

## КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 537.94

© 1991

ВЛИЯНИЕ ГИДРОСТАТИЧЕСКОГО ДАВЛЕНИЯ  
НА ТЕМПЕРАТУРНЫЕ ЗАВИСИМОСТИ  
ВРЕМЕНИ РЕЛАКСАЦИИ  
НЕГОЛДСТОУНОВСКОГО ФАЗОНА  
В НЕСОРАЗМЕРНОЙ ФАЗЕ КРИСТАЛЛОВ  
{N(CH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>}<sub>2</sub>XCl<sub>4</sub> (X=Zn, Co, Mn)

А. В. Китык, О. М. Мокрый, О. Г. Влох

Особенности проявления неголдстоуновского фазона в упругих и диэлектрических свойствах несоизмерных сегнетоэлектриков и сегнетоэластиков неоднократно обсуждались в ряде теоретических [1, 2] и экспериментальных [3-7] работ. В соответствии с указанными работами заметный вклад неголдстоуновской фазонной моды в изменение скоростей и затухания ультразвуковых волн проявляется лишь при низкой ее частоте, что отвечает случаю кристаллов, в которых конденсация мягкой моды при переходе в несоизмерную фазу (НФ) происходит вблизи точки зоны Бриллюэна  $a^*/3$  ( $a^*=2\pi/a$  — параметр обратной решетки). Типичными примерами таких кристаллов являются  $K_2SeO_4$  [3-6],  $Rb_2ZnCl_4$  [3] и  $Rb_2CoCl_4$  [7]. В НФ последних при приближении к температуре фазового перехода в соизмерную фазу были обнаружены существенное уменьшение скорости и возрастание затухания одной из поперечных ультразвуковых волн, вызванное взаимодействием ее с фазоном. Подобные аномальные изменения скорости и затухания поперечной упругой волны  $V_4$  ( $\mathbf{q} \parallel \mathbf{Y}$ ,  $\mathbf{Z}$ ;  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{Z}$ ,  $\mathbf{Y}$ ;  $\mathbf{q}$  — волновой вектор;  $\mathbf{E}$  — поляризация волны) недавно выявлены также в группе кристаллов  $\{N(CH_3)_4\}_2XCl_4$ ,  $X=Zn, Co, Mn$  (сокращенно ТМАТХ—Х) [8-11]. Исходная парафаза указанных соединений характеризуется структурой типа  $\beta-K_2SO_4$  с пространственной группой симметрии  $D_{2h}^{16}$  и четырьмя формульными единицами в элементарной ячейке [12, 13]. Образование НФ при атмосферном давлении в кристаллах ТМАТХ—Zn (ТМАТХ—Co) связано с конденсацией мягкой моды при  $T_c=296.6$  К (293.6 К) в точке зоны Бриллюэна  $k_0 \approx 0.42a^*$  ( $0.41a^*$ ) [12]. В случае кристаллов ТМАТХ—Mn минимум мягкой фоновой ветви локализуется вблизи края зоны Бриллюэна ( $k_0 \approx 0.483a^*$ ) при  $T_c=292.3$  К [13]. Важным обстоятельством для всех соединений является обнаруженное в них существенное смещение точки конденсации мягкой моды  $k_0$  к окрестности точки зоны Бриллюэна  $a^*/3$  под влиянием гидростатического давления [14, 15]. Последнее, как показано в [8-11], сопровождается усилением фазонного вклада в упругие свойства.

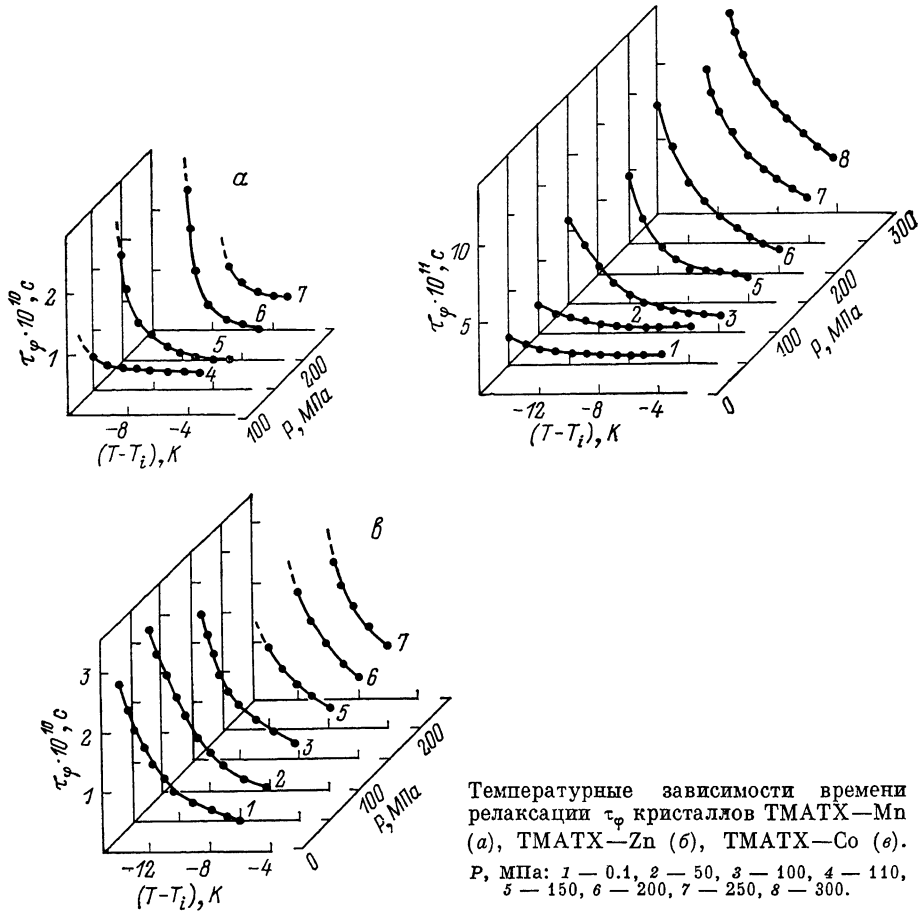
Изменение скорости и затухания ультразвуковой волны  $V_4$ , вызванное ее взаимодействием с неголдстоуновским фазоном, хорошо описываются следующими известными выражениями [3-7]:

$$\Delta V_4 = -\frac{1}{4\rho V_4} \frac{\beta^2 \rho_0^4}{\omega_\varphi^2(K) (1 + \Omega^2 \tau_\varphi^2(K))}, \quad (1a)$$

$$\Delta \alpha_4 = \frac{1}{4\rho V_4^2} \frac{\beta^2 \rho_0^4 \Omega^2 \tau_\varphi(K)}{\omega_\varphi^2(K) (1 + \Omega^2 \tau_\varphi^2(K))}, \quad (1б)$$

где  $\rho_0 \sim \sqrt{T_i - T}$  — равновесное значение амплитуды параметра порядка;  $\Omega = qV_4$  — частота ультразвука;  $\omega_\varphi^2(K) = hK^2 = h [3(k_0 - a^*/3)]^2$  и  $\tau_\varphi(K) = \Gamma_\varphi / \omega_\varphi^2(K)$  — частота и время релаксации неголдстоуновского фазона;  $\Gamma_\varphi$  — затухание мягкой моды;  $\rho$  — плотность. Из (1а) и (1б) следует соотношение, связывающее изменения  $\Delta V_4$  и  $\Delta \alpha_4$

$$\Delta \alpha_4 = \frac{\Delta V_4}{V_4} \Omega^2 \tau_\varphi. \quad (2)$$



Температурные зависимости времени релаксации  $\tau_\varphi$  кристаллов ТМАТХ—Mn (а), ТМАТХ—Zn (б), ТМАТХ—Co (в).  
 $P, МПа$ : 1 — 0,1, 2 — 50, 3 — 100, 4 — 110, 5 — 150, 6 — 200, 7 — 250, 8 — 300.

В настоящей работе, используя выражение (2), на основе ранее проведенных в [8—11] исследований влияния гидростатического давления на температурные зависимости скорости и затухания ультразвуковой волны  $V_4$  кристаллов ТМАТХ—X (X=Zn, Co, Mn) мы рассчитали зависимости  $\tau_\varphi(T)$  при различных величинах давления. Абсолютная точность определения  $\tau_\varphi$  при таких расчетах сравнительно невелика (20—30 %), что обусловлено точностью измерений затухания ультразвука (10—15 %), а также точностью выделения из зависимости  $V_4(T)$  величины вклада  $\Delta V_4(T)$  (10—15 %), вызванного взаимодействием упругой волны с фазонной модой. Вместе с тем при рассмотрении динамики решетки, а также объяснении ряда физических свойств в НФ важное значение имеет даже порядок величины  $\tau_\varphi$ , что определяет актуальность подобного рода расчетов. С другой стороны, немалый интерес представляет вид зависимости времени релаксации фазона от температуры и давления, поскольку  $\tau_\varphi$ , впрочем как и частота  $\omega_\varphi$ , непосредственно зависит от волнового вектора

модуляции  $k_0$ , претерпевающего существенные изменения под влиянием указанных факторов.

На рисунке приведены результаты расчетов зависимостей  $\tau_\varphi(T)$  при различных величинах гидростатического давления  $P$  в НФ кристаллов ТМАТХ—Mn (а), ТМАТХ—Co (б) и ТМАТХ—Zn (в). Для всех кристаллов значение  $\tau_\varphi$  определялось лишь для области температур, отдаленной на несколько градусов от  $T_c$ , поскольку в непосредственной близости к температуре этого фазового перехода величина вклада по очевидным причинам является малой. В случае кристаллов ТМАТХ—Mn зависимости  $\tau_\varphi(T)$  приведены лишь для области высоких давлений, так как при низких его значениях вклад негольдстоуновского фазона в затухание и скорость звука не проявляется [9, 11]. Как видно из рисунка, а—в, величина времени релаксации по мере удаления от  $T_c$  возрастает, причем под влиянием давления эта тенденция усиливается. В области высоких давлений зависимости  $\tau_\varphi(T)$  приведены в сравнительно узком температурном интервале, поскольку область существования НФ при этом сужается.

Полученные результаты качественно легко объясняются, если вспомнить, что  $\tau_\varphi(K) \sim \omega_\varphi^{-2} \sim h^{-1}K^{-2} \sim h^{-1} [3(k_0 - a^*/3)]^{-2}$ . Поскольку с увеличением давления и понижением температуры  $k_0$  смещается к окрестности  $a^*/3$ , то вполне очевидным становится резкое возрастание величины  $\tau_\varphi$ . В этом смысле наглядным является тот факт, что зависимости  $\tau_\varphi(T)$  для ТМАТХ—Mn и ТМАТХ—Zn в области высоких давлений являются аналогичными соответствующим зависимостям для ТМАТХ—Co при низких давлениях. Последнее вызвано тем, что в НФ точка конденсации мягкой моды  $k_0$  для кристаллов ТМАТХ—Co при атмосферном давлении является в сравнении с ТМАТХ—Mn и ТМАТХ—Zn изначально уже смещенной к точке  $a^*/3$  зоны Бриллюэна [12, 14].

#### Список литературы

- [1] Головки В. А., Леванюк А. П. // ЖЭТФ. 1981. Т. 81. № 6. С. 2296—2313.
- [2] Dvorak V., Petzelt J. // J. Phys. C: Solid State Phys. 1978. V. 11. N 10. P. 4827—4835.
- [3] Есаян С. Х., Леманов В. В. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1983. Т. 47. № 3. С. 591—597.
- [4] Есаян С. Х. // Препринт ЛФТИ. 1985. № 963, 964.
- [5] Lemanov V. V., Esayan S. Kh. // Ferroelectrics. 1987. V. 73. P. 125—144.
- [6] Rehwald W., Vonlanthen A., Krüger J. K., Wallerius R., Unruh H. G. // J. Phys. C: Solid State Phys. 1980. V. 13. N 8. P. 3823—3834.
- [7] Бржезина Б., Ванек П., Есаян С. Х., Караев А., Леманов В. В. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 9. С. 2802—2807.
- [8] Влох О. Г., Китык А. В., Мокрый О. М. // Кристаллография. 1990. Т. 35. № 4. С. 894—899.
- [9] Влох О. Г., Китык А. В., Мокрый О. М. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 4. С. 1044—1051.
- [10] Влох О. Г., Есаян С. Х., Китык А. В., Мокрый О. М. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1989. Т. 53. № 7. С. 1364—1368.
- [11] Влох О. Г., Китык А. В., Мокрый О. М. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 9. С. 2558—2562.
- [12] Mashiyama H., Hasebe K., Tanisaki S. // J. Phys. Soc. Jap. 1980. V. 49. Suppl. B. P. 92—94.
- [13] Mashiyama H., Tanisaki S. // J. Phys. Soc. Jap. 1981. V. 50. N 5. P. 1413—1414.
- [14] Gesi K. // Ferroelectrics. 1986. V. 66. N 1/4. P. 269—286.
- [15] Yonekawa S., Mashiyama H., Tanisaki S. // J. Phys. Soc. Jap. 1986. V. 55. N 1. P. 431—432.

Львовский государственный университет  
им. И. Франко

Поступило в Редакцию  
22 октября 1990 г.