Краткие сообщения по физике № 11 1981

ОСОБЕННОСТИ ИЗОЧАСТОТНОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА ВБЛИЗИ ТОЧКИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА В КРИСТАЛЛАХ

В. С. Горелик, С. В. Иванова

УДК 535.36I

Предложен новый метод исследования параметров мягких мод в кристаллах в непосредственной близости от точки фазового перехода, основанный на анализе изочастотных температурных зависимостей интенсивности комбинационного рассеяния света.

Исследования комбинационного рассеяния (КР) в кристаллах вблизи точки фазового перехода позволяют получить ценную информацию о параметрах мягкой моды, ответственной за фазовый переход /I,2/. Однако прямое сопоставление выводов теории /I,2/ с экспериментом оказывается затруднительным в непосредственной близости от точки перехода, когда частота мягкой моды становится сравнимой с коэффициентом затухания: $\Omega_0 \leqslant \Gamma$. Исследования спектров КР в этом случае малоинформативны, так как наблюдаемый спектр в области мягкой моды принимает вид континуума /3-5/ со слабо выраженным максимумом или вообще без максимума интенсивности.

В настоящей работе предлагается метод получения информации о мягкой моде, основанный на анализе изочастотных температурных зависимостей интенсивности КР, регистрируемого при фиксированных частотах Ω в области мягкой моды.

Анализ изочастотных зависимостей КР может быть выполнен на основе общей теории рассеяния света вблизи точки фазового перехода второго рода, развитой В. Л. Гинзбургом и А. П. Леванюком и подробно обсуждавшейся в обзорах /I,2/. В приближении одной мягкой моды в этой теории получено следующее выражение для спектральной интенсивности КР:

$$J(\Omega,T) = I(T)\,\frac{\Gamma\Omega_o^2}{\pi\left[(\Omega_o^2 - \Omega^2)^2 + \Gamma^2\Omega^2\right]}. \qquad (I)$$

Здесь $J(\Omega,T)$ – наблюдаемая спектральная интенсивность, $I(T)$ – интегральная интенсивность рассеяния, Ω_o и Γ – соответствующие параметры мягкой моды, T – температура кристалла.

В условиях применимости теории Л. Д. Ландау (см. /I-3/) для частоты мягкой моды имеют место соотношения:

$$\Omega_o^2 = 2A_o(\theta - T) = 2A_o|x| \quad \text{при} \quad T < \theta, \qquad (2а)$$

$$\Omega_o^2 = A_o(T - \theta) = A_o|x| \quad \text{при} \quad T > \theta. \qquad (2б)$$

Здесь A_o – соответствующий коэффициент в разложении термодинамического потенциала по параметру порядка, θ – температура перехода, $x = \theta - T$. Ограничиваясь рассмотрением фазовых переходов второго рода, далеких от критической точки, можно полагать, что интегральная интенсивность $I(T)$ линейно возрастает с температурой в низкотемпературной модификации кристалла. Соответственно ниже точки перехода соотношение (I) может быть записано следующим образом:

$$i(\Omega,x) = \frac{2A_o|x|\Gamma}{\left[2A_o|x| - \Omega^2\right]^2 + \Gamma^2\Omega^2}. \qquad (3)$$

Здесь вместо наблюдаемой спектральной интенсивности $J(\Omega,T)$ используется приведенная спектральная интенсивность $i(\Omega,x)$, задаваемая соотношением:

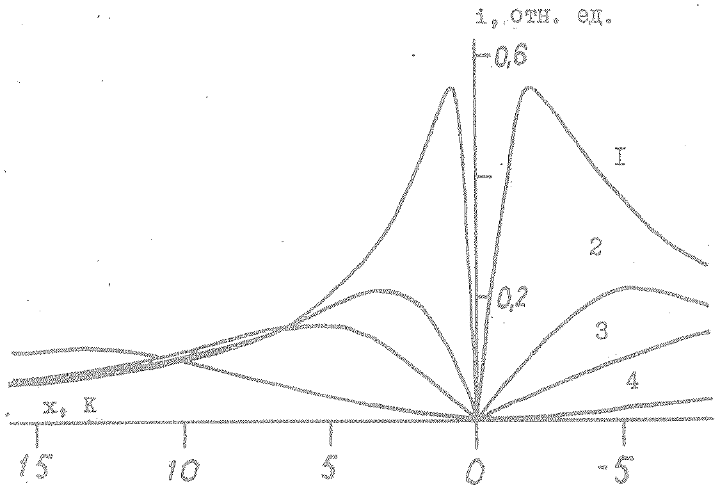
$$i(\Omega,x) = KJ(\Omega,T)/T, \qquad (4)$$

где K – некоторый коэффициент, не зависящий от температуры.

Выше точки перехода, в согласии с (2б), имеем:

$$i(\Omega,x) = \frac{A_o|x|\Gamma}{\left[A_o|x| - \Omega^2\right]^2 + \Gamma^2\Omega^2}. \qquad (5)$$

На рис. I приводятся результаты расчета изочастотной зависимости КР согласно (3) и (5), полученной для значений частот $\Omega =$ I, 3, 5 и IO $см^{-I}$ при определенных параметрах A_o и Г. Такой выбор параметров соответствует сильно передемпфированному мягкому колебанию при $x \leqslant Г^2/A_o$ = 20 К. Как видно из этого рисунка, обсуждаемые зависимости имеют хорошо выраженный максимум, координата x_o которого стремится к нулю при уменьшении частоты Ω. Кроме того, при этом возрастает интенсивность в максимуме $i(x_o)$ и уменьшается ширина соответствующих контуров (см. рис. I).



Р и с. I. Изочастотные зависимости, рассчитанные согласно (3) и (5) для значений частот $\Omega =$ I, 3, 5 и IO $см^{-I}$; (кривые I, 2, 3, 4 соответственно) при A_o = 5 $см^{-2} град^{-I}$ и Г = IO $см^{-I}$; $x = \Theta - T$, Θ – температура перехода

Следует отметить, что для многих кристаллов КР на мягком колебании выше точки Кюри оказывается запрещенным согласно правилам отбора. В частности, такая ситуация имеет место для сегнетоэлектриков с центросимметричной парафазой в согласии с известным правилом альтернативного запрета. При этом правый максимум интенсивности на рис. I должен отсутствовать, а со–

поставление теории с экспериментом имеет смысл проводить лишь для $T < \Theta$.

Анализ соотношения (3) показывает, что функция $i(\Omega,x)$ принимает максимальное значение $i(x_0) = \Gamma/2\Omega(\sqrt{\Omega^2 + \Gamma^2} - \Omega)$ при $x_0 = \Omega\sqrt{\Omega^2 + \Gamma^2}/(2A_0)$. Кроме того, если ввести эффективную полуширину $\xi = x_0 - x_1$ функции $i(\Omega,x)(x_1 < x_0;\ i(\Omega,x_1) = (1/2)i(\Omega,x_0))$, то легко получить следующие соотношения:

$$2A_0 = \frac{\Omega^2(x_0 + \xi)}{x_0(x_0 + \xi) - \xi^2/2},$$

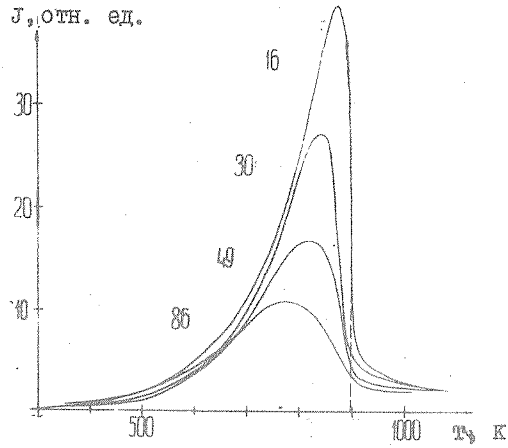
$$\Gamma = \Omega\xi\,\frac{\sqrt{x_0(x_0 + \xi) - \xi^2/4}}{x_0(x_0 + \xi) - \xi^2/2}.$$

Нами были экспериментально изучены изочастотные зависимости КР для монокристаллов кварца и танталата лития. Регистрация интенсивности КР проводилась на двойном монохроматоре с использованием известной методики лазерного возбуждения КР /3/. При комнатной температуре и при нагревании кристаллов регистрировались контрольные спектры КР для геометрии рассеяния $X(ZZ)Y$. Такая геометрия рассеяния в кварце и танталате лития соответствует возбуждению в процессах КР колебаний кристаллической решетки этих кристаллов, классифицируемых полносимметричным (A_I) типом симметрии. При этом спектральная ширина щели составляла I $см^{-I}$, а запись спектра в области низких частот начиналась с 8-I0 $см^{-I}$. Затем при аналогичных условиях проводились измерения интенсивности КР для фиксированных частот Ω_1, Ω_2, Ω_3 и Ω_4 при медленном изменении температуры кристаллов. Полученные изочастотные зависимости интенсивности $J(\Omega,T)$ для кристаллов кварца и танталата лития показаны на рис. 2 и 3.

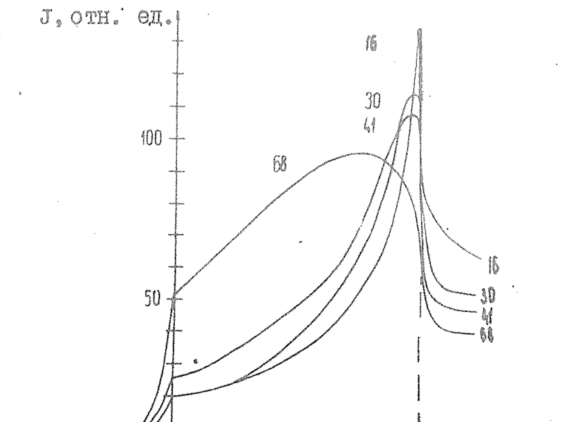
Как видно из рис. 2 и 3, экспериментально наблюдаемые изочастотные зависимости качественно согласуются [ж)] с видом теоретических кривых рис. I. Измеренные значения x_0 (координат мак-

---

ж) Отметим, что вследствие большого значения Θ температуры перехода формы кривых $J(\Omega,T)$ и $i(\Omega,x) \sim J(\Omega,T)/T$ должны мало отличаться вблизи фазового перехода.



Р и с. 2. Наблюдаемая изочастотная зависимость интенсивности КР $J(\Omega,T)$ в кристаллах танталата лития; T_c = 898 К. Цифры у кривых – частоты в $см^{-1}$



Р и с. 3. Наблюдаемая изочастотная зависимость интенсивности КР $J(\Omega,T)$ в кристаллах кварца; T_c = 846 К. Цифры у кривых – частоты в $см^{-1}$

симумов интенсивности), $i(x_o)$ и ξ приводятся в табл. I. Как следует из этой таблицы, координаты x_o асимптотически приближаются к координате точки фазового перехода с уменьшением частоты Ω. Кроме того, при этом происходит возрастание $i(x_o)$ и уменьшение ξ. В случае кварца скорость уменьшения полуширины ξ с температурой оказывается гораздо большей, чем для танталата лития (см. рис. 2 и 3).

Таблица I.

Параметры изочастотной зависимости $i(\Omega, x)$ в кристаллах танталата лития и кварца; x_o – кордината максимума интенсивности на шкале Θ – T; $i(x_o)$ – интенсивность максимума; ξ – эффективная полуширина; Ω – частота

Танталат лития				Кварц			
x_o, K	$i(x_o)$	ξ, K	Ω, $см^{-I}$	x_o, K	$i(x_o)$	ξ, K	Ω, $см^{-I}$
33	I85	II5	I6	0,5	3I7	I0	I6
63	I35	I25	30	3	27I	20	30
88	75	I30	49	3	256	30	4I
I38	46	I50	86	I9	233	68	68

Количественное сопоставление наблюдаемых особенностей КР с теорией /I,2/ будет выполнено в последующих работах. Однако уже из приведенных данных можно сделать вывод о динамическом характере наблюдавшегося возрастания интенсивности рассеяного света. Подтверждением такого вывода служит тот факт, что координаты максимумов интенсивности не совпадают с координатой перехода ($x_o \neq 0$), а также то, что интенсивность и ширина наблюдавшихся пиков существенно зависят от частоты Ω.

Поступила в редакцию
25 мая I98I г.

Литература

I. В. Л. Гинзбург, УФН, 77, 62I (1962).

2. В. Л. Гинзбург, А. П. Леванюк, А. А. Собянин, УФН, 130, 615 (1980).

3. В. С. Горелик и др., ФТТ, 18, 2297 (1976).

4. A. F. Penna, A. Chaves, S. P. S. Porto, Solid State Com., 19, 491 (1976).

5. J. F. Scott, Rev. Mod. Phys., 46, 83 (1974).