

PACS: 62.50.-p, 74.62.Fj, 77.80.Bh

А.А. Гомоннай¹, П.П. Гуранич¹, А.Г. Сливка¹, М.Ю. Риган², И.Ю. Роман³

БАРИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ ПИРОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО КОЭФФИЦИЕНТА В СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛАХ $TlInS_2$ И $TlGaSe_2$

¹Ужгородский национальный университет
ул. Пидгирна, 46, г. Ужгород, 88000, Украина
E-mail: gomonnai@ukr.net

²Ужгородский НТЦ МОНИ Института проблем регистрации информации НАН Украины
ул. Замковые сходы, 4, г. Ужгород, 88000, Украина

³Институт электронной физики НАН Украины
ул. Университетска, 21, г. Ужгород, 88000, Украина

Изучено влияние гидростатического давления на пироэлектрические свойства слоистых кристаллов $TlInS_2$ и $TlGaSe_2$. Характер барического поведения температур фазовых переходов (ФП) в этих кристаллах подтверждает, что сегнетоэлектрические переходы относятся к типу порядок–беспорядок. Результаты барических исследований зависимостей пироэлектрического коэффициента $\chi(T)$ и изменение характера зависимости температуры сегнетоэлектрического перехода при увеличении гидростатического давления свидетельствуют о наличии сложной поликритической области в диапазоне $580 \leq p \leq 660$ МПа на фазовой p, T -диаграмме слоистых кристаллов $TlInS_2$.

Введение

Повышенный интерес к исследованиям кристаллов, в частности на основе халькогенидов, с несоразмерной фазой стимулирован тем, что в таких материалах с помощью внешних воздействий можно индуцировать поликритические явления [1,2]. В связи с этим особую актуальность представляет изучение кристаллов с несоразмерной структурой при высоких гидростатических давлениях. С помощью таких давлений можно получить ряд равновесных состояний вещества с измененными параметрами решетки и, таким образом, установить закономерности в поведении различных свойств от межатомных расстояний и глубже понять их природу.

Кристаллы $TlInS_2$ и $TlGaSe_2$ являются представителями семейства халькогенидных слоистых полупроводников-сегнетоэлектриков, которые обладают интересными физическими свойствами. При нормальных условиях

кристаллы TlInS_2 и TlGaSe_2 имеют моноклинную решетку и принадлежат к пространственной группе C_{2h}^6 [3,4]. Результаты детальных температурных исследований диэлектрической проницаемости ϵ свидетельствуют о существовании ряда аномалий $\epsilon(T)$ в кристаллах TlInS_2 в диапазоне 190–220 К [5]. Для их описания использовалось несколько теоретических моделей [5,6], в соответствии с которыми при температуре $T_i \sim 216$ К происходят ФП из параэлектрической в несоизмеримую фазу, а в диапазоне $T_c \sim 190$ –195 К – в соизмеримую сегнетоэлектрическую. В кристаллах TlGaSe_2 при температуре $T_i \sim 120$ К происходят ФП из параэлектрической в несоизмеримую, а при $T_c \sim 110$ К – в соизмеримую сегнетоэлектрическую фазу, в которой вектор спонтанной поляризации P_s лежит в плоскости слоя [7].

Методика эксперимента

Кристаллы TlInS_2 и TlGaSe_2 выращены в кварцевых ампулах методом Бриджмена, подобно описанному в [8]. Барические исследования температурных зависимостей пьезоэлектрического тока проведены в камере высокого давления с рабочим объемом 5 cm^3 в режиме нагрева со скоростью 0.08–0.15 К/с для TlInS_2 и 0.15–0.25 К/с для TlGaSe_2 , предварительно поляризованных во внешнем электрическом поле напряженностью $E = 100 \text{ V/mm}$. В качестве рабочей жидкости использовали технический бензин [9].

Полученные результаты и их обсуждение

Исследования температурных зависимостей диэлектрической проницаемости кристаллов TlInS_2 и TlGaSe_2 при атмосферном давлении обнаружили наличие аномалий $\epsilon(T)$, температурные положения которых соответствуют известным ФП [5,6]. Наиболее низкотемпературные аномалии $\epsilon(T)$ связаны с сегнетоэлектрическими ФП в этих материалах (рис. 1).

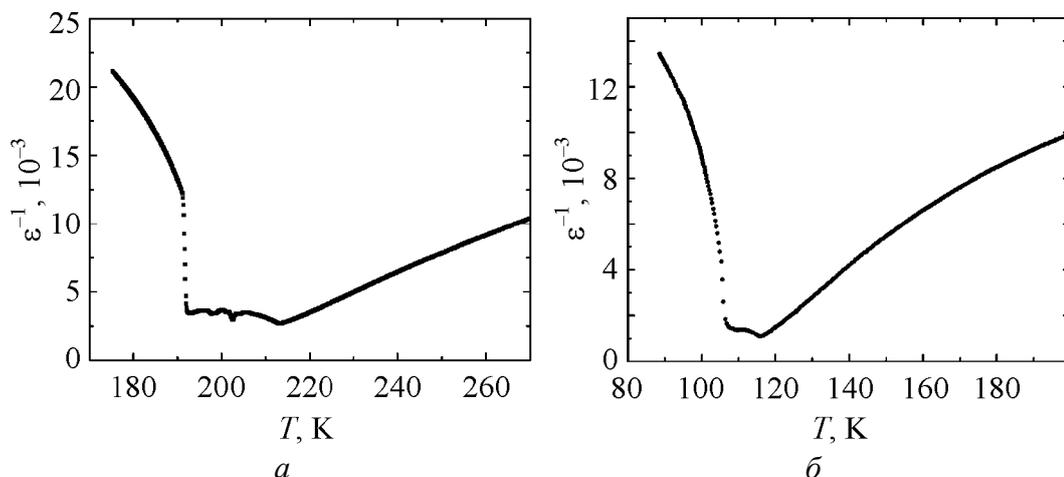


Рис. 1. Температурные зависимости ϵ^{-1} кристаллов TlInS_2 (а) и TlGaSe_2 (б) в режиме охлаждения на частоте 1 МГц при атмосферном давлении

Известно [10,11], что в сегнетоэлектрической фазе изменение величины спонтанной поляризации P_s кристалла с изменением температуры при законченных полярных гранях, которые перпендикулярны полярной оси, ведет к возникновению электрического тока во внешней цепи (пироэлектрический эффект). Величина пироэлектрического тока определяется скоростью изменения спонтанной поляризации с изменением температуры и скоростью изменения температуры в зависимости от времени [10,11]:

$$I_n = S \frac{dP_s}{dT} \frac{dT}{dt}, \quad (1)$$

где S – площадь поперечного сечения кристалла; $\gamma = dP_s/dT$ – пироэлектрический коэффициент; dT/dt – скорость изменения температуры.

На рис. 2 представлены температурные зависимости пироэлектрических коэффициентов $\gamma(T)$ кристаллов TlInS_2 и TlGaSe_2 при различных давлениях. На зависимостях $\gamma(T)$ кристаллов TlInS_2 при атмосферном давлении наблюдается максимум, который отвечает ФП в соизмеримую сегнетоэлектрическую фазу при температуре $T_c = 193$ К, а для TlGaSe_2 – при $T_c = 107$ К. Для TlGaSe_2 обнаружен размытый максимум $\gamma(T)$ в интервале температур 80–100 К, который связан с изменением доменной структуры и дефектами кристаллической решетки.

Для кристаллов TlInS_2 при увеличении давления в области $p_{\text{atm}} \leq p < 580$ МПа происходит линейное смещение максимума $\gamma(T)$ в область высоких температур, что свидетельствует о повышении температуры перехода T_c . В интервале $580 \leq p < 660$ МПа наблюдается уменьшение температуры сегнетоэлектрического ФП, что вероятнее всего связано с поликритическими особенностями.

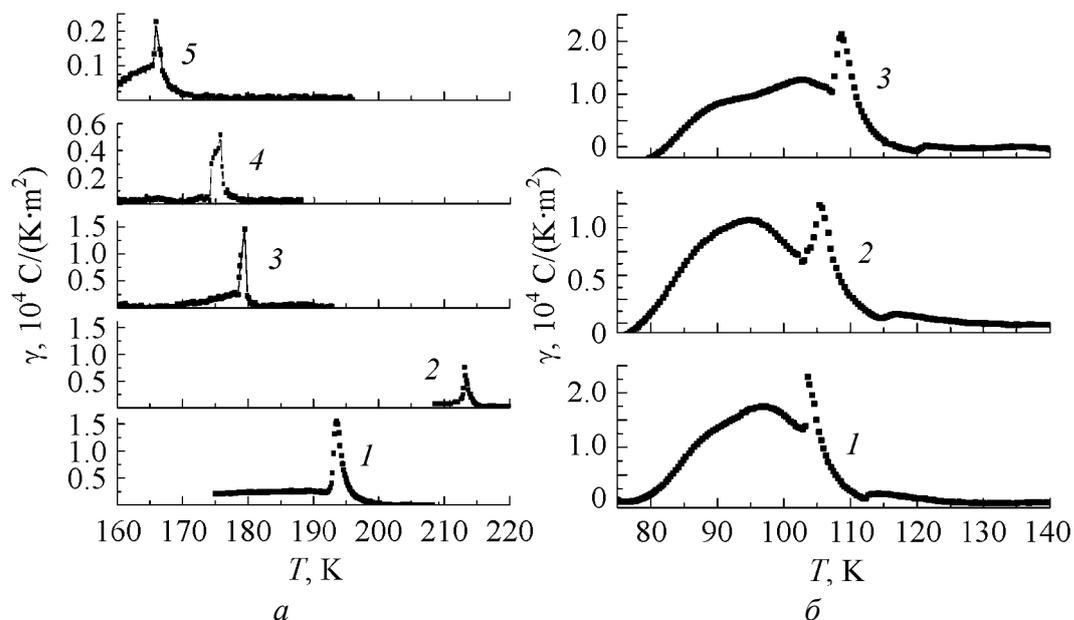


Рис. 2. Температурные зависимости пироэлектрического коэффициента γ для кристаллов TlInS_2 (а) и TlGaSe_2 (б) при атмосферном (кривые 1) и разных гидростатических давлениях, МПа: а: 2 – 500, 3 – 620, 4 – 630, 5 – 660; б: 2 – 300, 3 – 650

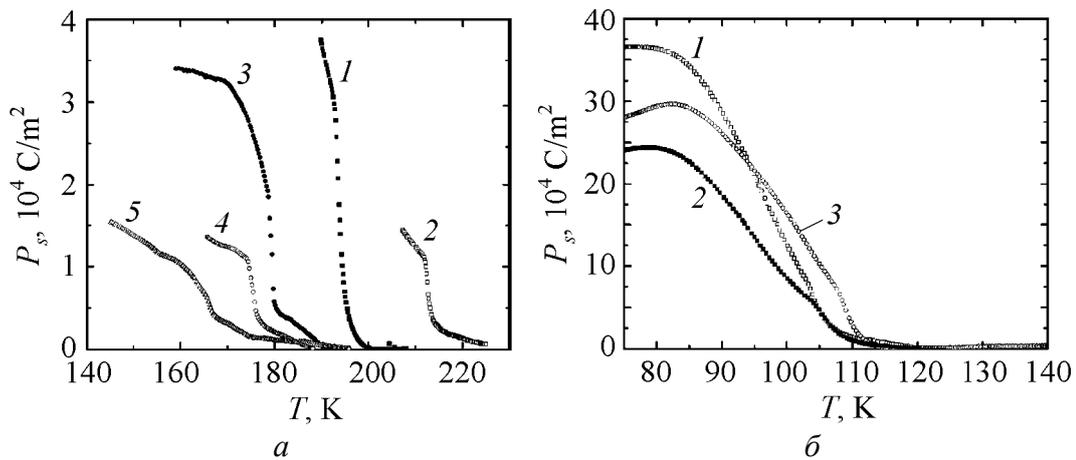


Рис. 3. Температурные зависимости спонтанной поляризации TlInS₂ (а) и TlGaSe₂ (б) при атмосферном (кривые 1) и разных гидростатических давлениях, МПа: 2 – 500, 3 – 620, 4 – 630, 5 – 660; б: 2 – 300, 3 – 650

Для TlGaSe₂ в интервале давлений $p_{\text{atm}} \leq p < 660$ МПа фиксируется линейное смещение максимума $\gamma(T)$ в высокотемпературную область. Определены барические коэффициенты смещения температур сегнетоэлектрических ФП в изученном диапазоне давлений: $\partial T_c / \partial p = 0.9$ К/ГПа для TlGaSe₂, а также $\partial T_c / \partial p = 35$ К/ГПа при $p_{\text{atm}} \leq p < 580$ МПа и $\partial T_c / \partial p \approx -1.5$ К/МПа при $580 \leq p < 660$ МПа для TlInS₂.

На основе экспериментальных исследований зависимостей $\gamma(T)$ кристаллов при различных давлениях были рассчитаны температурные зависимости спонтанной поляризации $P_s(T)$ по соотношению [11]:

$$P_s(T) = \frac{1}{v_T S} \int I_n(T) dT. \quad (2)$$

Следует отметить, что полученные зависимости $P_s(T)$ при различных гидростатических давлениях (рис. 3) согласуются со значениями P_s , которые были определены по петлям диэлектрического гистерезиса.

Выводы

Характер барического поведения температур ФП в слоистых кристаллах TlInS₂ и TlGaSe₂ подтверждает, что сегнетоэлектрические ФП относятся к типу порядок–беспорядок. В изученном диапазоне давлений определены барические коэффициенты смещения температур сегнетоэлектрических ФП. Результаты барических исследований зависимостей пироэлектрического коэффициента $\gamma(T)$ и изменение характера зависимости температуры сегнетоэлектрического ФП при увеличении гидростатического давления свидетельствуют о наличии сложной поликритической области в диапазоне $580 \leq p < 660$ МПа на фазовой p, T -диаграмме слоистых кристаллов TlInS₂.

1. *Е.И. Герзанич, В.М. Фридкин*, Сегнетоэлектрики типа $A^V B^{VI} C^{VII}$, Наука, Москва (1982).
2. *А.Г. Сливка, Е.И. Герзанич, П.П. Гуранич, В.С. Шуста, М.И. Гурзан*, Изв. АН СССР. Сер. физ. **51**, 2162 (1987).
3. *D. Muller, H. Hahn*, Z. Anorg. Allg. Chem. **438**, 258 (1978).
4. *S. Kashida, Y. Kobayashi*, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 1027 (1999).
5. *F.A. Mikailov, E. Basaran, T.G. Mammadov, M.Y. Seyidov, E. Senturk, R. Currat*, Physica **B334**, 13 (2003).
6. *B.R. Gadjiev, M.Yu. Seidov, V.R. Abdurakhmanov*, Phys. Solid State **38**, 3 (1996).
7. *D.F. McMorrow, R.A. Cowley, P.D. Hatton, J. Banys*, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 3699 (1990).
8. *B. Gurbulak, C. Coskun, S. Dogan, A. Ates, Y.K. Yogurtcu*, Turk. J. Phys. **24**, 29 (2000).
9. *P. Guranich, V. Shusta, E. Gerzanich, A. Slivka, I. Kuritsa, O. Gomonnai*, J. Phys.: Conf. Ser. **79**, 012009, 1 (2007).
10. *R.L. Byer, C.B. Rwundy*, Ferroelectrics **3**, № 2–4, 333 (1972).
11. *A. Shaulov, M.I. Bell, W.A. Smith*, J. Appl. Phys. **50**, 4913 (1979).

А.А. Гомоннай, П.П. Гуранич, А.Г. Сливка, М.Ю. Риган, И.Ю. Роман

БАРИЧНА ПОВЕДІНКА ПІРОЕЛЕКТРИЧНОГО КОЕФІЦІЄНТУ У ШАРУВАТИХ КРИСТАЛАХ $TlInS_2$ І $TlGaSe_2$

Вивчено вплив гідростатичного тиску на піроелектричні властивості шаруватих кристалів $TlInS_2$ і $TlGaSe_2$. Характер баричної поведінки температур фазових переходів (ФП) в цих кристалах підтверджує, що сегнетоелектричні переходи відносяться до типу порядок–безлад. Результати баричних досліджень залежностей піроелектричного коефіцієнта $\gamma(T)$ і зміна характеру залежності температури сегнетоелектричного переходу при збільшенні гідростатичного тиску свідчать про наявність складної полікритичної області в діапазоні $580 \leq p \leq 660$ МПа на фазовій p, T -діаграмі шаруватих кристалів $TlInS_2$.

А.А. Gomonnai, P.P. Guranich, A.G. Slivka, M.Yu. Rigan, I.Yu. Roman

PRESSURE BEHAVIOUR OF PYROELECTRIC COEFFICIENT IN $TlInS_2$ AND $TlGaSe_2$ LAYERED CRYSTALS

The effect of hydrostatic pressure on the pyroelectric properties of layered $TlInS_2$ and $TlGaSe_2$ crystals is studied. The character of the pressure behaviour of the phase transition temperatures in the crystals under investigation confirms that the phase transition in these crystals belongs to the order-disorder type. The results of the pressure studies of the pyroelectric coefficient $\gamma(T)$ and the change of the character of dependence of the ferroelectric phase transition at the hydrostatic pressure increase give the evidence for a complex polycritical region in the range $580 \leq p \leq 660$ MPa at the (p, T) phase diagram of the layered $TlInS_2$ crystals.

Fig. 1. Temperature dependences of ε^{-1} of TlInS₂ (*a*) and TlGaSe₂ (*b*) crystals in the cooling mode, measured at the frequency 1 MHz at atmospheric pressure

Fig. 2. Temperature dependences of pyroelectric coefficient γ for TlInS₂ (*a*) and TlGaSe₂ (*b*) crystals at atmospheric (curves 1) and various hydrostatic pressure values, MPa: *a*: 2 – 500, 3 – 620, 4 – 630, 5 – 660; *b*: 2 – 300, 3 – 650

Fig. 3. Temperature dependences of spontaneous polarization in TlInS₂ (*a*) and TlGaSe₂ (*b*) at atmospheric (curves 1) and various hydrostatic pressure values, MPa: *a*: 2 – 500, 3 – 620, 4 – 630, 5 – 660; *b*: 2 – 300, 3 – 650