

КВАДРАТИЧНЫЕ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ на поверхностях, границах раздела и наноструктурах

КВАДРАТИЧНЫЕ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ на поверхностях, границах раздела и наноструктурах

почему «поверхность»?

- свойства поверхности (структурные, симметричные, электронные, корреляционные (магнитные)) существенно отличаются от объемных
- поверхность существенно более активна по отношению к внешним воздействиям (электромагнитные поля, статические электрические и магнитные поля) и взаимодействиям (адсорбция, абсорбция, хемосорбция)
- высокая технологическая привлекательность (плотнее, быстрее, дешевле)

КВАДРАТИЧНЫЕ НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ на поверхностях, границах раздела и наноструктурах

- АНИЗОТРОПНАЯ ВТОРАЯ ГАРМОНИКА $I_{2\omega}(\psi, \theta, \phi)$
- МАГНИТОИНДУЦИРОВАННАЯ ВТОРАЯ ГАРМОНИКА $I_{2\omega}(\mathbf{M})$
- ЭЛЕКТРОИНДУЦИРОВАННАЯ ВТОРАЯ ГАРМОНИКА $I_{2\omega}(\mathbf{E}_0)$
- ИНТЕРФЕРОМЕТРИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ $|\mathbf{E}(2\omega)| \exp(i\phi_{2\omega})$
- ИНТЕРФЕРОМЕТРИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ В ЧАСТОТНОМ
ПРОСТРАНСТВЕ $|\mathbf{E}(2\omega)| \exp(i\phi_{2\omega})$
- СПЕКТРОСКОПИЯ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ $I_{2\omega}(\lambda_\omega)$

квадратичная
восприимчивость

$$\chi^{(2)}$$

квадратичная
поляризация

$$\mathbf{P}(2\omega) = \chi^{(2)} : \mathbf{E}(\omega)\mathbf{E}(\omega)$$

поле второй
гармоники

$$\mathbf{E}(2\omega)$$

интенсивность
второй гармоники

$$I_{2\omega}$$

Нелинейно-оптический отклик поверхности

Вводные замечания (1)

в приближении монохроматической накачки

$$\mathbf{P} = \chi^{(1)} \mathbf{E}(\omega) + \underbrace{\chi^{(2)} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega)}_{\text{ВГ}} + \underbrace{\chi^{(3)} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega)}_{\text{ТГ}} + \dots$$

Разложение поляризации
в ряд по степеням
внешнего поля

$$\mathbf{P}^{(2)}(2\omega) = \chi^{(2,D)} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) + \chi^{(2,Q)} \mathbf{E}(\omega) \nabla \mathbf{E}(\omega) + \dots$$

Разложение квадратичной
(кубичной) поляризации
в ряд по мультиполям

малые параметры рядов: $\alpha = \mathbf{E}(\omega) / \mathbf{E}_{at} \propto 10^{-7}$, $\beta = a_0 / l_{wave}$

l_{wave} - характерный пространственный масштаб изменения
напряженности электромагнитного поля

в объеме $l_{wave} \propto \lambda$

на поверхности $l_{wave} \propto a_0$

Нелинейно-оптический отклик поверхности

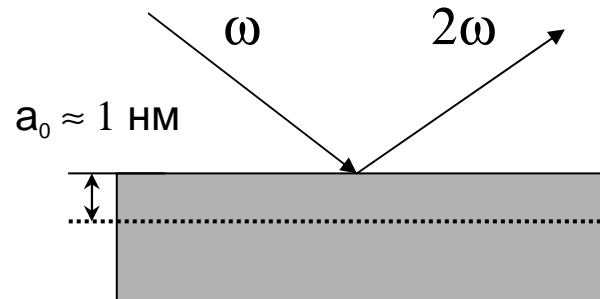
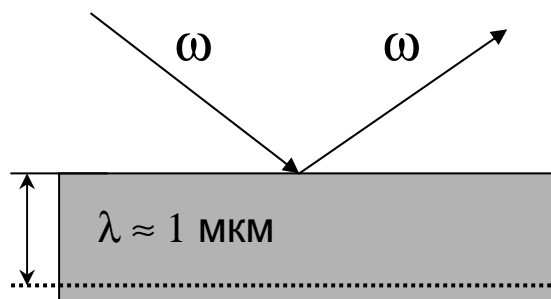
Вводные замечания (2)

для поверхности:

$$\mathbf{P}_S^{(2)}(2\omega) = \chi_S^{(2)} : \mathbf{E}(\omega)\mathbf{E}(\omega)$$

$\mathbf{P}_S^{(2)}(2\omega)$ - эффективная поверхностная квадратичная поляризация $\chi_S^{(2)}$ - эффективная поверхностная квадратичная восприимчивость

характерные толщины линейного и квадратичного отклика вещества

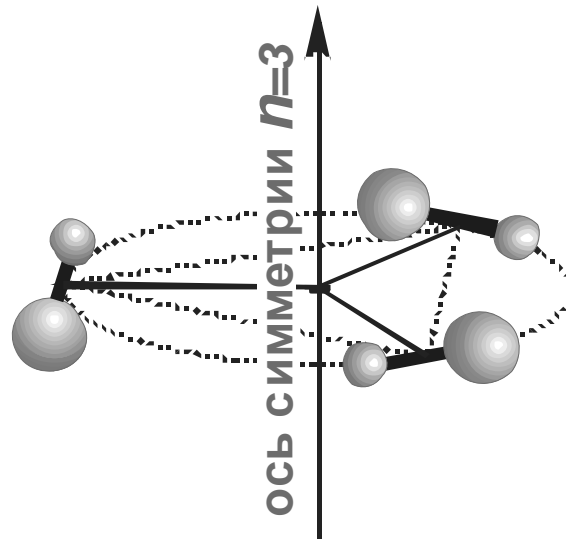
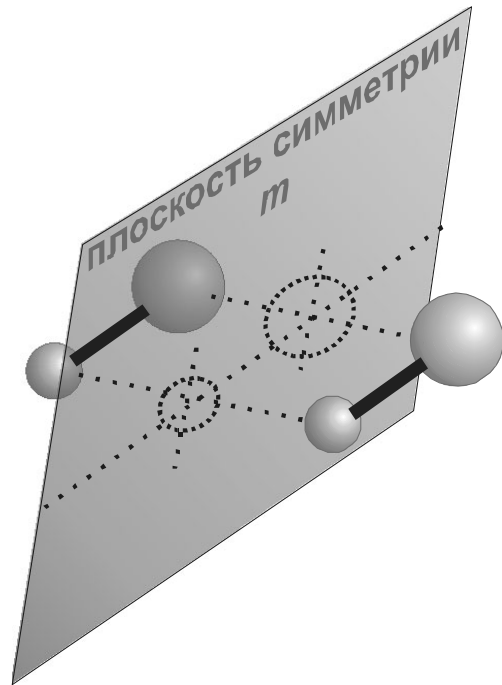


в центросимметричных средах
 $\chi^{(2,D)} \equiv 0$

АНИЗОТРОПНАЯ ВТОРАЯ ГАРМОНИКА

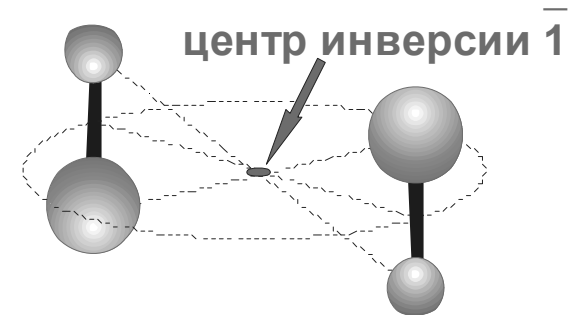
1. ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА

ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА



$$\phi = 2\pi/n$$
$$n = 1, 2, 3, 4, 6$$

ЭЛЕМЕНТЫ СИММЕТРИИ



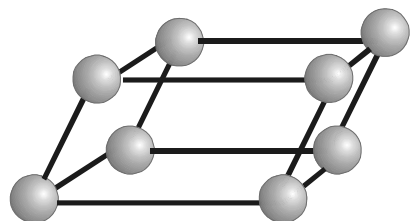
$$\bar{1} = \begin{cases} 2/m \\ 4/m \\ 6/m \end{cases}$$

ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА

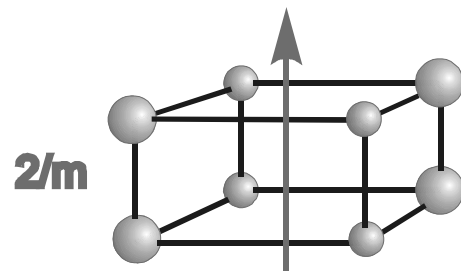
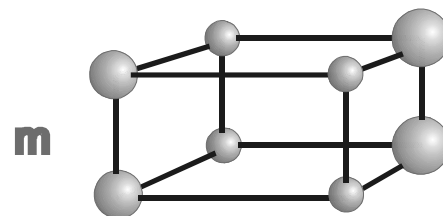
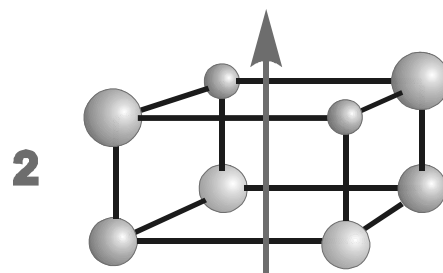
СИНГОНИИ

32 группы симметрии → 6 сингоний

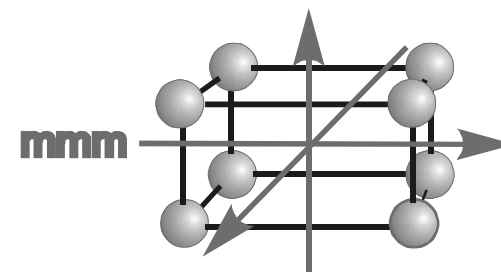
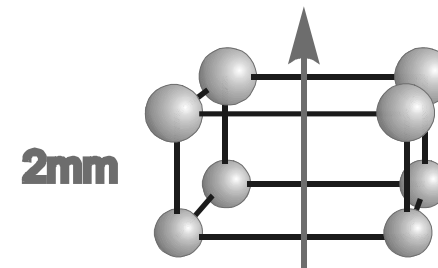
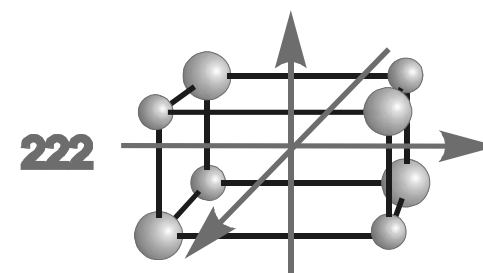
триклинная



моноклинная



ромбическая

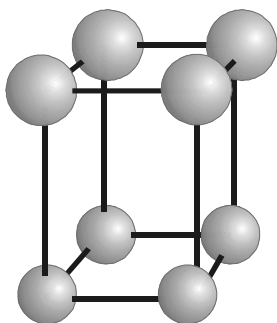


ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА

СИНГОНИИ

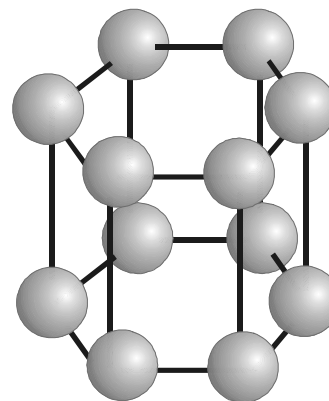
тетрагональная

$4mm$

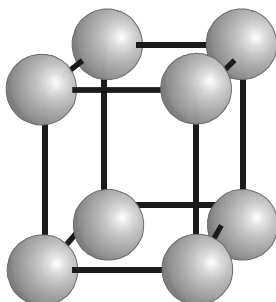


гексагональная

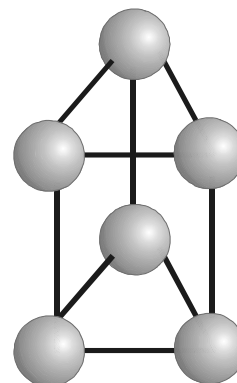
$6mm$



$4/mmm$



$3m$

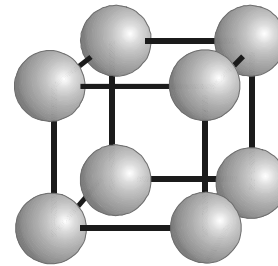


ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА

СИНГОНИИ

кубическая

$m\bar{3}m$



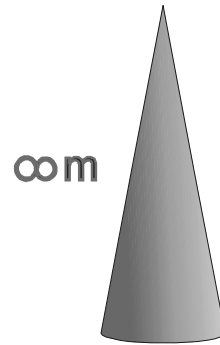
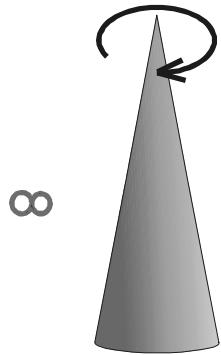
первый символ определяет координатные элементы симметрии,
последний - диагональные,
символ "3" указывает на четыре диагональные оси симметрии порядка 3

$m\bar{3}m$ - четыре оси 3 по биссектрисам координатных
углов, три координатные и три диагональные плоскости симметрии

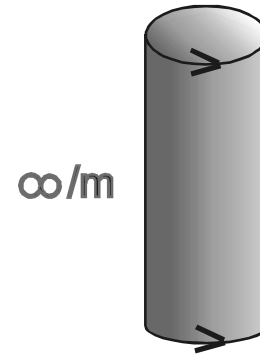
ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА

ПРЕДЕЛЬНЫЕ ТОЧЕЧНЫЕ ГРУППЫ КЮРИ

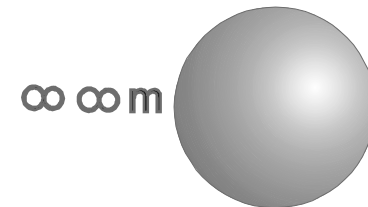
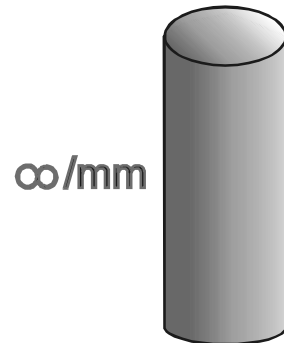
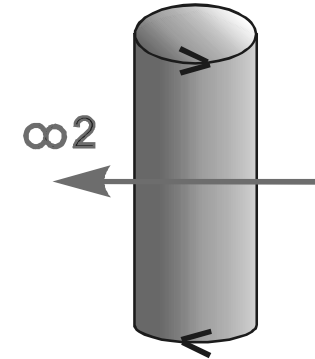
ось симметрии порядка ∞



электростатическое поле



магнитное поле



АНИЗОТРОПНАЯ ВТОРАЯ ГАРМОНИКА

1. ТОЧЕЧНАЯ ГРУППА СИММЕТРИИ КРИСТАЛЛА
2. КВАДРАТИЧНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ И СИММЕТРИЯ КРИСТАЛЛА

КВАДРАТИЧНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ И СИММЕТРИЯ КРИСТАЛЛА

$\chi^{(n)}$ - тензор нелинейной восприимчивости порядка n

x_i - координаты в кристаллографической системе координат
(для кристаллов кубической сингонии - ортонормированные
декартовы координаты)

T_{ij} - тензор преобразования координат операции симметрии кристалла:

$$x'_i = T_{ij} x_j \quad \chi'_{ijk}{}^{(2)} = T_{il} T_{jm} T_{kn} \chi_{lmn}{}^{(2)}$$

инвариантность нелинейной восприимчивости по отношению
ко всем операциям симметрии точечной группы кристалла

$$\chi'_{ijk}{}^{(2)} = \delta_{il} \delta_{jm} \delta_{kn} \chi_{lmn}{}^{(2)}$$

$$(T_{il} T_{jm} T_{kn} - \delta_{il} \delta_{jm} \delta_{kn}) \chi_{lmn}{}^{(2)} = 0$$

КВАДРАТИЧНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ ЦЕНТРОСИММЕТРИЧНЫХ СРЕД

$$T_{\alpha\beta} = -\delta_{\alpha\beta} \longrightarrow \chi_{ijk}^{(2)} = -\chi_{ijk}^{(2)} \longrightarrow \chi_{ijk}^{(2)} \equiv 0$$

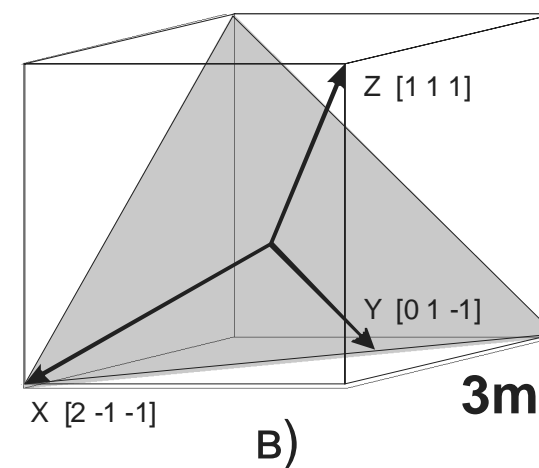
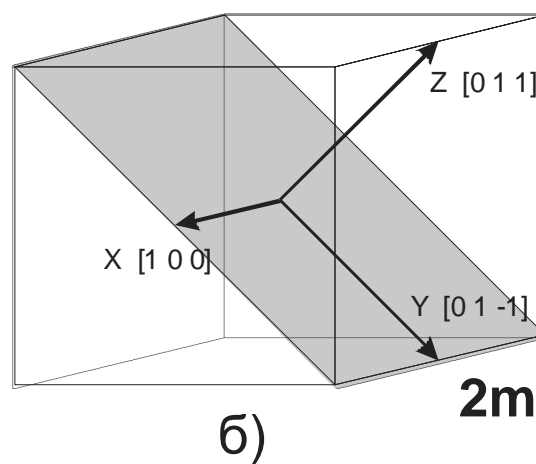
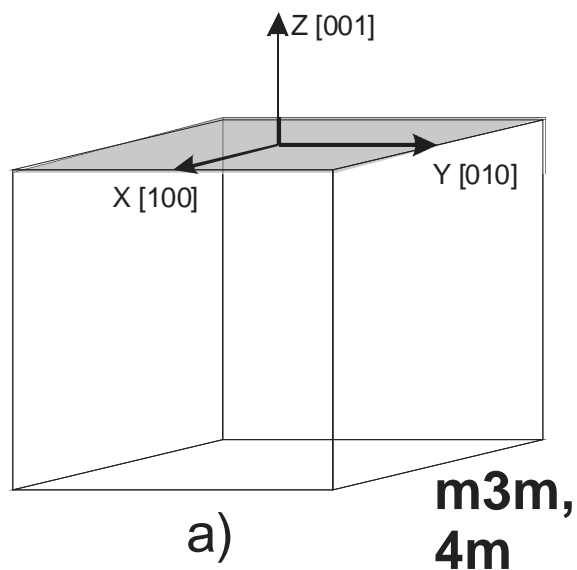
- симметричный запрет на четные нелинейно-оптические эффекты в кристаллах с инверсной симметрией в дипольном приближении

нарушение инверсной симметрии на поверхности $\longrightarrow \chi_{ijk}^{(2)Surface} \neq 0$

поверхность (001) - симметрия **4m**

поверхность (011) - симметрия **2mm**

поверхность (111) - симметрия **3m**



**НЕНУЛЕВЫЕ КОМПОНЕНТЫ КВАДРАТИЧНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ
ПОВЕРХНОСТЕЙ С НИЗКИМИ ИНДЕКСАМИ**

4m

$$\begin{aligned} &\chi_{zzz}^{(2)}, \\ &\chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zyy}^{(2)}, \\ &\chi_{xxz}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)} \end{aligned}$$

2mm

$$\begin{aligned} &\chi_{zzz}^{(2)}, \\ &\chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zyy}^{(2)}, \\ &\chi_{xxz}^{(2)}, \chi_{yyz}^{(2)} \end{aligned}$$

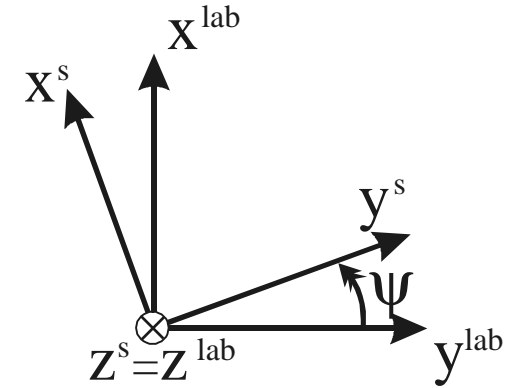
3m

$$\begin{aligned} &\chi_{zzz}^{(2)}, \\ &\chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zyy}^{(2)}, \\ &\chi_{xxz}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)}, \\ &\chi_{xxx}^{(2)} = -\chi_{xyy}^{(2)} = -\chi_{yxy}^{(2)} \end{aligned}$$

ГЕНЕРАЦИЯ АНИЗОТРОПНОЙ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

Задача о вращении поверхности центросимметричного кристалла

$$\chi'_{ijk}{}^{(2)}(\psi) = T_{il}T_{jm}T_{kn}\chi_{lmn}{}^{(2)}$$



тензор ортогонального преобразования
поверхностной системы координат в лабораторную:

$$T_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} \cos \psi & -\sin \psi & 0 \\ \sin \psi & \cos \psi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \longrightarrow \chi'_{ijk}{}^{(2)}(\psi) = \sum_n (C_0 + C_n \cos(n\psi) + S_n \sin(n\psi))$$

ГЕНЕРАЦИЯ АНИЗОТРОПНОЙ ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ: СВЯЗЬ С СИММЕТРИЕЙ ПОВЕРХНОСТИ

VOLUME 51, NUMBER 21

PHYSICAL REVIEW LETTERS

21 NOVEMBER 1983

Second-Harmonic Reflection from Silicon Surfaces and Its Relation to Structural Symmetry

H. W. K. Tom, T. F. Heinz, and Y. R. Shen

Department of Physics, University of California, Berkeley, California 94720, and Materials and Molecular Research Division, Lawrence Berkeley Laboratory, Berkeley, California 94720

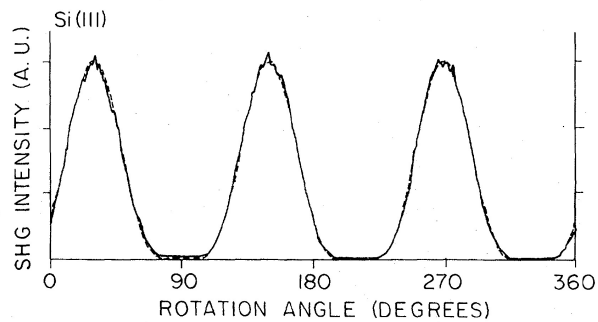


FIG. 2. Intensity of the p -polarized SH reflection from a Si(111) face under p -polarized excitation.

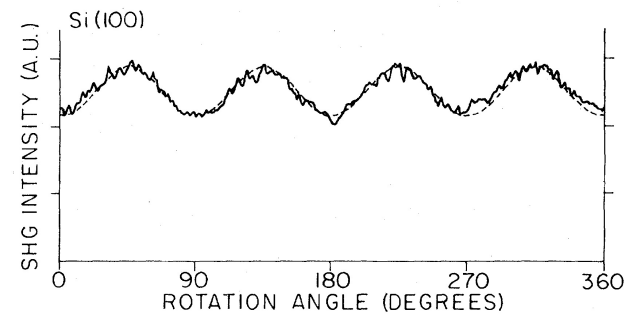


FIG. 3. As in Fig. 2 for Si(100).

