

УТВЕРЖДАЮ:

Директор ИАиЭ СО РАН

Чл.-корр. РАН

Бабин Сергей Алексеевич



« 11 » апреля 2022 г

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института автоматизации и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук (ИАиЭ СО РАН)

Диссертация “Исследование полярных свойств сегнетоэлектриков в параэлектрической фазе оптическими методами” выполнена в лаборатории спектроскопии конденсированных сред ИАиЭ СО РАН.

В период подготовки диссертации соискатель Зайцева Ирина Валерьевна работала в ИАиЭ СО РАН в должностях инженера-программиста и инженера-исследователя.

В 2017 г. окончила Новосибирский государственный университет по специальности «физика».

Удостоверение о сдаче кандидатских экзаменов выдано в 2021 г. ИАиЭ СО РАН.

Научный руководитель – кандидат физико-математических наук Пугачев Алексей Маркович, старший научный сотрудник лаборатории спектроскопии конденсированных сред ИАиЭ СО РАН.

Диссертация “Исследование полярных свойств сегнетоэлектриков в параэлектрической фазе оптическими методами” была рассмотрена на

На семинаре присутствовали:

Шалагин Анатолий Михайлович, акад. РАН, ИАиЭ СО РАН
Бабин Сергей Алексеевич, чл.-корр. РАН, ИАиЭ СО РАН
Ильичев Леонид Вениаминович, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Малиновский Валерий Константинович, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Суровцев Николай Владимирович, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Новиков Владимир Николаевич, д.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Лабусов Владимир Александрович, д.т.н., ИАиЭ СО РАН
Пугачев Алексей Маркович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Аникин Александр Анатольевич, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Соколов Алексей Александрович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Абалмасов Вениамин Александрович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Анцыгин Валерий Дмитриевич, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Адищев Сергей Владимирович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Каблуков Сергей Иванович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Лобач Иван Александрович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Зыкова Валерия Андреевна, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Окотруб Константин Александрович, к.ф.-м.н., ИАиЭ СО РАН
Ковалевский Виктор Иванович, ИАиЭ СО РАН
Трещихин Владимир Анатольевич, ИАиЭ СО РАН
Каширина Екатерина Константиновна, ИАиЭ СО РАН
Антропов Александр Алексеевич, ИАиЭ СО РАН
Ткаченко Алина Юрьевна, ИАиЭ СО РАН
Зайцева Юлия Вячеславовна, ИАиЭ СО РАН
Добрынина Елизавета Александровна, ИАиЭ СО РАН

По результатам рассмотрения диссертации принято следующее заключение:

Актуальность работы.

Исследование сегнетоэлектриков, представляющих собой полярные диэлектрические материалы, которые в определенном температурном интервале обладают собственным дипольным моментом (спонтанной

поляризацией), вызывает большой научный и практический интерес. Данные материалы из-за своих больших величин пьезоэлектрического, электрооптического коэффициентов и диэлектрической проницаемости активно применяются на практике (пьезодатчики, конденсаторы, сенсоры и т.д.). Среди сегнетоэлектриков особое внимание уделяется композиционно-разупорядоченным сегнетоэлектрикам с большой диэлектрической проницаемостью в широком диапазоне температур (~ 100 К) и частотной зависимостью пика диэлектрической проницаемости (далее, релаксорам). Одной из основных характеристик релаксоров являются локальные полярные области нанометрового размера в параэлектрической фазе. Доказательства о наличии данных областей основывается на многочисленных экспериментальных результатах, демонстрирующих отклонения различных физических свойств (показателя преломления, упругих модулей, коэффициента линейного расширения) от их высокотемпературного поведения, предсказанного для «классических» сегнетоэлектриков [*Burns G.L., Dacol F.H.// Solid State Communications- 1983. – V. 48. - pp.853-856; Cross L.E.// Ferroelectric. – 1987. –V. 76. -pp. 241-267*]. Однако, некоторые подобные свойства были также обнаружены в нескольких «классических» сегнетоэлектриках [*Dulkin E., Petzelt J., Kamba S., Mojaev E., Roth V.// Appl. Phys. Lett.- 2010.- V. 97. -p. 032903*]. Изучение свойств локальных полярных областей важно для понимания природы фазовых переходов во всем классе сегнетоэлектриков, но является нетривиальной задачей из-за их малых размеров и короткого времени жизни.

Методики, применяемые в диссертационной работе Зайцевой И.В., являются бесконтактными и неразрушающими методиками, позволяющими исследовать переход из сегнетоэлектрической в параэлектрическую centrosymmetric фазу. Ненулевой сигнал генерации второй оптической гармоники (ГВГ) может указывать на наличие дипольных моментов в локальных неcentrosymmetric областях в centrosymmetric фазе [*Lines M. E., Glass A. M.- Clarendon: Oxford. -1977*]. Метод рассеяния Мандельштама –

Бриллюэна (РМБ) позволяет изучить температурное поведение упругих модулей, которое может изменяться в результате взаимодействия звуковых волн с возникающими локальными электрическими полями за счет пьезоэлектрического эффекта либо электрострикционной связи [Смоленский Г.А., Боков В.А., Исупов В.А., Крайник Н.Н., Пасынков Р.Е., Соколов А.И., Юшин Н.К. - Наука: Ленинград – 1985, стр.242]. Наличие локальных электрических полей в centrosymmetric phase может влиять на флуктуации параметра порядка, что может отражаться на поведении центрального пика в низкочастотных спектрах комбинационного рассеяния света (КРС).

Основная цель диссертационной работы И. В. Зайцевой была сформулирована как развитие оптических методов (генерация второй оптической гармоники, комбинационное рассеяние света, рассеяние Мандельштама - Бриллюэна, способных предоставить информацию об локальных полярных областях в centrosymmetric paraelectric phase в сегнетоэлектриках и релаксорах. Для достижения поставленной цели в диссертационной работе были сформулированы следующие задачи: изучение сегнетоэлектрических кристаллов ниобата бария стронция $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ (далее, *SBN-100x*) различных химических составов ($x = 0.33, 0.5, 0.61, 0.75$) методами генерации второй оптической гармоники (ГВГ), рассеяния Мандельштама-Бриллюэна (РМБ) и комбинационного рассеяния света (КРС) в широком диапазоне температур; изучение порошков сегнетоэлектрического кристалла титаната бария (далее, $BaTiO_3$), прессованных при высоких негидростатических механических напряжениях, методами генерации второй оптической гармоники (ГВГ) и комбинационного рассеяния света (КРС) в диапазоне температур от комнатной температуры до 700 К.

Личное участие соискателя.

В ходе выполнения работ И. В. Зайцева принимала активное участие в постановке задач, проведении основных экспериментов, анализе и обсуждении результатов, презентации результатов на научных конференциях и написании

статей. При выполнении диссертационной работы И. В. Зайцева проявила себя высококвалифицированным научным работником, способным самостоятельно решать сложные задачи и проводить исследования на высоком научном уровне.

Новизна.

В диссертации получены следующие новые научные результаты:

1. В кристаллах $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ различных химических составов экспериментально получены температурные зависимости сигнала ГВГ с высоким спектральным разрешением и упругих модулей в широком диапазоне температур, включая как сегнетоэлектрическую, так и параэлектрическую фазы. Температурные зависимости сигнала ГВГ и отклонение упругого модуля C_{33} в centrosymmetric фазе в кристаллах $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ описываются температурно-зависимым дипольным моментом в локальных нецентросимметричных областях.
2. Во всех исследованных кристаллах $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ спектральная форма центрального пика в спектрах КРС описывается степенной функцией, где показатель степени изменяется от 0.7 до 0.3. Это указывает на то, что релаксационный процесс определяется множеством времен релаксации.
3. В прессованных порошках $BaTiO_3$ впервые количественно оценены величины механических напряжений, которые остаются после негидростатического прессования. Для этого используется экспериментальная зависимость сдвига позиции $E(TO)$ линии вблизи 307 см^{-1} в спектрах комбинационного рассеяния света (КРС) порошков $BaTiO_3$ от приложенных механических напряжений.

4. Впервые получены температурные зависимости интегральной интенсивности $E(TO)$ линии в спектрах КРС при различных величинах остаточных механических напряжений. Установлено, что температурная зависимость интегральной интенсивности $E(TO)$ линии аналогична температурной зависимости сигнала генерации второй оптической гармоники, которая, в свою очередь, описывается температурно-зависимым дипольным моментом в статических локальных областях, искусственно созданных приложенными механическими напряжениями.

Степень достоверности результатов.

Все полученные результаты не противоречат известным научным положениям, экспериментальным и теоретическим результатам других работ. Все измерения проведены с помощью точных калиброванных приборов. Для экспериментов по измерению спектров КРС проводилась калибровка спектрометра по спектру неоновой лампы. Для экспериментов по измерению широких спектров РМБ проводилась коррекция на собственную функцию пропускания спектрометра.

Научные положения и выводы, сформулированные в диссертации, обоснованы полученными в работе экспериментальными и теоретическими результатами.

Практическая значимость.

Результаты диссертации, несомненно, имеют практическую значимость. Разработанные экспериментальные подходы для исследования сегнетоэлектрических материалов методами генерации второй оптической гармоники, комбинационного рассеяния света и рассеяния Мандельштама-Бриллюэна позволяют получить новую информацию о локальных нецентросимметричных областях в параэлектрической фазе. Результаты, полученные в рамках настоящей работы, полезны специалистам,

занимающимся разработкой сегнетоэлектрических материалов с заранее заданными свойствами.

Соответствие специальности.

Диссертационная работа соответствует специальности 01.04.05 “Оптика”, так как для получения основных результатов использовались оптические методы исследования.

Полнота изложения материалов диссертации в работах, опубликованных соискателем.

Результаты работы докладывались автором на следующих конференциях и семинарах: 21 Всероссийская конференция по физике сегнетоэлектриков (25-30 июня 2017, Казань); 6-ой Сибирский семинар по спектроскопии комбинационного рассеяния света (21-23 августа 2017, г. Красноярск); Студенческая конференция «Оптика и фотоника», Конкурс-конференции «Фотоника и оптические технологии (25-27 сентября 2017, г. Новосибирск); 14th Russia/CIS/Baltic/Japan symposium on ferroelectricity (14-18 мая 2018, Ekaterinburg); Российская конференция и школа молодых ученых по актуальным проблемам спектроскопии КРС: КРС–90 лет исследований (28 мая-1 июня 2018, г. Новосибирск); The Ninth International Seminar on Ferroelastic Physics (September 16-22 2018, Voronezh); SPM–2019–RCWDFM Joint International Conference (August 25-28 2019, Ekaterinburg); 7-ой Урало-Сибирский семинар «Спектроскопия комбинационного рассеяния света» (23-25 августа 2021, г. Екатеринбург); 22 всероссийская конференция по физике сегнетоэлектриков (25-28 августа 2021, г. Екатеринбург).

Результаты диссертационной работы достаточно подробно и в полном объеме отражены в трех опубликованных печатных работах в российских и зарубежных рецензируемых научных журналах, определенных Высшей аттестационной комиссией:

1. Pugachev A. M., Zaytseva I. V., Krylov A. S., Malinovsky V. K., Surovtsev N. V., Borzdov Yu. M., Kovalevsky V. I. Uniaxial mechanical stresses and their influence on the parameters of the ferroelectric phase transition in pressure-treated barium titanate//Ferroelectrics. – 2017. - V. 508. – P. 161–166.
2. Пугачев А.М., Зайцева И.В., Малиновский В.К., Суровцев Н.В., Ивлева Л.И., Лыков П.А. Исследование нелинейно-оптического отклика на локальных полярных неоднородностях в кристаллах ниобата бария стронция различного химического состава // Известия РАН, серия физическая. – 2018. - т. 82. - № 3. – P. 303-308.
3. Pugachev A. M., Zaytseva I. V., Malinovsky V. K., Surovtsev N. V., Ivleva L. I. and Lykov P. A. Comparison of acoustic and nonlinear optical properties of strontium barium niobate crystals of different compositions // Ferroelectrics. – 2018. – V. 538. – P. 126-134.
4. Pugachev A. M., Zaytseva I. V., Malinovsky V. K., Surovtsev N. V., Ivleva L. I., Lykov P. A. Dependence of acoustic anomalies on chemical composition in strontium barium titanate crystals (from conventional ferroelectric to relaxor) probed by Brillouin light scattering // Ferroelectrics. – 2019. – V. 542. – P. 21-27.
5. Zaytseva I.V., Pugachev A. M., Okotrub K.A., Surovtsev N.V., Krylov A.S. Residual mechanical stresses in pressure treated BaTiO₃ powder // J. Ceramics International. – 2019. – V. 45. – P. 12455-12460.
6. Zaytseva I.V., Pugachev A.M., Surovtsev N.V., A.S. Krylov. Features of Raman spectra in barium titanate pressed powder // IOP Conf. Series: Materials and Engineering. – 2019. – V. 699. – P. 012058.
7. Pugachev A.M., Zaytseva I.V., Malinovsky V.K., Surovtsev N.V., Gorev M.V., Ivleva L.I., Lykov P.A. Temperature dependence of the spontaneous polarization, acoustic and strain anomalies in strontium barium niobate

crystals of different chemical compositions probed by the second harmonic generation // *Ferroelectrics*. – 2020. – V. 560. – P. 54-56.

8. Zaytseva I.V., Pugachev A.M., Surovtsev N.V., Ivleva L.I., Iykov P.A. Optical investigations of fluctuation of order parameter in THz range in SBN-x crystals with different chemical compositions // *Ferroelectrics*. – 2020. - V. 560. – P. 102–109.
9. Pugachev A.M., Zaytseva I.V., Surovtsev N.V., Krylov A.S. Anharmonicity and local noncentrosymmetric regions in BaTiO₃ pressed powder studied by the Raman line temperature dependence // *J. Ceramics International*. – 2020. – V. 46. – P. 22619-22623.

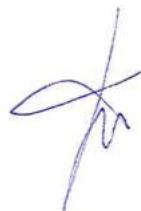
Диссертация “Исследование полярных свойств сегнетоэлектриков в параэлектрической фазе оптическими методами” Зайцевой Ирины Валерьевны рекомендуется к защите на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.05 “Оптика”

Председатель семинара
академик РАН



Шалагин А. М.

Секретарь семинара
к.ф.-м.н.



Лобач И.А.