

LiTaO₃ 单晶的导热性能及其与相变、晶轴方向关系的研究

奚同庚 王本民 倪鹤林 殷之文

(中国科学院上海硅酸盐研究所)

钽酸锂 (LiTaO₃) 单晶是一种具有良好压电、热电和电光性能的重要铁电晶体,对其许多物性已作了广泛研究^[1-6]. 但是,由于实验上的困难,与该晶体应用密切相关的导热性能研究甚少,它在较高温度下和在不同晶轴方向的导温系数(即热扩散率, *Thermal diffusivity*)及其与铁电相变关系的研究,则尚未见报道. 本工作用自行研制的计算机运控的激光热导仪^[7]对此进行了测试和研究,指出 LiTaO₃ 单晶的导热性能明显各向异性;当铁电相变时,发现其导温系数曲线有突变点,指出该点即为居里温度,这与电测法结果相吻合;最后由导温系数数据计算出了 LiTaO₃ 在不同温度的声子平均自由程.

LiTaO₃ 单晶试样由本所晶体生长小组提供,系用高纯度 Li₂O₃ 和 Ta₂O₅ 为原料,应用提拉法生长而成,其 Li₂O 和 Ta₂O₅ 的克分子比为 0.95. 试样经 *z* 轴方向极化后,分别按 *x*, *y* 和 *z* 轴的垂直方向进行定向切割,再加工成直径为 10mm, 厚为 1mm 的圆试片. 所用的计算机运控的激光热导仪系导热系数 (λ) 的非稳态测试方法和装置,其物理模型是,在一个四周绝热的厚度为 *L* 的薄圆片试样正面,垂直辐照一个激光脉冲,在一维热流条件下,试样内任意点 *x* 在任何时间 τ 的温度分布 $T(x, \tau)$ 为^[8]

$$T(x, \tau) = \frac{1}{L} \int_0^L T(x, 0) dx + \frac{2}{L} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left(\frac{-n^2 \pi^2 \alpha \tau}{L^2}\right) \cos \frac{n \pi x}{L} \int_0^L T(x, 0) \cdot \cos \frac{n \pi x}{L} dx. \quad (1)$$

若取试样背面 ($x = L$) 这一特定条件,在代入相应的边界条件并定义两个无量纲参数后,由(1)式可推导出

$$\alpha = 0.138 L^2 / \tau_{\frac{1}{2}}. \quad (2)$$

在实验中测出试样厚度 *L*, 以及试样背面温度达到最大温升的 $\frac{1}{2}$ 所需的时间 $\tau_{\frac{1}{2}}$, 即可计算出导温系数 α . α 是表征试样内温度变动速度的特性的, 是一个同时反映 λ , c_p (比热) 和 ρ (密度) 大小和变化的综合性物理量, 即

$$\alpha = \lambda / c_p \cdot \rho. \quad (3)$$

为防止激光热导仪在测试时所射出的激光 (1.06 μ) 透过试样, 在试样表面均加涂了特制的防透阻挡膜.

图 1 为 LiTaO₃ 单晶试样不同晶轴方向的 α 随温度变化的实测曲线, 与曲线对应的数据列于表 1.

本文 1980 年 11 月 12 日收到.

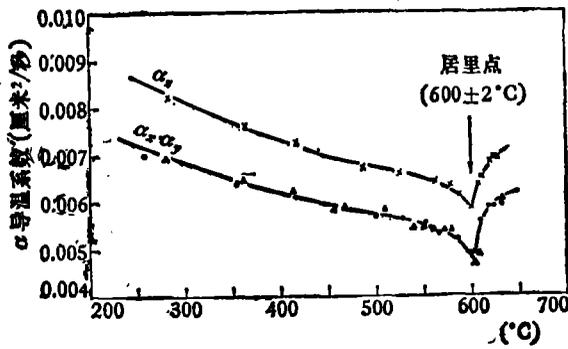


图1 LiTaO₃ 单晶各晶轴方向的导温系数曲线
(×—α_x, 与x轴平行; ●—α_z,
△—α_y, 均与x轴垂直)

图1和表1的实验结果表明:

1. LiTaO₃ 单晶的x轴与y轴方向具有相近的导温系数, 但都比z轴方向明显偏低. 因 $\lambda = \alpha \cdot c_p \cdot \rho$, 同一晶体试样不同晶轴方向α的差别, 实际上就是导热系数λ差别的反映.

导温系数值由导热的载体——声子的平均自由程 \bar{l} 以及声子的运动速度 V (它近似等于试样中的等效声速, 即 $V = \sqrt{\frac{E}{\rho}}$)

决定, 并有

$$\alpha = V \cdot \bar{l} / 3 = \sqrt{\frac{E}{\rho}} \cdot \bar{l} / 3. \quad (4)$$

表1 LiTaO₃ 单晶x轴与z轴方向的导温系数

温度(°C)	250	300	400	500	600±2 (居里温度)	630
α _x (厘米 ² /秒)	0.0072	0.0068	0.0062	0.0057	0.0047	0.0060
α _z	0.0086	0.0081	0.0073	0.0067	0.0059	0.0070

据 Smith 和 Welsh^[5] 测定, z轴方向极化后的 LiTaO₃ 单晶在x轴和z轴方向的声速分别为 $V_x = 4.22 \times 10^5$ 厘米/秒和 $V_z = 6.16 \times 10^5$ 厘米/秒. 以 V_x 和 V_z 以及 α_x 和 α_z 值分别代入(4)式, 即可求出x轴和z轴方向的声子平均自由程 \bar{l}_x 和 \bar{l}_z (见表2).

表2 LiTaO₃ 单晶x轴和z轴方向在不同温度下的声子平均自由程

温度(°C)	250	300	400	500	600±2 (居里温度)	630
\bar{l}_x (Å)	5.12	4.83	4.41	4.05	3.34	4.27
\bar{l}_z	4.19	3.94	3.56	3.26	2.87	3.40

显然, LiTaO₃ 导热性能的各向异性是由于x轴和z轴方向具有不同的V和 \bar{l} 值引起的. $\bar{l}_z < \bar{l}_x$ 表明声子在z轴方向的碰撞机率或散射要比x轴方向大.

2. LiTaO₃ 单晶的导温系数在 $600 \pm 2^\circ\text{C}$ 以下随温度上升而减小, 在 $600 \pm 2^\circ\text{C}$ 以上则随温度上升而增大, 在 $600 \pm 2^\circ\text{C}$ 导温系数出现突变点. 该点对应的温度与 Fujino 等^[9] 以及本所晶体测试小组用电测法测定的居里温度吻合. 超过居里温度, 极化的 LiTaO₃ 单晶由铁电相转变为顺电相, 点群也相应由没有对称中心的 $C_{3i}(3m)$ 转变为有对称中心的 $D_{3d}(\bar{3}m)$, 对称性的增加以及电畴的消失引起导温系数的增大, 在导温系数曲线上对应于居里温度则出现突变. 这表明, 导温系数的测试可作为研究物质铁电相变和确定居里温度的一种新方法.

3. 导温系数在居里温度的突变, 实际上是在该温度比热和导热系数出现突变的综合反映. 在居里温度, 比热和导热系数均出现突变已为实验所证实^[10,11]. 至于 LiTaO₃ 单晶导温系数

在居里温度产生的突变中,比热和导热系数所作贡献的权重,则尚待进一步探讨和研究。

4. 在居里温度以上, LiTaO_3 单晶为顺电相, z 轴与 x 轴方向 α 值的差值平均为 13.5—15%, 显然这完全是由晶体结构的各向异性引起的。在居里温度以下, LiTaO_3 单晶为铁电相, z 轴与 x 轴方向的 α 值的差值平均为 17.5—19.4%。这表明, LiTaO_3 单晶铁电相导热性能的各向异性程度比顺电相更为明显。

参 考 文 献

- [1] Ballman, A. A., *J. Am. Ceram. Soc.*, **48** (1965), 112.
- [2] Lenzo, P. V. et al., *Appl. Phys. Letters*, **8** (1966), 81.
- [3] Kim, Y. S. & Smith, R. T., *J. Appl. Phys.*, **40** (1969), 4637.
- [4] Miller, R. C. & Savage, A., *Appl. Phys. Letters*, **9** (1966), 169.
- [5] Smith, R. T. & Welsh, F. S., *J. Appl. Phys.*, **42** (1971), 2219.
- [6] Yamada, T. et al., *J. Appl. Phys. Japan*, **8** (1969), 1127.
- [7] 奚同庚、周新宇、李宗杰、倪鹤林、顾宗义, *工程热物理学报*, **2**(1980), 147.
- [8] Parker, W. J. et al., *J. Appl. Phys.*, **32** (1961), 1679.
- [9] Fujino, Y. et al., *Ferroelectrics*, **2** (1971), 113.
- [10] Glass, A. M., *Phys. Rev.*, **172** (1968), 564.
- [11] Mante, A. J. H. & Volger, J., *Phys. Letters*, **24A** (1967), 139.