

06,11

# Диэлектрическая восприимчивость кристалла дейтерированного KDP из эксперимента по комбинационному рассеянию света и в рамках приближения кластеров

© В.А. Абалмасов, А.М. Пугачев, Н.В. Суровцев

Институт автоматики и электрометрии СО РАН,  
Новосибирск, Россия

E-mail: lab21@iae.nsk.su

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 4 декабря 2010 г.)

Для описания температурной зависимости статической диэлектрической восприимчивости из эксперимента по комбинационному рассеянию света в сегнетоэлектрическом кристалле дейтерированного KDP (DKDP) использовано приближение кластеров в рамках микроскопической теории среднего поля. Найдены оптимальные значения параметров приближения кластеров, при которых наблюдается хорошее согласие с экспериментальными данными в широком диапазоне температур. Эти значения оказываются сравнимы с оценками, полученными ранее при описании экспериментальных данных по кристаллу DKDP.

Работа поддержана грантом РФФИ № 09-02-00451-а.

## 1. Введение

Комбинационное рассеяние света (КРС) является действенным методом исследования микроскопической структуры вещества. Полезную информацию при этом содержит как спектральная зависимость интенсивности рассеяния, так и интегральная по частотам интенсивность КРС. Интегральная интенсивность рассеяния в центральном пике, связанная со статической диэлектрической восприимчивостью [1,2], играет особенно существенную роль при изучении сегнетоэлектрических фазовых переходов. Изучение зависимости восприимчивости от температуры и сравнение экспериментальных данных с теоретическими предсказаниями позволяют подтвердить или опровергнуть существующую теорию фазового перехода, улучшить понимание микроскопической структуры вещества и механизма сегнетоэлектричества в нем.

Несмотря на давнюю историю исследования сегнетоэлектрического перехода типа упорядочения в кристаллах калия дигидрофосфата (KDP) и дейтерированного калия дигидрофосфата (DKDP) (см., например, [3,4]), данные по зависимости статической продольной диэлектрической восприимчивости от температуры в этих кристаллах в основном относятся к узкому интервалу температур вблизи точки фазового перехода и особенно малочисленны они в сегнетофазе. Измерения для кристалла DKDP, восполняющие этот пробел, были осуществлены недавно в эксперименте по КРС в широком диапазоне температур [5].

В ряде работ температурная зависимость интенсивности центрального пика в спектрах КРС, отражающего релаксационный отклик, описывалась согласно закону Кюри–Вейса, который следует из простейшего вида феноменологической теории Ландау [6–10]. Однако теория Ландау по своему построению заведомо не может

применяться вдали от фазового перехода, где параметр порядка принимает значения, близкие к единице. Наибольшее признание среди микроскопических теорий фазового перехода, лишенных этого недостатка, в кристаллах типа KDP получила усовершенствованная теория среднего поля — четырехчастичное приближение кластеров [11,12]. В рамках этого приближения описывались данные температурной зависимости статической восприимчивости, поляризации, избыточной энтропии по результатам диэлектрических измерений [4,11–16].

Особенностью полученных в [5] уникальных экспериментальных данных явилась прежде всего существенно нелинейная зависимость обратной восприимчивости от температуры в сегнетофазе, а также большое значение отношения постоянных Кюри–Вейса в пара- и сегнетофазе, полученное при линеаризации температурной зависимости в сегнетофазе при температуре на 2 К ниже точки перехода:  $C_+/C_- \approx 40$ . Первое обстоятельство делает затруднительным описание этих данных в рамках феноменологической теории Ландау. Естественным образом возникает вопрос: насколько имеющиеся микроскопические теории кристалла KDP позволяют описать полученные в работе [5] экспериментальные данные?

В настоящей работе, предполагая, что центральный пик, наблюдаемый в работе [5], обязан своим происхождением флуктуациям поляризации, мы описываем температурную зависимость его интегральной интенсивности с помощью продольной диэлектрической восприимчивости, вычисленной в рамках приближения кластеров.

## 2. Теория

Интегральная по частотам интенсивность рассеянного света пропорциональна среднему значению квадрата

модуля свертки Фурье-компоненты флуктуации тензора диэлектрической проницаемости среды  $\Delta\varepsilon_{ij}(\mathbf{q})$  с векторами поляризации падающей и рассеянной волны  $\mathbf{e}_i$  и  $\mathbf{e}'_j$  соответственно [1]

$$I \propto \langle |\Delta\varepsilon_{ij}(\mathbf{q})\mathbf{e}_i\mathbf{e}'_j|^2 \rangle, \quad (1)$$

где  $\mathbf{k}' - \mathbf{k} = -\mathbf{q}$  — изменение волнового вектора электромагнитной волны при рассеянии.

При линейной зависимости компоненты тензора диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_{ij}(\mathbf{q})$ , участвующей в рассеянии, от поляризации  $P$  кристалла интегральная интенсивность рассеянного света оказывается пропорциональной среднему значению квадрата модуля Фурье-компоненты флуктуаций поляризации

$$I \propto \langle |\Delta P(\mathbf{q})|^2 \rangle. \quad (2)$$

Согласно флуктуационно-диссипационной теореме, флуктуации поляризации определяются статической диэлектрической восприимчивостью  $\chi(\mathbf{q})$  [1,2]:

$$\langle |\Delta P(\mathbf{q})|^2 \rangle = T \left[ \frac{\partial^2 \tilde{\Phi}}{\partial P(\mathbf{q}) \partial P(-\mathbf{q})} \right]^{-1} = T\chi(\mathbf{q}), \quad (3)$$

где  $T$  — температура в энергетических единицах,  $\tilde{\Phi} = \int \Phi dV$  — термодинамический потенциал.

Поведение восприимчивости в окрестности точки фазового перехода второго рода можно описать с помощью феноменологической теории Ландау, разлагая плотность термодинамического потенциала в ряд по параметру порядка — поляризации  $P$  — и градиенту параметра порядка,

$$\Phi = \Phi_0 - EP + \frac{A}{2}(T - T_0)P^2 + \frac{B}{4}P^4 + \frac{C}{2}(\nabla P)^2 + \dots, \quad (4)$$

где  $A, B, C$  — коэффициенты,  $E$  — электрическое поле.

При учете в таком разложении слагаемых до четвертой степени по поляризации восприимчивость  $\chi = (\partial P / \partial E)_{E \rightarrow 0}$  подчиняется закону Кюри–Вейса  $\chi = C(T - T_0)$  с соотношением постоянных Кюри–Вейса в пара- и сегнетофазе, равным  $C_+/C_- = 2$ . Подобное соотношение констант плохо согласуется с экспериментальными данными, полученными в [5], которые мы рассматриваем в настоящей работе. Отчасти это может быть связано с тем, что наблюдаемый фазовый переход в кристалле DKDP является переходом первого рода, близким к переходу второго рода, что требует от феноменологической теории рассмотрения в термодинамическом потенциале слагаемых более высоких степеней по параметру порядка. Последнее усложнение теории, равно как и учет зависимости коэффициентов ряда (4) от температуры, однако, не сильно сказывается на температурной зависимости диэлектрической восприимчивости, чтобы соответствовать экспериментальным данным [5].

Для описания поведения восприимчивости в широком диапазоне температур от точки фазового перехода

целесообразно использовать микроскопическую теорию. Описание микроскопической структуры кристалла KDP (DKDP) можно найти, например, в [11]. Данный сегнетоэлектрик относят к классу порядок–беспорядок. Ниже критической температуры  $T_c$  появляется спонтанная асимметрия заселенности минимумов потенциала для иона водорода (дейтерия в DKDP) вдоль связи O–H–O. Эта связь направлена почти перпендикулярно кристаллографической оси  $c$ , соединяющей ионы K и P, вдоль которой возникает спонтанная электрическая поляризация. При этом дипольные моменты ионов водорода в сумме по ячейке компенсируются и наблюдаемая поляризация обусловлена смещением тяжелых ионов.

Каждый атом водорода может занимать два положения (состояния  $|+\rangle$  и  $|-\rangle$ ), которым соответствует определенное значение оператора псевдоспина  $\langle \pm | \sigma^z(\mathbf{r}) | \pm \rangle = \pm 1$ . Гамильтониан системы псевдоспинов записывают в виде [11]:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{r}\mathbf{r}'} V(\mathbf{R}) \sigma^z(\mathbf{r}) \sigma^z(\mathbf{r}') - \sum_{\mathbf{r}} \Delta(\mathbf{r}) \sigma^z(\mathbf{r}), \quad (5)$$

где  $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$  — расстояние между псевдоспинами,  $V(\mathbf{R})$  — константы взаимодействий псевдоспинов, а величина  $\Delta(\mathbf{r})$  характеризует взаимодействие псевдоспина с внешними полями. Поляризация  $P$  выражается через среднее значение спина  $\sigma = \langle \sigma^z(\mathbf{r}) \rangle$ , эффективный дипольный момент  $p$  и объем  $v_H$ , приходящийся на один атом водорода,  $P = \sigma p / v_H$ .

Простейшим методом приближенного расчета термодинамических функций системы, соответствующей гамильтониану (5), является приближение среднего молекулярного поля [11]. В рамках этого приближения вблизи точки фазового перехода можно выделить линейную составляющую зависимости обратной восприимчивости от температуры. При этом соотношение констант Кюри–Вейса оказывается равным  $C_+/C_- = 2$ . Данное значение, как мы уже указывали, плохо согласуется с экспериментальными данными [5]. Причиной этого может быть недостаточность приближения среднего поля в кристалле DKDP ввиду сильных корреляций в расположении соседних псевдоспинов, связанных с запретами на заряженные конфигурации в расположении ядер водорода вблизи группы  $PO_4$ .

Модификацией приближения среднего поля, учитывающей корреляции ближайших псевдоспинов, является приближение кластеров. В приближении кластеров точным образом учитывается взаимодействие спинов внутри кластеров из нескольких атомов, тогда как взаимодействие этих атомов с ближайшими соседями описывается с помощью эффективного поля  $\phi$ , а взаимодействие с дальними атомами — с помощью среднего поля  $\gamma\sigma$ . В DKDP в качестве кластера рассматривают совокупность четырех псевдоспинов, прилегающих к данной группе  $PO_4$ .

Среднее значение спина  $\sigma$  и эффективное поле  $\phi$  как функции обратной температуры  $\beta = 1/T$ , внешнего

электрического поля  $E$  и энергетических параметров приближения кластеров  $\varepsilon$ ,  $\omega$ ,  $\gamma$  находят из системы уравнений

$$\sigma = \text{th}\beta u(\varphi + \gamma\sigma + Ep) = \frac{\text{sh}2\beta a + 2L\text{sh}\beta a}{\text{ch}2\beta a + 4L\text{ch}\beta a + K}, \quad (6)$$

где

$$a = \varphi + 2\gamma\sigma + 2Ep, \quad u = \varphi + \gamma\sigma + Ep, \\ L = e^{-\beta\omega}, \quad K = 2e^{-\beta\varepsilon} + e^{-\beta(4\omega - 2\varepsilon)}.$$

Параметр  $\varepsilon$  соответствует возбуждению беззарядовых состояний кластера с ненулевым значением среднего спина,  $\omega$  — энергия однозарядовых конфигураций,  $\gamma$  характеризует взаимодействие дипольных моментов на дальних расстояниях.

Диэлектрическую восприимчивость  $\chi$  можно найти дифференцированием уравнений (6) по внешнему электрическому полю  $E$ , разрешив затем получившуюся систему уравнений относительно производной  $(\partial\sigma/\partial E)_{E \rightarrow 0}$ .

В параэлектрической фазе можно получить аналитическое выражение для восприимчивости

$$\chi^+ = \frac{p^2}{v_H T} \frac{2(L+1)}{K + 2L - 1 - 2\gamma\beta(L+1)}. \quad (7)$$

Равенство нулю знаменателя в (7) определяет температуру Кюри–Вейса  $T_0$ .

В общем случае среднее значение спина и восприимчивость в сегнетофазе можно найти только численно для определенных значений энергетических параметров и температуры. Однако в частном случае отсутствия дальнего действия ( $\gamma = 0$ ) ответ можно получить в аналитическом виде

$$\sigma_{(\gamma=0)} = \frac{\sqrt{(1-K-2L)(1-K+2L)}}{1-K}, \quad (8)$$

$$\chi_{\gamma=0}^- = \frac{p^2}{v_H T} \frac{4L^2(1-K^2+8L^2)}{(1-K)^2(1-K-2L)(1-K+2L)}. \quad (9)$$

При  $\gamma = 0$  приближение кластеров описывает переход второго рода, тогда как при произвольном  $\gamma$  большие значения  $\gamma/\varepsilon$  и  $\omega/\varepsilon$  способствуют реализации перехода первого рода, в частности росту скачка поляризации  $P_c$  и разности между критической температурой и температурой Кюри–Вейса  $T_c - T_0$  [12].

Критическая температура  $T_c$  определяется из условия равенства в обеих фазах равновесного термодинамического потенциала [11]:

$$\Phi = -T \ln[2e^{\beta\omega}(\text{ch}2\beta a + K + 4L\text{ch}\beta a)] \\ + 2T \ln[2\text{ch}\beta(a-u)] + \gamma\sigma^2. \quad (10)$$

В работе [15] было показано, что феноменологический учет эффекта стрикции приводит к дополнительному

слагаемому  $-q_s\sigma^4$  в (10). Однако к подобному слагаемому приводит учет и других ангармонических эффектов, что затрудняет экспериментальное определение коэффициента  $q_s$ . Более того, подобная процедура учета электрострикции, как было отмечено в [15], нарушает самосогласованность теории. В работе [16] рассматривался также вклад в (10) пьезоэффекта, пропорциональный  $\sigma^2$ , который, как было показано, приводит к незначительной (порядка градуса Кельвина) поправке к температуре Кюри–Вейса. Включение данных эффектов в микроскопическую теорию рассматривалось также в работе [17]. В целом, учет пьезоэффекта и эффекта электрострикции может изменить подгоночные параметры теории на величину не более 10% [15,16] и ввиду оговоренных сложностей нами рассматриваться не будет.

### 3. Сравнение с экспериментом

В эксперименте по комбинационному рассеянию света в кристалле  $\text{K}(\text{H}_{1-x}\text{D}_x)_2\text{PO}_4$  при степени дейтерирования  $x \approx 0.8-0.9$  была исследована зависимость интегральной интенсивности центрального пика от температуры [5]. Центральный пик в представлении спектральной плотности в пределе высоких температур ( $T \gg \hbar\Omega$ ) описывается контуром Лоренца

$$I_n(\Omega) = \frac{I(\Omega)}{(n+1)/\hbar\Omega} = \frac{2I}{\pi T} \frac{\tau}{1+(\Omega\tau)^2} + I_1, \quad (11)$$

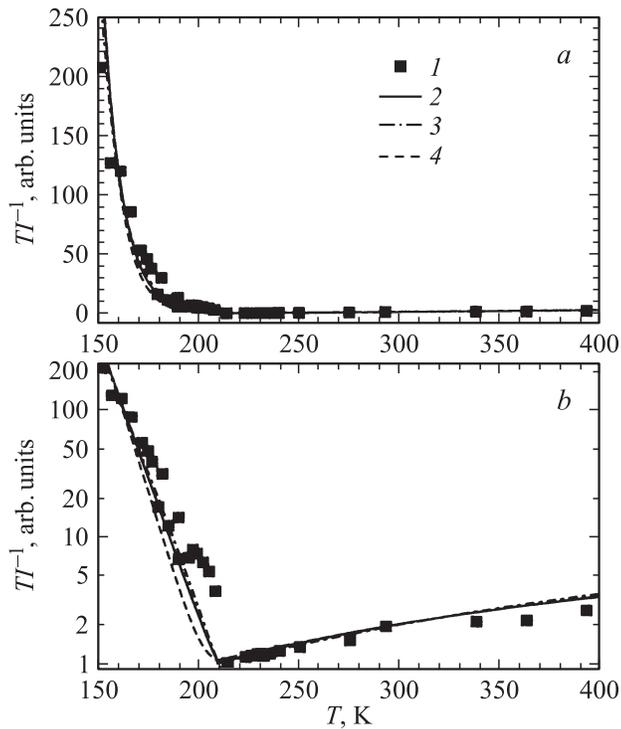
где  $I(\Omega)$  — интенсивность центрального пика в стоксовой части спектра КРС,  $n = 1/[\exp(\hbar\Omega/T) - 1]$  — Бозе-множитель,  $\tau$  — время релаксации,  $I$  — интегральная интенсивность центрального пика,  $I_1$  — частотно-независимая величина, приписываемая фону. Зависимость величины  $TI^{-1}$  от температуры была представлена в виде экспериментальных точек на графике. Критическая температура фазового перехода составила  $T_c = 209\text{ K}$ .

Поскольку в эксперименте наблюдалась значительная интенсивность рассеянной волны и в парафазе, то можно сделать вывод, что участвующая в рассеянии компонента тензора диэлектрической проницаемости  $\Delta\varepsilon_{ij}$  линейна по поляризации  $P$ .

Учитывая соотношения (2), (3), представим выражение для произведения обратной интегральной интенсивности центрального пика и температуры в виде

$$TI^{-1} = c(\chi^{-1} + d), \quad (12)$$

где  $c$  — масштабный множитель, а роль коэффициента  $d$  сводится к сдвигу графика функции  $TI^{-1}$  вдоль вертикальной оси (физически это означает устранение особенности интенсивности  $I$  в точке, где восприимчивость  $\chi$  обращается в бесконечность). К появлению коэффициента  $d$  может приводить, в частности, учет градиентных слагаемых в термодинамическом потенциа-



**Рис. 1.** Температурная зависимость произведения обратной интегральной интенсивности рассеяния в центральном пике и температуры. 1 — экспериментальные данные, 2 — приближение кластеров с учетом дальнего действия (при  $\gamma > 0$ ), 3 — приближение кластеров с учетом дальнего действия (при  $\gamma < 0$ ), 4 — приближение кластеров без дальнего действия ( $\gamma = 0$ ). Использованы подгоночные параметры, соответствующие наилучшему приближению. *a* — в линейных, *b* — в полулогарифмических координатах.

ле (4), что является причиной зависимости флуктуаций диэлектрической проницаемости от волнового вектора [1]. Возможно, появление этого слагаемого связано с упругими деформациями в кристалле или другими причинами.

Для описания экспериментальных данных мы сделали подгонку параметров теории, минимизируя сумму квадратов относительных отклонений по  $N$  экспериментальным точкам

$$Q = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left( \frac{f_i^{\text{th}}}{f_i^{\text{exp}}} - 1 \right)^2, \quad \text{где} \quad f = TI^{-1}. \quad (13)$$

В приближении кластеров без дальнего действия, чему соответствует уравнение (7) при  $\gamma = 0$  и уравнение (9), подгоночными параметрами помимо коэффициентов  $c$  и  $d$  являются энергетические постоянные  $\varepsilon$  и  $\omega$ , с дополнительным условием, что при температуре Кюри–Вейса  $T_0$  восприимчивость (7) обращается в бесконечность, а, следовательно,  $K(T_0) + 2L(T_0 - 1) = 0$ . В рамках этого приближения переход является переходом второго рода и температура Кюри–Вейса совпадает с критической температурой:  $T_0 = T_c = 209$  К. Минимум

целевой функции достигается при значениях параметров  $\varepsilon = 154$  К,  $\omega = 794$  К. Соответствующее значение целевой функции  $Q = 0.20$ .

При учете дальнего действия в теории используются три подгоночных параметра:  $\varepsilon$ ,  $\omega$  и  $\gamma$ . Два дополнительных условия состоят в том, что при критической температуре  $T_c = 209$  К значения термодинамического потенциала (10) в пара- и сегнетофазе равны между собой, а также температура Кюри–Вейса, определяемая из равенства нулю знаменателя в (7), меньше критической температуры на 0.7 К, т.е.  $T_0 = 208.3$  К. Последнее условие соответствует экспериментальным данным для степени дейтерирования кристалла KDP  $x \approx 0.8$  (см. табл. 4 в [11]). Таким образом, для подгонки остается один свободный параметр приближения кластеров.

Мы использовали следующий алгоритм для нахождения оптимальных значений параметров. При фиксированном значении параметра  $\varepsilon$  из дополнительных условий для критической температуры и температуры Кюри–Вейса находились значения параметров  $\omega$  и  $\gamma$ . Затем вычислялась обратная восприимчивость  $\chi^{-1}$  для данных значений параметров  $\varepsilon$ ,  $\omega$ ,  $\gamma$ . Далее минимизировалось значение целевой функции (13) по параметрам  $c$ ,  $d$  (12). Затем аналогично рассматривались другие значения параметра  $\varepsilon$  с шагом в 5 К. Наилучшему приближению соответствовало значение параметра  $\varepsilon$ , обеспечивающее минимальное значение функции  $Q$ .

Определенный таким образом минимум целевой функции достигается при двух наборах параметров  $(\varepsilon, \omega, \gamma) = (235, 727, -30)$  К при  $Q = 0.112$  и  $(85, 720, 39)$  К при  $Q = 0.138$ . Соответствующая этим параметрам температурная зависимость произведения обратной величины полной интенсивности рассеяния и температуры изображена на рис. 1.

## 4. Обсуждение

Прежде всего мы можем отметить достаточно хорошее совпадение теоретической кривой и экспериментальных точек в широком диапазоне температур в сегнето- и парафазе для произведения обратной полной интенсивности рассеяния в центральном пике кристалла DKDP и температуры. Относительно небольшое расхождение вблизи точки перехода в сегнетофазе, возможно, проистекает из особенностей обработки экспериментальных данных [5]. Учет дальнего действия ( $\gamma \neq 0$ ) позволяет точнее описать температурную зависимость диэлектрической восприимчивости.

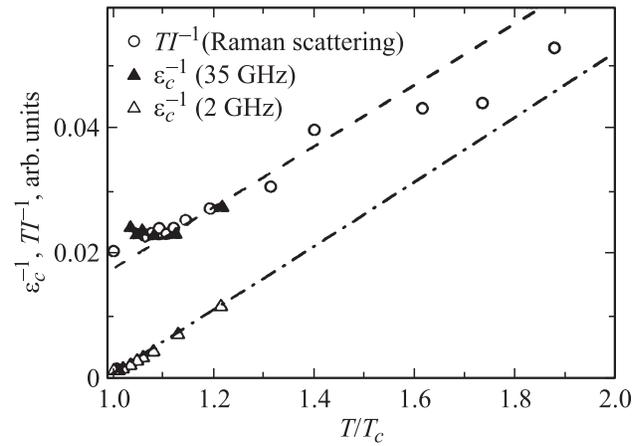
Сравним полученные в настоящей работе значения параметров метода кластеров, соответствующие наилучшему приближению экспериментальных данных, с результатами других экспериментов. Полученное значение  $\omega$  согласуется в пределах погрешности с экспериментальным значением  $\omega = 900 \pm 200$  К для кристалла  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  из эксперимента по измерению времени прыжков дейтрона методом ЯМР [18]. Из подгонки

данных зависимости поляризации от температуры были получены параметры (110, 900, 23) К для полностью дейтерированного образца [19]. Чуть бóльшие значения параметров приводятся в работе [15] на основании данных по поляризации, теплоемкости и избыточной энтропии: (115, 1100, 23) К. Данные измерений поперечной статической восприимчивости приводят к значениям (92, 907, 37) К для степени дейтерирования  $x = 0.98$  [13] и (95, 833, 31) К для степени дейтерирования  $x = 0.7$  [14]. Из подгонки экспериментальных данных по зависимости от температуры поляризации, теплоемкости, продольной диэлектрической восприимчивости в парафазе и поперечной диэлектрической восприимчивости в работе [4] получен набор параметров (87, 773, 37) К при степени дейтерирования  $x = 0.84$ , что весьма близко к значениям параметров, полученных в нашей работе.

Как и в нашей работе, в [16] обозначены два набора параметров, соответствующих удовлетворительному описанию температурной зависимости поляризации и отличающихся знаком параметра  $\gamma$ :  $(\varepsilon, \omega, \gamma) = (114, 1000, 22.4)$  К и  $(200, 1000, -19.4)$  К для полностью дейтерированного кристалла. При этом численные значения параметра  $\omega$  в двух наборах в каждом случае разнятся незначительно, а значения  $\varepsilon$  различаются в 2–3 раза. Знак параметра  $\gamma$  характеризует взаимодействие спинов на больших расстояниях (при отрицательном знаке меньшему значению энергии соответствует антипараллельное расположение спинов). Выбор в пользу отрицательного значения  $\gamma < 0$  был сделан в работе [16] на основании экспериментальных данных о положительном значении производной по температуре коэффициента  $B$  функции Ландау (4) и соответствии теории [16] этому требованию. Принципиальная значимость выяснения знака параметра  $\gamma$  подчеркивалась в работе [12].

В целом, значения определенных в настоящей работе параметров оказываются достаточно близкими к величинам, полученным из подгонки приближения кластеров для других экспериментов. Некоторое различие при этом может быть связано с разной степенью дейтерирования образцов ввиду сильной зависимости от степени дейтерирования характеристик кристалла KDP (при увеличении степени дейтерирования значения параметров  $\varepsilon, \omega, \gamma$  увеличиваются). Для более полного анализа данных желателен также последовательный учет упругих деформаций кристалла.

Приведем сравнение обсуждаемых результатов по измерению центрального пика в комбинационном рассеянии света с данными диэлектрической спектроскопии. В работе [5] приводится сравнение экспериментальной температурной зависимости обратной величины интеграла по спектральной плотности  $TI^{-1}$  с измерениями обратной величины диэлектрической проницаемости ( $\varepsilon_c^{-1}$ ) на частоте 15 МГц [20]. Обе эти зависимости в параэлектрической фазе линейны по температуре, но



**Рис. 2.** Зависимости обратной величины диэлектрической проницаемости  $\varepsilon_c^{-1}$  от температуры, нормированной на температуру фазового перехода ( $T/T_c$ ), на частотах 2 и 35 GHz, вычисленные по экспериментальным данным работы [20]. Линии — расчетные кривые, на которые ложатся данные [20] на соответствующих частотах. Кружками показана обратная величина интеграла по спектральной плотности центрального пика  $TI^{-1}(T)$ , нормированная на константу.

в то время как  $\varepsilon_c^{-1} \propto (T - T_c)$ ,  $TI^{-1}$  описывается зависимостью (12). Как следует из рис. 4 работы [5], добавочная константа  $d$  приводит к несоответствию данных, полученных из диэлектрической и оптической спектроскопии. Возникает вопрос, в чем причина расхождения. В [20] показано, что данные по температурной зависимости диэлектрической восприимчивости, измеренные на разных частотах в диапазоне от 50 МГц до 35 GHz, можно с некоторой точностью расположить на одной кривой, где осями  $X$  и  $Y$  являются соответственно величины  $\tau_0 v$  и  $\Delta T \varepsilon_1 / C$ . Здесь  $C = 4280^\circ\text{C}$  — постоянная Кюри-Вейса, определенная из соответствующей зависимости на низких частотах,  $\Delta T = T - T_c$ ,  $T_c = -52.5^\circ\text{C}$  — температура фазового перехода,  $\tau_0 = 1/\alpha \Delta T$ ,  $v$  — частота измерительного поля,  $\alpha = 0.22$  GHz/C. На рис. 2 приведена зависимость обратной диэлектрической проницаемости от температуры, рассчитанная на основе упомянутой выше зависимости из работы [20] для двух частот: 2 и 35 GHz. Линиями показаны расчетные кривые, на которые ложатся данные [20] на разных частотах, а символы соответствуют экспериментальным результатам [20]. Видно, что зависимость  $TI^{-1}(T)$ , полученная из экспериментов по комбинационному рассеянию света, в параэлектрической фазе хорошо соответствует измерениям диэлектрической проницаемости на частотах вблизи 35 GHz. Эта частота соответствует нижней границе измерений в работе [16]. Таким образом, обсуждаемая в настоящей работе зависимость  $TI^{-1}(T)$  соответствует  $\varepsilon_c^{-1}(T)$ , но в более широком температурном диапазоне.

В сегнетоэлектрической фазе диэлектрическая проницаемость, измеренная на относительно низких частотах, в значительной степени определяется доменной струк-

турой кристалла [21–25], что не позволяет корректно сравнить эти результаты с данными, полученными из комбинационного рассеяния света.

## 5. Заключение

В настоящей работе температурная зависимость обратной статической восприимчивости из эксперимента по низкочастотному комбинационному рассеянию света в сегнетоэлектрическом кристалле DKDP [5], насколько нам известно, впервые рассматривалась в рамках приближения кластеров — варианта метода среднего поля. Показано, что приближение кластеров хорошо описывает экспериментальные данные в широком диапазоне температур. При этом набор микроскопических параметров, полученный из подгонки экспериментальных данных, численно согласуется с результатами других работ. Подобное согласие свидетельствует в пользу того, что центральный пик в спектре КРС в кристалле DKDP связан именно с флуктуациями поляризации. Мы выделили два набора параметров, соответствующих наилучшему описанию экспериментальных данных и отличающихся знаком параметра  $\gamma$  и численным значением  $\epsilon$ . Выбор в пользу одного из этих наборов параметров может быть сделан на основании дополнительных исследований.

Особую благодарность авторы работы выражают А.С. Юркову за содержательные беседы по теории сегнетоэлектриков.

## Список литературы

- [1] В.Л. Гинзбург, А.П. Леванюк, А.А. Собянин. УФН **130**, 4, 615 (1980).
- [2] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука. М. (2001). Ч. 1. 616 с.
- [3] V.H. Schmidt. *Ferroelectrics* **72**, 157 (1987).
- [4] R.R. Levitskii, I.R. Zachek, A.S. Vdovych, S.I. Sorokov. *Cond. Matter Phys.* **12**, 75 (2009); R.R. Levitskii, B.M. Lisnii, A.Ya. Andrusyk. *Cond. Matter Phys.* **10**, 269 (2007).
- [5] В.К. Малиновский, А.М. Пугачев, Н.В. Суровцев. ФТТ **50**, 6, 1090 (2008).
- [6] I.P. Kaminov, T.C. Damen. *Phys. Rev. Lett.* **20**, 1105 (1968).
- [7] C.Y. She, T.W. Broberg, L.S. Wall, D.F. Edwards. *Phys. Rev.* **B 6**, 1847 (1972).
- [8] R.L. Reese, I.J. Fritz, H.Z. Cummins. *Phys. Rev.* **B 7**, 4165 (1973).
- [9] Y. Tominaga, H. Urabe. *Solid State Commun.* **41**, 561 (1982).
- [10] A. Sakai, T. Yagi. *Ferroelectrics* **72**, 51 (1987).
- [11] В.Г. Вакс. Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. Наука, М. (1973). 328 с.
- [12] В.Г. Вакс, В.И. Зиненко, В.Е. Шнейдер. УФН **141**, 4, 629 (1983).
- [13] S. Havlin, E. Litov, H. Sompolskiy. *Phys. Rev.* **B 13**, 4999 (1976).
- [14] F. Gilletta, M. Chabin. *Phys. Status Solidi B* **100**, K77 (1980).
- [15] В.Г. Вакс, В.И. Зиненко. ЖЭТФ **64**, 4, 650 (1973); V.G. Vaks, N.E. Zein, B.A. Strukov. *Phys. Status Solidi A* **30**, 801 (1975).

- [16] S. Torstveit. *Phys. Rev.* **B 20**, 4431 (1979).
- [17] R.R. Levitskii, B.M. Lisnii. *Phys. Status Solidi B* **241**, 1350 (2004); P.P. Левицкий, Б.М. Лісний. *Журн. фіз. дослідж.* **7**, 431 (2003).
- [18] V.H. Schmidt, E.A. Uehling. *Phys. Rev.* **126**, 447 (1962).
- [19] H.B. Silsbee, E.A. Uehling, V.H. Schmidt. *Phys. Rev.* **133**, A 165 (1964).
- [20] R.M. Hill, S.K. Ichigi. *Phys. Rev.* **130**, 150 (1963).
- [21] J. Bornarel, R. Cach. *Phys. Rev.* **B 60**, 3806 (1999).
- [22] R.M. Hill, S.K. Ichigi. *Phys. Rev.* **132**, 1603 (1963).
- [23] V.M. Kedyulich, A.G. Slivka, E.I. Gerzanich, A.M. Guivan, P.M. Lukach. *Cond. Matter Phys.* **6**, 2 (34), 271 (2003).
- [24] Y.N. Huang, X. Li, Y. Ding, Y.N. Wang, H.M. Shen, Z.F. Zhang, C.S. Fang, S.H. Zhuo, P.C.W. Fung. *Phys. Rev.* **B 55**, 16 159 (1997).
- [25] M. Tsukamoto, E. Nakamura, T. Ozaki. *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 190 (1977).