

ОБНАРУЖЕНИЕ МЯГКОГО ОПТИЧЕСКОГО ФОНОНА В СЕГНЕТОВОЙ СОЛИ

А.А.Волков, Ю.Г.Гончаров, Г.В.Козлов, Е.Б.Крюкова, Я.Петцелт

В субмиллиметровых диэлектрических спектрах сегнетовой соли обнаружена резонансная линия поглощения ($\nu \sim 20 \text{ см}^{-1}$), формирующаяся в области низких температур ($T \lesssim 150 \text{ К}$) как результат температурной эволюции уже известной релаксационной мягкой моды.

Сегнетова соль (RS) — известный сегнетоэлектрик, выделяющийся среди прочих тем, что помимо обычного фазового перехода из пара- в сегнетоэлектрическую фазу ($T_1 = 297 \text{ К}$) обладает еще одним переходом, возвращающим кристалл ниже $T_2 = 255 \text{ К}$ в неполярное состояние. Симметрия кристалла в низкотемпературной фазе та же, что и при $T > T_1$ ¹, однако нерешенным на сегодня остается вопрос о том, насколько эквивалентными являются фазы при $T < T_2$ и $T > T_1$ по микроструктуре.

Для всех трех фаз найдена мягкая мода. Впервые она наблюдалась на радиочастотах в виде критически зависящей от температуры диэлектрической релаксации² и стала со временем классическим примером мягкой моды в сегнетоэлектриках типа порядок-беспорядок. Наши же недавние диэлектрические измерения^{3,4}, выполненные на более высоких, чем в², частотах, неожиданно показали, что ситуация с мягкой модой в сегнетовой соли далека от простейшего случая. Было обнаружено, в частности, аномально быстрое увеличение частоты мягкой моды при удалении по температуре от фазового перехода T_2 (т.е. при охлаждении)¹ без заметного уменьшения ее силы осциллятора. Возник принципиальный вопрос о том, как ведет себя по температуре критическая релаксация и исчезает ли она вообще вдали от фазового перехода, что следовало бы ожидать, будь кристалл сегнетоэлектриком типа порядок-беспорядок. Данная проблема составила предмет настоящего исследования.

С помощью субмиллиметрового ЛОВ-спектрометра "Эпсилон"^{5 2)} в диапазоне частот $5 - 23 \text{ см}^{-1}$ нами измерялись спектры диэлектрической проницаемости $\epsilon'(\nu)$ и $\epsilon''(\nu)$ RS в интервале температур от комнатной до температуры жидкого азота. Результаты эксперимента, относящиеся к сегнетоэлектрической оси кристалла a , представлены на рис. 1.

При сравнительно высоких температурах, близких к T_2 , спектры $\epsilon'(\nu)$ и $\epsilon''(\nu)$ демонстрируют в области низких частот хорошо знакомую из²⁻⁴ релаксационную дисперсию (кривые 1 и 2). Однако, с понижением температуры картина качественным образом изменяется: релаксационная мода, повышаясь по частоте, превращается в возбуждение явно выраженного резонансного типа (спектры 4 и 5). При температуре жидкого азота это уже просто оптический фонон, лежащий на частоте $\nu \sim 20 \text{ см}^{-1}$, с полушириной $\sim 2 \text{ см}^{-1}$.

На рис. 2 представлены параметры резонатора, описывающего поведение мягкой моды при низких температурах, и, кроме того, приведена зависимость $\nu_1(T)$ частоты максимума линии поглощения $\epsilon''(\nu)$ как наиболее универсального в данном случае параметра, позволяющего проследить за перемещением мягкой моды по спектру во всем интервале температур. Для релаксационной модели дисперсии, заметим, ν_1 тождественна обратному времени релаксации $1/2\pi\tau$. Как видно, при охлаждении кристалла мягкая мода сначала быстро сдвигается по частоте (в интервале $255 - 180 \text{ К}$), а затем стабилизируется в спектре в районе $\sim 22 \text{ см}^{-1}$ (при $T \lesssim 120 \text{ К}$). Этот процесс сопровождается заметным уменьшением затухания G и силы осциллятора $f = \Delta\epsilon\nu_0^2$ мягкой моды.

Наблюдаемые температурные зависимости параметров мягкой моды выходят за рамки принятых для RS представлений, согласно которым мягкая мода обусловлена стохастичес-

¹⁾ Проследить за поведением мягкой моды вдали от T_1 (т.е. при существенном нагревании), к сожалению, не представляется возможным, так как уже при температурах $\sim 330 \text{ К}$ кристалл разлагается.

²⁾ ЛОВ — лампа обратной волны.

ким движением сегнетоактивных частиц в независимом от температуры асимметричном двухминимумном потенциале (модель Мицуи ⁶). Превращение релаксационной мягкой моды в оптический фонон означает, что движение частиц между локальными минимумами потенциала прекращается. Есть две возможности реализации такой ситуации: 1) частицы локализируются в одном, более глубоком потенциальном минимуме (похожий случай теоретически рассматривался в работе ⁷), 2) при понижении температуры происходит увеличение асимметрии потенциала и исчезновение менее глубокого потенциального минимума.

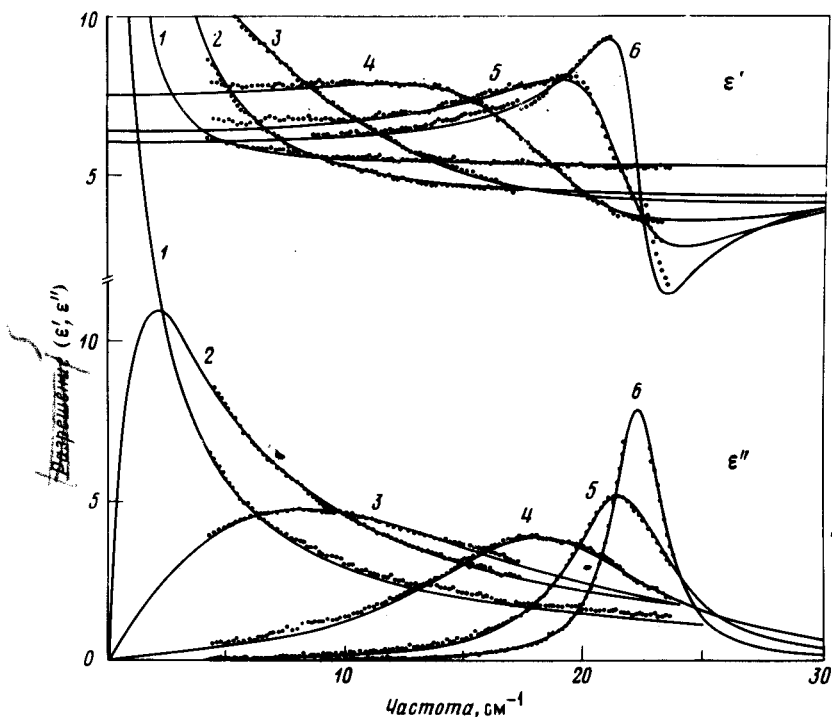


Рис. 1. Субмиллиметровые диэлектрические спектры сегнетовой соли при температурах: 1 – 280 К, 2 – 218 К, 3 – 187 К, 4 – 150 К, 5 – 114 К, 6 – 80 К. Точки – эксперимент, сплошные линии – результат подгонки одноосцилляторной модели (параметры на рис. 2)

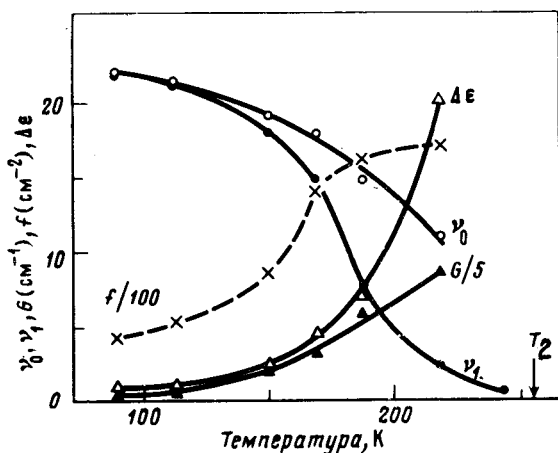


Рис. 2. Температурные зависимости параметров мягкой моды в сегнетовой соли: частоты ν_0 , диэлектрического вклада $\Delta\epsilon$, затухания G , силы осциллятора $f = \Delta\epsilon\nu_0^2$ и частоты максимума линии поглощения ν_1

Особенность явления в обоих случаях состоит в том, что оно имеет место в системе с двумя зеркально-симметричными подрешетками. В результате с понижением температуры разупорядоченность сегнетоактивной подсистемы постепенно сменяется ее антисегнетоэлектрическим упорядочением.

Можно предположить, что изменение формы потенциала в некоторых кристаллах типа сегнетовой соли может происходить, начиная с температур, превышающих T_2 . В этой ситуации фазовый переход T_2 будет отличаться по своему характеру от перехода T_1 и являться скорее переходом типа смещения, нежели порядок-беспорядок. Исследование возможности реализации разных типов фазовых переходов в кристаллах семейства сегнетовой соли, на наш взгляд, представляет собой новый аспект в изучении систем с асимметричным двухминимумным потенциалом.

Литература

1. *Jona F., Shirane G.* Ferroelectric crystals. Pergamon Press, Oxford etc., 1962.
2. *Sandy F., Jones R. V.* Phys. Rev., 1968, 168, 481.
3. *Волков А.А., Козлов Г.В., Лебедев С.П.* ЖЭТФ, 1980, 79, 1430.
4. *Волков А.А., Козлов Г.В., Лебедев С.П.* ФТТ, 1982, 24, 555.
5. *Kozlov G. V., Prokhorov A. M., Volkov A. A.* Advances in Science and Technology in the USSR. Mir Publishers, Moscow, 1984, p. 19.
6. *Mitsui T.* Phys. Rev., 1958, 111, 1259.
7. *Onodera Y.* Progr. Theor. Phys., Kyoto, 1970, 44, 1477.

Институт общей физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
1 ноября 1984 г.