

ДИФРАКЦИЯ МЕССБАУЭРОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА МОНОКРИСТАЛЛЕ BaTiO_3 В ОКРЕСТНОСТИ ТОЧКИ КЮРИ

В.Н.Гаврилов, Э.В.Золотоябло, Е.М.Иолин

Исследована температурная зависимость интенсивности резонансного рассеяния мессбауэровского излучения (МИ) в монокристалле BaTiO_3 . Впервые обнаружены пики неупругого рассеяния слева и справа от T_c . С помощью энергетического анализа рассеянного пучка показано, что значительная доля неупругой интенсивности обусловлена процессами рассеяния с передачей энергии порядка 10^{-8} эВ.

Наиболее полное исследование динамики решетки в BaTiO_3 вблизи температуры $T_c = 120^\circ \text{C}$ сегнетоэлектрического перехода проведено

методом неупругого рассеяния нейтронов [1]. Авторами [1], в частности показано, что в окрестности T_c мягкая мода становится сильно передемпфированной. По этой причине, а также вследствие недостаточного разрешения по энергии современных трехкристалльных нейтронных спектрометров ($\sim 10^{-5}$ эВ), детальное изучение критических явлений в BaTiO_3 оказывается затруднительным.

Используемая нами методика электронного рассеяния МИ [2] позволяет разделять по энергии упруго и неупруго рассеянные на кристалле γ -кванты с точностью порядка ширины Γ линии МИ ($\Gamma \approx 10^{-8}$ эВ). В работе [3] теоретически показано, что с помощью этого метода можно получать ценную информацию о динамике как мягкой моды (например в BaTiO_3), так и центрального пика (SrTiO_3) вблизи T_c , т.е. в тех случаях, когда в кристалле сильно возрастает плотность низкочастотных возбуждений. Эксперименты по рассеянию МИ на центральном пике осуществлены на кристаллах SrTiO_3 [4] и KMnF_3 [5]. Ниже мы приведем экспериментальные данные, свидетельствующие о более сложном, чем обычно предполагается, характере предпереходных явлений в BaTiO_3 .

Эксперимент проводился следующим образом. Коллимированный пучок МИ от источника Co^{57} в Cr (250 мКюри) дифрагировал на монокристалле BaTiO_3 , установленном на мессбауэровском дифрактометре [6]. Размеры образца — $8 \times 5 \times 0,2$ мм³. Для регистрации МИ использовался сцинтилляционный детектор на основе кристалла $\text{NaJ}(\text{Tl})$ $10 \times 18 \times 0,1$ мм³. Разделение по энергии упруго и неупруго рассеянных γ -квантов осуществлялось с помощью "черного" резонансного поглотителя. При каждой фиксированной температуре, поддерживаемой с точностью не хуже $\pm 0,1^\circ \text{C}$, измерялись 4 интенсивности $I_{\alpha\beta}$ дифрагированного пучка в брэгговском максимуме (рефлекс (002)). Значение $\beta = R(\beta = \infty)$ соответствует тому, что поглотитель находится в резонансе (вне резонанса) с источником МИ. Индекс α равен 1 или 2, если поглотитель расположен между источником и образцом или образцом и детектором. Разница $fel = I_{2\infty} - I_{2R}$ пропорциональна доле чисто упругого рассеяния. Отношение интенсивностей неупругого рассеяния к упругому равно $fin/fel = (I_{1\infty} - I_{1R}) / (I_{2\infty} - I_{2R}) - 1$ (см. [7]).

На рис. 1 приведены температурные зависимости интенсивностей рассеяния, полученные в режиме охлаждения образца (до измерений кристалл отжигался 48 часов при $T = 250^\circ \text{C}$). Температурная зависимость полной интенсивности рассеяния $I_{2\infty}$ напоминает рентгеновские данные (см., например, [8]), с той разницей, что коллимация пучков МИ гораздо хуже, чем обычно в рентгеновской технике. Характерные черты $I_{2\infty}$ и, особенно fel вблизи T_c определяются, в основном, изменением экстинкции кристалла. При подходе к T_c сверху происходит перестройка мозаичной структуры образца [8] (уменьшение размеров блоков мозаики) и как следствие наблюдается скачок величины fel . Причем подавляется то небольшое уменьшение fel , которого можно ожидать из-за фактора Дебая — Валлера [9].

Особенно интересное поведение, как нам кажется, обнаруживает температурная зависимость доли fin неупругого рассеяния МИ. Из рис. 1 видно, что на кривой fin/fel справа и слева от T_c имеются максимумы

мы при $T \approx 150^\circ \text{C}$ и $T \approx 105^\circ \text{C}$. В окрестности T_c $I_{2\infty}$ вследствие изменения мозаичности, сильно связана с предысторией образца. В противоположность этому положение пиков на кривой f_{in}/f_{el} слабо зависит от режима измерений. (Сходные результаты получены и в режиме нагрева образца, а также на другом монокристалле BaTiO_3 толщиной 0,5 мм).

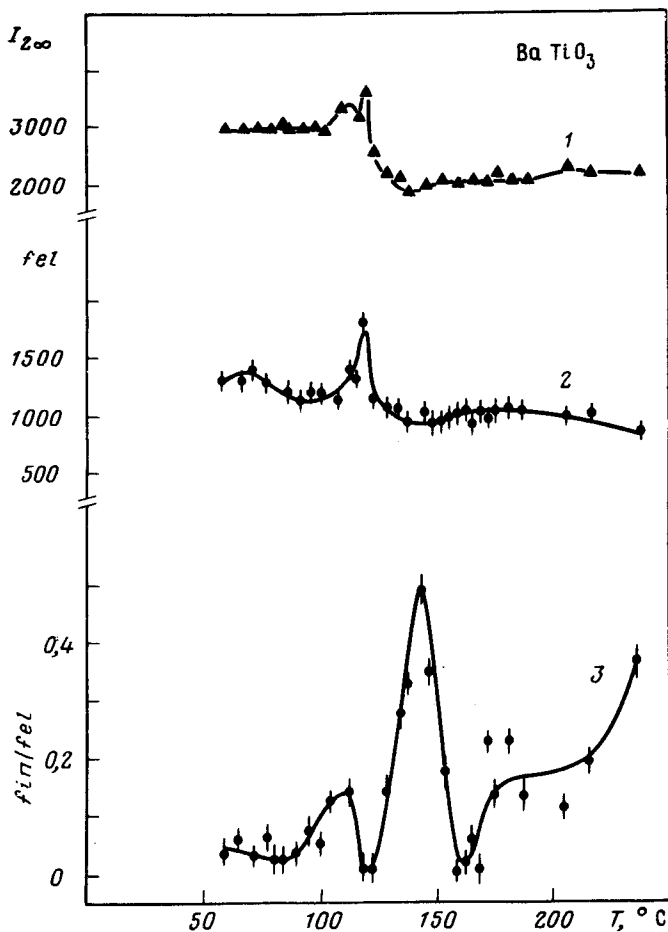


Рис.1. Температурные зависимости (в отн. ед.) интенсивности полного рассеяния $I_{2\infty}$ (1), доли упругого рассеяния f_{el} (2) и отношения f_{in}/f_{el} (3)

Для того, чтобы понять, какова энергия возбуждений, ответственных за возникновение неупругого рассеяния, мы провели дополнительные температурные исследования мессбауэровских спектров дифрагированного пучка (поглотитель — необогащенная нержавеющей сталь толщиной 30 мкм. На рис.2 приводятся результаты такого сорта измерений

для $T = 150^\circ \text{C}$. Отчетливо наблюдается сильное (почти в два раза по сравнению с комнатной температурой) уширение спектра рассеянного МИ (рис. 2, *a*). Приведенная для сравнения узкая линия (рис. 2, *b*), полученная при помещении поглотителя перед образцом, свидетельствует о том, что наблюдаемое уширение определяется свойствами образца, а не какими-то иными причинами. Поэтому можно утверждать, что в данном диапазоне температур неупругое рассеяние МИ в BaTiO_3 происходит с крайне малыми ($\sim 10^{-8}$ эВ) передачами энергии. Дальнейшие эксперименты показали, что ширина спектра МИ незначительно меняется в течение длительных (недельных) измерений, при этой температуре. Последнее обстоятельство, видимо говорит о том, что наблюдаемое уширение не связано с неравновесностью кристалла. Непосредственно вблизи T_c никакого уширения линии рассеянного МИ обнаружено не было. Такие малые передаваемые энергии свидетельствуют о том, что наблюдаемые эффекты вряд ли могут быть объяснены непосредственным рассеянием γ -квантов на мягкой моде [10] или на системе взаимодействующих мягкой оптической и акустической мод [11].

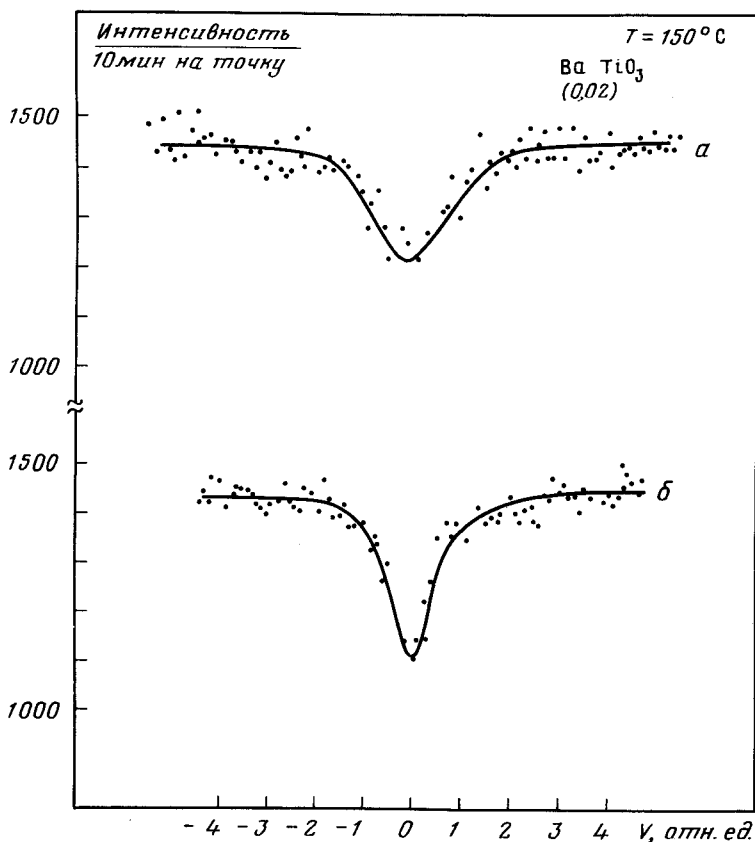


Рис. 2. Мессбауэровские спектры дифрагированного пучка: *a* — поглотитель после образца, *b* — поглотитель перед образцом

Полученные результаты указывают на существование в BaTiO_3 медленных релаксационных процессов с частотами ~ 5 МГц. В настоящее время трудно однозначно указать причину этих процессов. За них могут быть ответственны, например, дефекты в поверхностном слое кристалла, толщиной ~ 20 мкм, куда только и проникает МИ. Сами дефекты при разумных концентрациях рассеивают слабо, но не слишком далеко от T_c они могут заметно влиять на динамику решетки [12], образование и распад зародышей новой фазы, что и может проявляться в дифракции МИ [4].

В заключение отметим, что первые измерения рассеяния МИ на BaTiO_3 (выше T_c) провели О'Коннор и Спайсер [13]. Они получили гладкую (без максимумов) спадающую с понижением температуры зависимость fin/fel . Возможно, расхождение между нашими результатами и полученными в [13], объясняется тем, что О'Коннор и Спайсер проводили измерения с большим шагом по температуре, а также различной дефектной структурой образцов.

Авторы выражают искреннюю благодарность В.И.Гольданскому, Ю.М.Кагану за плодотворные обсуждения работы и ряд ценных советов.

Институт физики
Академии наук Латвийской ССР

Поступила в редакцию
26 июля 1978 г.

Литература

- [1] J.Narada, J.D.Axe, G.Shirane. *Phys. Rev.*, B4, 155, 1971.
- [2] N.M.Butt, D.A.O'Connor. *Phys. Lett.*, 7, 233, 1963.
- [3] Е.М.Иолин, Э.В.Золотоябко. *ЖЭТФ*, 68, 1331, 1975.
- [4] C.N.W.Darlington, D.A.O'Connor. *J. Phys.*, C9, 3561, 1976.
- [5] K.Hanisich, M.Drosg. *Phys. Lett.*, 58, 415, 1976.
- [6] Э.В.Золотоябко, Б.В.Кувалдин, А.Ю.Астапкович, Е.Н.Козлов. *Изв. АН Латв. ССР, сер. физ. и техн. наук*, №3, 53, 1977.
- [7] Э.В.Золотоябко, В.Н.Гаврилов, Е.М.Иолин. *Изв. АН Латв. ССР, сер. физ. и техн. наук*, №3, 32, 1978.
- [8] В.Я.Фрицберг, Ю.В.Звиргзде. *ФТТ*, 19, 1770, 1977.
- [9] В.В.Скляревский, И.И.Лукашевич, В.П.Романов, Н.И.Филиппов, Ю.Н.Веневцев, А.С.Висков. *Письма в ЖЭТФ*, 3, 212, 1966.
- [10] Э.В.Золотоябко, Е.М.Иолин, *Изв. АН Латв. ССР, сер. физ. и техн. наук*, №4, 46, 1975.
- [11] Н.Н.Кристофель, П.Н.Консин. *ФТТ*, 13, 2513, 1971.
- [12] В.И.Halperin, C.N.Varma. *Phys. Rev.*, 14B, 4030, 1976.
- [13] D.A.O'Connor, E.R.Spicer. *Phys. Lett.*, 29A, 136, 1969.