

Исследование фазового перехода в танталате лития методом бриллюэновской спектроскопии

© А.М. Пугачев, С. Кожима*, Х. Анвар*

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук,
630090 Новосибирск, Россия

* Институт материаловедения, Университет Цукуба,
Цукуба, Япония

E-mail: apg@iae.nsk.su

В стехиометрическом и конгруэнтном кристаллах танталата лития исследованы температурные зависимости релаксационной моды (центрального пика), возникающей при температурах вблизи фазового перехода из полярной фазы $3m$ (C_{3v}) в параэлектрическую $\bar{3}m$ (D_{3d}). Эксперименты проводились на шестипроходном сканирующем интерферометре Фабри–Перо (тандеме Сандеркока) в спектральном диапазоне 1–600 GHz. Обнаружено, что вблизи фазового перехода наблюдается резкое уменьшение ширины релаксационной моды, хорошо описываемое в терминах критического замедления. Критическое замедление в стехиометрическом образце прослеживается более четко, чем в конгруэнтном. Обнаруженная зависимость ширины релаксационной моды от температуры позволяет сделать вывод о том, что доминирующим механизмом фазового перехода в танталате лития является переход типа порядок–беспорядок.

PACS: 64.60.-i, 78.35.+c, 64.70.Kb, 77.80.Bh

1. Введение

Танталат лития LiTaO_3 представляет собой одноосный кристалл ромбоэдрической структуры с группой симметрии C_{3v} ($3m$) в сегнетоэлектрической фазе и D_{3d} ($\bar{3}m$) в высокотемпературной параэлектрической фазе. Температура фазового перехода T_C (температура Кюри) варьируется от 850 до 970 К и зависит от стехиометрического состава кристалла: для конгруэнтного кристалла LiTaO_3 (CLT) соотношение молярных концентраций $0.94 < [\text{Li}]/[\text{Ta}] < 1$, а для стехиометрического (SLT) $[\text{Li}]/[\text{Ta}] = 1$. Исследуя сегнетоэлектрический ФП в CLT методом комбинационного рассеяния света (КРС), авторы обнаружили, что один из пиков $A_1(z)$ симметрии проявляет свойства мягкой моды, что характерно для ФП типа смещения [1]. Вместе с тем различными методами (КРС [2,3], вынужденного КРС [4,5], терагерцевой времяразрешенной спектроскопии [6]) обнаружен центральный пик (ЦП), свидетельствующий о наличии релаксационных процессов в кристалле при ФП типа порядок–беспорядок. Однако до сих пор нет надежного наблюдения явления критического замедления в окрестности T_C [4]. Одной из причин, затрудняющих наблюдение этого эффекта, может быть влияние дефектов в виде вакансий Li в CLT. В связи с этим представляется актуальным изучить зависимость ЦП от температуры как в CLT, так и в SLT.

2. Эксперимент

Образцы для исследований представляли собой параллелепипеды, вырезанные вдоль кристаллографических осей. SLT изготовлен фирмой „Oxide Corporation“ из расплава методом Чохральского. Соотношение $[\text{Li}]/[\text{Ta}]$ в CLT определено по методу, основанному на измерении

двулучепреломления [7], и составило $9.67 \pm 0.04\%$. Измерения спектров рассеяния света проведены на шестипроходном сканирующем интерферометре Фабри–Перо (тандеме Сандеркока). В качестве источника излучения использован одночастотный аргоновый лазер (длина волны 514 nm, мощность 100 mW). Для нагрева образцов применялся термостат, позволяющий изменять температуру от комнатной до 1100 К и поддерживать ее с точностью ± 0.5 К.

3. Результаты

Эволюция спектров неупругого рассеяния света в зависимости от температуры на примере SLT в геометрии $X(ZZ)\bar{X}$ представлена на рис. 1. Измерения показали, что в SLT, а также в CLT вблизи T_C появляется ЦП, который практически исчезает при $T > T_C$. В геометрии $X(ZY)\bar{X}$ абсолютная интенсивность ЦП много меньше для обоих типов образцов. Для определения температуры Кюри T_C в обоих образцах проведены температурные измерения позиции продольной акустической (LA) моды рассеяния Мандельштама–Бриллюэна (вставка на рис. 1). Точки максимумов на приведенных графиках идентифицированы как точки ФП: $T_C = 881$ и 964 К соответственно для конгруэнтного и стехиометрического образцов.

Известно, что релаксационной моде, описываемой экспоненциальным затуханием с одним временем релаксации τ , соответствует корреляционная функция релаксационного движения в виде контура Лоренца с центром на нулевой частоте [8]. Исходя из этого спектральная кривая в виде $I_n(\nu, T) = I(\nu, T)\nu/(n+1)$ подгонялась функцией Лоренца $A/[1 + (\nu/\gamma)^2]$. Здесь $I(\nu, T)$ — экспериментальный спектр, k_B , h , ν — соответственно константы Больцмана, Планка и частотный сдвиг неупругого рассеяния, $n = 1/[\exp(h\nu/k_B T) - 1]$ —

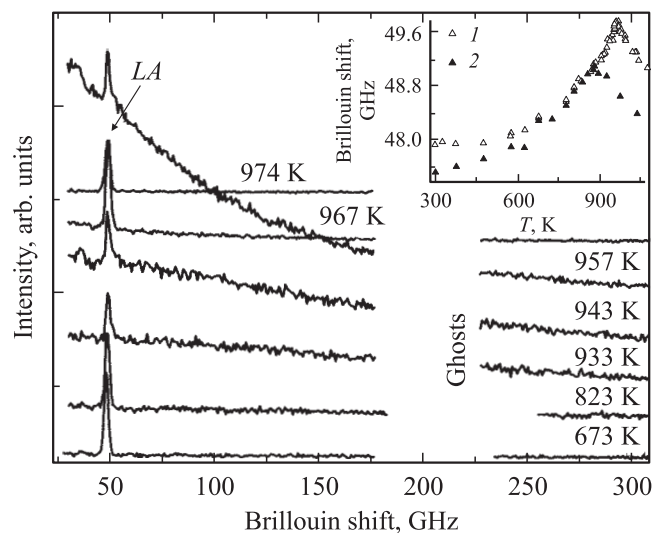


Рис. 1. Эволюция низкочастотных спектров рассеяния света в стехиометрическом LiTaO_3 в геометрии $X(ZZ)\bar{X}$. Зона свободной дисперсии интерферометра 300 GHz, спектральный диапазон 600 GHz. На вставке — зависимость позиции LA-моды от температуры для стехиометрического (1) и конгруэнтного (2) кристаллов LiTaO_3 . Зона свободной дисперсии интерферометра 30 GHz, спектральный диапазон 60 GHz.

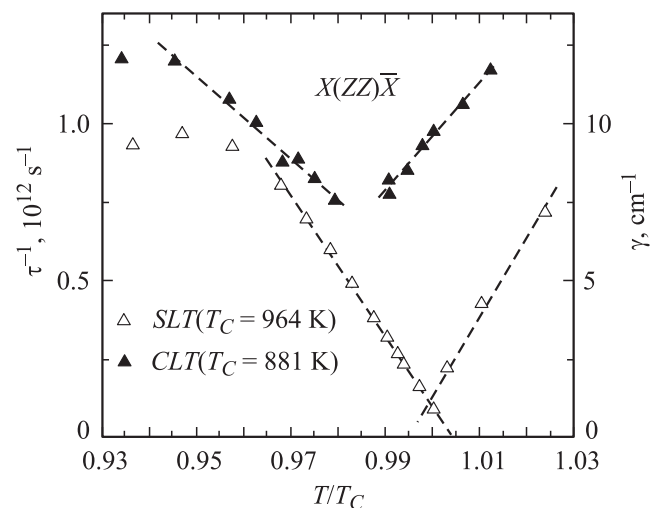


Рис. 2. Зависимость обратного времени релаксации от приведенной температуры T/T_C для стехиометрического (SLT) и конгруэнтного (CLT) кристаллов LiTaO_3 вблизи фазового перехода. Штриховые линии — подгонка экспериментальных данных по формуле (1).

Бозе-фактор, $\gamma = 1/(2\pi\tau)$ — полуширина релаксационной моды на полувысоте. На рис. 2 представлена температурная зависимость обратного времени релаксации $\tau^{-1} = 2\pi\gamma$ для CLT и SLT вблизи ФП. Из графиков отчетливо видно, что вблизи T_C при увеличении температуры обратное время релаксации (ширина ЦП) уменьшается в сегнетоэлектрической и увеличивается в параэлектрической фазе. Это явление известно как кри-

тическое замедление и описывается зависимостью [1]

$$\tau^{-1} = |T - T_0|/\tau_0 T. \quad (1)$$

Результаты подгонки экспериментальной зависимости $\tau^{-1}(T)$ в рамках критического замедления показаны на рис. 2 штриховыми линиями. В сегнетоэлектрической фазе $T_0 = 972 \pm 2$ K, $\tau_0 = 0.014$ ps и $T_0 = 932 \pm 5$ K, $\tau_0 = 0.027$ ps для SLT и CLT соответственно; в параэлектрической фазе $T_0 = 962 \pm 2$ K, $\tau_0 = 0.026$ ps для SLT и $T_0 = 837 \pm 6$ K, $\tau_0 = 0.013$ ps для CLT. Видно, что критическое замедление в конгруэнтных кристаллах не столь ярко выражено, как в стехиометрических. Отметим, что разница в величинах T_0 в сегнетоэлектрической и параэлектрической фазах для CLT больше, чем для соответствующих величин в SLT.

Изложенные выше результаты свидетельствуют о том, что основным механизмом сегнетоэлектрического ФП в LiTaO_3 является механизм типа порядок–беспорядок. Высокая плотность собственных дефектов в CLT (литиевые вакансии) является причиной уменьшения T_C и „размытия“ картины критического замедления.

Список литературы

- [1] М. Лайнс, А. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. Мир, М. (1981).
- [2] W.D. Johnston, jr, I.P. Kaminov. Phys. Rev. **168**, 3, 1045 (1968).
- [3] M.S. Zhang, J.F. Scott. Phys. Rev. B **34**, 3, 1880 (1986).
- [4] G.P. Wiederrecht, T.P. Dougherty, L. Dhar, K.A. Nelson. Phys. Rev. B **51**, 2, 916 (1995).
- [5] T.F. Timothy, N.S. Stoyanov, K.A. Nelson. J. Chem. Phys. **117**, 6, 2882 (2002).
- [6] S. Kojima, H. Kitahara, S. Nishizawa, M. Wada Takeda. Jpn. J. Appl. Phys. **42**, Pt. 1, 9B, 6238 (2003).
- [7] В.В. Алушин. Опт. и спектр. **67**, 6, 1309 (1989).
- [8] J.R. Sokoloff, L.L. Chase, D. Rytz. Phys. Rev. B **38**, 1, 597 (1988).