

УДК 537.226.4

© 1990

СЛАБЫЕ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКИ: ПОВЕДЕНИЕ СКОРОСТИ И ЗАТУХАНИЯ ГИПЕРЗВУКА ПРИ РАЗЛИЧНОЙ СТЕПЕНИ «СЛАБОСТИ»

И. Г. Синий, А. И. Федосеев, М. Д. Волнянский

В слабых сегнетоэлектриках TSCC и LGO ($\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15}$) в области T_c проанализированы акустические аномалии, исследованные методом рассеяния Мандельштама—Бриллюэна. Обычные для продольных фонаров скачки скорости гиперзвука оказались существенно модифицированными за счет флуктуационного вклада и влияния дисперсии, особенно в LGO. При сравнении результатов для фонаров с $q \perp P_s$ и $q \parallel P_s$ в каждом кристалле выявлено специфическое для слабых сегнетоэлектриков кроссоверное поведение скорости и затухания гиперзвука, а при сравнении TSCC и LGO — качественные изменения в условиях «слабости» различной степени. В LGO обнаружено расщепление максимума затухания на релаксационную и флуктуационную компоненты за счет дисперсии; такое явление в поведении гиперзвука ранее не наблюдалось.

В недавней работе [1] был введен в рассмотрение новый класс сегнетоэлектриков — слабые сегнетоэлектрики. Представители этого нового класса обладают весьма специфическими свойствами, в том числе и необычным поведением скорости и затухания звука в области фазового перехода в сегнетоэлектрическую фазу. Именно исследования акустических аномалий, выполненные с помощью рассеяния Мандельштама—Бриллюэна, внесли решающий вклад в понимание своеобразия динамики фазового перехода в кристаллах TSCC — первом представителе соединений нового класса [2]. Недавно еще несколько соединений было предположительно отнесено к новому классу [1, 3]. Среди них — кристаллы LGO $\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15}$. Сопоставление результатов, полученных для LGO и TSCC, представляется особенно интересным, поскольку два этих кристалла, относимые нами к одному классу слабых сегнетоэлектриков, обладают различной степенью «слабости».

Переход в сегнетоэлектрическую фазу в LGO ($D_{2h}^{14} - C_2^6$) был обнаружен давно [4] и исследовался во многих работах и различными методами [5–8]. Свойства этого кристалла оказались достаточно необычными. В качестве примера можно отметить узкий максимум диэлектрической проницаемости с малым пиковым значением [4–8] и смену знака спонтанной поляризации при некоторой температуре в сегнетофазе [8]. Вопрос о динамике фазового перехода имеет решающее значение в такой ситуации, но он оставался до конца неясным. Убедительные данные в пользу перехода, индуцируемого ИК активной модой в центре зоны Бриллюэна, в случае LGO, так же как и в случае TSCC, были представлены субмиллиметровой инфракрасной спектроскопией [9, 10]. Однако, считая вопрос о типе перехода (скажем для общности — псевдособственный) решенным, мы пока еще не имеем достаточной совокупности опубликованных данных, позволяющих уверенно отнести LGO к слабым сегнетоэлектрикам. При исследовании акустических свойств кристалла в области перехода ультразвуковыми методами [4, 5] и с помощью рассеяния Мандельштама—Бриллюэна [11] не выявлено той специфики, которая, как утверждается в [1, 2], должна быть свойственна слабым сегнетоэлектрикам. Выявление специфики, как оказалось, требует более тонких экспериментов, и настоящая работа как раз

и была ориентирована на это. Сравнение данных для LGO и TSCC позволяет, как нам кажется, не только показать общность поведения слабых сегнетоэлектриков, но и лучше подчеркнуть характерные особенности LGO, которые, по-видимому, препятствовали выявлению специфики слабого сегнетоэлектрика в акустических свойствах в первых экспериментах.

1. Методические замечания

Скорость и затухание продольных гиперзвуковых фононов в TSCC и LGO получены из сдвига компонент Мандельштама—Бриллюэна и их ширины. Мандельштам—брюллюэновское рассеяние света исследовалось преимущественно в 180° геометрии, с тем чтобы получать данные для наиболее высокочастотных фононов, предельно достижимых в данном методе, с волновым вектором $\mathbf{q}_\phi = 2\mathbf{k}$, где \mathbf{k} , отвечает возбуждающей линии аргонового лазера, $\lambda = 488.0$ нм.

Рассеянный свет анализировался трехходовым интерферометром Фабри—Перо с пьезосканированием и автоматической регулировкой параллельности пластин интерферометра, поддерживающей оптимальную остроту прибора на уровне 50. Это позволило использовать схему накопления сигнала, что было особенно важно при измерении параметров сильно затухающих фононов в области фазового

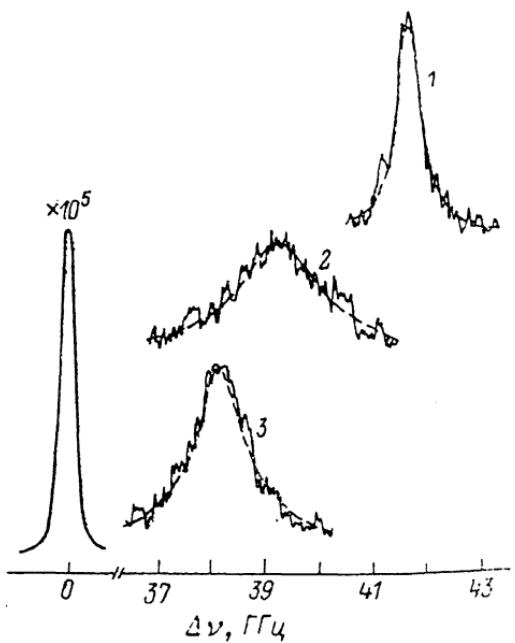


Рис. 1. Фрагменты спектров рассеяния Мандельштама—Бриллюэна в LGO, демонстрирующие аномальное уширение фоновых линий в окрестности фазового перехода при $T_c = 283.5$ К.

Т, К: 1 — 289.2, 2 — 283.7, 3 — 278.0.

перехода в LGO. Отметим, что эта узкая область вблизи T_c оказалась недоступной для ультразвуковых измерений, по-видимому, как раз из-за сильного затухания [4, 5]. Температурные измерения проводились при постепенном, медленном охлаждении образцов парами азота. Точность поддержания заданной температуры была не хуже 0.05 К.

Несколько спектров, иллюстрирующих поведение компонент Мандельштама—Бриллюэна в LGO при переходе через T_c , приведены на рис. 1. Спектры соответствуют рассеянию света на продольных акустических фононах, распространяющихся вдоль оси с кристалла, которая становится полярной осью в сегнетофазе.

2. Анализ скачков скорости, вклад флуктуаций, кроссовер

Рассеяние Мандельштама—Бриллюэна в TSCC продемонстрировало весьма специфическую температурную зависимость для скорости и затухания гиперзвуковых волн, распространяющихся в сегнетофазе вдоль полярной оси. Действительно, для продольных гиперзвуковых волн обнаружены вблизи T_c скачкообразная аномалия для скорости с минимумом, существенно сдвинутым в сегнетоэлектрическую фазу [2], и «расщепление» максимума затухания на две компоненты: одну в точке перехода T_c и другую, несколько сдвинутую от T_c в сегнетофазу [12]. Соответствующие экспериментальные зависимости для TSCC приведены на рис. 2, 3

в наиболее интересном участке температур вблизи T_c , оси 1, 2, 3 выбраны вдоль направлений c , b , a в кристалле, $b \parallel P$. Следует отметить, что такое поведение принципиально отличается от ожидаемого для одноосных сегнетоэлектриков, таких, например, как TGS, к типу которых долгое время относили TSCC. В одноосных сегнетоэлектриках деполяризующее макроскопическое поле подавляет в рассмотренной геометрии и скачок скорости в T_c , и релаксационный пик затухания [13, 14].

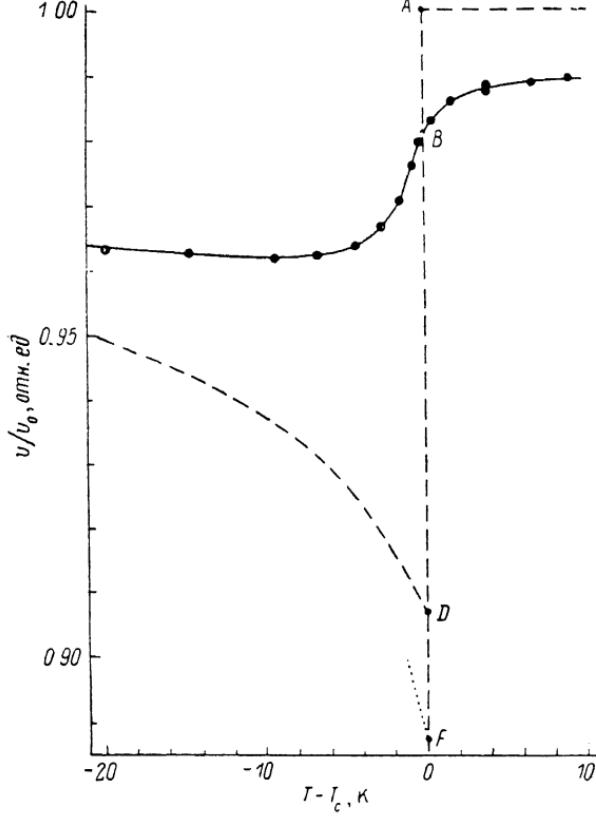


Рис. 2. Температурная зависимость относительного изменения скорости продольных акустических фононов с $q_\phi \parallel P$ в TSCC.

Отмеченная выше специфика акустических свойств слабого сегнетоэлектрика проявляется при сопоставлении результатов для гиперзвуковых волн, распространяющихся вдоль и перпендикулярно полярной оси. Рассмотрим последнюю геометрию сначала на примере TSCC (рис. 4). В этой геометрии уже не проявляется специфика ни одноосного сегнетоэлектрика типа TGS, ни слабого сегнетоэлектрика типа TSCC, т. е. поведение всех кристаллов унифицируется. Для скорости ультразвука и гиперзвука в области фазового перехода ожидается обычная ступенчатая аномалия, если, как в нашем случае TSCC и LGO, взаимодействие определяется членом типа $Q_i \eta^2 u_i$, квадратичным по параметру порядка и линейным по деформации (Q_i — электрострикционный коэффициент). Затухание проявляется в виде типичного асимметричного максимума, определяемого механизмом Ландау—Халатникова.

Для анализа изменения скорости гиперзвука в TSCC в сегнетофазе воспользуемся формулой из [2]

$$\Delta v_s \sim -2Q_i^2 (\beta^2 - 4\alpha\gamma)^{-0.5} [1 + (\omega\tau)^2]^{-1} = \\ = -(2Q_i^2/\beta) [1 - (T - T_c)/n]^{-0.5} [1 + (\omega\tau)^2]^{-1}, \quad (1)$$

в которой учитывается не только дисперсия за счет члена $\omega\tau$, но и включены коэффициенты $\alpha = \alpha'(T - T_c)$, β и γ при членах с η^2 , η^4 , η^6 в разложении

нии термодинамического потенциала, т. е. мы учтываем близость фазового перехода к трикритической точке [2, 15]. Поэтому при $\omega\tau \ll 1$ из (1) для $v_3(T)$ получаем обратную корневую зависимость от температуры,ирующую к $T_c = T_c + n$, $n = \beta^2/4a'\gamma$. Для оценки скачка Ландау $\Delta v_s \sim -2Q_1^2/\beta$ воспользуемся линейной экстраполяцией поведения $v(T)$ от $\sim 2T_c$ сверху до $\sim T_c/2$ снизу при $T_c = 130.8$ К. Для столь широкого интервала мы в общем не вправе ограничиваться в (1) только одним зависящим от температуры коэффициентом. Однако мы полагаем, что для наших целей сравнения поведения $v_3(T)$ и $v_2(T)$ это можно допустить. Опираясь на экстраполированное поведение «исходной» величины $v_3(T)$ и используя $n = -8.5$ К, получаем на рис. 4 точку D. Экстраполяция сверху выявляет дополнительный вклад $\Delta v_{\phi} \sim AB$ в аномалию скорости в T_c , который мы связываем с флуктуациями.

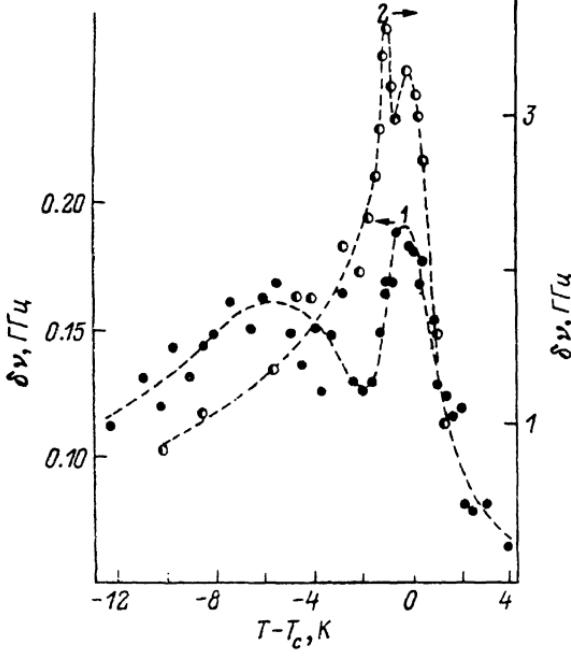


Рис. 3. Температурная зависимость затухания продольных акустических фононов с $q_\phi \parallel P_s$ в TSCC (1) и LGO (2).

Приведена ширина δv компонент Мандельштама—Брэллюэна, приборное уширение вычленено.

Скачок Δv_s можно оценить и другим способом. Условие $\omega\tau \approx 1$ достигается в TSCC при измерении $v_3(T)$ в 180° геометрии, т. е. для $\Delta v \sim 23$ ГГц, на расстоянии $\Delta T \sim 0.6$ К от T_c . Этой температуре соответствует максимум релаксационного затухания, и здесь, согласно (1), достигается половина скачка Ландау для скорости гиперзвука. Тогда, пренебрегая на таком малом ΔT изменением флуктуационного вклада и температурной зависимостью $v_3(T)$ вследствие близости к трикритической точке, мы оцениваем полный скачок и в результате получаем на рис. 4 точку F. На расстоянии $T_c - T > 5$ К влиянием дисперсии можно пренебречь, поскольку уже при $T_c - T \approx 5$ К множитель $1/[1 + (\omega\tau)^2] \approx 0.99$, т. е. результаты измерений для гиперзвука и ультразвука должны совпадать. Поэтому экстраполяция $v_3(T)$ в точку F, казалось бы, должна отвечать измерениям на частотах, удовлетворяющих $\omega\tau \ll 1$. Однако мы не рассматривали здесь дисперсию флуктуационной поправки, найденной в TSCC в [1]. Если это учесть, то можно ожидать для $v_3(T)$ в TSCC углубления минимума еще на $\sim 0.5\%$ при измерениях на частотах, для которых выполняется $\omega\tau \ll 1$.

Итак, в случае продольных акустических фононов, распространяющихся перпендикулярно полярной оси, даже в условиях значительных флуктуаций (в данных измерениях $\Delta v_{\phi} \sim 0.28\Delta v_s$ при $T = T_c$) несложно получить скачок Ландау для скорости ультразвука и гиперзвука при

экстраполяции от тех значений, которые измерены при температурах, достаточно удаленных от фазового перехода. В точке перехода получено хорошее согласие величин Δv_{ϕ} и Δv_s , найденных по результатам независимых оценок: $AB \sim \Delta v_{\phi} \simeq DF \sim \Delta v_s$, $BF \sim \Delta v_s \simeq AD \sim \Delta v_s$. Наше построение отражает значительный спад флуктуационного вклада в скорость гиперзвука по мере продвижения в сегнетофазу, спад, более энергичный, чем в парафазе. Об этом можно судить, сравнивая поведение разницы между кривыми F и D в сегнетофазе и соответственно A и B в парафазе.

Рассмотрим теперь поведение скорости продольных акустических фононов, распространяющихся вдоль полярной оси (рис. 2). Экстраполяция со стороны высоких температур дает отрезок $AB \sim \Delta v_{\phi}$. Далее

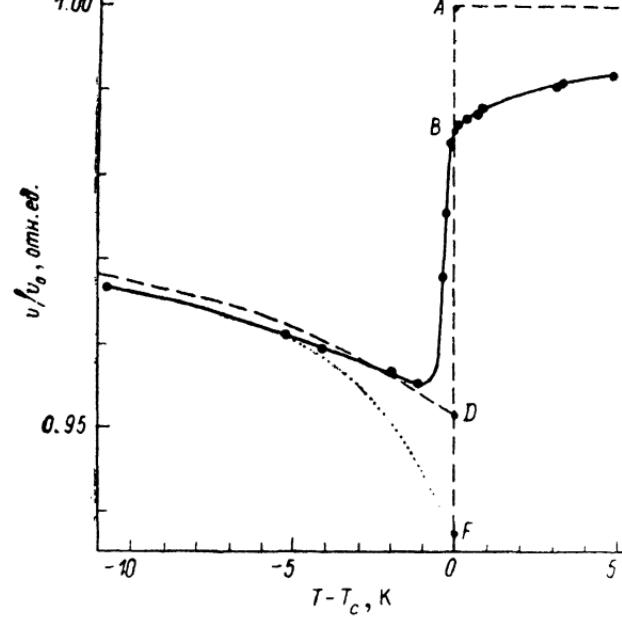


Рис. 4. Аномалия скорости гиперзвука для продольных акустических фононов с $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{a} \perp \mathbf{P}_s$ в TSCC.
Обозначения те же, что и на рис. 2

мы учтем результаты предыдущего построения. Построение по (1) с $n = -8.5 \text{ К}$ дает зависимость D , которая противоположна тенденции экспериментальной кривой и отсекает слишком большой отрезок Δv_s , не согласующийся, на первый взгляд, с экспериментом. Отметим, однако, что в итоге соотношение $\Delta v_\phi \sim 0.26 \Delta v_s$ (отношение AB/AD) сохраняется на том же уровне, что и в предыдущем случае. Сравнивая Δv_s в двух наших геометриях, получаем электрострикционные константы одного порядка $Q_2 \sim 1.2 Q_3$. Учитывая флуктуации, мы можем восстановить гипотетический ход $v(T)$ в сегнетофазе, идущий в точку F , так что $AF = AD \sim \Delta v_s + DF \sim \Delta v_\phi$. Хорошо видно, что если в предыдущем случае с $\mathbf{q}_\phi \perp \mathbf{P}_s$, подобные построения согласуются с экспериментом (рис. 4), то теперь (рис. 2) для фононов с $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$ режимы D и F не коррелируют с поведением экспериментальных точек.

Согласно теоретическому рассмотрению [1-3], отличительной чертой слабых сегнетоэлектриков является наличие кроссовера в динамике параметра порядка от изингвского типа к дипольному. Ступенчатая аномалия вблизи T_c на температурной зависимости скорости продольных акустических фононов, распространяющихся вдоль полярной оси, является следствием кроссовера. Экстраполяционные зависимости D и A на рис. 2 выступают в роли своеобразных асимптотических режимов. В температурном интервале $T_c/2 \div T_c$ осуществляется режим кроссовера: эксперимен-

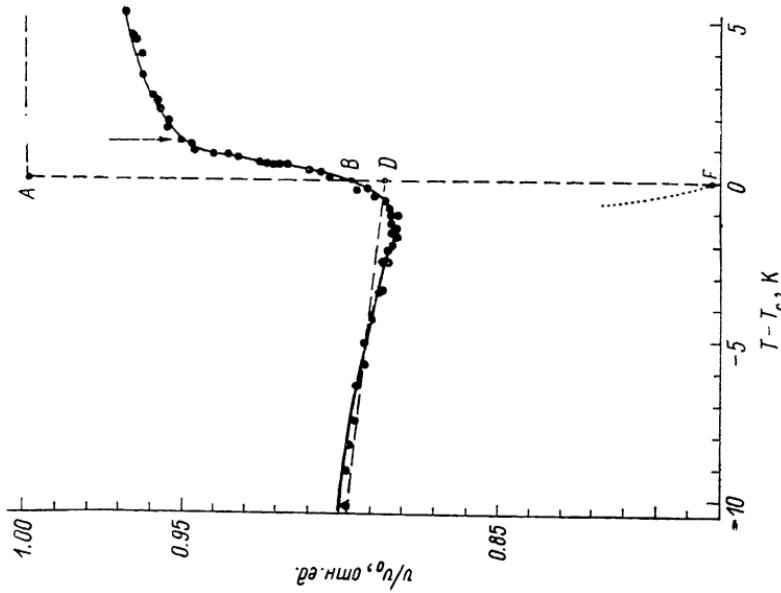


Рис. 5. Температурная зависимость относительного изменения скорости продольных акустических фононов с $\mathbf{q}_\Phi \parallel \mathbf{P}$, в LGO, аналогичная рис. 2.

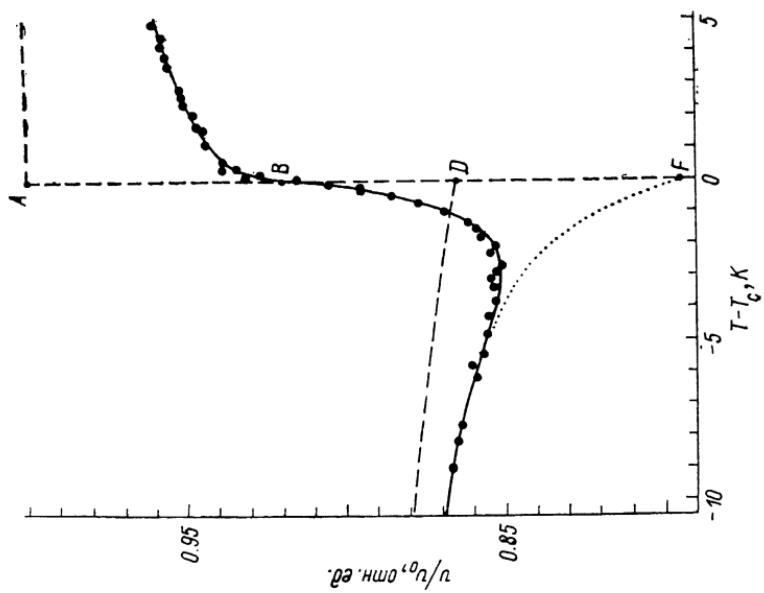


Рис. 6. Аномалия скорости гиперзвук для продольных акустических фононов с $\mathbf{q}_\Phi \parallel b_\perp P$, в LGO, аналогичная рис. 4.

тальная зависимость скорости переходит от режима D , характерного для изинговской области, к режиму A , характерному для дипольных сегнетоэлектриков. Режим типа A , в котором отсутствует соответствующая аномалия скорости звука в T_c , известен для одноосных сегнетоэлектриков типа TGS. Аналогичным образом смена режимов проявляется и в расщеплении максимума затухания для рассматриваемых фононов (рис. 3). Компонента, сдвинутая в сегнетофазу, представляет собой часть релаксационного максимума, искаженного кроссовером, а компонента при $T = T_c$ определяется флуктуационным механизмом. Таким образом, рис. 2, 3 демонстрируют специфическое поведение скорости и затухания гиперзвукка с $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$ в условиях кроссовера в конкретном случае TSCC, в котором параметр кроссовера $T_k \approx 7$ К. Последний определяется как $T_k = C/\epsilon^*$, где C — постоянная Кюри—Вейсса, ϵ^* — фоновая диэлектрическая проницаемость [2].

Теперь перейдем к кристаллам LGO. Результаты для соответствующих скоростей гиперзвукка представлены в относительных единицах на рис. 5, 6, оси 1, 2, 3 выбраны вдоль направлений a , b , c в кристалле, $\mathbf{c} \parallel \mathbf{P}_s$. Поведение продольных гиперзвуковых волн, распространяющихся вдоль полярной оси, подобно тому, которое характерно для слабых сегнетоэлектриков: сдвинутый в сегнетофазу минимум скорости (рис. 5) подкрепляется еще наличием двух максимумов затухания (рис. 3). Однако ситуация осложняется тем, что для фононов с $\mathbf{q}_\phi \perp \mathbf{P}_s$, наблюдаются аналогичное поведение скорости (рис. 6) и неожиданно аналогичное, на первый взгляд, расщепление максимума затухания (рис. 7). Это заставляет провести принципиальный анализ. Как мы видели, в TSCC при $T_k = 7$ К хорошо заметно различие для случаев с $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$ и $\mathbf{q}_\phi \perp \mathbf{P}_s$. В LGO найдено исключительно низкое значение константы Кюри—Вейсса, результаты для $T > T_c$: 2.05 [6], 4.6 [7], 3.2 [8], 2—4 К [16] при $\epsilon^* = 7.13$, 8.7, 7.3 и 7.3—7.6 в тех же работах соответственно, т. е. для T_k имеем 0.3—0.5 К. В таком случае дипольная область в LGO должна быть значительно уже, чем в TSCC. Тогда действительно можно ожидать, что различие в поведении скорости акустических фононов с \mathbf{q}_ϕ вдоль и перпендикулярно \mathbf{P}_s , будет минимальным. Тем не менее, воспользовавшись подходом, развитым для TSCC, попробуем и в LGO найти кроссоверное поведение скорости гиперзвукка с $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$. Поведение затухания будет рассмотрено отдельно.

Сначала рассмотрим вариант $\mathbf{q}_\phi \perp \mathbf{P}_s$ (рис. 6). Линейная экстраполяция поведения $v_2(T)$ от 600 К $> 2T_c$ дает точку A и определяет $\Delta v_{\phi z} \sim AB$. Экстраполяция от 130 К $< T_c/2$ по (1) с $n=45$ К для $\omega\tau \ll 1$ дает скачок $\Delta v_z \sim AD$. Учитывая дисперсию, фактор $1/(1 + [\omega\tau]^2)$ в (1), восстанавливаем скачок $\Delta v_z \sim BF$ и получаем для оценки вклада флуктуаций $\Delta v_{\phi z} \sim DF$. Как можно видеть, $AB \approx DF$ и $AD \approx BF$, т. е. в LGO, как и в TSCC для аналогичной геометрии имеем разумное согласие оценок с экспериментом, но с той лишь разницей, что вклад в скачок, отнесенный нами на счет флуктуаций, необычайно высок: $\Delta v_{\phi z} \sim 0.6\Delta v_z$. Отметим, что $n=45$ К указывает на фазовый переход, достаточно удаленный от трикритической точки. Это согласуется с результатами диэлектрических измерений: отношение констант Кюри—Вейсса выше и ниже T_c составляет 1.78 [6], 2 [7, 16] и 4 только в [8]. Последний результат, по-видимому, не совсем корректен, поскольку и пиковое значение ϵ_c было минимальным (всего ~ 20), в то время как в [16] $\epsilon_c \sim 140$.

Для варианта $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$ в LGO (рис. 5) аналогичные экстраполяции дают картину, принципиально отличающуюся от предыдущего случая. Экспериментальные точки отходят от режима D под влиянием кроссовера, но в значительно меньшей степени по сравнению с TSCC. Это естественно, поскольку параметры T_k в TSCC и LGO различаются более чем на порядок. Отметим, что и в этом варианте $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$ «смягчение» скорости,

достигаемое уже в парафазе и определяемое отрезком AB , велико по сравнению со скачком $\Delta v_s \sim AD$: $AB \sim 0.9\Delta v_s$. Сравнивая найденные Δv_s в двух геометриях для LGO, получаем $Q_2 \sim Q_3$. В целом в LGO экспериментальная зависимость скорости продольных акустических фононов, распространяющихся вдоль полярной оси, оказывается сложной, из-за того что на поведение, определяемое кроссовером, накладывается большой флуктуационный вклад.

Итак, несомненно, что в LGO существует флуктуационный вклад в смягчение скорости гиперзвука, который легко выделяется в параполарической фазе (рис. 5, 6) и который существенно больше, чем в TSCC. Для анализа поведения этого вклада вблизи фазового перехода существенным оказывается точное знание температуры T_c . В TSCC T_c определялась по положению флуктуационного максимума затухания (рис. 3). По аналогии с TSCC естественно связать первый максимум затухания в LGO со стороны высоких температур с флуктуационным механизмом, что дает возможность указать положение T_c на температурной зависимости скорости гиперзвука, представленной на рис. 5, 6. После этого становится очевидным, что только флуктуации не в состоянии описать полного смягчения скорости гиперзвука, которое резко возрастает по мере приближения к T_c со стороны парапарапаральной фазы (перегиб отмечен стрелкой на рис. 5). Причины такого поведения остаются пока неясными. На данном этапе можно предполагать, что в узкой области вокруг T_c в LGO существует заметный вклад дефектов в критическую часть температурной зависимости как скорости, так и затухания гиперзвука.

Таким образом, тщательный анализ аномалий скорости гиперзвука в LGO позволил выявить специфику, характерную для слабых сегнетоэлектриков: не только ступенчатую аномалию для скорости фононов $c' \propto \frac{1}{P}$, известную и из ультразвуковых измерений [4, 5], но и кроссоверное поведение. Анализ осложняется наличием большого вклада флуктуаций (и дефектов?), а также дисперсии. Дело в том, что в LGO температурный интервал дипольной области (с $\omega \tau \geq 1$) и области развитых флуктуаций (плюс вклад дефектов) оказался одного масштаба. Отметим, что в TSCC область дисперсии, где $\omega \tau \geq 1$, значительно уже области кроссовера, так что дисперсией можно практически пренебречь при анализе специфического для слабого сегнетоэлектрика поведения скорости и затухания гиперзвука в окрестности фазового перехода.

3. Дисперсия и «расщепление» максимума затухания

Расщепление максимума затухания в LGO для гиперзвуковых фононов, распространяющихся перпендикулярно полярной оси (рис. 7), не может быть связано со спецификой слабого сегнетоэлектрика, возникает в рамках обычной аномалии, обвязанной взаимодействию типа $Q\tau^2 u$, и ранее, насколько нам известно, никогда не наблюдалось.

В рассматриваемых кристаллах температурная зависимость затухания продольных акустических фононов в области T_c является в общем случае суперпозицией двух максимумов — релаксационного и флуктуационного. Например, это хорошо известно для TGS [14], где специфика одностороннего сегнетоэлектрика как раз позволяет наблюдать для продольных ультразвуковых волн, распространяющихся вдоль полярной оси, почти симметричный слабый максимум, приписанный флуктуациям. По-видимому, в этой ситуации существенным оказывается и вклад дефектов. В других геометриях для ультразвука, перпендикулярного полярной оси, остается только сильный релаксационный пик, значительно превосходящий флуктуационный, так что выделить последний в таких условиях не удается.

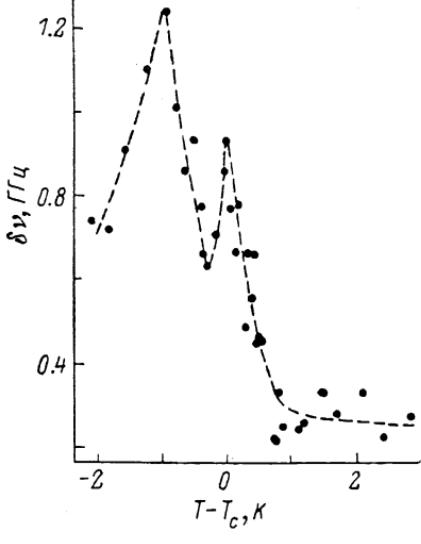
Поэтому мы полагаем, что именно наличие дисперсии создает благоприятные условия для расщепления максимума затухания в LGO для

фонов с $\mathbf{q}_\phi \perp \mathbf{P}$, при измерении рассеяния Мандельштама—Бриллюэна. Максимум, сдвинутый в сегнетофазу, естественно приписать релаксационному затуханию. В максимуме выполняется условие $\omega\tau = 2\pi\Delta\nu = 1$, в наших измерениях $\Delta\nu = 46.6$ ГГц ($\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{a}$), так что получаем $\tau \approx \approx 3.5 \cdot 10^{-12}$ с. В настоящее время мы не располагаем экспериментальными данными, достаточными для определения зависимости τ от температуры. Для фазового перехода в LGO, не близкого, как мы видели, к трикритической точке, можно предположить $\tau \sim (T_c - T)^{-1}$. Учитывая отстояние релаксационного пика от T_c , получаем $\tau \approx 3.5 \cdot 10^{-12} (T_c - T)^{-1}$ с, т. е. LGO можно отнести к кристаллам со слабой дисперсией, так же как и TSCC, где $\tau \approx 4.4 \cdot 10^{-12} (T_c - T)^{-1}$ с.

Теперь рассмотрим максимум затухания при $T \sim T_c$ (рис. 7), который по аналогии с TSCC естественно связать с флуктуациями. Отметим, что в TSCC такой максимум был обнаружен только в геометрии $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$, а связь с флуктуациями была выявлена более строго, в частности, на основании одинаковой температурной зависимости флуктуационных вкладов,

Рис. 7. Температурная зависимость затухания продольных акустических фононов, распространяющихся в LGO вдоль оси a , перпендикулярно полярной оси.

Ширина $\Delta\nu$ та же, что и на рис. 3.



выделенных в парафазе для вещественной и мнимой частей упругого модуля [12]. В TSCC флуктуационный максимум почти на порядок слабее релаксационного (приходится, правда, сравнивать разные геометрии). В геометрии $\mathbf{q}_\phi \parallel \mathbf{P}_s$, оба максимума оказываются одного порядка (рис. 3) только потому, что основная часть релаксационного подавляется по мере продвижения в дипольную область. Необычно высокая величина флуктуационного максимума в LGO, сравнимого с релаксационным, обусловлена, по-видимому, дополнительным вкладом от дефектов. Интересно отметить, что в дейтерированном кристалле DTSCC флуктуационный максимум выше, чем в чистом TSCC (рис. 3 в [17]). Можно полагать, что в DTSCC вследствие случайности в распределении дейтерия и водорода локально нарушается структура кристалла и дефекты такого рода способны проявиться дополнительным вкладом в затухание.

Зависимость релаксационного максимума затухания от частоты определяется известной формулой $\Delta\alpha_{\text{рел}} \sim \omega^2\tau/(1+\omega^2\tau^2)$ [18]. На низких частотах ($\omega\tau \ll 1$) получаем $\Delta\alpha_{\text{рел}} \sim \omega^2$, аналогичная зависимость ожидается и для флуктуационного вклада [19] при слабо затухающей мягкой моде $\Delta\alpha_{\text{фл}} \sim \omega^2(T - T_c)^{-0.5}$. Для релаксационного максимума, отвечающего $\omega\tau = 1$, получаем $\Delta\alpha_{\text{рел}}^{\max} \sim \omega$, в то время как для флуктуационной части в области $\omega\tau \gg 1$ затухание $\Delta\alpha_{\text{фл}} \sim \omega^{0.5}$ [19]. Таким образом, переход к гиперзвуковым частотам в LGO, когда область $\omega\tau > 1$ становится $\sim 1 \div 2$ К, в общем не благоприятствует выделению флуктуационного максимума на фоне релаксационного, так что можно, скорее, ожидать появления плеча на спаде релаксационного максимума, обращенного к T_c . Однако в одноосных сегнетоэлектриках [20], т. е. в нашем случае — в дипольной области вблизи T_c , флуктуационное затухание должно линейно возрастать с увеличением частоты при $\omega\tau \gg 1$, $\Delta\alpha \sim \omega$. Еще нужно учесть то, что в области передемптированной мягкой моды, в LGO — в непосредственной близости от T_c [9], флуктуационное зату-

хание должно расти [¹⁹] достаточно эффективно: от $\Delta\alpha \sim (T_c - T)^{-1}$ до $\Delta\alpha \sim (T - T_c)^{-1}$ при переходе в узкую дипольную область. Возможен, как мы уже говорили, и вклад дефектов при $T \approx T_c$. Таким образом, поведение максимума затухания гиперзвука в LGO при $T \sim T_c$, который мы называем здесь флуктуационным, определяется суперпозицией ряда эффектов, причем их вклад неаддитивен. По-видимому, в LGO сложилась удачная ситуация для наблюдения «расщепления». Наличие «структур» максимума затухания гиперзвука — явление, по-видимому, достаточно общее и может быть обнаружено в области фазовых переходов и в других соединениях. Отметим, что поведение максимума затухания гиперзвука вблизи точки λ в гелии не может быть описано релаксационной теорией Ландау—Халатникова [²¹]. Вместо релаксационного максимума, сдвигающегося с увеличением частоты, появляется максимум флуктуационного типа в T_λ . Однако состояние с явным расщеплением, видимо, не обнаруживается.

Возвращаясь к LGO и сравнивая рис. 3 и 7, мы видим теперь, что в случае $q_\phi \parallel P_s$, специфика слабого сегнетоэлектрика обеспечивает наличие релаксационного максимума, а измерения на гиперзвуковых частотах позволяют его видеть практически «в полный рост», поскольку дисперсия вытесняет этот максимум из дипольной области.

Теперь уже нет сомнений в том, что TSCC принадлежит к слабым сегнетоэлектрикам, и акустические аномалии однозначно указали на это. Однако в случае большей «слабости», такой, как в LGO, аналогичный анализ провести труднее. При сравнительном рассмотрении этих двух кристаллов подтверждается высказанная в [¹] идея о том, что в одном кристалле трудно ожидать полного набора специфических свойств слабого сегнетоэлектрика. В связи с этим можно отметить, что кристаллы LGO оказались значительно «богаче» других известных: в LGO не только обнаружена смена знака поляризации при некоторой температуре в глубине сегнетофазы [⁸] (характерная черта слабого сегнетоэлектрика), [^{1, 8}], но и проявляется кроссовер в скорости и затухании гиперзвука.

Кристаллы LGO оказались, по-видимому, первым соединением, в котором так ярко проявилась дисперсия в затухании гиперзвука. Несомненно, LGO можно в первую очередь рекомендовать для анализа флуктуационного максимума затухания в T_c , поскольку вопрос об его поведении в настоящее время нельзя еще отнести к прояснившемуся в полной мере. Кроме того, в LGO обнаружено необыкновенно сильное проявление флуктуаций вблизи T_c . Возможно, что именно по этой причине в LGO сравнительно просто удалось наблюдать флуктуационный максимум в T_c не только при $q_\phi \parallel P_s$, но и при $q_\phi \perp P_s$. Как бы то ни было, но слабый сегнетоэлектрик LGO представляется перспективным объектом для изучения природы развитых флуктуаций и, возможно, критических явлений.

Авторы выражают глубокую признательность В. В. Леманову, практически проработавшему рукопись, а также А. К. Таганцеву, Б. А. Стручкову и А. П. Леванюку за ряд ценных замечаний.

Список литературы

- [1] Таганцев А. К., Синий И. Г., Прохорова С. Д. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1987. Т. 51. № 12. С. 2082—2089.
- [2] Смоленский Г. А., Синий И. Г., Таганцев А. К., Прохорова С. Д., Миквабия В. Д., Виндиш В. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. № 3. С. 1020—1031.
- [3] Таганцев А. К. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 45. № 7. С. 352—355.
- [4] Haussühl S., Wallrafen F., Recker K., Eckstein J. // Z. Kristallogr. 1980. V. 153. N 3—4. P. 329—337.
- [5] Wada M., Sawada A., Ishibashi L. // J. Phys. Soc. Jap. 1981. V. 50. N 6. P. 1811—1812.
- [6] Preu P., Haussühl S. // Sol. St. Comm. 1982. V. 41. N 8. P. 627—630.
- [7] Wada M., Ishibashi L. // J. Phys. Soc. Jap. 1983. V. 52. N 1. P. 193—199.
- [8] Бут А. А., Веневцев Ю. Н. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 7. С. 1970—1975.

- [9] Volkov A. A., Kozlov G. V., Goncharov L. G., Wada M., Sawada A., Ishibashi L. // J. Phys. Soc. Jap. 1985. V. 54. N 2. P. 818—821.
- [10] Kozlov G. V., Volkov A. A., Scott J. F., Feldkamp G. E., Petzelt J. // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. N 1. P. 255—261.
- [11] Arai M., Arima M., Sakai A., Wada M., Sawada A., Yagi T. // J. Phys. Soc. Jap. 1987. V. 56. N 9. P. 3213—3219.
- [12] Лайхо Р., Левола Т., Прохорова С. Д., Синий И. Г., Виндш В., Тагантев А. К. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. № 7. С. 278—281.
- [13] Гегузина С. Я., Кривоглаз М. А. // ФТТ. 1967. Т. 9. № 11. С. 3095—3103.
- [14] Минаева К. А., Струков Б. А., Варнstorff K. // ФТТ. 1968. Т. 10. № 7. С. 2125—2128; Струков Б. А., Кханна С. К., Минаева К. А. // ФТТ. 1976. Т. 16. № 11. С. 3318—3327.
- [15] Sorge G., Straube U., Ivanov N. B. // Phys. St. Sol. (a). 1981. V. 65. N 1. P. 189—196.
- [16] Волнянский М. Д., Кудзин А. Ю. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 1. С. 213—215; № 10. С. 3123—3125.
- [17] Laiho R., Levola T., Prokhorova S. D., Siny I. G., Tagantsev A. K., Windsch W. / Ferroelectrics. 1968. V. 80. P. 181—184.
- [18] Ландau Л. Д., Халатников И. М. // ДАН СССР. 1954. Т. 96. № 3. С. 469.
- [19] Леванюк А. П. // ЖЭТФ. 1965. Т. 49. № 4. С. 1304—1312.
- [20] Щедрина Н. В. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 8. С. 2559—2561.
- [21] Гарланд К. Физическая акустика. Т. 7 // Под ред. У. Мезона. Р. Терстона. М., 1974.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
5 мая 1989 г.