

ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ИНТЕНСИВНОСТИ КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА НА ПОЛЯРИТОНАХ ВБЛИЗИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА КРИСТАЛЛА  $\text{NH}_4\text{Cl}$

Г. Ф. Добрянский, О. А. Дюльнищyna, Ю. Н. Поляванов

УДК 537.226

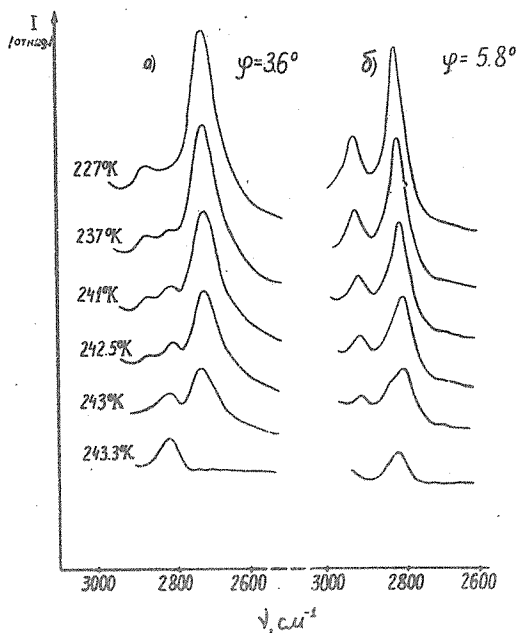
Из измерений температурного поведения интегральных интенсивностей рассеяния света на поляритонах при различных углах рассеяния определен критический показатель и температурная зависимость параметра дальнего порядка.

Взаимодействие дипольно-активных оптических фононов с электромагнитным полем в области малых величин волновых векторов приводит к образованию смешанных фонон-фотонных возбуждений — поляритонов, которые могут наблюдаться с помощью комбинационного рассеяния (КР) света под малыми углами в кристаллах без центра симметрии (см., например, /1/). При фазовом переходе типа порядок-беспорядок в кристалле появляется центр симметрии и нелинейная восприимчивость, определяющая интенсивность КР света на поляритонах, обращается в нуль. В связи с этим спектроскопия КР света на поляритонах представляется интересной для изучения переходов из нецентросимметричной фазы в центросимметричную.

Кристалл хлористого аммония ( $\text{NH}_4\text{Cl}$ ) претерпевает фазовый переход типа порядок-беспорядок ( $m3n \rightarrow 43m$ ) при температуре  $T_c \approx 243$  К. В высокотемпературной  $\beta$ -фазе ионы  $\text{NH}_4^+$  равномерно распределены по отношению к двум эквивалентным направлениям в кубической решетке  $\text{Cl}^-$ . Переход в низкотемпературную  $\delta$ -фазу связан с макроскопическим упорядочением ионов  $\text{NH}_4^+$ , что приводит к снятию центра симметрии.

Спектры КР света на поляритонах возбуждались несфокусирован-

ным пучком излучения аргонового лазера с длиной волны 514,5 нм при мощности 0,5 Вт. Частотно-угловые спектры регистрировались на спектрографе ИСП-5Г с помощью оптического многоканального анализатора OSA-500 на установке, описанной в /2/. Монокристаллы  $\text{NH}_4\text{Cl}$  выращивались из насыщенного раствора медленным испарением и вырезались таким образом, что излучение лазера распространялось вдоль направления (110) и было поляризовано вдоль направления (110). Рассеянный свет наблюдался под малыми углами  $\varphi$  по отношению к волновому вектору возбуждающего излучения и был поляризован вдоль оси (001). Температура образца измерялась с помощью бесконтактного диода, приклеенного к образцу; точность



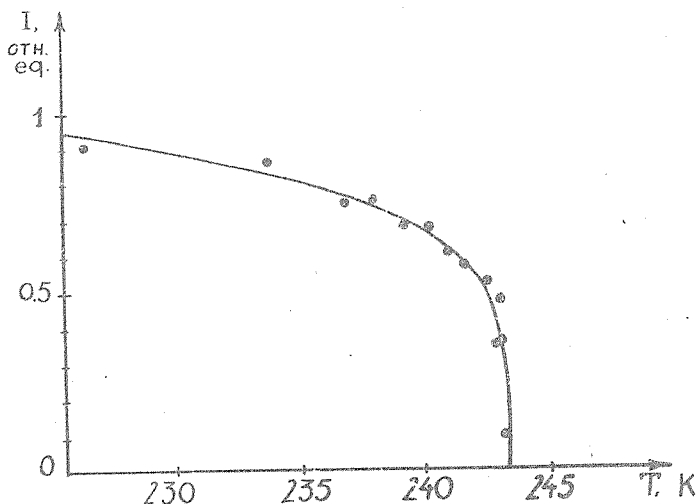
Р и с. 1. Фрагменты спектров комбинационного рассеяния света на поляритонах, полученные при различных температурах и при углах рассеяния  $\varphi = 3,6^\circ$  (а) и  $5,8^\circ$  (б). Угол отсчитывается вне кристалла

измерения составляла  $\pm 0,05$  К. В процессе измерений температура образца поддерживалась постоянной с точностью  $\pm 0,1$  К.

На рис. 1 представлены фрагменты спектров КР света на полиритонах при углах рассеяния  $\varphi \pm 3,6^\circ$  (а) и  $5,8^\circ$  (б) в области стоксовых сдвигов  $\nu = 2600-3000 \text{ см}^{-1}$ , полученные при различных температурах образца <sup>ж</sup>). Из рисунка видно, что при повышении температуры кристалла по мере приближения к  $T_c = 243,25$  К происходит уменьшение интенсивности и уширение линий КР света на полиритонах, которые исчезают при  $T = 243,3$  К. В спектрах рассеяния при этом остается лишь полоса, соответствующая зоне двухчастичных возбуждений. Поскольку рассеяние света на двухчастичных возбуждениях практически не зависит от температуры в интервале 220-243 К /4/, то наличие такого рассеяния не влияет на измерения температурной зависимости интегральной интенсивности КР света на полиритонах. Результаты измерений для низкочастотной компоненты поляритонного рассеяния при  $\varphi = 3,6^\circ$  представлены точками на рис. 2. Температурное поведение интегральных интенсивностей других компонент КР света на полиритонах аналогично показанному на рис. 2, которое хорошо описывается зависимостью вида  $I \sim [(T_c - T)/T_c]^{2\beta}$ . Результаты обработки полученных экспериментальных данных по методу наименьших квадратов дали значения температуры перехода  $T_c = 243,25 \pm 0,1$  К и критического показателя  $\beta = 0,10 \pm 0,02$ . Поскольку интенсивность рассеяния должна быть пропорциональна квадрату параметра порядка  $\eta/5$ , то его температурная зависимость описывается функцией  $[(T_c - T)/T_c]^\beta$  с приведенными выше значениями  $T_c$  и  $\beta$ .

Аналогичные зависимости наблюдались ранее при изучении температурного поведения интенсивностей второй оптической гармоники ( $\beta = 0,134$ ) /6/ и КР света на продольных ( $\nu_{LO} = 278 \text{ см}^{-1}$ ) и поперечных ( $\nu_{TO} = 184 \text{ см}^{-1}$ ) колебаниях решетки ( $\beta = 0,127 \pm 0,007$ ) /7/. Следует отметить, что при измерении интегральных интенсивностей КР света на оптических фононах требуется специальная поляризационно-модуляционная методика для выделения рассеяния на неупругих колебаниях, интенсивность которого значительно возрастает по мере приближения температуры образца

<sup>ж</sup>) Поляритонные спектры кристалла  $\text{NH}_4\text{Cl}$  при  $T = 80$  К подробно описаны в работах /3,4/.



Р и с. 2. Температурная зависимость интегральной интенсивности  $I$  комбинационного рассеяния света на поляритонах. Кривая — зависимость  $[(T_c - T)/T_c]^{2\beta}$ , проведенная через экспериментальные точки путем подбора параметров  $T_c$  и  $\beta$  по методу наименьших квадратов

к фазовому переходу /7/. Однако при КР света на поляритонах всегда можно подобрать угол рассеяния таким, что частоты поляритонов будут лежать вдали от области частот неупругих колебаний.

В заключение отметим, что интенсивность КР света на поляритонах определяется совокупностью тензоров, описывающих КР света на оптических фононах, генерацию второй гармоники и линейный электрооптический эффект /1/. Специальный выбор условий эксперимента в принципе позволяет получать информацию об этих тензорах как в совокупности, так и в отдельности. Сравнение приведенных выше результатов свидетельствует об одинаковых температурных зависимостях интенсивностей КР света на оптических фононах и поляритонах и второй оптической гармоники, однако полученное нами значение  $\beta$  несколько ниже (хотя и на верхней

границе предела точности эксперимента) по сравнению с результатами работ /6,7/. В наших экспериментах интенсивность рассеяния определяется в основном сечением КР на внутримолекулярных колебаниях и тензором, ответственным за генерацию второй гармоники. Возможно, что в данном случае проявляются также и эффекты аягармонизма, обусловленные близостью частот поляритонов с двухчастичными возбуждениями, однако для решения этого вопроса требуется дальнейшее развитие теории.

Поступила в редакцию  
23 декабря 1982 г.

#### Л и т е р а т у р а

1. Ю. Н. Поливанов, УФН, 126, 185 (1978).
2. О. А. Дольнищина, Ю. Н. Поливанов, К. А. Прохоров, Квантовая электроника, 8, 2268 (1981).
3. Г. Г. Митин, В. С. Горелик, Л. А. Кулевский, Ю. Н. Поливанов, ЖЭТФ, 68, 1757 (1975).
4. В. С. Горелик, Б. С. Умаров, Введение в спектроскопию комбинационного рассеяния света в кристаллах. Изд-во "Дониш", Душанбе, 1982 г.
5. H. Vogt, Appl. Phys., 5, 85 (1974).
6. S. Steinbrener, I. R. Jahn, J. Phys. C: Solid State Phys., 11, 1337 (1978).
7. М. В. Белоусов, Б. Е. Вольф, ФТТ, 21, 1091 (1979).