

СУЩЕСТВОВАНИЕ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ФАЗЫ В КРИСТАЛЛЕ КTaO₃:Li

Г.А. Смоленский, А.В. Сотников, П.П. Сырников, Н.К. Юшин

На основании акустических, диэлектрических, пироэлектрических и оптических экспериментов установлено, что в кристаллах tantalата калия с нецентральной примесью лития происходит фазовый переход в сегнетоэлектрическую фазу, а не в фазу „полярного стекла”.

Введение нецентральных примесей в сильно поляризуюю паразелектрическую решетку, как показано в теоретических работах ^{1,2}, может привести к появлению сегнетоэлектрического состояния. Наиболее подходящим объектом для проверки теории является tantalат калия с примесью лития. Действительно, KTaO₃ отличается высокой диэлектрической проницаемостью ($\epsilon \sim 4 \cdot 10^3$ при $T \leq 40$ К) и остается паразелектриком (точечная группа O_h) вплоть

до 0 К, а примесь лития из-за малого ионного радиуса занимает, как следует из дифференциальных спектров KP^3 , нецентральное положение в решетке KTaO_3 со смещением $\sim 0,5 \text{ \AA}$ и обладает дипольным моментом. Однако, в настоящее время нет однозначной точки зрения на характер фазового перехода в системе $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$. Так, хотя в ряде работ по оптическому рассеянию^{4,5} и двупреломлению⁶ и говорится о наличии признаков сегнетоэлектрического состояния, в работах⁷⁻¹² утверждается, что в данной системе (при $x \leq 0,24$) реализуется состояние „полярного стекла”, в котором отсутствует макроскопическая с spontaneous polarization and нет точно фиксируемой точки перехода. Имеется лишь достаточно протяженная область „стеклования”, в которой наблюдаются критические аномалии диэлектрической проницаемости и ее дисперсия объясняются присутствием медленно релаксирующих кластеров¹⁰. Наличие фазы „полярного стекла” аргументировалось, в частности, отсутствием каких-либо аномалий упругой податливости S_{11} , измеренной резонансным методом^{7,8}.

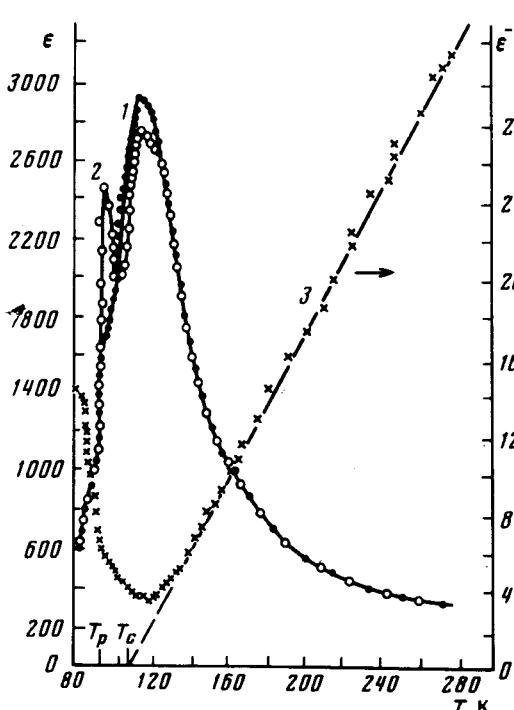


Рис.1

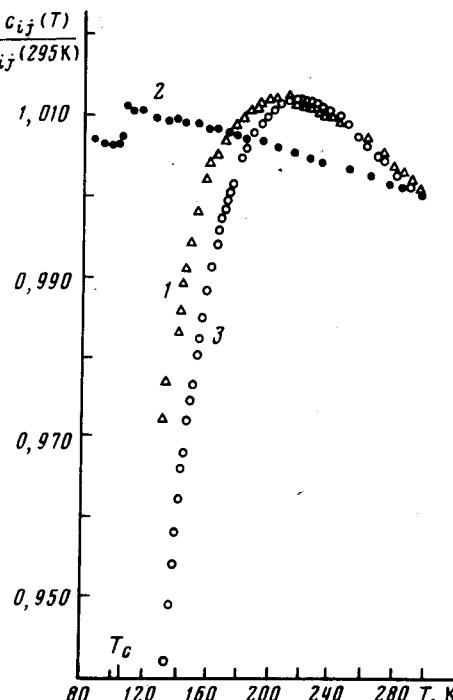


Рис.2

Рис.1. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости ϵ для полидоменного (кривая 1) и монодоменизированного в поле $E_0=3 \text{ кВ/см}$ (2) образцов и ϵ^{-1} (3). Частота 1 КГц

Рис.2. Температурные зависимости относительных изменений модулей упругости: c_{11} (кривая 1), $c_{44} = (2)$ и $\frac{1}{2}(c_{11} - c_{12})$ (3) для полидоменного образца

Целью настоящей работы является изучение фазового перехода и природы низкотемпературной фазы в кристалле $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$. Кристаллы были выращены из раствора в расплаве Ta_2O_5 , $\text{K}_2\text{CO}_3 + \text{Li}_2\text{CO}_3$, содержание примеси лития определялось по шихте. Диэлектрические и оптические измерения проводились на образцах со средними размерами $5 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$; на большие грани, перпендикулярные [100], были нанесены серебряные электроды. Результаты измерений температурной зависимости ϵ представлены на рис. 1, откуда видно, что зависимость $\epsilon(T)$ отвечает закону Кюри – Вейсса с $C = 5,3 \cdot 10^4 \text{ K}^{-1}$ и $T_c = 103 \text{ K}$. При монодоменизации образца путем охлаждения до температуры $T \approx 78 \text{ K}$ в присутствии посто-

янного электрического поля E_0 , приложенного вдоль [100], на зависимости $\epsilon(T)$ появляется дополнительный острый пик при T_p , положение которого не зависит от частоты измерительного поля и величины E_0 (рис.1, кривая 2). Максимум ϵ при T_p наблюдался как при нагреве образца до некоторой температуры $T_{\text{изм}}$, так и при последующем охлаждении, но только если $T_{\text{изм}}$ не превышает T_c , в противном же случае зависимость $\epsilon(T)$ становится такой же, как и в исходном состоянии образца (т.е. кривая 1 на рис.1). В монодоменизированном образце при T_p наблюдался также максимум пироэфекта, измеренного динамическим методом¹³, а кроме того, при $T < T_c$ — двупреломление и петли диэлектрического гистерезиса.

Акустические измерения проводились на образце с $x = 0,1$ и размерами $\sim 1 \text{ см}^3$, грани которого были ориентированы вдоль [100] и [110]. Скорость упругих волн измерялась методом¹⁴ на частоте 30 МГц с относительной точностью 10^{-4} . Температурные зависимости относительных изменений модулей упругости c_{11} , c_{44} и $\frac{1}{2}(c_{11} - c_{12})$ представлены на рис.2.

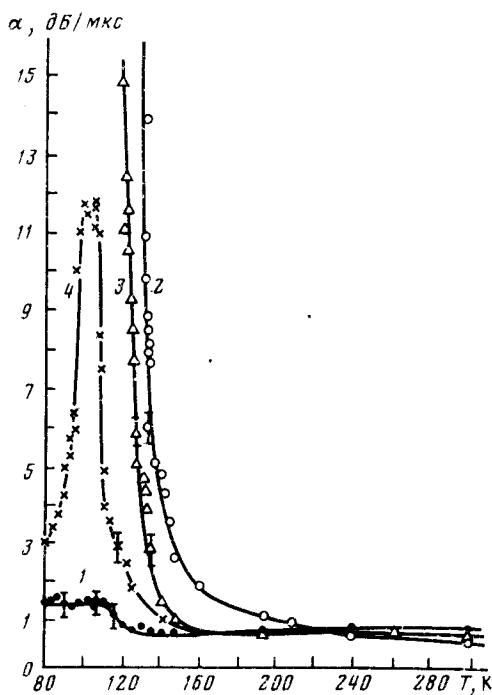


Рис.3. Температурные зависимости затухания упругих волн частоты 30 МГц, распространяющихся вдоль [110]: кривая 1 — медленная поперечная волна (со скоростью, определяемой c_{44}), 2 — быстрая поперечная ($\frac{1}{2}(c_{11}-c_{12})$) и продольная волна в полидоменном²(3) и монодоменизированном в поле $E_0=3 \text{ кВ/см}$ (4) образцах.

Обращает на себя внимание характерный для фазового перехода¹⁵ скачок модуля c_{44} при $T_c = 103 \text{ К}$. При приближении к T_c со стороны парапазы наблюдался рост затухания всех типов упругих волн (см. рис.3), причем для волн, определяемых модулями c_{44} и $\frac{1}{2}(c_{11}-c_{12})$ затухание настолько велико, что в полидоменном образце эти модули удалось измерить только в высокотемпературной фазе. Необходимо отметить наблюдаемую анизотропию температурных зависимостей упругих постоянных (рис.2), тогда как для перехода в состояние стекла следует ожидать, что аномалии упругих постоянных, соответствующих сдвиговым деформациям (т.е. c_{44} и $\frac{1}{2}(c_{11}-c_{12})$), будут одинаковыми. Затухание упругих волн в монодоменизированном (тем же методом, что и при измерении ϵ) образце меньше, чем в полидоменном (рис.3, кривые 3 и 4), как обычно и наблюдается в сегнетоэлектриках¹⁵.

Таким образом, на основании имеющихся экспериментальных данных можно сделать вывод о природе фазового перехода: во-первых, существует точка фазового перехода T_c , фиксируемая по скачку упругого модуля c_{44} ; во-вторых, наблюдаемые при $T < T_c$ пироэфект и уменьшение затухания в монодоменизированном образце вместе с появлением дву-

преломления и петель диэлектрического гистерезиса свидетельствуют о сегнетоэлектрическом характере низкотемпературной фазы. Причина аномалий при T_p остается неясной и требует дальнейшего изучения.

Литература

1. Вугмайстер Б.Е., Глинчук М.Д. ФТТ, 1979, 21, 1263.
2. Вугмайстер Б.Е., Глинчук М.Д. ЖЭТФ, 1980, 79, 947.
3. Yacoby Y., Just S., Solid State Comm. 1974, 15, 715.
4. Yacoby Y. Z. Phys. B, 1978, 31, 275.
5. Prater R.L., Chase L.L., Boatner L.A. Phys. Rev. B, 1981, 23, 5904.
6. Courtens E. J. Phys. C, 1981, 14, L37.
7. Höchli U.T., Weibel H.E., Boatner L.A. Phys. Rev. Lett, 1978, 41, 1410.
8. Höchli U.T., Weibel H.E., Boatner L.A. J. Phys. C, 1979, 12, L563.
9. Borsa F., Höchli U.T., van der Klink J.J., Rytz D. Phys. Rev. Lett., 1980, 46, 1884.
10. Höchli U.T. Phys. Rev. Lett., 1982, 48, 1494.
11. Гейфман И.Н., Сытиков А.А., Коломыцев В.И., Круликовский Б.К. ЖЭТФ, 1981, 80, 2317.
12. Гейфман И.Н. ФТТ, 1981, 23, 1253.
13. Chynoweth A.G. J. Appl. Phys., 1956, 27, 78.
14. Williams J., Lamb J. J. Acoust. Soc. Am., 1958, 30, 308.
15. Rehwald W. Adv. Phys., 1973, 22, 721.

Физико-технический институт

им. А.Ф. Иоффе

Академии наук СССР

Поступила в редакцию

10 ноября 1982 г.