

# Исследование сегнетоэлектрических свойств кристаллов ниобата бария—стронция методом генерации второй гармоники

© Д.В. Исаков, Т.Р. Волк\*, Л.И. Ивлева\*\*

Universidade do Minho,  
Braga, Portugal

\* Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук,  
Москва, Россия

\*\* Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук,  
Москва, Россия

E-mail: volk@ns.crys.ras.ru

(Поступила в Редакцию 2 марта 2009 г.)

Сегнетоэлектрические свойства кристаллов  $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$  (SBN- $x$ ) исследованы методом генерации неколлинеарной (диффузной) второй гармоники (ВГ) ИК-излучения, преобразованного на неупорядоченной доменной структуре. На примере состава SBN-0.75 из зависимостей интенсивности ВГ  $I_{2\omega}(t)$  и  $I_{2\omega}(E)$  получены характеристики переключения, которые находятся в хорошем согласии с результатами измерений традиционными методами и обнаруживают ряд особенностей (длительные времена релаксации поляризации, невоспроизводимость формы петель гистерезиса, низкочастотную зависимость  $E_c$ ), связанных с релаксаторной природой твердых растворов SBN. Кинетика диффузной ВГ может быть описана в рамках феноменологического подхода к процессам релаксации поляризации в сегнетоэлектриках-релаксаторах. Интенсивность диффузной ВГ при переключении определяется параметрами (длительностью и амплитудой) импульса переключающего поля.

Работа выполнена при финансовой поддержке проектов РФФИ № 06-02-16644а, 09-02-00969а.

PACS: 77.80.Fm, 77.80.+Dj, 77.22.Ej, 42.65.Ky

## 1. Введение

Доменная структура сегнетоэлектриков является нелинейной средой для преобразования частоты оптического излучения благодаря изменению знака квадратичной восприимчивости  $\chi^{(2)}$  при инверсии спонтанной поляризации  $P_s$ . Авторами [1] была предложена идея преобразования излучения на периодической структуре с модулированным знаком  $\chi^{(2)}$ , которая впоследствии инициировала огромное число работ по созданию и использованию регулярных доменных структур (называемых также периодически поляризованными) в сегнетоэлектрических кристаллах (см., например, недавний обзор [2]). В последнее время возник интерес к возможностям преобразования частоты в неупорядоченных средах, в частности в сегнетоэлектриках со случайным распределением доменов [3–5]. Этот интерес связан с принципиальной возможностью расширения диапазона частоты при преобразовании в неупорядоченной среде. Одним из удобных объектов для исследования нелинейно-оптических параметрических процессов в сегнетоэлектриках с неупорядоченными доменами является  $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$  (SBN- $x$ ). Это обусловлено спецификой доменной структуры и ее динамики в SBN — домены представляют собой тонкие иглы с поперечным сечением порядка нескольких  $\mu\text{m}$  и длиной от десятков до сотен  $\mu\text{m}$  [6–8], которые под действием внешнего поля преимущественно фронтально прорастают в объем кристалла [8]. Именно в SBN была впервые обнаружена генерация второй гармоники (ГВГ) на неупорядо-

ченных сегнетоэлектрических доменах [9,10] и начата разработка подхода к теоретическому описанию этого эффекта [10,11]. В работах [7,12,13] наблюдалась генерация суммарных частот излучения на неупорядоченных доменах в SBN. Помимо интереса, который представляют параметрические процессы в неупорядоченных нелинейных средах, исследование диффузной второй гармоники (ВГ) в SBN информативно для изучения его сегнетоэлектрических свойств. Например, авторы [11] на основании измерений пространственного распределения диффузной ВГ провели оценку критической экспоненты  $\beta$  фазового перехода.

В настоящей работе представлены исследования ГВГ на неупорядоченной доменной структуре в кристаллах SBN при сегнетоэлектрическом переключении. Первые результаты были опубликованы в [14,15]. Наблюдаемые зависимости, с одной стороны, иллюстрируют возможности управления характеристиками ВГ путем контроля условий переключения, а с другой — характеризуют специфику переключения релаксаторного сегнетоэлектрика. Эти данные сопоставляются с наблюдениями процессов поляризации кристаллов SBN поляризационными методами [16–18].

Обсуждение механизма преобразования частоты на неупорядоченных структурах можно найти в [3,4,11,19,20]. Качественно преобразование во ВГ на неупорядоченной доменной структуре можно представить следующим образом. Необходимым условием преобразования частоты в нелинейной среде является фазовый синхронизм между фундаментальной волной

и ее гармониками, который для частного случая ГВГ имеет вид

$$\mathbf{k}_{2\omega} = 2\mathbf{k}_\omega, \quad (1)$$

где  $\mathbf{k}_\omega$  и  $\mathbf{k}_{2\omega}$  — волновые векторы фундаментальной волны и ВГ соответственно. Фазовое рассогласование между фундаментальной и преобразованной волнами может быть компенсировано, если преобразование реализуется в среде со знакопеременной  $\chi^{(2)}$  с периодом модуляции  $\Lambda = 2\pi/k_g$ , равным (или кратным) длине когерентности [1]. Это условие фазового квазисинхронизма имеет вид

$$\mathbf{k}_{2\omega} = 2\mathbf{k}_\omega + \mathbf{k}_g, \quad (2)$$

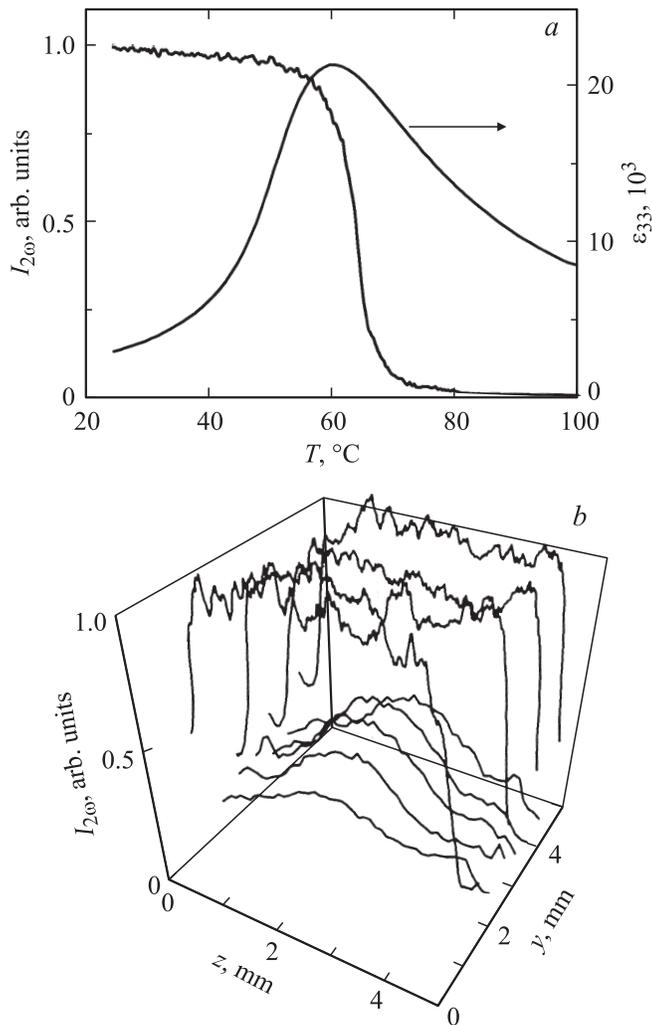
причем волна ВГ коллинеарна фундаментальной волне. Нерегулярную доменную структуру с разбросом доменов по диаметру можно представить в виде непрерывного спектра  $\mathbf{k}_g$ , т.е. условие (2) выполняется для всего спектра углов между  $\mathbf{k}_\omega$  и  $\mathbf{k}_{2\omega}$  (стохастический квазисинхронизм) и излучение ВГ диффузно распределено по углам. Поскольку в SBN иглообразные домены непрерывно распределены по диаметру в интервале 2–10  $\mu\text{m}$  [6,12,13], неколлинеарное преобразование во ВГ реализуется при падении  $\mathbf{k}_\omega$  нормально полярной оси  $z$ . В этом случае в плоскости  $xu$  в любом направлении возникает диффузная ВГ. Принципиальным отличием неколлинеарного преобразования от коллинеарного является увеличение интенсивности диффузной ВГ с увеличением неупорядоченности среды [5]. В соответствии с моделью [5], далее предполагается, что интенсивность  $I_{2\omega}$  диффузной ВГ пропорциональна числу доменов (доменной плотности  $D$ ) в излучающей области. Таким образом, диффузная  $I_{2\omega}$  равна нулю в монодоменном кристалле и максимальна в полидоменном кристалле. Справедливость этого предположения подтверждается установленным в [10,11] уменьшением  $I_{2\omega}$  в поляризованном кристалле по сравнению с неполяризованным. Результаты измерений распределения спектра  $\mathbf{k}_g$  (т.е. пространственного распределения  $I_{2\omega}(x, y)$ ) под действием внешних полей [21] косвенно указывают на изменение пропорции крупных и мелких доменов с ростом амплитуды поля. Однако далее этот возможный фактор не учитывается и предполагается, что при приложении внешних полей динамика изменения  $I_{2\omega}$  отражает только поведение  $D(t)$ . Зависимости  $I_{2\omega}(E)$  определяются параметрами петель  $P-E$ -гистерезиса.

## 2. Кристаллы и экспериментальные методики

Нами исследовались кристаллы составов SBN-0.75, SBN-0.61, SBN-61:Nd, выращенные модифицированным методом Степанова [22]. Основное внимание уделялось составу SBN-0.75, обладающему наиболее выраженными релаксорными свойствами. Кристаллы представляли собой непросветленные элементы размером 5 × 5 × 5 см. Измерения проводились в полидоменных и монодомен-

ных кристаллах. Полидоменное состояние достигалось путем длительного отжига в парафазе при  $T > T_c$ ; для получения монодоменного состояния кристалл охлаждался от  $T = 100^\circ\text{C}$  под действием поля отрицательного знака  $E = -3 \text{ kV/cm}$  ( $|E| > |E_c|$ ). В исследуемых кристаллах SBN-0.75  $T_c \sim 50^\circ\text{C}$ ,  $E_c \sim 1 \text{ kV/cm}$ , что согласуется с [23]. При измерениях ГВГ использовалось фундаментальное излучение  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ; источники накачки — либо Nd-YAG-лазер с модулированной добротностью, либо ОРА с Ti-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-накачкой. В первом случае энергия в импульсе 22 мДж, длительность импульса 20 нс, частота следования импульсов 10 Гц; во втором случае энергия в импульсе 50 мДж, длительность импульса 120 фс, частота следования импульсов 1 кГц. Луч, падающий нормально полярной оси  $z$ , был  $\pi$ -поляризован (необыкновенная поляризация), чтобы задействовать максимальный нелинейный коэффициент  $d_{33}$ . Работа проводилась в 90° геометрии эксперимента, т.е. интенсивность ВГ  $I_{2\omega}$  измерялась в направлении, нормальном  $\mathbf{k}_\omega$  и оси  $z$ . Поскольку, согласно [11], при комнатной температуре величина  $I_{2\omega}$  в плоскости  $xu$  практически изотропна, можно утверждать, что  $I_{2\omega}(t)$ , наблюдаемая в 90° геометрии, характеризует динамику в целом. Интенсивность ВГ регистрировалась фотодиодом; излучение, отраженное от входной и выходной граней кристалла, отсекалось с помощью ирисовой диафрагмы, а ИК-фильтр препятствовал попаданию фундаментального излучения в систему регистрации. Сигнал от фотодиода поступал в интегратор, синхронизованный с триггером регулятора добротности лазера. Кинетика переключения измерялась при приложении вдоль оси  $z$  поля с фронтом нарастания менее 250 нс. Для получения зависимостей  $I_{2\omega}(E)$  использовался цуг полевых импульсов с постоянной полярностью, постоянной длительностью и нарастающей амплитудой. Установка обеспечивала длительность импульсов поля  $t_p$  в интервале от 0.1 до 10 с с постоянной частотой следования 0.05 Гц. Система синхронизации позволяла регистрировать изменение  $I_{2\omega}$  в процессе приложения отдельного полевого импульса; например, при использовании Nd-YAG-лазера (частота следования импульсов 10 Гц) за один импульс поля  $t_p = 1 \text{ s}$  регистрировалось 10 последовательных импульсов излучения. При использовании ОРА с Ti-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-накачкой (частота следования импульсов 1 кГц) разрешение возрастало до 1 мс. На приведенных далее зависимостях  $I_{2\omega}(t)$  и  $I_{2\omega}(E)$  значения  $I_{2\omega}$  усреднены по импульсу поля с помощью программы Origin.

Рис. 1, *a, b* иллюстрирует типичные характеристики  $I_{2\omega}$  на примере образца SBN-061:Nd. На рис. 1, *a* показана температурная зависимость  $I_{2\omega}(T)$  в полидоменном кристалле; резкий спад  $I_{2\omega}$  коррелирует с максимумом зависимости  $\varepsilon(T)$ . На рис. 1, *b* приведено пространственное распределение  $I_{2\omega}$ , измеренное путем сканирования вдоль двух осей, в полидоменном кристалле (верхние кривые) и после поляризации кристалла внешним полем (нижние кривые). В соответствии с результатами [10,11] величина  $I_{2\omega}$  в поляризованном



**Рис. 1.** *a)* Температурные зависимости диффузной ВГ и диэлектрической проницаемости в полидоменном кристалле SBN-0.61:Nd. *b)* Распределение диффузной ВГ вдоль полярной оси  $z$  в полидоменном (верхние кривые) и монодоменном (нижние кривые) кристалле SBN-0.61:Nd.

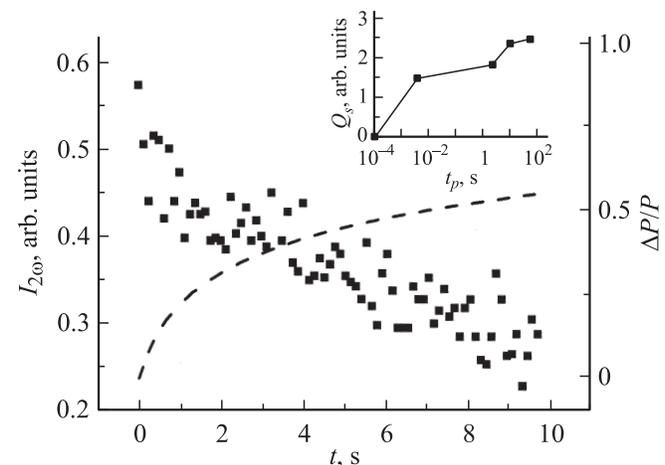
состоянии резко уменьшается. В отличие от полидоменного кристалла, где  $I_{2\omega}$  однородно распределена по объему кристалла (рис. 1, *b*), в поляризованном кристалле распределение  $I_{2\omega}(y, z)$  неоднородно и вдали от электродов имеется остаточная доменная плотность  $D$ . Поскольку при исследовании переключения использовалось нефокусированное излучение, приведенные далее значения  $I_{2\omega}$  соответствуют доменной плотности, усредненной по объему кристалла.

### 3. Экспериментальные результаты и обсуждение

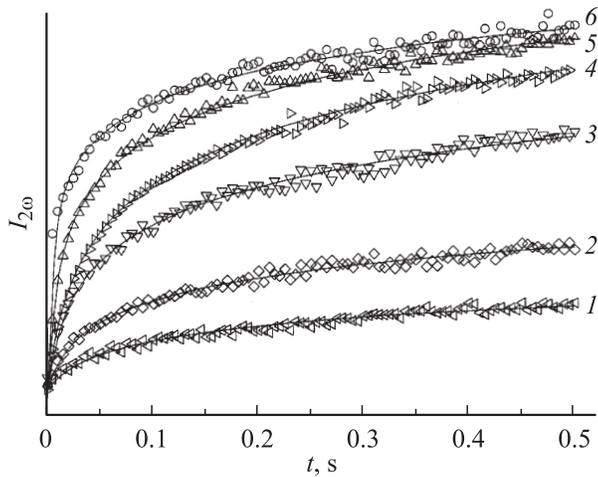
3.1. Кинетика диффузной ГВГ во внешних полях. Прежде чем обсуждать кинетику диффузной ВГ в процессе переключения, напомним основные отличия

процесса поляризации в релаксорном сегнетоэлектрике SBN [16,17] от того же процесса в модельных сегнетоэлектриках. В кристаллах SBN под действием полей, как меньших, так и больших поля  $E_c$  (формально определяемого как полуширина  $P-E$ -петли), релаксация поляризации происходит по термоактивационному закону с очень большими временами релаксации. Надбарьерный процесс переполаризации не реализуется вплоть до  $E \gg E_c$ , и времена перелючения, измеряемые традиционным методом токов переключения, достигают десятков и сотен секунд [18,24]. Эта специфика поляризационных процессов обусловлена существованием в объеме релаксорного сегнетоэлектрика случайно распределенных внутренних полей [25], иными словами, широкого спектра энергетических барьеров центров релаксации.

На рис. 2 приведена зависимость  $I_{2\omega}(t)$  в исходно полидоменном кристалле SBN-0.75 в процессе монодоменизации под действием импульса поля  $E = 1.2 \text{ kV/cm} > E_c$ ,  $t_p = 10 \text{ s}$ . Поскольку доменная плотность, например, положительных доменов в отрицательной матрице  $D^+ = v^+/v$  (где  $v = v^+ + v^-$ ,  $v^+$  и  $v^-$  — объем доменов положительного и отрицательного знака соответственно в объеме кристалла  $v$ ), монодоменизацию можно представить как уменьшение  $v^+$  в отрицательной матрице, откуда  $\Delta P(t) \sim 1 - D^+(t) \sim -I_{2\omega}(t)$ . Процесс монодоменизации, иллюстрируемый рис. 2, характеризуется исключительно медленной кинетикой: после приложения импульса  $t_p = 10 \text{ s}$  зависимость  $I_{2\omega}(t)$  не обнаруживает тенденции к насыщению, т.е. кристалл остается частично полидоменным. Измерения электрическими методами согласуются с этим результатом. На вставке к рис. 2 приведена зависимость переключенного заряда  $Q_s$  от длительности одиночных



**Рис. 2.** Кинетика интенсивности ВГ (экспериментальные точки) в полидоменном кристалле SBN-0.75 при приложении поля  $E = 1.2 \text{ kV/cm}$ . Штриховая кривая — соответствующая кинетика изменения поляризации. На вставке — зависимость переключенного заряда от длительности импульса внешнего поля при  $E = 5 \text{ kV/cm}$ .



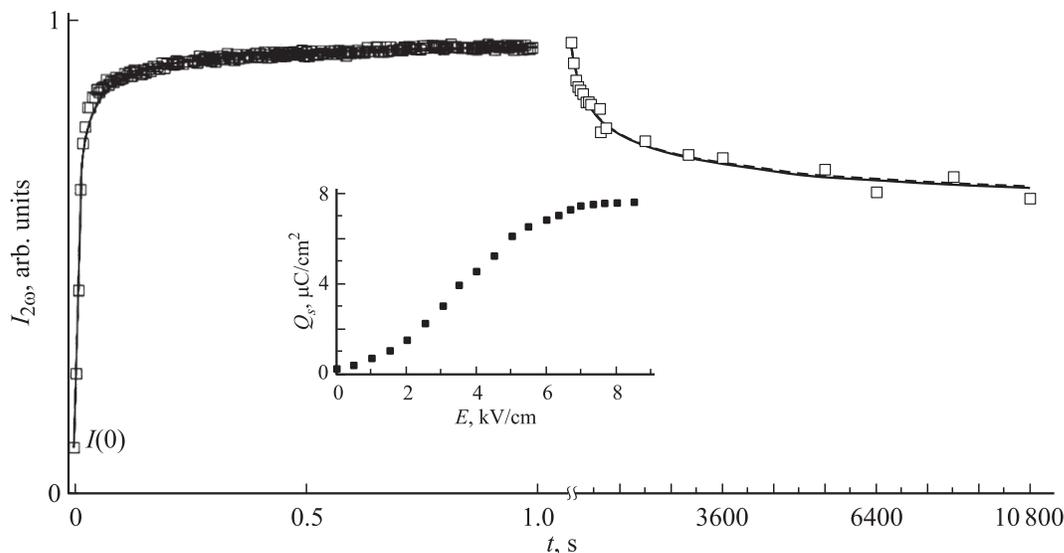
**Рис. 3.** Кинетика диффузной ВГ в исходно монодоменном кристалле SBN-0.75 при применении переполаризующих полей  $E = 1$  (1), 1.2 (2), 1.4 (3), 1.6 (4), 1.8 (5) и 2 kV/cm (6). Сплошные кривые — аппроксимация экспериментальных зависимостей функцией (3).

импульсов с постоянной амплитудой  $E = 5$  kV/cm, приложенных к исходно полидоменному кристаллу. Величина  $Q_s$  измерялась непосредственно после приложения импульса методом интегрирования пирозлектрического тока. Согласно кривой  $Q_s(t_p)$ , монодоменное состояние достигается при длительности импульса  $t_p$  не менее 100 s [18].

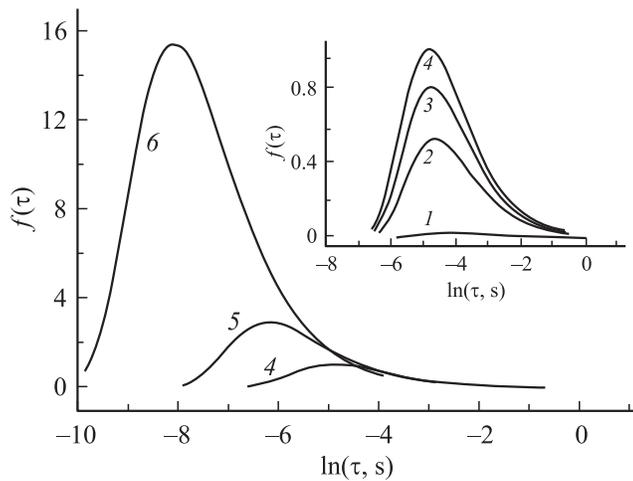
На рис. 3 и 4 приведены зависимости  $I_{2\omega}(t)$ , наблюдаемые в исходно монодоменном кристалле при применении переполаризующих полей  $+E$  (обратных по знаку полю монодоменизации). Исходная величина ин-

тенсивности в монодоменном кристалле  $I(0) \approx 0$ , рост  $I_{2\omega}$  при приложении переполаризующего поля означает полидоменизацию. Кривые на рис. 3 получены при приложении одиночных полевых импульсов различной амплитуды с  $t_p = 0.5$  s. Зависимости  $I_{2\omega}(t)$  являются плавными вплоть до  $E = 2$  kV/cm  $> E_c$ , не обнаруживая скачков, характерных для модельных сегнетоэлектриков. Величина  $I_{2\omega}(t)$  в насыщении, т.е. степень полидоменизации, с ростом поля увеличивается, не выходя на насыщение.

Зависимость  $I_{2\omega}(t)$  при переполаризации монодоменного кристалла была получена также при приложении статического поля  $E = 2$  kV/cm в течение нескольких часов (рис. 4) (начальному участку этой кривой соответствует верхняя кривая на рис. 3). Наблюдаемая на рис. 4 кинетика  $I_{2\omega}(t)$  может быть представлена в виде двух стадий: роста  $I_{2\omega}$  до некоторого предельного значения за времена порядка секунд и последующего медленного спада за время порядка часов. Для удобства два этапа  $I_{2\omega}(t)$  приведены на рис. 4 в двух масштабах. Наблюдаемая зависимость означает частичную сравнительно быструю полидоменизацию кристалла и последующий медленный процесс поляризации с выходом на насыщение  $P_e$  (понятно, что знак  $P_e$  противоположен знаку исходной  $P_0$ ). Времена релаксации поляризации порядка часов наблюдались в кристаллах SBN также поляризационными методами [16,17]. Как видно из рис. 4, даже после приложения поля в течение нескольких часов предельная величина  $I_{2\omega} \gg I(0)$ , т.е. кристалл остается частично полидоменным. Этот результат полностью согласуется с измерениями токов переключения [18,24], согласно которым при переключении монодоменных кристаллов SBN величина  $P_e \ll P_s$ . Для сравнения на вставке к рис. 4 показана зависи-



**Рис. 4.** Кинетика диффузной ВГ в исходно монодоменном кристалле SBN-0.75 при применении переполаризующего поля  $E = 2$  kV/cm (показана в двух масштабах времени). Сплошные кривые — аппроксимация  $I_{2\omega}(t)$  функцией (3). На вставке — зависимость переключенного заряда от переполаризующего поля в исходно монодоменном кристалле SBN-0.75.



**Рис. 5.** Спектры времен релаксации поляризации в SBN-0.75.  $E = 1$  (1), 1.2 (2), 1.4 (3) 1.6 (4), 1.8 (5) и 2 kV/cm (6).

мость переключенного заряда  $Q_s$  от переключающего поля в исходно монодоменном кристалле SBN-0.75 при измерении токов переключения: максимальная величина  $Q_s$  под действием  $E = 9 \text{ kV/cm} \gg E_c$  почти в 4 раза ниже  $P_s \approx 30 \mu\text{C/cm}^2$ . Таким образом, кинетика  $I_{2\omega}(t)$  при переключении монодоменных кристаллов SBN, так же как измерения традиционными методами, свидетельствует о том, что благодаря характерным для релаксоров эффектам пиннинга [25] в монодоменных кристаллах SBN переполаризуется лишь часть объема.

Обсудим кинетику  $I_{2\omega}(t)$ , представленную на рис. 3, 4. Согласно [17], в кристаллах SBN кинетика поляризации и последующей деполяризации после выключения поля может быть описана эмпирическим степенным законом

$$p(t) = (P_e - P(t))/(P_e - P_0) = 1/(1 + t/a)^n, \quad (3)$$

где  $P_0$  — начальная поляризация,  $P_e$  — свободный параметр, имеющий смысл равновесной („насыщенной“) поляризации,  $a$ ,  $n$  — также свободные параметры. Этот закон характеризует релаксационные процессы во многих неоднородных системах, например кинетику поляризации и деполяризации в полидоменном триглицинсульфате (ТГС) [26]. На рис. 3 и 4 сплошными кривыми показана аппроксимация экспериментальных зависимостей  $I_{2\omega}(t)$  функцией (3). Используемый авторами [16,25] для аппроксимации кинетики поляризационных процессов в SBN закон Кольрауша  $P(t) \sim \exp(-t/\tau)^\beta$  ( $\beta < 1$ ) дает худшее приближение на коротких временах [17].

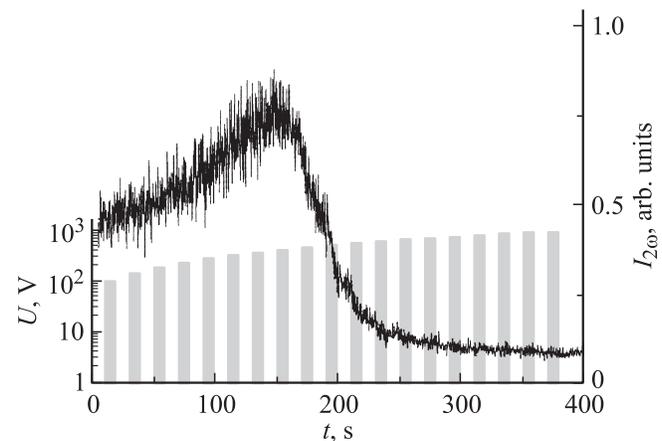
Вид кривых полидоменности (рис. 3) свидетельствует об отсутствии надбарьерного (быстрого) процесса во всем интервале полей, т.е. наблюдаемую кинетику можно представить как термоактивационное зарождение доменов противоположного знака. Если по аналогии с [17,26,27] в первом приближении предположить независимость зародышей и аддитивность их вклада в изменение поляризации, то термоактивационная релаксация

поляризации может быть представлена в виде

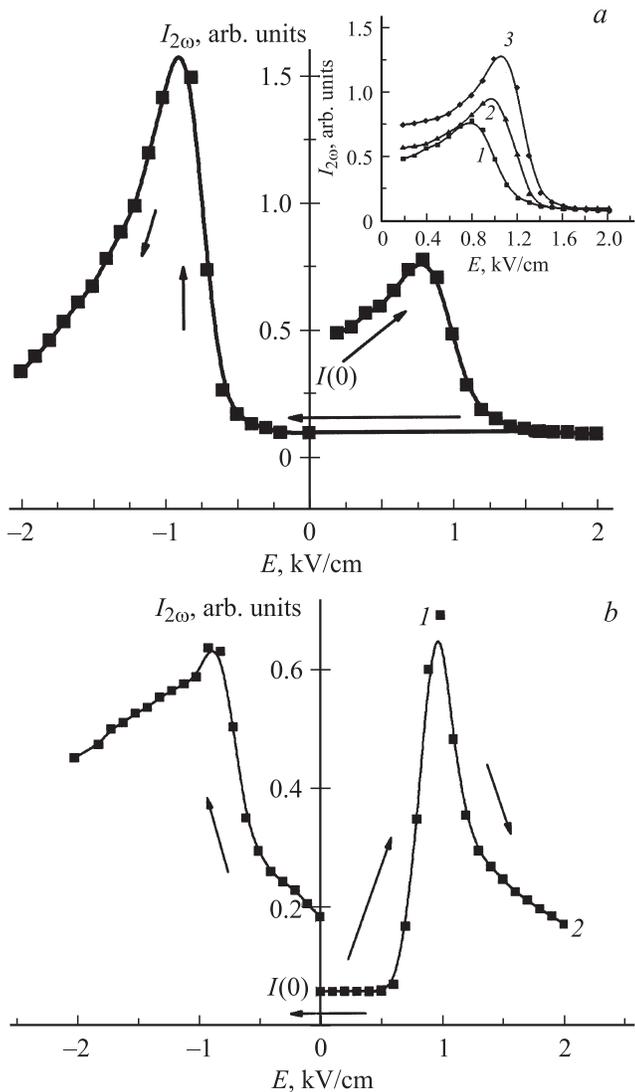
$$p(t) = (P_e - P(t))/(P_e - P_0) = \int_0^\infty f(\tau) \exp(-t/\tau) d\tau, \quad (4)$$

где  $f(\tau)$  — нормированная функция распределения времен релаксации  $\tau$ ,  $\int_0^\infty f(\tau) d\tau = 1$ . Это приближение дает возможность получить из экспериментальных кривых  $P(t)$  спектр распределения времен релаксации  $f(\tau)$ , а также, после простых преобразований, спектр распределения энергий барьеров  $U$  центров релаксации. Из кривых  $I_{2\omega}(t)$  на рис. 3 для разных полей были рассчитаны параметры релаксации  $a$  и  $n$ , на основании которых построены спектры распределения времен релаксации  $f(\tau)$ , приведенные на рис. 5. Характер эволюции спектров при изменении поля принципиально отличается от картины, наблюдаемой в кристаллах ТГС [17,26]. В последних с ростом  $E$  максимум  $f(\tau)$  смещается к меньшим  $\tau$  и спектр резко сужается по мере приближения к  $E_c$ , в пределе вырождаясь в линию, характеризующую единственное время переключения  $t_s$  для всего объема кристалла. В SBN в полях  $E \leq 1.6 \text{ kV/cm} > E_c \approx 1 \text{ kV/cm}$  (вставка к рис. 5) максимумы  $f(\tau)$  к меньшим  $\tau$  не смещаются; во всем интервале полей  $E \leq 2 \text{ kV/cm}$  полуширина спектра практически не изменяется. Таким образом, вид спектров, полученных оптическим методом, качественно подобен спектрам, полученным с помощью поляризационных измерений [17,27], и свидетельствует о значительном вкладе медленных релаксационных процессов вплоть до  $E \gg E_c$ .

3.2. Зависимость диффузной ГВГ от приложения внешнего поля („нелинейно-оптические петли гистерезиса“). На рис. 6



**Рис. 6.** Пример зависимости  $I_{2\omega}(t)$ , наблюдаемой в реальном времени при приложении цуга импульсов с увеличивающейся амплитудой (гистограмма внизу). Длительность полевого импульса  $t_p = 10 \text{ s}$ , частота следования импульсов лазера 10 Hz.



**Рис. 7.** Зависимости  $I_{2\omega}$  от внешнего поля в исходно полидоменном (а) и монодоменизированном (б) кристалле SBN-0.75. Стрелками показано направление полевого циклирования;  $t_p = 10$  с. На вставке — влияние длительности импульса на зависимость  $I_{2\omega}(E)$  в полидоменном кристалле SBN-0.75;  $t_p = 10$  (1), 5 (2) и 1 с (3).

приведен типичный вид экспериментальной зависимости  $I_{2\omega}(t)$ , регистрируемой в процессе приложения к кристаллу цуга импульсов поля постоянной полярности с нарастающей амплитудой. На основе серии этих экспериментальных кривых были построены зависимости  $I_{2\omega}(\pm E)$ , полученные при полевым циклировании в полидоменном (а) и монодоменизированном (б) кристалле SBN-0.75 ( $t_p = 10$  с). Исходные значения интенсивности ВГ в поли- и монодоменном состояниях  $I(0) \neq 0$  (рис. 7, а) и  $I(0) \approx 0$  (рис. 7, б) соответственно. Знак поля однозначно установлен в лабораторных координатах. В обоих случаях направление полевого циклирования, показанное на рисунках стрелками, было идентично:

сначала прикладывался цуг импульсов положительной полярности (правые ветви кривых); после прохождения максимума  $I_{2\omega}$  при определенной величине  $+E_{\max}$  прикладывался цуг отрицательных импульсов, приводящий к появлению максимума  $I_{2\omega}$  при некотором  $-E_{\max}$  (левые ветви). Форма кривой  $I_{2\omega}(\pm E)$  интерпретируется следующим образом. Приложение внешнего поля к полидоменным кристаллам SBN сопровождается прорастанием иглообразных доменов от полярных поверхностей в объем кристалла [8]. Как результат величина  $D$  в объеме, т.е.  $I_{2\omega}$ , несколько возрастает (правая ветвь кривой на рис. 7, а). С увеличением поля  $|E| > |E_{\max}|$  величина  $I_{2\omega}$  уменьшается, что указывает на монодоменизацию кристалла. При подаче поля обратного знака кристалл монодоменизирован, вследствие чего пик  $I_{2\omega}$  (левая ветвь кривой на рис. 7, а), соответствующий более высокой  $D$  при переключении монодоменного кристалла, выражен более заметно. В случае монодоменного кристалла (рис. 7, б) исходное состояние при приложении поля обеих полярностей идентично, благодаря чему пики  $I_{2\omega}$  для  $+E_{\max}$  и  $-E_{\max}$  примерно равны. Поля  $\pm E_{\max} \approx 1$  кВ/см имеют смысл коэрцитивного поля и близки к величинам  $E_c$ , приводимым в литературе для SBN-0.75 [23,28]. Вставка к рис. 7, а иллюстрирует зависимость  $E_{\max}$  от длительности импульса, обсуждаемую далее. Кривые, качественно сходные с представленными в настоящей работе кривыми  $I_{2\omega}(E)$ , были получены при измерениях полевых зависимостей  $90^\circ$  рассеяния света на доменных стенках в кристаллах SBN [28]: максимумы светорассеяния также наблюдались в полях, близких к коэрцитивным.

Как видно из рис. 7, а, б левые и правые ветви кривых, т.е. зависимости  $D(+E)$  и  $D(-E)$ , заметно различаются. Например, в исходно полидоменном кристалле при приложении поля положительного знака (кривые на рис. 7, а) резкий спад  $I_{2\omega}$ , т.е. выход  $P$  на насыщение, имеет место при  $E \sim +2$  кВ/см  $> |E_{\max}|$  (правая ветвь кривой на рис. 7, а). Однако при последующем приложении поля обратного знака (левая ветвь кривой на рис. 7, а) сигнал ВГ при  $|E| > |E_{\max}|$  спадает очень плавно, так что при  $E \approx -2$  кВ/см  $I_{2\omega} \neq 0$ . Таким образом, в кристалле возникла остаточная доменная плотность с направлением поляризации, заданным приложением „первоначального“ поля  $+E$ . Аналогичная асимметрия наблюдается на кривых  $I_{2\omega}(E)$  для монодоменного кристалла (кривые на рис. 7, б). При приложении поля  $+E$  (кристалл поляризован полем  $-E$ ) наблюдается резкий пик  $I_{2\omega}$ ; под действием поля обратной полярности величина  $I_{2\omega}$  при  $E > |E_{\max}|$  спадает плавно. Вновь величины  $I_{2\omega}$  для равных амплитуд  $-E$  и  $+E$  значительно различаются.

Эта асимметрия кривых  $I_{2\omega}(\pm E)$  отражает особенности петель диэлектрического гистерезиса, наблюдаемых в кристаллах SBN, в частности в SBN-0.75, различными методами [16,17,27]. Измерение  $P-E$ -петель в квазистатических (медленно изменяющихся) полях показывает, что при приложении нескольких первых

полевых циклов петли  $P-E$  выглядят как незамкнутые несовпадающие кривые, причем амплитуда  $P$  уменьшается в каждом последующем цикле. Соответственно остаточная  $D$  в процессе полевого циклирования возрастает. Появление „остаточной“  $I_{2\omega} \neq 0$  при  $|E| > |E_c|$  на левых ветвях кривых на рис. 7 отражает эту тенденцию к уменьшению переключаемой  $P$  при полевого циклировании и является результатом возникновения „замороженной“ (непереключаемой) доменной плотности. Таким образом, наблюдаемая асимметрия кривых  $I_{2\omega}(\pm E)$  представляет собой проявление характерных для сегнетоэлектриков-релаксоров эффектов „пиннинга“ доменных стенок [16,17,25]. После нескольких полевых циклов  $P-E$ -петли в SBN приобретают обычную замкнутую форму, в которой амплитуда  $P$  значительно уменьшена по сравнению с первым циклом [16,17,27]. Поэтому остаточный сигнал  $I_{2\omega} \neq 0$ , т.е. остаточная („замороженная“) доменная плотность, при повторяющемся полевого циклировании увеличивается. В работе [29] была сделана попытка управлять величиной коллинеарной  $I_{2\omega}$ , полученной на регулярной доменной структуре в кристалле SBN-0.61, путем приложения импульсов поля переменной полярности. Попытка не удалась, поскольку после нескольких повторных импульсов величина  $I_{2\omega} \neq 0$  оставалась практически не зависящей от поля, чему авторы [29] не нашли объяснения. Этот результат, так же как и представленное в настоящей работе увеличение остаточной  $I_{2\omega} \neq 0$  при полевого циклировании, объясняется характерным для релаксоров пиннингом доменов.

Параметры кривых  $I_{2\omega}(E)$  зависят от длительности полевого импульса. На вставке к рис. 7,а приведены зависимости  $I_{2\omega}(E)$  в полидоменном кристалле SBN-0.75 (т.е. правая ветвь кривой, представленной на рис. 7,а), полученные при  $t_p = 1, 5$  и  $10$  с. С уменьшением  $t_p$  величина  $E_{\max}$ , т.е. величина  $E_c$ , заметно увеличивается. Эта зависимость согласуется с релаксационным характером поляризационных процессов и качественно может быть объяснена следующим образом. Поскольку величина переключаемого заряда при равных амплитудах поля уменьшается с уменьшением  $t_p$  (вставка к рис. 3), очевидно, что для переключения равных объемов кристалла уменьшение  $t_p$  требует увеличения амплитуды импульса. Таким образом, кривые  $I_{2\omega}(E)$  для разных  $t_p$  на вставке к рис. 7,а характеризуют дисперсию  $E_c$  в интервале  $0.1-1$  Hz и качественно напоминают низкочастотную дисперсию  $E_c$ , характерную для релаксоров сегнетоэлектриков и наблюдаемую, например, в частотных зависимостях петель  $P-E$  гистерезиса в PMN-PT 70/30 [30]. Заметное уменьшение  $I_{2\omega}$  с ростом  $t_p$  (вставка к рис. 7,а) обусловлено тем, что наблюдаемая при приложении поля интенсивность „вспышки“  $I_{2\omega}$  является усредненной по импульсу. Из кинетики  $I_{2\omega}(t)$  при приложении одиночного импульса (рис. 2) очевидно, что при равных исходных значениях  $I_{2\omega}(0)$  усредненная величина  $I_{2\omega}$  уменьшается с увеличением  $t_p$ .

## 4. Заключение

Измерения полевых и кинетических характеристик диффузной ВГ, преобразованной на неупорядоченной доменной структуре кристаллов SBN, продемонстрировали эффективность метода ГВГ для исследования процессов переключения. Этот метод обладает определенными преимуществами перед традиционными электрическими методами, требующими при расчетах поправок на импеданс и пироэлектрический ток. Измерения ВГ в согласии с токовыми измерениями обнаружили характерные для релаксорного сегнетоэлектрика SBN особенности поляризационных процессов; длительные времена релаксации поляризации вплоть до нескольких часов, резкое снижение переключаемой поляризации в монодоменных кристаллах, невозпроизводимость петель гистерезиса, низкочастотную дисперсию  $E_c$  и т.д. Проанализирована возможность полевого управления интенсивностью ВГ.

## Список литературы

- [1] J. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan. Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
- [2] D.S. Hum, M.M. Fejer. Comptes Rendus Physique **8**, 180 (2007).
- [3] Е.Ю. Морозов, А.А. Каминский, А.С. Чиркин, Д.Б. Юсупов. Письма в ЖЭТФ **73**, 731 (2001).
- [4] M. Baudrier-Raybaut, R. Haidar, Ph. Kupecsek, Ph. Lemasson, E. Rosencher. Nature **432**, 374 (2004).
- [5] X. Vidal, J. Martorell. Phys. Rev. Lett. **97**, 013 902 (2006).
- [6] G. Fogarty, B. Steiner, M. Cronin-Golomb, U. Laor, M.H. Garrett, J. Martin, R. Uhrin. J. Opt. Soc. Am. B **13**, 2636 (1996).
- [7] J.J. Romero, D. Jaque, J. Garcia Sole, A.A. Kaminskii. Appl. Phys. Lett. **78**, 1961 (2001).
- [8] Н.Р. Иванов, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева, С.П. Чумакова, А.В. Гинзберг. Кристаллография **47**, 1065 (2002).
- [9] S. Kawai, T. Ogawa, H.S. Lee, R.C. DeMattei, R.S. Feigelson. Appl. Phys. Lett. **73**, 768 (1998).
- [10] A.R. Tunyagi, M. Ulex, K. Betzler. Phys. Rev. Lett. **90**, 243 901 (2003).
- [11] U. Voelker, K. Betzler. Phys. Rev. B **74**, 132 104 (2006).
- [12] J.J. Romero, D. Jaque, J. Garcia Sole, A.A. Kaminskii. Appl. Phys. Lett. **81**, 4106 (2002).
- [13] J.J. Romero, C. Arago, J.A. Gonzalo, D. Jaque, J. Garcia Sole. J. Appl. Phys. **93**, 3111 (2003).
- [14] D.V. Isakov, M.S. Belsley, T.R. Volk, L.I. Ivleva. Appl. Phys. Lett. **92**, 032 904 (2008).
- [15] T.R. Volk, D.V. Isakov, M.S. Belsley, L.I. Ivleva. Phys. Status Solidi A **206**, 321 (2009).
- [16] T. Granzow, U. Doerfler, Th. Woike, M. Woehlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann. Phys. Rev. B **63**, 174 101 (2001).
- [17] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева. ЖЭТФ **93**, 678 (2001).
- [18] T. Volk, D. Isakov, L. Ivleva, M. Woehlecke. Appl. Phys. Lett. **83**, 2220 (2003).
- [19] Е.Ю. Морозов, А.С. Чиркин. Квантовая электрон. **34**, 227 (2004).
- [20] G.Kh. Kitaeva. Phys. Rev. A **76**, 043 841 (2007).

- [21] U. Voelker, U. Heine, C. Gödecker, K. Betzler. *J. Appl. Phys.* **102**, 114 112 (2007).
- [22] L.I. Ivleva, N.V. Bogodaev, N.M. Polozkov, V.V. Osiko. *Opt. Mater.* **4**, 168 (1995).
- [23] Ю.С. Кузьминов. Сегентоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. Наука, М. (1982). 400 с.
- [24] L. Tian, D.A. Scrimgeour, V. Gopalan. *J. Appl. Phys.* **97**, 114 111 (2005).
- [25] W. Kleemann. *J. Mater. Sci.* **41**, 129 (2006).
- [26] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Е.С. Иванова, С.В. Нехлюдов. *ФТТ* **41**, 499 (1999).
- [27] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк, Д.В. Исаков, Е.С. Иванова. *ФТТ* **45**, 2067 (2003).
- [28] T. Volk, D. Isakov, N. Ivanov, L. Ivleva, K. Betzler, A. Tunuagi, M. Wochlecke. *J. Appl. Phys.* **97**, 074 102 (2005).
- [29] Y.Y. Zhu, J.S. Fu, R.F. Xiao, G.K.L. Wong. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1794 (1997).
- [30] D. Vichland, Y.-H. Chen. *J. Appl. Phys.* **88**, 6696 (2000).