

Оптические и диэлектрические исследования фазовых переходов в монокристаллах твердых растворов $\text{NaNbO}_3\text{—Gd}_{1/3}\text{NbO}_3$

© В.В. Титов, В.А. Шуваева, С.И. Раевская, М.А. Малицкая, И.П. Раевский, С.И. Шевцова

Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета,
Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: rip@ip.rsu.ru

Исследованы температурные зависимости диэлектрической проницаемости ϵ и цветограмм, полученных методом вращающегося поляризатора, монокристаллов твердых растворов $(1-x)\text{NaNbO}_3\text{—}x\text{Gd}_{1/3}\text{NbO}_3$ ($x = 0.003, 0.09$) с различной степенью размытия фазового перехода. Мультифрактальный анализ цветограмм выявил наличие аномалий на температурных зависимостях параметра f_∞ мультифрактального спектра. Для образца с неразмытым фазовым переходом ($x \approx 0.003$) температура этой аномалии хорошо согласуется с температурой скачков $\epsilon(T)$ и двулучепреломления. Для кристалла с $x \approx 0.09$, имеющего размытый максимум $\epsilon(T)$, температуры аномалий $f_\infty(T)$ различаются в центральной и краевых областях, что коррелирует с распределением Gd по кристаллу.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 08-02-92006 ННС) и Южного федерального университета.

PACS: 77.22.Ch, 77.80.Bh, 77.80.Dj, 78.20.Fm

Твердые растворы $(1-x)\text{NaNbO}_3\text{—}(x)\text{Gd}_{1/3}\text{NbO}_3$ (NNG- x) являются модельными объектами [1,2] для исследования размытия фазовых переходов в твердых растворах NaNbO_3 -основы наиболее перспективных бессвинцовых пьезоэлектрических материалов [3]. С ростом x острый максимум диэлектрической проницаемости ϵ , типичный для антисегнетоэлектрического фазового перехода в чистом NaNbO_3 , размывается, а его температура понижается [1]. Целью настоящей работы было сравнительное исследование фазовых переходов в кристаллах NNG- x оптическими и диэлектрическими методами.

Исследовались выращенные методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве [1] кристаллы NNG с $x \approx 0.003$ и 0.09 . Для оптических исследований отбирались пластинчатые кристаллы толщиной $0.2\text{--}0.3$ mm с четкой огранкой. Диэлектрические измерения проводились с помощью моста переменного тока P5083 на более толстых пластинчатых или изометрических кристаллах. В качестве электродов использовался аквадаг.

Оптические измерения проводились в ходе непрерывного нагревания со скоростью $1^\circ\text{C}/\text{min}$ в температурной камере Linkam TP93 по методике вращающегося поляризатора [4,5] с помощью оптического поляризационного микроскопа, оснащенного управляемым компьютером вращающимся поляризатором и видеокамерой. Полученные в результате изображения регистрировали и анализировали при помощи специальной вычислительной программы Metripol (www.metripol.com). Методика дает возможность получать распределение по кристаллу величины $|\sin \delta| = |\sin(\Delta n L 2\pi/\lambda)|$ ($\Delta n = n_1 - n_2$ — двулучепреломление, L — толщина кристалла, $\lambda = 600$ nm — длина волны излучения). Полученные этим методом результаты могут быть наглядно представлены в виде цветограмм, на которых измеряемые характеристики

отображены в каждой точке кристалла посредством цвета. Такие изображения дают возможность наблюдать за вариацией $|\sin \delta|$ по поверхности кристалла и соответственно следить за температурными изменениями доменной (двойниковой) структуры. Следует отметить, что величина $|\delta|$ может быть определена только в том случае, если известны ее значения хотя бы в одной температурной точке в каждой из фаз. Однако, если абсолютное значение $|\delta|$ кристалла велико, экспериментально определить ее величину сложно. Поскольку для определения температуры фазового перехода достаточно общего вида зависимости $|\delta|(T)$, мы не проводили количественных оценок $|\delta|$.

На рис. 1 приведена температурная зависимость $|\delta|$ для кристалла NNG-0.003. Четкая ступенька на зависимости $|\delta|(T)$ хорошо коррелирует со скачком на кривой $\epsilon(T)$. В кристаллах с более высоким содержанием Gd-домены (двойники) сильно измельчаются, что делает процесс обработки цветowych изображений по методике [4] невозможным [2].

Мы предприняли попытку провести более детальное исследование цветограмм с помощью методики мультифрактальной параметризации [6,7]. Из исходного цветного изображения было получено черно-белое с выделенными контурами резких перепадов цветности. Мы анализировали $f(\alpha)$ -спектры и D_Q -спектры фрактальных размерностей черно-белых изображений кристаллов. Полученные результаты представлены на врезке к рис. 1 и на рис. 2. На температурной зависимости параметра f_∞ мультифрактального спектра цветограмм монокристалла NNG с $x \approx 0.003$ имеется ступенька при той же температуре, что и скачок на зависимости $|\delta|(T)$, полученной с помощью стандартной методики обработки цветограмм [4,5].

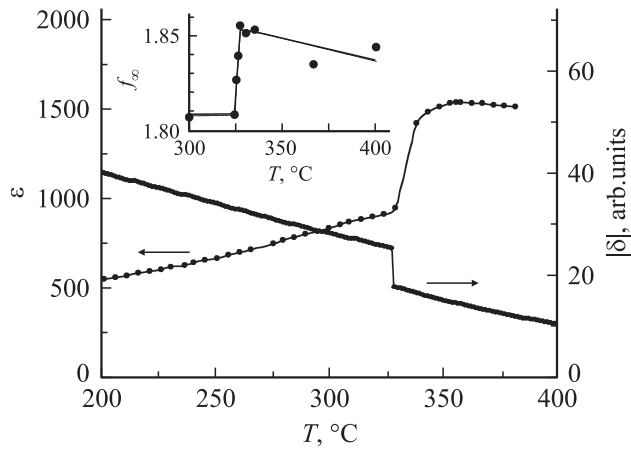


Рис. 1. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости и $|\delta|$ монокристалла $0.997\text{NaNbO}_3-0.003\text{Gd}_{1/3}\text{NbO}_3$. На вставке — температурная зависимость параметра f_∞ мультифрактального спектра цветограмм того же образца.

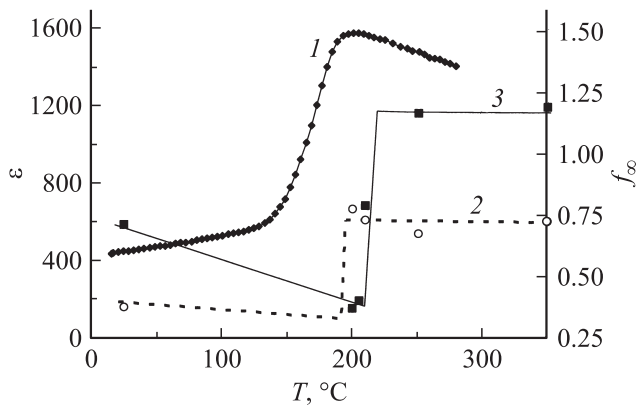


Рис. 2. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости (1) и параметра f_∞ мультифрактального спектра цветограмм центральной (2) и краевой (3) областей монокристалла $0.91\text{NaNbO}_3-0.09\text{Gd}_{1/3}\text{NbO}_3$.

На рис. 2 приведены результаты мультифрактальной параметризации монокристаллов NNG с более высоким содержанием Gd ($x \approx 0.09$). Как уже отмечалось, для этих образцов стандартная методика обработки цветограмм [4,5] неприменима вследствие малого размера доменов (двойников). Однако на температурной зависимости параметра f_∞ для этого кристалла имеется ступенька при температуре, близкой к максимуму $\varepsilon(T)$. Следует отметить, что ступенька на зависимости $f_\infty(T)$ значительно менее размыта, чем максимум $\varepsilon(T)$. По-видимому, это обстоятельство связано с тем, что величина ε является характеристикой, которая усредняется по всему объему кристалла. В отличие от этого мультифрактальный анализ применялся к сравнительно малым областям, в которых температура и величина размытия фазового перехода могут сильно отличаться от средних значений этих величин по всему кристаллу. Действительно, температура скачка $f_\infty(T)$

в центральной области кристалла ниже, чем в краевых областях (зависимости 2 и 4 на рис. 2). Это коррелирует с данными рентгеноспектрального микронзондового анализа, согласно которым содержание Gd в центральной области кристаллов NNG-0.09 выше, чем у краев, причем различие значений x в центре и на краях может достигать примерно величины 0.01.

Таким образом, мультифрактальный анализ цветограмм, полученных методом вращающегося поляризатора [4,5], может эффективно использоваться для определения температур локальных фазовых переходов в монокристаллах с размытыми фазовыми переходами, когда стандартные методы обработки цветограмм неприменимы.

Список литературы

- [1] I.P. Raevski, S.A. Prosandeev, K.G. Abdulvakhidov, L.A. Shilkina, S.I. Raevskaya, V.V. Eremkin, V.G. Smotrakov, L. Jastrabik. *J. Appl. Phys.* **95**, 3994 (2004).
- [2] I.P. Raevski, S.I. Raevskaya, S.A. Prosandeev, V.A. Shuvaeva, A.M. Glazer, M.S. Prosandeeva. *J. Phys.: Cond. Matter* **16**, L 221 (2004).
- [3] Y. Saito, H. Takao, T. Tani, T. Nonoyama, K. Takatori, T. Homma, T. Nagaya, M. Nakamura. *Nature* **432**, 84 (2004).
- [4] A.M. Glazer, J.G. Lewis, W. Kaminsky. *Proc. R. Soc. London. Ser. A* **452**, 2751 (1996).
- [5] V.A. Shuvaeva, A.M. Glazer, D. Zekria. *J. Phys.: Cond. Matter* **17**, 5709 (2005).
- [6] Г.В. Встовский, А.Г. Колмаков, И.Ж. Бунин. Введение в мультифрактальную параметризацию структур материалов. НИЦ „Регулярная и хаотическая динамика“, М.—Ижевск (2001). 116 с.
- [7] В.В. Титов, С.В. Титов, Л.А. Резниченко, О.Н. Разумовская, Л.А. Шилкина, В.В. Ахназарова, В.Д. Комаров. *Изв. РАН. Сер. физ.* **70**, 1048 (2006).