухлучевого спектрофотометра "Specord" 75 UV-VIS. Оптическое излучение пропускать через исследуемые образцы в направлении нормали к поверхности кристаллических пластин. Поэтому полученные спектры пропускания образцов, содержащих протонозамещенные волноводы, являлись суперпозицией двух спектров: 1) кристаллической пластины и 2) двух тонких (1.5–4.3 μm) приповерхностных слоев исследуемой $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы. Таким образом, выделение вклада приповерхностных слоев из интегрального спектра образца возможно только в случае значительного различия спектров ниобата лития

и исследуемой $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы. Наибольшая точность выделения этого вклада достижима при измерениях оптического пропускания вблизи так называемого края полосы фундаментального поглощения, где оптическая плотность образца достигает экстремально высоких значений.

Спектры ИК отражения в области внутренних колебаний NbO₆ октаэдра (300–1000 cm^{-1}) измерялись с помощью спектрофотометра Specord M80.

Результаты и их обсуждение

Сравнение спектров образцов, содержащих слои различных $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фаз, со спектром чистой пластины ниобата лития показывает заметное уменьшение энергии наблюдаемого края полосы фундаментального поглощения $E(k)$, зависящее от сформированной фазы (рис. 2). Величина этого сдвига различна для обыкновенной и необыкновенной поляризации света в образцах, содержащих любую из исследованных фаз (рис. 3). Более того, соотношение между величинами сдвига в ортогональных поляризациях не является постоянным в противоположность ожидаемому в соответствии с теорией смещения энергетических зон вследствие поляризации кристалла [11]. Однако можно выделить две константы, характеризующие данное соотношение в κ_i - и β_i -фазах (рис. 3), что указывает на принципиальное различие микроструктур $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фаз этих двух типов.

Как известно, наблюдаемое значение края полосы фундаментального поглощения $E(k)$ зависит от степени ослабления пучка сравнения при фотометрических измерениях с фиксированным коэффициентом усиления. В нашем случае такое ослабление достигалось с помощью дополнительной диафрагмы, вводимой в канал сравнения. Измерения, сделанные в отсутствие кристалла, позволили определить величину ослабления пучка сравнения, т.е. откалибровать шкалу пропускания в абсолютных единицах. Так как все условия фотометрирования оста-

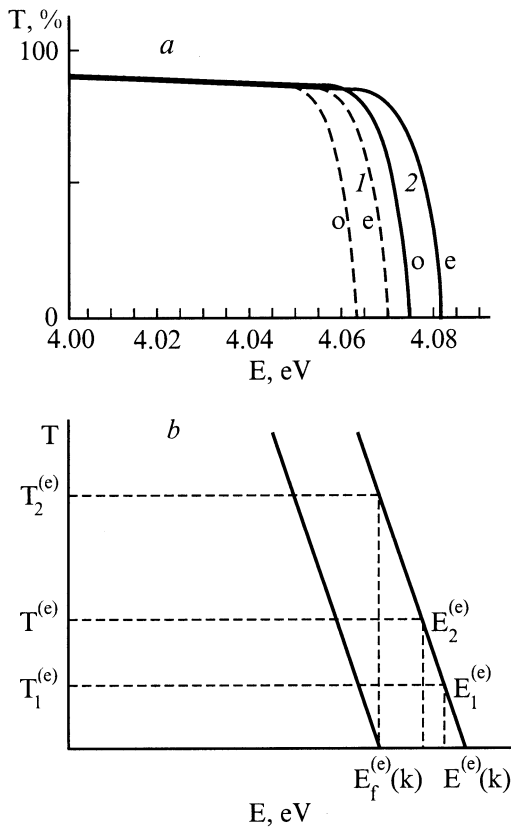


Рис. 2. Спектры пропускания поляризованного излучения: *a* — поляризованные спектры оптического пропускания образца 4, содержащего κ_2 -фазу на поверхности (1), и исходной пластины чистого ниобата лития (2); *b* — схематическая диаграмма, иллюстрирующая метод определения параметров, используемых в расчетах, с помощью соотношений (1), (2).

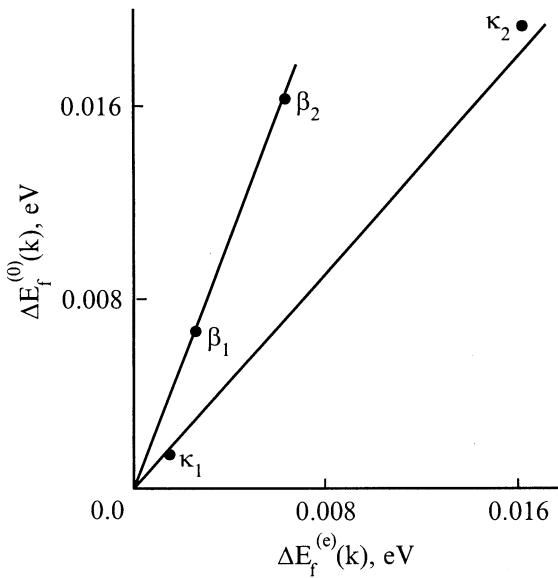


Рис. 3. Диаграмма, показывающая взаимосвязь сдвигов края полосы фундаментального поглощения $\Delta E_f^{(0)}(k)$ и $\Delta E_f^{(e)}(k)$, наблюдаемых в образцах с разными фазами на поверхности, для обыкновенной и необыкновенной поляризаций соответственно.

вались неизменными при измерениях различных образцов, то стала возможна оценка энергии E электронного осциллятора, ответственного за фундаментальное поглощение кристалла. Значения этой энергии различны для обыкновенной и необыкновенной поляризаций. Оценка значений энергии осциллятора $E_f^{(0)}$ и $E_f^{(e)}$ в спектрах фазы $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_3$ сделана в приближении гауссова профиля низкочастотного края полосы фундаментального поглощения

$$D^{(0,e)} = \alpha^{(0,e)} \exp\left\{-\frac{(E^{(0,e)} - E)^2}{(\gamma^{(0,e)}/2)^2}\right\}L,$$

$$D_f^{(0,e)} = \alpha^{(0,e)} \exp\left\{-\frac{(E_f^{(0,e)} - E)^2}{(\gamma^{(0,e)}/2)^2}\right\}2h. \quad (1a)$$

Прологарифмировав отношение $D_f^{(0,e)}/D^{(0,e)}$ для значений энергии E вблизи краев полосы фундаментального поглощения $E_f^{(0,e)}$, наблюдаемых для разных поляризаций, получим

$$E_f^{(0,e)} = E_f^{(0,e)}(k) + \left\{ \left(E^{(0,e)} - E_f^{(0,e)}(k) \right)^2 + (\gamma^{(0,e)}/2)^2 \ln \left(2hD^{(0,e)}/LD_f^{(0,e)} \right) \right\}^{1/2}, \quad (1b)$$

где $E_f^{(0,e)}(k)$ — значение энергии для наблюдаемого края полосы поглощения в спектре образца, содержащего два приповерхностных слоя f -фазы толщиной $2h$; $\gamma^{(0,e)}$ — коэффициент затухания для электронного осциллятора, определяемый экстраполяцией полученных экспериментальных данных; $D^{(0,e)}$ — значение оптической плотности в чистом ниобате лития для энергии $E_f^{(0,e)}(k)$; $D_f^{(0,e)}$ — значение оптической плотности двух слоев изучаемой f -фазы $D_f^{(0,e)} = D_f^{(0,e)}(k) - D^{(0,e)}$, где $D_f^{(0,e)}(k)$ — значение оптической плотности изучаемого образца для энергии $E_f^{(0,e)}(k)$; L — толщина кристаллической пластины (в нашем случае 1 mm); $\alpha^{(0,e)}$ — значения коэффициента поглощения в максимуме полосы фундаментального поглощения [11], т.е. при $E = E^{(0,e)}$ или $E_f^{(0,e)}$.

Значения $\gamma^{(0,e)}$ определены из измеренных спектров в приближении гауссова профиля полосы фундаментального поглощения

$$\gamma^{(0,e)} = 2 \left(\left(E_1^{(0,e)} - E_2^{(0,e)} \right) \times \left(2E^{(0,e)} - E_1^{(0,e)} - E_2^{(0,e)} \right) / \ln \left(D_1^{(0,e)}/D_2^{(0,e)} \right) \right)^{1/2}, \quad (2)$$

где $D_1^{(0,e)}$ и $D_2^{(0,e)}$ — значения оптической плотности в чистом ниобате лития для двух произвольных значений энергии $E_1^{(0,e)} > E_2^{(0,e)}$.

Из измеренных спектров следует, что $\gamma^{(0)} = 0.574$, $\gamma^{(e)} = 0.702$ eV. При расчетах применялись определенные ранее и широко используемые в настоящее время значения энергии осциллятора [11] $E^{(0)} = 6.74$ eV,

Таблица 2. Сдвиги энергии осциллятора в различных фазах по сравнению с чистым ниобатом лития

№ образца	Фаза на поверхности	Δn_e	$\Delta E_f^{(e)}$, eV	$\Delta E_f^{(0)}$, eV	$\Delta E_f^{(e)} - \Delta E_f^{(0)}$, eV
1	Чистый LiNbO ₃	0	0	0	0
2	α	0.01	0	0	0
3	κ_1	0.0645	-0.0449	-0.0362	-0.0087
4	κ_2	0.0935	-0.1098	-0.0884	-0.0214
5	β_1	0.1175	-0.0865	-0.0761	-0.0104
6	β_2	0.1100	-0.1187	-0.0924	-0.0263

$E^{(e)} = 7.08$ eV. Вычисления с помощью (1) позволили оценить величину сдвига энергии осциллятора $\Delta E_f^{(0,e)} = E_f^{(0,e)} - E^{(0,e)}$ в исследуемой фазе по сравнению с чистым ниобатом лития (табл. 2).

Необходимо отметить, что во всех фазах величина сдвига энергии осциллятора ΔE_f больше для необыкновенной поляризации, чем для обыкновенной. В то же время сдвиг наблюдаемого края полосы фундаментального поглощения $\Delta E_f(k)$ более значителен для обыкновенной поляризации. Это различие является следствием меньшей энергии осциллятора для обыкновенной поляризации, поэтому меньший сдвиг энергии дает более значительное изменение оптической плотности по сравнению со случаем необыкновенной поляризации. Соотношение между сдвигами энергии осциллятора в этих двух поляризациях согласуется с теорией [11]. Нормировка к длине пути света в исследуемой фазе, т.е. к $2h$, привела к тому, что величины $\Delta E_f^{(0,e)}$ в κ_2 -фазе меньше, чем в β_2 -фазе, хотя для величин наблюдаемого сдвига края полосы $\Delta E_f(k)$ выполняется обратное соотношение (табл. 2 и рис. 3 соответственно).

В соответствии с теорией смещения энергетических зон в кислородно-октаэдрических сегнетоэлектриках [10] наблюдаемые сдвиги энергии электронного осциллятора указывают на значительное уменьшение величины спонтанной поляризации P в $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазах по сравнению с чистым LiNbO₃. Так, известно [11,12], что изменение спонтанной поляризации P_0 на величину ΔP вызывает сдвиг энергии осциллятора $\Delta E^{(0,e)}$ на величину, определяемую соответствующей компонентой тензора эффективного поляризационного потенциала β_{ij} ,

$$\Delta E^{(e)} = \beta_{11}\Delta P P_0, \quad \Delta E^{(0)} = \beta_{12}\Delta P P_0,$$

$$\Delta E^{(e)} - \Delta E^{(0)} = \beta_{44}\Delta P P_0. \quad (3)$$

Таким образом, использование соотношения (3) позволяет оценить величину спонтанной поляризации P_f ($P_f = P_0 + \Delta P$) в исследуемой фазе из наблюдаемого сдвига энергии осциллятора. Так, использование эмпирических значений компоненты β_{11} , полученных ранее в работе [12], позволило определить величину спонтанной поляризации P_f в данной фазе по сравнению с чистым ниобатом лития (табл. 3).

Оценка относительной величины коэффициентов нелинейной восприимчивости d_f в различных фазах была

сделана с помощью следующей формулы [11]:

$$d_f/d_0 = (\beta_{11,f}P_f(E^{(e)})^3)/(\beta_{11}P_0(E_f^{(e)})^3), \quad (4)$$

где d_0 — соответствующие значения в чистом ниобате лития.

В табл. 3 представлены относительные коэффициенты нелинейной восприимчивости для различных $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фаз, рассчитанные в предположении, что эффективный поляризационный потенциал остается постоянным (т.е. $\beta_{11,f} = \beta_{11}$). Отметим, что из полученных нами данных об изменении отношения $(\Delta E_f^{(e)} - \Delta E_f^{(0)})/\Delta E_f^{(e)}$ и из данных о наблюдаемом сдвиге края полосы фундаментального поглощения (рис. 3) следует, что имеет место изменение компонент β_{12} и β_{44} тензора эффективного поляризационного потенциала. Имеющиеся данные не позволяют сделать точной оценки величины этого изменения, однако позволяют сделать однозначный вывод об относительно малой величине такого изменения, поэтому мы определяли значения только одного коэффициента нелинейной восприимчивости, используя значения β_{11} из [12] и экспериментальные данные о величинах $E_f^{(e)}$ в различных $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазах.

Необходимо отметить, что полученные выше значения P_f/P_0 и d_f/d_0 много больше наших данных, полученных из спектров ИК отражения разных фаз [13] и из прямых измерений генерации второй гармоники [7]. В связи с этим необходимо отметить, что приведенные выше вычисления позволяют оценить изменения локального отклика, тогда как прямые измерения дают информацию о суперпозиции вкладов множества локальных осцилляторов. Очевидно, что разупорядочение кристаллической

Таблица 3. Относительные величины спонтанной поляризации и коэффициентов нелинейной восприимчивости, рассчитанные из параметров спектров оптического пропускания, определяемых локальным откликом кристалла

Фаза	P_f/P_0	d_f/d_0
α	1.0	1.0
κ_1	0.907	0.924
κ_2	0.772	0.809
β_1	0.820	0.851
β_2	0.754	0.793

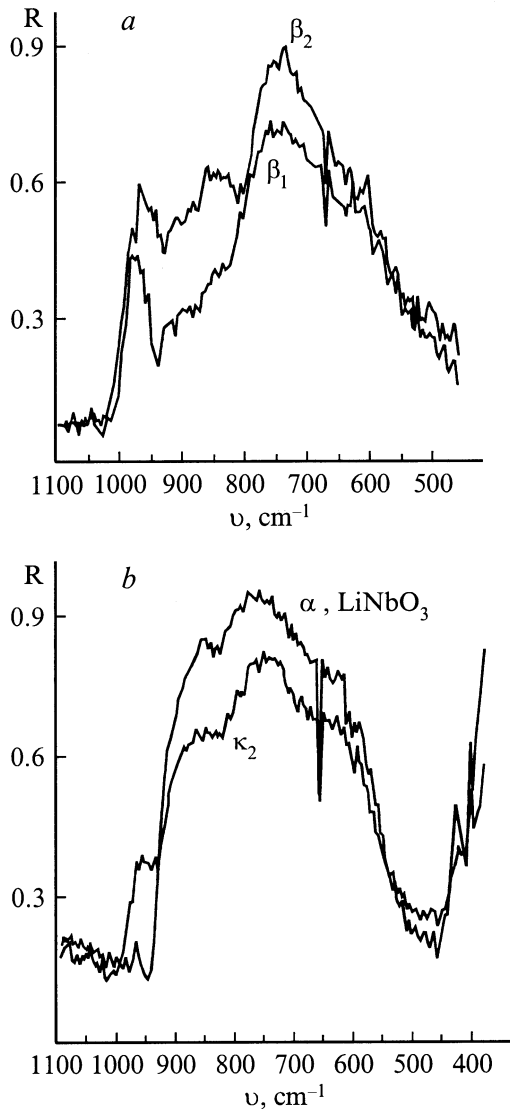


Рис. 4. Спектры ИК отражения для волноводов, содержащих различные $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы с высокой (а) и низкой (б) концентрациями протонов x .

структуры у протонированных фаз вызывает уменьшение степени когерентности локальных осцилляторов, что может привести к значительному уменьшению (и даже к исчезновению) такого интегрального отклика, измеряемого в экспериментах по прямому определению значений P_f и d_f . Действительно, разупорядочение кристаллической структуры значительно в протонзамещенных фазах, и особенно оно велико в случаях κ_2 - и β_1 -фаз. Появление значительной разупорядоченности следует из наших данных по измерению спектров ИК отражения, которые позволили определить затухание оптических фононов в различных фазах.

Спектры ИК отражения всех протонзамещенных фаз, так же как и исходного ниобата лития, имеют вид, характерный для значительных величин коэффициента затухания Γ : коэффициент отражения R достигает

максимальных значений на частотах, заметно больших частот соответствующих поперечных фононов $\omega(TO)$, эти максимальные значения R_{\max} значительно меньше единицы (рис. 4). Так, для полосы ($580-890\text{ cm}^{-1}$) в спектрах ИК отражения, соответствующей фоновой моде внутренних колебаний NbO_6 октаэдра, наблюдаются следующие значения: $R_{\max} = 0.938, 0.90, 0.85, 0.74, 0.90$ для исходного кристалла фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно. Эти значения получены на образцах X -среза. Таким образом, имеет место немонотонная зависимость R_{\max} от концентрации протонов x в $H_xLi_{1-x}NbO_3$ волноводах (рис. 5). Отметим, что величина деформации кристаллической решетки, определенная нами с помощью рентгеноструктурного анализа для всех образцов с различными фазами, связана непосредственно с концентрацией протонов и характер этой связи был установлен нами ранее [13]. В то же время хорошо известна простая корреляция [14]: меньшему значению R_{\max} соответствует большее значение Γ . К сожалению, уравнение, выражающее точную аналитическую связь между этими параметрами, включает также ряд неопределимых параметров. Однако существует простая аналитическая зависимость величины коэффициента отражения $R(\omega(TO))$ на частоте поперечного фонона от коэффициента затухания Γ этого фонона [14]. Используя эту зависимость, мы получили следующее соотношение для определения Γ в исследуемой фазе:

$$\Gamma_f = \Gamma_0 \left(\left\{ 1 - R_f(\omega_f(TO)) \right\}^2 \times \omega_0(TO) \right) / \left(\left\{ 1 - R_0(\omega_0(TO)) \right\}^2 \omega_f(TO) \right), \quad (5)$$

где f и 0 — индексы, обозначающие параметры исследуемой фазы и исходного ниобата лития соответственно.

Значение $\Gamma_0 = 15\text{ cm}^{-1}$ взято из литературных данных [15], а значения всех остальных параметров определялись нами из соответствующих спектров ИК отражения.

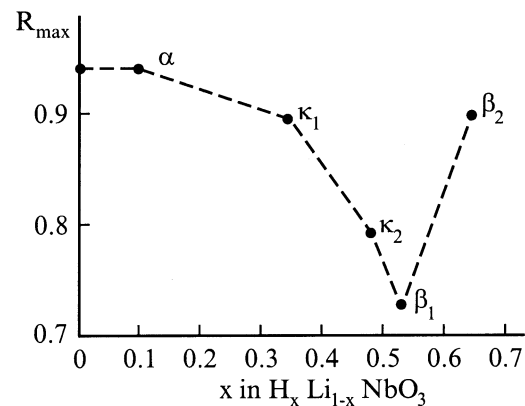


Рис. 5. Зависимость максимального значения коэффициента отражения R_{\max} , наблюдаемого в полосе остаточных лучей $580-890\text{ cm}^{-1}$, от относительной концентрации протонов x в $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазах. Данная полоса соответствует моде оптических фононов для внутренних колебаний NbO_6 октаэдра.

Так, для исследованных нами образцов были получены следующие значения: $R_f(\omega_f(TO)) = 0.79, 0.76, 0.65, 0.56$ и 0.68 для фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно; $R_0(\omega_0(TO)) = 0.79$ для исходного конгруэнтного плавящегося ниобата лития. Из полученных экспериментальных данных в соответствии с (5) следует, что коэффициент затухания Γ_f имеет различные значения: $15, 19, 38, 59.5$ и 28.4 см^{-1} для фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно.

Известно [16], что увеличение коэффициента затухания Γ оптических фононов непосредственно обусловлено ростом степени разупорядоченности структуры, т.е. Γ обратно пропорционально среднему радиусу корреляции структуры R_c : $\Gamma \sim a/(\pi R_c)$, где π/a — радиус первой зоны Бриллюэна, $1/R_c$ — вектор корреляции в обратном пространстве. Учитывая, что вклад в затухание оптических фононов, обусловленный ангармоничностью соответствующих колебаний и зависящий от температуры [17,18], также объясняется уменьшением степени коррелированности структуры дальнего порядка, т.е. уменьшением R_c [16], мы получили следующее соотношение:

$$(R_c)_f/(R_c)_0 \sim \Gamma_f/\Gamma_0. \quad (6)$$

Отметим, что в используемых нами конгруэнтно плавящихся кристаллах сравнительно большее значение Γ_0 обусловлено большой концентрацией (5.7–6 mol%) таких собственных дефектов, как литиевые вакансии и антиструктурные дефекты Nb_{Li} [17,18], т.е. значение R_c ограничено в значительной мере нарушением дальнего порядка за счет сравнительно малого среднего междефектного расстояния.

Полагая, что когерентная длина L_c , на которой сохраняется фазовое согласование вторичных волн в нелинейном кристалле, равна R_c , мы можем оценить величину дополнительного фактора F , уменьшающего интенсивность интегрального отклика в экспериментах по генерации второй гармоники за счет потери степени когерентности локальных откликов при их суперпозиции. Согласно [19], $F \sim 1(L_c)^2$, поэтому мы можем оценить непосредственно из данных ИК спектроскопии только величину относительного измерения F при сравнении разных фаз. Для оценки величины F_f/F_0 мы использовали соотношение

$$F_f/F_0 = (\Gamma_f/\Gamma_0)^2. \quad (7)$$

Подстановка в (7) полученных из спектров ИК отражения значений Γ_f и Γ_0 дает, что $F_f/F_0 = 1, 1.6, 6.4, 15.7$ и 3.58 для фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно. Это означает, что эффективное значение коэффициента нелинейной восприимчивости $(d_f)_{\text{эф}}$, определяемое из прямых измерений ГВГ в различных фазах, может быть много меньше величины d_f , определяемой спектроскопическими методами и характеризующей локальный нелинейно-оптический отклик. Отношение между этими значениями равно

$$(d_f)_{\text{эф}}/d_f = 1/F_f. \quad (8)$$

Таблица 4. Значения коэффициентов нелинейной восприимчивости для интегрального нелинейно-оптического отклика, рассчитанные с учетом полученных в работе данных о разупорядоченности кристаллической структуры различных $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_3$ фаз (для сравнения даны значения, полученные из экспериментальных измерений генерации второй гармоники)

Фаза	d_f/d_0	
	эксперимент	расчет
α	1.0	1.0
κ_1	—	0.73
κ_2	—	0.28
β_1	0.1	0.12
β_2	0.55	0.5

Для оценки абсолютных величин фактора F_f была использована калибровка по значению величины $(d_f)_{\text{эф}}$ для β_2 -фазы, полученному из прямых измерений ГВГ в протонзамещенных волноводах [4]. Это дало следующие результаты: 1) при использовании значений d_f для локального отклика в β_2 -фазе, полученных нами ранее [12] из данных ИК спектроскопии: $F_f = 1, 1.23, 2.50, 6.12$ и 1.40 для фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно; 2) при использовании значений d_f для локального отклика в β_2 -фазе, полученных нами из величины сдвига края полосы фундаментального поглощения: $F_f = 1, 1.27, 2.88, 7.07$ и 1.59 для фаз $\alpha, \kappa_1, \kappa_2, \beta_1$ и β_2 соответственно.

В табл. 4 представлены экспериментальные и рассчитанные с учетом разупорядоченности кристаллической структуры величины коэффициентов нелинейной восприимчивости. Эти данные убедительно показывают, что учет фактора разупорядоченности кристаллической структуры при расчетах интегрального нелинейно-оптического отклика позволяет получить хорошее соответствие с экспериментальными данными о нелинейно-оптических свойствах $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{NbO}_3$ волнопроводов. Таким образом, предложен эффективный метод расчета изменений спонтанной поляризации и коэффициентов нелинейной восприимчивости в протонообменных волноводах в LiNbO_3 , использующий экспериментальные данные о сдвиге края фундаментального поглощения для лучей различной поляризации и данные спектроскопии ИК отражения. Метод может быть использован для анализа свойств и других сегнетоэлектрических кристаллов.

Заключение

Установлено, что разупорядочение кристаллической структуры является доминирующей причиной различия между интегральным и локальным нелинейно-оптическими откликами для протонообменных LiNbO_3 волнопроводов. Таким образом, значительная зависимость нелинейно-оптических свойств этих волнопроводов от их фазового состава имеет два механизма: 1) изменение

энергии локальных электронных осцилляторов; 2) нарушение когерентности вкладов локальных осцилляторов в интегральный нелинейно-оптический отклик, обусловленное разупорядочением кристаллической структуры данной $H_xLi_{1-x}NbO_3$ фазы.

Данная работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 96-15-96978 и 99-15-96110 для молодых докторов наук и грант № 961598220 — для ведущих научных школ) по программе "Российские университеты — фундаментальные исследования" (грант № 248-1998) и выполнялась в рамках проекта А-102 ФЦП "Интеграция".

Список литературы

- [1] *Jackel J.L., Rice C.E., Veselka J.J.* // Appl. Phys. Lett. 1982. Vol. 41. P. 607–608.
- [2] *Коркишко Ю.Н., Федоров В.А.* // Кристаллография. 1999. Т. 44. № 2. С. 237–246.
- [3] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A.* // IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron. 1996. Vol. 2. P. 187–196.
- [4] *Коркишко Ю.Н., Федоров В.А.* // ЖТФ. 1999. Т. 69. Вып. 3. С. 47–57.
- [5] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A., De Micheli M.P.* et al. // Appl. Opt. 1996. Vol. 35. P. 7056–7060.
- [6] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A.* // Cambridge Intern. Sci. Publ. 1999. P. 97–269.
- [7] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A., Laurell F.* // IEEE J. Sel. Topics Quant. Elect. 2000. Vol. 5. P. 101.
- [8] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A., Feoktistova O.Y.* // IEEE J. Lightwave Technology. 2000. Vol. 18. P. 562.
- [9] *White J.M., Heidrich P.F.* // Appl. Opt. 1976. Vol. 15. P. 151–155.
- [10] *Ганьшин В.А., Коркишко Ю.Н., Федоров В.А.* // Кристаллография. 1995. Т. 40. № 2. С. 341–349.
- [11] *Кузьминов Ю.С.* Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. М.: Наука, 1982. 400 с.
- [12] *Fradkin V.M., Kochev K.D., Kusminov Yu.S.* et al. // Phys. St. Sol. 1976. Vol. 33. P. K137.
- [13] *Korkishko Yu.N., Fedorov V.A., Kostrikskii S.M.* // J. Appl. Phys. 1998. Vol. 84. P. 2411.
- [14] *Пуле Ж.-П. Матье.* Колебательные спектры и симметрия кристаллов. М.: Мир, 1973. 437 с.
- [15] *Kaminow I.P., Johnston W.D.* // J. Phys. Rev. 1967. Vol. 160. P. 519.
- [16] *Vogt H.* // J. Phys. Condens. Matter. 1991. Vol. 3. P. 3697.
- [17] *Kojima S.* // Jap. J. Appl. Phys. 1993. Vol. 32. P. 4373.
- [18] *Schwarz U.T., Maier M.* // Phys. Rev. 1997. Vol. B55. P. 11 041.
- [19] *Miller R.C.* // J. Phys. Soc. Japan. 1970. Vol. 28. P. 15.