

НИЗЬКОЧАСТОТНЕ КОМБІНАЦІЙНЕ РОЗСІЮВАННЯ СВІТЛА В КРИСТАЛІЧНИХ ПОРОШКАХ ТАНТАЛАТУ ЛІТІЮ ПОБЛИЗУ ТОЧКИ КЮРІ

С.Д. Точилін

Запорізький національний університет

вул. Жуковського. 66, м. Запоріжжя, 69604

e-mail: tochno@zsu.zp.ua

Проведено дослідження температурних залежностей спектральної інтенсивності непружного розсіювання світла в кристалах комбінаційне розсіювання світла в кристалічних порошках танталату літію.

Поблизу точки фазового переходу виявлена динамічна опалесценція. Поява динамічної опалесценції обумовлена динамічними флуктуаціями параметра порядку, її особливості пояснюються експериментальними умовами спостереження.

ВСТУП

У наш час актуальним є вивчення різного роду оптичних явищ при фазових переходах у дисперсних системах, тому що багато природніх та штучних матеріалів є саме такими об'єктами. Крім того, інтерес до дисперсних матеріалів обумовлений як перспективами їхнього застосування в сучасних нанотехнологіях, так і теоретичним осмисленням процесів, що відбуваються в такого роду системах, при структурних перетвореннях. Актуальним є також дослідження трансформації властивостей матеріалу при переході від монокристалічного стану до дисперсного.

Дослідження кристалів танталату літію (ТЛ) привели до виявлення аномалій різних фізичних властивостей цих кристалів поблизу точки Кюрі. Такі аномалії тісно зв'язані з існуванням «м'якої» оптичної моди, коливання кристалічної ґратки, частота якого перетворюється в нуль у точці переходу. Одним з методів, що дозволяють досліджувати м'які моди, є метод комбінаційного розсіювання світла (КРС). В експериментах такого роду найбільший інтерес має вивчення низькочастотного КРС поблизу точки фазового переходу кристала.

Раніш дослідження низькочастотного КРС у кристалах ТЛ проводилися в багатьох роботах, зокрема, в [1], при певних геометріях розсіювання світла. За даними роботи [1], при температурах близьких до температури Кюрі в несиметричній фазі ТЛ низькочастотний спектр КРС приймає вид континуума з максимумом на нульовій частоті й виділити яке-небудь коливання, яке виконує роль м'якої моди не виявляється можливим.

Останнім часом була запропонована нова методика [2] дослідження м'яких мод, що дозволяє визначити їхні параметри навіть у випадку передемпфірування. Ця методика заснована на одержанні та аналізі ізочастотних залежностей КРС, тобто залежностей, які реєструються при фіксованих частотах Ω в області еволюції м'якої моди при повільній зміні температури ($\Omega = \omega_0 - \omega$, ω_0 - частота збудливого випромінювання, ω - частота розсіяного світла). Аналіз складається в порівнянні експериментальних ізочастотних залежностей з теоретичними, отриманими на основі загальної теорії розсіювання світла поблизу точки фазового переходу [3].

Дослідження температурних ізочастотних залежностей для найбільш низьких частот цікаві й у зв'язку з тим, що при цьому повинна виявлятися опалесценція динамічної природи. Ефект динамічної

опалесценції (ДО) у кристалах танталату літію спостерігався нами раніше в роботі [4].

У цій роботі було поставлене завдання виконати дослідження особливостей прояву ДО в кристалічних порошках ТЛ, крім того, передбачалося вивчити зв'язок ДО в цих об'єктах з реальними характеристиками спектрального приладу.

ТЕОРЕТИЧНИЙ АНАЛІЗ

Для кількісного опису ДО нами використалася загальна теорія непружного розсіювання світла поблизу точки фазового переходу в кристалах [3]. При цьому вираз для спектральної інтенсивності розсіювання світла записується у вигляді:

$$J(\Omega, T) = \eta_0^2(T)[m(\Omega, T) + 1] \text{Im} \chi(\Omega, T), \quad (1)$$

де T - температура, $\eta_0(T)$ - температурна залежність рівноважного значення однокомпонентного параметра порядку, без обліку просторово-неоднорідних флуктуацій, $m(\Omega, T) + 1$ - фактор Бозе-Ейнштейна, $\chi(\Omega, T)$ - динамічна сприйнятливості кристала.

У випадку однієї м'якої моди вираз для динамічної сприйнятливості може бути представлений в такий спосіб:

$$\chi^{-1}(\Omega, T) = (\Omega_0^2 - i\Omega\Gamma - \Omega^2)M, \quad (2)$$

де Ω_0 - частота м'якої моди, Γ - її загасання, M - маса осцилятора.

При кількісному аналізі температурних залежностей інтенсивності непружного розсіювання світла використалися зведені ізочастотні залежності $j(\Omega, x) = J(\Omega, T)/(nT)$, де $n = \text{const}$. Згідно (1), (2) вираз для зведеної спектральної інтенсивності, у випадку релаксаційного наближення, для переходу другого роду, відповідно до [4], приймає вид:

$$j(\Omega, x) = bx(b^2x^2 + \Omega^2)^{-1}, \quad (3)$$

де $x = T_C - T$, T_C - температура Кюри, $bx = \Omega_0^2 \cdot \Gamma^{-1} = \Omega_R$, Ω_R - «частота» релаксації м'якої моди, без обліку просторово-неоднорідних флуктуацій, b - коефіцієнт.

Функція (3) при $\Omega = \text{const}$ має максимум з координатами:

$$j_0 = (2 \cdot \Omega)^{-1}, x_0 = \Omega/b. \quad (4)$$

Як слідує з (4) при $\Omega \rightarrow 0$ максимум інтенсивності j_0 непружного розсіювання світла повинен необмежено зростати в точці фазового переходу, що й відповідає ефекту ДО.

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Дослідження були виконані за оптичною схемою "на просвіт" з використанням гелій-неонового лазера ($P \cong 50$ мвт, $\lambda = 632,8$ нм) та спектрометра ДФС-24 (ширина щілин - $0,6$ см⁻¹). Дослідження проводилися в діапазоні частот $\Omega = 0-40$ см⁻¹, в інтервалі температур $\sim 600-1000$ К (точка Кюри в ТЛ $T_C = 898$ К, сегнетоелектричний фазовий

перехід при T_C -перехід другого роду [5]). Середній розмір кристалітів досліджених зразків становив значення $\cong 100$ мкм.

На рис.1 показані низькочастотні спектри КРС, отримані в кристалічних порошках ТЛ, при різних температурах. Як видно із цього рисунка, спектри КРС мають вигляд континуума з максимумом на частоті збудливого випромінювання. Його ширина та інтенсивність зростає при наближенні до точки фазового переходу та знижується при $T > T_C$. Тобто, низькочастотні спектри КРС кристалічних порошків ТЛ мають особливості, характерні для спектрів КРС, що спостерігалися раніше у кристалах танталату літію при $X(Y\bar{Y})Z$ - геометрії розсіювання [1] (у цьому випадку в спектрі КРС виявляються поперечні оптичні коливання кристалічної ґратки, до яких належить й м'яка мода).

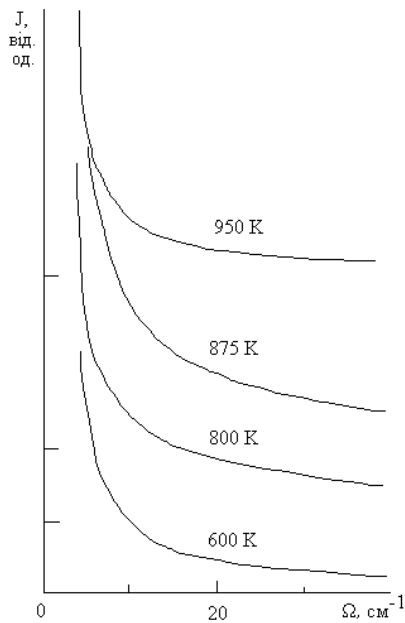


Рисунок 1 - Спектри КРС кристалічних порошків танталату літію поблизу температури фазового переходу

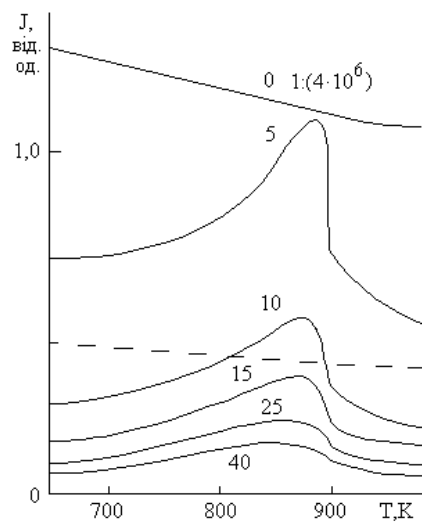


Рисунок 2 - Спостережувані ізочастотні залежності КРС для кристалічних порошків танталату літію. Цифри в кривих - частоти в $см^{-1}$. Штрихова крива - температурна залежність фону пружного розсіювання світла на частоті $\Omega = 5$ $см^{-1}$

На рис.2 наведені експериментальні ізочастотні залежності КРС - $J(\Omega, T)$, отримані для кристалічних порошків ТЛ, при різних частотах настроювання спектрометра та повільній зміні температури. Як видно із цього рисунка, залежність, отримана на частоті збудливого випромінювання ($\Omega = 0$), не має яких-небудь особливостей у дослідженому діапазоні температур, у той же час інтенсивність непружного розсіювання ($\Omega \neq 0$) перетерплює різкі зміни. У цьому випадку на спостережуваних кривих, з боку низькотемпературної фази, виявляється «крутий підйом» та виразний максимум спектральної

інтенсивності. Положення цього максимуму на температурній шкалі наближається до T_C при зменшенні частоти спостереження Ω .

В області найбільш низьких частот характер непружного розсіювання світла в кристалічних порошках ТЛ здобуває вид опалесценції, що спостерігалася раніше у монокристалах ТЛ [4]. При цьому величина максимуму залежності $J(\Omega \neq 0, T)$, при зміні частоти спостереження від 40 см^{-1} до 5 см^{-1} , зростає майже на порядок.

Як і в кристалах ТЛ, такий ефект може бути пояснений за рахунок пом'якшення кристалічної ґратки в точці переходу та класифікован як динамічна опалесценція [4]. При цьому основний внесок у ДО повинен бути обумовлений м'якою модою.

При аналізі розсіяного світла, частота якого близька до частоти збудливого випромінювання ($\Omega \cong 10 \text{ см}^{-1}$), нам необхідно було встановити вплив, паразитного сигналу пружного розсіювання ($\Omega = 0$) на корисний непружний сигнал. Для цих цілей була визначена функція $Y(\Omega)$, що характеризує рівень фону пружного розсіювання в спектрометрі на зміщених частотах ($\Omega \neq 0$). Її значення для певних частот Ω наведені в таблиці 1. При визначенні $Y(\Omega)$ у якості світлорозсіюючого об'єкта використався кристалічний порошок KCl , що характеризуються відсутністю КРС першого порядку.

Таблиця 1- Значення Y, j_0 та x_0 в залежності від Ω

$\Omega, \text{см}^{-1}$	5	10	15	25	40
Y	$8,5 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$1,5 \cdot 10^{-8}$	$4,2 \cdot 10^{-9}$	$1,4 \cdot 10^{-9}$
j_0 , відн. од. (експеримент)	294	152	100	62	42
j_0 , відн. од. формула (4)	300	150	100	60	37
x_0 , К (експеримент)	14	23	28	40	51
x_0 , К, формула (4)	9	19	28	47	75

На рис.2, у вигляді штрихової кривої зображена температурна залежність величини фону пружного розсіювання на зміщеній частоті $\Omega = 5 \text{ см}^{-1}$. Ця крива була побудована з використанням величини $Y(5 \text{ см}^{-1})$ та залежності $J(\Omega = 0, T)$. Як видно з рис.2, через наявність фону від незміщеного по частоті розсіювання ізочастотна залежність для $\Omega = 5 \text{ см}^{-1}$ виявляється зсунутою по осі ординат на величину близько 50 % від максимального значення сигналу непружного розсіювання, спостережуваного на цій частоті. Тому що пружне розсіювання не має яких-небудь особливостей у точці переходу, то можна полагати, що форма ізочастотної залежності за рахунок наявності фону змінюється несуттєво. Для залежностей $J(\Omega \neq 0, T)$ з $\Omega > 5 \text{ см}^{-1}$ внесок фону в спостережувані сигнали та викривлення форми ізочастотних кривих зменшуються.

У табл.1 також наведені експериментальні та теоретичні значення координат максимумів зведеної спектральної інтенсивності, отримані для кристалів $LiTaO_3$, для різних частот спостереження Ω . За експериментальні значення j_0 приймалася різниця між величиною

сигналу $j(\Omega, x_0)$ та рівнем шуму в парафазі поблизу T_C . Теоретичні та експериментальні дані сполучалися по координатах максимуму зведеної спектральної інтенсивності при $\Omega = 15 \text{ см}^{-1}$. Як видно з таблиці, теоретичні значення j_0 та x_0 , що розраховувались згідно з виразом (4), перебувають у задовільній згоді з експериментом.

ВИСНОВКИ

Таким чином, у цій роботі для кристалічних порошоків танталату літію експериментально встановлене різке зростання спектральної інтенсивності низькочастотного непружного розсіювання світла поблизу точки сегнетоелектричного фазового переходу. Можна вважати, що обговорюваний ефект (ДО) повинен виявлятися при досить низьких частотах для будь-яких кристалічних систем, у яких відбувається розм'якшення кристалічної ґратки в області фазового переходу.

SUMMARY

LOW-FREQUENCY RAMAN LIGHT SCATTERING IN CRYSTAL POWDERS OF LITHIUM TANTALATE NEAR TO CURIE POINT

Tochilin S.D.

Zaporizhzhya national University
66 Zhukovskogo Str., Zaporizhzhya
e-mail: tochno@zsu.zp.ua

The temperature dependences of spectral intensity for nonelastic scattering of light in crystal powders of lithium tantalate have been investigated. Dynamic opalescence have been observed near the phase transition point. Dynamic opalescence takes place due to the dynamical fluctuations of the order parameter. The dynamic opalescence features have been explained by experimental conditions of its supervision.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Penna A.P., Porto S.P.S., Chaves A.S. High temperature light scattering in Lithium Tantalate // Proc. Third Intern. Conf. on Light Scattering. -Brazil: Campinas, 1975. - P.890-894.
2. Горелик В.С., Иванова С.В. Особенности изочастотного комбинационного рассеяния света вблизи точки фазового перехода в кристаллах // Крат. сообщ. по физике ФИАН. - 1981. - № 11. - С.18-24.
3. Ginzburg V.L., Levanyuk A.P., Sobyenin A.A. Light scattering near phase transition points in solids // Phys. Reports. -1980. - V.57. - P.151-240.
4. Gorelik V.S., Tochilin S.D. Dynamic opalescence upon phase transitions and in inhomogeneous systems // Journal of Russian Laser Research. - 2003. - Vol. 24, № 4. - P.335-398.
5. Кузьминов Ю.С. Ниобат и танталат лития - материалы для нелинейной оптики. -М.: Наука, 1975. -224 с.

Точилін С.Д., кандидат фіз.-мат. наук,
доцент кафедри прикладної фізики

Надійшла до редакції 18 квітня 2008 р.