

Вклад спонтанной поляризации и ее флуктуаций в преломление света в сегнетоэлектриках

© П.А. Марковин¹, В.А. Трепаков^{1,2}, А.К. Таганцев^{1,3}, А. Дейнека², Д.А. Андреев⁴

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Институт физики Академии наук Чехии, Прага, Чехия

³ Швейцарский федеральный институт технологий (EPFL), Лозанна, Швейцария

⁴ Санкт-Петербургский государственный политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: P.Markovin@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 16 июля 2015 г.)

В рамках фенологического подхода рассмотрены с учетом флуктуаций поляризации выражения для спонтанного полярного вклада δn_i^S в главные значения показателя преломления, возникающего за счет квадратичного электрооптического эффекта в сегнетоэлектриках. Предложен метод вычисления из температурных изменений спонтанного полярного вклада $\delta n_i^S(T)$ величины и температурной зависимости среднеквадратичных флуктуаций поляризации (ближний, локальный полярный порядок) $P_{sh} = \langle P_{\parallel}^2 \rangle^{1/2}$ ниже температуры сегнетоэлектрического перехода T_c , если независимыми измерениями (например, из петель диэлектрического гистерезиса) определено среднее значение спонтанной поляризации $P_s = \langle P \rangle$, характеризующей дальний порядок. Для случая изотропных флуктуаций метод позволяет вычислить P_{sh} и P_s только из рефрактометрических измерений. Показано, что при интерферометрических измерениях развитый в работе метод позволяет проводить вычисления P_{sh} и P_s непосредственно из измеряемых температурных и электрополевых изменений относительного оптического пути света.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Академии наук Чешской Республики 15-137785 (GACR 15-137785).

1. Введение

Исследования температурных изменений показателя преломления $\delta n(T)$ и двупреломления света $\Delta n(T)$ являются эффективным методом изучения фазовых переходов, в первую очередь из-за большой точности современных экспериментальных методов измерения этих величин. К настоящему времени развиты обоснованные методы выделения спонтанного вклада в показатель преломления δn^n , связанного с параметром порядка η из температурных изменений показателя преломления и двупреломления света [1–8]. Конкретный вид связи спонтанного вклада в главные значения показателя преломления δn_i^n и параметра порядка η анализировался [9–14] для структурных, в том числе сегнетоэлектрических, и магнитных фазовых переходов (анализ δn_i^n для последних приведен в [1,2,10,11] и не затрагивается в настоящей статье). В большинстве случаев δn_i^n связан квадратично с параметром порядка и спонтанное изменение показателя преломления пропорционально среднему (по времени и измеряемому объему кристалла) значению квадрата параметра порядка $\delta n^n(T) \propto \langle \eta^2 \rangle$. Это обстоятельство позволяет извлекать из измерений δn_i^n величину $\langle \eta^2 \rangle$, в которую дают вклад, как дальний порядок, так и ближний порядок, обусловленный флуктуациями η . Связь температурных изменений показателя преломления с $\langle \eta^2 \rangle$ приводит к вкладу флуктуаций (ло-

кального порядка) в $\delta n_i^n(T)$ и выше и ниже температуры фазового перехода. Такой вклад появляется также и в температурной зависимости кристаллографического двупреломления кристаллов, некубических в высокосимметричной фазе. Общей проблемой для рефрактометрических исследований систем с сосуществованием ближнего и дальнего порядка, в том числе полярного, является отсутствие метода вычисления из эксперимента величины $\eta_{sh} = \langle \eta_{\parallel}^2 \rangle^{1/2}$, обусловленной только ближним порядком (флуктуациями параметра порядка, локальным порядком) при температурах ниже T_c .

В собственных сегнетоэлектриках параметром порядка является спонтанная поляризация P и спонтанный вклад $\delta n_i^S(T)$ в $\delta n_i(T)$ обусловлен квадратичным электрооптическим (ЭО) эффектом $\delta n^S(T) \propto \langle P^2 \rangle$ [9,12–14]. Значение поляризации, характеризующей только ближний порядок P_{sh} , как и величина среднего значения спонтанной поляризации $P_s = \langle P \rangle$, определяющей дальний порядок ниже T_c , является важным количественным параметром для теоретического описания полярной фазы. Как отмечено выше, количественная характеристика ближнего порядка P_{sh} (флуктуаций различного типа, локального порядка) определяется как корень квадратный из среднего значения квадрата флуктуаций поляризации $P_{sh} = \langle P_{\parallel}^2 \rangle^{1/2}$ (среднеквадратичная флуктуация), поскольку $\langle P_{\parallel} \rangle = 0$. До настоящего времени величина $P_{sh} = \langle P_{\parallel}^2 \rangle^{1/2}$ вычислялась и анализировалась из рефрак-

тометрических измерений только для частных случаев, когда отсутствует дальний порядок — спонтанная поляризация $P_s = \langle P \rangle = 0$ и $\langle P^2 \rangle^{1/2} = P_{sh}$. Такая ситуация реализуется в сегнетоэлектриках выше T_c , в релаксорах для фазы Бернса, в стеклоподобных фазах. Поведение $\langle P^2 \rangle^{1/2} = P_{sh}$ выше T_c („precursor polarization“ — „хвосты“ температурных зависимостей $\delta n_i^S(T)$ в парафазе) из рефрактометрических измерений было исследовано для классических сегнетоэлектриков $BaTiO_3$ [15], $KNbO_3$ [16], $PbTiO_3$ [17] в $PTiOPO_4$ [18] и др. Изучение $\delta n(T)$ и выделение спонтанного полярного вклада $\delta n^S(T)$ в модельных релаксорах привело к обнаружению локального полярного состояния в нанобластях без образования дальнего порядка, которое назвали фазой Бернса [19–22]. Поляризация в нанобластях P_d (P_{sh} в наших обозначениях) была оценена как $P_d = \langle P^2 \rangle^{1/2}$ из спонтанного полярного вклада $\delta n^S(T)$, возникающего гораздо выше температуры максимума диэлектрической проницаемости.

Выделение величины P_{sh} , связанной только с ближним порядком (локальным порядком, флуктуациями), ниже T_c не проводилось из-за отсутствия метода ее выделения для случаев, когда в получаемую из эксперимента величину $\langle P^2 \rangle$ дает вклад как P_{sh} , так и P_s . В общем случае, как будет ясно из дальнейшего, $P_{sh} = \langle P_{fl}^2 \rangle^{1/2}$ не может быть вычислено простым вычитанием $P_{sh} = \langle P_{fl}^2 \rangle^{1/2} = \langle P^2 \rangle^{1/2} - P_s$ или $P_{sh}^2 = \langle P_{fl}^2 \rangle = \langle P^2 \rangle - P_s^2$. Аномальное поведение спонтанного вклада параметра порядка $\langle \eta^2 \rangle$ в рефракцию света, связанное с флуктуациями наблюдалось и для многих типов структурных переходов (см. [3,23–25] и ссылки в них). Ниже T_c вклад $\langle \eta_{fl}^2 \rangle$ не выделялся. Отметим работу [23], в которой на основе анализа температурных производных кристаллографического двупреломления обсуждалось поведение $\langle \eta^2 \rangle_{loc}$ выше и ниже температуры T_i несоразмерного фазового перехода в Rb_2ZnBr_4 . При анализе $\langle \eta^2 \rangle_{loc}$ в [23] отмечалась необходимость учета дальнего порядка ниже T_i , но обсуждение эксперимента касалось только $\langle \eta^2 \rangle_{loc}$ выше T_i .

Вычисление P_{sh} ниже T_c особенно актуально для исследования систем с сосуществованием дальнего и ближнего порядка ниже T_c , когда вклады ближнего и дальнего порядка сравнимы по величине. К таким объектам, в частности, относятся квантовые параэлектрики $SrTiO_3$ и $KTaO_3$ с примесями ($Sr_{1-x}Ca_xTiO_3$, $Sr_{1-x}Ba_xTiO_3$, $SrTi^{(16}O_{1-x}^{18}O_x)_3$, $KTa_{1-x}Nb_xO_3$ и др.). В них выше некоторой критической концентрации примеси x_c индуцируется сегнетофаза. Величина $\langle P^2 \rangle^{1/2}$, включающая и дальний и ближний порядок оказывается значительно больше $P_s = \langle P \rangle$, что указывает на развитые пространственные флуктуации параметра порядка, характер которых качественно отличается от поведения классических термодинамических флуктуаций вблизи T_c .

Целью настоящей работы является развитие метода количественного вычисления величин P_{sh} и P_s из спонтанного полярного вклада δn^S в температурные изменения главных значений показателя преломления

сегнетоэлектриков. Рассмотрение проводится в рамках феноменологического подхода [12–14] на основе модификации выражений для изменений показателя преломления под действием спонтанной поляризации с учетом флуктуаций. Из полученных формул следует, что из температурных зависимостей спонтанного полярного вклада в главные значения показателя преломления можно вычислить величину и температурную зависимость $P_{sh} = \langle P_{fl}^2 \rangle^{1/2}$, характеризующую только ближний полярный порядок, возникающий за счет флуктуаций поляризации (локального упорядочения) как выше, так и ниже температуры сегнетоэлектрического перехода T_c , если из независимых измерений определена величина среднего значения спонтанной поляризации P_s , характеризующая дальний полярный порядок. Для случая изотропных флуктуаций метод позволяет вычислить P_{sh} и P_s только из рефрактометрических измерений. Метод адаптирован для нахождения P_s и P_{sh} из интерферометрических измерений. Показано, что при интерферометрических измерениях метод позволяет проводить вычисления P_{sh} и P_s непосредственно из измеряемых температурных и электрополевых изменений относительного оптического пути света в кристалле.

2. Обобщенные выражения для спонтанного полярного вклада в главные значения показателя преломления с учетом флуктуаций поляризации

В рамках феноменологического подхода спонтанный полярный вклад в преломляющие свойства сегнетоэлектриков описывается на основе разложения изменений компонент тензора диэлектрической непроницаемости $\delta \epsilon_{ij}^{-1}$ по степеням компонент спонтанной поляризации P_k, P_l . Для квадратичного электрооптического эффекта

$$\delta (\epsilon_{ij}^{-1})^s = \sum_{kl} g_{ijkl}^* P_k P_l, \quad (1)$$

где g_{ijkl}^* — квадратичные по поляризации электрооптические (ЭО) коэффициенты в полярной фазе, $\delta (\epsilon_{ij}^{-1})^s$ — спонтанный полярный вклад в изменение тензора диэлектрической непроницаемости.

В главной системе координат для изменений $\delta \epsilon_{ii}^{-1} = \delta \epsilon_i^{-1}$ для актуальных полярных групп симметрии $4mm$, $mm2$ и ряда других, с учетом правил пересчета индексов можно написать

$$\delta (\epsilon_i^{-1})^s = \sum_{j=1}^3 g_{ij}^* P_j^2. \quad (2)$$

Между главными значениями показателя преломления n_i и компонентами тензора диэлектрической проницаемости ϵ имеет место простая связь: $\epsilon_{ii} = \epsilon_i = n_i^2$. Для

малых добавок за счет спонтанного вклада в главные значения показателя преломления δn_i^s

$$\delta n_i^s = - \left(\frac{n_i^3}{2} \right) \delta (\varepsilon_i^{-1})^s = - \sum_{j=1}^3 \left(\frac{n_i^3}{2} \right) g_{ij}^* P_j^2. \quad (3)$$

Учитывая, что спонтанное изменение δn_i^s пропорционально среднему (по времени и пути света) значению квадрата компонент поляризации $\langle P_j^2 \rangle$, выражение (3) должно быть модифицировано

$$\delta n_i^s = - \left(\frac{n_i^3}{2} \right) \delta (\varepsilon_i^{-1})^s = - \sum_{j=1}^3 \left(\frac{n_i^3}{2} \right) g_{ij}^* \langle P_j^2 \rangle. \quad (4)$$

В выражение (4) должны входить флуктуации компонент поляризации P_{fij} . В этом случае из (4) получаем (учтено, что можно приближенно заменить $n_i \cong n$)

$$\delta n_i^s = - \sum_{j=1}^3 \left(\frac{n^3}{2} \right) g_{ij}^* \langle (P_{sj} \pm P_{\bar{n}j})^2 \rangle. \quad (5)$$

В выражении (5) P_{sj} — абсолютные значения компонент спонтанной поляризации, связанные с дальним порядком $P_{sj} = | \langle P_{sj} \rangle |$. $P_{\bar{n}j}$ — абсолютные значения флуктуационных компонент спонтанной поляризации, которые связаны только с ближним порядком. При преобразовании выражения (5), с учетом статистически равномерного распределения $P_{\bar{n}j}$ с противоположным знаком $\langle \pm 2P_{sj} P_{\bar{n}j} \rangle = 0$, обобщенные выражения для спонтанного полярного вклада в главные значения показателя преломления с учетом флуктуаций поляризации принимают вид

$$\delta n_i^s = - \sum_{j=1}^3 \left(\frac{n^3}{2} \right) g_{ij}^* (\langle P_{sj}^2 \rangle + \langle P_{\bar{n}j}^2 \rangle). \quad (6)$$

В выражении (6) в каждом конкретном случае необходимо учитывать возможные реализуемые направления спонтанной поляризации и соответственно ее флуктуаций, определяемые симметрией кристалла. Обозначим это выделенное направление в монокристалле как ось 3. Далее будем использовать обозначения: $P_{shj} = \langle P_{\bar{n}j}^2 \rangle^{1/2}$, $P_s = | \langle P_{s3} \rangle |$ и учтем, что в этих обозначениях $P_s^2 = \langle P_{s3}^2 \rangle$. В этом случае из (6) получаем

$$\delta n_3^s = - \frac{n^3}{2} [g_{33}^* (P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{31}^* P_{sh1}^2 + g_{32}^* P_{sh2}^2], \quad (7a)$$

$$\delta n_1^s = - \frac{n^3}{2} [g_{13}^* (P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{11}^* P_{sh1}^2 + g_{12}^* P_{sh2}^2], \quad (7b)$$

$$\delta n_2^s = - \frac{n^3}{2} [g_{23}^* (P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{21}^* P_{sh1}^2 + g_{22}^* P_{sh2}^2]. \quad (7c)$$

Для пояснения использования системы (7) рассмотрим пример: сегнетоэлектрический переход в KNbO_3 $m3m \rightarrow 4mm$ (C_{4v}). Спонтанная поляризация может лежать вдоль одного из направлений типа [100]. Для кислородно-октаэдрических сегнетоэлектриков ЭО-коэффициенты g_{i3}^* в полярной фазе могут быть выражены

через g_{ij} (g_{11}, g_{12}, g_{44}) в кубической парафазе [7,12,13] (см. таблицу).

Флуктуации в сегнетофазе C_{4v} ($4mm$) в монокристалле со спонтанной поляризацией вдоль оси 3 должны быть изотропны вдоль осей 1, 2. $P_{sh1} = P_{sh2} = P_{sh}$. Тогда для спонтанного полярного вклада ниже T_c получаем

$$\delta n_3^s = - \frac{n^3}{2} [g_{11} (P_s^2 + P_{sh3}^2) + 2g_{12} P_{sh}^2],$$

$$\delta n_1^s = \delta n_2^s = - \frac{n^3}{2} [g_{12} (P_s^2 + P_{sh3}^2) + (g_{11} + g_{12}) P_{sh}^2]. \quad (8)$$

В пренебрежении анизотропии флуктуаций ниже T_c

$$\delta n_3^s = - \frac{n^3}{2} [g_{11} P_s^2 + (g_{11} + 2g_{12}) P_{sh}^2],$$

$$\delta n_1^s = \delta n_2^s = - \frac{n^3}{2} [g_{12} P_s^2 + (g_{11} + 2g_{12}) P_{sh}^2]. \quad (9)$$

Выше T_c следует ожидать изотропные флуктуации вдоль всех трех осей типа [100]. Тогда $P_{shj} = P_{sh}$ и для „precursor polarization“ выше T_c ($P_s = 0$)

$$\delta n_1^s = \delta n_2^s = \delta n_3^s = - \frac{n^3}{n} (g_{11} + 2g_{12}) P_{sh}^2. \quad (10)$$

Выражение для флуктуаций выше T_c , полученное нами из (7) для данного частного случая, естественно совпадает с выражением, использованным в [16] для описания „precursor polarization“ в KNbO_3 (выражение (5) в [16]). Аналогичным образом можно получить выражение (1) из [19], использованное авторами для оценки локального полярного состояния $P_{sh} = P_d = \langle P^2 \rangle^{1/2}$ в нанобластях в релаксорах.

Выражения (7) являются системой из трех уравнений с четырьмя неизвестными. Измерения температурных изменений трех главных значений показателя преломления в монокристалле $\delta n_i(T)$, после вычитания регулярного вклада $\delta n_i^0(T)$ (не связанного с поляризацией) и выделения $\delta n_i^s(T)$, позволяют на основе системы (7) определить величину и температурную зависимость P_{sh} выше и ниже температуры Кюри, если из независимых измерений определена величина P_s , а также получить P_{sh} в системах с локальным полярным упорядочением (без дальнего порядка). Конечно, если известны ЭО-коэффициенты. (Как правило, квадратичные по поляризации электрооптические коэффициенты слабо зависят от температуры [14]).

В случае изотропных флуктуаций для определения P_s и P_{sh} достаточно двух уравнений из системы (7). В этом случае (изотропные флуктуации), как легко видеть на рассмотренном примере (см. (9)), морфическое спонтанное двупреломление $\Delta n_{13}^s(T) = \delta n_3^s(T) - \delta n_1^s(T)$ равно нулю выше T_c ($P_s = 0$). Ниже T_c вклад флуктуаций в $\Delta n_{13}^s(T)$ отсутствует и из $\Delta n_{13}^s(T)$ в явном виде можно определить P_s с большей точностью, чем из системы (7), так как измерения двупреломления имеют

Выражения для ЭО-коэффициентов g_{i3}^* в сегнетофазе через ЭО-коэффициенты g_{11}, g_{12}, g_{44} в кубической парафазе [7,12,13]

Симметрия сегнетофаз	g_{13}^*	g_{23}^*	g_{33}^*
$C_{4v} (4mm)$	g_{12}	g_{12}	g_{11}
$C_{2v} (mm2)$	g_{12}	$(g_{11} + g_{12} - g_{44})$	$(g_{11} + g_{12} + g_{44})$
$C_{3v} (3m)$	$(g_{11} + 2g_{12} - g_{44})$	$(g_{11} + 2g_{12} - g_{44})$	$(g_{11} + 2g_{12} + 2g_{44})$

точность на порядок больше, чем измерения $\delta n_i(T)$. Для анизотропных флуктуаций из (7) определяется сумма $(P_s^2 + P_{sh3}^2)$. В этом случае конечно необходимы измерения P_s другими независимыми методами, например из петель диэлектрического гистерезиса.

3. Вычисление характеристик ближнего и дальнего полярного порядка из интерферометрических изменений

Наиболее точным методом измерения температурных изменений главных значений показателя преломления является интерферометрический метод. Метод позволяет измерять относительные изменения оптического пути света в кристалле $\delta\Psi(T)$, которые связаны с изменениями показателя преломления $\delta n(T)$

$$\delta\Psi_i(T) = \delta n_i(T) + (n_i - 1) \frac{\delta l_j(T)}{l_j}, \quad (11)$$

где l_j — толщина образца вдоль направления распространения света, δl_j — изменения толщины при внешнем воздействии (изменении температуры в данном случае), n_i — главные значения показателя преломления, индекс i относится к направлению поляризации света, а индекс j — к направлению распространения света в кристалле.

Спонтанный полярный вклад в относительные изменения оптического пути света, полученный после вычитания из (11) регулярного вклада $\delta\Psi_i^o(T)$ не связанного с поляризацией, дается выражением

$$\delta\Psi_i^s = \delta n_i^s + (n_i - 1) \frac{\delta l_j^s}{l_j}, \quad (12)$$

где δn_i^s является спонтанным полярным вкладом в главные значения показателя преломления, а δl_j^s спонтанный вклад в тепловое расширение, возникающий за счет спонтанной стрикции. δn_i^s определяется выражением (4)

$$\delta n_i^s = - \sum_{k=1}^3 \left(\frac{n_i^3}{2} \right) g_{ik}^* \langle P_k^2 \rangle. \quad (13)$$

Второе слагаемое в (12) является вкладом спонтанной деформации вдоль направления распространения света и связан с величиной среднеквадратичной поляризации $\langle P_k^2 \rangle$ через электрострикционные коэффициенты Q_{jk}^*

$$\frac{\delta l_j^s}{l_j} = \sum_{k=1}^3 Q_{jk}^* \langle P_k^2 \rangle. \quad (14)$$

Тогда выражение для $\delta\Psi_i^s(T)$ принимает вид

$$\begin{aligned} \delta\Psi_i^s &= \sum_{k=1}^3 \left(-\frac{n_i^3}{2} g_{ik}^* + (n_i - 1) Q_{jk}^* \right) \langle P_k^2 \rangle \\ &= - \sum_{k=1}^3 \left(\frac{n_i^3}{2} \right) \left[g_{ik}^* + \frac{2}{n_i^3} (n_i - 1) Q_{jk}^* \right] \langle P_k^2 \rangle. \end{aligned} \quad (15)$$

При интерферометрических измерениях квадратичного электрооптического эффекта в парафазе величина $\delta\Psi_i(E_k)$ при приложении поля вдоль оси k выражается как

$$\begin{aligned} \delta\Psi_i(E_k) &= \left(-\frac{n_i^3}{2} g_{ik}^* + (n_i - 1) Q_{jk}^* \right) \varepsilon_0^2 (\varepsilon_k - 1)^2 E_k^2 \\ &= - \left(\frac{n_i^3}{2} \right) \left[g_{ik}^* + \frac{2}{n_i^3} (n_i - 1) Q_{jk}^* \right] \varepsilon_0^2 (\varepsilon_k - 1)^2 E_k^2, \end{aligned} \quad (16)$$

где $\varepsilon_0(\varepsilon_k - 1)E_k = P_{\text{ind}}(E_k)$ — индуцированная электрическим полем поляризация, ε_0 — электрическая постоянная, ε_k — диэлектрическая проницаемость вдоль оси k . В выражении (16) имеется в виду, что электрическое поле в парафазе прилагается к кристаллу вдоль возможного направления спонтанной поляризации в сегнетофазе, поэтому ЭО-коэффициенты обозначены как g_{ik}^* . Для кубических в парафазе кислородно-октаэдрических сегнетоэлектриков g_{ik}^* выражаются через стандартные обозначения g_{ik} для кубической симметрии согласно таблице.

Тензора Q_{ik}^* и g_{ik}^* имеют одинаковую симметрию и выражения в квадратных скобках в (15), (16) можно рассматривать как эффективные ЭО-коэффициенты

$$g_{ik}^{**} = \left[g_{ik}^* + \frac{2}{n_i^3} (n_i - 1) Q_{jk}^* \right]$$

для определения поляризации на основе изменений $\delta\Psi_i^s(T)$ и $\delta\Psi_i(E_k)$.

Тогда для спонтанных изменений $\delta\Psi_i^s(T)$ можно написать

$$\delta\Psi_i^s = - \sum_{k=1}^3 \left(\frac{n^3}{2} \right) g_{ik}^{**} \langle P_k^2 \rangle. \quad (17)$$

Используя те же рассуждения, на основе которых из выражения (4) было получено (6), а затем (7) с уже введенными ранее обозначениями, из (17) с учетом флуктуаций получаем

$$\delta\Psi_i^s = - \sum_{k=1}^3 \left[\frac{n^3}{2} \right] g_{ik}^{**} \left(\langle P_{sk}^2 \rangle + \langle P_{shk}^2 \rangle \right), \quad (18)$$

где эффективный ЭО-коэффициент

$$g_{ik}^{**} = \left[g_{ik}^* + \frac{2}{n_i^3} (n_i - 1) Q_{jk}^* \right].$$

Для $\delta\Psi_i^s(T)$ в монокристалле, в котором $P_s = |\langle P_{s3} \rangle|$ (аналог формул (7))

$$\delta\Psi_3^s(T) = -\frac{n^3}{2} [g_{33}^{**}(P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{31}^{**}P_{sh1}^2 + g_{32}^{**}P_{sh2}^2], \quad (19a)$$

$$\delta\Psi_1^s(T) = -\frac{n^3}{2} [g_{13}^{**}(P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{11}^{**}P_{sh1}^2 + g_{12}^{**}P_{sh2}^2], \quad (19b)$$

$$\delta\Psi_2^s(T) = -\frac{n^3}{2} [g_{23}^{**}(P_s^2 + P_{sh3}^2) + g_{21}^{**}P_{sh1}^2 + g_{22}^{**}P_{sh2}^2]. \quad (19c)$$

Таким образом, измеряя интерферометрическим методом $\delta\Psi_i(E_k)$ в соответствии с (16) определяются эффективные ЭО-коэффициенты g_{ik}^{**} , которые затем используются для вычисления поляризации и ее флуктуаций из $\delta\Psi_i^s(T)$ на основе (19), после вычитания из измеряемых $\delta\Psi_i(T)$ регулярного вклада $\delta\psi_i^o(T)$. В эксперименте, за исключением специальных задач, $\delta\Psi_i(T)$ и $\delta\Psi_i(E_k)$ измеряются для свободного кристалла. Соответственно формулы написаны для этого случая.

4. Заключение

В настоящей работе впервые развит метод, позволяющий из спонтанного вклада в главные значения показателя преломления вычислять величину и температурную зависимость среднеквадратичных флуктуаций поляризации $P_{sh} = \langle P_{\parallel}^2 \rangle^{1/2}$, характеризующих ближний полярный порядок (локальный порядок) ниже температуры сегнетоэлектрического перехода T_c , если независимыми измерениями определено среднее значение спонтанной поляризации $P_s = \langle P \rangle$, характеризующей дальний порядок. Для случая изотропных флуктуаций метод позволяет вычислить P_{sh} и P_s только из рефрактометрических измерений.

Формулы (6), (7), (19) получены для собственного сегнетоэлектрика, в которых параметр порядка — спонтанная поляризация. Тем не менее, эти выражения остаются в силе для других типов сегнетоэлектриков, для которых спонтанный вклад в рефракцию света определяется квадратичным электрооптическим эффектом (формулами (1)–(3)).

Вычисление P_s и P_{sh} требует большой точности рефрактометрических измерений. Наиболее точным методом исследования изменений рефракции света являются интерферометрические измерения. Поэтому важным элементом работы является доказательство того, что P_s и P_{sh} могут быть вычислены непосредственно из интерферометрических измерений температурных и электрополевых изменений относительного оптического пути света без дополнительных измерений теплового расширения, необходимого для перехода от $\delta\Psi(T)$ к $\delta n(T)$ по формуле (11).

Как отмечалось во введении, развитый в работе метод вычисления P_{sh} ниже T_c особенно актуален для исследования систем с сосуществованием сравнимых по величине вкладов дальнего и ближнего порядка, к которым в частности, относятся квантовые параэлектрики SrTiO_3 и KTaO_3 с примесями. Для апробации метода авторами выполнены экспериментальные исследования интерферометрическим методом температурных и электрополевых изменений рефракции света в монокристаллах $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$. Результаты исследования квадратичного электрооптического эффекта будут представлены в следующей статье, исследование температурных изменений рефракции света и их обработку на основе выражений (19) также планируется опубликовать в ближайшее время.

Список литературы

- [1] П.А. Марковин, Р.В. Писарев. ЖЭТФ **77**, 2461 (1979).
- [2] Б.Б. Кричевцов, П.А. Марковин, С.В. Петров, Р.В. Писарев. ЖЭТФ **86**, 2262 (1984).
- [3] R.V. Pisarev, B.B. Krichevtzov, P.A. Markovin, O.Yu. Korshunov, J.F. Scott. Phys. Rev. B **28**, 2677 (1983).
- [4] P.A. Markovin, V.V. Lemanov, O.Yu. Korshunov, P.P. Syrnikov, U. Bianchi, R. Lindner, W. Kleemann. Ferroelectrics **184**, 269 (1996).
- [5] P.A. Markovin, V.V. Lemanov, M.E. Guzhva, W. Kleemann. Ferroelectrics **199**, 121 (1997).
- [6] P.A. Markovin, W. Kleemann, R. Lindner, V.V. Lemanov, O.Yu. Korshunov, P.P. Syrnikov. J. Phys.: Condens. Matter. **8**, 2377 (1996).
- [7] М.Е. Гужва, В. Клеemann, В.В. Леманов, П.А. Марковин. ФТТ **39**, 704 (1997).
- [8] П.А. Марковин, Р.В. Писарев, А.М. Калашникова, Th. Rasing. Письма ЖЭТФ **86**, 822 (2007).
- [9] J. Fousek, J. Petzelt. Phys. Status Solidi A **55**, 11 (1979).
- [10] G.A. Gehring. J. Phys. C **10**, 531 (1977).
- [11] J. Ferre, G.A. Gehring. Rep. Prog. Phys. **47**, 513 (1984).
- [12] M. Di Domenico, S.H. Wemple. J. Appl. Phys. **40**, 720 (1969).
- [13] S.H. Wemple, M. Di Domenico. In: Applied Solid State Science / Ed. R. Wolfe. V. 3. Academic, N.Y. (1972).
- [14] А.С. Сонин, А.С. Василевская. Электрооптические кристаллы. Атомиздат, М. (1971) 328 с.
- [15] G. Burns, F.H. Dacol. Ferroelectrics **37**, 661 (1981).
- [16] W. Kleemann, F.J. Schafer, M.D. Fontana. Phys. Rev. B **30**, 1148 (1984).
- [17] W. Kleemann, F.J. Schafer, D. Rytz. Phys. Rev. B **34**, 7873 (1986).
- [18] R.V. Pisarev, P.A. Markovin, B.N. Shermatov, V.I. Voronkova, V.K. Yanovskii, Ferroelectrics **96**, 181 (1989).
- [19] G. Burns, F.H. Dacol. Solid State Commun. **48**, 853 (1983).
- [20] О.Ю. Коршунов, П.А. Марковин, Р.В. Писарев. ФТТ **25**, 2134 (1983).
- [21] О.Ю. Коршунов, П.А. Марковин, Р.В. Писарев. Ferroelectrics Lett. **13**, 137 (1992).
- [22] О.Ю. Коршунов, П.А. Марковин, Р.В. Писарев, Л.М. Сапожникова. Ferroelectrics **90**, 151 (1989).
- [23] N.R. Ivanov, A.P. Levanyuk, S.A. Minyukov, J. Kroupa, J. Fousek. J. Phys.: Condens. Matter **2** 5777 (1990).
- [24] С.В. Мельникова, Л.И. Исаенко, А.А. Голошумова, С.И. Лобанов. ФТТ **56**, 727 (2014).
- [25] С.В. Мельникова, Н.М. Лапгаш. ФТТ **57** 1180 (2015).