

ОБ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКОМ ЭФФЕКТЕ В КРИСТАЛЛАХ  
МАГНИОНИОБАТА СВИНЦА СО СТРУКТУРОЙ ПИРОХЛОРАИ. И. Адрианова, А. А. Бережной, Е. В. Нефедова,  
В. А. Письменный, Ю. В. Попов и К. П. Скорнякова

Исследован электрооптический эффект в кристаллах магнониобата свинца со структурой пирохлора  $Pb_2Mg_{0.32}Nb_{1.87}O_7$ . Измерены квадратичные электрооптические коэффициенты ( $R_{11}-R_{12}$ ) и показатель преломления при комнатной температуре и  $\lambda=0.63$  мкм. Высказывается предположение об отсутствии вклада ориентационных процессов поляризации в электрооптический эффект в этих кристаллах. Получено хорошее совпадение экспериментальных и теоретических значений квадратичных электрооптических коэффициентов.

В настоящее время известно, что в кристаллах магнониобата свинца (PMN) наблюдается значительный электрооптический эффект. Эти кристаллы обладают структурой типа перовскита и являются сегнетоэлектриками с размытым фазовым переходом. Особенности сегнетоэлектрических свойств этих кристаллов обуславливают большой электрооптический эффект [ $l^{-3}$ ]. Представляет интерес исследовать электрооптический эффект в кристаллах PMN со структурой пирохлора, которые не являются сегнетоэлектриками.

Кристаллы PMN со структурой пирохлора получают при выращивании из расплава окислов свинца, магния и ниобия. Они прозрачные, желтоватого цвета, октаэдрического габитуса, размером до  $10 \times 10 \times 10$  мм<sup>3</sup>. По данным химического анализа, кристаллы содержат PbO — 62.7, MgO — 35.5 и Nb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> — 1.8%, что соответствует формуле пирохлора  $Pb_2Mg_{0.32}Nb_{1.87}O_7$ . Расчет формулы производился по способу, описанному в [4]. Святая дебаеграмма подтверждает, что данный кристалл имеет структуру пирохлора. Постоянная решетки оказалась равной  $a=10.57$  Å.

Кубические кристаллы пирохлора, так же как и кубические кристаллы перовскита, имеют точечную группу симметрии *t3m*.

Исследование электрооптического эффекта в кристаллах пирохлора производилось по обычной методике при комнатной температуре и излучением с  $\lambda=0.63$  мкм. Для измерения электрооптических коэффициентов свет в кристалле распространялся вдоль направления [010], а электрическое поле прикладывалось вдоль направления [001]. Когда электрический вектор падающей световой волны параллелен направлению [011] или [011], индуцированную разность фаз можно представить следующим уравнением

$$\Delta\Phi_{\text{инд.}} = \frac{\pi l n_0^2 (R_{11} - R_{12}) E^2}{\lambda}, \quad (1)$$

где  $l$  — размер кристалла в направлении распространения света,  $n_0$  — показатель преломления в отсутствие электрического поля,  $R_{ij}$  — квадратичные электрооптические коэффициенты,  $E$  — напряженность электрического поля,  $\lambda$  — длина волны света.

Показатель преломления кристаллов  $Pb_2Mg_{0.32}Nb_{1.87}O_7$  измерялся с помощью твердых иммерсионных сред. Он оказался равным при  $\lambda=0.63$  мкм  $n_0=2.59$ .

Для исследования электрооптического эффекта из кристаллов вырезались кристаллические элементы с размерами  $4 \times 4 \times 0.2$  мм<sup>3</sup>, соответственно, вдоль направлений [100], [010] и [001].

На рисунке представлена зависимость относительного пропускания света системой образец—анализатор от приложенного напряжения. Из рисунка видно, что в отсутствии электрического поля через систему проходит значительная интенсивность света (для данного кристалла от  $I/I_0=40$  до 15%), которая при увеличении электрического поля уменьшается. Минимум пропускания системы находится приблизительно при  $U_0=790$  в. При изменении полярности электрического поля характер зависимости не изменяется. Такая зависимость относительного пропускания от приложенного электрического поля, по-видимому, связана с теми упругими напряжениями, которые возникают при росте и обработке кристаллов. Причем эти упругие напряжения во всех экспериментально исследованных образцах вызвали двойное лучепреломление обратного знака, чем двойное лучепреломление, вызванное электрическим полем. Для этого случая относительное пропускание системы образец—анализатор можно представить следующим уравнением:

$$I/I_0 = \sin^2 (\Delta\Phi_{\text{внд.}} - \Delta\Phi). \quad (2)$$

Исходя из этого уравнения, минимум пропускания будет при  $\Delta\Phi_{\text{внд.}} = \Delta\Phi$ . Величину полуволнового напряжения для этого случая можно представить следующим образом:

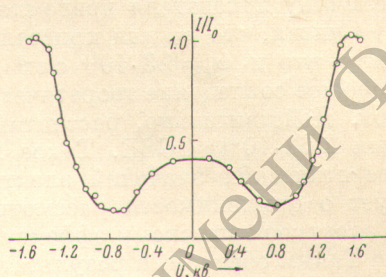
$$U_{\lambda/2}^2 = \frac{\lambda}{n_0^2(R_{11} - R_{12})} + U_0^2. \quad (3)$$

Экспериментально установлено, что максимум пропускания системы наблюдается при  $U=1520$  в. Используя уравнение (3), была рассчитана разность квадратичных электрооптических коэффициентов ( $R_{11} - R_{12}$ ). Она оказалась равной  $(R_{11} - R_{12}) = 2.36 \cdot 10^{-14}$  (см/в)<sup>2</sup>. Величина этих коэффициентов в кристалле  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$  почти на три порядка меньше, чем у кристаллов  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  со структурой типа перовскита. Столь большое различие в величине электрооптических коэффициентов подтверждает высказанное ранее предположение, что большой электрооптический эффект в сегнетоэлектрике  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  обусловлен преимущественным вкладом ориентационной части поляризации [3]. Отсутствие полярных областей в кристаллах  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$  (ориентация которых обуславливает большую величину индуцированного двойного лучепреломления) приводит к тому, что в величину электрооптического эффекта дают вклад, по-видимому, только электронная и ионная поляризации.

Известно, что, если электрооптический эффект определяется ионной и электронной поляризациями, то значение коэффициентов  $\Delta_{ijkl}$  (связывающих нелинейную и линейные восприимчивости) почти на порядок больше, чем если электрооптический эффект определяется еще и ориентационной поляризацией [5]. Действительно, расчет показал, что значения коэффициентов ( $\Delta_{1111} - \Delta_{1112}$ ) в кристаллах  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$  почти на порядок больше, чем в кристаллах  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ . Это говорит о различной природе электрооптического эффекта в этих двух кристаллах.

Сравнительные характеристики для этих кристаллов при комнатной температуре и  $\lambda=0.63$  мкм представлены в таблице.

Так как в величину электрооптических коэффициентов в кристаллах  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$  не вносит вклад ориентационная поляризация, то величину электрооптических коэффициентов можно рассчитать теоретически, исходя из модели Куртца и Робинсона [6]. В этой модели влияние ионной части поляризации они включили в параметр локального поля  $\beta = (\epsilon - 1)$ .



Зависимость относительного пропускания системы кристалл—анализатор от напряжения при комнатной температуре и  $\lambda=0.63$  мкм.

Химическая формула	$(R_{11} - R_{12}) \cdot 10^{-10}$ , CGSE	$(\Delta_{1111} - \Delta_{1112}) \cdot 10^{-12}$ , CGSE	$n$	$\epsilon$
$\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$	1300	3.2	2.56	7400
$\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$	2.1	25.0	2.59	152

$\cdot \left(\frac{\gamma}{3} + 1\right)$ , для кубических кристаллов  $\gamma \approx 1$ , т. е. принималась во внимание поправка Лорентца на локальное поле. Тогда уравнение для квадратичных электрооптических коэффициентов можно записать

$$R_{ijkl} = \frac{1}{2\pi} \frac{(n_0^2 - 1)^2}{n_0^4} \frac{\epsilon^2}{mN^{1/3}\omega_0^2}, \quad (4)$$

где  $m$  — масса электрона,  $N$  — число электронов в единице объема,  $\omega_0$  — частота средней гипотетической полосы поглощения, которая определяет величину показателя преломления в видимой области спектра.

Считая, что  $\omega_0$  для кристаллов  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$  имеет ту же величину, что и  $\omega_0 = 6.3 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-1}$  для кристаллов  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ , получим хорошее совпадение теоретической величины  $(R_{11} - R_{12})$  с экспериментальной. Действительно, рассчитанное значение  $(R_{11} - R_{12})$  оказывается равным  $2.62 \cdot 10^{-10} \text{ CGSE}$ . Такое хорошее совпадение экспериментальных и теоретических значений электрооптических коэффициентов свидетельствует о применимости рассмотренной Куртцем и Робинсоном модели к электрооптическому эффекту в кристаллах  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$ .

Таким образом, в результате проведенных исследований были впервые определены квадратичные электрооптические коэффициенты в кристаллах  $\text{Pb}_2\text{Mg}_{0.32}\text{Nb}_{1.87}\text{O}_7$ , имеющих структуру типа пиррофлора. Показано, что вследствие отсутствия вкладов ориентационных процессов в величину электрооптических коэффициентов в этих кристаллах их величина значительно меньше, чем в сегнетоэлектрическом кристалле  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ , обладающим размытым фазовым переходом.

В заключение авторы благодарят Т. Н. Куликову за помощь при проведении эксперимента.

#### Литература

- [1] А. А. Бережной. Изв. АН СССР, сер. физ., 31, 1154, 1967.
- [2] W. A. Bonner, E. F. Dearborn, I. E. Geusic, H. M. Morcos, Z. C. Van Uitert. Appl. Phys. Lett., 10, 163, 1967.
- [3] Г. А. Смоленский, И. И. Крайник, А. А. Бережной, И. Е. Мильникова. ФТТ, 10, 465, 1968.
- [4] А. Г. Булах. Руководство и таблицы для расчета формул минералов, 28. Изд. «Недра», М., 1967.
- [5] А. А. Бережной. ФТТ, 14, 6, 1972.
- [6] S. K. Kurtz, F. N. P. binson. Appl. Phys. Lett., 10, 62, 1967.

Поступило в Редакцию 7 августа 1972 г.