

АНОМАЛИИ ТЕПЛОЕМКОСТИ В γ -ОБЛУЧЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ ТРИГЛИЦИНСУЛЬФАТА

*Б.А.Струков, А.С.Сигов, В.А.Федорихин,
С.А.Тараскин*

Впервые исследована эволюция аномалии теплоемкости в кристаллах триглицинсульфата под действием малых доз γ -лучей. Из сопоставления полученных данных с феноменологической теорией, учитывающей влияние невзаимодействующих дефектов на характер аномалий в области фазовых переходов, оценена концентрация дефектов, возникающих в кристалле при облучении.

Основной причиной аномалии целого ряда физических параметров вещества вблизи точек фазового перехода второго рода T_c считаются термодинамические флуктуации параметра порядка, интенсивность которых резко возрастает при $T \rightarrow T_c$. Однако в настоящее время существует точка зрения, согласно которой температурные аномалии могут быть связаны с дефектами кристаллической решетки, которые можно трактовать, как "замороженные флуктуации" [1]. Если искажения решетки, вызываемые дефектами, соответствуют параметру порядка, при $T \rightarrow T_c$ будет увеличиваться размер возмущенной дефектом области, что связано с возрастанием радиуса корреляции параметра порядка.

Поэтому представляет значительный интерес систематическое экспериментальное исследование влияния дефектов на термодинамические характеристики кристаллов вблизи T_c . Ранее нами было показано [2], что в кристаллах сегнетозлектрического триглицинсульфата (ТГС), выращенных в равновесных условиях при $T > T_c$, обнаруживается скачкообразное изменение скорости звука при $T = T_c$, причем ширина "ступени" не превышает 0,03К. Мы получили, таким образом, объект, который можно считать "идеальным" и свойства которого с большой точностью следуют теории Ландау.

В данной работе представлены результаты исследования теплоемкости кристалла ТГС, выращенного при $T > T_c$ в зависимости от дозы γ -облучения.

На рис. 1 показана температурная зависимость теплоемкости короткозамкнутого (электрическое поле $E = 0$) кристалла ТГС — необлученного и облученного дозами $D = 0,1$ и $0,3$ мр. Видно, что аномалия теплоемкости необлученного кристалла имеет вид "ступени" шириной $0,02 + 0,03$ К, т. е. близкой к данным, полученным по измерениям скорости звука в [2].

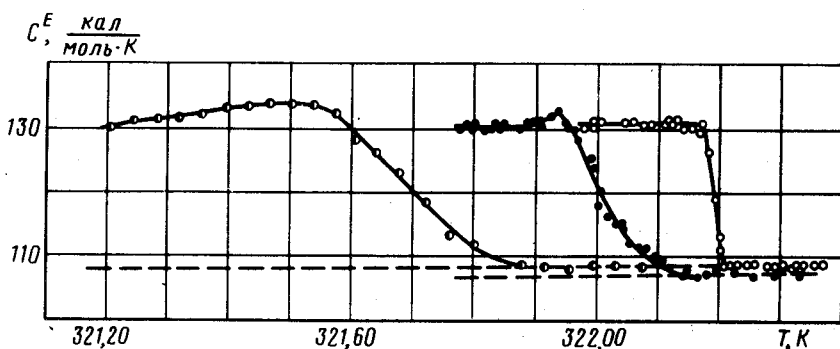


Рис. 1. Температурная зависимость теплоемкости кристаллов ТГС, выращенных при $T > T_c$ для доз облучения: ○ — $D = 0$ мр, ● — $D = 0,1$ мр, ◻ — $D = 0,3$ мр

Под действием γ -облучения наблюдается смещение точки фазового перехода в сторону низких температур ($dT_c/dD = -1,75$ К/мр); кроме того, появляется избыточная теплоемкость выше смещенной точки фазового перехода. Эволюцию зависимости $C_E(T)$ при увеличении D нельзя

трактовать как просто "размытие" фазового перехода, поскольку величина теплоемкости при $T < T_c$ в облученном кристалле несколько увеличивается.

Мы констатируем, что аномалия теплоемкости в облученном кристалле аналогична полученным ранее данным по теплоемкости кристаллов ТГС, выращенных при $T < T_c$. Это указывает на единственно возможную причину появления этих аномалий — дефекты решетки, возникающие в кристалле при облучении либо при росте кристалла в полярной фазе.

Проанализируем полученный результат в духе феноменологической теории, предложенной в [1]. Будем считать, что точечный дефект в предельно анизотропном сегнетоэлектрике с одной осью спонтанной поляризации (параметр порядка P_z) может быть задан значением поляризации P_z на сферическом ядре радиуса d .

В континуальном приближении свободную энергию системы с одним дефектом можно представить в виде:

$$F_1 = 2\pi\delta d (P_{z_0} - P_{z\infty})^2 \left\{ 1 + \frac{\pi^{1/2} d}{\delta^{1/2}} \left[1 - \frac{\delta}{8\pi r_c^2} \ln \frac{A}{16\pi} \right] \right\}, \quad (1)$$

где сохранены все обозначения, принятые в [1], кроме обозначения корреляционного параметра (в [1] $\delta \rightarrow D$).

$\Delta C^E, \frac{\text{кал}}{\text{моль} \cdot \text{К}}$

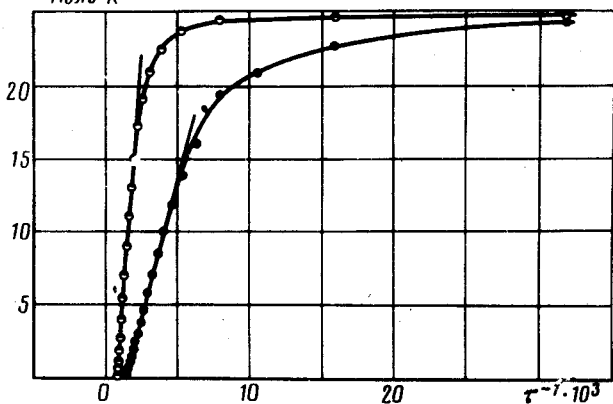


Рис. 2. Температурная зависимость теплоемкости облученных кристаллов ТГС в зависимости от τ^{-1} : ● — $D = 0,1$ мр, ○ — $D = 0,3$ мр

Если считать концентрацию дефектов N достаточно малой для того, чтобы пользоваться приближением невзаимодействующих дефектов (условие аддитивности вклада дефектов в свободную энергию), то в результате двойного дифференцирования по температуре и усреднения по системе хаотически распределенных дефектов получаем выражение для вклада дефектов в теплоемкость при $T > T_c$

$$\Delta C \approx N \frac{d^3 P_{z_0}^2 A_0^2}{4 T_c} \left(1 + \sqrt{\frac{\pi}{A_0}} \right) \tau^{-1}. \quad (2)$$

Здесь $\tau = (T - T_c)/T_c$, а $A_0 = A \tau^{-1}$ — независящая от температуры величина коэффициента при квадратичном члене в разложении в сво-

бодной энергии по четным степеням P_z . Область применимости этой формулы определяется критерием Гинзбурга — Леванюка, а также условием применимости приближения невзаимодействующих дефектов.

Отметим, что получаемая температурная зависимость $\Delta C \sim \tau^{-1}$ оказалась сильнее, чем флуктуационная, где $\Delta C \sim \ln |\tau|$ [3].

Сопоставим (2) с экспериментальными данными. Для этого построим аномальную часть теплоемкости при $T > T_c$ как функцию τ^{-1} (рис.2). Видно, что для облученных кристаллов в температурных зависимостях $\Delta C(\tau^{-1})$ имеется линейная часть; причем ее наклон увеличивается с ростом концентрации дефектов. На необлученном кристалле такая область отсутствует. Для численных оценок зададимся приближенными значениями $d \sim 5 \cdot 10^{-8}$ см размера ядра дефекта и $P_{z0} \sim 3$ мккул/см² — параметра порядка в области локализации дефекта. Тогда для концентрации дефектов получаем:

$$N = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3} \quad \text{для } D = 0,1 \text{ мр},$$

$$N = 1 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3} \quad \text{для } D = 0,3 \text{ мр}.$$

Рост концентрации дефектов с дозой облучения, равно как и сам порядок величины N свидетельствует о том, что обсуждаемые экспериментальные данные адекватны модели, рассмотренной в [1]. Эффекты, связанные со смещением точки фазового перехода вследствие изменения эффективных размеров ячейки при возникновении дефекта, не учитывались в работе [1]. Сдвиг точки перехода обусловлен при этом механическими напряжениями и пропорционален концентрации дефектов N . При больших дозах облучения ($D > 1$ мр) происходит возникновение макроскопических поврежденных областей, связанных с радиолизом вещества, быстрое "размытие" фазового перехода и уменьшение всех характерных для него аномалий.

В заключение выражаем глубокую признательность А.П.Леванюку за плодотворное обсуждение результатов.

Московский
государственный университет
им. М.В.Ломоносова

Поступила в редакцию
27 декабря 1979 г.

Литература

- [1] А.П.Леванюк, В.В.Осипов, А.С.Сигов, А.А.Собянин. ЖЭТФ, 76, 345, 1979.
- [2] Б.А.Струков, Е.Д.Якушкин. Письма в ЖЭТФ, 28, 16, 1978.
- [3] А.П.Леванюк. Изв. АН СССР, сер. физич., 29, 879, 1965.