УДК 535. 361

ОСОБЛИВОСТІ ДРУГОЇ ОПТИЧНОЇ ГАРМОНІКИ ПОБЛИЗУ ТОЧКИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДУ В КЕРАМІЦІ ЦИРКОНАТУ-ТИТАНАТУ СВИНЦЮ

Точилін С.Д., к.ф.-м.н., доцент, Точилін Д.С., студент

Запорізький державний університет

Метод другої оптичної гармоніки (ДОГ) є перспективним для вивчення фазових переходів у кристалах [1,2].

Інтенсивність сигналу ДОГ залежить від параметрів кристалічної гратки. Зокрема, у різноманітних кристалічних модифікаціях інтенсивність сигналу виявляється різною. Це дозволяє достатньо легко визначити наявність фазового перетворення в кристалі і його температуру.

Крім того, у ряді робіт по дослідженню нелінійних оптичних властивостей сегнетоелектричних кристалів установлено, що інтенсивність генерації ДОГ пов'язана з величиною спонтанної поляризації P_S, див. наприклад [2].

У цій роботі була поставлена задача дослідження ДОГ у зразках сегнетокераміки цирконату-титанату свинцю ЦТС-19 і ЦТС-36, що зазнають сегнетоелектричні фазові переходи при 563 К и 623 К відповідно.

Збудження ДОГ здійснювалося імпульсним лазером на алюмоітрієвому гранаті. Щільність випромінювання складала ~10^6 Вт/см, довжина хвилі – 1,06 мкм. Сигнал ДОГ реєструвався подвійним монохроматором ДФС-24. Використовувалася оптична схема "на отвір". Зразки для досліджень являли собою прямокутні пластини розміром 6.0×6.0×0.5мм^3 і 10.0×10.0×0.2мм^3 для ЦТС-19 і ЦТС-36 відповідно. Нагрівання кераміки здійснювалося у трубчастій печі опору. Для виміру температури використовувалася термопара хромель-копель.

На рис.1 наведені температурні залежності сигналу ДОГ, отримані нами для зразків ЦТС-19 і ЦТС-36, в області їх сегнетоелектричних фазових переходів. Як видно з цього рисунка, інтенсивність ДОГ для досліджуваних зразків, монотонно спадає в міру наближення до точки структурного перетворення, не виявляючи при цьому яких-небудь особливостей.

Крім того, в обох зразках, існує достатньо сильний сигнал ДОГ у параелектричній фазі, із підвищенням температури більш плавно спадаючий ніж у сегнетофазі.

Як було показано в роботі [2], температурна залежність інтенсивності генерації ДОГ великого числа сегнетоелектриків близька до відповідної залежності для квадрата спонтанної поляризації в області фазового переходу. У той же час спонтанна поляризація є параметром порядку для сегнетоелектричних фазових переходів у кристалах. У цьому випадку можна припустити, що для температурної залежності інтенсивності ДОГ $J_{2\omega}$ існує:

$$J_{2\omega} \sim P_S^2 \sim \eta_0^2 \sim X^{2\beta} \qquad (1)$$

η_0 – рівноважне значення параметра порядку, $X = \theta - T$, T – температура, θ – температура фазового переходу, β – критичний індекс параметра порядку (у сучасній теорії критичних явищ [3] значення β змінюється в межах від 0.25 до 0.5.

Вираз (1) використовувався нами для зіставлення з експериментальними температурними залежностями $J_{2\omega}$ в ЦТС-19 і ЦТС-36. При цьому, значення β в (1) дорівнювались 0.33 та 0.28 для ЦТС-19 і ЦТС-36 відповідно. Значення β були отримані нами при суміщенні експериментальних і теоретичних даних для $J_{2\omega}$ при X_1 = 10 ºК и X_2 = 30 ºК.

Як можно побачити на рис.1, спостерігається задовільна згода теорії з експериментом по велечині $J_{2\omega}$ для ЦТС-19 і ЦТС-36 в усьому досліджуваному температурному інтервалі (точки на рис.1 відповідають значенням $J_{2\omega}$, отриманим за виразом (1)).

Спостереження залишкового сигналу ДОГ у параелектричній фазі досліджуваних керамічних зразків можна пояснити утворенням "довгоживучих" (статичних) кластерів спонтанної поляризації за рахунок їхньої стабілізації дефектами структури. На основі проведених експериментів можна оцінити енергію активації відповідних кластерів. Для цього використовувався такий вид температурної залежності ДОГ у параелектричній фазі [4]:

$$J_{2\omega} = J_\theta \exp\left(E_a / kT\right), \tag{2}$$

де J_θ – сигнал ДОГ при температурі фазового переходу, E_a – енергія активації, k – постійна Больцмана.

На рис.2 у збільшеному масштабі, у порівнянні з рис.1, наведені залежності $J_{2\omega}$ від температури в парафазі зразків ЦТС-19 і ЦТС-36. Крім того, на рис.2 подані характерні для симетричної фази графіки $\ln\left(J_{2\omega}/J_\theta\right) = f\left(1/T\right)$. Як очевидно з рис.2, залежність $\ln\left(J_{2\omega}/J_\theta\right) = f\left(1/T\right)$ у парафазі ЦТС-19 і ЦТС-36 має лінійний характер, тобто узгоджується з виразом (2) .

Обчислена за нахилом кривих енергія активації склала 2.0 еВ і 2.4 еВ для ЦТС-19 і ЦТС-36 відповідно.

Таким чином, отримані експериментальні температурні залежності інтенсивності ДОГ у сегнетокераміці ЦТС-19 і ЦТС-36, проведене їхнє зіставлення з теоретичними.

Визначені енергії активації сегнетоелектричних кластерів вище точки Кюрі в досліджуваних сегнетокерамічних зразках.

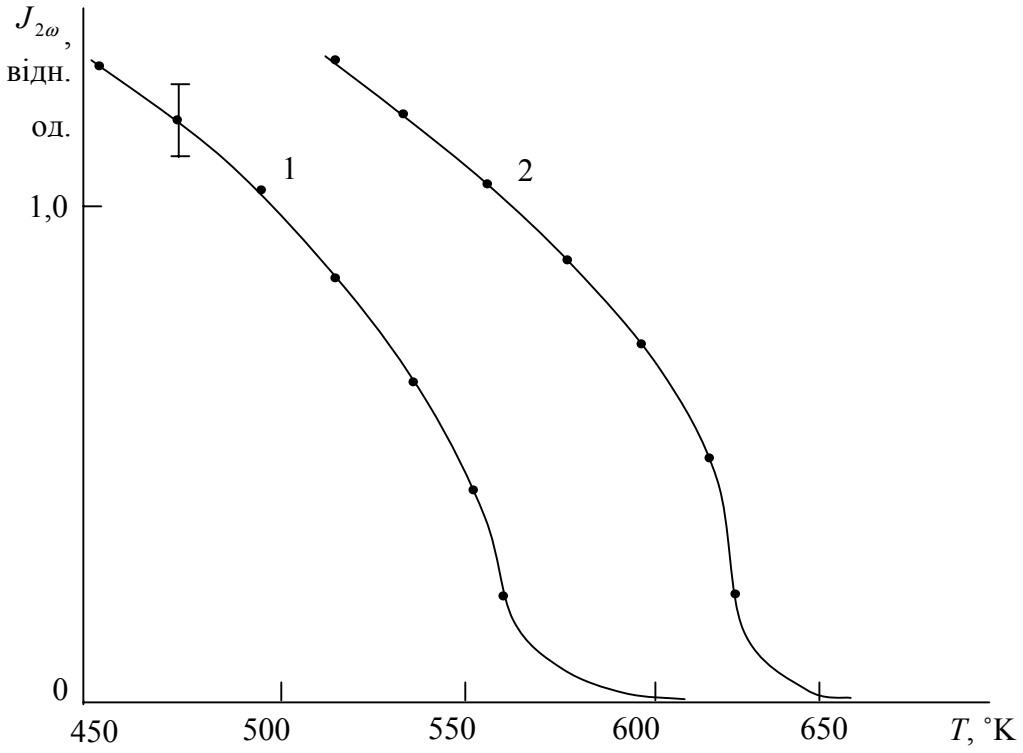


Рис.1. Температурні залежності ДОГ у сегнетокераміці ЦТС-19 (крива 1) і ЦТС-36 (крива 2). Точки на рисунку – теоретичні значення $J_{2\omega}$.

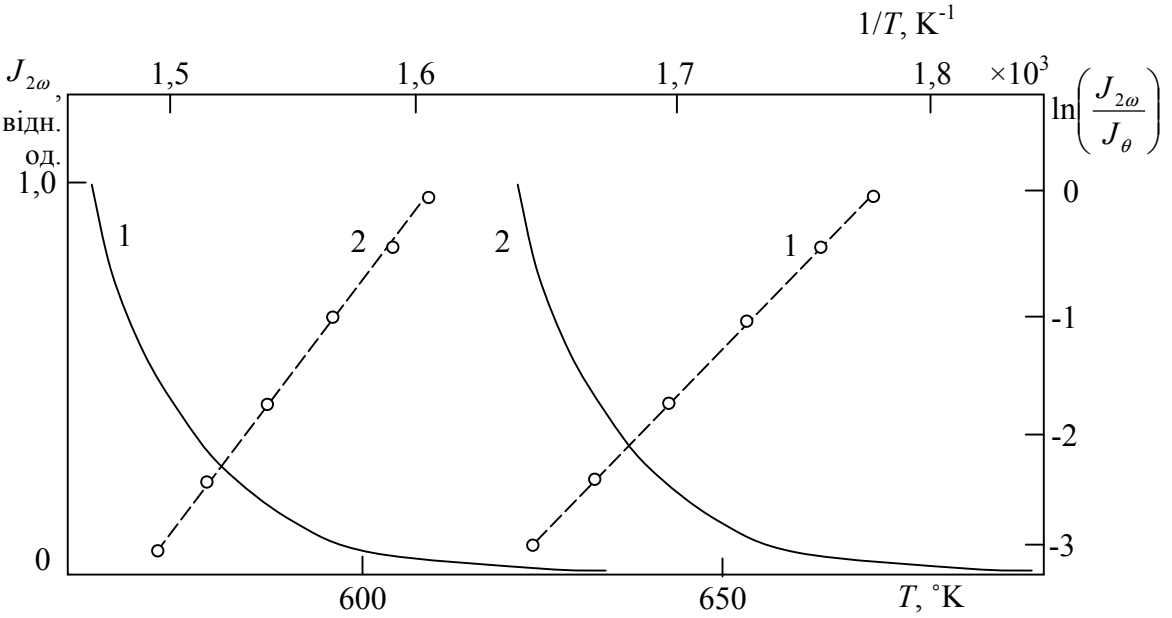


Рис.2. Залежності ДОГ від температури в кераміці цирконату-титанату свинцю в парафазі – суцільні криві. Залежності $\ln(J_{2\omega}/J_\theta)$ від $1/T$ – штрихові прямі. 1 – ЦТС-19, 2 – ЦТС-36. Точки на рисунку – теоретичні значення $\ln(J_{2\omega}/J_\theta)$, визначені за (2).

ЛІТЕРАТУРА

1. Митин Г.Г., Горелик В.С., Мацонашвили Б.Н., Сущинский М.М. Исследование фазовых переходов в титанате бария методом второй оптической гармоники // ФТТ. –1974. –Т.16. –Вып.5. –С.1261-1264.
2. Кузьминов Ю.С. Сегнетоэлектрические кристаллы для управ ления лазерным излучением. –М.: Наука, 1982. –400 с.
3. Брус А., Каули Р. Структурные фазовые переходы. –М.: Мир, 1984. –408 с.
4. Агальцов А.М., Горелик В.С., Митин Г.Г. Особенности второй оптической гармоники вблизи температуры фазового перехода в сегнетоэлектрических кристаллах // Краткие сооб щения по физике.- 1986. –№11. –С.3-5.