

УДК 537.226.33 : 538.589.3

И. М. Бузин

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ПОТЕРИ  
ТИТАНАТА СТРОНЦИЯ В ДИАПАЗОНЕ  
СВЕРХВЫСОКИХ ЧАСТОТ

Метод диэлектрического резонатора применен для определения диэлектрических потерь сегнетоэлектриков в дециметровом и трехсантиметровом диапазонах длин волн. Минимальные значения  $\operatorname{tg} \delta$ , доступные измерению в обоих случаях, не превышают  $(3 \div 5) \cdot 10^{-5}$ . Изучены зависимости  $\operatorname{tg} \delta$  (Т) в интервале температур  $78 \div 350$  К моно- и поликристаллического титаната стронция.

При исследовании диэлектрических характеристик сегнетоэлектриков на СВЧ широко применяются диэлектрические резонаторы (ДР). Если диэлектрическая проницаемость материала достаточно высока ( $\epsilon \geq 100$ ), то электромагнитное поле, представляющее собой систему стоячих волн, практически полностью сосредоточено внутри объема диэлектрика и быстро спадает вне его. Точное решение задачи о структуре электромагнитного поля ДР возможно только для шара или тороида. Любые другие конфигурации — цилиндрический ДР, ДР в виде прямоугольного параллелепипеда и т. п., допускают только приближенное рассмотрение. В связи с этим для точных измерений диэлектрической проницаемости материалов обычно используются сферические ДР [1, 2].

Если ДР используются для измерений диэлектрических потерь материалов, то распределение полей в резонаторе не имеет значения. Ничтожны также поправки, учитывающие излучение. Оценки радиационной добротности ( $Q_{\text{рад}}$ ) ДР показывают, что для  $\epsilon \gg 1$  она очень высока и возрастает при увеличении номера типа колебаний, возбуждаемого в ДР, и диэлектрической проницаемости материала. Непосредственные измерения добротности ДР, изготовленных из монокристаллов рутила, ( $\epsilon \simeq 100$ ) показывают, что в трехсантиметровом диапазоне длин волн на некоторых образцах величина  $Q_0$  достигает почти  $10^5$  [3]. Для сегнетоэлектриков, у большинства из которых  $\epsilon$  значительно выше, чем у рутила, предельное значение  $Q_{\text{рад}}$  должно быть еще больше.

Если ДР расположен достаточно далеко от металлических поверхностей, то дополнительными потерями за счет скин-эффекта можно пренебречь и считать, что добротность резонатора полностью определяется уровнем диэлектрических потерь в материале:

$$Q_0 = \frac{1}{\operatorname{tg} \delta}. \quad (1)$$

Здесь  $Q_0 = Q_n(1 + \beta)$  — собственная добротность ДР,  $Q_n$  — нагруженная добротность,  $\beta$  — коэффициент связи ДР с линией передачи.

Для быстрых оценок величины  $\operatorname{tg} \delta$  материала достаточно взять образец произвольной формы с линейными размерами порядка длины волны в материале на самой низкой рабочей частоте и измерить собст-

венную добротность полученного ДР. Вместе с тем точные измерения  $\text{tg} \delta$  требуют тщательного приготовления образцов. В результате оптической полировки добротность ДР из монокристаллического титаната стронция обычно возрастает на  $20 \div 30\%$ .

Основные на применении ДР методы измерения  $\text{tg} \delta$  сегнетоэлектриков, описанные в литературе [4, 6], связаны с зависимостью диэлектрической проницаемости материала от температуры. Если зависимость  $\epsilon(T)$  описывается законом Кюри—Вейсса, то соотношение, связывающее  $\text{tg} \delta$  материала с шириной интервала  $\Delta T$ , при котором ток СВЧ-детектора уменьшается вдвое, имеет вид

$$\text{tg} \delta = \frac{1}{2} \frac{\Delta T}{T - T_0}. \quad (2)$$

Следует отметить, однако, что методика, основанная на использовании соотношения (2), обладает рядом существенных недостатков. Это выражение неприменимо для низкотемпературных (виртуальных) сегнетоэлектриков. Например, для титаната стронция при  $T \leq 100 \text{ K}$  зависимость  $\epsilon(T)$  существенно отличается от закона Кюри—Вейсса. При измерении малых  $\text{tg} \delta$  интервал  $\Delta T$  оказывается слишком узким (для монокристалла  $\text{SrTiO}_3$  при  $T = 140 \text{ K}$ ,  $f_0 \approx 10 \text{ ГГц}$ ,  $\text{tg} \delta = 5 \cdot 10^{-4}$ , а  $\Delta T \approx \approx 0,1 \text{ K}$ ). Измерять столь малые интервалы температур с достаточно высокой точностью затруднительно. Соотношение (2) получено в предположении квадратичности характеристики СВЧ-детектора, что также не всегда выполняется. Более корректно такие измерения выполнять с использованием компенсационных методов.

С другой стороны, очевидно, что если ДР помещен в линии передачи, то в зависимости от места расположения и схемы наблюдения он ведет себя подобно обычному объемному резонатору, включенному в качестве неоднородности или оконечной нагрузки СВЧ-тракта [7]. В этом случае проблема определения  $\text{tg} \delta$  материалов сводится к точному измерению собственной добротности резонатора, рассматриваемого как электродинамический объект, независимо от его конкретной природы.

Собственная добротность резонатора связана с коэффициентами отражения  $\Gamma_0$  или передачи  $\tau_0$  при точной настройке резонатора и при некоторой определенной расстройке  $\Gamma_\alpha$  и  $\tau_\alpha$  соотношениями [7—9]

$$Q_0 = \left( \frac{f_0}{2\Delta f} \right)_\alpha \cdot \sqrt{\frac{\Gamma_\alpha^2 - \Gamma_0^2}{1 - \Gamma_0^2}} \left( \frac{2}{1 + \Gamma_0} \right) = \left( \frac{f_0}{2\Delta f} \right)_\alpha \alpha, \quad (3)$$

$$Q_0 = \left( \frac{f_0}{2\Delta f} \right)_\alpha \cdot \sqrt{\frac{(\tau_\alpha/\tau_0)^2 - 1}{1 - \tau_\alpha^2}} = \left( \frac{f_0}{2\Delta f} \right)_\alpha \alpha. \quad (4)$$

Зависимости  $\Gamma_\alpha(\Gamma_0)$  и  $\tau_\alpha(\tau_0)$  для значений  $\alpha = 0,2 \div 2$ , представленные графически в [8, 9], позволяют легко выбрать величины  $\Gamma_\alpha$  и  $\tau_\alpha$ , удобные для измерения конкретных расстроек  $(2\Delta f)_\alpha$ . Если  $\alpha = 1$ , то расстройка измеряется на уровне половинной мощности и добротность резонатора определяется стандартным образом:

$$Q_0 = \left( \frac{f_0}{2\Delta f} \right)_\alpha. \quad (5)$$

Для измерения добротности резонаторов в качестве источника сигнала широко используются СВЧ-генераторы, модулированные по частоте. Отраженный или прошедший сигнал, имеющий вид провала на

резонансной частоте ДР, наблюдается на экране индикатора. Измерение коэффициентов отражения или передачи  $\Gamma_0$ ,  $\Gamma_\alpha$ ,  $\tau_0$  и  $\tau_\alpha$  выполняется с помощью калиброванных аттенуаторов. Наибольшую точность можно получить при использовании поляризационных аттенуаторов.

Для исследования параэлектриков в длинноволновой части СВЧ-диапазона ( $f_0 = 0,5 \div 3$  ГГц) удобна измерительная ячейка, в основу которой положена конструкция стандартной измерительной линии дециметрового диапазона типа Р1-6А [9]. Образцы помещаются вблизи центрального проводника между заземленными плоскостями отрезка плоскопараллельной линии, образующей измерительную ячейку. Для проходящей СВЧ-волны она представляет собой однородную линию передачи. Во всем указанном диапазоне частот коэффициент стоячей волны можно сделать не превышающим 1,1.

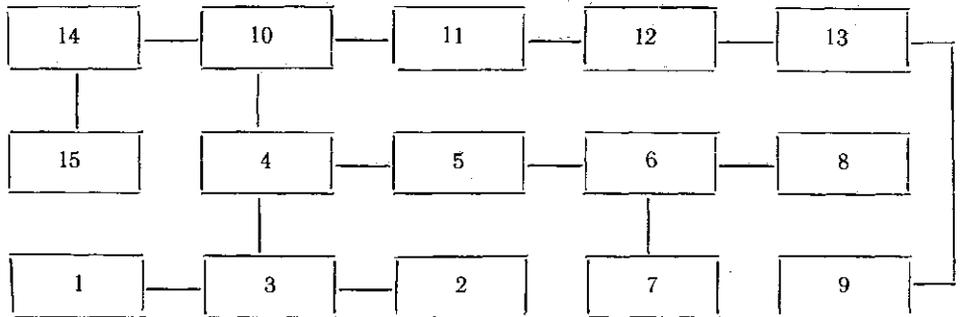


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки для измерения диэлектрических потерь сегнетоэлектриков в трехсантиметровом диапазоне длин волн. 1 — клистронный генератор ГЗ-14А, 2 — свип-генератор Х1-24, 3 — волноводный переключатель, 4 — направленный ответвитель, 5 — поляризационный аттенуатор Д5-5, 6 — циркулятор, 7 — диэлектрический резонатор в волноводе, 8 — детектор, 9 — усилитель, 10 — модулятор, 11 — смеситель 12 — гетеродинный частотомер Ч4-5, 13 — осциллограф, 14 — ВЧ-генератор Г4-102, 15 — цифровой частотомер ЧЗ-33

При работе в трехсантиметровом диапазоне ДР укрепляются на конце тонкой фарфоровой трубочки и помещаются в прямоугольном волноводе вблизи закорачивающего поршня. Следует отметить, что соотношения (3) и (4) справедливы только при слабой связи резонатора с СВЧ-трактом ( $\beta < 1$ ). Изменением положения и ориентации ДР в линии передачи можно выбрать удобную для измерений величину коэффициента связи ( $\beta = 0,3 \div 0,7$ ).

Для измерения величины частотного интервала  $(2\Delta f)_\alpha$  в сантиметровом и дециметровом диапазонах длин волн широко используются гетеродинные частотомеры. В том случае, когда частота внешнего частотно-модулированного (ЧМ) СВЧ-генератора совпадает с одной из гармоник гетеродинного частотомера, возникают нулевые биения и на низкочастотном выходе прибора появляется сигнал, имеющий вид узкой метки. Перестраивая частотомер, метку можно совместить с той или другой точкой резонансной кривой, и на основании соотношений (3) и (4) определить добротность ДР. Значение интервала  $(2\Delta f)_\alpha$  отсчитывается по интерполяционной шкале частотомера. Однако для частотных интервалов порядка или меньше 1 МГц погрешность таких измерений оказывается слишком большой.

Точность определения частотных интервалов можно существенно повысить, если вместо одной сформировать несколько частотных меток. Упрощенная блок-схема измерения добротности резонаторов, включен-

ных в качестве оконечной нагрузки СВЧ-тракта, поясняющая работу системы, приведена на рис. 1. Часть мощности ЧМ СВЧ-генератора отводится в канал формирования частотных меток, состоящий из модулятора и смесителя гетеродинного частотомера. В качестве модулятора используется проходная детекторная секция, на которую подается сигнал частоты  $\Omega$  от стандартного генератора высокой частоты (ВЧ). В результате в спектре сигнала кроме основной частоты  $f(t)$  появляются дополнительные составляющие, сдвинутые на частоты, кратные частоте модуляции ( $f(t) \pm n\Omega$ ). При этом на выходе частотомера кроме основной метки, соответствующей  $n$ -й гармонике гетеродина  $f_1$ , получается набор меток, отстоящий от основной на частоты, кратные  $\Omega$ . Частоту настройки ВЧ-генератора ( $\Omega$ ) можно измерять с помощью внешнего высокоточного, например, цифрового частотомера соответствующего диапазона.

Перестраивая частоту гетеродина частотомера, метки можно расположить симметрично относительно центра резонансной кривой, что позволяет измерить как собственную частоту  $f_0$ , так и ширину резонансной кривой  $(2\Delta f)_\alpha$  и определить величину добротности исследуемого резонатора.

Ошибка измерения определяется в основном погрешностью выставления трехдецибелльного ( $\alpha=1$ ) или какого-либо другого ( $\alpha \neq 1$ ) уровня мощности, а также неточностью визуального совмещения частотных меток с этими точками резонансной кривой. Дополнительным преимуществом излагаемых методов является то, что измерение ширины резонансных кривых  $(2\Delta f)_\alpha$  можно выполнить при разных значениях коэффициента  $\alpha$ , т. е. для нескольких  $\Gamma_\alpha$  или  $\tau_\alpha$ , а полученные величины  $Q_0$  усреднить. В результате суммарная ошибка  $\Delta Q/Q_0$  (а следовательно, и  $\Delta \text{tg}\delta/\text{tg}\delta$ ) не превышает  $(2 \div 3)\%$  в трехсантиметровом и  $(5 \div 10)\%$  в дециметровом диапазоне длин волн.

Для оценки предельных возможностей измерительных установок определялась добротность ДР из рутила при температуре жидкого азота. ДР перемещались внутри прямоугольного волновода или измерительной ячейки от одной металлической плоскости к другой. В обоих случаях при перемещении ДР вблизи центра устройств в пределах  $\Delta l/l = 0,5 \div 0,7$  от общего расстояния между ближайшими металлическими поверхностями добротность ДР практически не зависит от места его расположения. При приближении к стенкам  $Q_0$  быстро уменьшается. На частоте  $f_0 = 9$  ГГц получено  $Q_0 = 2 \cdot 10^4$ , а при  $f_0 = 2$  ГГц  $Q_0 = 3 \cdot 10^4$ . Если учесть, что для сегнетоэлектриков ( $\epsilon \gg 100$ ) дополнительные потери за счет скин-эффекта должны быть еще меньше, можно заключить, что минимальные значения  $\text{tg}\delta$ , доступные измерению как в трехсантиметровом, так и в дециметровом диапазонах, не превышают  $(3 \div 5) \times 10^{-5}$ .

Описанные выше методы измерения диэлектрических потерь были использованы при исследовании моно- и поликристаллического титаната стронция и ряда твердых растворов структуры перовскита. Остановимся на некоторых результатах измерений. На рис. 2 приведены типичные графики зависимости  $\text{tg}\delta(T)$  для монокристаллического  $\text{SrTiO}_3$ . На том же рисунке приведены данные из работ [5 и 10], приведенные к частоте 9 ГГц. Во всех случаях в интервале температур  $(78 \div 360)$  К  $\text{tg}\delta \leq 10^{-3}$ . Кривая 1 на рис. 2 получена для ДР, изготовленного из наиболее однородной, центральной части пластины, вырезанной перпендикулярно оси роста монокристалла. Кривая 2 соответствует ДР, преднамеренно изготовленному из периферийной части пластины, где имелось большое количество микротрещин.

Первые попытки теоретического рассмотрения механизмов диэлектрических потерь параэлектриков были предприняты Силверманом [11], который получил следующее простое соотношение для коэффициента затухания мягкой сегнетоактивной моды:

$$\Gamma = \operatorname{tg} \delta (T - T_0) = \alpha + \beta T + \gamma T^2. \quad (6)$$

Коэффициент  $\alpha$  характеризует процессы рассеяния на неоднородностях кристаллической решетки, а  $\beta$  и  $\gamma$  связываются с трех- и четырехфоновыми процессами рассеяния. Анализ кривых 1 и 2 (рис. 2) показывает, что в первом случае  $\alpha = 0$ , а во втором  $\alpha \approx 6 \cdot 10^{-3}$ . В то же время общий

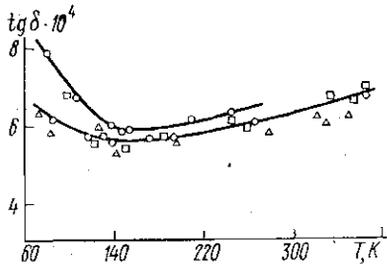


Рис. 2. Зависимость  $\operatorname{tg} \delta$  титаната стронция от температуры: образец вырезан из центральной части монокристаллической пластины (нижняя кривая), образец вырезан из краевой части пластины, где имелось большое количество структурных дефектов (верхняя кривая);  $\square$  — по данным [10],  $\triangle$  — по данным [5]

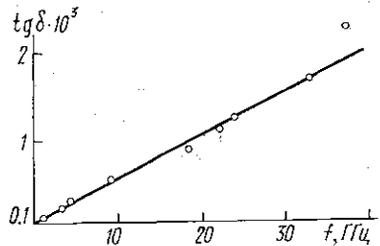


Рис. 3. Зависимость  $\operatorname{tg} \delta$  монокристаллического титаната стронция от частоты [10]

характер кривых, связанный с ангармоническими взаимодействиями в кристалле, в обоих случаях одинаков.

Более строгое теоретическое рассмотрение [12, 13] показывает, что наиболее вероятным механизмом СВЧ-потерь являются четырехфоновые процессы рассеяния. Соответствующие соотношения работы [13] удовлетворительно описывают зависимость  $\operatorname{tg} \delta$  титаната стронция вплоть до температуры жидкого гелия.

Зависимость диэлектрических потерь монокристаллического титаната стронция от частоты СВЧ-сигнала исследовалась рядом авторов. На основании экспериментальных работ [5, 10] можно заключить, что  $\operatorname{tg} \delta$  пропорционален частоте по крайней мере в диапазоне  $f = 3 \div 72$  ГГц. Частотная зависимость  $\operatorname{tg} \delta$  для температуры  $T \approx 140$  К, соответствующей минимуму  $\operatorname{tg} \delta(T)$  (рис. 2), показана на рис. 3. Две точки на частоте 9 ГГц и 1 ГГц — наши данные. Величина  $\operatorname{tg} \delta = 6 \cdot 10^{-5}$ , по всей вероятности, является минимальной величиной  $\operatorname{tg} \delta$ , когда-либо экспериментально измеренной для параэлектриков. При температуре жидкого азота для монокристаллического титаната стронция на частоте 1 ГГц  $\operatorname{tg} \delta = 7 \cdot 10^{-5}$ . Подчеркнем еще раз, что приведенные здесь значения  $\operatorname{tg} \delta$  получены при использовании диэлектрических резонаторов без металлических электродов и, таким образом, характеризуют собственные диэлектрические потери материала.

Исследование диэлектрических потерь поликристаллического  $\text{SrTiO}_3$  показывает, что потери значительно выше, чем для монокристаллов.

Для различных образцов  $\text{tg} \delta$  изменяется в пределах  $(1 \div 5) \cdot 10^{-3}$ . Экспериментальные зависимости  $\text{tg} \delta(T)$  для одного из типов поликристаллов, измеренные на двух частотах  $f_1=9$  ГГц и  $f_2=1$  ГГц, приведены на рис. 4. Отсутствие пропорционального изменения  $\text{tg} \delta$  с частотой говорит о том, что в отличие от монокристаллов в поликристаллическом  $\text{SrTiO}_3$  при данном уровне технологии диэлектрические потери определяются в основном механизмами, не связанными с мягкой сегнетоактивной модой. Например, значительный вклад в результирующий  $\text{tg} \delta$  могут дать эффекты, связанные с межповерхностной поляризацией на границах зерен поликристалла. Для этого механизма  $\text{tg} \delta \sim f^{-1}$  [5].

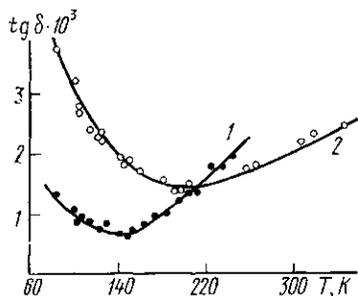


Рис. 4. Зависимость  $\text{tg} \delta$  поликристаллического титаната стронция от температуры. 1 —  $f=9$  и 2 —  $f=1$  ГГц

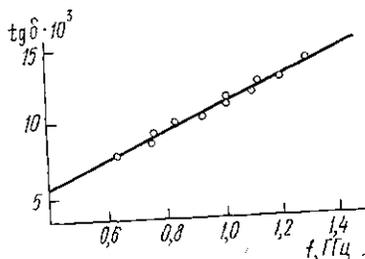


Рис. 5. Зависимость  $\text{tg} \delta$  материала ВК-7 от частоты при комнатной температуре

Кроме титаната стронция исследовались также диэлектрические потери материала ВК-7. Анализ известных из литературы данных по измерению  $\text{tg} \delta$  ВК-7, выполненных различными авторами, показал, что при комнатной температуре для большинства образцов  $\text{tg} \delta = (1 \div 5) \times 10^{-2}$  [14, 15]. В [14] измерения были выполнены на частоте 0,5 ГГц методом коаксиальной измерительной линии с сосредоточенным образцом. В [15] для определения  $\text{tg} \delta$  измерялась добротность радиальных резонаторов, целиком изготовленных из исследуемого материала. Резонаторы располагались в разрыве центрального проводника коаксиальной линии передачи. Измерения проводились на дискретных частотах — 3; 9,2 и 15 ГГц. В обоих случаях измерение  $\text{tg} \delta$  было связано с нанесением металлических покрытий на поверхности образцов. Из-за неизбежного несовершенства электродов, а также потерь вследствие скин-эффекта в металле, погрешность определения диэлектрических потерь могла оказаться слишком большой.

Зависимость диэлектрических потерь материала ВК-7 при комнатной температуре в диапазоне частот (0,6–1,3) ГГц получена с использованием ДР без металлических электродов (рис. 5). Резонаторы возбуждались в измерительной ячейке дециметрового диапазона, описанной в настоящей работе.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Rupprecht G., Bell R. O. — «Phys. Rev.», 1964, 135A, 748.
2. Бурсиан Э. В., Рычгорский В. В., Гиршберг Н. Г. — «Физика твердого тела», 1971, 13, 541.
3. Окау А. — «Proc. IRE», 1960, 48, 1921.
4. Bell R. O., Rupprecht G. — «IRE Trans.», 1961, 9, 239.

5. Brthe K. — «Philips Res. Repts.» (Suppl.), 1970, № 2.
6. Шапкии В. В., Бурсиан Э. В. — «Уч. зап. ЛГПИ», 1967, 384, вып. 3.
7. Тишер Ф. Техника измерений на сверхвысоких частотах. М., 1963.
8. Бузин И. М. «Приборы и техника эксперимента», 1971, № 1, 160.
9. Бузин И. М., Ангелов И. М. «Приборы и техника эксперимента», 1974, № 4, 114.
10. Rupprecht G., Bell R. O. — «Phys. Rev.», 1962, 125, 1915.
11. Silverman V. D. — «Phys. Rev.», 1962, 125, 1921.
12. Балагуров Б. Я., Вакс В. Г., Шкловский Б. И. «Физика твердого тела», 1970, 12, 89.
13. Вендик О. Г. «Физика твердого тела», 1975, 17, 1683.
14. Морозов Н. А. Автореф. канд. дис. М., 1968.
15. Мироненко И. Г., Антонов Н. Н., Неженцев В. В. — «Изв. ЛЭТИ», 1968, вып. 64, 148.

Поступила в редакцию  
6.5 1977 г.  
Кафедра  
физики колебаний