

# Ориентирование тетрагональных центров железа в $\text{KTaO}_3$ электрическим полем

© Л.С. Сочава, В.Э. Бурсиан, А.Г. Раздобарин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, 194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: Lev.Sochava@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 14 марта 2000 г.)

Показано, что примесные центры  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  в кристалле  $\text{KTaO}_3$  в условиях приложенного к образцу постоянного электрического поля  $E = 75 \text{ kV/cm}$  оказываются ориентированными при температурах  $T \geq 120 \text{ K}$ . При этом эффективное локальное поле, действующее на электрический дипольный момент центра, превосходит приложенное поле в 7.6 раза.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 99-02-18319).

1. Упорядочение ориентации дефектных центров в кристаллической решетке может быть создано тем или иным анизотропным воздействием на кристалл. В [1] было обнаружено и в [2] подробно исследовано выстраивание тетрагональных центров  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  в кубическом кристалле  $\text{KTaO}_3$  под действием поляризованного света. Как показано в [2], механизмом выстраивания является анизотропная перезарядка центров поляризованным светом, происходящая без реальной реориентации центра.

Согласно общепринятой модели [3,4], обсуждаемый центр представляет собой комплекс из примесного иона  $\text{Fe}^{3+}$ , занимающего узел  $\text{K}^+$ , и иона  $\text{O}^{2-}$  в позиции внедрения, расположенной рядом с  $\text{Fe}_K^{3+}$  по одному из направлений  $\langle 100 \rangle$  кристалла. Таким образом, в кристаллической решетке  $\text{KTaO}_3$  существует шесть возможных ориентаций центра (рис. 1).

Поскольку с обсуждаемым центром связан электрический дипольный момент (рис. 1), можно пытаться упорядочить ориентацию центров  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  методом, отличным от использовавшегося в [1,2], а именно с помощью постоянного электрического поля, приложенного к образцу. Как известно, необходимым условием для ориентации дипольных центров внешним электрическим полем является наличие его спонтанных (тепловых) реориентаций при температуре эксперимента. В работах [5] авторы сделали вывод о наличии таких реориентаций обсуждаемого центра при температуре  $T = 117-120 \text{ K}$  и определили величину барьера, разделяющего позиции внедренного иона кислорода  $\text{O}_i^{2-}$  ( $0.34 \pm 0.02 \text{ eV}$ ).

2. Исследовались монокристаллы  $\text{KTaO}_3 : \text{Fe}$ , выращенные на физическом факультете университета г. Оснабрюка, Германия, с содержанием железа в шихте 20 000 ppm. Прямоугольные образцы с ребрами вдоль направлений  $\langle 100 \rangle$  и типичными размерами  $0.7 \times 2 \times 3 \text{ mm}$  вырезались из монокристаллической були и исследовались "as grown". На грани  $2 \times 3 \text{ mm}$  наносились электроды из серебряной пасты.

Спектры ЭПР регистрировались на стандартном спектрометре SE/X 2544 X-диапазона в жидком азоте или

в струе его паров. В последнем случае температура стабилизировалась с точностью  $\pm 1 \text{ K}$ .

В экспериментах как в жидком, так и в газообразном азоте использовались электрические поля величиной до  $150 \text{ kV/cm}$ .

Оптическое выстраивание центров  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  под действием поляризованного света наблюдалось в [1,2] при температуре  $T = 78 \text{ K}$ . Очевидно, такой метод упорядочения ориентации центров тем эффективнее, чем меньше вероятность тепловых реориентаций центра при температуре эксперимента. При  $T = 78 \text{ K}$  созданная светом степень выстраивания центров сохраняется в темноте неопределенно долгое время, т.е. тепловые реориентации при этой температуре не происходят. С другой стороны, как уже отмечалось, необходимым условием для ориентирования центров внешним электрическим полем является наличие его тепловых реориентаций. Из изло-

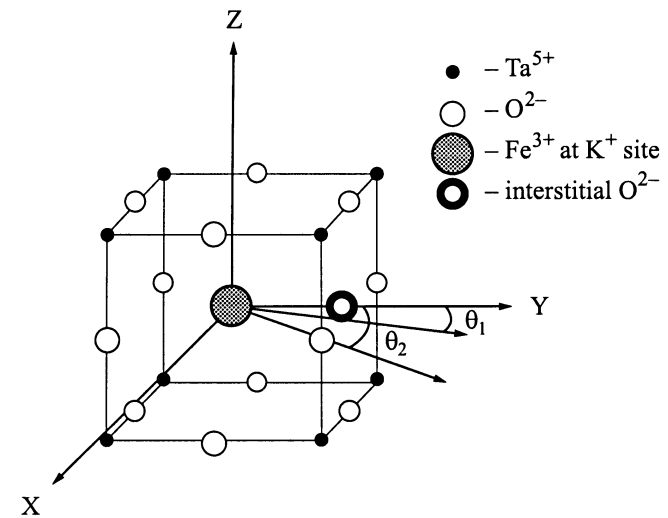
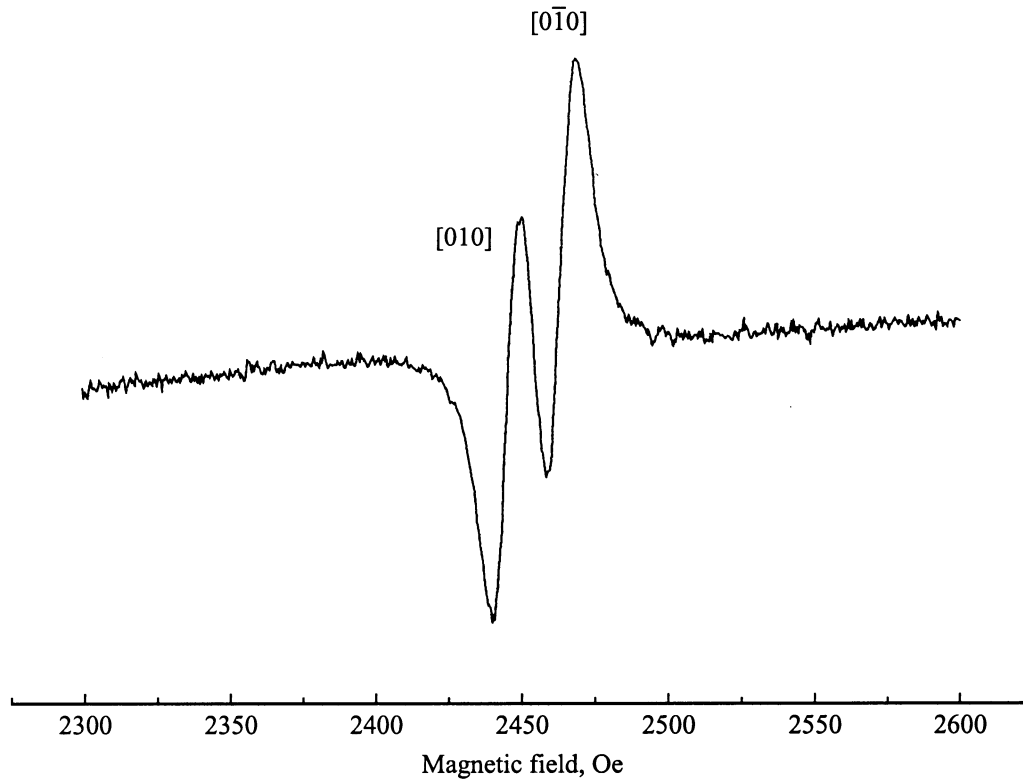


Рис. 1. Центр  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  в кристаллической решетке  $\text{KTaO}_3$  (одна из шести возможных ориентаций). На рис. 2 и 3 поле  $\mathbf{E}$  прикладывалось по направлению  $[010]$ , а поле  $\mathbf{H}$  было отклонено от  $[010]$  на углы  $\theta_1$  или  $\theta_2$ .



**Рис. 2.** Расщепление линии ЭПР в электрическом поле при  $T = 78$  К. Две компоненты соответствуют центрам с дипольными моментами, направленными по полю и против него.  $\mathbf{E} \parallel [010]$ ,  $E = 92$  kV/cm.  $\mathbf{H} \perp [001]$ ,  $\angle(\mathbf{H}, \mathbf{E}) = \theta_1 = 18^\circ$ .

женного ясно, что ориентирование центров  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$  во внешнем электрическом поле не должно наблюдаться при  $T = 78$  К; для его наблюдения необходимы более высокие температуры.

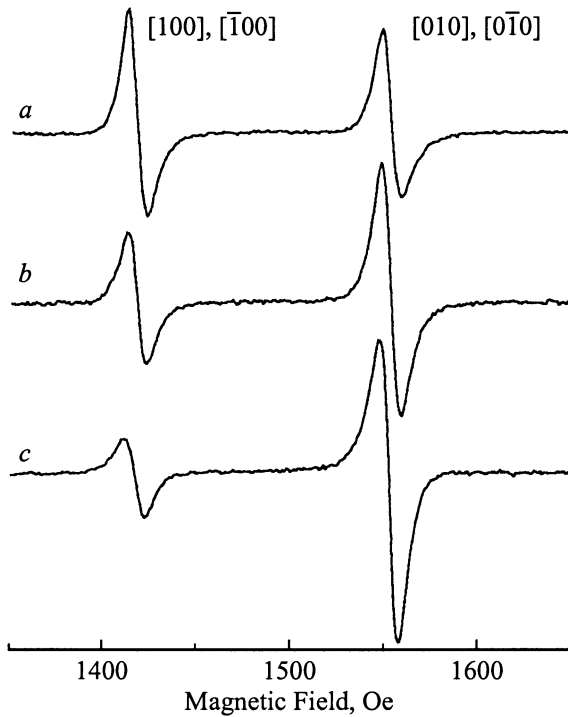
Проведенные эксперименты подтвердили эти соображения. На рис. 2 показана запись ЭПР линии, соответствующей центрам с тетрагональной осью вдоль  $[010]$ , при  $T = 78$  К в поле  $E = 92$  kV/cm, приложенном вдоль оси указанных центров. (Поле  $\mathbf{H}$  составляло угол  $\theta_1 = 18^\circ$  с тетрагональной осью центров — ориентация, соответствующая максимальной величине расщепления линий исследуемого центра [6]). Как видно, линия расщепилась на две равные компоненты, причем величина расщепления (19 Oe) достаточно велика, она вдвое превосходит исходную ширину линии. Таким образом, число центров с дипольным моментом, направленным по полю, оказывается при  $T = 78$  К равным числу центров с дипольным моментом против поля и остается таким неопределенно долгое время. Это значит, что при  $T = 78$  К внешнее электрическое поле не приводит к ориентированию центров (хотя, как будет показано в п. 4, при этом  $pE_{\text{loc}}/kT > 4$ , где  $E_{\text{loc}}$  — эффективное локальное поле, действующее на диполь центра), т.е. тепловые реориентации центра при этой температуре не осуществляются.

Эксперименты с электрическим полем, проведенные при более высоких температурах, позволили зарегистри-

ровать реориентацию центров, начиная с  $T \approx 120$  К. При этом для количественных измерений степени ориентирования оказалось более удобным сравнивать не интенсивности расщепленных полей компонент одной и той же линии, а интенсивности линий, соответствующих ориентации центра вдоль различных осей  $\langle 100 \rangle$ . Была использована ориентация магнитного поля, когда  $\mathbf{H}$  отклонено от направления  $[110]$  на  $1-2^\circ$  в плоскости  $(001)$ ; при этом вблизи  $H = 1500$  Oe наблюдаются две линии (рис. 3, а), одна из которых соответствует двум центрам с тетрагональной осью по  $[010]$ , параллельной  $\mathbf{E}$ , а другая — двум другим центрам с осью по  $[100]$ , перпендикулярной  $\mathbf{E}$ .

На рис. 3 показаны характерные записи двух указанных линий при  $T = 122$  К (без поля и в полях 47 и 75 kV/cm), полученные после длительной выдержки образца в поле. В поле 75 kV/cm отношение интегральных интенсивностей двух упомянутых линий приблизительно в 4 раза отличается от того же отношения в нулевом поле. Оценивая степень выстраивания фактором  $\eta = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$ , где  $I_{\parallel}$  и  $I_{\perp}$  — интенсивности двух использованных линий, получим  $\eta = 0.6$ . Таким образом, наличие тепловых реориентаций исследуемого центра при  $T = 122$  К не вызывает сомнений.

4. Полученные экспериментальные данные позволяют определить величину произведения  $p_{\text{eff}}E$  ( $p_{\text{eff}}$  — эффективный дипольный момент, соответствующий наблюдае-



**Рис. 3.** Изменения в электрическом поле  $E \parallel [010]$  интенсивности двух ЭПР линий, соответствующих различным ориентациям центра  $\text{Fe}_K^{3+}-\text{O}_i^{2-}$ , при  $T = 122 \text{ K}$ .  $E = 0$  (a);  $47 \text{ kV/cm}$  (b);  $75 \text{ kV/cm}$  (c).  $\angle(\mathbf{H}, \mathbf{E}) = \theta_2 = 43.5^\circ$ . Около линий указаны ориентации центров, вносящие вклад в данную линию (рис. 1).

мой степени ориентации диполей во внешнем поле  $E$ ) и, следовательно, найти  $p_{\text{eff}}$

$$p_{\text{eff}} = 30.4e\text{\AA} = 146D.$$

С другой стороны, известная структура исследуемого центра позволяет прямо оценить величину его дипольного момента  $p_c$  (полагая в соответствии с результатами теоретических расчетов [7], что расстояние между ионами  $\text{Fe}_K^{3+}$  и  $\text{O}_i^{2-}$  близко к  $2\text{\AA}$ )

$$p_c \cong 2e \times 2\text{\AA} = 4e\text{\AA} = 19.2D.$$

Из сравнения величин  $p_{\text{eff}}$  и  $p_c$  следует, что эффективное локальное поле  $E_{\text{loc}}$ , действующее на диполь центра, существенно превосходит приложенное поле  $E$

$$E_{\text{loc}} = (7.6 \pm 0.8)E.$$

Диполь центра, очевидно, не может рассматриваться как точечный (его плечо равно половине постоянной решетки), поэтому не удивительно резкое отличие найденной величины  $E_{\text{loc}}$  от расчетной величины локального поля в точке кристаллической решетки  $\text{KTaO}_3$ , имеющей

окружение кубической симметрии [8],

$$E_{\text{loc}}^{(\text{cub})} = \frac{\varepsilon + 2}{3}E \cong 170E$$

(диэлектрическая постоянная  $\varepsilon$  для  $\text{KTaO}_3$  при  $T = 122 \text{ K}$  — около 500).

Из изложенного ясно, что экспериментально наблюдаемая высокая степень ориентирования центров в сравнительно небольшом внешнем поле обусловлена как большим отношением  $E_{\text{loc}}/E$ , так и значительной величиной дипольного момента центра.

Авторы благодарят доктора Н. Hesse и профессора S. Kapphan (университет г. Оснабрюка, Германия) за предоставление высококачественных кристаллов  $\text{KTaO}_3:\text{Fe}$ , С.А. Басуна за плодотворные дискуссии и А.А. Каплянского за интерес к работе и поддержку.

## Список литературы

- [1] H.-J. Reyher, B. Faust, M. Käding, N. Hesse, E. Ruza, M. Wöhlecke. Phys. Rev. **B51**, 6707 (1995).
- [2] S.A. Basum, L.S. Sochava, V.E. Bursian, N. Hesse, S. Kapphan, V.S. Vikhnin. Proc. of the XIII Internat. Conf. on Defects in Insulating Materials. Wake Forest University, USA (1996); in Materials Science Forum, Trans Tech Publications. Switzerland (1997). V. 239–241, p. 345.
- [3] И.П. Быков, М.Д. Глинчук, А.А. Кармазин, В.В. Лагута. ФТТ **25**, 12, 3586 (1983).
- [4] В.В. Лагута, М.Д. Глинчук, И.П. Быков, А.А. Кармазин, В.Г. Грачев, В.В. Троицкий, ФТТ **29**, 8, 2473 (1987).
- [5] V.S. Vikhnin, A.S. Polkovnikov, H.-J. Reyher, B. Faust, S. Kapphan. Proc. of the 9<sup>th</sup> Internat. Meeting of Ferroelectricity. Seoul, Korea (1997); in J. of the Korean Phys. Society **32**, S486 (1998); H.-J. Reyher. VI<sup>th</sup> Russian–German Seminar on Point Defects in Insulators and Deep-Level Centers in Semiconductors, St.-Petersburg (1997). Poster, unpublished.
- [6] И.Н. Гейфман, М.Д. Глинчук, Б.К. Круликовский. ЖЭТФ **75**, 4, 1468 (1978).
- [7] H. Donnerberg, M. Exner, C.R.A. Catlow. Phys. Rev. **B47**, 1, 14 (1993).
- [8] C. Kittel. Introduction to Solid State Physics. J. Wiley and Sons, Inc., N. Y. [Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука, М. (1978). 791 с.].