

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ИНТЕНСИВНОСТИ ОПТИЧЕСКИХ ГАРМОНИК В КРИСТАЛЛАХ BaB_2O_4

В. С. Горелик, Е. В. Жаботинский, Г. Г. Митин

Исследована температурная зависимость интенсивности сигналов второй и смешанной оптических гармоник излучения лазера на парах меди ($\lambda = 510,5$ нм и $578,2$ нм) в кристаллах BaB_2O_4 . Обнаружено резкое возрастание интенсивности оптических гармоник вблизи точки сегнетоэлектрического фазового перехода, связанное с изменением структуры кристаллической решетки, и аномалии интенсивности, обусловленные гетерогенным фазовым состоянием.

Как известно /1/, при нагревании метаборат бария BaB_2O_4 при температуре 925°C испытывает сегнетоэлектрический фазовый переход из низкотемпературной нецентросимметричной β -фазы в высокотемпературную центросимметричную α -фазу. Согласно /2/, α - BaB_2O_4 относится к тригональной сингонии с пространственной группой $R\bar{3}c$ (D_{3d}^6). Параметры элементарной ячейки равны: $a = 7,2351 \text{ \AA}$, $c = 39,192 \text{ \AA}$ ($c/a = 5,4169$). В элементарной ячейке кристалла α -фазы содержится 18 формульных единиц. Согласно /3/, β -метаборат бария принадлежит к тригональной сингонии. Эта фаза характеризуется пространственной группой $R3$ (C_3^4) и имеет параметры решетки $a = 12,532 \text{ \AA}$, $c = 12,717 \text{ \AA}$. В элементарной гексагональной ячейке β -фазы содержится 6 формульных единиц. Наибольший практический интерес представляет β - BaB_2O_4 , являющийся перспективным нелинейно-оптическим материалом /4/. Этот интерес обусловлен высокой лазерной прочностью ($13,5 - 20,0 \text{ ГВт/см}^2$ /5/) и широким спектральным диапазоном прозрачности (от 190 нм до $3,3 \text{ мкм}$).

Несмотря на широкое использование кристалла β - BaB_2O_4 в нелинейно-оптических преобразователях частоты лазерного излучения, температурные зависимости интенсивности второй и смешанной гармоник в области сегнетоэлектрического фазового перехода до сих пор не изучены. В связи с этим в данной работе поставлена задача исследования температурной зависимости сигналов второй и смешанной гармоник излучения лазера на парах меди ($\lambda = 510,5$ нм и $578,2$ нм) в кристаллах BaB_2O_4 в широком интервале температур. В качестве образцов для исследования были выбраны поликристаллические порошки BaB_2O_4 , что позволило избежать необходимости подбора условий для достижения фазового синхронизма при изменении температуры.

Для возбуждения ОГ использовался лазер на парах меди ($\lambda = 510,5$ нм и $578,2$ нм). Средняя мощность лазера составляла 1 Вт, импульсная мощность — 20 кВт, частота следования импульсов — 10 кГц.

Регистрация спектра проводилась с помощью монохроматора МСД-2 и ФЭУ-106. Исследования проводились по схеме "на отражение".

Для ослабления в исследуемой области спектра линий газового разряда используемого лазера перед образцом устанавливался абсорбционный светофильтр GG-6. После образца, перед щелью монохроматора использовался светофильтр UG-1, необходимый для подавления возбуждающего излучения.

Вещество помещалось в кювету между двумя плоскопараллельными кварцевыми пластинами. Толщина слоя вещества составляла 0,5—1,5 мм.

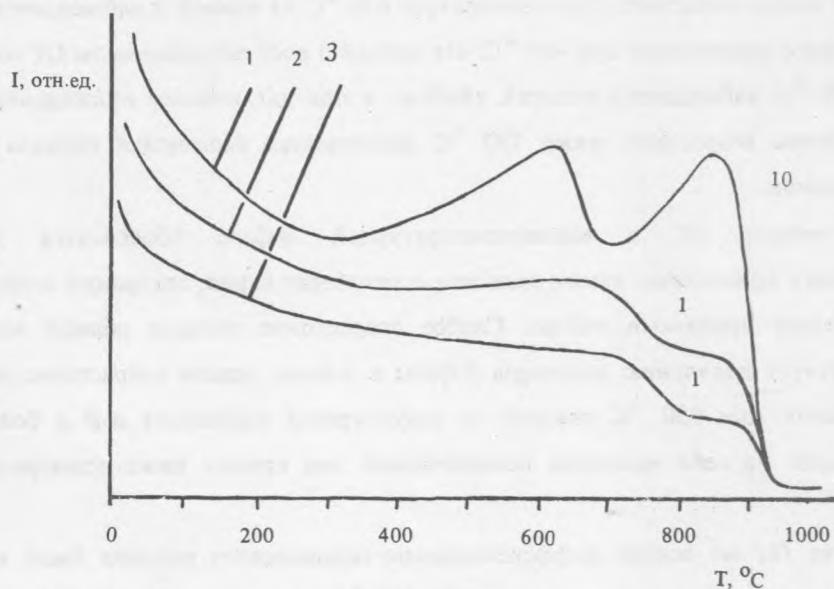


Рис. 1. Температурные зависимости интенсивности сигналов ОГ кристалла BaV_2O_4 (1 — $\lambda = 289,1$ нм; 2 — $\lambda = 271,2$ нм; 3 — $\lambda = 289,1$ нм).

Нагревание и охлаждение проводилось со скоростью 10—15 град/мин. На рис. 1 представлены полученные температурные зависимости интенсивности оптических гармоник (ОГ) для поликристаллических порошков BaV_2O_4 . Кривая 1 ($\lambda = 289,1$ нм) соответствует второй гармонике линии генерации с $\lambda = 578,2$ нм лазера на парах меди, а кривая 3 ($\lambda = 255,3$ нм) — линии генерации с $\lambda = 510,5$ нм. Кривая 2 ($\lambda = 271,2$ нм) соответствует комбинационной частоте.

Температурные зависимости для нагревания и охлаждения при используемых режимах изменения температуры совпадали в пределах погрешности эксперимента.

Как видно из рис. 1, на всех кривых выше температуры фазового перехода интенсивность второй гармоники близка к нулю.

При охлаждении вблизи точки фазового перехода в парафазе наблюдается слабое увеличение интенсивности ОГ. Для кривых 1, 2 и 3 в точке фазового перехода ($T = 930^\circ\text{C}$) сигнал резко возрастает. На кривой 1 рост интенсивности ОГ продолжается до температуры 860°C , при которой наблюдается максимум. При дальнейшем охлаждении для этой кривой в диапазоне температур $860\text{—}700^\circ\text{C}$ происходит плавный спад интенсивности ОГ. Начиная с температуры 700°C , на этой кривой обнаруживается резкий рост интенсивности ОГ до температуры 610°C , а затем плавный спад до 310°C . Начиная с 310°C (кривая 1) наблюдается возрастание интенсивности ОГ.

На кривой 2 интенсивность ОГ резко возрастает в области от 930 до 870°C . Затем в интервале температур $870\text{—}760^\circ\text{C}$ наблюдается насыщение роста интенсивности ОГ, а впоследствии интенсивность ОГ вновь возрастает. При температуре 670°C на кривой 2 наблюдается максимум, а затем плавный спад с минимумом при 400°C . На кривой 3 рост интенсивности ОГ начинается при 930°C . Ниже 870°C наблюдается пологий участок, а при дальнейшем охлаждении образца (от 800°C) сигнал вновь возрастает; ниже 730°C наблюдается насыщение сигнала ОГ, а затем медленное возрастание.

Отсутствие сигнала ОГ в высокотемпературной α -фазе объясняется тем, что в centrosymmetric кристаллах, каким является α -метаборат бария, генерация второй оптической гармоники запрещена правилами отбора. Слабое возрастание сигнала вблизи точки фазового перехода соответствует появлению кластеров β -фазы в α -фазе; резкое возрастание интенсивности оптических гармоник при 930°C связано со структурным переходом $\alpha\text{-}\beta$ в большом объеме кристалла. Обращает на себя внимание немонотонный ход кривых ниже температуры фазового перехода.

Ранее в работе /6/ на основе дифференциально-термического анализа были выявлены две особенности: первая — в области температур $940\text{—}870^\circ\text{C}$, вторая — $650\text{—}590^\circ\text{C}$. Температурное положение этих особенностей коррелирует с наблюдаемыми нами аномалиями интенсивности ОГ. В работе /6/ такие особенности объяснены последовательностью структурных фазовых переходов $\alpha\text{-}\beta\text{-}\gamma$. Однако никаких подтверждений существования γ -фазы в дальнейшем в литературе не приводилось. В связи с этим не исключено объяснение низкотемпературных аномалий проявлением гетерогенных состояний на основе α - и β -фаз.

Последнее находит подтверждение в различии между кривыми 2, 3 и 1, которые соответствуют различной толщине излучающего ОГ слоя образца. Толщина такого слоя определяется коэффициентом поглощения, возрастающим с увеличением длины волны.

Таким образом, в данной работе получены температурные зависимости интенсивности сигналов второй и смешанной гармоник ($\lambda = 255,2; 271,2; 289,1$ нм) в порошках BaV_2O_4 .

Обнаружены аномалии интенсивности ОГ в области температур 900 и 600 °С. Наблюдаемые аномалии объясняются сегнетоэлектрическим фазовым переходом α - β и формированием гетерогенных фазовых состояний вблизи поверхности образца.

ЛИТЕРАТУРА

1. И в л е в а Л. И. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 1, 24 (1990).
2. Index to the X-ray Powder Data File, American Society for Testing and Materials, No. 15, p. 862, Pennsylvania, USA, 1977.
3. H u S h a o F a n g, M o H e i J u n, H u a n g h i n - C l i n g. Acta Phys. Sinica, 31, 948 (1982).
4. Z h a n g G u a n g y i n, Z a n g Y a n y o n g, W u B a i c h a n g. Acta Opt. Sinica, 5, 548 (1985).
5. A d h a v R. S., A d h a v S. R., P e l a p r a t J. M. Laser Focus, No. 9, 88 (1987).
6. Y a m a g u c h i O. Ceramurgia International, 6, 312 (1980).

Поступила в редакцию 3 июля 1992 г.