

КВАДРАТИЧНЫЙ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ ПОГЛОЩЕНИЯ В МОНОКРИСТАЛЛЕ ТИТАНАТА БАРИЯ В ПАРАЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ФАЗЕ

И. А. Плешаков, Л. М. Гусева, А. С. Сонин и И. В. Кашлакова

Обнаружен сдвиг края основного поглощения в сторону больших длин волн при приложении электрического поля. Эффект найден в области температур $\pm 10^\circ \text{C}$ вблизи точки Кюри и носит квадратичный характер, причем его константа зависит от температуры. Полученные результаты обсуждаются в рамках феноменологической теории.

В работах [1-3] изучалось смещение края основного поглощения титаната бария под действием электрического поля и соответствующее изменение ширины запрещенной зоны объяснялось авторами работ деформацией кристалла под полем (в частности, электрострикционной в параэлектрической фазе).

Нами высказано предположение о возможности обобщения феноменологической теории электрооптического эффекта на случай комплексного показателя преломления $N = n - ik$. С этой точки зрения смещение края основного поглощения кристалла под полем можно рассматривать как результат изменения показателя поглощения k вследствие поляризации материала, т. е. как электрооптический эффект поглощения. Изменение показателя поглощения под действием спонтанной поляризации в монокристалле титаната бария (спонтанный эффект) подробно рассмотрено в работе [4].

Данная работа посвящена экспериментальному исследованию индуцированного электрооптического эффекта поглощения в монокристалле титаната бария в параэлектрической фазе.

Экспериментальному исследованию предшествовало феноменологическое рассмотрение электрооптического эффекта поглощения для различных поляризаций света и различных направлений электрического поля, приложенного к кристаллу. Уравнения эффекта составлены с учетом класса симметрии кристалла.

Так, например, при наложении электрического поля по направлению [001] и распространении света по [100] с колебаниями электрического вектора световых волн по [010] и [001] для механически свободного кристалла класса $m3m$ приращения показателей поглощения, индуцированные поляризацией P_3 , имеют следующий вид:

$$\left. \begin{aligned} \Delta k_2 = k_2 - k_0 &= \frac{1}{2} n_0^3 [G_{12}^{*x} + p'_{11} Q_{12} + p_{12} (Q_{12} + Q_{11})] P_3^2 - \frac{3}{2} n_0^3 k_0 \times \\ &\quad \times [R_{12}^{*x} + p_{11} Q_{12} + p_{12} (Q_{12} + Q_{11})] P_3^3, \\ \Delta k_3 = k_3 - k_0 &= \frac{1}{2} n_0^3 [G_{11}^{*x} + 2p'_{12} Q_{12} + p'_{11} Q_{11}] P_3^2 - \frac{3}{2} n_0^3 k_0 \times \\ &\quad \times [R_{11}^{*x} + 2p_{12} Q_{12} + p_{11} Q_{11}] P_3^3. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Если электрическое поле, приложенное к кристаллу, направлено по [011] и колебания электрического вектора световых волн происходят

по [011], то индуцированное поляризацией P_4 приращение показателя поглощения k_4 имеет вид

$$\Delta k_4 = k_4 - k_0 = \frac{1}{2} n_0^3 (G_{44}^{*x} + P'_{44} + Q_{44}) P_4^2 - \frac{3}{2} n_0^2 k_0 (R_{44}^{*x} + P_{44} Q_{44}) P_4^2. \quad (2)$$

В формулах (1) и (2) k_0, n_0 — показатели поглощения и преломления титаната бария в параэлектрической фазе соответственно; $G_{11}^{*x}, G_{12}^{*x}, G_{44}^{*x}$ — квадратичные электрооптические коэффициенты поглощения механически зажато кристалла в параэлектрической фазе; $P'_{11}, P'_{12}, P'_{44}$ — упругооптические постоянные поглощения; Q_{11}, Q_{12}, Q_{44} — электрострикционные постоянные; $R_{11}^{*x}, R_{12}^{*x}, R_{44}^{*x}$ — квадратичные электрооптические коэффициенты преломления механически зажато кристалла в кубической фазе; P_{11}, P_{12}, P_{44} — упругооптические постоянные преломления.

Оценка слагаемых в формулах (1) и (2), по литературным данным и результатам эксперимента, показывает, что члены, содержащие множитель $(3/2)n_0^2 k_0$, примерно на 3–4 порядка меньше, чем общее изменение показателей поглощения, что позволяет с ошибкой не более 0.1% вычислять электрооптические коэффициенты поглощения по формулам

$$\left. \begin{aligned} G_{12}^{*x} &= \frac{2\Delta k_2}{n_0^3 P_3^2} - [P'_{11} Q_{12} + P'_{12} (Q_{12} + Q_{11})], \\ G_{21}^{*x} &= \frac{2\Delta k_3}{n_0^3 P_3^2} - (2P'_{12} Q_{12} + P'_{11} Q_{11}), \\ G_{11}^{*x} &= \frac{2\Delta k_4}{n_0^3 P_4^2} - P'_{44} Q_{44}. \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Упругооптические постоянные поглощения можно определить из уравнений упругооптического эффекта при приложении механических нагрузок вдоль определенных направлений. Так, при приложении механической нагрузки вдоль [001] и распространения света в перпендикулярном направлении [100] с колебаниями электрического вектора световых волн вдоль [010] и [001] соответствующие приращения показателей поглощения, индуцируемые механическим напряжением x_3 , имеют вид

$$\left. \begin{aligned} \Delta k_2 = k_2 - k_0 &= \frac{1}{2} n_0^3 [P'_{11} s_{12} + P'_{12} (s_{12} + s_{11})] x_3, \\ \Delta k_3 = k_3 - k_0 &= \frac{1}{2} n_0^3 (2P'_{12} s_{12} + P'_{11} s_{11}) x_3. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

А при приложении механической нагрузки вдоль [011] и распространения света по [100] с колебаниями электрического вектора световых волн по [011] приращение показателя поглощения, индуцируемое механическим напряжением x_4 , имеет вид

$$\Delta k_4 = k_4 - k_0 = \frac{1}{2} n_0^2 2P'_{44} s_{44} x_4. \quad (5)$$

В формулах (4) и (5) s_{11}, s_{12}, s_{44} — упругие податливости в параэлектрической фазе в непосредственной близости к точке Кюри.

Исследования проводились на a -монокристаллических пластинках титаната бария, выращенных в лаборатории Днепропетровского университета. Образцы изготавливались в виде прямоугольных параллелепипедов со сторонами, параллельными кристаллофизическим осям, и со сторонами, составляющими углы 45° с осями X_2 и X_3 . Показатели поглощения k_0, k_2, k_3, k_4 определялись из результатов измерений оптического пропускания в поляризованном свете с учетом потерь на отражение.

Измерения пропускания в зависимости от температуры, электрического поля и механического напряжения проводились в одинаковых условиях на спектрофотометре СФ-4А со специальной приставкой. Исследования велись в интервале температур $25 \div 180^\circ \text{C}$ в разработанном и изго-

товленном нами термостате с кристаллодержателем, позволяющим проводить одновременно диэлектрические, электрооптические и упругоопти-

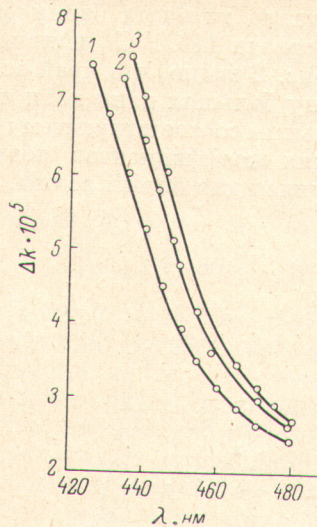


Рис. 1. Зависимость показателя поглощения кристалла титаната бария от длины волны света с колебаниями электрического вектора вдоль [001] при температурах 22 (1), 71 (2) и 134° С (3).

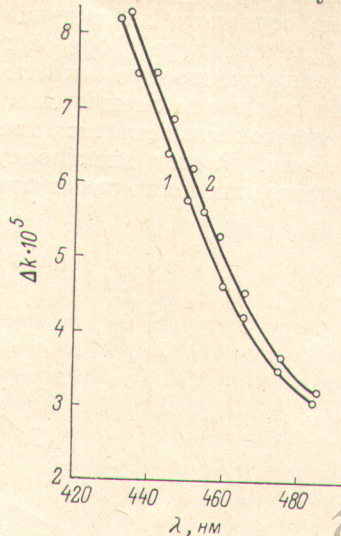


Рис. 2. Зависимость показателя поглощения k_3 титаната бария от длины волны света. 1 — без поля, 2 — с полем 1 кВ/см.

ческие исследования. Минимальное возможное изменение температуры образца составляло $\pm 0.05^\circ \text{C}$. Точность стабилизации температуры $\pm 0.01^\circ \text{C}$. Точность установки кристалла при определении показателя поглощения составляла $\pm 0.01 \text{ мм}$.

Точка фазового перехода контролировалась по максимуму диэлектрической проницаемости с помощью моста переменного тока Р-571 на частоте 1000 Гц в слабых переменных полях, а также по петле диэлектрического гистерезиса. Для измерения диэлектрической проницаемости кристалла в сильных постоянных полях была дополнительно собрана схема, позволяющая исключить подачу высокого постоянного напряжения с кристалла на вход измерителя емкости Р-574.

При температурных измерениях пропускания кристаллов титаната бария без приложения электрического поля наблюдался сдвиг края основного поглощения в сторону больших длин волн (рис. 1). Аналогичный сдвиг края наблюдался и для других направлений поляризации света.

Наложение электрического поля на кристалл в направлении сегнетоэлектрической оси c индуцирует дополнительный сдвиг края основного

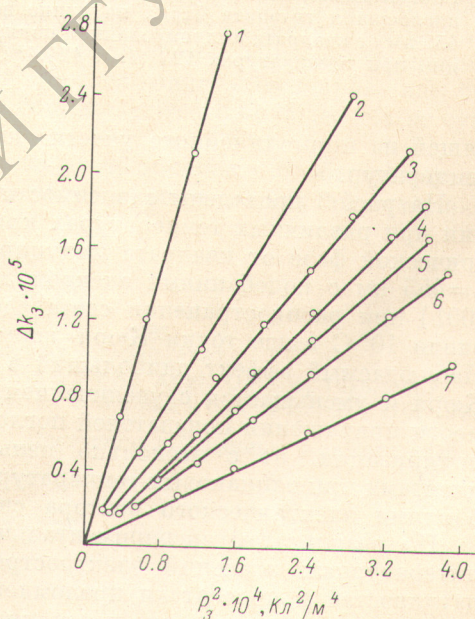


Рис. 3. Зависимость приращений показателей поглощения от квадрата индуцированной поляризации при температурах 122.4 (1), 123.3 (2 и 3), 123.6 (4), 123.8 (5), 124.4 (6) и 125° С (7).

поглощения титаната бария (рис. 2), который наблюдается в узком интервале температур $\pm(7 \div 10)^\circ\text{C}$ вблизи точки Кюри. Кривая 1 соответствует краю основного поглощения кристалла титаната бария без поля при 121°C (температура Кюри этого кристалла 119.2°C), и кривая 2 — под полем напряженностью 1 кВ/см . Из рис. 2 видно, что край основного поглощения под полем смещается в сторону больших длин волн и прямолинейный участок края остается параллельным соответствующему участку края без поля. Расчет электрооптических коэффициентов поглощения и уругооптических постоянных производился для длины волны, невыхо-

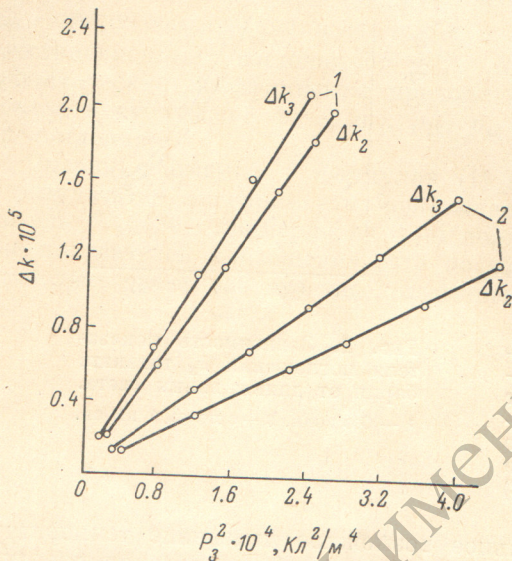


Рис. 4. Зависимость приращений показателей поглощения титаната бария на длине волны 455 нм от квадрата индуцированной поляризации при температурах 123°C (1) и 124.4°C (2).

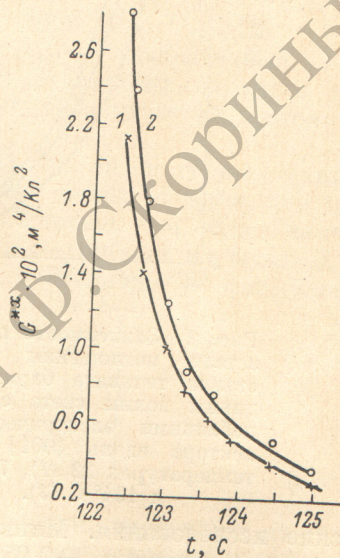


Рис. 5. Температурные зависимости квадратных электрооптических коэффициентов поглощения титаната бария G_{12}^* (1) и G_{11}^{*x} (2).

дящей из прямолинейного участка края во всем исследуемом интервале температур.

На рис. 3 приведены зависимости приращений показателей поглощения при различных температурах кристалла титаната бария в параэлектрической фазе от квадрата индуцированной поляризации P_3 для света $\lambda=455\text{ нм}$ с колебаниями электрического вектора световых волн вдоль $[001]$ при распространении света вдоль $[100]$. В интервале температур около 10°C выше точки Кюри зависимость между Δk_3 и P_3^2 линейная. Наблюдаемый эффект наибольший в непосредственной близости к точке Кюри и уменьшается с увеличением температуры. Аналогичные зависимости приращений показателей поглощения от квадрата индуцированной поляризации, но с несколько меньшими электрооптическими коэффициентами при одинаковых температурах, наблюдаются и для света с колебаниями электрического вектора световых волн вдоль $[010]$ (рис. 4).

По результатам экспериментальных исследований с использованием литературных значений электрострикционных констант, уругих податливостей и показателя преломления из уравнений (4), (5) были вычислены уругооптические постоянные поглощения P_{11}' , P_{12}' и P_{44}' , а затем по формулам (3) рассчитаны квадратичные электрооптические коэффициенты поглощения G_{11}^{*x} , G_{12}^{*x} , G_{44}^{*x} для механически зажато го кристалла. Как видно из рис. 5, электрооптические коэффициенты поглощения с повышением температуры резко уменьшаются.

При различных температурах и для различных направлений поляризованного света нами вычислены изменения показателя поглощения, вызванные непосредственно электрострикционной деформацией кристалла,

и оценен вклад упругооптического эффекта в суммарное изменение показателя поглощения под полем. Так например, при температуре 123.3°C для образца, у которого температура Кюри 121.1°C , при распространении света по [100] с колебаниями электрического вектора световых волн по [001], как следует из уравнений (3), будут иметь место следующие изменения показателей поглощения:

$$\Delta k_3^x = \Delta k_3^z + n_0^3 p'_{12} Q_{12} P_3^2 + \frac{1}{2} n_0^3 p'_{11} Q_{11} P_3^2.$$

Для этого случая получены числовые значения слагаемых

$$\Delta k_3^x = 1.880 \cdot 10^{-5} = 1.856 \cdot 10^{-5} + 0.008 \cdot 10^{-5} + 0.016 \cdot 10^{-5},$$

т. е. при этих условиях на долю первичного электрооптического эффекта поглощения приходится 98.8% от общего изменения показателя поглощения свободного кристалла, а изменение показателя, вызванное электрострикционной деформацией (вторичный эффект), составляет 1.2%. Для других кристаллов при различных температурах и для различных поляризаций света вклад упругооптического эффекта в суммарное изменение показателя поглощения под полем составляет не более 5%. Упругооптические постоянные поглощения могут иметь одинаковые и разные знаки и отличаться по порядку величины, а квадратичные электрооптические коэффициенты имеют одинаковый порядок величины и знаки. Поэтому при определении разности электрооптических коэффициентов вклад упругооптического эффекта может быть больше, чем при раздельном определении коэффициентов.

Таким образом, проведенные экспериментальные исследования показали, что сдвиг края основного поглощения титаната бария при воздействии электрического поля можно рассматривать как суммарный электрооптический эффект поглощения, состоящий в непосредственном изменении поглощающих свойств кристалла под влиянием поляризации (первичный эффект) и в изменении поглощающих свойств кристалла в результате электрострикционной деформации (вторичный эффект). Последний эффект не является единственным и определяющим сдвиг края, как это предполагалось в ранних работах, а составляет всего не более 5% от суммарного изменения.

Полученные результаты подтверждают возможность обобщения феноменологической теории электрооптического эффекта на случай комплексного показателя преломления.

Литература

- [1] Ch. Gähwiler. *Helv. Phys. Acta*, **38**, 361, 1965.
- [2] Ch. Gähwiler. *Phys. Kondens. Mater.*, **6**, 269, 1967.
- [3] V. M. Fridkin, K. A. Verkhovskaya. *Appl. Opt.*, **6**, 1925, 1967.
- [4] А. С. Соин, П. М. Гусева, И. А. Плешаков. *ФТТ*, **16**, 110, 1974.

Поступило в Редакцию 6 января 1975 г.