

四方相 $\text{Fe:KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ 晶体电致应变分布特性金昕宇¹, 田 浩^{1,2,3}, 谭 鹏¹, 王晓鸥¹

(1. 哈尔滨工业大学物理学院, 哈尔滨 150001;

2. 微纳光电信息系统理论与技术工信部重点实验室, 哈尔滨 150001;

3. 山西大学极端光学协同创新中心, 太原 030006)

摘 要: 采用顶部籽晶助熔法制备 0.15% (摩尔分数) Fe 掺杂的 $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ 晶体, 测试了晶体介电性能、电致应变性能分布、组分分布和电畴结构。结果表明: 数字全息是一种有效表征材料应变空间分布的方法, Fe: KTN 晶体电致应变性能呈现不均匀分布的特性, 室温下外加电场为 435 V/mm 时, 晶体应变最大值为 0.05%, 有 3/4 区域应变在 0.02% 附近。Fe: KTN 晶体的应变分布与组分分布、电畴结构之间存在联系, 室温低于晶体 Curie 温度时, 晶体 Nb 元素含量少的区域电畴结构小, 具有更大的电致应变。

关键词: 铁掺杂钽铌酸钾晶体; 介电性能; 电致应变; 组分分布; 电畴结构

中图分类号: O482 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2022)03-0798-07

网络出版时间: 2022-01-24

Electric-Field-Induced Strain Distribution Characteristics of Fe Doped $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ CrystalJIN Xinyu¹, TIAN Hao^{1,2,3}, TAN Peng¹, WANG Xiaou¹

(1. School of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150001, China; 2. Key Laboratory of Micro-Nano Optoelectronic Information System, Ministry of Industry and Information Technology, Harbin 150001, China; 3. Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan 030006, China)

Abstract: $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ crystal doped with 0.15% (in mole fraction) Fe was prepared by a top-seeded solution growth method. The dielectric properties, electric-field-induced strain distribution, component distribution and domain structure of Fe: KTN crystal were characterized. The results show that digital holography is a promising method to measure the spatial distribution of strain, and the electric-field-induced strain properties of KTN crystal present a uneven distribution. At room temperature, the maximum strain of crystal is 0.05% when the applied electric field is 435 V/mm, while the strain value is near 0.02% 3/4 area of crystal. There is a relationship among strain distribution, component distribution and domain structure of Fe:KTN crystal. The domain structure of crystal in the region with less Nb content is smaller and the electric-field-induced strain is greater when the room temperature is lower than the Curie temperature.

Keywords: ferrum doped potassium tantalum niobate crystal; dielectric properties; electric-field-induced strain; component distribution; domain structure

电致应变是一种将电能转变为机械能的机电耦合效应, 作为机电元件的核心, 对于传感器, 致动器等众多机电应用十分重要^[1-2]。近年来, 围绕电致应变材料的研究得到了广泛关注, 研究者们通过组

分优化和铁电畴调控方法正在不断提升材料压电性, 增强电致应变应用性能^[3-5]。Singh 等通过 La 掺杂降低了钛酸铌钠的晶格畸变, 降低了去极化温度, 使得 FE-AFE 相在低温下共存。La 掺杂量 x 为

收稿日期: 2021-08-31。 修订日期: 2021-10-16。

基金项目: 国家自然科学基金项目(12074092, 12004085); 黑龙江省博士后经费(LBH-Z20065)资助。

第一作者: 金昕宇(1997—), 男, 博士研究生。

通信作者: 田 浩(1980—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2021-08-31. Revised date: 2021-10-16.

First author: JIN Xinyu (1997—), male, Doctoral candidate.

E-mail: 15545005197@163.com

Correspondent author: TIAN Hao (1980—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: tianhao@hit.edu.cn

0.05 时, $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ 获得最大的双边应变约为 0.5%^[6]。Zhang 等通过 2 步烧结工艺将非均匀铁电-顺电微结构引入 $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ 陶瓷中, 利用极性非极性界面产生的去极化能, 增加畴壁运动对电致应变的贡献。在 25 °C 和 150 °C 时, $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ 陶瓷电致应变分别增加了 62% 和 200%^[7]。

在电致应变材料的研究中, 对应变的表征必不可少, 当前常用的电致应变表征方法有电学方法和光学方法。电学方法中待测样品与传感器之间形成空气电容, 分别与电容测试装置相连。电场下样品的形变会导致电容改变, 通过电容与样品和传感器之间距离的关系得到样品的形变量^[8]。光学方法基于 Mach-Zehnder 光路实现双光束干涉, 当施加电场时, 样品产生形变, 由相干光束的相位变化计算样品的形变量^[9]。上述方法是表征材料综合压电性的有效方法, 但对于电致应变的分布难以实现简单快捷的测量。数字全息技术使用电荷耦合元件(CCD)记录物光和参考光的干涉条纹, 通过数字再现得到物体的振幅和相位信息, 具有实时再现、非接触式、全场测量等优点, 已成功应用于钽铌酸钾(KTN)基材料折射率的空间分布表征^[10-13]。因此, 数字全息技术在表征材料性能分布方面极具潜力。钽铌酸钾($\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$)晶体具有典型的钙钛矿结构, 具有大的电致伸缩系数, 根据 Ta/Nb 组分可调的相界, 纳秒级的响应速度且兼具优异的电光性能和非线性光学性能, 是一种十分具有应用潜力的无铅压电单晶^[14-16]。

本工作使用数字全息技术表征 Fe: KTN 晶体的应变曲线及不同电场下的应变分布情况, 并观测了 Fe: KTN 晶体不同位置的组分和电畴结构, 研究了 Fe: KTN 晶体电致应变分布特性与组分分布、电畴结构之间的相互关系。

1 实验

1.1 样品制备

以高纯 K_2CO_3 、 Ta_2O_5 、 Nb_2O_5 、 Fe_2O_3 (>99%, 质量分数) 为原料, 采用顶部籽晶助熔法制备 0.15%Fe 掺杂的 $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ 晶体。按照 $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ 的化学计量比称取原料, 与酒精混合后球磨 24 h 使原料混合均匀。随后将原料烘干后放入坩埚中, 在 1 300 °C 进行化学反应得到 Fe: KTN 固溶体多晶。将预烧结得到的 Fe: KTN 多晶放入单晶生长炉中, 加热使其过熔, 待原料混合均匀后将确定方向籽晶放在坩埚中, 随后进行放肩, 提拉过程完成单晶的生长。当生长的晶体尺寸达到设定值时快速

提拉晶体至液面上方, 然后缓慢降温至室温取出生长好的晶体。经过约 7 d, 完成 Fe: KTN 单晶的生长。

对生长的 Fe: KTN 晶体做定向, 切割, 抛光和镀电极处理, 实验的晶体尺寸为 2.99(x) mm×3.51(y) mm×0.46(z) mm, x、y、z 方向对应晶体的 [100]、[010]、[001] 方向。

1.2 样品表征

采用 E4980A 型 LCR 测量仪测量 Fe: KTN 晶体的介电性能, 根据电桥法原理测量样品的相对介电常数, 测试条件: 温度区间为 -150~200 °C, 电压频率 1 kHz, 升温速率为 1 °C/min。由于实验测量的是晶体的单边应变性质, 对晶体施加频率为 1 Hz 的 0~200 V 的三角波电压进行预处理, 测量预处理前后晶体的介电性能, 分析外电场对晶体结构带来的影响。采用 Precision Premier II 型铁电测试仪测量 Fe: KTN 晶体的单边应变曲线, 电压频率 1 Hz, 电压最大值 200 V。采用 BM-60XCC 型偏光显微镜观察室温下晶体中不同位置的电畴结构, 室内温度为 25 °C。采用 Merlin Compact 型扫描电子显微镜对 Fe: KTN 晶体做 EDS 测试, 表征晶体中不同位置各元素含量情况, 加速电压 1~30 kV, 2 次电子分辨率为 5 nm。

1.3 基于数字全息显微技术的电致应变测试系统

采用反射式数字全息显微系统表征 Fe: KTN 晶体的电致应变性能分布, 实验装置如图 1 所示。使用的激光器是氦氖激光器, 激光经空间光滤波器选取零频光后由透镜 L1 扩束为光强均匀的圆光斑。在分光棱镜处分为物光和参考光, 物光正入射到样品的抛光面上反射后经透镜 L2 放大成像到 CCD 处, 放大倍数约为 4 倍。参考光由反射镜反射后到达 CCD 处, 通过控制反射镜 θ 角对 CCD 记录的干涉条纹进行调节, 全息图强度可表示为:

$$I(x, y) = R^2 + |O(x, y)|^2 + RO(x, y) \exp\left(\frac{i2\pi y \sin \theta}{\lambda}\right) + RO^*(x, y) \exp\left(\frac{-i2\pi y \sin \theta}{\lambda}\right) \quad (1)$$

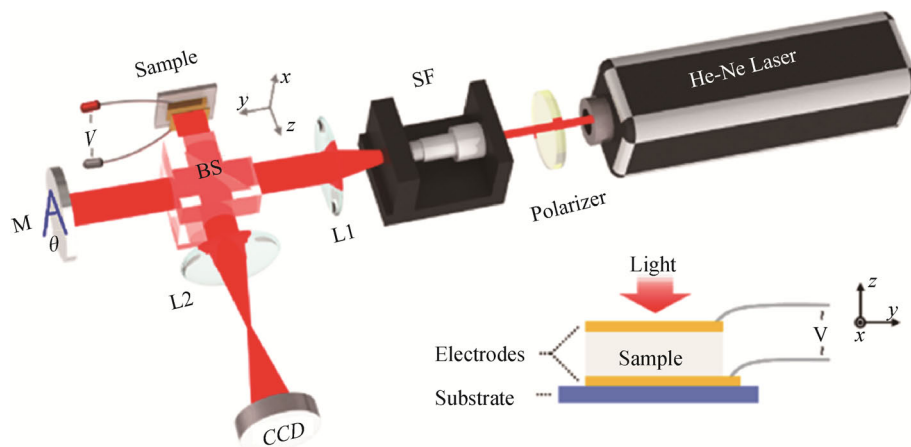
其中: $I(x, y)$ 为干涉光强; $O(x, y)$ 为物光波复振幅; $R(x, y)$ 为参考光波复振幅; θ 为物光与参考光的夹角; λ 为激光的波长 ($\lambda=632.8$ nm)。

测试时对晶体施加通光方向频率为 1 Hz, 最大值为 200 V 的电压, 记录不同电场下的全息图, 数字再现得到晶体的相位变化, 根据相位与光程的关

系, 计算晶体的电致应变二维分布:

$$S(x, y) = \lambda \Delta \varphi(x, y) / 4\pi d \quad (2)$$

其中: $S(x, y)$ 为晶体电致应变; $\Delta \varphi(x, y)$ 为晶体在施加电压前后的相位变化; d 为样品在通光方向上的厚度。



SF—Spatial filter; L1 and L2—Lens; BS—Beam splitter; M—Mirror.

图1 数字全息显微系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of digital holographic microscope system

2 结果与讨论

2.1 介电性能及有序性分析

图2为Fe:KTN晶体预处理前后的相对介电常数(ϵ_r)和Fröhlich熵(s)随温度变化曲线。由图2a可见, 温度由低到高, 晶体依次处于三方相、正交相、四方相和立方相。在Curie温度处发生铁电相至顺电相变, 此时晶体相对介电常数达到最大, 生长晶体介温曲线中相对介电常数最大值为12 000, 说明晶体具有良好的质量, 晶体的Curie温度为54℃。预处理后晶体Curie温度与预处理前相同, 温度低于Curie温度时, 预处理后介温曲线相对预处理前的曲线值更小, 表明预处理后晶体的介电性能有所下降。晶体升温至顺电相时电畴消失, 2条

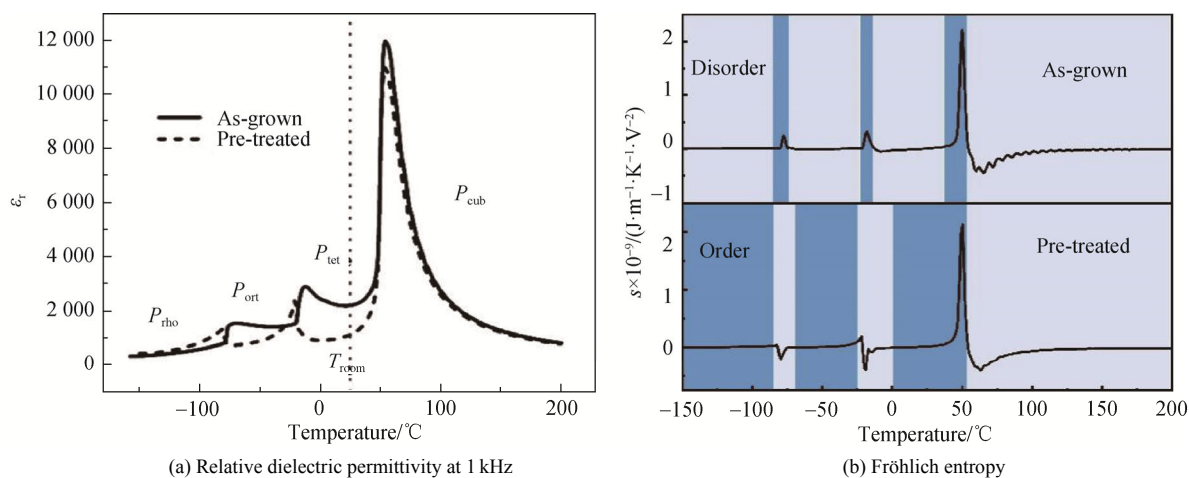
曲线重合, 表明预处理过程中外加电场对晶体内的铁电畴状态产生了影响。根据Fröhlich热力学理论, 与材料介电常数相关的Fröhlich熵可以反应材料内部的有序无序状态, 可以表示为^[17–18]:

$$s(T) = \frac{\epsilon_0}{2} \cdot \frac{\delta \epsilon_r}{\delta T} \quad (3)$$

其中: $s(T)$ 为Fröhlich熵; ϵ_0 为真空介电常数; ϵ_r 为相对介电常数; T 为温度。

当 $s(T) > 0$ 时, 说明施加外电场后材料的熵增加, 即初始处于有序状态, $s(T) < 0$ 时, 施加外电场后材料的熵减少, 说明材料初始为无序状态, 对于KTN晶体Fröhlich熵反应了其自发极化状态, 即铁电畴状态。

由图2b可以看出, 预处理后晶体的有序度提



(a) Relative dielectric permittivity at 1 kHz

(b) Fröhlich entropy

图2 Fe:KTN晶体预处理前后的相对介电常数(ϵ_r)和Fröhlich熵(s)随温度变化曲线

Fig. 2 Temperature dependence of relative dielectric permittivity(ϵ_r) and Fröhlich entropy(s) in the as-grown and pre-treated Fe:KTN crystal

高, Curie 温度之前大部分温度区间处于有序状态, 仅在相变点附近为无序状态, 整体变化趋势为由有序状态转变为无序状态。相比生长晶体在大部分温度区间处于无序状态, 预处理后的晶体有序度更高, 表明电畴状态更为稳定, 不易对外电场产生响应, 因此介电性能有所下降。

2.2 电致应变性能分析

图 3 为数字全息显微系统测试图, 晶体在通光方向的上下表面镀金电极, 上表面与银导线相连, 下表面与导电基底相连。对晶体施加通光方向的电场, 测试晶体的纵向电致应变性质。由图 3a 可以看出, 根据离轴数字全息理论, 数字再现过程首先通过对全息图进行离散 Fourier 变换得到频谱, 然后频域滤波选取实像频谱。图 3b 和图 3c 分别为晶体的

再现振幅图和相位图, 由实像频谱经过 Fourier 逆变换后得到物光的复振幅 $O(x, y)$, 代入式(4)和式(5)分别计算晶体振幅和相位信息^[19-20]:

$$A(x, y) = |O(x, y)| \quad (4)$$

$$\varphi(x, y) = \arctan[\text{Im} O(x, y) / \text{Re} O(x, y)] \quad (5)$$

其中: $A(x, y)$ 为振幅; $\varphi(x, y)$ 为相位。

图 3d 为晶体在施加电压前后的相位变化, 测试时首先拍摄一张不加电压的全息图, 数字再现得到晶体的初始相位 $\varphi_0(x, y)$ 。再记录一张加电压时的全息图, 同样的, 数字再现得到相位 $\varphi(x, y)$, 相位相减得到晶体在施加电压前后的相位变化分布为:

$$\Delta\varphi(x, y) = \varphi(x, y) - \varphi_0(x, y) \quad (6)$$

其中: $\Delta\varphi(x, y)$ 为晶体相位变化; $\varphi(x, y)$ 为加电压后相位; $\varphi_0(x, y)$ 为加电压前相位。

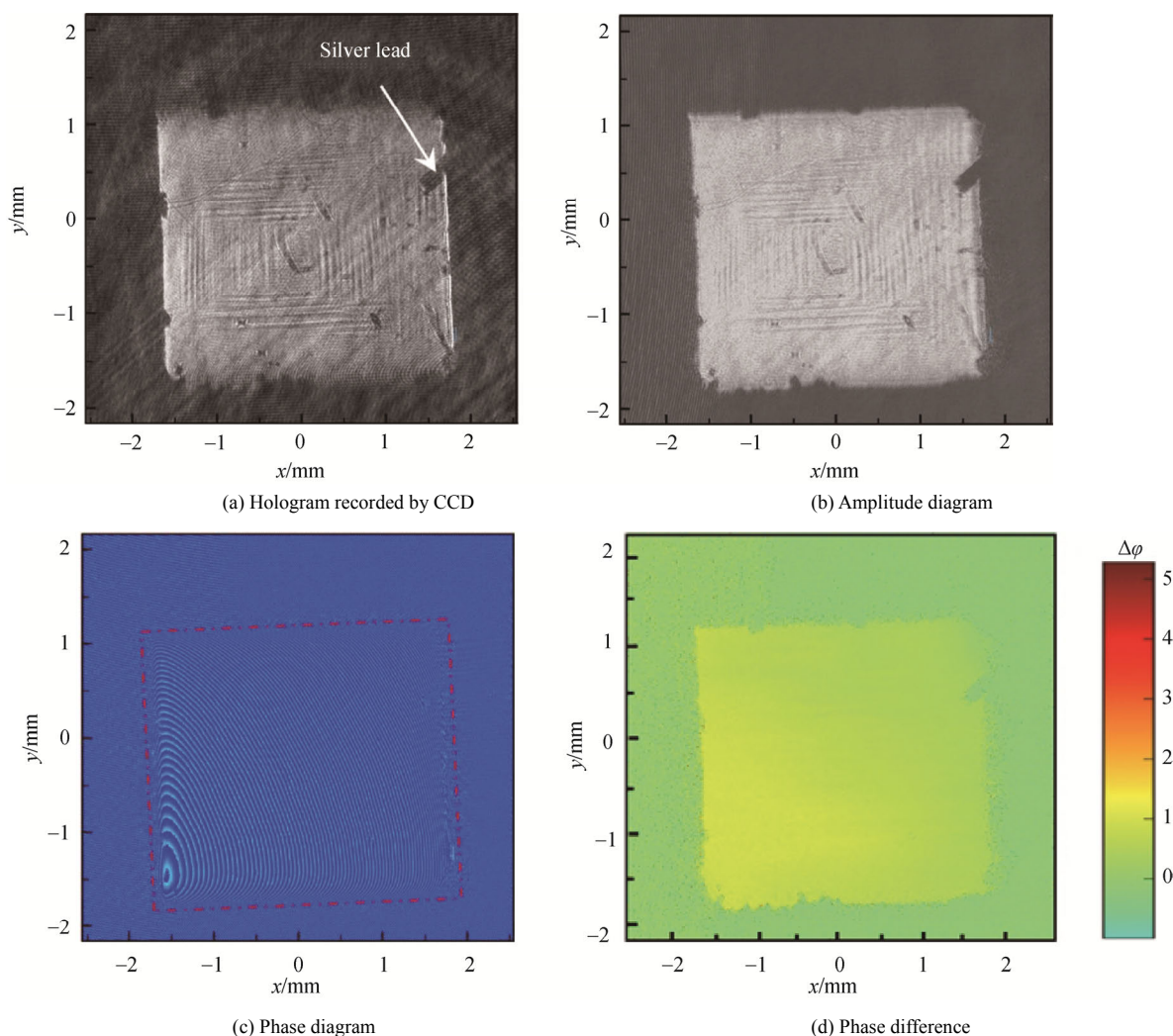


图 3 数字全息测试图

Fig. 3 Digital holographic experiment

图 4 为基于数字全息方法的多循环应变测试结果。由图 4a 可见, 采用频率为 1 Hz、峰值为 200 V 的单边交流三角波电压。由图 4b 可见, 应变随时间

呈周期性变化, 周期为 1 s, 与电压信号周期相同, 表明了数字全息系统测量的稳定性。在 1 个周期内, 应变曲线可分为 I~IV 4 个区域, 分别对应应变随时

间缓慢增加、快速增加、缓慢减小、快速减小阶段。

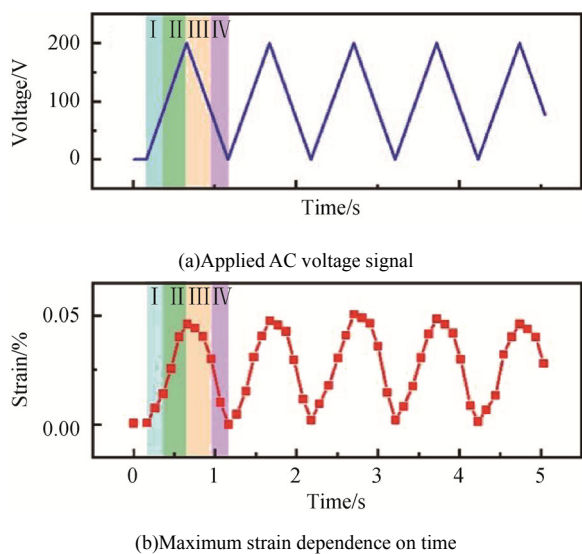
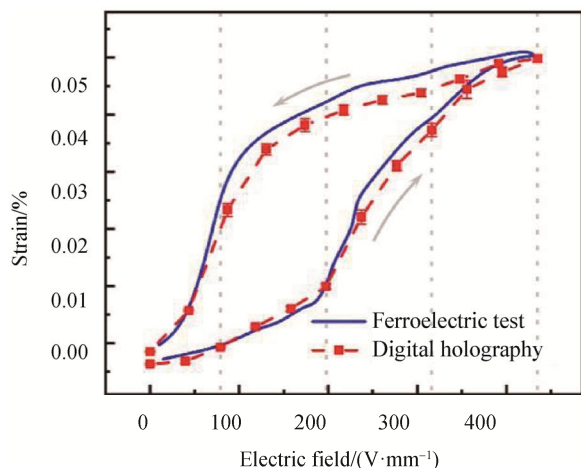


图4 基于数字全息方法的多循环应变测试结果

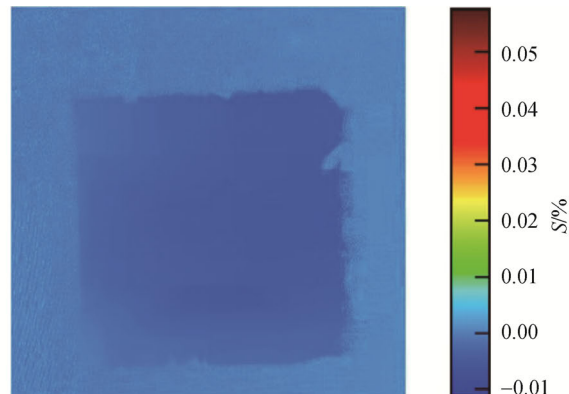
Fig. 4 Multi-cycles strain measurement based on digital holographic method

图5为应变(S)–电场(E)曲线及应变分布。图5a

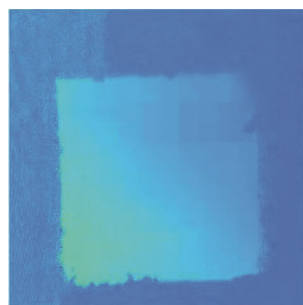
为铁电测试仪和数字全息系统测量测试电压条件下晶体的单边应变曲线。由图5a可见,由于铁电测试仪测量的是晶体应变的最大值,因此在数字全息测量的应变分布中选取最大值绘制单边应变曲线。2种方法的应变曲线符合良好,表明数字全息系统测量结果的准确性。在最大值点附近 3×3 像元区域计算应变最大点的标准差,较小的标准差说明数字全息测量结果的可靠性。图5b~图5e分别为电场上升过程中等间隔的4个电场 78、98、317、435 V/mm 时晶体的应变分布情况。在加电压过程中电场小于 200 V/mm 时,应变曲线缓慢增加,对应图4中的I区域,图5b~图5c中晶体应变整体分布较为均匀,在外电场作用下电畴还未翻转,应变贡献主要来源于晶体的本征逆压电效应。电场大于 200 V/mm 时,应变曲线快速增加,晶体应变快速增加主要是由电畴翻转带来的,对应图4中的II区域。图5d中晶体左侧应变明显大于其他区域,应变分布不再均匀,此时应变曲线选取的最大值是晶体左侧区域贡献



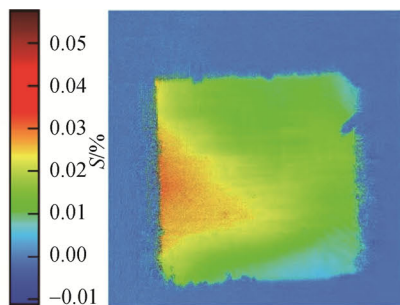
(a) Electric-field-induced strain measured by ferroelectric test and digital holography with error bar



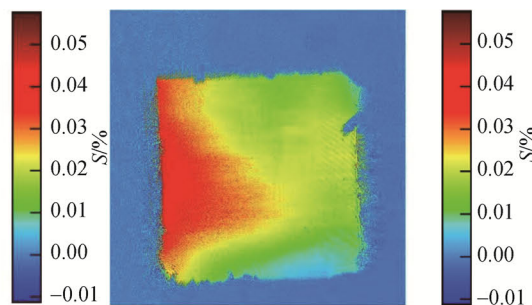
(b) Strain distribution of the crystal at 78 V/mm field



(c) Strain distribution of the crystal at 198 V/mm field



(d) Strain distribution of the crystal at 317 V/mm field



(e) Strain distribution of the crystal at 435 V/mm field

图5 应变(S)–电场(E)曲线及应变分布

Fig. 5 strain(S)–electric field(E) loop and strain distribution

的。左侧电畴先翻转, 因此具有较大的应变。电场达到 435 V/mm 时, 电畴翻转基本完成, 应变曲线呈线性增长, 图 5e 中晶体左侧应变达到最大值 0.05%, 约为其余区域的 2~3 倍, 表明晶体左侧区域的电畴先翻转同时对电场的响应更充分, 有更多的电畴完成了翻转, 因此具有更大的应变。由公式:

$$d_{33}^* = S_{\max} / E_{\max} \quad (7)$$

其中: d_{33}^* 为压电系数; $S_{\max}$ 为最大应变; $E_{\max}$ 为最大应变时的外电场。计算 Fe: KTN 晶体在室温下 d_{33}^* 为 1149 pm/V, 说明晶体具有较好的压电性能。

2.3 组分分布与电畴结构分析

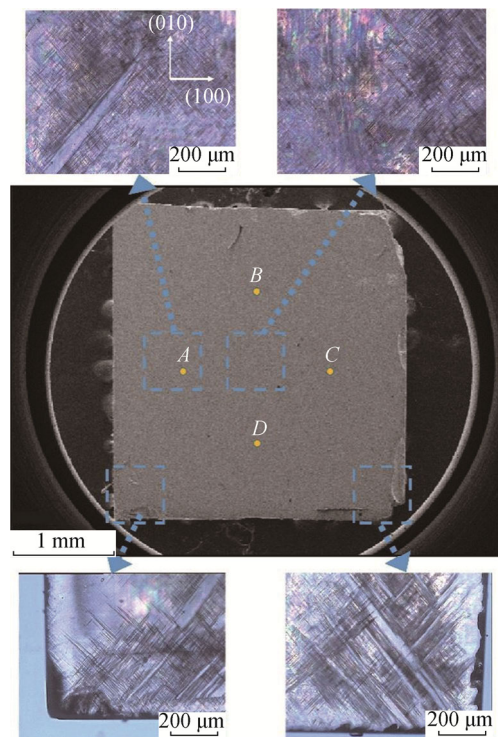
图 6 为 EDS 点扫测试与电畴结构。图 6a 为 Fe: KTN 晶体的 EDS 点扫测试位置及不同区域铁电畴结构图。由图 6a 可见, 对 4 个测试点位置分别进行 EDS 点扫测试, 图 6b 为 EDS 测试能谱。EDS 测得各位置元素原子摩尔分数比和 Nb 含量如表 1 所示, 其中: Nb 元素含量等于 Nb 原子摩尔分数比除以 Nb 原子和 Ta 原子摩尔分数比之和。Fe: KTN 晶体铁元素掺杂摩尔分数比为 0.15%, 与测量结果基本相同, 表明 EDS 测试结果具有较好的准确性。由 EDS 测试结果计算得到晶体点 A 位置的 Nb 元素含量少于另外 3 个点位置, 同时晶体点 B~点 D 位置的 Nb 元素含量近似相等。由图 5 中晶体应变的分布情况可以看出: A 点位置的应变大于其他位置, 点 B~点 D 位置处应变十分接近, 表明 Nb 元素含量和晶体应变性能之间存在关联。由经验公式表明: KTN 晶体的 Curie 温度与 Nb 含量存在线性关系^[21]:

$$T_C = 676x + 32 / \text{K} \quad (8)$$

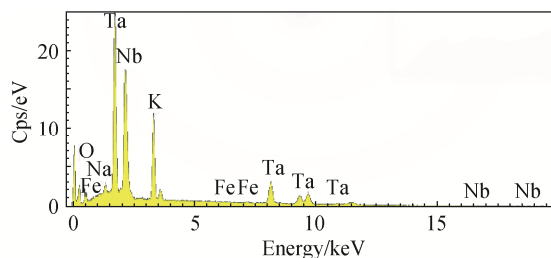
其中: x 为 Nb 元素含量。由式(7)得到 Fe: KTN 晶体 Curie 温度随 Nb 元素含量增多而升高, 将点 A 的 Nb 含量代入式(8)得到 Curie 温度为 54 °C, 而其余点位置的 Curie 温度高于点 A。在室温 25 °C 晶体点 A 位置处更接近其 Curie 温度。由图 2b 可以看出, 晶体在四方相处越接近 Curie 温度, Fröhlich 熵值越大, 表明晶体在外电场作用过程中响应更充分, 说明晶体点 A 位置电畴结构小, 易对外电场产生响应。

为表明晶体应变大小与畴结构的关系, 使用偏光显微镜对晶体不同区域的铁电畴进行了观察, 图 6a 中 4 个方块区域中的铁电畴状态存在差异。在点 A 附近区域晶体具有细密的 90°畴结构, 而左下角和右下角区域的畴结构相比于 A 点附近区域的畴结构更大。由图 4 可以看出, 点 A 附近区域应变大于左下角和右下角区域。还观察了晶体中间区域的铁电畴状态, 电畴从左到右尺寸逐渐增大, 对应图 4 中

应变中间区域从左到右逐渐减小的过程, 说明晶体畴结构小的区域对应更大的应变, 这是由于小尺寸电畴在外电场作用下更容易翻转, 同时小畴的数量更多, 对晶体的应变贡献更大, 因此晶体左侧区域的应变大于其余区域。



(a) EDS spot scanning position and domains in different regions



(b) EDS energy spectrum

图 6 EDS 点扫测试与电畴结构

Fig. 6 EDS point scanning test and domain structure

表 1 图 6a 中不同位置 EDS 测试结果

Table 1 EDS test results of different positions in Fig. 6(a)

Spot	$x(\text{Ta})/\%$	$x(\text{Nb})/\%$	$x(\text{Fe})/\%$	$x(\text{Nb})/(x(\text{Nb})+x(\text{Ta}))$
A	14.97%	11.66%	0.12%	0.438
B	15.17%	12.57%	0.13%	0.453
C	14.88%	12.26%	0.14%	0.452
D	15.01%	12.49%	0.15%	0.454

x —Mole fraction.

3 结论

1) 使用数字全息显微系统表征了 Fe: KTN 晶

体的单边应变曲线和应变性能分布, 与铁电测试仪器测量的结果比较, 表明数字全息具有良好的准确性和可靠性, 是一种有效表征材料应变性能二维空间分布的方法。

2) 使用 LCR 测量仪测量了 Fe: KTN 晶体的介电性能并计算了晶体的 Fröhlich 熵, 分析了晶体在不同温度区间的有序性。使用 EDS 和偏光显微镜分别测量了晶体的组分分布和电畴结构, 建立了组分分布, 电畴结构和应变分布之间的关系。结果表明: 当 Fe: KTN 晶体 Curie 温度高于室温时, Nb 元素含量少的区域在室温下具有更多的尺寸小的畴结构, 对电场响应更充分, 具有更大的电致应变性能。

参考文献:

- [1] MIRVAKILI S M, HUNTER I W. Artificial muscles: mechanisms, applications, and challenges[J]. *Adv Mater*, 2018, 30(6): 1704407.
- [2] MIRFAKHRAI T, MADDEN J D W, BAUGHMAN R H. Polymer artificial muscles[J]. *Mater Today*, 2007, 10(4): 30–38.
- [3] FUKADA E. History and recent progress in piezoelectric polymers[J]. *IEEE Trans Ultrason Ferroelectr Freq Control*, 2000, 47(6): 1277–1290.
- [4] KHAN N U, UIIAH A, ULLAH A, et al. Boosting electrostriction and strain performance in bismuth sodium titanate-based ceramics via introducing low tolerance factor chemical modifier[J]. *Sens Actuator A Phys*, 2019, 291: 156–166.
- [5] HU Chengpeng, MENG Xiangda, ZHANG Maohua, et al. Ultra-large electric field-induced strain in potassium sodium niobate crystals[J]. *Sci Adv*, 2020, 6(13): eaay5979.
- [6] SINGH A, CHATTERJEE R, GUPTA V. Effect of stoichiometric addition of La on $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ and large strain in thus modified $(\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x)_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ at room temperature and above[J]. *Mater Chem Phys*, 2021, 265: 124483.
- [7] ZHANG Maohua, ZHANG Qinghua, YU Tingting, et al. Enhanced electric-field-induced strains in $(\text{K},\text{Na})\text{NbO}_3$ piezoelectrics from heterogeneous structures[J]. *Mater Today*, 2021, 46: 44–53.
- [8] FU D S, KAKIHARA E. A capacitive displacement system for studying the piezoelectric strain and its temperature variation[J]. *J Appl Phys*, 2021, 129(14): 144101.
- [9] HUANG Z, WHATMORE R W. A double-beam common path laser interferometer for the measurement of electric field-induced strains of piezoelectric thin films[J]. *Rev Sci Instrum*, 2005, 76(12): 123906.
- [10] SMITH C D, BIEWER T M, GEBHART T E, et al. Measurements of dynamic surface changes by digital holography for in situ plasma erosion applications[J]. *Rev Sci Instrum*, 2021, 92(3): 033504.
- [11] KELNER R, ROSEN J. Methods of single-channel digital holography for three-dimensional imaging[J]. *IEEE Trans Industr Inform*, 2015, 12(1): 220–230.
- [12] GHOSH A, NOBLE J, SEBASTIAN A, et al. Digital holography for non-invasive quantitative imaging of two-dimensional materials[J]. *J Appl Phys*, 2020, 127(8): 084901.
- [13] LU Qieni, HAN Jinxin, DAI Haitao, et al. Visualization of spatial-temporal evolution of light-induced refractive index in Mn:Fe:KTN co-doped crystal based on digital holographic interferometry[J]. *IEEE Photon J*, 2015, 7(4): 2600711.
- [14] WANG Yu, TAN Peng, MENG Xiangda, et al. Manganese-doping enhanced local heterogeneity and piezoelectric properties in potassium tantalate niobate single crystals[J]. *IUCRJ*, 2021, 8: 319–326.
- [15] ZHANG Yuanyuan, LI Shuhuan, LIU fengying, et al. Growth and characterization of large size lead-free ferroelectric $\text{K}(\text{Ta},\text{Nb})\text{O}_3$ single crystal [J]. *J Am Ceram Soc*, 2021, 104(10): 5182–5191.
- [16] LI Chang, WANG Xuping, WU Yang, et al. Three-dimensional nonlinear photonic crystal in naturally grown potassium-tantalate-niobate perovskite ferroelectrics[J]. *Light Sci Appl*, 2020, 9(1): 193.
- [17] PARRAVICINI J, DELRE E, AGRANAT A J, et al. Liquid–solid directional composites and anisotropic dipolar phases of polar nanoregions in disordered perovskites [J]. *Nanoscale*, 2017, 9(27): 9572–9580.
- [18] PARRAVICINI J, DELRE E, AGRANAT A J, et al. Macroscopic response and directional disorder dynamics in chemically substituted ferroelectrics [J]. *Phys Rev B*, 2016, 93(9): 094203.
- [19] WANG Fengpeng, WANG Dayong, CAO Jian, et al. Reflection in-line and off-axis hybrid digital holography[J]. *Opt Commun*, 2020, 459: 124909.
- [20] GAUTAM S K, SINGH R K, NARAYANAMURTHY C S, et al. Reconstruction of complex-object using edge point referencing[J]. *J Opt*, 2020, 22(5): 055601.
- [21] SAKAMOTO T, SASAURA M, YAGI S, et al. In-plane distribution of phase transition temperature of $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ measured with single temperature sweep[J]. *Appl Phys Express*, 2008, 1(10): 101601.