

Структуры, обеспечивающие квазисинхронизм при генерации второй гармоники в $\text{BaTiO}_3 : \text{Fe}$

© Э.В. Бурсиан, В.Г. Залесский

Российский государственный педагогический университет,
191186 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Erik.Bursian@altavista.net

(Поступила в Редакцию 12 октября 1998 г.)

Генерация второй световой гармоники в кристалле BaTiO_3 с примесью железа происходит преимущественно под углом около 7° к падающему излучению $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$. В работе показано, что квазисинхронизм обеспечивается 90-градусной доменной структурой с пространственным волновым вектором $\mathbf{q} \parallel [011]$ и пространственным периодом около $3 \mu\text{m}$. Результат может служить основой для объяснения аномального усиления генерации второй гармоники в области фазового перехода.

В работах [1,2] было замечено, что получаемое в титанате бария после удвоения частоты излучение ($0.532 \mu\text{m}$) имеет характерное распределение по углам рассеяния. Максимум излучения получается не в направлении падающего излучения \mathbf{k}^ω , а под небольшим углом к этому направлению.

Кроме того, было обнаружено существенное увеличение эффективности генерации второй гармоники (ГВГ) при нагревании через фазовый переход в кубическую фазу и еще более существенное (в несколько раз) — при обратном ходе, т.е. при охлаждении через переход. ГВГ в титанате бария обусловлена наличием спонтанной поляризации \mathbf{P}_s и, казалось бы, с уменьшением \mathbf{P}_s при приближении к переходу интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$ должна убывать, поэтому обнаруженную температурную зависимость следует считать аномальной [3].

Известно [4], что на длине волны АИГ-лазера показатели преломления BaTiO_3 (на комнатной температуре — одноосный кристалл симметрии $4mm = C_{4v}$) и модули волнового вектора имеют значения, указанные в таблице.

Так что естественного направления волнового синхронизма в BaTiO_3 нет. Поэтому еще в 1964 г. Miller [5] предложил использовать искусственно создаваемые электрическим полем периодические структуры из антипараллельных доменов.

В последующем для сегнетоэлектриков был найден ряд естественных (существующих без приложения поля) структур, обеспечивающих сохранение импульса $\mathbf{k}^{2\omega} = 2\mathbf{k}^\omega + \mathbf{q}$, где \mathbf{q} — волновой вектор таких структур [6–10]. Титанат бария — сегнетоэлектрик со сложным доменным рисунком. Задачей данной работы было выяснение того, какая именно структура обеспечивает квазисинхронизм. В сообщении показывается, что ГВГ достаточно большой интенсивности в кристаллах BaTiO_3 с примесью железа происходит за счет естественной структуры с 90-градусными стенками.

Кристаллические пластинки выращивались методом Ремейка и содержали примесь Fe (1 весовой процент в шихте при выращивании). Они вырезались в соответствии с кристаллографическими направлениями типа [100] в кубической фазе и имели толщину 0.2 mm.

Образец освещался несфокусированными импульсами от АИГ-лазера ($\lambda = 1.064 \mu\text{m}$). Длительность импульсов равнялась 18 ns, энергия в одном импульсе была в пределах 40 mJ с нестабильностью порядка 10%. Диаметр пучка — порядка 3 mm. Электрическое поле к кристаллу не прикладывалось.

На рис. 1 показано распределение интенсивности второй гармоники $I^{2\omega}$ от углов φ и θ , полученное в результате компьютерной обработки сигнала при сканировании перемещающимся детектором. Во всех случаях диаграмма направленности содержала два максимума, расположенные вдоль направления, которое на рис. 2 условно обозначено через \mathbf{Q} , под углами $(7 \pm 1)^\circ$ к направлению падающего излучения \mathbf{k}^ω . При повороте кристалла вокруг падающего луча угловое распределение $I^{2\omega}(\varphi, \theta)$ меняется так, что линия \mathbf{Q} , соединяющая горбы, поворачивается вместе с кристаллами на тот же угол. Высота максимумов в случае b примерно в 2 раза больше, чем в случае a . При малом повороте кристалла вокруг оси 1 (рис. 2, a) один из максимумов уменьшается, а другой растет.

При рассеянии слабого непрерывного излучения частоты 2ω (т.е. без преобразования $\omega \rightarrow 2\omega$) на экране получается полоса, параллельная \mathbf{Q} . Никаких максимумов при углах $5-10^\circ$ на ней не наблюдается.

Свет лазера был поляризован, направление колебаний электрического вектора показано на рис. 2. Оказалось, что поляризация второй гармоники в случаях a и b параллельна линии \mathbf{Q} , соединяющей горбы, а при повороте кристалла на угол, отличный от 90° , излучение 2ω поляризовано эллиптически.

Для интерпретации существенна симметрия тензора оптической нелинейности d_{ijk} в уравнении для амплитуды

Показатели преломления и значения волновых векторов для BaTiO_3 при комнатной температуре

$\lambda, \mu\text{m}$	n_o	n_e	$k_o, \mu\text{m}^{-1}$	$k_e, \mu\text{m}^{-1}$
1.064	2.3379	2.2970	13.81 ± 0.01	13.56
0.532	2.4760	2.4128	29.24	28.50

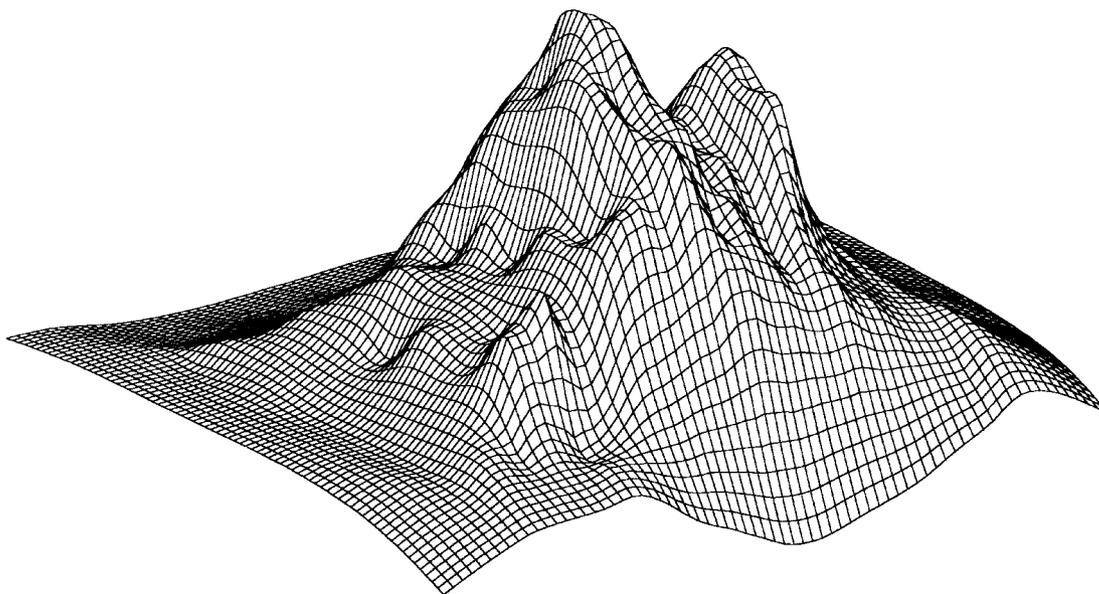


Рис. 1. Распределение интенсивности второй гармоники по углам рассеяния. Угловое расстояние между максимумами около $14-15^\circ$.

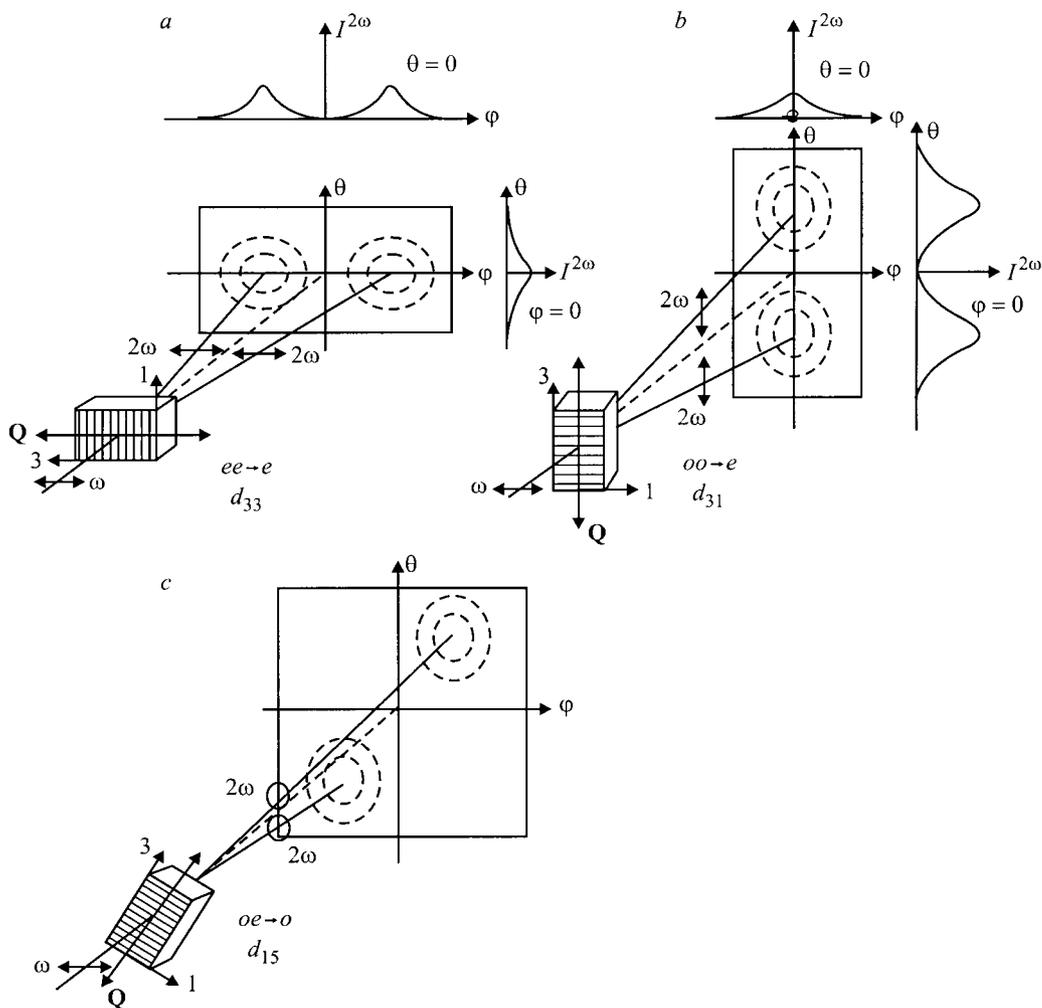


Рис. 2. Геометрия опытов по исследованию углового распределения $I^{2\omega}$ при различных ориентациях кристалла по отношению к падающему лучу.

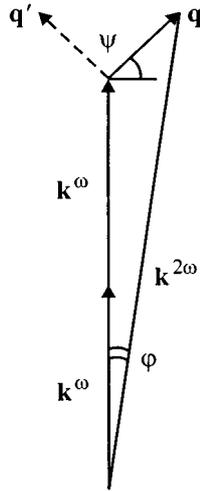


Рис. 3. Сохранение импульса при ГВГ.

ды поля второй гармоники

$$E_i^{2\omega} \sim d_{ijk} E_j^\omega E_k^\omega. \quad (1)$$

Тензор d_{ijk} аналогичен тензору пьезоэффекта и после свертывания значков имеет для симметрии $4mm$ отличными от нуля только элементы $d_{15} = d_{24}$, $d_{31} = d_{32}$ и d_{33} . Направление 3 выбирается параллельно оптической оси. Согласно [4], для титаната бария в тетрагональной фазе $d_{31} = -19.33 \cdot 10^{-12} \text{ м/В}$, $d_{33} = -7.79 \cdot 10^{-12} \text{ м/В}$ и $d_{15} = 17.85 \cdot 10^{-12} \text{ м/В}$. На рис. 2 показаны соответствующие геометрии при направлении спонтанной поляризации \mathbf{P}_s (одновременно оптической оси), перпендикулярном падающему лучу \mathbf{k}^ω . Случай $\mathbf{P}_s \parallel \mathbf{k}^\omega$ не рассматривается, так как при этом $\mathbf{E}^{2\omega}$ не возникает по симметрии.

Направление оптической оси (\mathbf{P}_s) можно определить из того факта, что d_{31} примерно в 2 раза больше d_{33} . Поскольку эффективность генерации в случае b на рис. 2 больше, спонтанная поляризация направлена всегда вдоль \mathbf{Q} .

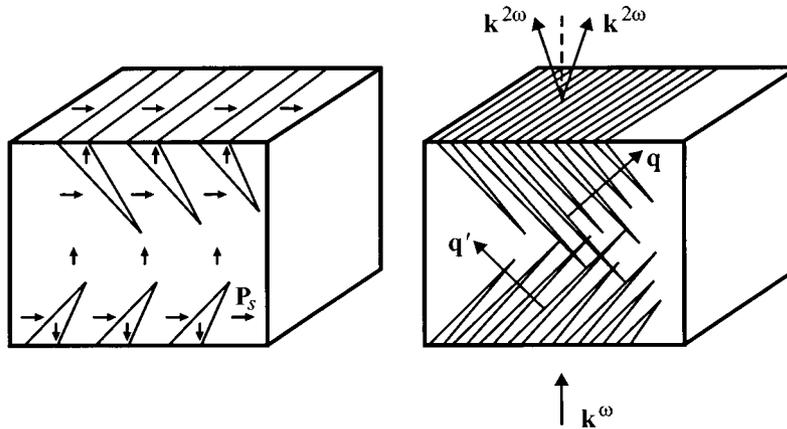


Рис. 4. Наиболее вероятная доменная структура, обеспечивающая квазисинхронизм в кристаллах $\text{BaTiO}_3 : \text{Fe}$.

Таким образом, геометрия a на рис. 2 соответствует случаю, когда необыкновенный луч второй гармоники (e) рождается за счет необыкновенного луча (ee) первой гармоники и соответствует коэффициенту $d_{333}(d_{33})$. Две другие геометрии соответствуют схемам $(oo) \rightarrow e$ (d_{31}) и $(oe) \rightarrow o$ (d_{15}). В последнем случае работают также составляющие \mathbf{E}^ω по осям 1 и 3, т.е. коэффициенты d_{31} и d_{33} , что ведет к эллиптической поляризации генерируемого луча.

Преимущественное рассеяние на угол 7° (в веществе — на $7^\circ/n \approx 3^\circ$) означает участие в процессе вектора \mathbf{q} (в соответствии с рис. 3). Угол ψ может быть найден из соотношения

$$\psi = \arctg \frac{k^{2\omega} - 2k^\omega}{2k^\omega \varphi}. \quad (2)$$

При использовании приведенных выше данных для геометрии a на рис. 2 получается $\psi \approx 41^\circ$, а для геометрии b — $\psi \approx 54^\circ$. Вероятно, расхождение связано с погрешностью эксперимента и неточностью данных для n^ω и $n^{2\omega}$. Так что, по-видимому, вектор структуры \mathbf{q} направлен под углом к поверхности кристалла, близким к 45° . Скорее всего, это структура связана с периодическим (и с большой пространственной частотой) расположением 90-градусных стенок (рис. 4). Такая структура в титанате бария часто встречается. Острые клинья в a -доменной пластине с нормальной к поверхности поляризации зарождаются обычно у поверхности под действием всегда существующего там электрического поля. Из рис. 3 можно видеть, что период этой структуры $\Lambda = 2\pi/q = 2\pi/[(k^{2\omega} - 2k^\omega)\sqrt{2}] \approx 2 - 3 \mu\text{м}$.

Судя по размытости пиков на рис. 1, разброс по q достаточно велик и спектр q почти сплошной, однако механизм ГВГ автоматически выбирает ту пространственную фурье-компоненту из доменной структуры типа рис. 4, которая нужна для квазисинхронизма, хотя частично использует и близкие к ней компоненты.

Естественен вопрос: является ли эта структура стационарной или она образуется только под действием сильного поля лазерного импульса? Вообще говоря, в сегнетоэлектриках наведенные лазерным светом структуры наблюдаются (см. [11], а также серию недавних работ [12,13]). Чтобы ответить на поставленный вопрос, мы предприняли специальные опыты с изменением амплитуды E^ω . Уменьшение E^ω до порога генерации второй гармоники, а также варьирование общей дозы облучения (числа световых импульсов, направляемых в одну область кристалла) не дало никаких новых результатов, что говорит о стационарности этой структуры при комнатной температуре. При повышенных температурах это, по-видимому, не так, что как-то связано с аномально большой величиной $I^{2\omega}$ вблизи фазового перехода. Однако этот вопрос еще не полностью изучен.

Авторы признательны В.В. Маслову, В.В. Рычгорскому и А.А. Лещеву за обсуждение результатов.

Работа поддержана РФФИ (грант № 98-02-17934), которому авторы приносят благодарность.

Список литературы

- [1] Э.В. Бурсиан, В.Г. Залесский, А.А. Лужков, С.А. Флерова. Международная конференция по физике твердых диэлектриков "Диэлектрики-97". СПб. 1997. Тез. докл. **2**, 137 (1997).
- [2] Э.В. Бурсиан, В.Г. Залесский, А.А. Лужков, В.В. Маслов. Письма в ЖЭТФ **64**, 4, 247 (1996).
- [3] В.Г. Залесский, В.В. Маслов, Э.В. Бурсиан. Изв. РАН. Сер. физ. **60**, 10, 63 (1996).
- [4] S. Singh. Handbook of Lasers / Ed. R.J. Pressley. The Chemical Rubber Co. Cleveland (1971). P. 489.
- [5] R.C.A. Miller. Phys. Rev. **134**, 5A, A1313 (1964).
- [6] D. Weinmann, H. Vogt. Phys. Stat. Sol. (a) **23**, 2, 463 (1974).
- [7] А.М. Арутюнян, Б.В. Бржезина, С.Х. Есаян, В.В. Леманов. ФТТ **24**, 5, 1434 (1982).
- [8] С.Х. Есаян, А.В. Китык, В.В. Леманов. ФТТ **29**, 5, 1554 (1987).
- [9] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, R.L. Byer. IEEE J. of QE. **28**, 11, 2631 (1992).
- [10] В.П. Моисеенко, И.И. Петерс, В.И. Пастухов, В.Н. Шарайчук. Изв. АН СССР. Сер. физ. **55**, 5, 1033 (1991).
- [11] С.В. Барышников, Э.В. Бурсиан, Я.Г. Гиршберг, В.А. Ляховицкая, В.В. Маслов. ФТТ **26**, 6, 1872 (1984).
- [12] А.К. Попов, В.В. Кимберг. Квантовая электрон. **25**, 3, 236 (1998).
- [13] А.В. Голенищев-Кутузов, Р.И. Калимуллин. ФТТ **40**, 3, 531 (1998).