

©1995

ИЗБЫТОЧНАЯ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ НЕЛИНЕЙНОСТЬ НЕОДНОРОДНЫХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ. I. ОБЪЕМНЫЕ ЭФФЕКТЫ

Г. В. Белокопытов

Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова,
 119899, Москва, Россия
 (Поступила в Редакцию 5 сентября 1994 г.)

Предложено обобщение модели эффективной среды, пригодное для описания диэлектрической нелинейности неоднородных сегнетоэлектриков. Показано, что определение параметров разложения Гинзбурга-Левоншира, производимое по результатам диэлектрических измерений поликристаллических и многодоменных образцов, сопряжено со значительной систематической погрешностью, зависящей от поля смещения, которая ранее в экспериментах с монокристаллами SrTiO_3 и керамиками $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ и $\text{BaTi}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$ проявлялась как кажущаяся полевая зависимость констант решеточного ангармонизма. Проведенные расчеты влияния неоднородности сегнетоэлектрика на его нелинейные характеристики согласуются с результатами экспериментов.

Описание нелинейных диэлектрических свойств сегнетоэлектриков традиционно базируется на положениях термодинамической теории [1,2]. Ее исходным пунктом является представление плотности свободной энергии кристалла в виде ряда по степеням поляризации P_i

$$F = F_0 + \alpha_i P_i^2 + \frac{1}{2} \beta_i P_i^4 + \frac{1}{3} \gamma_i P_i^6 + \dots \quad (1)$$

Последовательно дифференцируя (1), легко получить материальное уравнение нелинейной среды $E(P) = \partial F / \partial P$ и выражения для обратной диэлектрической восприимчивости $\chi = \partial E / \partial P = 4\pi / (\epsilon - 1)$ и коэффициента диэлектрической нелинейности $\alpha_1^{\text{dyn}} = -\epsilon^{-1} (\partial \epsilon / \partial E)$

$$E_i = 2\alpha_i P_i + 2\beta_i P_i^3 + 2\gamma_i P_i^5, \quad (2)$$

$$4\pi / \epsilon_i \approx \chi_i = 2\alpha_i + 6\beta_i P_i^2 + 10\gamma_i P_i^4, \quad (3)$$

$$\alpha_1^{\text{dyn}} = \chi_i^{-2}(P_i) (12\beta_i + 40\gamma_i P_i^2) P_i. \quad (4)$$

Определив в эксперименте зависимости диэлектрической проницаемости ϵ и коэффициента динамической нелинейности α_1^{dyn} от поля смещения E_0 и температуры T , можно найти входящие в разложение (1) коэффициенты α, β и γ . Как правило, ангармонические коэффициенты

β и γ слабо зависят от температуры. Кроме того, в сегнетоэлектриках с фазовым переходом второго рода можно пренебрегать влиянием членов γP^6 . Полагая $\gamma = 0$, непосредственно из (2), (3) получим

$$P = \frac{3}{4\pi} - \frac{\varepsilon(0)\varepsilon(E)}{\varepsilon(0) + 2\varepsilon(E)} E. \quad (5)$$

Подобный прием, позволяющий исключить из формул (2)–(4) величину поляризации (прямое определение которой в диэлектрических измерениях не производится), ранее использовался для обработки реверсивных характеристик ε в ряде работ [3–7].

Однако при расчете ангармонических коэффициентов β по результатам диэлектрических измерений [4–7] было обнаружено, что у целого ряда сегнетоэлектриков семейства перовскита вычисленные значения β регулярным образом зависят от величины электрического поля смещения. Такой результат находится в явном противоречии с основными допущениями термодинамической теории, где $\partial\beta/\partial E \equiv 0$. Видимое непостоянство коэффициентов термодинамического разложения при четвертой степени поляризации отмечалось при исследовании как поликристаллических материалов (керамики $(\text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ и $\text{Ba}(\text{Ti}, \text{Sn})\text{O}_3$ [4,5]), так и монокристаллов SrTiO_3 и KTaO_3 [6,7] при измерениях в различных частотных диапазонах.

Стрикционные эффекты и влияние структурного фазового перехода не могут объяснить отмеченной аномалии, поскольку их учет приводит не к изменению зависимостей (6)–(8), а лишь к уточнению величин ангармонических констант [8,9]. Не спасает положения и учет влияния членов порядка P^6 в термодинамическом разложении, поскольку зависимость $\beta(E)$ наиболее выражена в относительно слабых полях, где вклад γP^6 пренебрежимо мал. В то же время в сильных полях имеется тенденция выхода $\beta(E)$ на константу.

Попытки объяснить зависимость $\beta(E)$ в рамках микроскопической теории также не ведут к успеху. Так, квантово-статистический расчет генерации второй гармоники в сегнетоэлектриках, проведенный в [10], показал, что корреляция флуктуаций ведет к появлению дополнительной дисперсии нелинейной диэлектрической восприимчивости, однако функциональный вид $\varepsilon(E)$ и $\alpha_1^{\text{dyn}}(E)$ остается таким же, как в термодинамической теории.

Было высказано предположение [6], что избыточная диэлектрическая нелинейность, ведущая к кажущейся зависимости констант β в слабых полях, является следствием макроскопической неоднородности кристаллов, а действительный ангармонизм мягкой полярной моды характеризуют значения коэффициентов β , определенные в сильных полях смещения. Однако этот вывод базировался лишь на качественных соображениях, и до последнего времени адекватной модели для теоретического описания эффекта избыточной нелинейности не было известно, что в свою очередь сдерживало прогресс эксперимента.

На характеристики нелинейного диэлектрика оказывает влияние как объемная неоднородность (в виде кристаллитов и доменов), так и неоднородность, связанная с поверхностными слоями. Настоящая работа посвящена исследованию нелинейных свойств объемно-неоднородных диэлектриков в рамках теории эффективной среды. Влияние поверхностных слоев будет рассмотрено в следующей работе.

1. Теория эффективной среды для нелинейных диэлектриков

Диэлектрическая проницаемость неоднородных материалов может быть определена в рамках теории эффективной среды [11,12]. Для статистической смеси частиц двух сортов предполагается справедливым допущение, что для частицы i -го типа связь между локальным полем E_i и средним полем \bar{E} может быть определена по той же формуле, что и для сферической частицы с проницаемостью ε_i , погруженной в среду с некоторой эффективной диэлектрической проницаемостью ε_{ef}

$$E_i = \frac{3\varepsilon_{ef}}{2\varepsilon_{ef} + \varepsilon_i} \bar{E}, \quad i = 1, 2. \quad (6)$$

Пусть объемная концентрация первой компоненты равна w , а второй — $(1 - w)$. Поскольку в результате усреднения поля по образцу должна получиться величина, равная E , то с учетом (6) имеют место условия самосогласования

$$w \frac{3\varepsilon_{ef}}{2\varepsilon_{ef} + \varepsilon_1} + (1 - w) \frac{3\varepsilon_{ef}}{2\varepsilon_{ef} + \varepsilon_2} = 1. \quad (7)$$

Отсюда легко найти ε_{ef} .

Обобщим эту модель на нелинейный случай. Будем для простоты полагать, что диэлектрическая проницаемость каждой из фаз изотропна, причем имеют место материальные уравнения (2), где $i = 1, 2$. Пусть к диэлектрику приложено статическое поле смещения $\bar{E}^{(0)}$ и переменное поле $\bar{E}^{(1)}$ с частотой ω . Для малых амплитуд поля $\bar{E}^{(1)}$ применимы соотношения линейной теории (6), (7), где ε_i определяется из (3). Таким образом, величины проницаемостей ε_i являются функциями статической поляризации частиц i -го сорта, которая в свою очередь зависит от среднего поля \bar{E} . При $\varepsilon \gg 1$ имеем

$$dP_i = \frac{\varepsilon_i}{4\pi} dE_i = \frac{3\varepsilon_{ef}\varepsilon_i}{2\varepsilon_{ef} + \varepsilon_i} \frac{dE}{4\pi}. \quad (8)$$

Система уравнений (2), (3), (7), (8) полностью определяет функциональную зависимость эффективной диэлектрической проницаемости ε_{ef} от поля $\bar{E}^{(0)}$.

В работах [4-6], используя для усредненных величин ε_{ef} , P_{ef} и $\bar{E}^{(0)}$ соотношения термодинамической теории (2)-(4), нелинейную двухкомпонентную среду характеризовали таким же образом, как однородный сегнетоэлектрический кристалл. В частности, при $\gamma = 0$ полагали справедливым равенство

$$P_{ef} = \frac{3E^{(0)}}{4\pi} \left[2\varepsilon_{ef}^{-1}(0) + \varepsilon_{ef}^{-1}(E^{(0)}) \right]^{-1}, \quad (9)$$

эквивалентное (5). Эффективная константа ангармонизма $\beta_{ef}^{(1)}$ определялась либо численным дифференцированием зависимости $\varepsilon_{ef}(E)$, либо по аналогии с однородной средой по формуле

$$\beta_{ef}^{(2)} = \frac{4\pi}{6} \frac{\varepsilon_{ef}^{-1}(E^{(0)}) - \varepsilon_{ef}^{-1}(0)}{P_{ef}^2}. \quad (10)$$

Для неоднородной среды эти два подхода неэквивалентны, но, в обоих случаях результат зависит от поля смещения.

Кроме определенных выше статических коэффициентов ангармонизма можно ввести также динамический коэффициент ангармонизма, характеризующий эффективность генерации второй гармоники. Подставляя в (3) разложение напряженности поля и поляризации в виде суммы гармонических составляющих

$$E = E^{(0)} + E^{(1)} + E^{(2)} + \dots, \quad P = P^{(0)} + P^{(1)} + P^{(2)} + \dots$$

с учетом $|E^{(0)}| \gg |E^{(1)}| \gg |E^{(2)}|$ получим

$$E_i^{(2)} = 6\beta_i P_i^{(0)} P_i^{(1)2}. \quad (11)$$

Соответственно средняя напряженность поля второй гармоники равна

$$E_{\text{ef}}^{(2)} = 6w\beta_1 P_1^{(0)} \left(\frac{\varepsilon_1}{4\pi} E_1^{(1)}\right)^2 + 6(1-w)\beta_2 P_2^{(0)} \left(\frac{\varepsilon_2}{4\pi} E_2^{(1)}\right)^2. \quad (12)$$

Для эквивалентной однородной среды имеем

$$E_{\text{ef}}^{(2)} = 6\beta_{\text{ef}}^{\text{dyn}} P_{\text{ef}}^{(0)} \left(\frac{\varepsilon_{\text{ef}}}{4\pi} E_{\text{ef}}^{(1)}\right)^2. \quad (13)$$

Сопоставляя (12) и (13), найдем выражение для эффективного коэффициента динамического ангармонизма

$$\beta_{\text{ef}}^{\text{dyn}} = \left[w\beta_1 P_1^{(0)} \left(\frac{3\varepsilon_1}{2\varepsilon_{\text{ef}} + \varepsilon_1}\right)^2 + (1-w)\beta_2 P_2^{(0)} \left(\frac{3\varepsilon_2}{2\varepsilon_{\text{ef}} + \varepsilon_2}\right)^2 \right] / P_{\text{ef}}^{(0)}. \quad (14)$$

Очевидное различие между значениями $\beta_{\text{ef}}^{(1,2)}$ и $\beta_{\text{ef}}^{\text{dyn}}$ показывает, что в неоднородной среде имеется дисперсия диэлектрической нелинейности, которая «работает» в дополнение к известному механизму электромеханического зажатия [1,8].

В проведенном обобщении теории эффективной среды на нелинейный случай содержится два неявных допущения, которые следует иметь в виду при сопоставлении с экспериментом. Во-первых, используется предположение о том, что при пространственном усреднении $\langle P_i^n \rangle = \langle P_i \rangle^n$. Это справедливо для сферических частиц, внутри которых поле и поляризация однородны, однако реальная неоднородность среды приводит к нарушению этого равенства. В частности, при неоднородном распределении поляризации следует полагать

$$\langle P_i^2 \rangle = \langle P_i \rangle^2 + \delta P_i^2,$$

где δP_i^2 — дисперсия поляризации, обусловленная неоднородным распределением поля в частицах i -го типа. Вместе с тем пока изменение диэлектрической проницаемости, индуцированное неоднородной составляющей поля, не слишком велико, можно полагать, что величина δP_i^2 пропорциональна $\langle P_i \rangle^2$, так же как в линейной неоднородной

среде. Тогда при нормальном распределении неоднородности поляризации влияние этой неоднородности сведется просто к перенормировке констант β_i в (9).

Второе допущение состоит в том, что проводимость среды является пренебрежимо малой и не вызывает перераспределения поля смещения между частицами. Проводимые ниже модельные расчеты сопоставляются с результатами, полученными в экспериментах с хорошими изоляторами, где это условие выполнено.

2. Результаты расчетов и обсуждение

Нами были проведены модельные расчеты для условий, по возможности приближенных к реальным экспериментальным ситуациям для моно- и поликристаллических сегнетоэлектриков. Ниже обсуждаются основные результаты вычислений.

1) *Нелинейность многодоменного титаната стронция.* Ниже 105 К кристаллы SrTiO_3 в результате структурного фазового перехода утрачивают кубическую симметрию и разбиваются на структурные домены, в каждом из которых диэлектрическая проницаемость анизотропна, а ориентация осей тетрагонально искаженной решетки различна [1,2]. В качестве модели для вычисления эффективной диэлектрической проницаемости была взята двухкомпонентная среда, проницаемость отдельных компонент которой в отсутствие поля была принята равной значениям составляющих ϵ однодоменного кристалла SrTiO_3 при 4.2 К, измеренным на низкой частоте вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси, т.е. $\epsilon_1 = 9380$ и $\epsilon_2 = 41900$ [13]. Поскольку структурный фазовый переход при 105 К не приводит к появлению значительной анизотропии констант ангармонизма, в соответствии с [6] было принято $\beta_i = \beta_2 = \beta = 5.0 \cdot 10^{-12}$ CGS, а также $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$.

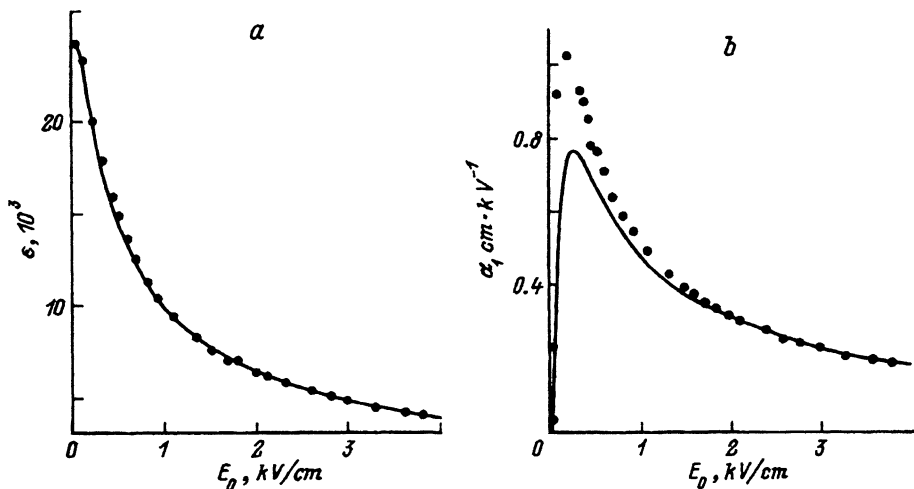


Рис. 1. Зависимости $\epsilon(E)$ (a) и α_1^{dyn} (b) монокристаллического титаната стронция для кристаллографического направления [100], $T = 4.2$ К.

Точки — эксперимент [6], линии — расчет.

При равновероятном распределении осей структурных доменов имеем $w = 1/3$ и $\varepsilon_{ef} = 28 \cdot 10^3$. Вследствие различий в доменной структуре образцов реальные значения ε в многодоменных кристаллах при гелиевой температуре лежали в пределах $(24-32) \cdot 10^3$. Хорошее согласие с экспериментальными зависимостями $\varepsilon(E)$ и $\alpha_1^{dyn}(E)$ в достаточно сильных полях дало решение уравнений (2), (3), (7), (8) при $w = 0.44$ (рис. 1). Расчет показал, что эффективные параметры $\beta_{ef}^{(1,2)}$ и β_{ef}^{dyn} в сильных полях смещения асимптотически стремятся к β , при этом имеет место тенденция к выравниванию диэлектрической проницаемости отдельных областей кристалла при увеличении поля. В то же время значения параметров ангармонизма, найденные в слабых полях, оказываются завышенными по сравнению со случаем однородной среды, причем $\beta_{ef}^{(2)} > \beta_{ef}^{(1)} > \beta_{ef}^{dyn}$ (рис. 2). Последнее неравенство согласуется с результатами тщательных измерений статической и динамической нелинейностей [14]. Напротив, в пренебрежении неоднородностью кристалла неравенство должно иметь противоположный знак вследствие стрикционных эффектов [9].

При нахождении зависимости $\beta(E)$ из реверсивных характеристик ε имеет место хорошее согласие между результатами эксперимента и модельного расчета (рис. 2, а). Вместе с тем гораздо большим оказывается количественное различие между зависимостями $\beta_{ef}^{dyn}(E)$, определенными в области слабых полей из модельного расчета и из эксперимента по генерации второй гармоники. Отчасти этот факт можно отнести на счет несовершенства модели, в которой для описания реальных диэлектрически анизотропных структурных доменов использовано допущение, что составляющие фазы изотропны. Учет анизотропии в принципе сводится к построению теории эффективной среды для частиц эллипсоидальной формы, что ведет к заметному усложнению ее соотношений. Известно, однако [12, 15], что в моделях эффективной среды поправки, обусловленные несферичностью, значительны только для эллипсоидальных частиц с отношением осей порядка 10 и более. Поэтому можно ожидать, что поправки на анизотропию невелики.

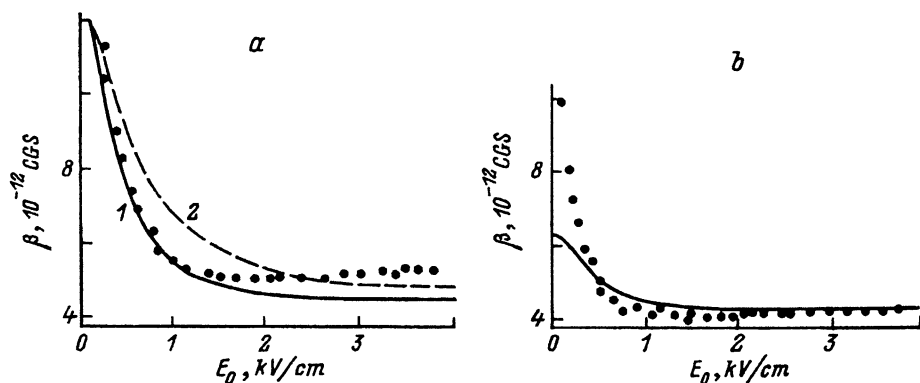


Рис. 2. Зависимости эффективного коэффициента ангармонизма, определенного из реверсивных характеристик (а) и по генерации второй СВЧ-гармоники (б).

Точки — эксперимент [6, 14], линии — расчет: 1 — $\beta_{ef}^{(1)}$, 2 — $\beta_{ef}^{(2)}$, 3 — β_{ef}^{dyn} .

Более существенным фактором следует считать влияние поверхностных слоев металл-диэлектрик, которые представляют собой барьеры Шоттки [16]. Рассмотрение их влияния требует специального анализа.

2) *Нелинейность сегнетокерамики в парафазе.* Материалы семейства перовскита, применяемые в сегнетокерамике, имеют в парафазе кубическую симметрию. Поэтому при идентичности состава кристаллитов, образующих керамику, в качестве ее модели можно рассматривать двухкомпонентную среду, где $\epsilon_1 = \epsilon_2$, но $\beta_1 \neq \beta_2$ из-за произвольного характера ориентации поля смещения относительно кристаллографических осей.

Расчеты для модельных ситуаций такого типа показали, что при $\beta > 0$ для них характерна тенденция к перераспределению поля смещения, способствующему выравниванию диэлектрической проницаемости отдельных областей. При этом величина эффективных параметров нелинейности устанавливается примерно равной среднему взвешенному значению β_1 и β_2 и слабо зависит от поля. В области полей, представляющей физический интерес, полная вариация β_{ef} не превышает 2-3%, если $1/2 < \beta_1/\beta_2 < 2$. Таким образом, анизотропия нелинейности не может объяснить наблюдавшейся в [5] зависимости $\beta(E)$ в керамических системах $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ (I) и $BaTi_{1-x}Sn_xO_3$ (II). Исключением может быть лишь область малых x вблизи точки фазового перехода, поскольку в титанате бария анизотропия коэффициента β довольно велика, причем в зависимости от направления он имеет разные знаки [17].

Более существенным фактором для объяснения $\beta(E)$ -аномалии в указанных керамических системах представляются неизбежная неоднородность в химическом составе отдельных зерен керамики и как следствие разброс в температурах Кюри T_c отдельных областей. Согласно [5], изменение x на 1% приводит к сдвигу T_c на 3.5 К в системе I и на 6 К в системе II. Таким образом, величины ϵ_1 и ϵ_2 следует считать неодинаковыми, причем их различие возрастает при приближении к температуре фазового перехода, так как $\alpha_i(T) = 4\pi/C(T - T_{ci})$.

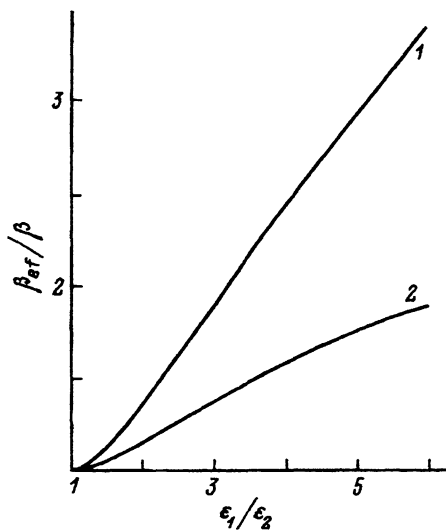


Рис. 3. Зависимости нормированных коэффициентов анизотропии в нулевом поле смещения от отношения диэлектрических проницаемостей компонент при $\beta_1 = \beta_2 = \beta$, $\omega = 0.5$.

1 — $\beta_{ef}^{(2)}$, 2 — β_{ef}^{dyn} .

Соответственно по мере роста неоднородности ϵ увеличивается превышение значениями $\beta_{\text{ef}}^{(2)}$ и $\beta_{\text{ef}}^{\text{dyn}}$ эффективной величины β , измеренной в сильном поле. Результат модельного расчета, представленный на рис. 3, находится в качественном согласии с данными эксперимента [5]. В [4] указывался еще один источник диэлектрической неоднородности сегнетокерамики — границы между зернами. Выводы теории эффективной среды в принципе справедливы и для этого случая.

3) *Влияние локальных полей.* Поликристаллическим сегнетоэлектрикам свойственно наличие большого количества случайно распределенных в объеме заряженных дефектов, которые характеризует неравновесная плотность заряда $\rho(r)$. Как следствие наряду с поляризацией, индуцированной внешним полем, в них присутствуют дополнительные локальные поля и статическая поляризация \bar{P} , обусловленная неравновесным зарядом, такая что

$$\text{div } \bar{P} \approx \text{div } D/4\pi = \rho.$$

В свою очередь эта поляризация индуцирует в нелинейном диэлектрике дополнительную неоднородность проницаемости.

С целью выяснения влияния хаотических полей на параметры диэлектрической нелинейности сегнетоэлектрика была рассмотрена следующая модель. Было принято, что нелинейный диэлектрик состоит из частиц двух сортов, различающихся лишь величиной \bar{P} , таких что $\bar{P}_1 = -\bar{P}_2 = P_0$, причем $w = 0.5$. Интегрирование системы (2), (3), (7), (8) для этого случая ничем не отличается от стандартного, за исключением того, что при $E = 0$ имеем не $E_i = 0$, а $E_i = E(\bar{P}_i)$ (см. (2)). Численный расчет проводился для значений P_0 , которые соответствуют оценкам максимальной плотности точечных заряженных дефектов [18]. Результаты вычислений представлены на рис. 4. Как видно из графика, учет хаотической поляризации приводит к незначительному общему уменьшению коэффициента ангармонизма. Его зависимость от поля смещения довольно слаба и имеет качественно иной вид, чем в рассмотренных выше случаях.

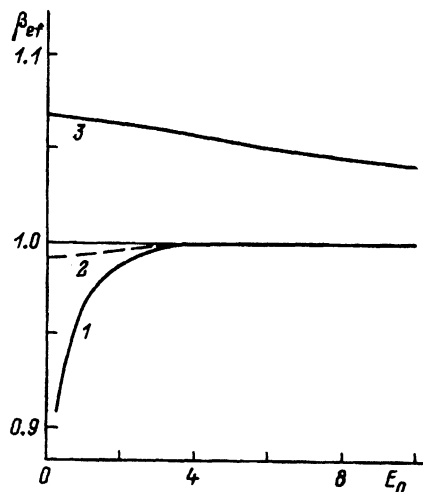


Рис. 4. Зависимости $\beta_{\text{ef}}(E)$ для нелинейной среды с хаотическим распределением дипольных моментов при $\epsilon = 12 \cdot 10^3$, $\beta = 1 \cdot 10^{-12}$, $P = 750$ CGS.

1 — $\beta_{\text{ef}}^{(1)}$, 2 — $\beta_{\text{ef}}^{\text{dyn}}$, 3 — расчет по [19].

Ранее в [19] предлагалось для описания реверсивных характеристик диэлектрической проницаемости и нелинейности сегнетокерамики использовать соотношения, следующие из (2)–(4) при $\gamma = 0$, модифицированные таким образом, что вместо поля смещения E в них входит эффективное поле $E_{ef} = (E^2 + E_{dif}^2)^{1/2}$, где E_{dif} — формально введенный параметр, названный авторами [19] «полем размытия». Полевая зависимость $\beta(E)$, получаемая в рамках такой модели, имеет вид, аналогичный рис. 1 (см. рис. 4). Однако наш расчет показывает, что действительное макроскопическое поле размытия, связанное с заряженными дефектами, не может вызвать появление избыточной нелинейности в слабом поле. Следует, впрочем, оговориться, что сами авторы [19] не придавали E_{dif} смысла реального электрического поля.

Хотя модель двухкомпонентной среды является довольно грубой, она позволяет делать качественные выводы о характере изменений нелинейности не только для случая материалов с заряженными дефектами, но и для таких сред с замороженными диполями, как кристаллы танталата калия с нецентральными примесными ионами (Li, Na, Nb) при низких температурах. В последнем случае оценки поляризации дают величину $P_0 \approx 10^3$ CGS [20]. Расчетные зависимости $\beta(E)$ при этом имеют вид, подобный рис. 4, но с гораздо более выраженной «депрессией» в области слабых полей. Однако в эксперименте [21] наблюдались зависимости совсем иного типа, подобные рис. 2. Это может свидетельствовать сразу о двух обстоятельствах: во-первых, о том, что нецентральные ионы хотя и «замораживаются» при низких температурах, но не испытывают макроскопического упорядочения, и поэтому приближение эффективной среды для них не имеет смысла, и, во-вторых, о том, что существенный вклад в диэлектрическую нелинейность образцов могут вносить приэлектродные барьерные слои.

4) *Оценка коэффициентов ангармонизма шестой степени.* Характерной особенностью экспериментально полученных зависимостей $\beta(E)$ [5,6] является их асимптотическое стремление к постоянным значениям в весьма сильных полях (в [5] — до 40–50 kV/cm). Это означает, что член γP^6 в выражении для свободной энергии дает пренебрежимо малый вклад в диэлектрическую нелинейность. Отсюда нетрудно получить оценку сверху

$$\gamma \lesssim 10^{-21} \text{ CGS}, \quad (15)$$

справедливую как для сегнетокерамики составов $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ и $\text{BaTi}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$, так и для монокристаллов SrTiO_3 . Именно такой порядок имеет величина γ у BaTiO_3 [17].

Оценка (15) находится в противоречии с результатом [4], где было найдено, что значения γ , определенные из реверсивных характеристик для сегнетокерамик, имели величину по крайней мере на порядок большую. Однако расчеты в рамках модели эффективной среды показывают, что попытки определить ангармонические константы из реверсивных характеристик, пренебрегая неоднородность диэлектрика, дают сильно завышенные результаты. Так, например, если аппроксимировать полиномом пятой степени (3) рассчитанную выше зависимость $\epsilon(E(P))$ для случая многодоменного SrTiO_3 , получим $\gamma_{ef} = 2.0 \cdot 10^{21}$ CGS, в то время как в исходной модели $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$, т.е. ангармонизм шестой

степени отсутствует. Более того, если взять для аппроксимации более узкий интервал полей смещения (не 3 kV/cm , а 1.5 kV/cm), то величина γ возрастает до $10.5 \cdot 10^{-21} \text{ CGS}$.

Приведенный пример показывает, что результаты диэлектрических измерений, полученные на неоднородных образцах, непригодны для нахождения ангармонических констант высших порядков, поскольку само разложение Гинзбурга-Девоншира напрямую неприменимо к описанию диэлектрического отклика неоднородных сегнетоэлектриков. Тем не менее, проводя диэлектрические измерения в сильных полях смещения, где $\epsilon(0)/\epsilon(E) > 2$, можно с достаточной надежностью определять величину коэффициента ангармонизма β .

Итак, в настоящей работе предложено обобщение теории эффективной среды на случай нелинейных неоднородных диэлектриков. Это обобщение оказалось плодотворным для выяснения природы зависимости коэффициентов ангармонизма кристаллической решетки от поля смещения. Приведенные модельные расчеты, которые в целом согласуются с экспериментом, дают основания утверждать, что существенную роль в появлении кажущейся зависимости такого рода играет перераспределение поля при поляризации неоднородного диэлектрика. Вместе с тем указанный механизм нельзя считать единственным, поскольку имеются ситуации (например, в кристаллах KTaO_3 как беспримесных, так и легированных 7,21), когда он заведомо не работает. В этой связи исследование влияния поверхностных слоев металл-диэлектрик на нелинейный диэлектрический отклик сегнетоэлектрических образцов представляется весьма актуальным.

Список литературы

- [1] Физика сегнетоэлектрических явлений / Под ред. Г.А.Смоленского. М. (1985).
- [2] Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные материалы. М. (1983).
- [3] Roberts S. Phys. Rev. **71**, 12, 890 (1947).
- [4] Кириллов В.В., Исупов В.А. Изв. АН СССР. Сер. физ. **31**, 11, 1835 (1967).
- [5] Фрицберг В.Я., Гринвалд Г.Ж., Гаевскис А.П. Учен. зап. Латв.ун-та **189**, 47 (1974); Изв. вузов. Физика **20**, 1, 103 (1977).
- [6] Белокопытов Г.В., Бузин И.М., Иванов И.В., Стрепетова Н.Н., Чупраков В.Ф. ФТТ **23**, 1, 141 (1981).
- [7] Белокопытов Г.В., Иванов И.В., Стрепетова Н.Н., Чупраков В.Ф. Тез. X Все-союзн. конф. по сегнетоэлектричеству. Минск (1982). Ч. 2. С. 42.
- [8] Сегнетоэлектрики в технике СВЧ / Под ред. О.Г.Вендик. М. (1978).
- [9] Белокопытов Г.В. Деп. в ВИНТИ, рег. № 3951-80, Деп. 01.09.1980.
- [10] Балагуров Б.Я., Гейликман М.Б. ФТТ **14**, 8, 2362 (1972).
- [11] Оделевский В.И. ЖТФ **21**, 6, 678 (1952).
- [12] Электрофизические свойства перколяционных систем / Под ред. А.М.Лагарькова. М. (1990).
- [13] Uwe H., Sakudo T. Phys. Rev. **B13**, 1, 271 (1976).
- [14] Чупраков В.Ф. Канд. дисс. М. (1981).
- [15] Niklassen G.A., Granquist C.G. J. Appl. Phys. **55**, 9, 3382 (1984).
- [16] Kahng D., Wemple S.H. J. Appl. Phys. **36**, 9, 2925 (1965).
- [17] Иона Ф., Ширане Д. Сегнетоэлектрические кристаллы. М. (1965).
- [18] Вендик О.Г., Платонова Л.М. ФТТ **13**, 6, 1617 (1971).
- [19] Вендик О.Г., Козырев А.Б. ФТТ **15**, 5, 1636 (1973).
- [20] Бугмейстер Б.Е., Глинчук М.Д. Изв. АН СССР. Сер. физ. **47**, 3, 582 (1983).
- [21] Белокопытов Г.В., Иванов И.В., Решетников М.Е., Стрепетова Н.Н., Сыромятников И.Ю., Харина М.В. Изв. вузов. Физика **31**, 1, 3 (1988).