

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ В СЕГНЕТОМАГНЕТИКЕ ФЕРРИТЕ ВИСМУТА

А.М. Агальцов, В.С. Горелик, А.К. Звездин, В.А. Мурашов, Д.Н. Раков

Обнаружено изменение интенсивности второй оптической гармоники вблизи точек Кюри и Нееля в сегнетомагнетике феррите висмута.

Исследования температурной зависимости второй оптической гармоники (ВОГ) в тонком приповерхностном слое сегнетоэлектрических кристаллов проведены для геометрии "на отражение" в титанате бария /1, 2/ в условиях, когда излучение на частоте ВОГ сильно поглощается нелинейным кристаллом. Обнаружено, что вблизи точки перехода от полярной (нецентросимметричной) фазы к параэлектрической (центросимметричной) сигнал ВОГ резко падает. Такой эффект объясняется тем, что интенсивность ВОГ, связанной с определенными компонентами тензора нелинейной восприимчивости χ_{ijk} , пропорциональна квадрату спонтанной поляризации P_S^2 и должна быстро падать с повышением температуры выше точки Кюри.

Для феррита висмута, близкого по структуре к титанату бария, реализуется как сегнетоэлектрический (точка Кюри $T_C = 815^\circ\text{C}$) фазовый переход, так и переход в магнитоупорядоченное (антиферромагнитное) состояние (точка Нееля $T_N = 362^\circ\text{C}$). Согласно /3/, структура этого кристалла представляет собой антиферромагнитную спираль с периодом 62 нм и направлением (осью) спирали, лежащем в базисной плоскости кристалла. Направление спирали не является однородным по образцу; оно может изменяться в зависимости от дефектности кристалла, но остается при этом в базисной плоскости.

В данной работе исследована температурная зависимость интенсивности ВОГ в кристалле феррита висмута как в области сегнетоэлектрического, так и магнитного фазовых переходов. Оптические исследования сегнетоэлектрического фазового перехода дают дополнительную информацию о характере полярного упорядочения, а данные по антиферромагнитному переходу представляют интерес в связи с возможностью влияния магнитного упорядочения на спонтанную поляризацию.

Для экспериментальных исследований использовались монокристаллы феррита висмута, выращенные методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве в системе $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{Fe}_2\text{O}_3 - \text{NaCl}$. Кристаллы получались при охлаждении расплава со скоростью 0,5 град/ч в интервале температур 870 – 820 °С из ших-

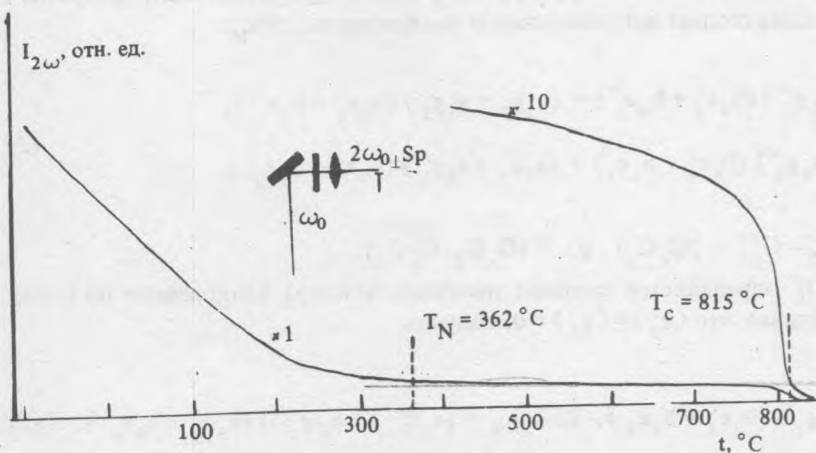


Рис. 1. Температурная зависимость интенсивности ВОГ в BiFeO_3 , регистрируемой в отраженном свете. Кривая справа соответствует температурной зависимости ВОГ вблизи точки сегнетоэлектрического перехода и представлена с десятикратным увеличением чувствительности.

ты состава (мольн. %): 75,6 – Bi_2O_3 ; 17,9 – Fe_2O_3 ; 6,5 – NaCl . Они имели псевдокубическую огранку и размер до 8 мм по ребру. Кристаллы BiFeO_3 при $T < T_c$ имеют пространственную группу $R3c$; при этом ось поляризации совпадает с осью C кристалла.

В видимой области спектра такие кристаллы оказываются непрозрачными, поэтому исследование в них ВОГ может быть осуществлено только в отраженном свете (рис. 1). Для возбуждения ВОГ в кристалле использовался лазер на парах меди ($\lambda = 510,6$ и $578,2$ нм), работающий в режиме большой частоты следования импульсов генерации (10^4 Гц) при пиковой мощности генерируемого излучения $\sim 10^4$ Вт. В качестве возбуждающего излучения использовалась линия генерации $\lambda = 578,2$ нм, вторая оптическая гармоника от которой ($\lambda = 289,1$ нм) расположена в области спектра, более удобной для регистрации.

Для отделения ВОГ от основного излучения использовался абсорбционный светофильтр УФС-1 и монохроматор МДР-2. Слабый сигнал ВОГ регистрировался ФЭУ-71, работавшим в режиме счета фотонов.

Исследуемый кристалл помещался в оптический термостат, позволявший регулировать температуру образца в широком диапазоне, включающем точки Кюри и Нееля. Точность измерения температуры составляла 1°C при низких температурах и $2-3^\circ\text{C}$ в области $\sim 800^\circ\text{C}$. Возбуждающее излучение было неполяризованным; исследовалась ВОГ с естественных граней кристалла. В этом случае существенный вклад в сигнал ВОГ обусловлен компонентой χ_{zzz} тензора нелинейной восприимчивости, пропорциональной компоненте P_z спонтанной поляризации, ответственной за полярное упорядочение вблизи точки Кюри.

Зарегистрированный в отраженном свете сигнал ВОГ в феррите висмута оказался примерно в семь раз меньше соответствующего сигнала в титанате бария. Температурная зависимость интенсивности ВОГ в кристалле феррита висмута (рис. 1) обнаруживает резкое изменение вблизи точки Кюри ($T_c = 815^\circ\text{C}$), выше которой сигнал ВОГ быстро падает. Это является типичным для сегнетоэлектриков с центросимметричной парафазой. Наблюдаемый выше T_c остаточный сигнал можно объяснить наличием кластеров полярной фазы, быстро "рассасывающихся" по мере повышения температуры кристалла. Температурная зависимость интенсивности ВОГ в этой области температур коррелирует с квадратом спонтанной поляризации [1, 2].

Вблизи температуры Нееля ($T_N = 362^\circ\text{C}$) обнаруживается нелинейное возрастание сигнала по мере охлаждения образца. При более низких температурах такое возрастание принимает линейный характер (рис. 1).

При $T_N < T < T_c$ квадратичный по напряженности электрического поля E вклад в поляризацию ΔP , определяющий эффект ВОГ, может быть представлен в следующем виде:

$$\Delta P_{\perp} = \chi_1 e_3' + \chi_2 e_3'', \quad \Delta P_z = \chi_3 e_1' + \chi_4 e_1'' \quad (1)$$

где $e_1' = E_x^2 + E_y^2$, $e_1'' = E_z^2$; $e_3' = (E_x^2 - E_y^2, 2E_x E_y)$; $e_3'' = (E_x E_z, E_y E_z)$; ось Z декартовой системы координат совпадает с осью C кристалла. Сопоставляя (1) с определением $\Delta P_i = \chi_{ijk} E_j E_k$, можно найти все компоненты тензора нелинейной восприимчивости χ_{ijk} .

При $T < T_N$ в кристалле возникает модулированная структура, определяемая вектором антиферромагнетизма $\mathbf{G}(\mathbf{r})$. Наличие магнитного порядка создает дополнительную поляризацию $(\Delta P)_M$:

$$\begin{aligned} (\Delta P_{\perp})_M &= (a_1 g_1' + a_2 g_1'') (b_3 e_3' + b_4 e_3'') + (a_3 g_3' + a_4 g_3'') (b_1 e_1' + b_2 e_1''), \\ (\Delta P_z)_M &= (a_5 g_1' + a_6 g_1'') (b_5 e_1' + b_6 e_1'') + (a_7 g_3' + a_8 g_3'') (b_7 e_3' + b_8 e_3''), \end{aligned} \quad (2)$$

где $g_1' = G_z^2$, $g_1'' = G_x^2 + G_y^2$; $g_3' = (G_x^2 - G_y^2, -2G_x G_y)$, $g_3'' = (G_x G_z, G_y G_z)$.

Наблюдаемый на опыте эффект ВОГ определяется средним значением вектора поляризации по всему кристаллу $\langle \Delta P \rangle = (1/V) \int P(\mathbf{r}) dV_{\Delta}$. Учитывая, что $\langle g_3' \rangle = \langle g_3'' \rangle = 0$, получим

$$\langle (\Delta P_{\perp}) \rangle_M = (a_1 \langle g_1' \rangle + a_2 \langle g_1'' \rangle) (b_3 e_3' + b_4 e_3''), \quad \langle (\Delta P_z) \rangle_M = (a_5 \langle g_1' \rangle + a_6 \langle g_1'' \rangle) (b_5 e_1' + b_6 e_1''). \quad (3)$$

Из (3) следует, что магнитный вклад в компоненту χ_{zzz} тензора χ_{ijk} , определяющий наблюдаемый сигнал ВОГ, равен $(\Delta\chi_{zzz})_M = C_1 |G|^2 - C_2 \langle G_z^2 \rangle$, где $C_1 = (a_5 + a_6) b_5$, $C_2 = a_6 b_5$.

При $T > T_N$ $|G|^2$ и $\langle G_z^2 \rangle$ равны нулю. При $T \leq T_N$ температурная зависимость величин $|G|^2$ и $\langle G_z^2 \rangle$ может быть аппроксимирована как $|T - T_N|$ (согласно теории среднего поля), что качественно согласуется с наблюдаемой на опыте температурной зависимостью интенсивности ВОГ.

Таким образом, в данной работе обнаружены резкие изменения интенсивности ВОГ вблизи точки Кюри и нелинейное изменение интенсивности с температурой вблизи точки Нееля в кристалле феррита висмута. Наблюдаемые изменения объяснены возникновением спонтанной поляризации в сегнетофазе и взаимосвязью между магнитным моментом и спонтанной поляризацией ниже точки Нееля.

ЛИТЕРАТУРА

1. Агальцов А. М., Горелик В. С., Моисеенко В. Н. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 5, 49 (1985).
2. Абдуллаев А. Т. и др. Краткие сообщения по физике ФИАН, № 5, 14 (1986).
3. Sosnowska I., Peterlin - Neumaier T., Steichele E. J. Phys. C. (Solid State Phys.), 15, 4835 (1982).
4. Jabures - Munoz C. et al. Jap. J. Appl. Phys., 24, Suppl. 24, 1051 (1985).

Поступила в редакцию 23 января 1989 г.