

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ им. А.Ф. ИОФФЕ

На правах рукописи

Павлов Виктор Владимирович

**НЕЛИНЕЙНЫЕ МАГНИТООПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ
В КРИСТАЛЛАХ И ПЛЕНКАХ**

Специальность 01.04.07 - физика конденсированного состояния

А в т о р е ф е р а т
диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Санкт-Петербург

2006

Работа выполнена в Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе
Российской Академии Наук

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук,
профессор

А.К. Звездин

доктор физико-математических наук,
профессор

М.П. Петров

доктор физико-математических наук,
профессор

С.А. Немов

Ведущая организация:

Санкт-Петербургский Государственный Университет

Защита состоится “ ____ ” _____ 2007 г. в ____ часов на заседании диссертационного совета Д 002.205.01 при Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе РАН по адресу:
194021, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., д. 26.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке
Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

Автореферат разослан “ ____ ” _____ 2007 г.

Ученый секретарь диссертационного
совета Д 002.205.01
кандидат физико-математических наук

А.А. Петров

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Изучение физических свойств магнитоупорядоченных соединений является одним из основных направлений современной физики твердого тела. Это обусловлено как фундаментальными научными проблемами магнетизма, так и широким использованием магнитных материалов в технике. Большое внимание уделяется оптическим исследованиям магнитоупорядоченных диэлектриков и полупроводников. За последние десятилетия выполнен большой объем работ по линейной оптической спектроскопии магнетиков, магнитооптическим явлениям при отражении и прохождении света. Тем не менее, в оптических исследованиях магнитоупорядоченных соединений остается значительный круг проблем, которые не были решены в прошлом. Это область исследований включает нелинейные оптические явления, связанные с магнитоупорядоченным состоянием вещества или внешним магнитным полем.

Хорошо известно, что возникновение магнитного порядка в твердом теле, которое может быть описано как нарушение операции обращения времени R , приводит к появлению линейных магнитооптических явлений. Это известные магнитооптические эффекты — эффект Фарадея при прохождении света через намагниченную среду и эффект Керра при отражении света от намагниченной поверхности. В случае нелинейной оптики, эффекты четного порядка, могут быть разрешены в электродипольном приближении только при нарушении операции пространственной инверсии I . Возникновение магнитного порядка в нецентросимметричной среде приводит к появлению совершенно новых нелинейных оптических явлений.

Нелинейные оптические явления играют важную роль в современной физике и технике, поскольку они используются в квантовых приборах, работающих на основе оптического параметрического преобразования света, генерации суммарной или разностной частоты. За последние десять-пятнадцать лет наблюдался возрастающий интерес к нелинейным оптическим процессам в магнитоупорядоченных кристаллах, тонких пленках и наноструктурах [1–4], что привело фактически к формированию нового научного направления в физике твердого тела, связанного с изучением нелинейных магнитооптических явлений. Одной из причин этого стало изобретение и достаточно широкое использование лазеров, способных генерировать импульсы длительностью 100 fs и менее. Ис-

пользование таких лазеров позволило проводить неразрушающие нелинейные оптические исследования магнитных материалов. В силу высокой пиковой интенсивности фемтосекундных импульсов при небольшой средней мощности излучения стало возможным использование этих лазеров для зондирования магнитных поверхностей и интерфейсов, имеющих малые величины оптических нелинейностей.

Генерация второй оптической гармоники (ГВГ) является нелинейным процессом второго порядка, что обуславливает важные особенности этого метода при изучении конденсированного состояния вещества. Нелинейная спектроскопия с использованием ГВГ позволяет получать дополнительную или качественно новую информацию при изучении электронной структуры твердых тел по сравнению с исследованиями методами линейной оптики. Это связано с различием правил отбора для однофотонных и многофотонных процессов. Чем более высок порядок процесса взаимодействия излучения с веществом, тем более детальную информацию можно получить о кристаллической, электронной и магнитной структурах. Широкое использование перестраиваемых лазеров и оптических параметрических генераторов позволило эффективно использовать спектроскопические возможности метода ГВГ. Этот метод позволяет зондировать электронные состояния, находящиеся по энергии как в области $d-d$ переходов внутри незаполненной оболочки, так и в области фундаментального поглощения, и поэтому являющиеся труднодоступными для линейных оптических методик. Достаточно уникальной возможностью метода ГВГ является определение сложных магнитных структур — установление их точечных и пространственных магнитных групп, проведение визуализации 180-градусных антиферромагнитных доменов, неразличимых методами линейной оптики. Таким образом, использование метода ГВГ обеспечивает новую фундаментальную информацию о нелинейных оптических свойствах, электронных и магнитных структурах твердых тел, получение которой другими методами затруднительно или невозможно. Все эти аспекты определяют актуальность темы диссертации.

Проведенные исследования в рамках диссертации были включены в российские научные проекты, в том числе поддерживаемые Российским фондом фундаментальных исследований, и международные программы совместного сотрудничества.

Целью работы является экспериментальное исследование и выявление физических механизмов новых нелинейных магнитооптических явлений в магнитоупорядоченных диэлектриках, пленочных структурах, диа- и парамагнитных полупроводниках. В качестве объектов исследования были выбраны следующие объемные кристаллы и пленочные структуры: редкоземельные гексагональные манганиты $RMnO_3$ ($R = Sc, Y, Ho, Er, Tm, Yb, Lu$), антиферромагнетики CoO, NiO и $KNiF_3$, гадолиниевый ферроборат $GdFe_3(BO_3)_4$, полупроводники $GaAs, CdTe$ и $(Cd,Mn)Te$, редкоземельные пленки ферритов-гранатов и эпитаксиальные пленки $MnAs$ на поверхности кремния.

В рамках решения общей фундаментальной проблемы были сформулированы конкретные научные задачи, связанные с исследованием актуальных, как с точки зрения фундаментальных свойств, так и в прикладном значении, объектов на каждом этапе выполнения работы. Эти задачи определяются состоянием проблемы и описаны в соответствующих главах диссертации для каждого класса исследованных материалов. Все результаты и выводы работы являются оригинальными.

Научная новизна работы заключается в решении конкретных задач:

1. Исследование новых нелинейных магнитооптических явлений в пленочных материалах, обладающих спонтанной намагниченностью; изучение температурных, спектральных и полевых зависимостей индуцированного намагниченностью вклада в ГВГ; развитие метода вращательной анизотропии интенсивности ГВГ и его использование для исследования анизотропных свойств магнитного и кристаллографического вкладов в нелинейный оптический сигнал, разделения двух этих типов оптических нелинейностей и установления роли нелинейной оптической интерференции; выявление таких явлений, как нелинейное оптическое вращение и магнитный дихроизм.

2. Изучение спектральных характеристик, температурного поведения и анизотропных свойств оптических нелинейностей нового типа в антиферромагнитно упорядоченных кристаллах; установление роли электродипольного и магнитодипольного механизмов для формирования таких нелинейностей; изучение методом ГВГ магнитных фазовых переходов в данном классе материалов.

3. Изучение сложных неколлинеарных магнитных структур в редкоземельных манганитах $RMnO_3$ ($R = Sc, Y, In, Ho, Er, Tm, Yb$ и Lu) методом

ГВГ, установление характера антиферромагнитного упорядочения ионов трехвалентного марганца Mn^{3+} , определение точечных и пространственных магнитных групп этих соединений; визуализация антиферромагнитных доменных состояний нелинейным оптическим методом.

4. Исследование индуцированных магнитным полем вкладов в генерацию второй оптической гармоники в модельных диа- и парамагнитных полупроводниках GaAs, CdTe и (Cd,Mn)Te; изучение индуцированных полем нелинейностей в широком интервале температур и магнитных полей; установление роли орбитального и спинового квантования для формирования таких нелинейностей; выявление роли других возможных механизмов оптических нелинейностей, отличных от электродипольного механизма.

Учитывая актуальность изучения нелинейных магнитооптических явлений в магнитоупорядоченных, пара- и диамагнитных средах, по инициативе Р. В. Писарева в ФТИ им. А. Ф. Иоффе в 90-е годы автором работы были начаты исследования данного класса явлений. Для реализации этой задачи был применен метод генерации второй оптической гармоники. Этот сравнительно простой метод исследования позволяет изучать оптические нелинейности, связанные с магнитным параметром порядка или внешним магнитным полем в широком спектральном, поле-вом и температурном диапазонах. Использование охлаждаемой камеры на основе прибора с зарядовой связью (ПЗС) позволяет эффективно исследовать локальные области различных классов материалов — магнитные, антиферромагнитные и сегнетоэлектрические домены, кристаллографические двойники и другие выделенные пространственно особенности кристаллографической и магнитной структуры. В результате этой деятельности, представленной в данной диссертационной работе, в ФТИ им. А. Ф. Иоффе за последнее десятилетие было развито новое направление — нелинейная магнитооптика магнитоупорядоченных кристаллов и структур.

Основные научные положения, выносимые на защиту:

1. Обнаружен объемный, индуцированный намагниченностью вклад в генерацию второй оптической гармоники в эпитаксиальных пленках ферритов-гранатов. Установлены различные типы анизотропии интенсивности ГВГ в пленках гранатов с различной кристаллографической ориентацией. На основе метода вращательной анизотропии про-

ведено разделение магнитного и кристаллографического вкладов в ГВГ. Обнаружены новые нелинейные магнитооптические явления в пленках ферритов-гранатов — нелинейное оптическое вращение и магнитный дихроизм, которые являются линейными функциями намагниченности. Показано, что эти явления связаны с интерференцией кристаллографического и индуцированного намагниченностью вкладов в электрическую поляризацию на удвоенной частоте. Проведен подробный феноменологический анализ наблюдаемых оптических явлений.

2. Методом ГВГ в редкоземельных гексагональных манганитах RMnO_3 ($R = \text{Sc}, \text{Y}, \text{In}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}$ и Lu) выявлены два типа оптических нелинейностей, которые однозначно связаны с сегнетоэлектрическим и антиферромагнитным параметрами порядка. Вклады в ГВГ, определяемые этими нелинейностями, характеризуются различными спектральными, поляризационными и температурными зависимостями. Выявлены $d-d$ состояния ионов Mn^{3+} в пятикратном бипирамидальном кислородном окружении, ответственные за наблюдаемые электронные переходы в сегнетоэлектрическом и антиферромагнитном спектрах ГВГ.

3. В редкоземельных манганитах RMnO_3 ($R = \text{Sc}, \text{Y}, \text{In}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}$ и Lu) определены магнитные точечные группы методом ГВГ. Установлено, что спины Mn^{3+} лежащие в базисной плоскости xy , могут иметь различную ориентацию по отношению к гексагональным осям x и y и могут поворачиваться при изменении температуры в зависимости от типа редкоземельного иона. В HoMnO_3 и LuMnO_3 ниже температуры Нееля методом ГВГ наблюдались спонтанные реориентационные фазовые переходы, связанные с вращением спинов в плоскости xy .

4. Обнаружен сильный магнитодипольный вклад во вторую оптическую гармонику в centrosymmetric модельных диэлектриках-антиферромагнетиках NiO , CoO , KNiF_3 . Установлено, что существенное усиление магнитодипольного вклада в ГВГ вызвано монофотонным резонансом в спектральной области первого $d-d$ электронного перехода ${}^3\Gamma_2^+ \rightarrow {}^3\Gamma_5^+$ (NiO , KNiF_3) и ${}^4\Gamma_4^+ \rightarrow {}^4\Gamma_5^+$ (CoO).

5. Впервые получены изображения доменных структур для антиферромагнетиков RMnO_3 , NiO , связанных с магнитным параметром порядка. Таким образом продемонстрирована уникальная возможность метода генерации второй оптической гармоники для визуализации с высоким контрастом антиферромагнитных доменных состояний, неразличи-

мых методами линейной оптики.

6. Обнаружена индуцированная магнитным полем генерация второй оптической гармоники в диамагнитных полупроводниках GaAs и CdTe. Установлено, что механизм орбитального квантования с возникновением уровней Ландау является ответственным за наблюдаемое нелинейное магнитооптическое явление. Индуцированная нелинейная поляризация является линейной функцией магнитного поля. Индуцированный магнитным полем вклад в ГВГ обусловлен не только электродипольным вкладом в нелинейную поляризацию, но и в значительной мере вкладом, связанным с нелинейной магнитооптической пространственной дисперсией. Наличие такого вклада доказано по исследованию анизотропии интенсивности ГВГ.

7. Обнаружена индуцированная магнитным полем генерация второй оптической гармоники в парамагнитных полупроводниках $Cd_{1-x}Mn_xTe$ с различной концентрацией ионов Mn^{2+} ($x=0.03-0.28$). Показано, что механизм спинового квантования является основным и связан с проявлением гигантского эффекта Зеемана. Полевая зависимость интенсивности ГВГ позволяет четко идентифицировать механизм спинового квантования для парамагнитных полупроводников. Обнаружены линии в спектрах ГВГ, которые можно связать с переходами с изменением проекции суммарного углового момента на величину ± 2 . Таким образом продемонстрировано, что генерация второй оптической гармоники позволяет зондировать электронные переходы, которые являются невозбуждаемыми в случае линейной оптики в силу правил отбора.

Практическая ценность работы:

— Продемонстрирован эффективный метод изучения нелинейных оптических явлений второго и более высоких порядков. Этот метод позволяет получать информацию о спектральных, температурных и полевых характеристиках оптических нелинейностей, разделять кристаллографический и индуцированный магнитным порядком или внешним магнитным полем нелинейные оптические вклады.

— Метод на основе генерации второй оптической гармоники позволяет определять сложные неколлинеарные антиферромагнитные структуры, проводить визуализацию различных доменных состояний, включая двойниковые кристаллографические структуры, сегнетоэлектрические, магнитные и антиферромагнитные домены.

– На основе феноменологического анализа получены аналитические выражения для вращательной анизотропии кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ для нескольких точечных групп кристаллов.

– Изучены нелинейные магнитооптические явления в мультиферроиках – гексагональных манганитах RMnO_3 ($R = \text{Sc, Y, In, Ho, Er, Tm, Yb}$ и Lu). Эти материалы сочетают сосуществование двух параметров порядка – сегнетоэлектрического и антиферромагнитного, что может быть использовано в новых нелинейных оптоэлектронных приборах. Исследована ГВГ в гетероструктурах магнетик-полупроводник MnAs/Si , которые могут быть перспективной основой для создания новых устройств магнитоэлектроники.

– Показано, что в гадолиниевом ферроборате $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ имеется возможность достижения фазового синхронизма 1-го типа для генерации второй гармоники. Это заключение о фазовом синхронизме в магнитном материале позволяет расширить исследования явлений, связанных с проявлением нелинейных магнитооптических взаимодействий.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на семинарах в ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, на заседаниях секции "Магнетизм" Научного совета РАН по проблеме "Физика конденсированных сред" в ИФП им. П.Л. Капицы РАН, семинарах Университетов Дортмунда (Германия), Неймегена (Нидерланды), на Международных семинарах "Нелинейная магнитооптика" (Берлин, Германия, 1995, Кардиф, Англия, 1999), Международном симпозиуме по магнитооптической записи (MORIS'1996) (Нордвикхут, Нидерланды, 1996), Международных конференциях по когерентной и нелинейной оптике (КиНО'1998, КиНО'2001) (Москва, Россия, 1998, Минск, Белоруссия, 2001), 43 Международной конференции по магнетизму и магнитным материалам (МММ'1998) (Майами, Флорида, США, 1998), 6 Японском/СНГ симпозиуме по сегнетоэлектричеству (JCBSF-6) (Токио, Япония, 1998), Тематических конференциях по нелинейной оптике интерфейсов (НОПТИ, 1998, 2001) (Берлин, Германия, 1998, Неймеген, Нидерланды, 2001), Международном совещании членов группы ИНТАС (INTAS) (Амерсфорт, Нидерланды, 1998), Международных симпозиумах "Наноструктуры: физика и технология" (С.-Петербург, Россия, 1999, 2006), Международной конференции по магнетикам (IEEE'1999-INTERMAG'1999) (Кيونгжу, Корея, 1999), X Международной конференции по лазерной оптике

(С.-Петербург, Россия, 2000), 8 Международной конференции по ферритам (ICF 8) (Киото, Япония, 2000), 18 Общей конференции по конденсированным средам Европейского физического общества (СМД18-2000) (Монтро, Швейцария, 2000), Международных школах-семинарах "Новые магнитные материалы микроэлектроники" (НМММ) (Москва, Россия, 1996, 2000), Феофиловских симпозиумах по спектроскопии кристаллов, активированных ионами редкоземельных и переходных металлов (Казань, Россия, 2001, Екатеринбург, Россия, 2004), Международной конференции по функциональным материалам (Крым, Украина, 2001), Объединенной конференции по физике (Гамбург, Германия, 2001), IV Международной конференции по явлениям магнитоэлектрических взаимодействий в кристаллах (MEIPIC-IV) (Новгород, Россия, 2001), IV Объединенной конференции по лазерам и электрооптике/Квантовой электронике и лазерным наукам (CLEO/IQEC 2002) (Москва, Россия, 2002), Московском международном симпозиуме по магнетизму (MISM-2002) (Москва, Россия, 2002), Евроазиатском симпозиуме "Прогресс в магнетизме" (EASTMAG-2004) (Красноярск, Россия, 2004), Объединенной конференции по когерентной и нелинейной оптике/Лазерам, применениям и технологиям (ICONO/LAT 2005) (С.-Петербург, Россия, 2005), Конференции академического сообщества А. Гумбольдта - Технологии 21 века: биологические, физические, информационные и социальные аспекты (С.-Петербург, Россия, 2005).

В 2005 году цикл работ с общим названием "Исследование электронных и магнитных структур кристаллов методом второй оптической гармоники" был удостоен премии ФТИ им. А.Ф. Иоффе.

Личный вклад автора: содержание диссертации отражает персональный вклад автора. В целом личный вклад автора является достаточно весомым в выборе направления исследований, постановке задач, планировании и проведении экспериментов, анализе результатов и проведении расчетов. Ряд работ выполнен совместно с сотрудниками Физикотехнического института им. А.Ф. Иоффе РАН, Университетов г. Дортмунда (Германия) и г. Неймегена (Нидерланды).

Структура и объем диссертации: диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения и списка литературы. Объем диссертации составляет 231 страницу машинописного текста, включая 64 рисунка и 12 таблиц. Список литературы содержит 247 наименований.

Публикации: в список публикаций по теме диссертации включено 43 работы, из них 34 — опубликованы в научных журналах и 9 — в сборниках трудов конференций. Список публикаций приведен в конце автореферата.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность выбранной темы, сформулированы цели и задачи диссертационной работы, приведены положения, выносимые на защиту, отмечена научная новизна и практическая ценность результатов работы, даны сведения об апробации работы, изложено ее краткое содержание по главам.

Первая глава имеет обзорный характер. В этой главе обобщены исторические сведения, связанные с изучением нелинейных оптических эффектов в результате нелинейностей второго порядка, в частности генерации второй оптической гармоники в магнитных материалах. Проведена классификация нелинейных эффектов и типов кристаллических и магнитных структур для их наблюдения. Описаны основные экспериментальные и теоретические результаты в объемных и пленочных материалах диэлектриков, полупроводников и металлов. Изложены фундаментальные аспекты взаимодействия электромагнитного излучения с веществом. Дано общее феноменологическое описание для нелинейных оптических явлений в кристаллических материалах с учетом магнитного и пирозлектрического параметров порядка и внешних магнитного и электрического полей.

Интенсивные электромагнитные волны, распространяющиеся через среду, возбуждают электрическую поляризацию \mathbf{P} , намагниченность \mathbf{M} или электрический квадрупольный момент $\hat{\mathbf{Q}}$ на той частоте, которая является линейной комбинацией частот падающих волн. Возбуждаемые мультипольные моменты могут быть записаны как разложение в ряд относительно электрического поля \mathbf{E} и магнитного поля \mathbf{H} падающих световых волн [A35]:

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &\propto \hat{\chi}^{ee}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{em}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{eee}\mathbf{E}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{eem}\mathbf{E}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{emm}\mathbf{H}\mathbf{H} + \dots, \\ \mathbf{M} &\propto \hat{\chi}^{me}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{mm}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{mee}\mathbf{E}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{mem}\mathbf{E}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{mmm}\mathbf{H}\mathbf{H} + \dots, \\ \hat{\mathbf{Q}} &\propto \hat{\chi}^{qe}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{qm}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{qee}\mathbf{E}\mathbf{E} + \hat{\chi}^{qem}\mathbf{E}\mathbf{H} + \hat{\chi}^{qmm}\mathbf{H}\mathbf{H} + \dots \end{aligned} \quad (1)$$

Для нахождения отклика среды на воздействие электромагнитных

волн необходимо решить волновое уравнение вида [5]:

$$\left(\Delta - \frac{\varepsilon}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E} = \mathbf{S}, \quad (2)$$

где

$$\mathbf{S} = \mathbf{S}_P + \mathbf{S}_M + \mathbf{S}_Q = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} + \mu_0 \left(\nabla \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right) - \mu_0 \left(\nabla \frac{\partial^2 \hat{\mathbf{Q}}}{\partial t^2} \right) \quad (3)$$

— является источником нелинейной электромагнитной волны. Электродипольный (ЭД) вклад $\mathbf{P} \propto \hat{\chi}^{ee} \mathbf{E} + \hat{\chi}^{eee} \mathbf{E} \mathbf{E}$ является основным в \mathbf{S} . Этот вклад, как правило, существенно превосходит по величине магнитодипольный (МД) и квадрупольный (КД) вклады, и поэтому МД и КД вкладами пренебрегают в тех системах, где ЭД вклад разрешен по симметрии. Линейные члены в первых двух выражениях (1) содержат тензоры диэлектрической восприимчивости $\hat{\chi}^{ee}$, магнитной проницаемости $\hat{\chi}^{mm}$ и линейного магнитоэлектрического эффекта $\hat{\chi}^{em}$ и $\hat{\chi}^{me}$. В случае нелинейности второго порядка, ЭД вклад $\mathbf{P} \propto \hat{\chi}^{eee} \mathbf{E} \mathbf{E}$ разрешен лишь в нецентросимметричной среде [5, 6], в которой соответствующая восприимчивость $\hat{\chi}^{eee}$ приводит к суммарной или разностной генерации частоты, ГВГ и оптическому выпрямлению.

Для магнитоупорядоченных материалов соотношение между электрическим полем световой волны $\mathbf{E}(\omega)$ на основной частоте и индуцируемой нелинейной поляризацией $\mathbf{P}(2\omega)$ на удвоенной частоте в ЭД приближении может быть записано в следующем виде:

$$\mathbf{P}(2\omega) = \varepsilon_0 (\hat{\chi}^{(i)} + i\hat{\chi}^{(c)}) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega), \quad (4)$$

где $\hat{\chi}^{(i)}$ — инвариантный по операции обращения времени тензор i -типа [7], $\hat{\chi}^{(c)}$ — неинвариантный по операции обращения времени тензор c -типа [7]. Эти тензоры отвечают за кристаллографический и линейно зависящий от магнитного параметра вклады в нелинейную поляризацию $\mathbf{P}(2\omega)$, соответственно. Вклады i -типа разрешены лишь в нецентросимметричной среде, а вклады c -типа появляются в области температур магнитного упорядочивания, где одновременно нарушены операция пространственной инверсии I и операция обращения времени R [8]. Интерференция кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ преобразует амплитуды и фазы световых полей, что позволяет обнаруживать

тонкие нюансы магнитной структуры и проводить визуализацию 180° антиферромагнитных доменов. Нелинейные восприимчивости $\hat{\chi}^{(i)}$ и $\hat{\chi}^{(c)}$, а также интерференция соответствующих оптических волн на удвоенной частоте являются ответственными за наблюдаемые нелинейные магнитооптические явления в магнитоупорядоченных соединениях, связанные с процессом ГВГ.

Если к среде приложено постоянное магнитное поле, то нелинейная поляризация $\mathbf{P}(2\omega)$ может содержать дополнительно члены вида [A38]:

$$\mathbf{P}(2\omega) = \varepsilon_0 [i\hat{\chi}^{(i)} \mathbf{H}(0) + \hat{\chi}^{(i)} \mathbf{k}(\omega) \mathbf{H}(0)] \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega). \quad (5)$$

Первый член описывает индуцированный магнитным полем ЭД вклад, второй — нелинейную магнитооптическую пространственную дисперсию. Эти вклады, обусловленные внешним магнитным полем, в комбинации с кристаллографическим ЭД вкладом описывают возможные нелинейные магнитооптические явления в процессе ГВГ в диа- и парамагнитных соединениях.

В силу сильной зависимости процесса ГВГ от симметрии кристаллов, его высокой чувствительности к различным особенностям электронной и магнитной структуры, возможным фазовым превращениям, метод на основе измерения ГВГ позволяет получать взаимодополняющую или принципиально новую информацию по отношению к таким традиционным линейным оптическим методам, основанным на измерении отражения и поглощения света, магнитооптических эффектов Керра и Фарадея, фотолюминесценции.

Вторая глава посвящена методическим вопросам, физическим свойствам кристаллов. В этой главе подробно описаны основные экспериментальные установки для исследования процесса генерации второй оптической гармоники. Приведены важные сведения по кристаллографическим, магнитным и оптическим свойствам исследованных кристаллов и структур. Описаны методы приготовления образцов, приведены их основные параметры.

Для исследования нелинейных оптических процессов второго и более высоких порядков были созданы две экспериментальные установки. В первой установке использовалось излучение фемтосекундного титан-сапфирового ($\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$) лазера с длительностью импульса 100 fs и частотой

той повторения импульсов 82 МГц. Для фильтрации сигналов использовались цветные стеклянные фильтры. Измерение интенсивности нелинейных сигналов проводилось с помощью фотоумножителя, позволявшего работать в режиме счета фотонов. Данная экспериментальная установка была использована, как в геометрии на отражении света, так и в геометрии на прохождении света. Титан-сапфировый лазер мог перестраиваться в области энергий фотонов 1.44-1.72 eV. Мощность света, падавшего на образец, составляла 40-60 mW. В эксперименте была предусмотрена возможность поворота образца относительно своей нормали в диапазоне азимутальных углов $0^\circ < \varphi < 360^\circ$. Образец помещался в магнитное поле, прикладываемое в продольной или поперечной геометриях.

Вторая экспериментальная установка была основана на использовании импульсного твердотельного лазера на кристалле $\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, излучавшего свет с энергией фотона 1.17 eV, частотой повторения импульсов 10 Hz и длительностью импульсов 8 ps. Свет этого лазера с помощью нелинейного кристалла KN_2PO_4 преобразовывался во вторую, а затем в третью оптическую гармонику (ГТГ) и использовался для накачки оптического параметрического генератора, выполненного на основе кристалла $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$, который использовался как источник света с возможностью перестройки энергий фотона в диапазоне 0.6-1.6 eV. Импульсная энергия света, падающего на образец, составляла величину 2-5 mJ в зависимости от энергии фотона. В качестве фотодетектора использовался фотоумножитель или охлаждаемая жидким азотом ПЗС-камера. Использование ПЗС-камеры позволяло проводить спектральные измерения оптических сигналов от выделенных локальных областей кристаллов — антиферромагнитных и сегнетоэлектрических доменов, структурных двойников и их границ раздела. Исследования оптических гармоник проводились в геометриях, как при отражении, так и при прохождении света. В большинстве экспериментов образец находился в гелиевом криостате, позволявшем использовать магнитное поле сверхпроводящего соленоида в диапазоне 0-10 Т. Сбор и обработка экспериментальных данных осуществлялась с помощью компьютера.

Метод, основанный на измерении оптических гармоник, является сравнительно простым, не требующим большого числа оптических элементов. Вследствие того, что оптические волны на основной и удвоенной или утроенной частотах существенно разнесены по энергиям, при изме-

рении оптических сигналов на выделенных длинах волн было достаточно использовать недорогие стеклянные цветные фильтры. В спектральных исследованиях для повышения степени фильтрации оптических сигналов использовался монохроматор. Возможности данного метода достаточно широки. При изучении магнитоупорядоченных соединений одними из наиболее важных достоинств данного метода следует отметить его высокую чувствительность к магнитному состоянию поверхности и интерфейсов в centrosymmetric материалах, возможность зондирования электронных состояний, лежащих в области сильного поглощения, визуализацию антиферромагнитных доменов, получение магнитных фазовых диаграмм, возможность установления точечных и пространственных магнитных групп кристаллов со сложной антиферромагнитной структурой. Последнее обстоятельство является очень важным, поскольку определение таких структур с помощью нейтронных методов может быть затруднено или даже невозможно.

В третьей главе приведены результаты по изучению нелинейных оптических явлений в магнитных соединениях. Подробно описан метод вращательной анизотропии интенсивности генерации второй оптической гармоники. Данный метод позволяет выявлять симметрию изучаемых кристаллических структур, проводить разделение кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ. Метод вращательной анизотропии ГВГ был успешно использован для изучения нелинейных явлений в редкоземельных пленках ферритов-гранатов, в гетероструктурах MnAs/Si и гадолиниевом ферроборате $GdFe_3(BO_3)_4$.

В §3.1 рассмотрены вопросы, связанные с генерацией оптических гармоник в пленках ферритов-гранатов. Объемные магнитные гранаты и эпитаксиальные пленки гранатов представляют собой две известные группы материалов, характеризующиеся большим разнообразием магнитных, акустических, оптических и магнитооптических свойств. Тонкие пленки магнитных гранатов были выращены методом жидкофазной эпитаксии на прозрачных немагнитных подложках объемных кристаллов гадолиний-галлиевого граната или сложнозамещенного гадолиний-галлиевого граната. Пленки, выращенные на подложках с четырьмя различными типами ориентации (001), (110), (111) и (210), отличались по толщине, химическому составу и по параметрам подложки. В целом, бы-

ло изучено более 20 образцов гранатовых пленок. Сигналы ГВГ были получены от всех изученных пленок, хотя интенсивность сигнала могла варьироваться на один-два порядка по величине, в зависимости от состава и ориентации подложки. Наиболее сильные сигналы ГВГ были получены в пленках типа (210).

Дано феноменологическое описание процессов генерации второй и третьей оптической гармоник в пленках ферритов-гранатов. Предложен метод вращательной анизотропии, позволяющий исследовать анизотропные свойства магнитного и кристаллографического вкладов в нелинейный оптический сигнал, проводить разделение двух этих типов оптических нелинейностей. С использованием этого метода установлена роль нелинейной оптической интерференции. Приведены экспериментальные результаты по ГВГ для пленок ферритов-гранатов с различными типами ориентации подложки в поперечной и продольной геометриях для внешнего магнитного поля. Получено хорошее соответствие между экспериментальными результатами по анизотропии ГВГ и рассчитанными зависимостями. Описаны линейные и квадратичные по намагниченности нелинейные магнитооптические явления. В приведены температурные и спектральные зависимости для кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ. Даны спектральные зависимости генерации второй и третьей гармоник для пленок типа (111) и (210). Спектры ГВГ были исследованы в диапазоне энергий фотонов 1.7-3.2 eV. Выявлены кристаллографический и магнитный вклады в общую интенсивность сигналов ГВГ. Измерены спектры генерации третьей оптической гармоники в диапазоне энергий фотонов 2.4-4.2 eV ниже и выше края фундаментального поглощения ~ 3.2 eV. В то время как линейное поглощение возрастает при энергии фотонов более 3 eV, сигналы ГВГ и ГТГ не показывают какого-либо существенного изменения интенсивности. Эти экспериментальные данные позволяют высказать предположение, что локальные $d-d$ переходы вносят основной вклад в нелинейно-оптические спектры. Вклады, связанные с электронными переходами с переносом заряда и межзонными переходами, являются менее существенными и вносят незначительный вклад в нелинейные оптические восприимчивости. Очень интересный и необычный результат — наблюдение большого магнитного вклада в спектрах ГВГ с магнитным контрастом до 100%. В противоположность этому магнитный вклад в спектрах ГТГ обнаружен не был. Эксперименталь-

ные данные по генерации оптических гармоник в эпитаксиальных пленках ферритов-гранатов открывают новые возможности нелинейных оптических методик для исследований магнитоупорядоченных соединений.

§3.2 посвящен изучению генерации второй оптической гармоники в гетероструктурах ферромагнетик-полупроводник MnAs/Si. Гетероструктуры, получаемые при выращивании ферромагнитных пленок непосредственно на поверхности полупроводников, таких как кремний или арсенид галлия, являются перспективной основой для создания новых магнитоэлектронных устройств.

Методом ГВГ было проведено исследование поверхностных и интерфейсных свойств гетероструктур ферромагнетик-полупроводник MnAs/Si, полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Наблюдалось нечетное по намагниченности изменение интенсивности ГВГ, обусловленное интерференцией кристаллографического и магнитного вкладов в ГВГ. Проведено феноменологическое рассмотрение возможных вкладов во вторую гармонику и на основе экспериментальных азимутальных зависимостей ГВГ определены источники нелинейно-оптического сигнала. Показано, что нелинейный оптический сигнал обусловлен интерференцией анизотропного и изотропного кристаллографического, и изотропного магнитного вкладов. По азимутальным и полевым зависимостям эти вклады были разделены. Обнаружено различие полевых зависимостей для ГВГ и магнитооптического эффекта Керра, что связано с различной чувствительностью линейного и нелинейного магнитооптических явлений к объему пленки и к границам раздела, соответственно.

В §3.3 приведены результаты по исследованию генерации второй оптической гармоники в гадолиниевом ферроборате $GdFe_3(BO_3)_4$. Редкоземельные бораты железа с общей формулой $RFe_3(BO_3)_4$ (R – редкоземельный химический элемент) характеризуются необычным сочетанием ряда физических свойств. Они кристаллизуются в тригональной структуре типа хантита (huntite), описываемой нецентросимметричной пространственной группой $R\bar{3}2$. При изменении температуры в хантитах редкоземельных ферроборатов наблюдаются структурные и магнитные фазовые переходы.

Генерация второй оптической гармоники в нецентросимметричном магнетике гадолиниевом ферроборате $GdFe_3(BO_3)_4$ исследована в гео-

метрии на пропускание в спектральном диапазоне $1.2 \div 3.0$ eV, где поглощение не слишком велико. Спектральные особенности генерации второй оптической гармоники в этой спектральной области объяснены изменением эффективности генерации второй оптической гармоники за счет изменения фазового рассогласования. Совокупность полученных результатов позволяет сделать заключение, что в этом магнитном материале имеется возможность достижения фазового синхронизма для генерации второй оптической гармоники.

В четвертой главе обсуждаются вопросы, связанные с нелинейными оптическими явлениями в антиферромагнетиках. Приведены экспериментальные данные по нелинейной спектроскопии редкоземельных гексагональных манганитов RMnO_3 ($R = \text{Sc, Y, In, Ho, Er, Tm, Yb}$ и Lu). Существование двух типов параметров порядка в этих соединениях – сегнетоэлектрического и антиферромагнитного – обуславливает нелинейную оптическую восприимчивость нового типа. Управляемая интерференция вкладов в ГВГ, связанных с двумя параметрами порядка, позволила провести визуализацию 180° антиферромагнитных доменов в системе RMnO_3 . Нелинейная спектроскопия centrosymmetric антиферромагнетиков CoO , NiO и KNiF_3 позволила выявить сильный магнитодипольный вклад в ГВГ. Показано, что многофотонное резонансное усиление обуславливает большую величину наблюдаемых нелинейностей.

В §4.1 приведены результаты по исследованию генерации второй оптической гармоники в сегнетоэлектриках-антиферромагнетиках RMnO_3 ($R = \text{Sc, Y, In, Ho, Er, Tm, Yb}$ и Lu), использованию метода ГВГ для установления пространственных магнитных групп этих материалов, визуализации антиферромагнитных доменов. Вещества и структуры, в которых можно выделить несколько подсистем, характеризуемых различными параметрами порядка, получили название мультиферроиков. В гексагональных манганитах RMnO_3 такими параметрами являются спонтанная электрическая поляризация при температурах $T < T_K = 900 - 1200\text{K}$ (в зависимости от состава) и вектор антиферромагнетизма при температурах $T < T_N = 70-130\text{K}$. В мультиферроиках при выполнении определенных пространственно-временных симметричных условий возможно появление новых взаимодействий между подсистемами различной физической природы. Такие перекрестные взаимодействия в данном классе

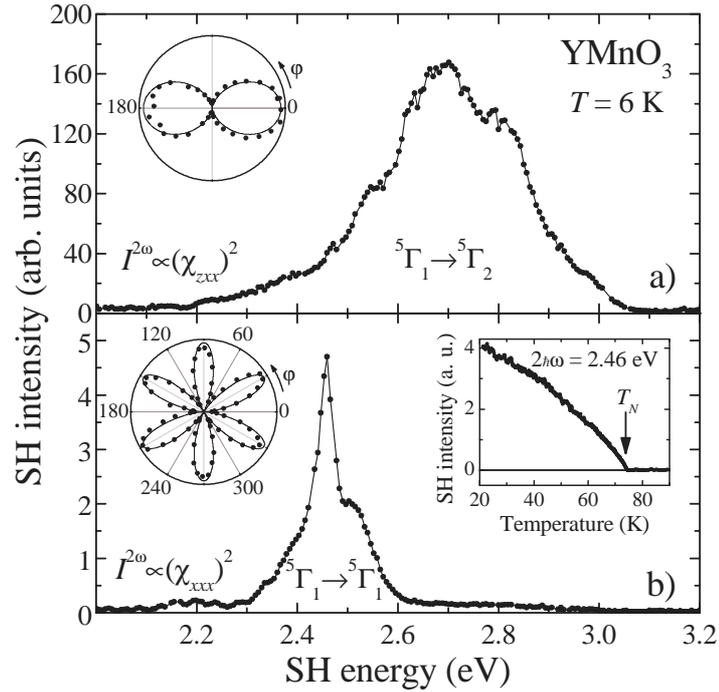


Рис. 1. (a) — спектральная и угловая зависимости сегнетоэлектрического вклада ГВГ, (b) — спектральная, угловая и температурная зависимости антиферромагнитного вклада ГВГ в YMnO_3 [A10].

материалов открывают новые перспективы для создания приборов, основанных на взаимном контроле магнитных, электрических и деформационных состояний.

В диапазоне энергий фотонов ГВГ 2.0–3.2 eV проведено спектральное исследование двух типов оптических нелинейностей гексагональных манганитов RMnO_3 — сегнетоэлектрического и антиферромагнитного, связанных с нелинейными оптическими восприимчивостями i - и $-$ типа, соответственно. Сегнетоэлектрические компоненты нелинейной восприимчивости $\chi_{xxz}^{(i)} = \chi_{xzx}^{(i)} = \chi_{yyz}^{(i)} = \chi_{yzy}^{(i)}$, $\chi_{zxx}^{(i)} = \chi_{zyy}^{(i)}$, $\chi_{zzz}^{(i)}$ могут лишь наблюдаться для света поляризованного вдоль оси z или вдоль z и $x(y)$. Сегнетоэлектрический вклад в YMnO_3 имеет широкий максимум при ~ 2.7 eV (см. рис. 1). Спектр ГВГ для антиферромагнитного вклада (компоненты $\chi_{xxx}^{(c)} = -\chi_{xyy}^{(c)} = -\chi_{yxy}^{(c)} = -\chi_{yyx}^{(c)}$) наблюдается лишь при температурах ниже температуры Нееля T_N при $\mathbf{k} \parallel z$, в этих условиях сегнетоэлектрический вклад в ГВГ не проявляется. Антиферромагнитный вклад в ГВГ характеризуется узким пиком с максимумом при 2.46 eV. На рис. 1а показана температурная зависимость антиферромагнитного вклада в ГВГ при

$2\hbar\omega = 2.46 \text{ eV}$ в YMnO_3 . Сигнал ГВГ зануляется при температурах выше $T_N \simeq 74 \text{ K}$, что определенно свидетельствует о том, что этот сигнал связан с антиферромагнитным параметром порядка. На рис. 1 также приведены данные для вращательной анизотропии интенсивности ГВГ в YMnO_3 для сегнетоэлектрического и антиферромагнитного вкладов в ГВГ. Интерференция антиферромагнитного и сегнетоэлектрического сигналов ГВГ или сигнала от внешнего источника ГВГ, например кварцевой пластинки, была использована для визуализации 180° антиферромагнитных доменов, неразличимых методами линейной оптики.

Обсуждается микроскопическая модель ГВГ в гексагональных манганитах RMnO_3 . Для тригонального бипирамидального кислородного окружения основным состоянием является орбитальный синглет ${}^5\Gamma_1(x, y)$, а возбужденные состояния — ${}^5\Gamma_1(x, y)$ и ${}^5\Gamma_2(z)$. Локализованные электронные переходы ${}^5\Gamma_1 \rightarrow {}^5\Gamma_1$ разрешены для $\mathbf{E}(\omega) \perp z$, а переходы ${}^5\Gamma_1 \rightarrow {}^5\Gamma_2$ разрешены для $\mathbf{E}(\omega) \parallel z$. По данной модели сегнетоэлектрический вклад в ГВГ связан с переходом ${}^5\Gamma_1 \rightarrow {}^5\Gamma_2$ при 2.7 eV , а антиферромагнитный вклад в ГВГ — с переходом ${}^5\Gamma_1 \rightarrow {}^5\Gamma_1$ при 2.46 eV .

При температуре $T_R = 41 \text{ K}$ в гольмиевом манганите HoMnO_3 происходит реориентационный фазовый переход — все спины поворачиваются в базисной плоскости xy на угол 90° . По правилам отбора для соответствующих магнитных пространственных групп ниже $T_R = 41 \text{ K}$ нелинейная восприимчивость $\chi_{yuy}^{(c)}$ имеет ненулевую величину, а выше $T_R = 41 \text{ K}$ — нелинейная восприимчивость $\chi_{xxx}^{(c)}$ является ненулевой (см. рис. 2). Показаны изображения антиферромагнитных доменов в HoMnO_3 выше и ниже температуры реориентационного фазового перехода. Методом ГВГ впервые сделано однозначное определение магнитных пространственных групп редкоземельных гексагональных манганитов RMnO_3 ($R = \text{Sc, Y, Ho, Er, Tm, Yb, Lu}$). В диссертации приведена сводная диаграмма для пространственных магнитных групп, реализуемых в этих материалах при различных температурах.

В §4.2 обсуждается генерация второй оптической гармоники в центросимметричных антиферромагнетиках CoO , NiO и KNiF_3 . Эксперименты по генерации второй оптической гармоники зачатую ограничиваются нецентросимметричными соединениями, в которых ГВГ разрешена в электродипольном приближении [5, 6]. Это ограничение было существенным для магнитоупорядоченных соединений, исследуемых методом

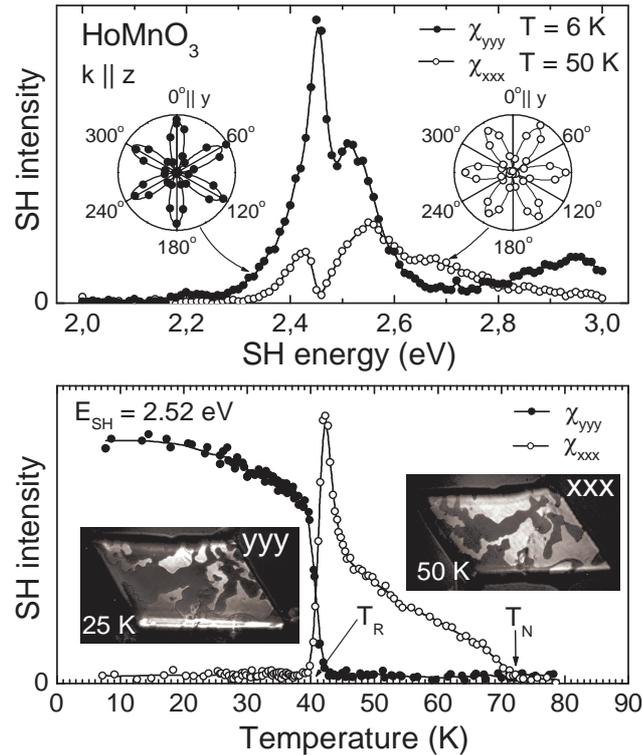


Рис. 2. (a) — спектральные, угловые, (b) — температурные зависимости ГВГ, изображения антиферромагнитных доменов в HoMnO_3 [A20].

ГВГ, поскольку большинство из них являются центросимметричными. На примере трех хорошо известных центросимметричных антиферромагнетиков CoO , NiO и KNiF_3 показано, что может наблюдаться резонансное усиление магнитодипольного вклада в ГВГ. Это наблюдение существенно расширяет круг возможных материалов с магнитным порядком для нелинейных оптических исследований.

Приведены спектры ГВГ и поглощения NiO , KNiF_3 и CoO при низких температурах. Несмотря на то, что пространственная инверсия I является операцией симметрии как для кристаллографической структуры, так и для магнитной структуры, в этих кристаллах наблюдаются достаточно сильные сигналы ГВГ в области энергий $2\hbar\omega$. Это было весьма неожиданным экспериментальным результатом. Важно отметить, что величины сигналов ГВГ сравнимы с теми, которые наблюдаются в нецентросимметричных кристаллах, например, в гексагональных манганитах RMnO_3 . Спектры ГВГ для NiO и KNiF_3 очень похожи — наблюдаются две сильные узкие линии в области 1.94 eV для NiO (см. рис. 3) и $\sim 1.69 \text{ eV}$ для KNiF_3 . В CoO зафиксированы две узкие линии около 1.74 eV и 1.81 eV .

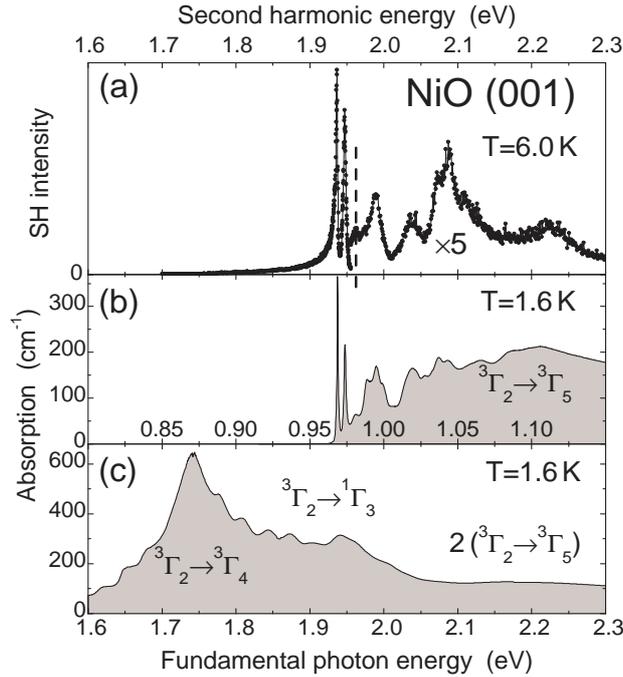


Рис. 3. Спектры ГВГ и линейного оптического поглощения в кристалле NiO(001) при низких температурах [A23].

Сравнение спектров ГВГ и спектров поглощения в CoO, NiO и KNiF₃ показывает, что сигналы ГВГ с энергией $2\hbar\omega$ в основном отображают электронные переходы с энергией $\hbar\omega$, которые хорошо заметны в спектрах поглощения. Приведена электронная диаграмма ($3d$)⁸ состояний ионов Ni²⁺ в октаэдрическом кристаллическом поле антиферромагнетика NiO.

Проведено феноменологическое и микроскопическое рассмотрение ГВГ в антиферромагнетиках NiO, KNiF₃ и CoO. Показано, что наличие сильных сигналов ГВГ можно объяснить, если учесть нелинейные процессы, обусловленные магнитодипольным механизмом. Нелинейная восприимчивость магнитодипольного типа может быть ответственной за наблюдаемые сильные сигналы ГВГ, а нелинейная поляризация для данного процесса может быть записана в следующем виде [A23]:

$$\mathbf{P}(2\omega) = i\varepsilon_0\hat{\chi}^{em}\mathbf{E}(\omega)\mathbf{H}(\omega) \quad (6)$$

Существенное усиление магнитодипольного вклада в ГВГ вызвано многофотонным резонансом в спектральной области первого $d-d$ электронного перехода ${}^3\Gamma_2^+ \rightarrow {}^3\Gamma_5^+$ (NiO, KNiF₃) и ${}^4\Gamma_4^+ \rightarrow {}^4\Gamma_5^+$ (CoO). Для ионов Ni²⁺($3d$)⁸ и Co²⁺($3d$)⁷ существуют промежуточные электронные

состояния, которые вносят вклад в нелинейную восприимчивость $\hat{\chi}^{eem}$. Для ионов $\text{Mn}^{2+}(3d)^5$ таких состояний нет, следовательно нельзя ожидать многофотонного резонансного усиления ГВГ в антиферромагнетике MnO . Это было подтверждено на эксперименте — сигналы ГВГ отсутствовали в этом соединении.

Пятая глава посвящена исследованию генерации второй оптической гармоники в диа- и парамагнитных полупроводниках во внешнем магнитном поле. До недавнего времени, изучение ГВГ в полупроводниках ограничивалось в основном исследованиями на единичных длинах волн или в узком спектральном диапазоне. Примеры исследований в сравнительно широком спектральном диапазоне весьма редки.

В §5.1 обсуждается индуцированная магнитным полем ГВГ в диамагнитных полупроводниках GaAs и CdTe . Эти материалы обладают нецентросимметричной точечной группой $\bar{4}3m$, поэтому основной ожидаемый вклад во внешнем магнитном поле $\mathbf{H}(0)$ в нелинейную поляризацию на удвоенной частоте $\mathbf{P}(2\omega)$ — это электродипольный вклад вида [9, А35]:

$$\mathbf{P}(2\omega) = \varepsilon_0 \hat{\chi}^{eee} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) + i \varepsilon_0 \hat{\chi}^{eeem} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{H}(0). \quad (7)$$

Микроскопически нелинейная восприимчивость $\hat{\chi}^{eee}$ определяется нецентросимметричным распределением электрических зарядов, а восприимчивость $\hat{\chi}^{eeem}$ должна быть связана как с зарядовым, так и спиновым распределением в среде. $\hat{\chi}^{eee}$ является полярным тензором третьего ранга, имеющим ненулевые компоненты типа $xyz(6)$ [7]. χ^{eeem} является аксиальным тензором четвертого ранга и имеет три независимые компоненты [7].

Получены спектры интенсивности ГВГ в $\text{GaAs}(001)$ при нормальном падении света для различных поляризаций света на основной и удвоенной частотах. Кристаллографический вклад отсутствует при нормальном падении для данной ориентации кристалла при нулевой величине магнитного поля. В магнитном поле появляются сигналы ГВГ, представляющие собой серию узких линий в спектральном диапазоне 1.52-1.77 eV (см. рис 4). Как следует из симметричного рассмотрения [7], лишь компонента нелинейной восприимчивости χ_{xyyx} является существенной в геометрии $\mathbf{E}(2\omega) \perp \mathbf{E}(\omega) \parallel \mathbf{y}$. В электродипольном приближении нет компонент тензора χ^{eeem} для геометрии $\mathbf{E}(2\omega) \parallel \mathbf{E}(\omega) \parallel \mathbf{y}$. Весьма неожиданным результатом

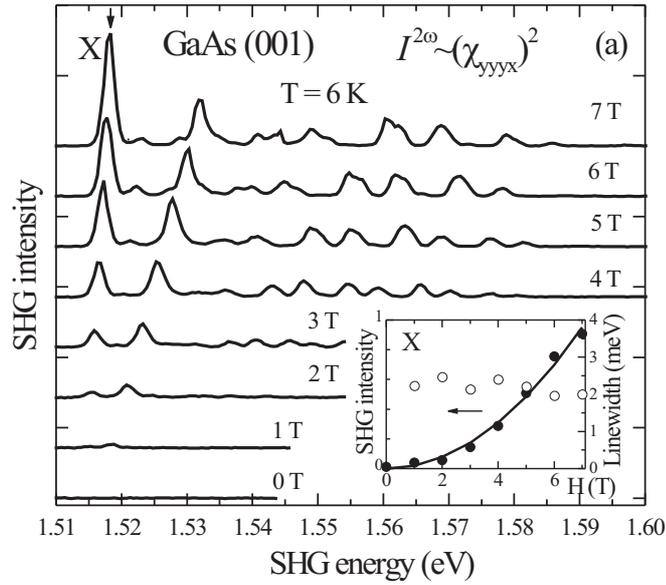


Рис. 4. Спектры интенсивности ГВГ в GaAs(001) при различных величинах внешнего магнитного поля. Интегральная интенсивность ГВГ в зависимости от магнитного поля дана на вставке [A38].

является то, что в этой геометрии обнаружен сильный сигнал ГВГ, который примерно в 50 больше, чем допустимый электродипольный вклад в ГВГ, связанный с нелинейной компонентой χ_{xyyx} . Наличие сильного сигнала ГВГ в этой геометрии может быть объяснено наличием нелинейной магнитооптической пространственной дисперсии, описываемой феноменологически выражением (5).

Внешнее магнитное поле приводит как орбитальному квантованию с образованием уровней Ландау, так и спиновому квантованию вследствие эффекта Зеемана запрещенной зоны полупроводника и зоны проводимости. Энергетический спектр полупроводника в области края запрещенной зоны может быть описан с помощью следующего выражения:

$$E = E_g + E_{LL}(N) + E_Z(S, J) + E_{GZ}(S, J), \quad (8)$$

где E_g — энергия запрещенной зоны, E_{LL} — энергия, связанная с формированием уровней Ландау. E_{LL} может быть записана в следующем виде [10]:

$$E_{LL} = \frac{e\hbar}{c} \left[\frac{1/2 + N_e}{m_e} + \frac{1/2 + N_h}{m_h} \right] H, \quad (9)$$

где m_e и m_h – эффективные массы для электронов и тяжелых дырок, $N_e = N_h = 0, 1, 2, \dots$ – квантовые числа, соответствующие номерам уровней Ландау. $E_Z(S, J)$ является энергией спинового расщепления вследствие эффекта Зеемана:

$$E_Z(S, J) = (Sg_e + Jg_h)\mu_B H, \quad (10)$$

где $S = \pm\frac{1}{2}$ – проекции спина электронов, $J = \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}$. – проекции полного момента дырок на направление поля, $g_{e(h)}$ – g-факторы электронов (дырок), μ_B – магнетон Бора.

Электронно-дырочное кулоновское взаимодействие модифицирует спектральную картину уровней Ландау, что приводит к большому числу магнитоэкситонных состояний [11]. Экспериментальные данные по индуцированной магнитным полем ГВГ хорошо соответствуют рассчитанным значениям энергии оптических переходов между уровнями Ландау. Таким образом показано, что орбитальное квантование в магнитном поле определяет механизм возникновения ГВГ в диамагнитных полупроводниках GaAs и CdTe.

В §5.2 обсуждается индуцированная магнитным полем ГВГ в парамагнитном полупроводнике (Cd,Mn)Te. На рис 5 показаны спектры и вращательная анизотропия интенсивности ГВГ в парамагнитном полупроводнике $\text{Cd}_{0.84}\text{Mn}_{0.16}\text{Te}$ в области края запрещенной зоны $E_g = 1.869$ eV при различных значениях магнитного поля ($T = 4.5$ К). Эти спектры радикально отличаются от спектров ГВГ в недопированном CdTe. Насчитывается восемь линий в спектрах ГВГ, линии смещаются и растет их интенсивность при увеличении величины магнитного поля. Расщепление по энергии ΔE_{GZ} между самыми сильными линиями составляет 120 meV при $H = 10$ Т, это значение является типичным для гигантского зеемановского расщепления экситонных состояний, связанных с тяжелыми дырками в (Cd,Mn)Te [12]. Важно отметить, что в отличие от диамагнитных полупроводников GaAs и CdTe, индуцированная магнитным полем ГВГ появляется в (Cd,Mn)Te в области энергий спин-расщепленных оптических переходов.

Последний член в выражении (8) описывает эффект гигантского зеемановского расщепления в парамагнитных полупроводниках [12]:

$$E_{GZ}(S, J) = xS_0N_0\left(\frac{\beta}{3}J - \alpha S\right)B_{\frac{5}{2}}\left[\frac{5\mu_B g_{Mn} H}{2k_B(T_{Mn} + T_0)}\right], \quad (11)$$

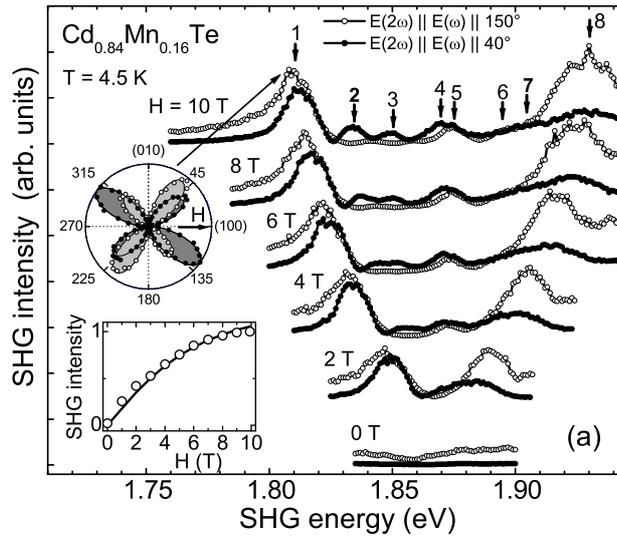


Рис. 5. Спектры и вращательная анизотропия ГВГ в $\text{Cd}_{0.84}\text{Mn}_{0.16}\text{Te}$ в магнитном поле для двух поляризационных комбинаций. На вставке приведена интегральная интенсивность ГВГ как функция магнитного поля [A39].

где $g_{Mn} = 2$, k_B – константа Больцмана, T_{Mn} – температура Mn-спиновой системы (в эксперименте $T_{Mn} = T$), S_0 и T_0 – коэффициенты антиферромагнитного взаимодействия Mn-Mn, $B_{\frac{5}{2}}$ – модифицированная функция Бриллюэна, $N_0\alpha$ и $N_0\beta$ – обменные интегралы для состояний зоны проводимости и валентной зоны, взаимодействующих с локализованными магнитными моментами ионов Mn^{2+} . Экспериментальные значения пиковых положений восьми линий ГВГ в магнитном поле хорошо соответствуют рассчитанным значениям по формулам (8) и (11) для оптических переходов для спин-расщепленной валентной зоны и зоны проводимости в $\text{Cd}_{0.84}\text{Mn}_{0.16}\text{Te}$. Таким образом показано, что спиновое квантование в магнитном поле является основным механизмом ГВГ в парамагнитном полупроводнике $(\text{Cd},\text{Mn})\text{Te}$.

В заключении сформулированы основные результаты и выводы диссертации.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

1. Обнаружен и изучен объемный индуцированный намагниченностью вклад в генерацию второй оптической гармоники в пленках ферритов-гранатов. ГВГ была исследована в эпитаксиальных пленках ферритов-гранатов с кристаллографической ориентацией (100), (111), (110) и (210) в продольной и поперечной геометриях для внешнего магнитного поля. Всего было исследовано более двадцати образцов пленок разного состава с различными величинами рассогласования параметров кристаллических ячеек пленок и подложек, причем как содержащих магнитооптически активные ионы висмута Bi^{3+} , так и составы без висмута.

2. Наблюдались новые нелинейные магнитооптические явления в пленках ферритов-гранатов — нелинейное оптическое вращение и магнитный дихроизм, являющиеся линейными функциями намагниченности. Эти явления связаны с нелинейной интерференцией кристаллографического и индуцированного намагниченностью вкладов в поляризацию на удвоенной частоте. Исследована анизотропия магнитного и кристаллографического вкладов в нелинейный оптический сигнал, предложена процедура их разделения на основе метода вращательной анизотропии интенсивности ГВГ. Проведен феноменологический анализ ГВГ в нецентросимметричных магнитных кристаллах.

3. Высокая симметричная чувствительность метода ГВГ позволили провести изучение электронной структуры и магнитной симметрии в гексагональных редкоземельных манганитов RMnO_3 ($R=\text{Sc}, \text{Y}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}, \text{Lu}$). Методом ГВГ в системе RMnO_3 впервые была изучена нелинейная поляризация нового типа, являющаяся билинейной функцией сегнетоэлектрического и антиферромагнитного параметров порядка. Выявлена роль электронных состояний ионов Mn^{3+} , находящихся в необычном бипирамидальном кислородном окружении, в процессе ГВГ. Два типа спектров ГВГ могут быть однозначно интерпретированы как сегнетоэлектрический, который связан с электродипольным вкладом вследствие нецентросимметричного расположения атомов в кристаллической ячейке, и антиферромагнитный — связан с антиферромагнитным спиновым упорядочением в сегнетоэлектрической кристаллической структуре. Эти вклады характеризуются различными трансформационными свойствами по отношению к временным и пространственным операциям симметрии. Частичное спектральное перекрытие этих двух вкладов позволяет выпол-

нить условия для управляемой нелинейной интерференции.

4. Метод ГВГ позволяет определять сложные неколлинеарные магнитные структуры. В редкоземельных манганитах RMnO_3 ($\text{R}=\text{Sc}, \text{Y}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Yb}, \text{Lu}$) было проведено подробное исследование характера антиферромагнитного упорядочения ионов трехвалентного марганца и определены магнитные точечные группы во всех семи различных манганитах. В различных манганитах спины ионов Mn^{3+} лежат в плоскости xy и образуют треугольную структуру, однако ориентация спинов по отношению к гексагональным осям x и y может быть различной, и может меняться в зависимости от температуры. Было показано, что некоторые прежние заключения о магнитной симметрии и свойствах манганитов должны быть пересмотрены. В HoMnO_3 и LuMnO_3 ниже температуры Нееля методом ГВГ наблюдался спонтанный реориентационный фазовый переход, связанный с поворотом спинов ионов Mn^{3+} в плоскости xy .

5. Впервые обнаружен сильный магнитодипольный вклад во вторую оптическую гармонику в centrosимметричных модельных диэлектриках-антиферромагнетиках NiO , CoO , KNiF_3 . В данных соединениях процесс ГВГ запрещен по симметрии в электродипольном приближении. Существенное усиление магнитодипольного вклада в ГВГ вызвано двухфотонным резонансом в спектральной области первого магнитодипольного $d-d$ перехода ${}^3\Gamma_2^+ \rightarrow {}^3\Gamma_5^+$ (NiO , KNiF_3) и ${}^4\Gamma_4^+ \rightarrow {}^4\Gamma_5^+$ (CoO) и электродипольного электронного перехода на удвоенной энергии. Генерация второй оптической гармоники наблюдалась в температурной области ниже температуры Нееля, где магнитодипольный вклад разрешен по симметрии.

6. Метод генерации второй оптической гармоники дает уникальную возможность проводить визуализацию с высоким контрастом 180-градусных антиферромагнитных доменов, неразличимых методами линейной оптики. Впервые были получены изображения антиферромагнитных доменных структур для антиферромагнетиков RMnO_3 , NiO .

7. Индуцированная внешним магнитным полем генерация второй оптической гармоники была впервые обнаружена в неcentrosимметричных объемных диамагнитных полупроводниках GaAs и CdTe . Показано, что механизм орбитального квантования с возникновением уровней Ландау является ответственным за наблюдаемые нелинейные оптические явления. Индуцированная нелинейная поляризация является линейной функцией магнитного поля. Модельные расчеты, учитывающие как электродипольный

польный вклад, так и вклад, связанный с нелинейной магнитооптической пространственной дисперсией, хорошо описывают наблюдаемые вращательные анизотропии интенсивности ГВГ.

8. Индуцированная внешним магнитным полем ГВГ была исследована в нецентросимметричных парамагнитных полупроводниках $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ с различной концентрацией ионов Mn^{2+} ($x = 0.03-0.28$). Показано, что механизм спинового квантования является преобладающим вследствие гигантского эффекта Зеемана. Полевая зависимость интенсивности ГВГ позволяет четко идентифицировать механизм спинового квантования для парамагнитных полупроводников.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Zvezdin A. K., Kotov V. A. *Modern Magnetooptics and Magneto-optical Materials*. – Bristol: IOP Publishing, 1997.
2. *Nonlinear Optics in Metals* / Ed. Bennemann K. H. – Oxford: Clarendon Press, 1998.
3. *Magneto-Optics* / Ed. Sugano S., Kojima N. – Berlin: Springer, 2000.
4. *Nonlinear and Integrated Magneto-Optics* (специальный выпуск по нелинейной и интегральной магнитооптике) // J. Opt. Soc. Am. B – 2005, Vol. 22.
5. Шен И. Р. *Принципы нелинейной оптики*. – М.: Наука, 1989.
6. Бломберген Н. *Нелинейная оптика*. – М.: Мир, 1966.
7. Birss R. R. *Symmetry and Magnetism*. – Amsterdam: North-Holland, 1966.
8. Fiebig M., Fröhlich D., Krichevtsov B. B., Pisarev R. V. // Phys. Rev. Lett. – 1994, Vol. 73. – P. 2127-2130.
9. Pisarev R. V., Sängler I., Petrakovskii G. A., and Fiebig M. // Phys. Rev. Lett. – 2004, Vol. 93. – P. 037204-1-4.
10. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. *Квантовая механика*. – М.: Наука, 1989, 768 С.
11. *Landau Level Spectroscopy* / Eds. Landwehr G. and Rashba E. I. – Amsterdam: Elsevier Science, 1991.
12. Furdyna J. K. // J. Appl. Phys. – 1988, Vol. 64. – P. R29-R64.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- A1. Кричевцов Б. Б., Павлов В. В., Писарев Р. В. // Письма в ЖЭТФ – 1989, Т. 49, В. 8. – С. 466-469.
- A2. Кричевцов Б. Б., Павлов В. В., Писарев Р. В. // ФТТ – 1989, Т. 31, В. 7. – С. 77-88.
- A3. Pisarev R. V., Pavlov V. V., Kirilyuk A., and Rasing Th. // J. Magn. Soc. Jpn. – 1996, Vol. 20, No. S1. – P. 23-28. / Труды международного симпозиума по магнитооптической записи (MORIS'1996), Нордвикхут, Нидерланды, 1996.
- A4. Павлов В. В., Писарев Р. В., Кирилюк А., Расинг Т. // Тезисы докладов XV Всероссийской школы семинара "Новые магнитные материалы микроэлектроники"(Москва, Россия, 1996) – С. 291-292.
- A5. Гриднев В. Н., Кричевцов Б. Б., Павлов В. В., Писарев Р. В. // Письма в ЖЭТФ – 1997, Т. 65. – С. 65-70.
- A6. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing Th. // Phys. Rev. Lett. – 1997, Vol. 78. – P. 2004-2007.
- A7. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing Th. // J. Appl. Phys. – 1997, Vol. 81. – P. 4631-4633.
- A8. Гриднев В. Н., Кричевцов Б. Б., Павлов В. В., Писарев Р. В., Ржевский А. А. // ФТТ – 1998, Т. 40. – P. 946-948.
- A9. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fröhlich D., Leute St. // Труды 6 Японского-СНГ симпозиума по сегнетоэлектричеству (JCBSF-6) (Токио, Япония, 1998).
- A10. Fröhlich D., Leute St., Pavlov V. V., Pisarev R. // Phys. Rev. Lett. – 1998, Vol. 81. – P. 3239-3242.
- A11. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fröhlich D., Leute St. // Proc. SPIE – 1999, Vol. 3732. – P. 72-82 / Труды XVI международной конференции по когерентной и нелинейной оптике (КиНО'1998), Москва, Россия, 1998.
- A12. Fröhlich D., Leute St., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kohn K. // J. Appl. Phys. – 1999, Vol. 85. – P. 4762-4764 / Труды 43 международной конференции по магнетизму и магнитным материалам (МММ'1998), Майами, Флорида, США, 1998.
- A13. Pavlov V. V., Tessier G., Malouin C., Georges P., Brun A., Renard D., Meyer P., Ferré J., Beauvillain P. // Appl. Phys. Lett. – 1999, Vol. 75. – P. 190-192.

A14. Kirilyuk A., Pisarev R. V., Gridnev V. N., Pavlov V. V., Rasing Th. // *J. Magn. Soc. Japan* – 1999, Vol. 23. – P. 346-351.

A15. Kirilyuk A., Rasing Th., Pavlov V. V., Pisarev R. V. // *J. Magn. Soc. Jpn.* – 1999, Vol. 23. S1 – P. 139.

A16. Banshchikov A. G., Kimel A. V., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Sokolov N. S., Rasing Th. // Труды 7-ого Международного симпозиума "Наноструктуры: физика и технология", С.-Петербург, Россия, 1999, – С. 228-231.

A17. Banshchikov A. G., Kimel A. V., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Sokolov N. S., Rasing Th. // *IEEE Trans. Magn.* – 1999, Vol. 35. – P. 3127-3129 / Труды международной конференции по магнетикам (1999-IEEE INTERMAG'99), Кунгжу, Корея, 1999.

A18. Банщиков А. Г., Кимель А. В., Павлов В. В., Писарев Р. В., Соколов Н. С., Rasing Th. // *ФТТ* – 2000, Т. 42. – С. 884-892.

A19. Kirilyuk A., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Rasing Th. // *Phys. Rev. B* – 2000, Vol. 61. – P. R3796-R3799.

A20. Fiebig M., Fröhlich D., Kohn K., Leute St., Lottermoser Th., Pavlov V. V., Pisarev R. V. // *Phys. Rev. Lett.* – 2000, Vol. 84. – P. 5620-5623.

A21. Кимель А. В., Павлов В. В., Писарев Р. В., Гриднев В. Н., Bentivegna F., Rasing Th. // Сборник трудов XVII Международной школы-семинара "Новые магнитные материалы микроэлектроники"(Москва, Россия, 2000) – С. 242-247.

A22. Gridnev V. N., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing Th. // *Phys. Rev. B* – 2001, Vol. 63. – P. 1844071-1-11.

A23. Fiebig M., Fröhlich D., Lottermoser Th., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Weber H.-J. // *Phys. Rev. Lett.* – 2001, Vol. 87. – P. 137202-1-4.

A24. Pavlov V. V., Ferré J., Meyer P., Tessier G., Georges P., Brun A., Beauvillain P., Mathet V. // *J. Phys. Cond. Matt.* – 2001, Vol. 13. – P. 9867-9878.

A25. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fiebig M., Fröhlich D., Lottermoser Th., Weber H.-J. // *Proc. SPIE* – 2002, Vol. 4766. – P. 238-247 / Труды XI феофиловского симпозиума по спектроскопии кристаллов, активированных ионами редкоземельных и переходных металлов, Казань, Россия, 2001.

A26. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fiebig M., Fröhlich D., Lottermoser Th. // *Ferroelectrics* – 2002, Vol. 279. – P. 93-109 / Труды IV международ-

ной конференции по явлениям магнитоэлектрических взаимодействий в кристаллах (MEIPIC-IV), Новгород, Россия, 2001.

A27. Pisarev R. V., Pavlov V. V., Fiebig M., Fröhlich D. // Тезисы 3-ей Тематической конференции по нелинейной оптике интерфейсов (НОРТИ'2001), Неймеген, Нидерланды, 2001.

A28. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fiebig M., Fröhlich D. // Сборник материалов XV Международной конференции по когерентной и нелинейной оптике (КиНО'2001), Минск, Белоруссия, 2001.

A29. Pavlov V. V., Pisarev R. V., Fiebig M., Fröhlich D. Nonlinear optical spectroscopy of epitaxial magnetic garnet films // ФНТ (Физика низких температур) – 2002, Т. 28. – С. 733-738.

A30. Павлов В. В., Писарев Р. В., Fiebig M., Fröhlich D. // ФТТ – 2003, Т. 45, В. 4. – С. 630-637.

A31. Fiebig M., Fröhlich D., Lottermoser Th., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Weber H.-J. // J. Magn. Magn. Mater. – 2003, Vol. 258-259. – P. 110-113 / Труды Московского международного симпозиума по магнетизму (Москва, Россия, 2002).

A32. Fiebig M., Lottermoser Th., Pavlov V. V., Pisarev R. V. // J. Appl. Phys. – 2003, Vol. 93. – P. 6900-6902.

A33. Калашникова А. М., Павлов В. В., Писарев Р. В., Безматерных Л. Н., Bayer M., Rasing Th. // Письма ЖЭТФ – 2004, Т. 80. – С. 339-343.

A34. Pavlov V. V., Kalashnikova A. M., Pisarev R. V., Sängner I., Yakovlev D. R., Bayer M. // Специальный выпуск по нелинейной и интегральной магнитооптике, J. Opt. Soc. Am. B – 2005, Vol. 22. – P. 168-175.

A35. Fiebig M., Pavlov V. V., Pisarev R. V. // Специальный выпуск по нелинейной и интегральной магнитооптике, J. Opt. Soc. Am. B – 2005, Vol. 22. – P. 96-118.

A36. Pisarev R. V., Pavlov V. V. // Тезисы Евро-азиатского симпозиума "Прогресс в магнетизме"(EASTMAG-2004) (Красноярск, Россия, 2004) – С. 221.

A37. Kalashnikova A. M., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Bezmaternykh L. N., // Тезисы Евро-азиатского симпозиума "Прогресс в магнетизме"(EASTMAG-2004) (Красноярск, Россия, 2004) – С. 236.

A38. Pavlov V. V., Kalashnikova A. M., Pisarev R. V., Sängner I.,

Yakovlev D. R., Bayer M. // Phys. Rev. Lett. – 2005, Vol. 94. – P. 157404-1-4.

A39. Sänger I., Yakovlev D. R., Pisarev R. V., Pavlov V. V., Bayer M., Karczewski G., Wojtowicz T., Kossut J. // Phys. Rev. Lett. – 2006, Vol. 96. – P. 117211-1-4.

A40. Sänger I., Pavlov V. V., Bayer M., Fiebig M. // Phys. Rev. B – 2006, Vol. 74. – P. 144401-1-9.

A41. Sänger I., Yakovlev D. R., Kaminski B., Pisarev R. V., Pavlov V. V., Bayer M. // Phys. Rev. B – 2006, Vol. 74. – P. 165208-1-17.

A42. Pavlov V. V., Kalashnikova A. M., Pisarev R. V., Sänger I., Yakovlev D. R., Bayer M. // Proc. SPIE – 2006, Vol. 6259. – P. 625903-625912 / Труды Объединенной конференции по когерентной и нелинейной оптике / Лазерам, применениям и технологиям (ICONO/LAT 2005) (С.-Петербург, Россия, 2005).

A43. Sänger I., Kaminski B., Yakovlev D. R., Pisarev R. V., Pavlov V. V., Bayer M., Karczewski G., Wojtowicz T., Kossut J. // Труды 14-ого Международного симпозиума "Наноструктуры: физика и технология", С.-Петербург, Россия, 2006, – С. 67-68.