

"МЯГКИЕ" КОЛЕБАНИЯ В СПЕКТРЕ КОМБИНАЦИОННОГО
РАССЕЯНИЯ СВЕТА КРИСТАЛЛА $Ba_2NaNb_5O_{15}$

В. С. Горецкий, Х. Ш. Рустамов, Д. С. Кузьминов

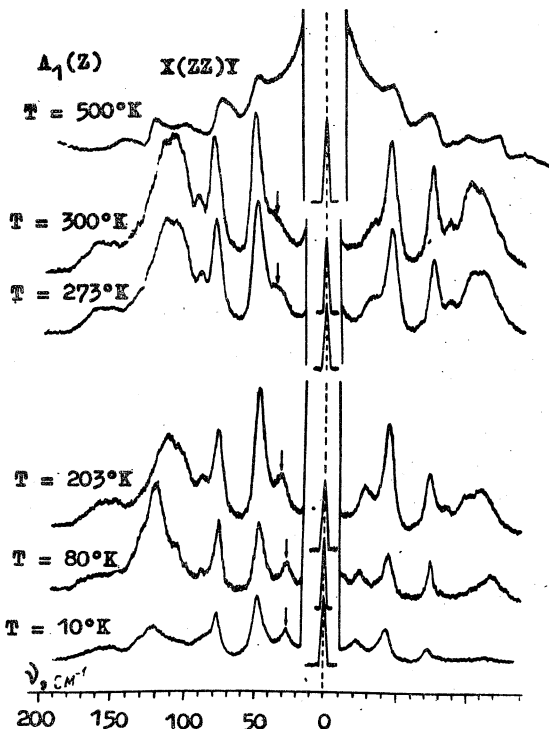
УДК 535.361

Исследована температурная зависимость (в интервале $10 + 500^{\circ}K$) спектров комбинационного рассеяния в сегнетоэлектрическом кристалле $Ba_2NaNb_5O_{15}$ (НБН) при различных геометриях рассеяния. Изучены "мягкие" колебания и обнаружено аномальное поведение некоторых низкочастотных колебаний при низких температурах. Делается вывод о сложном характере поведения "мягких" колебаний в кристалле НБН и необходимости дальнейшего развития теории.

В соответствии с современными теоретическими представлениями /1,2/ в сегнетоэлектрических кристаллах типа смещения должны существовать низкочастотные ("мягкие") колебания, параметры которых сильно зависят от температуры. Однако во многих случаях /3,4/ такие колебания оказываются сильно затухающими в непосредственной близости от точки фазового перехода. В связи с этим представляет интерес проводить идентификацию и исследовать параметры таких колебаний вдали от точки Кюри, при низких температурах кристалла. В настоящей работе сообщаются результаты исследования "мягких" колебаний методом КР в сегнетоэлектрическом кристалле $Ba_2NaNb_5O_{15}$ (НБН) при температурах, далеких от точки сегнетоэлектрического фазового перехода. При этом в отличие от более ранних исследований /5,6/ мягких колебаний кристалла НБН нами получены спектры КР, начиная с гелиевой температуры, и проведено более детальное исследование вида распределения интенсивности КР в низкочастотной области спектра при различных поляризационных геометриях.

Для исследования нами были использованы прозрачные монокристаллы НБН, вырезанные в виде параллелепипедов с размером $13 \times 8 \times 4$ мм (наибольшая сторона соответствовала направлению оптической

оси z). Наблюдение проводилось под углом 90° к направлению падающего света. Исследования были выполнены в интервале температур $10 + 500^\circ\text{K}$. Спектр возбуждался аргоновым лазером ($\lambda = 4880 \text{ \AA}$).



Р и с. 1. Температурная зависимость спектров КР кристалла КВН при геометрии рассеяния $x(zz)y$

с мощностью ~ 1 ватт. Регистрация спектров КР проводилась на спектрометре ДФС-12.

Низкотемпературная фаза кристалла КВН характеризуется группой симметрии C_{2v}^{11} , с восемью формульными единицами в примитивной ячейке /7/. При этом число колебательных мод составляет 552. Три из них относятся к акустическим, а остальные - к оптическим вет-

вям. При $T_0 = 260^\circ\text{C}$ в рассматриваемом кристалле происходит фазовый переход и симметрия повышается до группы C_{4v}^2 (с двумя формульными единицами в ячейке). В соответствии с работами /8,9/ классификацию колебаний и вид тензора КР приближенно можно рассматривать на основе этой симметрии. При этом имеется 138 колебательных мод следующих типов: $19A_1(z) + 15A_2 + 14B_1 + 18B_2 + 36E(x,y)$. Из них $A_1(z) + E(x,y)$ относятся к акустическим ветвям, а остальные типы - к оптическим ветвям. Тензор рассеяния имеет вид:

$$A_1(z) = \begin{bmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{bmatrix}, \quad E(x) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & e \\ 0 & 0 & 0 \\ e & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad B_1 = \begin{bmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix},$$

$$E(y) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e \\ 0 & e & 0 \end{bmatrix}, \quad B_2 = \begin{bmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}.$$

В скобках указаны направления поляризации фононов.

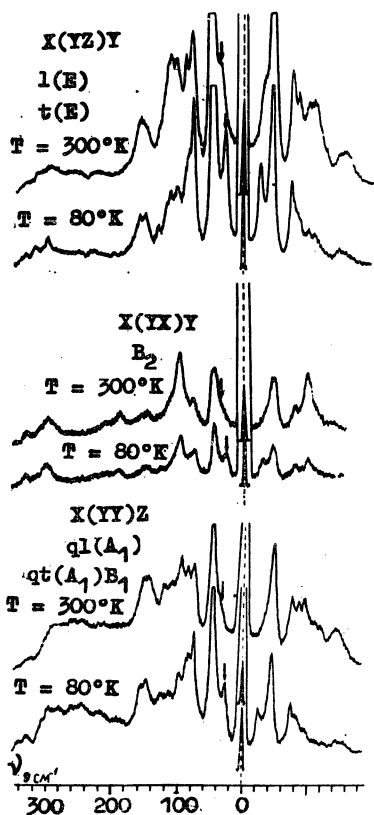
В соответствии с соотношением Лиддена-Сакса-Теллера (ЛСТ) /2/ и видом тензора КР для колебания $A_1(z)$ "мягкие" моды кристаллической решетки, ответственные за возрастание диэлектрической проницаемости ϵ_{0z} вдоль оси z , должны проявляться при геометрии рассеяния $x(zz)y$. В этом случае в кристалле возбуждаются поперечные оптические фононы типа $A_1(z)$.

На рис. 1 представлены спектрограммы КР кристалла НБН для геометрии рассеяния $x(zz)y$ в интервале температур от 40 до 500°K .

На приведенных спектрах в области низких частот присутствуют комбинационные спутники, соответствующие "мягким" колебаниям (на рисунке указаны стрелками), особенно отчетливо "мягкое" колебание проявляется при $T = 10^\circ\text{K}$; при этом его частота равна $\nu = 27 \text{ см}^{-1}$. Нами также была проведена запись спектра для других геометрий рассеяния при $T = 300^\circ\text{K}$ и $T = 80^\circ\text{K}$. Обнаружены низкочастотные колебания с частотами 28, 27, 26 см^{-1} (при $T = 80^\circ\text{K}$) соответственно для геометрий рассеяния $x(yz)y$, $x(yx)y$, $x(yz)z$ (рис. 2).

С нагреванием образца от 10 до 500°K вид спектра значительно изменяется. Возрастает интенсивность крыла, примыкающего к воз-

буждающей линии. Обнаруживается сложная картина перераспределения интенсивности низкочастотных максимумов. Наблюдается уширение и смещение частот комбинационных спутников (стоксовых и антистоксовых) (см. рис. 1 и таблицу 1).



Р и с. 2. Спектр КР кристалла НВН при температурах 80 и 300°К для различной геометрии рассеяния

Следует отметить также, что частота максимума самого низкочастотного колебания $\nu = 27 \text{ см}^{-1}$ (при $T = 80^\circ\text{K}$) с увеличением температуры от 80 до 300°К возрастает на 8 см^{-1} (см. таблицу). В то же время, как показали выполненные нами измерения статической диэлектрической проницаемости, ϵ_{0z} при этом также возрастает (приблизительно в три раза), что находится в противоречии

Таблица I

Температурная зависимость частот максимумов
в спектре КР кристалла НБН для различных геометрий рассеяния

Геометрия рассеяния	$\chi(zx)y$ $A_1(z)$						$\chi(yz)y$ $1(E),$ $t(E)$		$\chi(yx)y$ B_2		$\chi(yz)z$ $q1(A_1),$ $qt(A_1), B_1$	
	10	80	203	273	300	500	80	300	80	300	80	300
Темпера- тура, $^{\circ}K$	27	27	32	35	35	-	28	35	27	35	26	34
	48	48	48	49	49	48	47	47	45	45	47	48
	77	77	77	77	77	73	77	77	76	77	76	78
	88	88	88	88	88	90	82	87	97	97	83	86
	106	106	106	106	106	96	101	103	-	-	97	96
	122	120	112	112	112	119	111	111	-	-	113	109
	132	-	-	-	-	-	129	-	126	-	126	120
	153	157	153	153	151	138	149 156	154	151	148	146	145

с ЛСТ-соотношением. Существование "мягких" колебаний в спектре КР качественно согласуется с выводами теории /1,2/ и в соответствии с работами /10,11/ может обуславливать акустические аномалии, наблюдаемые в НБН /8/. В целом картина температурных изменений в обсуждаемом спектре оказывается довольно сложной: имеет место сильное затухание низкочастотных колебаний, наблюдаются аномальные сдвиги и т.д. Это свидетельствует о необходимости дальнейшего развития теории, учитывающей особенности колебательного спектра в НБН.

Поступила в редакцию
20 октября 1976 г.

Л и т е р а т у р а

1. В. Л. Гинзбург. УФН, 77, 621 (1962); ФТТ, 2, 2031 (1960).
2. W. Cochran. Adv. Phys., 9, 387 (1960); 10, 401 (1961).
3. A. Pinzuk, W. Tayler, E. Burstein, I. Lefkowitz. Sol. State Comm., 5, 429 (1967).
4. I. M. Worlock. Bull. Am. Phys. Soc., 14, 368 (1969).
5. L. C. Bobb, J. Dahl, I. Lefkowitz. Ferroelectrics, 1, 247 (1970).
6. L. C. Bobb, I. Lefkowitz. Ferroelectrics, 2, 217 (1971).
7. L. C. Bobb, I. Lefkowitz, L. Muldower. J. Appl. Cryst., 2, 189 (1969).
8. G. Burns, J. D. Axe, D. F. O'Kane. Sol. State Comm., 7, 933 (1969).
9. R. L. Loudon. Adv. Phys., 13, 423 (1964).
10. В. Г. Санников. ФТТ, 4, 1619 (1962).
11. K. Tani, N. Tsuda. Phys. Lett., 25A, 529 (1967).
12. T. Yamada, H. Iwasaki, N. Nizeki. J. App. Phys., 41, 4141 (1970).