

- [5] Testardi L. R. e. a. // Phys. Rev. 1988. V. 37B. N 4. P. 1324—2327  
 [6] Ищук В. М. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. № 6. С. 341—344.  
 [7] Юшин Н. К. и др. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 10. С. 2947—2952.

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе  
 АН СССР  
 Ленинград

Поступило в Редакцию  
 10 января 1990 г.

УДК 539.2.537.226

© Физика твердого тела, том 32, № 7, 1990  
 Solid State Physics, vol. 32, N 7, 1990

## ПРИРОДА ОСОБЕННОСТЕЙ КООПЕРАТИВНОГО ПОВЕДЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ Na В $\text{KTaO}_3$

М. Д. Глинчук, И. М. Смолянинов

В последнее время вопрос о характере упорядочения в  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$  в низкотемпературной фазе приобрел особую актуальность. Это связано с тем, что, как первоначально предполагалось [1], в  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$  и  $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$  (КТЛ) происходят подобные фазовые переходы. Однако в измерениях по двупреломлению [2] проявилось отличие КТЛ от  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$ . Так, при  $T_g \approx 28 \text{ K}$  ( $x \approx 0.21$ ) появляются тетрагональные домены (аналогично КТЛ), а при дальнейшем понижении температуры  $T < T_g \rightarrow 25 \text{ K}$  двупреломление уменьшается и исчезает (в отличие от КТЛ). В [2] это связывалось с увеличением беспорядка и возникновением фазы дипольного стекла. Другая важная особенность низкотемпературной фазы проявилась при исследовании квадрупольной релаксации  $^{23}\text{Na}$  методом ЯМР в  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$  при  $0.05 \leq x \leq 0.18$  [3]. На основе этих исследований был сделан вывод, что в  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$  низкотемпературная фаза находится в состоянии структурного стекла, аналогичного структурному стеклу в  $\text{KB}_{1-x}(\text{CN})_x$  [4].

Таким образом, поскольку нецентральные примеси обладают как упругими, так и электрическими дипольными моментами и квадрупольное взаимодействие может быть больше электродипольного, то возникает необходимость исследовать характер упорядочения электрических диполей в фазе квадрупольного стекла. Причем кооперативное поведение электрических диполей в сильно поляризуемой решетке будет отличаться от случая слабо поляризуемой решетки (например,  $\text{KB}_{1-x}(\text{CN})_x$ ); в первом случае взаимодействие знакопостоянное [5], а во втором случае — знакопеременное, которое приводит к состоянию дипольного стекла [6].

В настоящей работе рассмотрено кооперативное сегнетоэлектрическое поведение нецентральных примесей, обладающих большими упругими и малыми электродипольными моментами при наличии больших случайных полей. Показано, что случайные упругие поля приводят к разбиению нецентральных примесей на три независимые группы диполей с направлением поляризации вдоль направлений типа [100], в каждой из которых происходит перколяционный фазовый переход.

Нецентральные примеси (НП) обладают как электрическими  $d_i = d_i \cdot S_i$  ( $S_i$  — единичный вектор нецентрального смещения примеси; в дальнейшем будут рассматриваться направления типа [100]), так и упругими квадрупольными моментами  $\Omega_{\alpha\beta} = \Omega (S_i^2 S_j^2 - \delta_{\alpha\beta}/3)$ , где  $\Omega \sim \Omega_{\parallel} - \Omega_{\perp}$  — компонента тензора вдоль оси вытянутости диполя,  $\Omega_{\perp}$  — компонента тензора перпендикулярно оси вытянутости диполя. Гамильтониан для НП в мягкой решетке при наличии случайных упругих полей имеет вид

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} V_{ij} (S_i \cdot S_j) - \sum_i \Omega(r_0) \varepsilon(r_0) (\vec{u}^i \cdot S_i)^2. \quad (1)$$

В (1) первый член представляет собой косвенное взаимодействие между электрическими диполями через мягкие фононы. В работе рассмотрена область концентраций  $n$ , для которой  $nr_0^3 > 1$  ( $r_0$  — радиус корреляции решетки) и  $V_{ij}$  определяется знаком постоянным членом  $V_{ij} > 0$  [5] (при рассмотрении электродипольных свойств в  $\text{KBr}_{1-x}(\text{CN})_x$  также исходят из (1), но  $V_{ij}$  имеет знакпеременный характер). Второй член представляет собой взаимодействие упругих диполей со случайными упругими деформациями ( $I_i$  — единичный вектор, направленный вдоль случайного тетрагонального искажения по одному из направлений типа [100]). В дальнейшем рассматривается случай, когда упругое взаимодействие больше электродипольного  $\bar{V}_{ij} \ll \Omega \epsilon$ ; тогда  $S^i = I^i \sigma_i^z (\sigma_i^z$  — матрица Паули) и (1) записывается в виде

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} V_{ij} (\vec{i}^i \cdot \vec{i}^j) \sigma_i^z \sigma_j^z$$

Таким образом, система примесей распадается на три не взаимодействующие группы диполей. Такое разбиение связано с тем, что для НП с  $S^i$  вдоль направлений типа [100] из шестиязменного потенциала примеси выделяются случайным образом упругими полями две по оси вдоль  $\vec{i}^i$ .

В приближении локального среднего поля, когда среднее число соседей  $z \gg 1$  ( $z = 4\pi nr_0^3$ ), свободная энергия представляется в виде [7]

$$F = -\frac{1}{2} \sum_{\alpha ij} V_{ij} m_{\alpha}^i m_{\alpha}^j + \frac{T}{2} \sum_{i\alpha} \{ (1 + m_{\alpha}^i) \ln [(1 + m_{\alpha}^i)/2] + (1 - m_{\alpha}^i) \ln [(1 - m_{\alpha}^i)/2] \}, \quad (2)$$

где  $m_{\alpha}^i = I_i^i \langle \sigma_{\alpha}^z \rangle$  — тепловое среднее  $i$ -го диполя,  $T$  — температура. При  $m_{\alpha} < 1$  последний член можно разложить в ряд, получаем

$$F = \sum_{\alpha} \left\{ -\frac{1}{2} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \sum_{ij} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_j) m_{\alpha}(\mathbf{r}) m_{\alpha}(\mathbf{r}') + T \int d\mathbf{r} \left[ \frac{1}{2} \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) m_{\alpha}^2(\mathbf{r}) + \frac{1}{12} \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) m_{\alpha}^4(\mathbf{r}) + \frac{1}{30} \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) m_{\alpha}^6(\mathbf{r}) \right] \right\}. \quad (3)$$

Из (3) видно, что коэффициенты в разложении  $F$  зависят от плотности примесей, а так как примеси расположены хаотически в решетке, то это приводит к флуктуациям плотности. Поскольку первый член в (3) зависит от квадрата плотности, а флуктуации квадрата плотности при концентрации НП  $x \rightarrow 0.12 \div 0.3$  на порядок величины меньше по сравнению с флуктуациями плотности, то ими можно пренебречь. Флуктуациями плотности при членах  $m_{\alpha}^4(\mathbf{r})$  и  $m_{\alpha}^6(\mathbf{r})$  также можно пренебречь по сравнению с членами при  $m_{\alpha}^2(\mathbf{r})$  из-за малости численных коэффициентов (эти флуктуации необходимо учитывать при сохранении в  $F$  членов  $m_{\alpha}^8(\mathbf{r})$  и  $m_{\alpha}^{12}(\mathbf{r})$ ). В результате (3) можно записать при  $(n^1/r_0^3)^2 > 1$  в виде

$$F = \sum_{\alpha} \int d\mathbf{r} \left[ \frac{c_{\alpha}}{2} (\tau^{\alpha} + \delta\tau^{\alpha}(\mathbf{r})) m_{\alpha}^2(\mathbf{r}) + \frac{c_{\alpha}}{2} (\nabla m_{\alpha}(\mathbf{r}))^2 + \frac{b_{\alpha}}{4} m_{\alpha}^4(\mathbf{r}) + \frac{d_{\alpha}}{6} m_{\alpha}^6(\mathbf{r}) \right],$$

$$\overline{\delta\tau^{\alpha}(\mathbf{r}) \delta\tau^{\beta}(\mathbf{r}')} = \delta_{\alpha\beta} \Delta_{\alpha} \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}), \quad \delta\tau^{\alpha}(\mathbf{r}) = \frac{1}{n^{\alpha}} \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) - 1, \quad (4)$$

где  $a_{\alpha} = n_{\alpha} T$ ,  $c_{\alpha} = n_{\alpha}^2 K r_0^2$ ,  $b_{\alpha} = T n_{\alpha} / 3$ ,  $d_{\alpha} = T n_{\alpha} / 5$ ,  $\Delta_{\alpha} = 1/n_{\alpha}$ ,  $n_{\alpha} = n/3$ ,  $\tau^{\alpha} = = 1 - T_c^{\alpha} / T$ . Средняя температура перехода  $T_c^{\alpha} = n_{\alpha} K$ ,  $K \sim G r_0 d_j d_j$ ,  $G = \text{const}$ .

Так как  $r_0 = v/\omega_0$  и  $\omega_0 \sim T$ , то  $T_c \sim \sqrt{n}$ ; именно такая зависимость  $T_c$  от  $n$  наблюдалась в  $\text{K}_{1-x}\text{Na}_x\text{TaO}_3$  при  $0.12 \leq x \leq 0.3$  [8]. В [8] зависимость  $T_c \sim \sqrt{n}$  объяснялась проявлением квантовых эффектов в температурной зависимости частоты мягкой моды при переходе типа смещения, но такое объяснение противоречит обнаруженной экспериментально низ-

кочастотной диэлектрической дисперсии [9], которая однозначно указывает на переход типа порядок—беспорядок.

Таким образом, из (4) видно, что большие случайные упругие поля приводят к трем независимым системам диполей со случайными температурами перехода. Отметим, что и при введении малых концентраций упругих диполей в решетку со структурным фазовым переходом, описываемым  $m$ -компонентным параметром порядка, в критической области гамилтониан разбивается на  $m$  гамилтонианов примесных моделей Изинга [10], при этом фазовый переход носит непрерывный характер.

Проанализируем характер фазового перехода в рассмотренном нами случае. Он будет зависеть от соотношения  $\Delta_\alpha$  и  $b_\alpha$ . Известно [11], что при  $b_\alpha > \Delta_\alpha a_\alpha^2 / T_c^\alpha$  происходит непрерывный фазовый переход и в критической области осуществляется режим «грязного скейлинга»; при  $\Delta_\alpha a_\alpha^2 / T_c^\alpha \geq b_\alpha > -b_\alpha^*$  ( $b_\alpha^* \sim \Delta_\alpha a_\alpha^2 (a_\alpha / c_\alpha^3)$ ) происходит перколяционный переход [12], а при  $|b_\alpha| > b_\alpha^*$ ,  $b_\alpha < 0$  переход I рода [12]. Используя (4), несложно убедиться, что в случае, рассмотренном в данной работе, для каждой из групп примесей с концентрацией  $n_\alpha = n/3$ , осуществляются перколяционные переходы, т. е.  $b_\alpha < \Delta_\alpha a_\alpha^2 / T_c^\alpha$ .

В рамках предложенного подхода можно объяснить необычные результаты по двупреломлению [2]. При  $T > T_c$  из-за размытия точки фазового перехода в параэлектрической фазе для каждой группы диполей будут появляться сегнетоэлектрические области с поляризацией вдоль направлений типа [100]. В эксперименте это проявится в появлении двупреломления для заполяризованных областей, больших или сравнимых с длиной волны фотона. При дальнейшем понижении температуры  $T \leq T_c$  возникает сложная доменная структура вложенных в друг друга тетрагональных доменов, причем доменные границы вдоль каждой из пространственных осей не коррелируют друг с другом. В эксперименте по двупреломлению это будет фиксироваться как увеличение беспорядка.

Таким образом, как показано в настоящей работе, случайные упругие поля с тетрагональной симметрией не сводятся лишь к появлению случайных температур перехода, а производят распад на три системы с направлениями поляризации вдоль направлений типа [100], в каждой из которых независимо происходит перколяционный фазовый переход.

Авторы благодарны А. П. Леванюку за интерес к работе и полезные замечания.

#### Список литературы

- [1] Van der Klink J. J., Rytz D. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. N 7. P. 4471—4474.
- [2] Sommer D., Kleemann W. // Abstracts VI Europeane meeting on Ferroelectricity. Poznan, 1987. P. 163.
- [3] Torre S., Rigamonti A. // Phys. Rev. B. 1987. V. 36. N 16. P. 8274—8284.
- [4] Michel K. H., Rowe J. M. // Phys. Rev. B. 1980. V. 22. N 3. P. 1417—1428.
- [5] Вугмейстер Б. Е., Глинчук М. Д. // УФН. 1985. Т. 146. № 3. С. 459—491.
- [6] Foote M., Golding B. // J. Phys.: Condens. Matter. 1989. V. 1. N 41. P. 7751—7756.
- [7] Браун Р. Фазовые переходы. М., 1967. 288 с.
- [8] Höchle U. T., Boatner L. A. // Phys. Rev. B. 1979. V. 20. N 1. P. 266—275.
- [9] Maglione T., Hochle U. T., Joffin J. // Phys. Rev. Lett. 1986. V. 57. N 4. P. 436—439.
- [10] Корженевский А. Л., Лужков А. А. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 6. С. 250—258.
- [11] Хмельницкий Д. Е. // ЖЭТФ. 1975. Т. 68. № 5. С. 1960—1968.
- [12] Пентегов В. И., Фейгельман М. В. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 10. С. 345—357.

Институт проблем материаловедения  
АН УССР  
Киев

Поступило в Редакцию  
24 августа 1989 г.  
В окончательной редакции  
19 января 1990 г.