

УДК 537.226.33 : 53.092

© 1991

ТЕМПЕРАТУРНЫЕ АНОМАЛИИ ПЬЕЗООПТИЧЕСКИХ КОЭФФИЦИЕНТОВ В КРИСТАЛЛАХ БАРИЙ-СТРОНЦИЕВОГО НИОБАТА

Б. Г. Мызык, В. А. Ромашко, Я. А. Сеглинъи

Исследованы пьезооптический и термооптический эффекты в кристаллах барий-стронциевого ниобата $Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$ ($x=0.39$), обладающих сильно размытым фазовым переходом (ФП); определены коэффициенты смещения точки ФП при действии одностороннего давления. Обнаружены контрастные аномалии зависимостей пьезооптических коэффициентов (ПОК) от температуры, которые объясняются в рамках ранее предложенной теории аномалий ПОК и других эффектов, индуцированных давлением. Проведены соответствующие расчеты. Хорошая корреляция экспериментальных и расчетных данных позволяет распространить выводы теории и на другие кристаллы с размытыми ФП.

В последнее время в ряде работ, например [1-4], обнаружены температурные аномалии пьезооптических коэффициентов (ПОК) сегнетоэлектрических кристаллов. Аномальное поведение ПОК обуславливается как спонтанными эффектами (спонтанной поляризацией, спонтанным электрооптическим эффектом (ЭОЭ) и спонтанной разностью хода), изменяющимися при смещении точки фазового перехода (ФП) в результате действия механического напряжения, так и аномалиями коэффициентов упругой податливости. Кристаллы барий-стронциевого ниобата (бастрона) $Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$ ($x=0.39$) оказались удобными объектами для изучения вклада спонтанного ЭОЭ в аномалии ПОК в чистом виде, поскольку вклад упругого члена в ПОК ничтожно малый (значительно меньший погрешности определения ПОК).

Кроме того, кристаллы бастрона обладают сильно размытым ФП. Область размытия составляет несколько десятков градусов [5-7] и, судя по нашим данным, достигает температур ~ 150 °С. Поэтому на примере этих кристаллов в настоящей работе делается попытка распространить выводы обобщенной теории [8], описывающей температурные аномалии эффектов, индуцированных давлением, на случай сегнетоэлектриков с размытыми ФП.

1. Особенности методики и результаты

На рис. 1 показаны температурные зависимости пьезооптических коэффициентов π_{km}^0 , описывающих изменение разности хода при действии механического напряжения σ_m . Коэффициенты π_{23}^0 и π_{21}^0 в области ФП обладают контрастными аномалиями, а π_{31}^0 — температурно независим. Зависимости $\pi_{23}^0(T)$ и $\pi_{21}^0(T)$ установлены известным методом полуволновых напряжений, $\pi_{31}^0(T)$ — методом Сенармона, поскольку соответствующие полуволновые напряжения не достигались из-за малых значений π_{31}^0 . Погрешность определения коэффициентов π_{km}^0 является типичной ~ 10 %.

На рис. 2 приведены термооптические кривые — зависимости изменения разности хода $\delta\Delta_2 \equiv \delta\Delta_1$ от температуры при $\sigma_3=0$ и $\sigma_3 \neq 0$ (кривые 1

и 2 соответственно). Они установлены поляризационно-оптическим методом регистрации экстремумов [9]. На основе таких зависимостей определены коэффициенты смещения точки фазового перехода при действии σ_m : $dT_c/d\sigma_1 \equiv dT_c/d\sigma_2 = -2$ град/кбар $= -0.02$ град/МПа и $dT_c/d\sigma_3 = -15$ град/кбар $= -0.15$ град/МПа. Обратим внимание на то, что метод определения коэффициентов $dT_c/d\sigma_m$ по смещению точки излома зависимостей $\Delta_k(T)$, соответствующей температуре ФП, при действии одностороннего давления нуждается в коррекции, поскольку в сегнетоэлектриках с сильно размытыми ФП такой точки не существует. Поэтому смещение

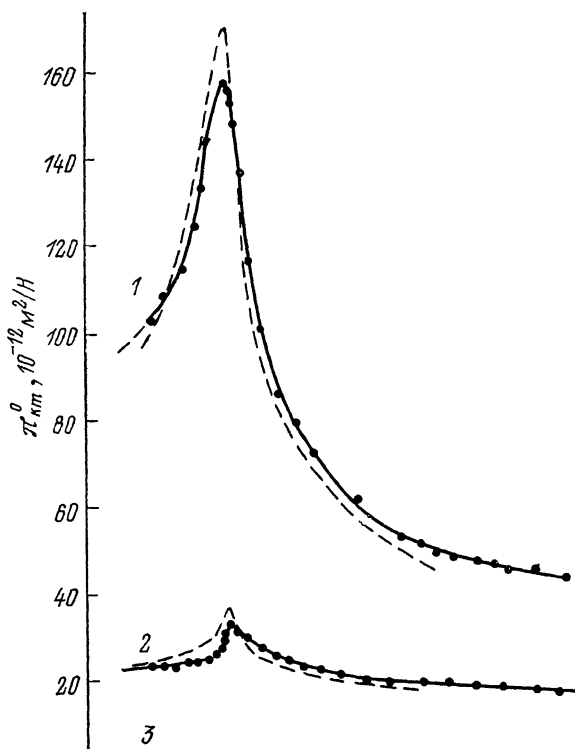


Рис. 1. Температурные зависимости ПОК: π_{23}^0 (1), π_{21}^0 (2), π_{31}^0 (3).
Сплошные линии — эксперимент, штриховые — расчет.

температуры фазового перехода ΔT_c при действии σ_m нужно определять как температурное расстояние между участками с наибольшим наклоном зависимостей 1 и 2 (рис. 2) к оси температур. При этом температуры начала записей этих зависимостей должны совпадать, а их участки, соответствующие параэлектрической фазе, необходимо совместить. Описанный способ определения ΔT_c и $dT_c/d\sigma_m$ в режиме понижения температуры обеспечивал наибольшую воспроизводимость результатов. На основе $\delta\Delta_2(T)$ (рис. 2, кривая 1) определена температурная зависимость спонтанной разности хода от температуры $\Delta_2^{sp}(T)$ (кривая 3) как разность между полным значением $\delta\Delta_2$ и значением, экстраполированным из параэлектрической фазы. Коэффициенты смещения точки ФП и зависимость $\Delta_2^{sp}(T)$ использованы для расчета зависимостей $\pi_{km}^0(T)$. Все измерения проведены для света с длиной волны $\lambda=0.63$ мкм.

2. Обсуждение

Исследованные коэффициенты $\pi_{23}^0 = \pi_{13}^0$, $\pi_{21}^0 = \pi_{12}^0$ и $\pi_{31}^0 = \pi_{32}^0$ представляют собой полный набор независимых главных коэффициентов π_{km}^0 (индексы $k, m=1, 2, 3$ обозначают соответственно направления распростра-

нения света и действия давления вдоль кристаллофизических осей) поперечного пьезооптического эффекта для кристаллов бастрона, принадлежащих к классу симметрии $4mm$ [7, 10]. Известно [1, 2], что ПОК по разности хода $\pi_{km}^0 = -2\delta\Delta_k/(\sigma_m d_k)$ формируются двумя вкладками: пьезоизменением двулучепреломления Δn_k ($\pi_{km}^* = -2\delta\Delta n_k/\sigma_m$) и упругой деформацией образца

$$\pi_{km}^0 = \pi_{km}^* - 2\Delta n_k S_{km}, \quad (1)$$

где S_{km} — коэффициенты упругой податливости. Однако вследствие малых значений двулучепреломления ($\Delta n_1 = \Delta n_2 \approx 0.03$ [10]) и коэффициентов $S_{23} \approx S_{21} \approx -15 \cdot 10^{-12}$ м²/Н (по нашим данным) упругий вклад является малым по сравнению с π_{km}^0 (~3 % для π_{21}^0 и 1 % для π_{23}^0) и не может существенно влиять на величину температурных аномалий ПОК.

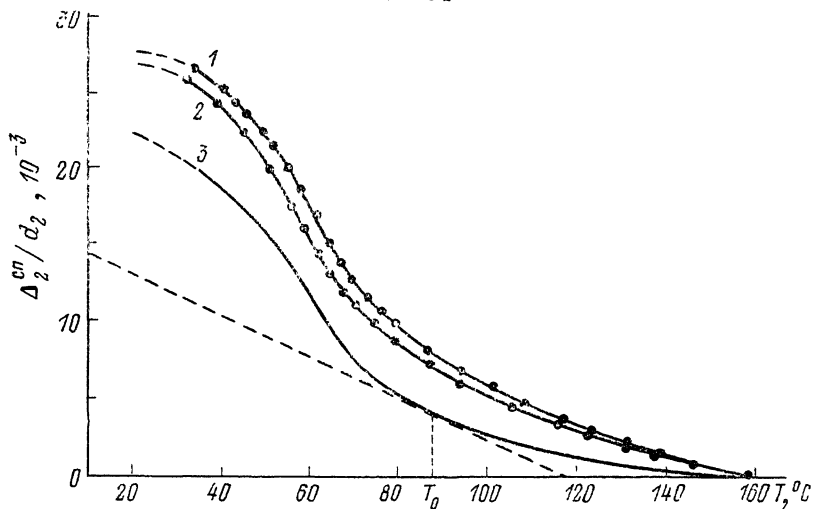


Рис. 2. Температурные изменения разности хода $\delta\Delta_2$ при $\sigma_3=0$ (1), $\sigma_3=210$ кГ/см² (2) и спонтанной разности хода Δ_2^{2n} (3), отнесенные к единице длины.

Таким образом, обнаруженные контрастные аномалии коэффициентов π_{23}^0 и π_{21}^0 обусловлены спонтанным электрооптическим эффектом, являющимся причиной возникновения спонтанного двулучепреломления Δn_k^{0n} и, следовательно, спонтанной разности хода Δ_k^{2n} . Указанные спонтанные эффекты меняются при действии σ_m в результате смещения ФП и вносят дополнительный вклад в истинное значение π_{km}^0 , который проявляется в виде аномалии $\delta\pi_{km}^0$ (она определяется как разность полного значения π_{km}^0 и экстраполированного из параэлектрической фазы). Это качественное объяснение аномальной зависимости $\pi_{km}^0(T)$ подтверждается расчетами. Воспользуемся соотношением, полученным в рамках феноменологической теории температурных аномалий эффектов, индуцированных давлением [8]

$$\delta\pi_{km}^0 = -2 \frac{dT_c}{d\sigma_m} \frac{1}{d_k} \frac{d\Delta_k^{2n}}{dT}, \quad (2)$$

где $d_k^{-1}d\Delta_k^{2n}/dT$ — коэффициент спонтанного термооптического эффекта. Это соотношение справедливо для кристаллов, у которых не меняется характер зависимости спонтанных эффектов от температуры при действии σ_m . К таким кристаллам принадлежит и бастрон: из рис. 2 (кривые 1, 2) следует, что формы зависимостей $\delta\Delta_2(T)$ и, следовательно, $\Delta_2^{2n}(T)$ при $\sigma_3=0$ и $\sigma_3 \neq 0$ практически одинаковы (это характерно также для зависимости $\delta\Delta_2(T)$ при $\sigma_1=200$ кГ/см², которая практически совмещена с кривой 1 из-за малого ΔT_c и поэтому не приведена). Определив для конкретной температуры T_0 значение $d_k^{-1}d\Delta_k^{2n}/dT$ как отношение отрезков Δ_k^{2n}/d_k и ΔT , отсекаемых касательной к зависимости $\Delta_k^{2n}(T)$ в точке, соответ-

вующей T_0 (рис. 2), и подставив его в (2), получаем $\delta\pi_{km}^0$ для этой температуры и т. д.

Из рис. 1 видно хорошее соответствие экспериментальных и рассчитанных зависимостей $\pi_{km}^0(T)$, что позволяет распространить теорию аномалий ПОК [8] на кристаллы с сильно размытыми фазовыми переходами.

Исследованный кристалл во всем диапазоне температур является оптически одноосным. Поэтому отсутствие аномалий коэффициента π_{31} при распространении света вдоль оптической оси ($k=3$) является логичным, ибо равенство $\Delta n_3 = \Delta n_3^{(0)} = \Delta_3^{(0)} = 0$ предполагает, согласно (2), нулевые значения $\delta\pi_{31}^0$.

Максимумы коэффициентов π_{23}^0 и π_{21}^0 соответствуют температуре $\sim 64^\circ\text{C}$. Она отличается от температуры T_c , при которой диэлектрическая проницаемость имеет максимум. Для кристаллов бастрона такого же состава ($x=0.39$), по данным [7], $T_c \approx 75^\circ\text{C}$. Это различие логично, поскольку величина $\delta\pi_{km}^0$ пропорциональна, согласно (2), коэффициенту спонтанного термооптического эффекта $d_k^{-1}d\Delta_k^{(0)}/dT$, а последний принимает максимальное значение при $T \approx 64^\circ\text{C}$ (рис. 2). Труднее обосновать то, что максимум термооптического эффекта для таких же кристаллов, исследованных в [11], соответствует температуре 80°C . Несовпадение указанных температур обусловлено скорее всего известным различием физических свойств кристаллов $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ в зависимости от условий выращивания [5, 12].

В заключение отметим, что кристаллы бастрона обладают существенной анизотропией ПОЭ и, судя по величине коэффициентов π_{23}^0 и $d_2^{-1}d\Delta_2/dT$, относятся к лучшим пьезооптическим и термооптическим материалам. Поэтому они, учитывая также широкий диапазон прозрачности [13], хорошие прочностно-механические свойства и негигроскопичность, являются перспективными объектами для фотоупругих применений и оптической термометрии.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Романюк Н. А., Мыцык Б. Г., Варикаш В. М. // ФТТ. 1983. Т. 25. № 6. С. 1670—1674.
- [2] Романюк Н. А., Варикаш В. М., Мыцык Б. Г. // ЖПС. 1984. Т. 41. № 6. С. 1012—1017.
- [3] Влох О. Г., Китык А. В., Половинко И. И. и др. // УФЖ. 1985. Т. 30. № 2. С. 216—218.
- [4] Влох О. Г., Каминский Б. В., Половинко И. И. и др. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1907—1908.
- [5] Воронов В. В., Десяткова С. М., Ивлева Л. И. и др. // Кристаллография. 1975. Т. 19. № 2. С. 401—402.
- [6] Волк Т. Р., Кочев К. Д., Кузьминов Ю. С. // Кристаллография. 1975. Т. 20. № 3. С. 583—587.
- [7] Буш А. А., Чечкин В. В., Лейченко А. И. // Неорг. материалы. 1977. Т. 13. № 12. С. 2214—2219.
- [8] Мыцык Б. Г. // Оптика анизотропных сред. М., 1988. С. 99—102.
- [9] Мыцык Б. Г., Романюк Н. А. // Зав. лаб. 1982. Т. 48. № 6. С. 48—50.
- [10] Venturini E. L., Spencer E. G., Ballman A. A. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. N 4. P. 1622—1624.
- [11] Морозов Н. А., Рукавишников А. И. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 9. С. 2557—2559.
- [12] Воронов В. В., Десяткова С. М., Ивлева Л. И. и др. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 7. С. 2198—2200.
- [13] Блистанов А. А., Бондаренко В. С., Переломова Н. В. и др. // Акустические кристаллы / Под ред. М. П. Шаскольской. М., 1982. 632 с.

Львовский филиал
Киевского научно-исследовательского института
гидроприборов

Поступило в Редакцию
6 марта 1991 г.