

## ДИНАМИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА НЕСОИЗМЕРИМОЙ ВОЛНЫ ЗАРЯДОВОЙ ПЛОТНОСТИ В МОНОКЛИННОМ $TaS_3$ ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Ф. Я. Надь<sup>1,2</sup>, П. Монсо<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт радиотехники и электроники Российской академии наук  
103907, Москва, Россия

<sup>2</sup>Centre de Recherches sur les Très Basses températures, CNRS  
BP166, 38042, Grenoble, Cédex9, France

Поступила в редакцию 6 июня 1996 г.,  
после переработки 24 сентября 1996 г.

Исследованы частотные и температурные зависимости диэлектрической проницаемости квазиодномерного проводника моноклинного  $TaS_3$  с несоизмеримой волной зарядовой плотности. Показано, что в области низких температур при частотах ниже 1 МГц на температурной зависимости действительной части диэлектрической проницаемости наблюдаются максимум, смещающийся в сторону низких температур при понижении частоты. Установлено, что температурная зависимость времен релаксации состоит из двух ветвей, соответствующих большим временам релаксации  $\tau$  макроскопических областей волн зарядовой плотности и коротким временам релаксации в микроскопическом масштабе. При понижении температуры рост  $\tau$  для больших областей волн зарядовой плотности имеет более резкий, чем активационный, характер с тенденцией к расходимости при конечной температуре, а рост  $\tau$ , соответствующего релаксации на микромасштабе, более медленный, чем активационный. Полученные результаты показывают, что при понижении температуры происходит переход квазиодномерного проводника  $m-TaS_3$  в стеклообразное состояние, обусловленный процессами сильного пиннинга волн зарядовой плотности на случайно расположенных примесных центрах с образованием взаимодействующих между собой солитоноподобных коллективных возбуждений волн зарядовой плотности.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время появились работы, показывающие, что на температурной зависимости действительной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon'(T)$  квазиодномерных проводников с волной зарядовой плотности, измеренной на низких частотах ( $10^{-2}$ – $10^7$  Гц), наблюдается максимум (расходимость) в области низких температур [1–4]. Была предложена модель, связывающая появление этого максимума с ростом длины когерентности и времен релаксации волн зарядовой плотности в этой области температур и с последующим переходом в «замороженное» стеклообразное состояние [3, 4]. Эти результаты были получены для двух материалов с волнами зарядовой плотности — голубой бронзы  $K_{0.3}MoO_3$  [1, 2] и ромбического  $TaS_3$  [3, 4], в которых реализуется один тип волны зарядовой плотности, несоизмеримой с исходной решеткой вблизи температуры пайерлсовского перехода  $T_P$ .

Волновой вектор  $q$  волны зарядовой плотности в этих материалах оказывается зависящим от температуры, и с ее понижением его значение приближается к четырехкратной соизмеримости [5, 6]. В этой связи возникал вопрос, являются ли наблюдаемые особенности в поведении  $\epsilon'(T)$  характерными только для таких квазиодномерных проводников, в которых, в частности, максимум на  $\epsilon'(T)$  мог быть связан с переходом к

соизмеримой волне зарядовой плотности. Для выяснения вопроса, насколько фундаментальным, общефизическим результатом является расходимость  $\epsilon'(T)$ , обнаруженная при низких температурах, мы провели измерение диэлектрической проницаемости на низких частотах в квазиодномерном проводнике — моноклинном  $\text{TaS}_3$ , в котором формируются две волны зарядовой плотности с волновыми векторами  $\mathbf{q}_1$  и  $\mathbf{q}_2$ , не зависящими от температуры и не приближающимися к соизмеримости при ее понижении [5].

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Нами были исследованы четыре образца квазиодномерного проводника моноклинного  $\text{TaS}_3$  с поперечным сечением  $10^{-7}$ – $10^{-6}$  см<sup>2</sup> и длиной 1–2 мм. Образцы располагались на сапфировой подложке. Электрические контакты к ним приготавливались нанесением серебряной пасты либо напылением в вакууме  $\text{In}$  полосок на предварительно термообработанные образцы [7]. Напыленные контакты были более низкоомными и стабильными при термоциклировании. Ниже приводятся данные, полученные на образце *m4* с напыленными контактами с размерами  $1200 \times 10 \times 2.5$  мкм<sup>3</sup> и сопротивлением при комнатной температуре 144 Ом. Аналогичные результаты были получены и на других образцах моноклинного  $\text{TaS}_3$ .

Нами измерялись проводимость на постоянном токе  $G_{dc}$  и вольт-амперные характеристики образцов *m-TaS<sub>3</sub>* в области температур 300–30 К. Действительная  $\text{Re}G$  и мнимая  $\text{Im}G$  части проводимости на переменном токе в диапазоне частот  $5 \cdot 10^2$ – $10^6$  Гц были измерены в более широкой области температур от комнатной до температуры жидкого гелия. Измерения проводимости проводились на векторном анализаторе импедансов HP 4192A, управляемом компьютером. При низких температурах, когда сопротивление образцов превосходило 1 МОм, для повышения чувствительности измерений в области частот менее  $10^4$  Гц использовался специальный предусилитель [4]. Амплитуда переменного напряжения, подаваемого на образец, не превышала 5–10 мВ, что было менее 0.1 от величины минимального порогового поля  $E_T$  во всей области исследованных температур. Как показали наши измерения и как известно из опубликованных данных [4, 8, 9], при таких амплитудах переменного напряжения проводимость не зависит от амплитуды, т. е. мы работали в линейной области и измеряли проводимость основного состояния волн зарядовой плотности.

Как показали наши измерения, температурная зависимость проводимости на постоянном токе  $G_{dc}$  в исследованных образцах имела типичный для *m-TaS<sub>3</sub>* вид с двумя резкими падениями проводимости при  $T_1 = 240$  К и  $T_2 = 160$  К, соответствующими образованию двух волн зарядовой плотности с компонентами волновых векторов  $\mathbf{q}_1$  ( $0a^*$ ,  $0.253b^*$ ,  $0c^*$ ) при  $T < T_1$  и  $\mathbf{q}_2$  ( $(1/2)a^*$ ,  $0.247b^*$ ,  $(1/2)c^*$ ) при  $T < T_2$  [10]. В области температур ниже 160 К до 100 К зависимость  $\lg G_{dc}(1/T)$  была близка к линейной с энергией активации  $\Delta = 900$  К [11, 12]. Вольт-амперные характеристики (ВАХ) образцов *m-TaS<sub>3</sub>* также имели вид, типичный для квазиодномерных проводников с волнами зарядовой плотности [13]. При температурах выше первого пайерлсовского перехода  $T_1$  ВАХ наших образцов были линейны в электрическом поле до  $\simeq 5$  В/см с последующим плавным квадратичным по току ростом проводимости, обусловленным, по-видимому, тепловыми эффектами. С понижением температуры ниже  $T_1$  достаточно резкая нелинейность на ВАХ возникала уже в полях  $\simeq 3$  В/см и, как показали импульсные измерения, позволяющие избежать нагрева образца, эта нелинейность имела нетепловое

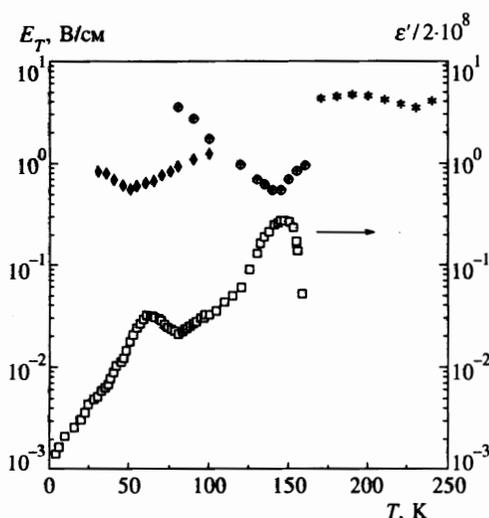


Рис. 1. Температурные зависимости пороговых полей и диэлектрической проницаемости: \* — пороговое поле  $E_T$  для первой волны зарядовой плотности,  $\oplus$ ,  $\diamond$  — пороговые поля  $E_T$ ,  $E'_T$  для второй волны зарядовой плотности,  $\square$  — действительная часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon'/2 \cdot 10^8$  (частота 10 кГц)

происхождение и была обусловлена началом движения волны зарядовой плотности как целого [13]. На рис. 1 представлена температурная зависимость порогового поля  $E_T$ . В области существования первой волны зарядовой плотности (240–160 К)  $E_T$  сначала достигает минимума при  $T = 200$  К и далее плавно растет, оставаясь в среднем достаточно высоким, что типично для  $m$ -TaS<sub>3</sub> [13]. После образования второй волны зарядовой плотности при  $T < 160$  К, как известно, большая часть нелинейной проводимости оказывается связанной именно с ней. Пороговое поле сразу уменьшается в несколько раз, хотя его температурная зависимость имеет качественно подобный вид — уменьшение после перехода через  $T_2$ , минимум и экспоненциальный рост  $E_T(T) = E_T(0) \exp(-T/T_0)$  с  $T_0 = 25$  К [11].

В области температур 160–100 К пороговое поле  $E_T$  было четко определенным: при  $E < E_T$  волна зарядовой плотности как целое неподвижна и ВАХ линейна, а при  $E > E_T$  начинается движение волны зарядовой плотности, возникает резкая нелинейность ВАХ, наиболее ярко выраженная именно в  $m$ -TaS<sub>3</sub>, и начинается узкополосная генерация [12]. Однако при температурах ниже 100 К одновременно с продолжающимся ростом  $E_T$  (рис. 1) в полях, меньших  $E_T$ , на линейном участке ВАХ постепенно начинает появляться небольшой нелинейный вклад, начинающийся с некоторого значения поля  $E'_T$ , меньше порогового:  $E'_T < E_T$  [11, 14]. На рис. 1 представлена температурная зависимость  $E'_T$ . Как видно из рис. 1, при понижении температуры  $T < 100$  К напряжение возникновения этой малой нелинейности  $E'_T$  уменьшается, достигает минимума и потом нелинейно возрастает, причем его значение в минимуме близко к минимальному значению  $E_T$  ( $T = 149$  К).

Одновременно с измерениями  $G_{dc}$  и ВАХ нами были проведены измерения комплексной проводимости  $G(\omega)$  образцов на переменном токе при фиксированных температурах в интервале 300–4.2 К. Из этих данных были получены значения диэлектрической проницаемости с помощью стандартных соотношений: действительная часть диэлектрической проницаемости  $\epsilon'(\omega) = \text{Im} \sigma(\omega)/\omega$ , а мнимая часть  $\epsilon''(\omega) = [\text{Re} \sigma(\omega) - \sigma_{dc}]/\omega$ , где  $\sigma$  соответствуют удельным проводимостям. На рис. 1 представлена температурная зависимость  $\epsilon'(T)$ , измеренная на частоте  $f = \omega/2\pi = 10$  кГц, в области

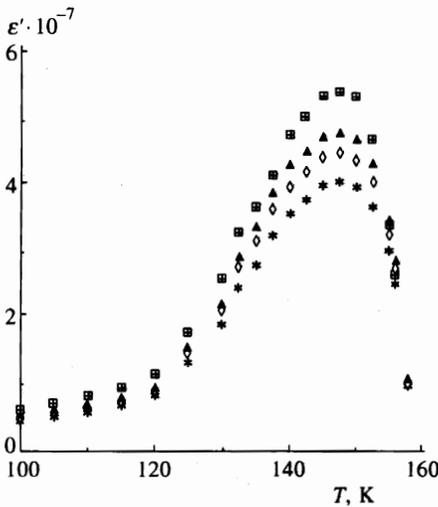


Рис. 2. Температурная зависимость действительной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$  вблизи второго пайерлсовского перехода при различных частотах:  $\square$  — 10,  $\blacktriangle$  — 100,  $\diamond$  — 300, \* — 1000 кГц

температур 160–4.2 К. Как видно из рис. 1, на этой зависимости наблюдаются два четких максимума. Один из них находится вблизи температуры пайерлсовского перехода  $T_2$  с образованием второй волны зарядовой плотности. В области температур ниже этого максимума величина  $\epsilon'$  монотонно уменьшается и, согласно существовавшим измерениям на частотах  $f > 10$  МГц, это уменьшение продолжается до самых низких температур [13]. Однако измерения, проведенные нами в области низких частот, показывают, что при  $f < 1$  МГц на этом монотонном спаде  $\epsilon'(T)$  наблюдается второй четкий максимум, начинающийся с  $T = 80$  К. При сопоставлении температурных зависимостей  $E_T(T)$ ,  $E'_T(T)$  и  $\epsilon'(T)$ , как видно из рис. 1, наблюдается определенная корреляция этих зависимостей. Максимумы на  $\epsilon'(T)$  наблюдаются вблизи тех температур, где величины  $E_T$  и  $E'_T$  достигают минимумов. Качественно подобные результаты были получены и для других квазиодномерных проводников [15]. Представленные на рис. 1 данные соответствуют достаточно низкоомному образцу  $m\text{-TaS}_3$  ( $R_0 = 144$  Ом), что вследствие приборных ограничений затрудняло точные измерения  $\text{Im}G$  вблизи  $T_1$  на таких сравнительно низких частотах. Однако измерения, проведенные на образце  $m3$  с  $R_0 \sim 10^3$  Ом на частоте 1 МГц, показали, что и вблизи  $T_1 = 240$  К наблюдается максимум на зависимости  $\epsilon'(T)$ .

На рис. 2 представлены зависимости  $\epsilon'(T)$  вблизи  $T_2$  для нескольких частот от 1 кГц до 1 МГц. Как видно из рис. 2, с понижением частоты амплитуда максимумов увеличивается, но их положение на шкале температур не меняется в пределах точности наших измерений. Эти данные качественно согласуются с поведением  $\epsilon'(T)$  вблизи температуры пайерлсовского перехода в ромбическом  $\text{TaS}_3$  [16],  $\text{NbSe}_3$  [17] и  $(\text{NbSe}_4)_{10/3}\text{I}$  [18]. На следующем рис. 3 представлены зависимости  $\epsilon'(T)$  в области низкотемпературного максимума для частот от 700 Гц до 1 МГц. Рост амплитуды максимумов с понижением частоты здесь значительно сильнее, чем вблизи  $T_2$ . Но самое важное, что, в отличие от области вблизи  $T_2$ , положение максимумов на температурной шкале оказывается существенно зависящим от частоты. С понижением частоты положение максимумов смещается в сторону низких температур. Т. е. и в этом квазиодномерном проводнике, так же, как и в таких квазиодномерных проводниках как  $\text{K}_{0.3}\text{MoO}_3$  [12] и ромбический

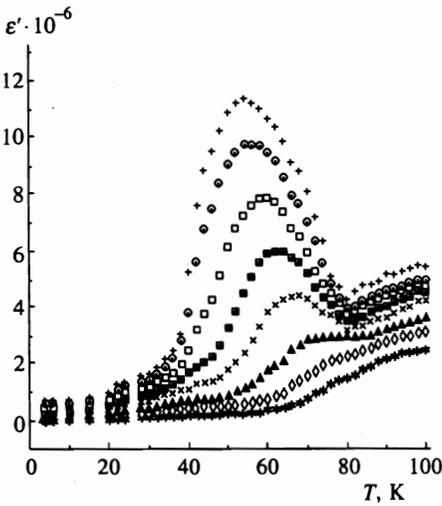


Рис. 3. Температурная зависимость действительной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$  в области низких температур при различных частотах: + — 0.7,  $\odot$  — 1,  $\square$  — 3,  $\boxplus$  — 10,  $\times$  — 30,  $\blacktriangle$  — 100,  $\diamond$  — 300, \* — 1000 кГц

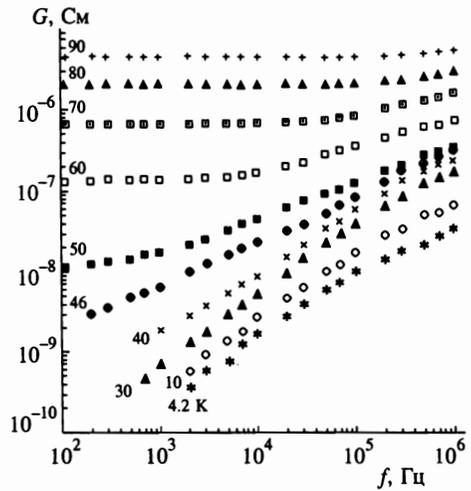


Рис. 4. Зависимость от частоты действительной части проводимости  $G$  при температурах, указанных у кривых

TaS<sub>3</sub> [3, 4], с понижением температуры наблюдается тенденция к расхождению  $\epsilon'(T)$  с характерной частотной зависимостью, что типично для многих неупорядоченных систем, переходящих при низких температурах в стеклообразное состояние [19–21].

Частотные зависимости действительной части проводимости  $\text{Re}G$ , измеренные при фиксированных температурах (рис. 4), также оказываются качественно подобными аналогичным зависимостям в других квазиодномерных проводниках с волнами зарядовой плотности [2, 4]. В исследованной нами области частот на зависимости  $\text{Re}G(\omega)$  при температурах выше 50 К достигается область низких частот, где  $\text{Re}G$  перестает зависеть от частоты, т. е.  $\text{Re}G$  становится равной  $G_{dc}$ . Но при более низких температурах в указанной частотной области значения  $\text{Re}G$  продолжают меняться с частотой, и их приближение к  $G_{dc}$  должно наблюдаться при более низких частотах [4]. При низких температурах 4.2–40 К наблюдаемые зависимости  $G(\omega)$  хорошо описываются формулой  $G(\omega) \propto \omega^\alpha$  с  $\alpha \sim 0.8$ , что также является типичным как для низкотемпературных состояний квазиодномерных проводников [4, 22], так и в более общем случае для многих систем с определенной степенью беспорядка и преобладанием прыжковой проводимости [23].

Знание величины  $G_{dc}$  необходимо для расчета диссипативной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon''$  согласно приведенной выше формуле. И если на зависимости  $G(\omega)$  переход к постоянному значению  $G$  наблюдается внутри доступного нам диапазона частот, то и положение максимума зависимости  $\epsilon''(\omega)$  также окажется внутри этого диапазона. Это хорошо видно из рис. 5, где представлены зависимости  $\epsilon''(\omega)$  при фиксированных температурах от 50 до 100 К. Для температур  $T < 50$  К максимумы зависимости  $\epsilon''(\omega)$  попадают в область частот ниже  $10^3$  Гц, и мы можем наблюдать только правую ветвь этой зависимости. При  $T > 50$  К основная часть зависимости

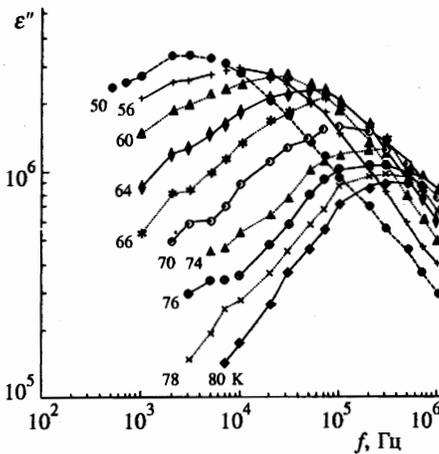


Рис. 5. Зависимость от частоты мнимой части диэлектрической проницаемости  $\epsilon''$  при температурах, указанных у кривых

$\epsilon''(\omega)$  (или, как ее еще называют, функция потерь) попадает в доступную нам область частот. С повышением температуры наблюдается смещение максимума зависимости  $\epsilon''(\omega)$  в сторону высоких частот и при  $T \simeq 100$  К он приближается к краю доступного нам диапазона частот.

Как видно из рис. 5. зависимости  $\epsilon''(\omega)$  при разных температурах и, как будет видно ниже, зависимости  $\epsilon'(\omega)$  значительно отличаются от теоретических зависимостей, соответствующих простой дебаевской релаксации с одним временем релаксации  $\tau_0$  [24]. Полученные при низких температурах зависимости  $\epsilon''(\omega)$  и  $\epsilon'(\omega)$  оказываются подобными тем, которые наблюдаются в широком классе неупорядоченных материалов, включая стекла различного вида [24]. В этих материалах релаксация возбуждений оказывается неэкспоненциальной с широким распределением времен релаксации. Для ее описания используются различные феноменологические соотношения, обобщенный вид которых был предложен при рассмотрении диэлектрической релаксации в полимерах [25]:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{HF} + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_{HF}}{[1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}]^\beta}, \quad (1)$$

где  $\epsilon_{HF}$  соответствует высокочастотному пределу  $\epsilon'(\omega)$  при  $\omega \gg \omega_0$  ( $\omega_0 \equiv \tau_0^{-1}$ ),  $\epsilon_0$  — низкочастотное значение  $\epsilon'(\omega)$  при  $\omega \ll \omega_0$ ,  $\alpha$  и  $\beta$  характеризуют ширину и степень асимметрии распределения времен релаксации, соответственно. Согласно (1) связь между  $\epsilon''$  и  $\epsilon'$ , аналогично известному соотношению Cole-Cole, описывается несимметричной дугой окружности [24]. Пересечение высокочастотной части зависимости  $\epsilon''(\epsilon')$  с осью  $\epsilon'' = 0$  определяет высокочастотное значение  $\epsilon_{HF}$ , а пересечение низкочастотной части определяет величину  $\epsilon_0$ . Проведенное нами построение зависимости  $\epsilon''(\epsilon')$  показало, что в доступном нам частотном диапазоне мы могли определить с достаточной точностью значение  $\epsilon_{HF}$ . Определив это значение для разных температур и вычтя его из измеренной полной величины  $\epsilon'(\omega)$ , мы могли более точно выделить низкочастотную составляющую диэлектрического отклика, поскольку, как известно, в диэлектрический отклик могут входить вклады от различных подсистем (например, решетки, свободных электронов и др.). На рис. 6 представлены частотные зависимости величины  $\epsilon' - \epsilon'_{HF}$ , которая, как на рис. 3, так и везде ниже, обозначена просто как  $\epsilon'$ .

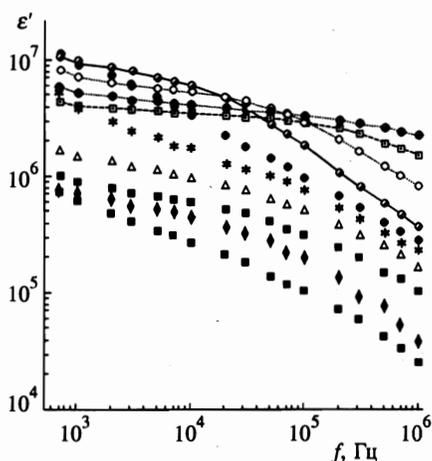


Рис. 6. Зависимость от частоты действительной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon'$  при различных температурах: ■ — 4, ◆ — 10, ◻ — 20, △ — 30, \* — 40, ● — 50, ○ — 60, ◌ — 70, ◻ — 80, ⊕ — 90 К

Во всей исследованной области температур определенная нами величина  $\epsilon'_{HF}$  оказалась существенно меньше  $\epsilon'$  [4]. Как видно из рис. 6, зависимости  $\epsilon'(\omega)$  в двойном логарифмическом масштабе, измеренные при фиксированных температурах, качественно подобны друг другу и в принципе возможно их скейлинговое наложение путем смещения по осям  $\lg \omega$  и  $\lg \epsilon'$  [4, 24]. В области температур 4.2–50 К эти кривые движутся вверх с ростом  $T$ , а в области 50–100 К — вниз. Грубо говоря, эти кривые состоят как бы из двух участков с различными наклонами — малым при низких частотах, где  $\epsilon' \propto \omega^{-m}$  с  $m$ , растущим от 0.1 до 0.25 с понижением  $T$ , и участка с большим наклоном при высоких частотах, где  $\epsilon' \propto \omega^{-n}$  с  $n$ , меняющимся в области 0.5–0.7. Область перегиба (кроссовера) между этими участками смещается в область более высоких частот с ростом температуры. Как видно из рис. 5, частотные зависимости  $\epsilon''(\omega)$  в двойном логарифмическом масштабе также подобны друг другу, и также возможно их наложение со смещением в этих координатах [4, 24]. Кроме того, как следует из рис. 5 и 6, высокочастотные части зависимостей  $\epsilon'(\omega)$  и  $\epsilon''(\omega)$  подобны в двойном логарифмическом масштабе и могут быть описаны соотношением одного типа

$$\epsilon' \propto \epsilon'' \sim \omega^{-n}.$$

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Как известно, исследование температурных и частотных зависимостей диэлектрической проницаемости является одним из важнейших методов определения основных свойств различных конденсированных состояний в твердых телах. Это в полной мере относится и к исследованию такого конденсированного состояния как волна зарядовой плотности в квазиодномерных проводниках.

Из приведенных выше результатов и, в частности, из рис. 1 прежде всего следует, что наблюдается корреляция в характере температурных зависимостей проводимости, порогового поля  $E_T$  и диэлектрической проницаемости. Областям падения проводимости вблизи  $T_1$  и  $T_2$  с образованием соответствующих волн зарядовой плотности отвечают области понижения порогового поля и, как показали наши измерения, максимумы

на температурной зависимости  $\epsilon'(T)$ . При этом вблизи температур первого и второго пайерлсовских переходов амплитуды максимумов слабо зависят от частоты, но их положение на шкале температур с частотой не меняется. Это может быть связано с тем, что характерное время релаксации волн зарядовой плотности  $\tau_0$  вблизи температуры пайерлсовского перехода достаточно мало ( $\approx 10^{-10}$  с) [15], т. е. ее отклик на переменное поле с частотами менее  $10^6$  Гц слабо зависит от частоты. Температуры ниже  $T_1$ , при которых наблюдаются максимум на  $\epsilon'(T)$  и минимум  $E_T(T)$ , близки друг к другу. Однако величина  $\epsilon'$  в этой области меняется гораздо более резко, чем  $E_T$ , и в результате произведение  $\epsilon'E_T$  оказывается зависящим от  $T$ . В области температур ниже  $T_1$  (120–80 К) рост  $E_T(T)$  и убывание  $\epsilon'(T)$  более скоррелированы и их произведение мало меняется. Как известно, слабое изменение с температурой произведения  $\epsilon'E_T$  в области температур ниже пайерлсовского перехода наблюдается также и в других квазиодномерных проводниках [15]. Объяснение этого факта основывается на предположении о том, что силы, необходимые для сдвига волн зарядовой плотности как целого (т. е. преодоления порогового эффекта) и силы, необходимые для поляризации волн зарядовой плотности пропорциональны друг другу, что соответствует представлению об упругой волне зарядовой плотности с достаточно большой длиной когерентности, движению которой препятствует коллективное влияние многих примесей, попадающих в область ее длины когерентности  $L_0$ . Этот случай соответствует слабому пиннингу волн зарядовой плотности и теоретически изучен в ряде известных работ [26, 27]. Т. е. упругая слабо запиннигованная волна зарядовой плотности является характерным состоянием для области вблизи пайерлсовского перехода.

С понижением температуры экспоненциально уменьшается число электронно-дырочных возбуждений через пайерлсовскую щель  $\Delta$  и соответственно возрастает длина экранирования примесных центров. Это приводит к усилению локального взаимодействия волн зарядовой плотности с наиболее «сильными» центрами пиннинга и к постепенному переходу от слабого коллективного пиннинга к сильному [3, 4, 28, 29]. При сильном пиннинге когерентность волн зарядовой плотности сохраняется только на длине между примесными центрами  $L_i \ll L_0$ . По-видимому, этим и объясняется наблюдаемое в  $m$ -TaS<sub>3</sub> и в других квазиодномерных проводниках уменьшение  $\epsilon'$  с понижением  $T$  [3]. В пользу предположения об увеличении силы пиннинга и уменьшения длины когерентности говорят также экспоненциальный рост порогового поля  $E_T$  (рис. 1), уменьшение доли нелинейной проводимости и др. [13].

В наших образцах  $m$ -TaS<sub>3</sub> в области  $T < 80$  К волна зарядовой плотности, по-видимому, локально взаимодействует уже практически с отдельными примесными центрами. Для начала ее когерентного движения как целого требуется приложение очень больших электрических полей. В слабом же поле она практически неподвижна и весь ее отклик на действие слабого переменного поля сводится, по-видимому, только к отклику локальных областей деформированной волны зарядовой плотности вблизи центров пиннинга. Как следует из ряда теоретических [29–31] и экспериментальных [3, 4, 14] работ, наиболее вероятно, что области деформированной вблизи примеси волны зарядовой плотности соответствуют либо топологическим солитонам с изменением фазы на  $\pm 2\pi$  и зарядом  $\pm 2e$ , либо дипольным солитонам с нулевым зарядом. Основные изменения фазы волны зарядовой плотности происходят, по-видимому, на длинах, соответствующих  $\approx 10$  постоянным решетки этой волны. Солитонные «хвосты» могут простираются на гораздо большие расстояния. Такие коллективные возбуждения поляронного типа, включающие в себя несколько электронов, имеют эффективную массу,

превышающую массу свободного электрона [29]. По нашему мнению, именно такие коллективные возбуждения волн зарядовой плотности определяют основные кинетические свойства основного состояния такой волны при низких температурах. Величина проводимости на постоянном токе  $G_{dc}$  определяется прыжками этих коллективных возбуждений между случайно расположенными примесными центрами. И соответственно механизму прыжковой проводимости в одномерном случае ее температурная зависимость имеет вид

$$G_{dc} \propto \exp(-T/T_0)^{1/2}$$

(см. [11, 14]). Как следует из рис. 4, в  $m$ -TaS<sub>3</sub>, как и в других квазиодномерных проводниках,  $G(\omega) \sim \omega^\alpha$  с  $\alpha \sim 0.8$ , что также типично для такого вида проводимости [4, 14]. Измерение оптического поглощения на состояниях внутри пайерлсовской щели также указывает на наличие таких коллективных возбуждений, образующих локализованные уровни для электронов [32, 33].

Естественно предположить, что и отклик закрепленной волны зарядовой плотности на действие слабого переменного поля, описываемый диэлектрической проницаемостью, также определяется, главным образом, этими коллективными возбуждениями [3, 4]. Число коллективных возбуждений при низких температурах определяется, по-видимому, прежде всего концентрацией центров пиннинга волн зарядовой плотности и слабо зависит от температуры. Однако вследствие роста жесткости волн зарядовой плотности с понижением  $T$  и наличием кооперативного взаимодействия между коллективными возбуждениями существует тенденция к упорядочению их расположения, тенденция к росту областей с определенной ориентацией этих микродиполей, т. е. к росту размеров области когерентности коллективных возбуждений [3, 34]. Величина диэлектрической проницаемости также должна возрастать, что и наблюдается в  $m$ -TaS<sub>3</sub> (рис. 1 и 3) и в других аналогичных материалах. Как видно из рис. 1, как и вблизи температуры пайерлсовского перехода  $T_2 = 160$  К, в этой области температур ( $\simeq 50$  К) наблюдается относительный минимум порогового поля  $E_T$ , что также указывает на возможность увеличения размеров областей когерентных состояний коллективных возбуждений, поскольку именно их движением определяется первое слабое отклонение от линейности ВАХ [11, 12, 14]. В этой области температур  $\epsilon'$  изменяется больше, чем  $E'_T(T)$  и произведение  $\epsilon' E'_T$  не постоянно, а его величина значительно меньше, чем  $\epsilon' E_T$  вблизи  $T_2$  (при тех же примерно минимальных значениях  $E_T$  и  $E'_T$ ). Амплитуда пиков  $\epsilon'(T)$  и положение их максимумов значительно больше изменяются с частотой, чем аналогичные зависимости  $\epsilon'(T)$  вблизи  $T_2$  (рис. 2). Это различие указывает, вероятно, на иную физическую природу появления максимумов  $\epsilon'(T)$  в области низких температур. Такой тип основного состояния и его изменение с изменением  $T$  качественно подобны основному состоянию и процессам роста размеров доменов вблизи перехода в стеклообразное состояние во многих материалах с определенной степенью беспорядка, таких, например, как спиновые стекла, ориентационные стекла и т. п. [19–21].

Одновременно с ростом размеров областей когерентности  $L$  происходит также рост времени их релаксации  $\tau \propto \exp L$  [35]. Измерения  $\epsilon'$  проводились нами при достаточно низких, но конечных частотах; когда  $2\pi f > \tau^{-1}$ , волна зарядовой плотности не будет иметь достаточно времени для отклика на такой частоте, будут наблюдаться эффекты запаздывания и величина  $\epsilon'$  начнет уменьшаться. Этим динамическим эффектом, так называемым «slowing down behavior», и объясняется появление максимума на зависимости  $\epsilon'(T)$ . При температурах ниже максимума  $\epsilon'(T)$  время релаксации становится таким

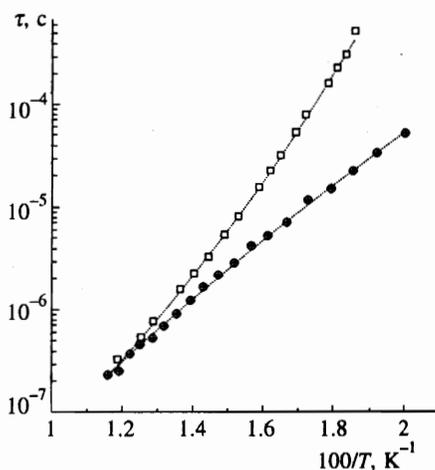


Рис. 7. Температурная зависимость характерных времен релаксации. Значение  $\tau_p$  ( $\ominus$ ) определено по положению максимумов на зависимостях  $\epsilon''(\omega, T)$ . Значения  $\tau^*$  ( $\square$ ) определены по положению максимумов на зависимостях  $\epsilon'(T, \omega)$

большим, что волна зарядовой плотности «замерзает» в некотором стеклообразном состоянии. Если предположить, что точка максимума  $\epsilon'(T)$  отвечает равенству  $\tau = 1/2\pi f$ , то из зависимости  $\epsilon'(T, \omega)$  возможно определить соответствующее характерное время релаксации возбуждений волны зарядовой плотности  $\tau^*$  при низких температурах [3, 4].

На рис. 7 представлена зависимость характерного времени релаксации  $\tau^*$  от обратной температуры, которая, по-видимому, характеризует времена релаксации наиболее медленных и самых больших по размерам областей волн зарядовой плотности, т. е. оно соответствует так называемой  $\alpha$ -релаксации [4, 24]. Представленная на рис. 7 зависимость  $\lg \tau^* = \tau_0(1/T)$  в исследованной нами области температур и частот оказывается не чисто активационной (линейной в масштабе  $1/T$ ). Она демонстрирует тенденцию к отклонению вверх от линейности, т. е. тенденцию к расходимости. Согласно гипотезе о динамическом скэйлинге, хорошо описывающем поведение многих неупорядоченных веществ вблизи перехода в стеклообразное состояние [19–21], такая зависимость  $\tau^*$  должна иметь вид

$$\tau^* = \tau_0(1 - T_c/T)^{-z\nu}.$$

Наша экспериментальная зависимость достаточно хорошо аппроксимируется такого вида соотношением с  $\tau_0 \sim 10^{-11}$  с,  $T_c = 36$  К и  $z\nu = 13$  (рис. 7).

На том же рис. 7 представлена зависимость  $\tau_p(T) = (\omega_p)^{-1}$ , полученная из температурной зависимости частоты  $\omega_p$ , соответствующей максимуму на частотной зависимости диссипативной части проницаемости  $\epsilon''(\omega)$  (рис. 5). В области температур выше 70 К зависимости  $\tau^*(1/T)$  и  $\tau_p(1/T)$  близки друг к другу, что и должно иметь место в случае одного времени релаксации или при узком распределении времен релаксации. В этой области температур обе эти зависимости асимптотически стремятся к активационной зависимости  $\tau \propto \tau_0 \exp(\Delta/T)$  с  $\Delta \simeq 900$  К, что соответствует энергетической щели  $m$ -TaS<sub>3</sub>, определенной по температурной зависимости проводимости. Этот факт, по-видимому, означает, что в этой области температур процессы релаксации волн зарядовой плотности в основном определяются одночастичными электронно-дырочными возбуждениями через пайерлсовскую щель. Одним из таких механизмов релаксации локальных деформаций волн зарядовой плотности может быть механизм термоактиви-

рованного проскальзывания фазы с расфазировкой двух участков волны в локальной области, которая на короткое время переходит в нормальное состояние, через которое и идет диссипация энергии [36].

Как видно из рис. 7, при понижении температуры ниже  $\simeq 70$  К зависимости  $\tau^*(1/T)$  и  $\tau_p(1/T)$  постепенно разъединяются. Зависимость  $\tau^*(1/T)$  отклоняется вверх от активационной и, как уже упоминалось, оказывается похожей на типичную расходимость  $\varepsilon'(T)$  вблизи перехода в стеклообразное состояние с конечной температурой  $T_c \simeq 36$  К. Подобная расходимость отвечает случаю увеличения высоты барьеров с понижением температуры, что согласуется с предложенной выше моделью увеличения размеров областей однородной поляризации коллективных возбуждений в волне зарядовой плотности при понижении  $T$  и соответствующего роста высоты энергетического барьера, преодолеть который необходимо для реполяризации этих больших областей [4, 29]. Зависимость  $\tau_p(1/T)$  идет более полого, чем активационная, которой соответствует случай энергетических барьеров постоянной величины. Это значит, что для  $\tau_p(1/T)$  эффективная величина барьеров понижается с уменьшением температуры. Такой вид зависимости  $\tau_p(1/T)$  вероятно соответствует случаю, когда релаксация происходит за счет туннельных переходов солитонов (коллективные возбуждения) между метастабильными состояниями волн зарядовой плотности вблизи центров пиннинга. Такие переходы могут являться микроскопическим механизмом, определяющим как прыжковую проводимость, так и поляризацию волн зарядовой плотности и величину  $\varepsilon'$  при низких температурах. Согласно теории, при наличии взаимодействия (корреляции) между отдельными актами туннелирования, зависимость  $\tau_p(1/T)$  формально должна описываться таким же, как и верхняя ветвь, соотношением типа

$$\tau_p \sim \tau_p^0 (1 - T_c/T)^{z\nu},$$

но с отрицательной  $T_c$  [37]. Полученную нами экспериментальную зависимость  $\tau_p(1/T)$  действительно удастся аппроксимировать таким соотношением с  $\tau_p \sim 10^{-11}$  с,  $T_c = -40$  К и  $z\nu = 24$ . Наличие такого согласия, по-видимому, указывает на возможность существования какого-то кооперативного коррелированного движения коллективных возбуждений и на этой ветви зависимости  $\tau(1/T)$ , аналогично случаю ромбического  $\text{TaS}_3$  [4]. Наличие двух ветвей на температурной зависимости времен релаксации, отклоняющихся вверх и вниз от чисто активационной зависимости, указывает на постепенное расширение с понижением температуры распределения времен релаксации и соответствующее расширение распределения по энергиям высот барьеров, преодолеваемых при релаксации. При этом возможно, конечно, и определение некоторого среднего времени релаксации, температурная зависимость которого была бы близка к активационной и располагалась между этими ветвями, представленными на рис. 7.

Таким образом, как видно из приведенных выше данных, в моноклинном  $\text{TaS}_3$  при понижении температуры так же, как и в других квазиодномерных проводниках, наблюдается ряд эффектов, характерных для перехода данного вещества в стеклообразное состояние. Полученные зависимости удовлетворительно объясняются в рамках гипотезы динамического скэйлинга [37] и качественной модели основного состояния волны зарядовой плотности и ее коллективных возбуждений солитонного типа при низких температурах [3, 4, 29, 30, 38]. Как уже упоминалось, в случае  $m\text{-TaS}_3$  существуют две волны зарядовой плотности и, согласно полученным ранее данным [5], при понижении температуры их волновые векторы не зависят от  $T$  и не приближаются к значениям, соответствующим соизмеримой волне зарядовой плотности. Из этого следует, что на-

блюдаемый выше переход в стеклообразное состояние не связан прямо с наличием или отсутствием температурной зависимости волнового вектора или с переходом волны зарядовой плотности в соизмеримое состояние. Переход квазиодномерных проводников с волнами зарядовой плотности в стеклообразное состояние при низких температурах обусловлен, по-видимому, прежде всего процессами сильного пиннинга этих волн на случайно расположенных примесных центрах с образованием взаимодействующих между собой солитоноподобных коллективных возбуждений волн зарядовой плотности.

Работа выполнена при финансовой поддержке INTAS (грант № 1010-СТ93-0051) и Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 95-03-05811).

## Литература

1. G. Kriza, Y. Kim, A. Belezny, and G. Mihaly, *Solid State Commun.* **78**, 811 (1991).
2. J. Yang and N. P. Ong, *Phys. Rev. B* **44**, 7912 (1991).
3. F. Ya. Nad' and P. Monceau, *Solid State Commun.* **87**, 13 (1993).
4. F. Ya. Nad' and P. Monceau, *Phys. Rev. B* **51**, 2052 (1995).
5. Z. Z. Wang, H. Salva, P. Monceau et al., *J. Phys. Lett.* **44**, L-311 (1983).
6. J. F. Pouget et al., *Physica Scripta* **25**, 58 (1989).
7. Д. В. Бородин, С. В. Зайцев-Зотов, Ф. Я. Надь, *ЖЭТФ* **90**, 318 (1986).
8. R. J. Cava, R. M. Fleming, R. G. Dunn, and E. A. Rietman, *Phys. Rev. B* **31**, 8325 (1985).
9. R. J. Cava, R. M. Fleming, P. Littlewood, E. A. Rietman, L. F. Schneemyer, and R. G. Dunn, *Phys. Rev. B* **30**, 3228 (1984).
10. C. Roucau, R. Ayroles, P. Monceau, L. Guemas, A. Meerchaut, and J. Rouxel, *Phys. Stat. Sol. (a)* **62**, 483 (1980).
11. M. E. Itkis, F. Ya. Nad', and P. Monceau, *J. Phys.: Condens. Matter* **2**, 8327 (1990).
12. F. Ya. Nad' and P. Monceau, *Phys. Rev. B* **46**, 7413 (1992).
13. *Electronic Properties of Inorganic Quas-One-Dimensional Compounds*, ed. by P. Monceau, Reidel, Dordrecht (1985).
14. С. К. Жилинский, М. Е. Иткис, И. Ю. Кальнова, Ф. Я. Надь, В. Б. Преображенский, *ЖЭТФ* **85**, 362 (1983).
15. G. Gruner, *Rev. Mod. Phys.* **60**, 1129 (1988).
16. A. H. Tompson, A. Zettl, and G. Gruner, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 64 (1981).
17. G. Gruner, L. C. Tipie, J. Sanny, W. G. Clark, and N. P. Ong, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 935 (1980).
18. T. Sekine, T. Tsuchya, and E. Matsuura, *Physica B* **143**, 158 (1986).
19. U. T. Hochli, K. Knorr, and A. Loidl, *Adv. Phys.* **39**, 405 (1990).
20. K. Binder and A. P. Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
21. T. N. Nattermann and J. Villian, *Phase Trans.* **11**, 5 (1988).
22. S. K. Zhilinskii, M. E. Itkis, and F. Ya. Nad', *Phys. Stat. Sol. (a)* **81**, 367 (1984).
23. N. E. Mott and E. A. Davis, *Electron Processes in Non-Crystalline Materials*, Clarendon, Oxford (1989).
24. A. K. Jonscher, *Dielectric Relaxation in Solids*, Chelsee, London (1983).
25. S. Havriliak and S. Negami, *J. Polym. Sci. C* **14**, 99 (1966).
26. H. Fukuyama and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **17**, 535 (1978).
27. P. A. Lee and T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **19**, 3970 (1979).
28. J. R. Tucker, W. G. Lyons, and G. Gammie, *Phys. Rev. B* **38**, 1148 (1988).
29. А. И. Ларкин, *ЖЭТФ* **105**, 1793 (1994).
30. С. А. Бразовский, *ЖЭТФ* **78**, 677 (1980).
31. С. Н. Артеменко, Письма в *ЖЭТФ* **63**, 49 (1996).

32. M. E. Itkis and F. Ya. Nad', *Synth. Metals* **29**, F421 (1989).
33. Ф. Я. Надь, М. Е. Иткис, *Письма в ЖЭТФ* **63**, 246 (1996).
34. B. Hennion, J. P. Pouget, and M. Sato, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2374 (1992).
35. Y. Imry and S. K. Ma, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1399 (1975).
36. F. Ya. Nad', in *Charge-Density Waves in Solids, Modern Problem in Condensed Matter Science*, ed. by L. P. Gor'kov and G. Gruner, Elsevier, Amsterdam (1989), v. 25, ch. 5.
37. J. Souletie, *J. de Phys.* **51**, 883 (1990); *J. de Phys. I* **49**, 1211 (1988).
38. A. F. Volkov, *Phys. Lett. A* **182**, 433 (1993).