

МАНДЕЛЬШТАМ-БРИЛЛЮЭНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА В
ГАММА-ОБЛУЧЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ ТРИГЛИЦИНСУЛЬФАТА

В. Ф. Китаева, В. А. Рывкин, В. А. Юрин, Н. Н. Соболев

УДК 536.36.548.0:534

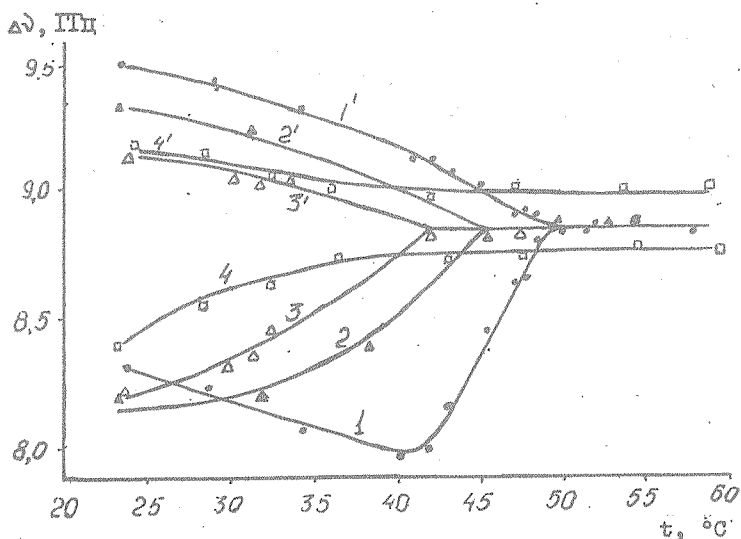
Методом мандельштам-бриллюэновского рассеяния света исследованы особенности распространения гиперзвука вблизи сегнетоэлектрического фазового перехода в γ -облученном кристалле триглицинсульфата. Установлено, что с ростом дозы облучения происходит исчезновение фазового перехода.

Облучение сегнетоэлектрических кристаллов является не только эффективным средством дозированного воздействия на кристаллы, которое позволяет получать материалы с полезными для практических применений свойствами, но и дает возможность делать некоторые выводы о природе сегнетоэлектрического состояния /1/. Радиационные эффекты исследовались во многих сегнетоэлектриках различными методами, однако среди них отсутствует метод мандельштам-бриллюэновского рассеяния (МБР) света. Между тем, характер температурной зависимости спектров МБР дает важную информацию об акустических колебаниях кристаллической решетки или, другими словами, о межмолекулярных взаимодействиях на гиперзвуковых частотах и является единственным по своей универсальности методом исследования этих свойств веществ на столь высоких частотах /2/.

Спектры МБР света в "чистых" (необлученных) кристаллах ТГС изучались впервые в /3/ и более подробно в /4,5/. В /6/ были впервые экспериментально получены температурные зависимости сдвига частоты для обеих поперечных компонент спектра МБР в области фазового перехода. Было показано, что характер температурной зависимости смещения частоты квазипоперечной компоненты спектра в сегнетофазе обусловлен известным меха-

низмом Ландау-Халатникова /7/. В то же время, для объяснения температурного поведения чисто поперечной компоненты необходимо учитывать возникновение в сегнетофазе как спонтанной поляризации, так и пьезоэффекта /6/. Там же было обнаружено необусловленное симметрией кристалла вырождение частот поперечных акустических колебаний, распространяющихся в направлении [101].

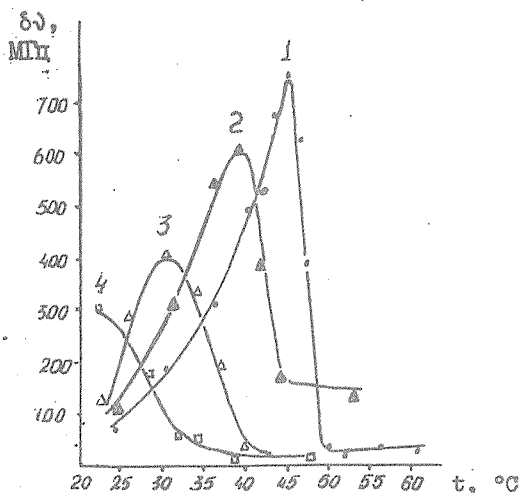
В данной работе, являющейся продолжением /6/, исследовалось влияние γ -облучения на температурное поведение спектра МБР света в кристалле ТТС в области фазового перехода из сегнетоэлектрической в параэлектрическую фазу ($T_C = 322,5 \text{ K}$). Источником γ -излучения служил препарат ^{60}Co . Образец получал возрастающие дозы облучения при мощности источника в зоне



Р и с. I. Зависимость от температуры смещения $\Delta\nu$ частоты квазипоперечной qT и чисто поперечной T компонент спектра МБР для доз γ -облучения 6 МР (кривые 2-2'), 12 МР (кривые 3-3'), 18 МР (кривые 4-4') и необлученного кристалла (кривые 1-1')

облучения $\sim 400 \text{ Р. с}^{-1}$. Методика получения и обработки спектров МБР, приготовление образцов и использованная аппаратура подробно описаны в /6/. В выбранной геометрии эксперимента свет падал на кристаллы параллельно оси X, а собирался свет, рассеянный вдоль оси Z. Таким образом, рассеяние происходило на фононах, распространявшихся вдоль направления $[101]$ в плоскости (010) , т.е. перпендикулярно сегнетоэлектрической оси Y.

На рис. 1 приведены полученные температурные зависимости смещения частот квазипоперечной qT и чисто поперечной T компонент спектра МБР. Температурный ход для qT- и T-компонент в необлученном кристалле (кривые I и I') подробно проанализирован в /6/ и здесь мы на нем останавливаться не будем. Как видно из рис. 1, по мере облучения точка слияния qT- и T-компонент смещается в сторону более низких температур, что свидетельствует о понижении температуры перехода. Уменьшение наклона кривой qT к оси температуры говорит о размытии фазового



Р и с. 2. Зависимость от температуры ширины линии $\delta\nu$ квазипоперечной компоненты спектра МБР для различных доз γ -облучения. Обозначения см. на рис. 1

перехода. Наиболее интересным является то, что при дозе $D = 18 \text{ Mr qT}$ - и T -компоненты перестают сливаться при переходе в парафазу (кривые 4-4). Такое расщепление, по-видимому, свидетельствует об исчезновении фазового перехода после сильного облучения.

На рис. 2 приведены полученные температурные зависимости ширины линии $\delta\nu_{\text{qT}}$ квазипоперечной компоненты спектра для различных доз облучения (ширина чисто поперечной компоненты в пределах точности измерений во всем исследованном интервале температур и для всех доз от температуры не зависела). Из рисунка видно, что в области фазового перехода величина $\delta\nu_{\text{qT}}$ имеет максимум, с увеличением дозы облучения максимумы экспериментальных кривых смещаются в область более низких температур, а величина максимумов уменьшается, что свидетельствует об уменьшении затухания акустических колебаний.

Таким образом, дозная зависимость температурного поведения частоты и ширины компонент спектра МБР показывает, что с ростом дозы облучения происходит понижение температуры Кюри и размытие фазового перехода.

Перейдем к обсуждению полученных результатов. Согласно [1], образующиеся при облучении искажения кристаллической решетки вызывают появление в кристалле смещающего поля E^{CM} , направленного вдоль полярной оси и увеличивающегося с ростом дозы облучения. Наличие этого поля изменяет характер зависимости времени релаксации поляризации от температуры и влияет на условия распространения упругих волн в кристалле.

Разложение термодинамического потенциала единицы объема сегнетоэлектрика при наличии E^{CM} имеет вид [8/

$$\Phi = \Phi_0 - a(T - T_c)P^2 + bP^4 - E^{\text{CM}}P. \quad (1)$$

Здесь P - поляризация, T - абсолютная температура, a и b - коэффициенты, не зависящие от температуры.

Равновесное значение поляризации P определяется из условия

$$\frac{\partial \Phi}{\partial P} = 2a(T - T_c)P + 4bP^3 - E^{\text{CM}} = 0. \quad (2)$$

Индукцированная упругими деформациями звуковой волны поляризация релаксирует к своему равновесному значению в соответствии с уравнением [7/

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\gamma \frac{\partial P}{\partial P} \quad (3)$$

где γ — кинетический коэффициент. Линеаризуя (3) по малой разности $\delta P = P - \bar{P}$, приводим уравнение релаксации к виду

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{\delta P}{\tau_E} \quad (4)$$

где τ_E — время релаксации поляризации при наличии смещающего поля, $\tau_E^{-1} = \tau_0^{-1} + 3E^{CM}/\bar{P}$. Здесь $\tau_0 = [4a(T - T_c)]^{-1}$ — время релаксации поляризации без поля /7/. Вблизи точки фазового перехода, где поле всегда можно считать сильным /8/, имеем

$$\tau_E^{-1} = \tau_0^{-1} + 3\sqrt{4b(E^{CM})^2} \quad (5)$$

Из (5) видно, что при наличии E^{CM} время релаксации уже не обращается в бесконечность при $T \rightarrow T_c$ и с ростом E^{CM} вообще перестает зависеть от температуры. Из /6/ следует, что для нашей ориентации волнового вектора фонона и в пренебрежении пространственной дисперсией диэлектрическая восприимчивость вдоль полярной оси равна

$$\chi_{22}(\omega) = \frac{\gamma \tau_E^{-1}}{\tau_E^{-2} + \omega^2} + i \frac{\gamma \omega}{\tau_E^{-2} + \omega^2} \quad (6)$$

Как показано в /6/, температурная зависимость скорости и затухания гиперзвука в области фазового перехода в ТГС полностью определяется диэлектрическим поведением кристалла, то есть соответственно температурной зависимостью действительной и мнимой частей восприимчивости (6). Из этого выражения видно, что при увеличении дозы облучения, когда E^{CM} растет, оба члена в выражении (6) перестают зависеть от температуры, а следовательно, сглаживаются и аномалии скорости и затухания гиперзвука вблизи точки Кюри.

Концепция внутреннего смещающего поля была выдвинута в /1/ и подтверждена там же диэлектрическими измерениями в статических, а также переменных ($\omega \approx 10^3 - 10^6$ Гц) полях. Результаты настоящей работы показывают, что эта концепция подтверждается

и акустическими измерениями на гиперзвуковых частотах. А поскольку, как показано в /6/, акустические свойства кристалла ТГС однозначно определяются его диэлектрическим поведением, то это означает, что приближение внутреннего смещающего поля справедливо для частот вплоть до 10^{10} ГГц и для областей в кристалле с размером порядка использованной длины волны гиперзвука т.е. ~ 3000 А.

Поступила в редакцию
4 марта 1981 г.

Л и т е р а т у р а

1. В. А. Юрин, И. М. Сильвестрова, И. С. Желудев, Кристаллография, 7, 147 (1962).
2. И. Л. Фабелинский, И. Л. Чистый, УФН, 119, 487 (1976).
3. R. W. Gammon, H. Z. Cummins, Phys. Rev. Lett., 17, 193 (1966).
4. T. Yagi, M. Tokunaga, I. Tatsuzaki, J. Phys. Soc. Japan, 40, 1959 (1976).
5. Y. Luspin, G. Nauret, Ferroelectrics, 15, 43 (1977).
6. В. Ф. Китаева, В. А. Рывкин, В. А. Юрин, Н. Н. Соболев, Кристаллография, 26, № 5 (1981).
7. Л. Д. Ландау, И. М. Халатников, ДАН СССР, 96, 469 (1954).
8. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Статистическая физика, т.У, М., "Наука", 1976 г.