

# 钽铌酸锂晶体的布里渊散射研究

史金荣 秦自楷 钟维烈 张沛霖

(山东大学物理系)

赵明洲 郑浩平 孟宪林

(同济大学物理系)

(山东大学晶体所)

## 提 要

研究了钽铌酸锂( $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$ ,  $x=0.0013, 0.0052, 0.015, 0.06$ )晶体在室温的布里渊散射。给出了它们的弹性刚度常数和压电应力常数。测量了一种组份晶体的布里渊散射频移在 50 K ~ 580 K 范围内的温度特性。发现某些声子散射谱中除三个正常峰外还存在一个异常峰。

关键词: 布里渊散射; 钽铌酸锂晶体。

## 一、引 言

钽铌酸锂( $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$ )单晶是钽酸锂( $\text{LiTaO}_3$ )和铌酸锂( $\text{LiNbO}_3$ )的固溶体。由于铌酸锂和钽酸锂晶体具有大的自发极化强度, 大的非线性光学效应和光致折射效应, 使钽铌酸锂的研究有着重要的实际意义。在  $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  的研究方面, 已发表了不少的报告<sup>[1~7]</sup>, 这些报告大部分是讨论晶体生长、晶格常数、折射率、介电谱等基本性质。布里渊散射的研究尚未见报道。本工作研究了  $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  晶体的布里渊散射, 给出了四种不同组份晶体的弹性刚度常数和压电应力常数, 测量了一种晶体的布里渊散射频移的温度特性, 发现某些声子散射谱中除三个正常峰外还存在一个异常峰。

## 二、实 验

用 Czochralski 法生长了  $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  ( $0 < x < 1$ ) 晶体。虽然生长纯  $\text{LiNbO}_3$  和  $\text{LiTaO}_3$  的技术已较完善, 但对于  $0 < x < 1$  的组份, 晶体生长比较困难, 所得晶体较小且呈黄褐色。对各种组份的晶体, 都在高温沿  $O$  轴加电场以实现单畴化。晶体经切割、研磨、定向、抛光等过程加工成能产生  $\langle 100 \rangle$ 、 $\langle 010 \rangle$ 、 $\langle 001 \rangle$ 、 $\langle 011 \rangle$ 、 $\langle 0\bar{1}\bar{1} \rangle$  等高对称方向声子散射的四棱柱和八棱柱样品。样品的尺寸为每边长约 5 mm、表面定向精度为  $6'$ 。用三通布里渊散射仪测出了以上所述方向的声子散射。散射在  $V_V$  配置或  $V_V$  和  $V_H$  配置两种情况下进行, 两者结果的比较就确定布里渊散射峰的配置, 从而确定散射声子波矢。在 50 K ~ 580 K 范围内测量了  $\text{LiTa}_{0.0013}\text{Nb}_{0.9987}\text{O}_3$  晶体  $\langle 001 \rangle$  方向声子散射频移的温度特性。

收稿日期: 1987年7月8日; 收到修改稿日期: 1987年10月12日

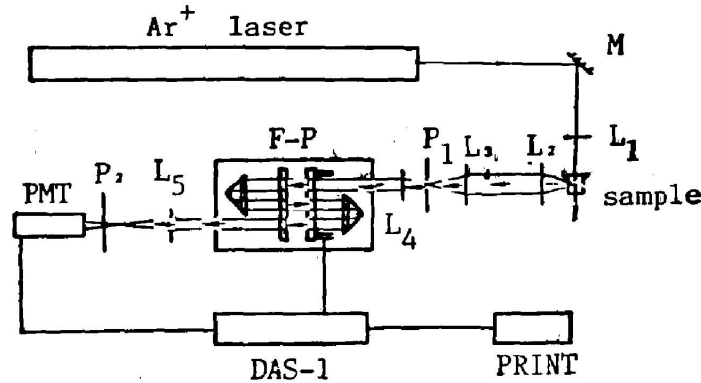


Fig. 1 Schematic diagram of Brillouin scattering experiment

布里渊散射实验装置如图1所示。从激光器输出的光经反射镜  $M$ 、聚焦透镜  $L_1$ 、收集透镜  $L_2$ ，构成  $90^\circ$  散射光路系统。散射光经过  $L_3$ 、 $L_4$  和射针孔  $P_1$  组成的空间滤波器滤掉杂散光以后，进入三通平面 F-P 干涉仪，通过频率扫描，出射光由光电倍增管接收、预放大、甄别整形以后由数据获得和稳定系统计数，并存入某一记忆道中，同时在荧光屏上显示出来。所存入的道数是由这些光子通过 F-P 时 F-P 的扫描位置确定的。一个布里渊散射谱由许多次扫描叠加而成。

实验系统中  $\text{Ar}^+$  激光器输出光波长为  $5145 \text{ \AA}$ ，功率的波动小于千分之一。三通平面 F-P 干涉仪由压电晶体驱动扫描。数据记录和稳定系统用多道分析仪，该机具有漂移稳定和锐度最佳功能。实验中光电倍增管利用半导体来冷却。

### 三、结果与讨论

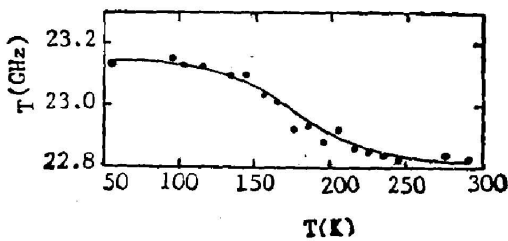
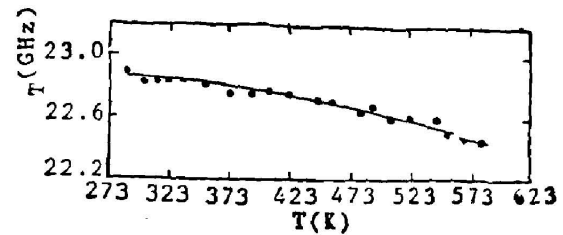
利用测得的布里渊频移和声子波矢以及晶体的其它参数，如折射率、密度和受夹介电常数，计算得出各组份晶体的弹性刚度常数和压电应力常数。其结果列于表1中， $\text{LiNbO}_3$  和  $\text{LiTaO}_3$  的结果<sup>[5]</sup>也列于表中。因这些  $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  晶体的组份都比较接近于  $\text{LiNbO}_3$ ，从表1中看出所得弹性常数与  $\text{LiNbO}_3$  的结果很接近，且弹性常数随组份的变化趋势与从  $\text{LiNbO}_3$  到  $\text{LiTaO}_3$  时弹性常数的变化方向相同，这说明本文的结果是正确的。所得弹性常数略小于(约5%)  $\text{LiNbO}_3$  的结果，这是由于测量方法不同引起的。文献[8]中  $\text{LiNbO}_3$  晶体的结果是用超声法测量的，测试频率低(约  $10^7 \text{ Hz}$ )，本文采用布里渊散射法测量，测试频率较高(约  $10^{10} \text{ Hz}$ )。从表1中还可以看出，在误差范围内，两种组份  $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  晶体的压电常数与  $\text{LiNbO}_3$  的结果相一致。表1所示弹性常数的相对误差约为1%，压电常数的相对误差约为6%。

对  $\text{LiTa}_{0.0013}\text{Nb}_{0.9987}\text{O}_3$  晶体，我们测量了  $q$  沿  $\langle 001 \rangle$  方向声子散射的温度特性，温度范围为低温  $50 \text{ K} \sim 290 \text{ K}$ ，高温  $290 \text{ K} \sim 580 \text{ K}$ 。布里渊散射的横模频移随温度的变化如图2、3所示。从图中看出，频移随着温度的上升单调下降，这与该温度范围晶体的结构相一致。在  $50 \text{ K} \sim 580 \text{ K}$  范围内布里渊频移单调变化，表明在此温度范围内很可能没有相变。

根据固体中声学理论<sup>[9]</sup>，晶体中沿某一方向传播的声波有三个不同的偏振态，对应三个

Table 1 Elastic stiffness constants and piezoelectric stress constants of  $\text{LiTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  crystals

Parameter	Crystal composition $x$					
	0	0.0013	0.0052	0.015	0.06	1
$C_{11}^E$	2.03	1.95	1.96	1.96	1.96	2.33
$C_{12}^E$	0.53	0.524	0.525			0.47
$C_{13}^E$	0.75	0.749	0.783			0.80
$C_{14}^E$	0.09	0.072	0.077			-0.11
$C_{23}^E$	2.45	2.46	2.48			2.76
$C_{23}^D$	2.52	2.51	2.49	2.51	2.52	2.94
$C_{44}^E$	0.60	0.593	0.587	0.593	0.606	0.94
$C_{66}^E$	0.75	0.714	0.718			0.96
$e_{15}$	3.7	3.88	4.02			2.6
$e_{22}$	2.5	2.67	2.72			1.6
$e_{33}$	1.3	1.06	0.52			1.9
$e_{31}$	0.2	0.33	0.35			0.0

Fig. 2 Low temperature variation of the frequency shift of transverse mode in  $\langle 001 \rangle$  direction for  $x=0.0013$ Fig. 3 High temperature variation of the frequency shift of transverse mode in  $\langle 001 \rangle$  direction for  $x=0.0013$ Table 2 Brillouin frequency shifts of  $\text{LiTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  crystals

$q$ direction	$\nu_L$ (GHz)	$\nu_{T_1}$ (GHz)	$\nu_{T_2}$ (GHz)	$\nu_{\text{unknown}}$ (GHz)
$x=0.0013, \langle 010 \rangle$	43.4	28.4	24.9	22.7
$x=0.0052, \langle 100 \rangle$	41.6	25.3	22.8	46.8
$x=0.015, \langle 100 \rangle$	41.5	25.4	22.8	46.6

相速度,它们在布里渊散射中导致三个布里渊频移(不考虑简并情况)。但我们在  $x=0.0013$  组份  $q$  沿  $\langle 010 \rangle$  方向,  $x=0.0052$ 、 $0.015$  组份  $q$  沿  $\langle 100 \rangle$  方向的散射谱中观测到四个布里渊峰,其中三个为正常峰,一个为异常峰。异常峰与正常峰一样,有对称的斯托克斯线和反斯托克斯线,其强度略小于正常峰强度。上述三个方向的布里渊散射峰的频移列于表 2 中。图 4、5、6、7 显示了这些方向的布里渊散射谱。图 4、5 分别是  $x=0.0013$  组份  $\langle 010 \rangle$  方向在

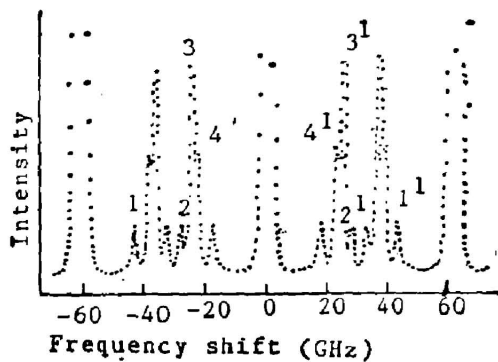


Fig. 4 The scattering spectrum of  $\langle 010 \rangle$  phonon in configuration  $V_V$  and  $V_H$  for  $x=0.0013$

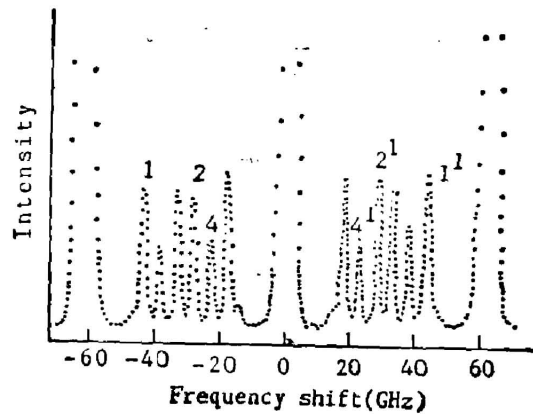


Fig. 5 The scattering spectrum of  $\langle 010 \rangle$  phonon in configuration  $V_V$  for  $x=0.0013$

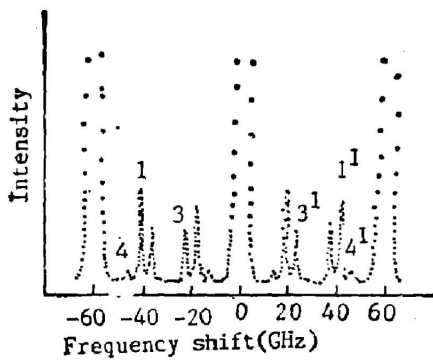


Fig. 6 The scattering spectrum of  $\langle 100 \rangle$  phonon in configuration  $V_V$  for  $x=0.0052$

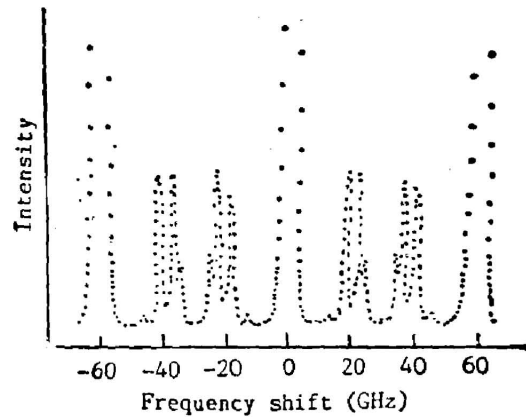


Fig. 7 The scattering spectrum of  $\langle 100 \rangle$  phonon in configuration  $V_V$  and  $V_H$  for  $x=0.015$

$V_V$  和  $V_H$ 、 $V_V$  配置下的散射谱。图中自由光谱区 FSR 为 61.4 GHz, 峰 1 和 1', 峰 2 和 2', 峰 3 和 3', 峰 4 和 4' 依次为纵模、准横模、纯横模和异常峰的斯托克斯线和反斯托克斯线。准纵模频移大于  $\frac{1}{2}$  FSR, 发生交错。图 4 中异常峰附加在峰值最大的纯横模峰上, 图 5 中纯横模峰消失, 显示出异常峰自身的峰。图 6、7 分别是  $x=0.0052$  组份  $\langle 100 \rangle$  方向  $V_V$  配置和  $x=0.015$  组份  $\langle 100 \rangle$  方向  $V_V$  和  $V_H$  配置散射谱。图中自由光谱区 FSR 为 60.1 GHz, 纯纵模和异常模频移大于二分之一 FSR, 发生交错。峰 1 和 1', 峰 2 和 2', 峰 3 和 3', 峰 4 和 4' 依次为纯纵模、纯横模 1、纯横模 2 和异常模的斯托克斯线和反斯托克斯线。图 6 中纯横模 1 的峰不出现, 图 7 中出现全部三个正常峰和一个异常峰。本文实验中异常峰的重复性很好, 几次实验的结果在误差范围内一致, 因而异常峰是确实存在的。实验所用样品的定向精度较高, 样品抛光后每个面的定向精度为  $6'$ , 因此可以排除样品加工的原因。作者认为异常峰是晶体某种缺陷所致, 其真正产生原因和性质有待于进一步的研究。

## 参 考 文 献

- [1] K. Sugii, H. Koizumi *et al.*; *J. Cryst. Growth*, 1976, **33**, No. 1 (Apr), 199~202.  
[2] T. Fukuda, H. Hirano; *J. Cryst. Growth*, 1976, **35**, No. 2 (Sep), 127~132.  
[3] F. Shimura, Y. Fujino; *J. Cryst. Growth*, 1977, **38**, No. 3 (Jun), 293~302.  
[4] F. Shimura; *J. Cryst. Growth*, 1977, **42**, No. 1 (Dec), 579~582.  
[5] G. E. Peterson, P. M. Bridgman *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1967, **46**, No. 10 (May), 4009~4014.  
[6] G. E. Peterson, J. R. Carruthers *et al.*; *J. Chem. Phys.*, 1970, **53**, No. 6 (Sep), 2436~2442.  
[7] 钟维烈, 张沛霖等; 《无机材料学报》, 1987, **2**, No. 1 (Mar), 17~21.  
[8] A. W. Warner, M. Onoe *et al.*; *J. Acoust. Soc. Am.*, 1967, **42**, No. 6 (Dec), 1223~1231.  
[9] B. A 奥尔特著; 《固体中的声场与波》, (科学出版社, 北京, 1982), 158~160, 200~202, 292~294.

## Brillouin scattering study of lithium niobate-tantalate crystals

SHI JINRONG, QIN ZIKAI, ZHONG WELIE, ZHANG PEILIN

*(Department of Physics, Shandong University, Jinan)*

ZHAO MIZHOU, ZHEN HAOPING

*(Department of Physics, Tongji University Shanghai)*

MENG XIANLIN

*(Institute of Crystal Materials, Shandong University, Jinan)*

(Received 8 July 1987; revised 12 October 1987)

## Abstract

The Brillouin scattering of lithium niobate-tantalate crystals ( $\text{LiTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$ ,  $x = 0.0013, 0.0052, 0.015, 0.06$ ) has been investigated at room temperature. The elastic stiffness constants and piezoelectric stress constants of these crystals have been obtained. The temperature dependence of the Brillouin frequency shift for one of these crystals in the range from 50 K to 580 K has been measured. An abnormal peak has been observed in the Brillouin spectra for some phonons in addition to the three normal peaks.

**Key words:** Brillouin scattering; lithium Niobate-Tantalate crystals.