

## Особенности аномального поведения диэлектрической проницаемости кристаллов $\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15}$ при фазовом переходе

© А.Ю. Кудзин, М.Д. Волнянский, М.П. Трубицын, И.А. Бусоул

Днепропетровский государственный университет,  
320625 Днепропетровск, Украина

(Поступила в Редакцию 16 марта 1998 г.)

Показывается, что температурная зависимость диэлектрической проницаемости при переходе из орторомбической парафазы в полярную фазу неудовлетворительно описывается формулой Кюри–Вейсса.

В кристаллах гептагерманата лития  $\text{Li}_2\text{Ge}_7\text{O}_{15}$  (ГГЛ) переход из орторомбической парафазы симметрии  $D_{2h}^{14}$  в полярную фазу  $C_{2v}^5$  происходит при  $T_c = 283.5 \text{ K}$  [1] без изменения параметров элементарной ячейки и сопровождается слабой аномалией диэлектрической проницаемости [2]. Как правило, физические свойства одноосных собственных сегнетоэлектриков вблизи фазовых переходов могут быть описаны в рамках теории Ландау с логарифмическими поправками, возникающими при учете флуктуаций параметра порядка и влияния действующих диполь-дипольных взаимодействий [3].

Ранее температурная зависимость диэлектрической проницаемости кристаллов ГГЛ в окрестности  $T_c$  была исследована в работе [2]. При рассмотрении характера зависимости  $\varepsilon(T)$  был сделан вывод о выполнении закона Кюри–Вейсса в узком интервале температур  $\sim 3 \text{ K}$  выше  $T_c$  приведена величина постоянной  $C = 4.6 \text{ K}$  [2]. Вместе с тем данные субмиллиметровой спектроскопии [4] указывают, что мягкая мода в ГГЛ обладает аномально малой величиной эффективного заряда. Как подчеркивалось в [5], это обстоятельство является ключевым и, обуславливая слабость дипольных взаимодействий, может приводить к заметному вкладу флуктуаций параметра порядка в аномалии физических свойств ГГЛ вблизи  $T_c$ .

В настоящей работе сообщается о результатах измерения диэлектрической проницаемости кристаллов ГГЛ в температурном интервале 273–315 K, включающем точку сегнетоэлектрического фазового перехода. Исследуемые кристаллы были выращены вытягиванием из расплава по методу Чохральского. На образцы, приготовленные в виде пластинок размером  $7 \times 7 \times 0.5 \text{ mm}$ , наносились платиновые электроды диаметром 3 mm. Измерения проводились вдоль полярной оси [001] на частоте 1 kHz. Зависимость, полученная в процессе охлаждения со скоростью  $\sim 0.2 \text{ K/min}$ , приведена на рис. 1. Диэлектрическая проницаемость проявляет четко выраженную аномалию и при температуре  $T^{\text{max}} = 283.902 \text{ K}$  достигает значения  $\varepsilon^{\text{max}} \sim 300$ . При проведении измерений на разных образцах разброс значений  $\varepsilon^{\text{max}}$  находится в пределах 250–350. Вид экспериментальной зависимости (рис. 1) и значение  $\varepsilon^{\text{max}}$ , почти на порядок превышающее величину в пике  $\varepsilon^{\text{max}} \sim 43$ , полученную в [2], свидетельствуют о высоком качестве кристаллов, исследуемых в данной работе.

С учетом того, что ниже  $T_c$  в диэлектрическую проницаемость могут вносить вклад процессы, связанные с перестройкой доменной структуры, характер экспериментальной зависимости  $\varepsilon(T)$  был проанализирован в интервале параэлектрической фазы. Численная обработка экспериментальных данных проводилась в интервале от  $T^{\text{max}} + 0.1 \text{ K}$  до  $T^{\text{max}} + 17 \text{ K}$ . В непосредственной окрестности точки перехода  $T - T^{\text{max}} < 0.1 \text{ K}$  воспроизводимость измерений  $\varepsilon$  ухудшилась, и проследить за истинным поведением диэлектрической проницаемости было сложно вследствие погрешностей температурного режима и сингулярного характера зависимости  $\varepsilon(T)$ . Со стороны высоких температур рассматриваемый интервал был ограничен, поскольку выше  $T^{\text{max}} + 17 \text{ K}$  диэлектрическая проницаемость, стремясь к насыщению, изменяется весьма слабо. В этом случае выделение аномальной части  $\varepsilon$  начинает существенно зависеть от варьирования фоновой величины  $\varepsilon_0$  в пределах, превышающих экспериментальную точность.

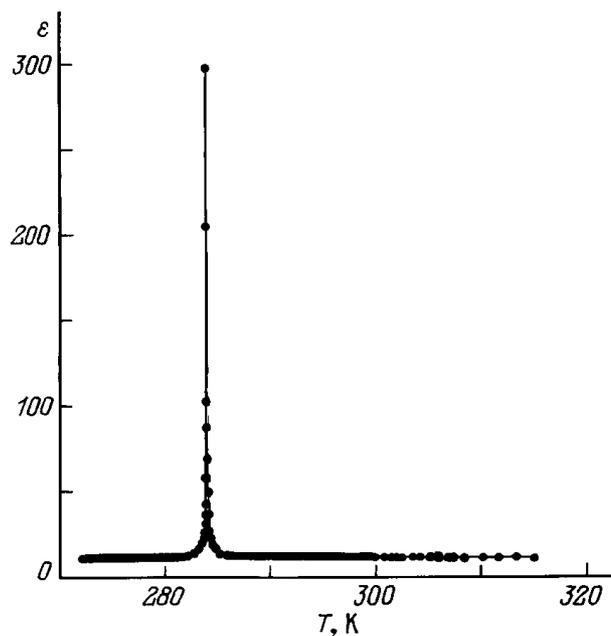


Рис. 1. Температурная зависимость  $\varepsilon(T)$ , измеренная вдоль полярной оси [001] в окрестности фазового перехода кристаллов ГГЛ.

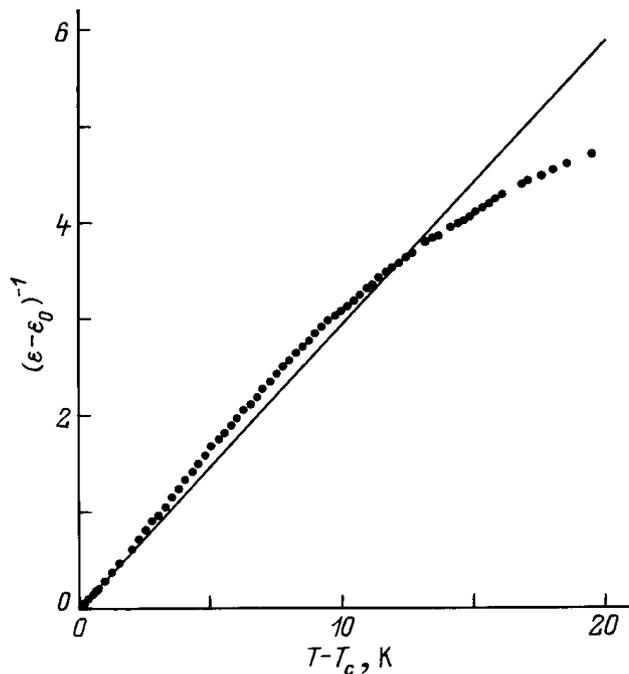


Рис. 2. Зависимость  $(\epsilon - \epsilon_0)^{-1}$  от  $T - T_c$ . Кружки — эксперимент, сплошная линия рассчитана при помощи (1).

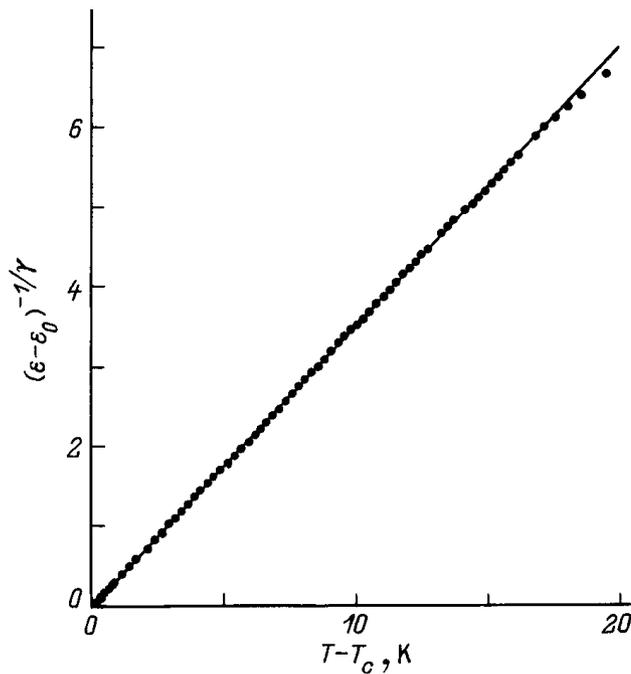


Рис. 3. Зависимость  $(\epsilon - \epsilon_0)^{-1/\gamma}$  от  $T - T_c$ . Кружки — эксперимент, сплошная линия — расчет с использованием (2).

Подгонка к экспериментальным данным соотношения Кюри–Вейсса, взятого с учетом температурного дрейфа фоновой диэлектрической проницаемости,

$$\epsilon = (\epsilon_0 + pT) + C/(T - T_c) \quad (1)$$

была проведена по методу наименьших средних квадратов. Величины параметров составили  $\epsilon_0 = 10.632$ ,  $p = 1.4 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ ,  $C = 3.393 \text{ K}$ ,  $T_c = 283.951 \text{ K}$  при значении относительной среднеквадратичной ошибки  $\sigma = 9.5 \cdot 10^{-2}$ . Полученное значение постоянной Кюри–Вейсса  $\sim 3.4 \text{ K}$  отличается от величины  $4.6 \text{ K}$ , приведенной в [12], что, очевидно, обусловлено разной протяженностью температурных интервалов, для которых проводились попытки описания поведения  $\epsilon(T)$  в рамках теории Ландау.

Для того же температурного интервала экспериментальная зависимость была описана при помощи степенного соотношения

$$\epsilon = (\epsilon_0 + pT) + A(T - T_c)^{-\gamma}. \quad (2)$$

В результате подгонки выражения (2), включающего в качестве дополнительного параметра критический индекс восприимчивости  $\gamma$ , были получены следующие значения:  $\epsilon_0 = 10.724$ ,  $p = 1.10 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ ,  $A = 3.779 \text{ K}^{-\gamma}$ ,  $\gamma = 1.261$ ,  $T_c = 283.881 \text{ K}$ . Относительная среднеквадратичная ошибка составила  $\sigma = 1.24 \cdot 10^{-2}$ .

Таким образом, использование степенного соотношения (2) привело к уменьшению величины  $\sigma$  более чем в 7 раз по сравнению с приближением (1). Графически

результаты обработки экспериментальной зависимости  $\epsilon(T)$  при подгонке выражений (1) и (2) представлены на рис. 2 и 3 соответственно.

Приведенные результаты позволяют сделать вывод о том, что диэлектрическая проницаемость вблизи фазового перехода кристаллов ГГЛ со значительно более высокой точностью описывается степенным законом (2) по сравнению с классическим соотношением (1). Следует заметить, что поведение диэлектрической проницаемости соответствует выражению (2) в существенно более широком интервале температур  $\sim 20 \text{ K}$  (рис. 3) по сравнению с областью  $\sim 3 \text{ K}$ , для которой авторами работы [2] предполагалось классическое поведение.

Величина индекса восприимчивости  $\gamma \cong 1.26$  согласуется с результатами изучения рамановского рассеяния света в кристаллах ГГЛ [6] и в пределах ошибки эксперимента  $\pm 0.01$  соответствует теоретическому значению трехмерной модели Изинга [7]. Примечательно, что вывод об изинговском типе критического поведения в кристаллах ГГЛ, полученный при изучении макроскопических свойств, подтверждается ЭПР-исследованиями локальных характеристик и приведенной в работе [8] величиной критического индекса параметра порядка  $\beta \cong 0.32$ .

Очевидно, что особенности критических явлений в кристаллах ГГЛ обусловлены "слабостью" сегнетоэлектрических свойств [5], которая приводит к доминированию черт, присущих переходам типа упорядочения, в широкой окрестности  $T_c$ .

## Список литературы

- [1] S. Haussuhl, F. Wallrafen, K. Recker, J. Eckstein. *Z. Kristallogr.* **153**, 329 (1980).
- [2] M. Wada, Y. Ishibashi. *J. Phys. Soc. Jap.* **52**, 1, 193 (1983).
- [3] Б.А. Струков, А.П. Леванюк. *Физические основы сегнето-электрических явлений в кристаллах.* Наука, М. (1983). 240 с.
- [4] A. Volkov, G. Kozlov, Yu. Gancharov, M. Wada, A. Sawada, Y. Ishibashi. *J. Phys. Soc. Jap.* **54**, 1, 818 (1985).
- [5] А.К. Таганцев. *Письма в ЖЭТФ* **45**, 7, 352 (1987).
- [6] G.Y. Shitov, P.N. Timonin, V.I. Torgashev, L.T. Latush, Y.I. Yuzyuk. *Phase Trans.* **46**, 143 (1994).
- [7] Г. Стенли. *Фазовые переходы и критические явления.* Наука, М. (1973). 419 с.
- [8] М.П. Трубицын. *ФТТ* **40**, 1, 114 (1998).