

О ВОЗРАСТАНИИ ИНТЕНСИВНОСТИ НЕУПРУТОГО ИЗОЧАСТОТНОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА ВБЛИЗИ ТОЧКИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В КРИСТАЛЛЕ ТАНТАЛАТА ЛИТИЯ

В. С. Горелик, А. П. Григорьев, М. М. Сушинский

УДК 535.361

В кристалле танталата лития обнаружено сильное возрастание интенсивности рассеяния света на малых частотах ( $2 - 16 \text{ см}^{-1}$ ) вблизи точки фазового перехода. Установлено согласие экспериментальных результатов с простейшим вариантом теории.

Из общих формул, полученных в феноменологической теории /1,2/ рассеяния света в кристаллах, претерпевающих фазовый переход, следует, что спектральная интенсивность рассеянного света для частот, близких к частоте возбуждающего излучения, возрастает вблизи точки фазового перехода.

В теоретических /1,2/ и в последующих экспериментальных работах /3-5/ анализировался характер температурной зависимости центрального пика, соответствующего несмещенной частоте рассеяния. В обсуждаемых экспериментальных работах сообщается о возрастании интенсивности центрального пика вблизи точки фазового перехода. При этом, однако, весьма трудно разделить динамический и статический вклады в упругое рассеяние вследствие увеличения числа и размеров дефектов в кристаллах вблизи точки перехода.

В настоящей работе поставлена задача исследовать температурную зависимость спектральной интенсивности рассеяния на частотах, отличающихся от частоты центрального пика. При этом изучались изочастотные зависимости интенсивности рассеянного света согласно методике /6/.

Простейший вариант теории, в котором учитывается одна мягкая

мода, дает для спектральной интенсивности рассеянного света  $J(\Omega, T)$  в низкотемпературной фазе следующее выражение [1, 2]:

$$J(\Omega, T) = \frac{I(T)\Gamma\Omega_0^2}{\pi[(\Omega_0^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2]} \quad (1)$$

Здесь  $I(T)$  — интегральная интенсивность,  $\Omega_0$  и  $\Gamma$  — частота и коэффициент затухания мягкой моды.

Вместо (1) при анализе изочастотных зависимостей удобно перейти к следующему соотношению, справедливому вдали от трикритической точки:

$$i(\Omega, X) = \frac{2A_0 X \Gamma}{(2A_0 X - \Omega^2)^2 + \Gamma^2 \Omega^2} \quad (2)$$

где  $i(\Omega, X)$  — так называемая приведенная спектральная интенсивность, пропорциональная  $J(\Omega, T)/T$ ,  $X = \theta - T$ ,  $\theta$  — температура перехода,  $A_0$  — соответствующий параметр мягкой моды [1].

В работе [6] приводятся общие выражения для координат максимума функций  $i(\Omega, X)$  при фиксированных  $\Omega$ . В области низких частот ( $\Omega \ll \Gamma$ ) эти выражения приобретают вид:

$$i_0 = \Gamma/[2\Omega(\Gamma - \Omega)] \approx 1/2\Omega, \quad (3)$$

$$X_0 = \Gamma\Omega/2A_0. \quad (4)$$

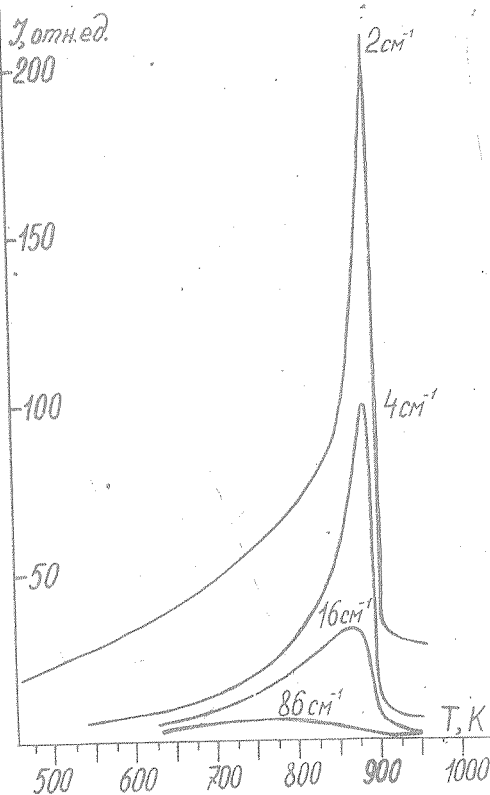
Кроме того, удобно ввести температурную ширину изочастотных кривых  $\eta = |X_1 - X_2|$ , где  $X_1$  и  $X_2$  — корни уравнения  $i(\Omega, X) = i_0/2$ . Как легко показать, используя (2), функция  $\eta(\Omega)$  имеет вид:

$$\eta(\Omega) = (\Omega/A_0)\sqrt{3\Gamma^2 - 4\Omega(\sqrt{\Omega^2 + \Gamma^2} - \Omega)}. \quad (5)$$

Соответственно, в области низких частот

$$\eta(\Omega) = (\Omega/A_0)\sqrt{3\Gamma^2 - 4\Gamma\Omega}. \quad (6)$$

Нами были исследованы изочастотные зависимости для кристалла танталата лития при значениях частот  $\Omega = 2, 3, 4, 6, 10, 16, 86 \text{ см}^{-1}$ . Возбуждение комбинационного рассеяния (КР) проводилось с помощью лазера на парах меди (длина волны  $5105 \text{ \AA}$ ) по известной методике [7]. Использовалась геометрия рассеяния  $X(ZZ)Y$ , т.е. геометрия, соответствующая возбуждению полностью симметричных колебаний решетки, ответственных за фазовый переход. Спектральная ширина щели монохроматора составляла  $0,7 \text{ см}^{-1}$ .



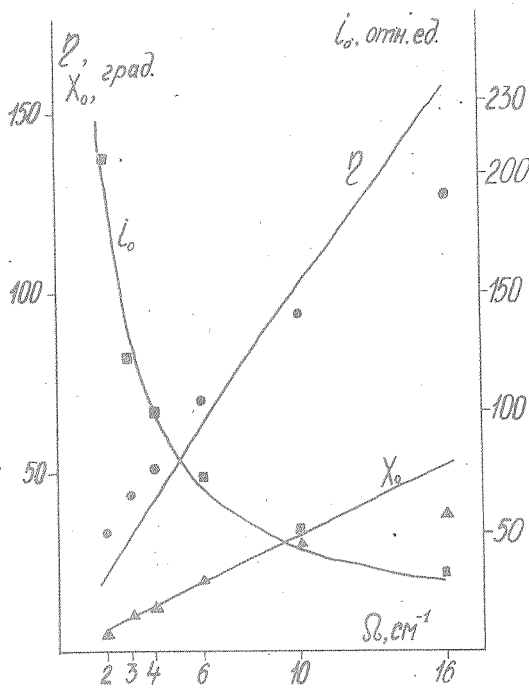
Р и с. I. Температурные зависимости спектральной интенсивности в танталате лития при  $\Omega = 2, 4, 16, 86 \text{ см}^{-1}$

На рис. I приводятся полученные изочастотные зависимости спектральной интенсивности в кристалле танталата лития для частот  $\Omega = 2, 4, 16$  и  $86 \text{ см}^{-1}$ . Как видно из этого рисунка на всех наблюдаемых кривых обнаруживается максимум при температурах, близких к температуре перехода ( $\Theta = 898 \text{ К}$ ), но не совпадающих с ней. При этом с уменьшением частоты положение этого максимума приближается к температуре перехода, а его величина весьма резко возрастает. Видно, что с изменением частоты  $\Omega$  от  $86 \text{ см}^{-1}$  до  $2 \text{ см}^{-1}$  интенсивность в максимуме ( $i_0$ ) увеличивается приблизительно в 40 раз.

Для количественного сопоставления эксперимента с теорией мы перешли от наблюдаемых спектральных интенсивностей к приведенным и определили соответствующие значения  $X_0$ ,  $i_0$  и  $\eta$ . Эти значения сравнивались с теоретическими, вычисленными из соотношений (3), (4) и (6). При этом были приняты значения  $A_0 = 12,5 \text{ см}^{-2} \text{ град}^{-1}$  и  $\Gamma = 80 \text{ см}^{-1}$ . Коэффициент затухания  $\Gamma$  оценивался по данным обычных спектров КР [8] как ширина линий КР при температурах, близких к температуре перехода. Величина  $A_0$  определялась на основе соотношения (4) с использованием экспериментального значения  $X_0 = 13$  град для  $\Omega = 4 \text{ см}^{-1}$ . Полученные значения  $X_0$ ,  $i_0$  и  $\eta$  приводятся в табл. I.

Таблица I.  
 Параметры изочастотной зависимости  $i(\Omega, X)$  в кристалле танталата лития

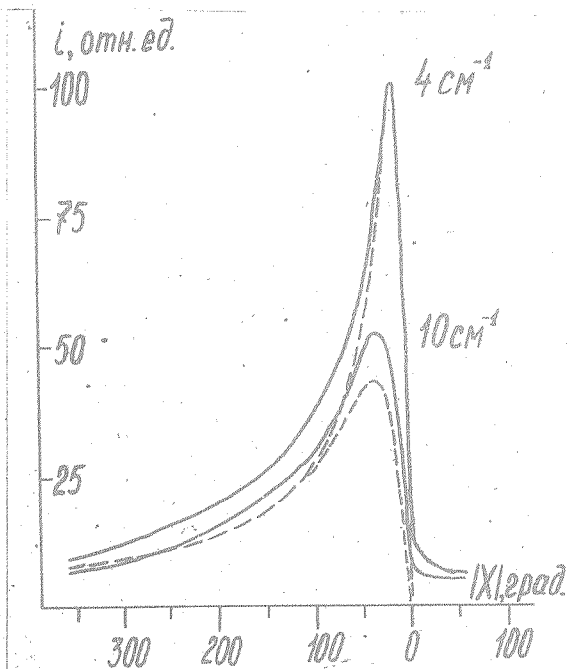
$\Omega, \text{ см}^{-1}$		2	3	4	6	10	16
$X_0, \text{ град.}$	эксп.	6	11	13	20	30	38
	теор.	6	10	13	19	32	52
$i_0,$ отн. ед.	эксп.	207	123	100	73	52	34
	теор.	195	132	100	68	43	29
$\eta, \text{ град.}$	эксп.	33	44	51	70	94	126
	теор.	22	33	43	64	103	157
$i_0 \Omega,$ отн. ед.	эксп.	414	369	400	438	520	544



Р и с. 2. Зависимости величин  $\chi_0$  ( $\Delta$ ),  $L_0$  ( $\blacksquare$ ) и  $\eta$  ( $\circ$ ) от частоты  $\Omega$

На рис. 2 показаны соответствующие экспериментальные и теоретические зависимости этих величин от частоты  $\Omega$ . Как видно, экспериментальные и теоретические значения  $L_0$  хорошо согласуются между собой во всей исследованной области частот. Значения  $\chi_0$  и  $\eta$  близки к теоретическим при малых частотах и начинают отличаться с увеличением частоты.

Кроме того, на рис. 3 приводится сопоставление двух контуров, соответствующих теоретической зависимости (2) и экспериментальным данным для частот  $\Omega = 4 \text{ см}^{-1}$  и  $10 \text{ см}^{-1}$ . При этом значения максимумов при  $\Omega = 4 \text{ см}^{-1}$  совмещались для обеих кривых. Как видно, форма обсуждаемых кривых оказывается довольно близкой, особенно вблизи температуры фазового перехода.



Р и с. 3. Сопоставление теоретических (пунктир) и экспериментальных (сплошная кривая) зависимостей  $i(\Omega, X)$  при  $\Omega = 4 \text{ см}^{-1}$  и  $10 \text{ см}^{-1}$

Таким образом, в настоящей работе установлено, что на частотах, близких к частоте возбуждающего излучения, наблюдается резкое возрастание интенсивности неупругого рассеяния. При этом с уменьшением частоты рассеяния значение максимума интенсивности увеличивается, а температура проявления этого максимума приближается к температуре фазового перехода. Отсюда следует, что наблюдаемые эффекты носят динамический характер и не связаны с возрастанием интенсивности рассеяния на статических дефектах. Отметим также тот факт, что согласно (3) величина  $i_0 \propto \cos \Omega t$  при  $\Omega \ll T$ . Такая закономерность действительно имеет место для рассматриваемого кристалла (см. табл. I) при  $\Omega < 10 \text{ см}^{-1}$ . В соответствии с оценками /1,2/ обсуждаемая теория должна вы-

полняться вплоть до температур  $T = \Theta - \Delta T$ , где  $\Delta T \sim 1$  град. Полагая  $X_0$  равным 1 градусу, имеем  $\Omega \approx 0,3 \text{ см}^{-1}$  и, согласно отмеченной закономерности ( $i_0 \Omega = \text{const}$ ),  $i_0(\Omega = 0,3 \text{ см}^{-1})/i_0(\Omega = 86 \text{ см}^{-1}) \approx 300$ . При меньших частотах  $\Omega$  следует ожидать дальнейшего увеличения интенсивности неупругого рассеяния света.

В заключение отметим, что обычные (изотемпературные) спектры КР не позволяют выявить какие-либо особенности вблизи точки перехода, так как они при этом имеют вид континуума без явно выраженных максимумов. Хотя существует принципиальная возможность получения изочастотных зависимостей из таких спектров, ясно, что число точек в этом случае всегда является конечным и неизбежны большие погрешности в определении значений  $X_0$  и  $i_0$  при малых  $\Omega$ . В то же время величины  $X_0$  и  $i_0$  получают непосредственно из эксперимента при использовании обсуждаемой методики.

Поступила в редакцию  
II января 1982 г.

#### Л и т е р а т у р а

1. В. Л. Гинзбург, УФН, 77, 621 (1962).
2. В. Л. Гинзбург, А. П. Леванюк, А. А. Собянин, УФН, 130, 615 (1980).
3. К. В. Lyons, P. A. Fleury, in *Light Scattering in Solids*, ed. by J. L. Birman, H. Z. Cummins, K. K. Rebane, New-York, London, Plenum Press, 1979, p. 357.
4. P. A. Fleury, in *Theory of Light Scattering in Condensed Matter*, ed. by B. Bendow, J. L. Birman, W. M. Agranovich, New-York, London, Plenum Press, 1975, p. 13.
5. S. M. Shapiro, J. D. Axe, G. Shirane, T. Riste, *Phys. Rev. B*, 6, 4332 (1972).
6. В. С. Горелик, С. В. Иванова, Краткие сообщения по физике ФИАН № II, 18 (1981).
7. В. С. Горелик и др., ФТТ, 18, 2297 (1976).
8. С. В. Иванова, В. С. Горелик, Б. А. Струков, Препринт ФИАН № 124, М., 1978 г.