



УДК 548

С.В. Иванова

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Россия,  
119991, Москва, Ленинский пр-т., 53, E-mail: ivanova@sci.lebedev.ru

## НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В НЕСОРАЗМЕРНОМ КРИСТАЛЛЕ

Представлены результаты температурных исследований рассеянного излучения технологически важным кристаллом барий натриевого ниобата в широкой температурной области ( $20 \div 600$  °С). Сложная картина рассеяния на экране в дальнем поле обнаружена в температурной области вблизи сегнетоэлектрического фазового перехода ( $T_C = 550$  °С). Обнаружена аналогия с поведением рассеянного излучения в области несоответственной фазы ниже  $300$  °С, которая наблюдалась при структурных исследованиях кристалла (литературные данные). Сделан вывод о несоответственном характере новой фазы вблизи сегнетоэлектрического фазового перехода.

НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ КРИСТАЛЛЫ, РАССЕЯНИЕ, СТРУКТУРА, ДОМЕНЫ,  
ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ, НЕСОРАЗМЕРНЫЕ ФАЗЫ.

### ВВЕДЕНИЕ

При исследовании потоков оптическими методами возникает необходимость использовать технологические устройства с элементами, параметры которых зависят от нелинейных оптических и электрооптических свойств используемых материалов, из которых изготавливаются усилители, модуляторы, переключатели. Исследование оптических и сегнетоэлектрических характеристик кристаллов позволяет получить сведения о сложных взаимодействиях зондирующего излучения с кристаллической структурой и причинах нелинейности исследованных материалов.

Технологически важный нелинейный кристалл ниобата бария натрия ( $Ba_2NaNb_5O_{15}$ , BSN) является сегнетоэлектриком со структурой тетрагональной вольфрамовой бронзы. Кристалл имеет высокие нелинейно-оптические коэффициенты и сложную последовательность фазовых превращений при изменении температуры [1-4]. Кристалл претерпевает два структурных фазовых перехода – сегнетоэлектрический при температуре  $550^\circ\text{C}$  в тетрагональную фазу и сегнетоэластический вблизи температуры  $300^\circ\text{C}$  в орторомбическую несоответственную фазу. При исследовании кристалла рентгеновским дифракционным методом ниже  $300^\circ\text{C}$  было обнаружено сосуществование орторомбической фазы с одним направлением модуляции (1q состояние) и тетрагональной фазы в двумя перпендикулярными направлениями модуляции (2q состояние). Наблюдалось изменение соотношения 1q/2q при нагревании и охлаждении кристалла [3]. В работе [2] методом электронной микроскопии исследовалась эволюция доменной структуры и определены размеры доменов от  $20$  нм вблизи  $300^\circ\text{C}$  до  $100$  нм при охлаждении кристалла до комнатной температуры. В работах [1-3] не было обнаружено несоответственных фаз выше  $300^\circ\text{C}$ .

В работе [4] при изучении электронных дифракционных картин были обнаружены несоразмерные сателлитные дифракционные пятна вплоть до сегнетоэлектрического фазового перехода.

В работах [5, 6] при исследовании рассеянного излучения при нагревании в области 20-300°C на экране в дальнем поле наблюдались сложные картины рассеянного излучения. Температурные изменения картин в дальнем поле соответствовали эволюции нанодоменных структур, наблюдаемых в работах [2, 3].

В настоящей работе были проведены исследования рассеянного кристаллом BSN излучения в температурной области 20-600°C и обнаружена фаза вблизи температуры сегнетоэлектрического фазового перехода, исследованы ее свойства. Обнаружилась зависимость интенсивности рассеяния от условий роста кристалла, геометрии рассеяния. Было обнаружено соответствие изменений интенсивности рассеянного излучения в дальнем поле поведению упругого рассеяния. Сопоставлено температурное поведение рассеянного излучения структурным данным.

## МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И РЕЗУЛЬТАТЫ

### Эксперимент

Нелинейные оптические свойства BSN кристалла изучены методами рассеяния в температурной области 20-600°C. Образцы (3x4x5 мм<sup>3</sup>) были вырезаны перпендикулярно главным кристаллографическим осям *a*, *b*, *c*. Фокусированный луч аргонового лазера ( $\lambda = 514,5$  нм,  $P = 30-300$  мВт) распространялся внутри ориентированного образца. Поперечный диаметр лазерного пятна на поверхности кристалла составлял около 20 мкм. Измерения проводились при различной поляризации возбуждающего излучения по отношению к кристаллографическим осям. Направление лазерного луча в различных экспериментах было параллельным или перпендикулярным оптической сегнетоэлектрической оси кристалла *c*. Образец помещался в печь с четырьмя окнами, позволяющими наблюдать след луча в кристалле. Картина рассеянного излучения, прошедшего через кристалл, наблюдалась на экране в дальнем поле (около 200 см от образца). Спектры 90°- упругого рассеяния регистрировались спектрометром ДФС-12.

### Результаты

В настоящей работе представлены результаты исследования температурного поведения рассеянного излучения сегнетоэлектрическим кристаллом барий натриевого ниобата в температурной области 20-600°C. Фокусировка и дефокусировка лазерного луча наблюдалась на экране в дальнем поле. Картина рассеяния представляла собой систему полос, кругов, эллипсов, изменяющихся в определенной последовательности в зависимости от температурной области. Результаты показали соответствие температурных изменений картин рассеяния на экране в дальнем поле температурным аномалиям на кривых интенсивности упругого рассеяния.

Типичное температурное поведение картин рассеяния на экране в дальнем поле представлено на рисунке 1 при распространении лазерного луча вдоль сегнетоэлектрической оси *c* перпендикулярно плоскости *ab* с поляризацией луча вдоль оси *a*. Температуры, при которых происходят изменения картин рассеяния (200°C, 250°C, 300°C и 550°C), соответствуют фазовым переходам при температурных структурных исследованиях кристаллов.

На температурных кривых упругого рассеяния в области этих температур наблюдалось аномальное поведение рассеянного излучения [5, 6]. В области 200-300°C обнаружена несоразмерная фаза и происходят изменения в поведении нанодоменных структур, определяющих эту фазу, согласно структурным исследованиям [2, 3].

При дальнейшем нагревании кристалла между 300 и 450°C лазерный луч проходит через кристалл без искажения.

В области от 460°C до сегнетоэлектрического фазового перехода ( $T_C = 550^\circ\text{C}$ ) наблюдается деформация пятна рассеянного излучения. Круг разбивается на полосы, количество полос увеличивается, затем уменьшается.

При сравнении поведения картин рассеяния в области 200-300°C и 460-545°C можно наблюдать сходство в поведении рассеянного излучения. Выше температуры сегнетоэлектрического фазового перехода в параэлектрическую фазу лазерный луч резко меняет свою форму на округлую.

Несоразмерных фаз выше 300°C в работах [1-3] структурными методами обнаружено не было. В работе [4] было проведено детальное изучение этой области температур методом электронной микроскопии и обнаружены сателлиты, характеризующие несоразмерную фазу. Опираясь на эту работу и наши данные можно сделать вывод о несоразмерной структуре этой температурной области кристалла.

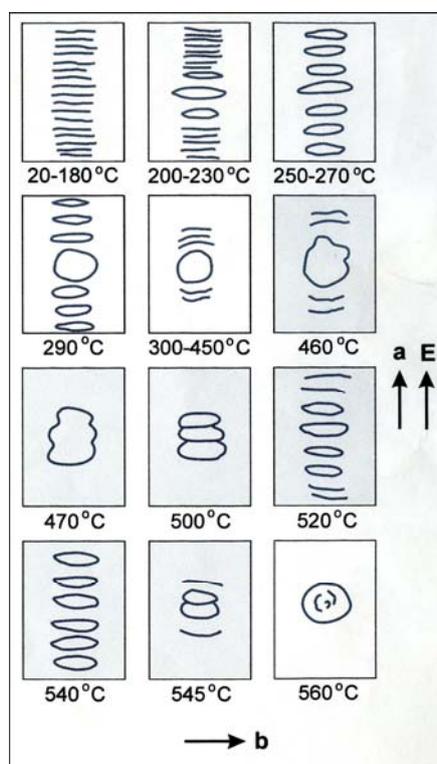


Рис. 1. Схематическое описание пространственного распределения рассеянного излучения в дальнем поле при нагревании в температурной области 20-560°C. Лазерный луч ( $\lambda = 514,5 \text{ нм}$ ) распространяется в кристалле параллельно оптической оси  $c$ , поляризация луча - вдоль оси  $a$ . Выделенные картины (460°C-545°C) определяют температурную область новой фазы

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При изучении температурного поведения рассеянного излучения в широкой температурной области обнаружены области с одинаковой последовательностью картин рассеянного излучения. Область между 250°C и 300°C идентична области между 450°C и 545°C. Между 300°C и 450°C расположена область температур, при которых лазерный луч проходит через кристалл без искажения.

Обнаружена корреляция между температурным поведением картин рассеяния в дальнем поле и температурной эволюцией нано- доменных структур в области несоразмерной фазы ниже 300°C [2, 3].

Сравнивая картины рассеяния в области несоизмерной фазы ниже 300°C и в области сегнетоэлектрического фазовых перехода вблизи 500°C и сопоставляя эти данных со структурными результатами [2-4], можно сделать вывод о несоизмерном характере новой фазы.

Определены границы новой фазы: нижняя в области 450°C, верхняя граница определяется сегнетоэлектрическим фазовым переходом (550°C).

Обнаружена зависимость интенсивности рассеяния от условий роста кристалла, геометрии рассеяния.

## **БЛАГОДАРНОСТИ**

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 11-02-01269-а).

## **СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

- 1. J. Schneck, J.C. Toledano, C. Joffrin, J. Aubree, B. Joukoff, and A. Gabelotaud.** Neutron scattering study of the tetragonal-to-incommensurate ferroelastic transition in barium sodium niobate // Phys. Rev. B 25. 1982. P. 1766-1785.
- 2. S. Mori, N. Yamamoto, Y. Koyama, Y. Uesu.** Memory effect, defect density wave, and related microdomain structure in incommensurate phase of barium sodium niobate // Phys. Rev. B 52. 1995. P. 6158-6161.
- 3. J. M. Kiat, G. Calvarin, J. Schneck.** Coexistence of the 1q and 2q incommensurate phases and memory effect in barium sodium niobate // Phys. Rev. B 49. 1994. 776-785.
- 4. Pan Xiao-qing, Hu Mei-shen, Yao Ming-hui, Feng Duan.** Tem study of the incommensurate phase and related phase transitions in barium sodium niobate // Phys. Stat. Sol. (a) 92. 1985. P. 57-68.
- 5. Ivanova S.V.** Investigation of peculiarities of light scattering by nanostructural changes in crystal lattice of ferroelectrib barium sodium niobate crystal // Journal of Nanoscience. V. 3. 2004. P. 815-818.
- 6. Ivanova S.V.** Formation and evolution of far-field patterns of laser beam passing through nonlinear crystal and Raman spectra // Abstract Book. 9-th European conference on nonlinear optical spectroscopy: Jacobs University Bremen, Germany, 2010. P. 68.

S.V. Ivanova

*P.N. Lebedev Physical Institute of RAS), Russia,  
119991, Moscow, Leninskii Pr. 53, E-mail: ivanova@sci.lebedev.ru*

## **NONLINEAR OPTICAL EFFECTS IN INCOMMENSURATELY CRYSTAL**

*In the present work has been presented the results of investigation of the temperature behavior of scattering of light by technological importance nonlinear crystal of barium sodium niobate in wide range of temperature (20-800°C). The complex pattern of light scattering was discovered on the screen in far field near the ferroelectric phase transition (550°C). It was discovered analogy with behavior of light scattering in range of incommensurately phase near 300°, which has been discovered at structural studies (from literature data). On this basis the range near ferroelectric phase transition is new incommensurately phase.*

**NONLINEAR OPTICAL CRYSTALS, LIGHT SCATTERING, STRUCTURE, DOMAINS, PHASE TRANSITIONS, INCOMMENSURATE PHASES.**