

УДК 537.611.43

**РЕОРИЕНТАЦИОННАЯ ДИНАМИКА ИОНОВ  $\text{Li}^+$   
И  $\text{Nb}^{5+}$  И НАСЫЩЕНИЕ ЛИНИИ ЭПР  
В КРИСТАЛЛАХ  $\text{KTaO}_3 : \text{Li}, \text{Nb}$**

*A. П. Печеный, Т. В. Антимирова, М. Д. Глинчук,  
Б. Е. Вугмейстер*

На основании изучения характера насыщения линии ЭПР аксиальных парамагнитных центров  $\text{Fe}^{3+}$  в кристаллах KTL и KTN исследована реориентационная динамика примесных ионов  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  в этих кристаллах. Показано, что «ободнороднение» линии ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$  при введении в  $\text{KTaO}_3$  ионов Li и Nb вызвано флуктуациями локальных полей, создаваемых примесными ионами при их движении. Оценка частот переориентации примесных ионов показала, что в диапазоне температур  $77 \text{ K} \leq T \leq 150 \text{ K}$  указанные частоты как для ионов  $\text{Li}^+$ , так и для ионов  $\text{Nb}^{5+}$  лежат в мегагерцевом диапазоне. Впервые наблюдавшаяся при этих температурах «низкочастотная» мегагерцевая динамика ионов  $\text{Nb}^{5+}$  обусловлена реориентационным движением их упругих либо квадрупольных моментов. Обнаруженное замедление флуктуаций локальных полей в кристалле KTL при приложении внешнего электрического поля и отсутствие его влияния на характер движения ионов Nb в кристалле KTN указывают на то, что упругий дипольный момент Nb, проявившийся в эксперименте, не связан с его электрическим дипольным моментом, как в случае нецентральных ионов Li.

Изучение природы фазовых переходов (ФП), индуцируемых примесями в кристаллах смягкими фононными модами, явилось предметом многочисленных теоретических и экспериментальных исследований, выполненных в последние годы. Возможность сегнетоэлектрического упорядочения в таких системах, теоретически предсказанная в ряде работ [1, 2], была экспериментально подтверждена в кристаллах виртуального сегнетоэлектрика  $\text{KTaO}_3$ . Введение в танталат калия примесей  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$ , изоэлектронно замещающих соответственно ионы  $\text{K}^+$  и  $\text{Ta}^{5+}$ , приводит к появлению в смешанных кристаллах  $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$  (KTL) и  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  (KTN) диэлектрических, акустических и других аномалий, свидетельствующих о наличии в них ФП при конечной температуре  $T_c > 0$  [3–5].

Существенную роль в понимании природы возникающей низкотемпературной фазы в KTL сыграло изучение динамики ионов Li, связанной с термоактивированным реориентационным движением нецентральных ионов Li по 6-эквивалентным потенциальным минимумам с энергетическим барьером  $U \approx 1000 \text{ K}$  [3, 6]. С другой стороны, сведения о динамике ионов Nb, индуцирующих ФП в кристаллах KTN, крайне скучны и противоречивы. Недавние исследования спектров рамановского рассеяния [7] и диэлектрические измерения [8], выполненные в KTN для  $x \leq 0.02$  и свидетельствовавшие о проявлении релаксационной динамики ионов Nb, позволили авторам указанных работ предположить наличие нецентрального смещения ионов Nb в решетке  $\text{KTaO}_3$ , участвующих в движении, подобном реориентационному прыжковому движению нецентральных ионов Li.

В то же время различное влияние примесей Li и Nb на динамику решетки виртуального сегнетоэлектрика  $\text{KTaO}_3$ , проявляющееся, в частности, в увеличении частоты мягкой моды кристалла при введении в него примеси Li и ее уменьшении при легировании  $\text{KTaO}_3$  ионами Nb, в раз-

личном характере ФП типа «порядок—беспорядок» в КТЛ и типа «смещения» в КTN и т. п., по-видимому, предполагает различные механизмы индуцирования ФП этими примесями.

Очевидно, для выяснения этих механизмов необходима информация, позволяющая установить как модель примесных центров, так и особенности их динамики, всестороннее изучение которой может дать дополнительные сведения, проливающие свет на природу ФП, индуцируемых примесями в кристаллах смягкими фоноподобными модами.

Настоящая работа посвящена изучению динамики примесных ионов  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  в виртуальном сегнетоэлектрике  $\text{KTaO}_3$  методом ЭПР. Указанные примеси создают в решетке  $\text{KTaO}_3$  локальные деформационные и электрические поля, приводящие к уширению линии ЭПР парамагнитных центров (ПЦ)  $\text{Fe}^{3+}$  [6–9]. Флуктуации локальных полей, обусловленные движением примеси, приводят, с одной стороны, к уменьшению статического вклада в уширение линии ЭПР из-за эффекта динамического сужения, а с другой — к укорочению времени  $T_2$  (или к эффективному расширению спинового пакета) из-за эффекта спектральной диффузии. Последнее проявляется в изменении характера насыщения линии ЭПР в результате ее эффективного «ободнородивания». Поскольку величина статического уширения линии ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$  в  $\text{KTaO}_3$  ионами  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  мала по сравнению с полной шириной линии в чистом  $\text{KTaO}_3$ , однако сравнима с шириной спинового пакета, исследование динамики ионов  $\text{Li}$  и  $\text{Nb}$  в  $\text{KTaO}_3$  проводилось на основании изучения изменения характера насыщения указанной линии ЭПР в кристаллах КТЛ и КTN.

## 1. Экспериментальные результаты

Исследовавшиеся в работе монокристаллы КТЛ и КTN выращивались из расплава по методу Чохральского. Концентрация ионов  $\text{Li}^+$ , вошедших в монокристалл, контролировалась методом пламенной фотометрии и в исследовавшихся образцах составляла  $x=0.01, 0.02, 0.03$  и  $0.05$ . Примесь  $\text{Nb}$  вводилась в шихту в виде  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  в количестве 1, 2 и 5 ат. %.

Спектр ЭПР ПЦ  $\text{Fe}^{3+}$ , использовавшихся в качестве зонда для изучения локальных полей, создаваемых ионами  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  в  $\text{KTaO}_3$ , хорошо изучен [10]. В 3-м диапазоне длин волн (измерения проводились на радиоспектрометре РЭ-1306) практически наблюдается одиночная линия ЭПР аксиальных ПЦ  $\text{Fe}^{3+}$ , чувствительных к электрическим и деформационным локальным полям [6] (так называемая «узкая» линия).

Характер уширения наблюдавшейся линии ЭПР может быть изучен на основании исследования характера ее насыщения, поскольку последний существенно различен для однородно- и неоднородно-уширенных линий [11]. Для определения характера уширения линии может быть использована предложенная в [12] методика линеаризации кривых насыщения (зависимости амплитуды сигнала ЭПР от амплитуды СВЧ поля  $H_1$ ), полученных в режиме непрерывного насыщения линии ЭПР. Как показано в [12], для отношения амплитуд производной ненасыщенного сигнала  $y'_{mu}$  к насыщенному  $y'_{ms}$  в режиме частичного насыщения ( $\gamma^2 H_1^2 T_1 T_2 \geq 1$ ) выполняется соотношение

$$(y'_{mu}/y'_{ms})^n - 1 = \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2, \quad (1)$$

где  $\gamma$  — гиromагнитное отношение электрона;  $T_1$ ,  $T_2$  — времена спин-решеточной и спин-спиновой релаксации. При этом  $n=2$  в случае неоднородно-уширенной линии и  $n=2/3$  для однородно-уширенной линии. Таким образом, линеаризация кривых насыщения в соответствии с соотношением (1) для различных значений параметра  $n$  позволяет определить характер уширения линии ЭПР.

Эта методика была использована нами ранее [13] для изучения характера уширения линии ЭПР и определения времен релаксации аксиальных

ПЦ  $\text{Fe}^{3+}$  в номинально чистом  $\text{KTaO}_3$ . Линеаризация в соответствии с (1) кривых насыщения, измеренных в диапазоне температур  $77 \text{ K} \leq T \leq 150 \text{ K}$ , позволила определить параметр  $n=1.8$ , что указывало на то, что в исследовавшемся диапазоне температур линия ЭПР ПЦ  $\text{Fe}^{3+}$  в чистом  $\text{KTaO}_3$  уширена практически неоднородно. Было также показано, что однородная ширина спинового пакета, определяемая временем  $T_2$ , обусловлена магнитным дипольным взаимодействием ПЦ железа, а соответствующее время  $T_2$  при  $T=77 \text{ K}$  и  $\theta=0^\circ$  ( $\theta$  — угол между магнитным полем и осью ПЦ) оказалось равным  $8 \cdot 10^{-8} \text{ с}$ , что соответствует ширине спин-пакета  $\Delta H_{\text{сп. п.}} \approx 0.8 \text{ Гс}$  (при полной ширине линии  $\Delta H_{pp}=9 \text{ Гс}$ ). Сделанная при  $T=77 \text{ K}$  оценка времени спин-решеточной релаксации дала значение  $T_1 \approx 10^{-6} \text{ с}$ .

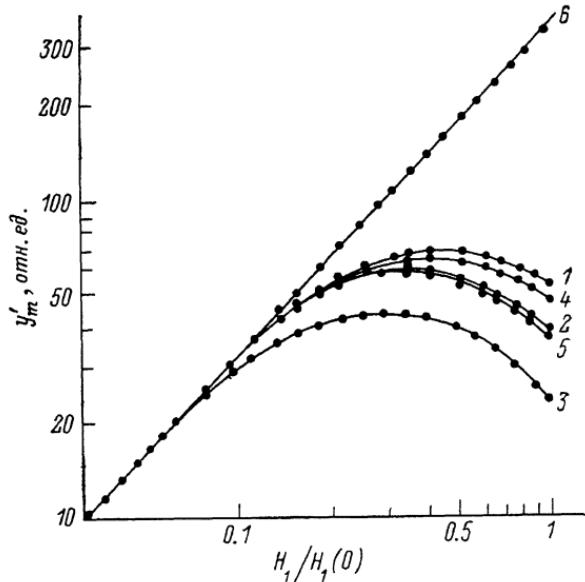


Рис. 1. Кривые насыщения сигнала ЭПР ПЦ  $\text{Fe}^{3+}$  в  $\text{KTaO}_3$  (1) и в кристаллах KTL<sub>x</sub> (2, 3) и KTN (4, 5) при  $T=77$  К.  
 $x$ , ат. %: 2 — 0.01, 3 — 0.05, 4 — 1, 5 — 5, 6 — сигнал ДФПГ.

Введение в КТаO<sub>3</sub> ионов Li<sup>+</sup> и Nb<sup>5+</sup> изменяет характер насыщения линии ЭПР ПЦ Fe<sup>3+</sup>, а следовательно, и характер ее уширения. Соответствующие кривые насыщения, измеренные при  $T=77$  К для различных концентраций примеси Li и Nb (рис. 1), были линеаризованы в соответствии с соотношением (1). В качестве ненасыщающегося реперного сигнала использовался сигнал ДФПГ. Линеаризованные кривые насыщения ПЦ Fe<sup>3+</sup> в кристаллах KTL и KTN при  $T=77$  К представлены на рис. 2 в двойном логарифмическом масштабе. При этом величина параметра  $n$  подбиралась таким образом, чтобы имела место линейная зависимость величины  $b = [(u'_- / u'_+)^n - 1]$  от  $H^2$ .

Как видно из рис. 2, как для кристаллов KTL, так и для KTN увеличение концентрации примесных ионов  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  в них приводит к уменьшению параметра  $n$ , что соответствует более однородному характеру уширения линий ЭПР в этих кристаллах по сравнению с чистым  $\text{KTaO}_3$ , где, как указывалось выше, линия уширена практически неоднородно. Отметим также, что увеличение степени «ободнородивания» линии по мере увеличения концентрации примеси в кристаллах KTN меньше, чем в KTL, где при  $x=0.05$  уширение линии приближается к полностью однородному характеру.

Полное «ободнородивание» линии ЭПР происходит и при повышении температуры. Линеаризация кривых насыщения, измеренных при  $T \geq 102$  К для образцов KTL и KTN даже с наименьшей концентрацией примеси (рис. 2), показывает, что соотношение (1) в этом случае выполнено.

няется для параметра  $n=2/3$ , что соответствует однородному характеру уширения линии ЭПР при этих температурах. Полное «ободнороднивание» линии при  $T > 100$  К наблюдалось во всех исследовавшихся образцах KTL и KTN.

Исследовалось и влияние электрического поля на характер насыщения линии ЭПР. С этой целью напряжение от внешнего источника прикладывалось к образцам KTL и KTN, имевшим форму плоскоапараллельной пластинки с толщиной  $d=8.5 \cdot 10^{-2}$  см. В случае кристалла KTL электрическое поле прикладывалось в направлении кристаллографиче-

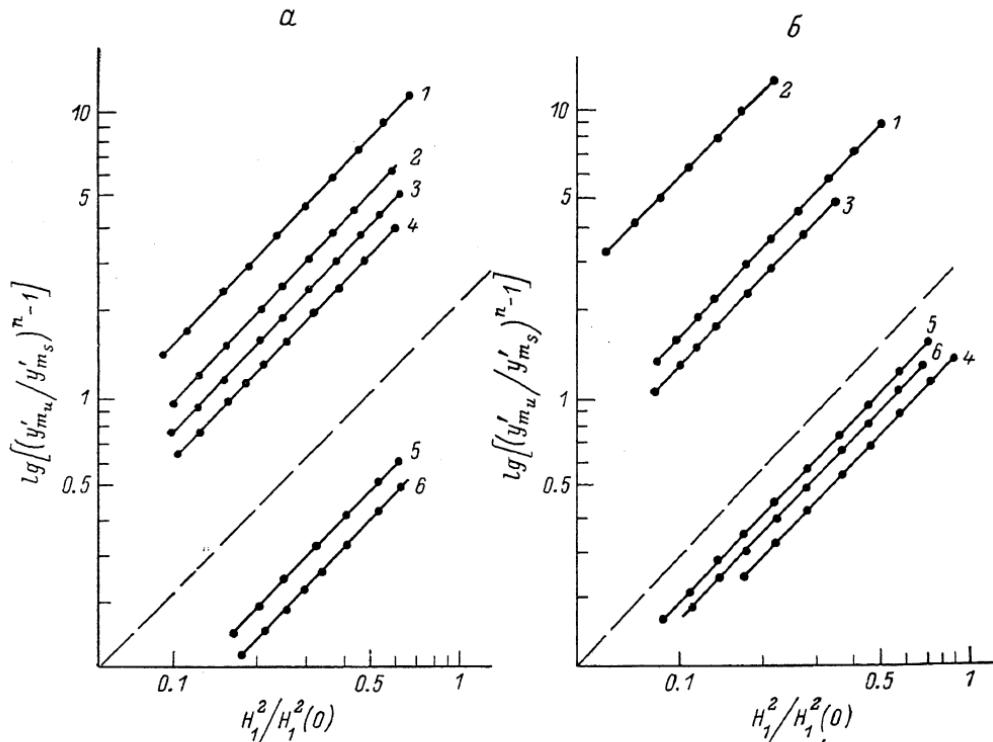


Рис. 2. Линеаризованные в соответствии с (1) кривые насыщения сигнала ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$  в кристаллах KTL (a) и KTN (b).

a: 1 —  $x=0$ ; 2, 5 — 0.01; 3 — 0.02; 4, 6 — 0.05 ат.%;  $n=1.8$  (1), 1.0 (2), 0.9 (3), 0.8 (4), 2/3 (5, 6);  
б: 1 —  $x=0$ ; 2, 5 — 1; 3 — 2; 4, 6 — 5 ат.%;  $n=1.8$  (1), 1.5 (2), 1.2 (3), 1.0 (4), 2/3 (5, 6).  $T, \text{К}: 1-4$  — 77, 5 — 102, 6 — 132.

ской оси [100], тогда как для кристалла KTN в направлении [111] — соответственно по направлениям нецентрального смещения иона  $\text{Li}^+$  [3] и предполагаемого нецентрального смещения иона  $\text{Nb}^{5+}$  [7, 8]. Если в кристалле KTL ( $x=0.03$ ), как показала обработка кривых насыщения, снятых в электрическом поле  $E$ , его приложение изменяло показатель  $n$  от 0.9 (при  $E=0$ ) до 1.2 при  $E=85$  кВ/см, что свидетельствует об увеличении неоднородного характера насыщения линии ЭПР в электрическом поле, то приложение поля такой же величины к кристаллу KTN ( $x=5$  ат.%) не изменяло величину  $n=1$ , а значит, и характер насыщения линии ЭПР. (Приложение к кристаллам полей  $E > 85$  кВ/см оказалось невозможным из-за электрического пробоя образцов).

## 2. Обработка результатов и обсуждение

Как отмечалось выше, изменение характера насыщения линии ЭПР может быть связано с эффектом спектральной диффузии по линии ЭПР, вызванной флуктуациями статических локальных полей, создаваемых примесными ионами при их движении. Действительно, изменение ориен-

тации примесного иона (в случае его дипольной природы) приводит к изменению локального поля на ПЦ и соответственно к сдвигу его резонансной частоты. В случае, когда этот сдвиг порядка либо превышает ширину спинового пакета, в котором находится фиксированный спин, процесс может рассматриваться как эффективный переброс спина из пакета в пакет, в результате чего увеличивается эффективное число спинов, участвующих в поглощении СВЧ мощности, и спиновый пакет эффективно расширяется. В предельном случае, когда указанный процесс распространяется на всю линию ЭПР (за время, меньшее, чем  $T_1$ ), последняя становится полностью однородной.

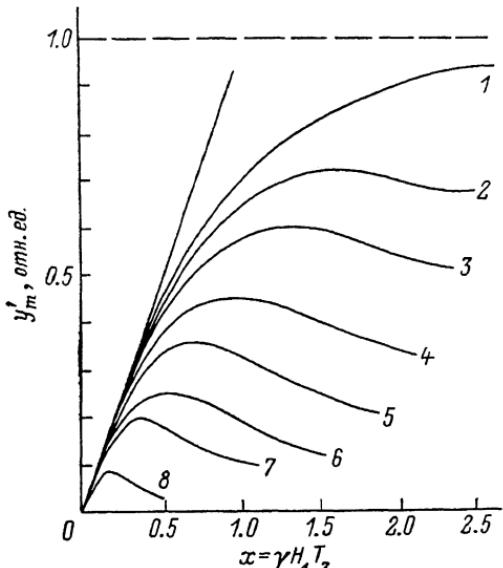


Рис. 3. Теоретические кривые насыщения для производной сигнала поглощения при  $a=0$  (1), 0.1 (2), 0.2 (3), 0.5 (4), 1 (5), 2 (6), 4 (7), 25 (8).

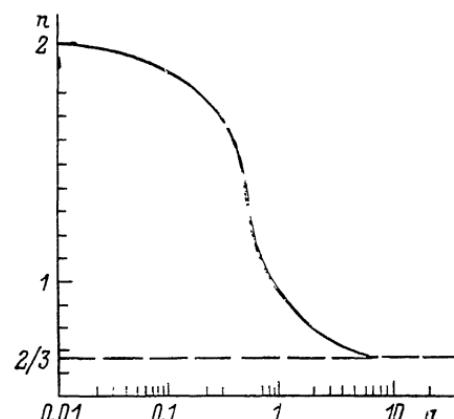


Рис. 4. Зависимость характера насыщения линии ЭПР от степени спектральной диффузии.

Теоретическое описание эффекта насыщения линии ЭПР при наличии спектральной диффузии было выполнено в ряде работ, где в качестве источников флуктуаций локальных полей рассматривались «флип-флоп» процессы, обусловленные диполь-дипольным взаимодействием спинов [14], пространственная диффузия (ПЦ) [15], модуляция сверхтонкого взаимодействия из-за переориентаций парамагнитного комплекса [16]. Независимо от рассмотренных механизмов выражение для амплитуды сигнала поглощения при наличии спектральной диффузии, обусловленной флуктуациями локальных полей, имело общий вид

$$y_m = \chi_0 H_0 T_2^* T_3^{-1} \frac{x}{(1+x^2)^{1/2} + ax^2}, \quad (2)$$

где  $x = \gamma H_1 T_3$ ,  $a = T_1 T_2^*/T_3^2$ . Здесь  $1/\gamma T_2^*$  — ширина неоднородно-уширенной линии;  $T_3$  — время корреляции флуктуаций локальных полей, описываемых корреляционной функцией  $G(t) = \exp(-t/T_3)$ . Легко видеть, что в предельных случаях слабой ( $a \ll 1$ ) и сильной ( $a \gg 1$ ) спектральной диффузии соотношение (2) сводится к известным выражениям Портиса [17] и теории БПП [18] для насыщения неоднородно- и однородно-уширенных линий ЭПР. При малых, но конечных значениях параметра  $a$  уравнение (2) сводится к выражению Портиса—Кастнера [19] с эффективным пакетом, уширенным из-за спектральной диффузии и определяемым эффективным временем  $T_2^{eff} = T_2/a$ . Таким образом, соотношение (2) действительно описывает переход от неоднородного характера насыщения

к однородному в результате эффективного уширения спинового пакета, аналогичный наблюдаемому в эксперименте.

С целью использования выражения (2) для обработки полученных экспериментальных результатов нами по (2) были рассчитаны теоретические кривые насыщения для производной сигнала поглощения при различных значениях параметра  $a$ :  $0 \leq a \leq 25$  (рис. 3). Линеаризация рассчитанных кривых насыщения в соответствии с соотношением (1) позволила получить зависимость показателя  $n$  от параметра  $a$  (рис. 4). Экспериментально определенные значения показателя  $n$  для различных концентраций примеси  $\text{Li}^+$  и  $\text{Nb}^{5+}$  и соответствующие значения параметра  $a$  приведены в таблице.

Качественно зависимость степени «ободнородивания» линии ЭПР от концентрации примеси понятна. Действительно, средняя величина «прыжка» спина из пакета в пакет определяется величиной изменения локального поля на ПЦ при переориентации дипольной примеси, находящейся на среднем расстоянии от ПЦ и, значит, порядка статического уширения. При малых концентрациях примеси, когда статическое уширение много меньше ширины спин-пакета, спектральная диффузия отсутствует. Статическое уширение линии ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$ , создаваемое  $\text{Nb}^{5+}$ , растет с увеличением его концентрации, достигая при угле  $\theta=0^\circ$ , при котором проводился эксперимент, величины 2 Гс в образце с 5 ат.-% Nb в шихте (см. таблицу). Эта величина уже превышает ширину спинового пакета ( $\sim 1$  Гс), что приводит к спектральной диффузии и заметному «ободнороднению» линии ( $n=1$ ). Та же величина уширения в кристалле KTL при  $x=0.01$  приводит к такой же степени «ободнороднения» линии.

Экспериментальные значения показателя  $n$  и соответствующие значения параметра  $a$  и уширения линии ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$  в  $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$  и  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$

	$x$ , % ат.-%	$n$	$a$	$\delta$ , Гс
Nb	0	1.8	0.2	0
	1	1.5	0.5	<1.0
	2	1.2	0.65	<1.0
	5	1.0	1.0	2.0
Li	0	1.8	0.2	0
	0.01	1.0	1.0	1.8
	0.02	0.9	2.0	3.5
	0.05	0.8	3.0	8.0

Следует отметить, что при выводе выражения (2) предполагалось, что процесс спектральной диффузии не ограничен спиновым пакетом, т. е. величина «прыжка» существенно превышает его ширину. Поэтому оценка частоты флуктуаций локальных полей и соответственно частоты переориентаций дипольной примеси была нами проведена для кристалла KTL при  $x=0.05$ , где величина статического уширения (8 Гс) значительно превышает ширину спинового пакета в чистом  $\text{KTaO}_3$ . В соответствии с соотношением (2), где  $T_3^2 = T_1 T_2^*/a$ , получаем  $T_3 = 3.5 \cdot 10^{-8}$  с и соответственно  $\nu = 1/2\pi T_3 = 4.5$  МГц. (Учет отличия показателя  $n$  от 2 в чистом  $\text{KTaO}_3$  ( $n=1.8$ ) уменьшает полученное значение частоты на 10%). Полученная величина хорошо согласуется с частотой переориентаций литиевых диполей  $\nu = 6$  МГц при  $T=77$  К, измеренной диэлектрическими [3] и спектроскопическими [6] методами.

Используя известную температурную зависимость частоты переориентаций лития, подчиняющуюся закону Аррениуса [3, 6], легко оценить ее значение при  $T=102$  К:  $\nu \approx 55$  МГц ( $T_3 \approx 3 \cdot 10^{-9}$  с). Время  $T_1$  при этой температуре можно оценить, если учесть, что температурная зависимость ширины линии ЭПР в этой области температур отсутствует.<sup>1</sup> При этом, очевидно,  $T_1 \gg T_2^* = 4 \cdot 10^{-9}$  с. Если по крайней мере  $T_1 = 5T_2^* = 2 \cdot 10^{-8}$  с, то параметр  $a=9$ . Как видно из рис. 4, однородный характер насыщения имеет место уже при  $a \geq 8$ , т. е. при  $T \geq 102$  К линия должна быть уширена однородно, что и наблюдается в эксперименте. При мень-

<sup>1</sup> Введение в  $\text{KTaO}_3$  ионов Li и Nb практически не изменяет времени спин-решеточной релаксации  $T_1$ .

ших концентрациях  $\text{Li} T_2^*$  увеличивается, так что условие однородности тем более выполняется.

Малость величины статического уширения линии ЭПР  $\text{Fe}^{3+}$  ионами  $\text{Nb}^{5+}$  по сравнению с шириной спин-пакета в чистом  $\text{KTaO}_3$  делает оценку частоты их движения с помощью соотношения (2) менее корректной. Тем не менее очевидно, что близость степени «ободнородивания» линии ЭПР ионами  $\text{Li}$  и  $\text{Nb}$ , а также полное «ободнородивание» линии в кристалле KTN при более высоких температурах свидетельствуют о том, что частоты движения ионов  $\text{Nb}$  также лежат в мегагерцевом диапазоне.

Как уже отмечалось, динамика ионов  $\text{Nb}$  в KTN ( $x=0.009$ ) исследовалась методами неупругого рассеяния света [7] и в диэлектрических измерениях [8], позволивших охватить широкий частотный диапазон (от  $10^{12}$  до  $10^2$  Гц) в интервале температур 20–4 К. Наблюдавшиеся в этих экспериментах пики рамановского рассеяния 1-го порядка, центральный пик, а также дисперсия диэлектрической проницаемости связывались авторами с реориентационным движением дипольных кластеров, индуцируемых в высокополяризованной решетке  $\text{KTaO}_3$  электрическими дипольными моментами нецентральных ионов  $\text{Nb}$ , двигающихся в многоядром потенциале. Использование температурной зависимости частоты указанных переориентаций, подчиняющейся, как показано в [7], закону Фогеля–Фулчера,<sup>2</sup> приводит к значениям частот переориентаций  $\text{Nb}$  при  $T=77$  К, лежащим в оптическом диапазоне ( $10^{12}$  Гц), что намного превышает частоты низкочастотной динамики ионов  $\text{Nb}$  ( $10^6$ – $10^7$  Гц), обнаруженной в настоящем эксперименте.

Следует отметить, что изучение влияния флуктуаций локальных полей, создаваемых ионами  $\text{Nb}$  при их движении, на характер насыщения линии ЭПР в кристаллах KTN проводилось при угле  $\theta=0^\circ$ , при котором наблюдаемая линия ЭПР не чувствительна к электрическим полям [21]. Таким образом, наблюдавшееся «ободнородивание» линии связано с флуктуациями полей неэлектродипольного происхождения, например деформационных или имеющих ту же симметрию квадрупольных полей, индуцируемых ионами  $\text{Nb}$ .

В принципе из соображений симметрии ясно, что при угле  $\theta=0^\circ$  флуктуации электрического поля могли бы проявиться в изменении характера насыщения линии ЭПР в результате взаимодействия парамагнитных центров с квадратом электрического поля, созданного электрическим дипольным моментом  $\text{Nb}$ , квадратичным электрополевым эффектом, либо с его градиентом. Однако отсутствие как линейного, так и квадратичного эффекта в ЭПР наблюдаемого аксиального центра  $\text{Fe}^{3+}$  при угле  $\theta=0^\circ$  [21] и значительно более медленная динамика по сравнению с частотами переориентаций электрического дипольного момента  $\text{Nb}$  [7, 8] свидетельствуют в пользу того, что наблюдаемая динамика не связана с реориентационным движением электрического дипольного момента  $\text{Nb}$ .

В случае KTL электрический и упругий (или квадрупольный) моменты  $\text{Li}^+$  имеют одну и ту же природу — нецентральное смещение ионов  $\text{Li}^+$ , что экспериментально проявилось в совпадении частот их переориентаций, полученных в диэлектрических измерениях, по квадрупольному расщеплению спектра ЯМР  ${}^7\text{Li}$  [8] и по деформационному уширению линии ЭПР [6]. В то же время оценка частоты переориентаций ионов  $\text{Nb}$  по квадрупольному расщеплению их спектра ЯМР при  $T=15$  К [22] дает значение частоты ( $\sim 10^4$  Гц), намного меньшее, чем полученное в диэлектрических измерениях при этой температуре ( $\sim 10^{10}$  Гц) [7, 8]. Этот факт согласуется с нашим предположением о том, что наблюдавшаяся в экспериментах по насыщению линии ЭПР низкочастотная динамика обусловлена реориентационным движением упругих либо квадрупольных моментов  $\text{Nb}$ , связанных не с нецентральным смещением ионов  $\text{Nb}^{5+}$  (если

<sup>2</sup> Этот же закон был независимо предложен в [20] для описания дисперсии диэлектрической проницаемости, измеренной в [8].

таковое имеется), а с искажением ниобием ближайшего окружения, возможно, из-за особенностей его электронной структуры. Как показано в [23], именно эти особенности (в частности, анизотропия электронной поляризуемости) приводят к изменению констант ангармонизма кристалла и к смягчению частоты мягкой моды решетки.

Это различие в природе упругого дипольного момента, индуцируемого в решетке КТаО<sub>3</sub> ионами Li и Nb, проявилось и в электрополевых зависимостях насыщения линии ЭПР. Действительно, приложение электрического поля к кристаллу KTL приводит к частичному «замораживанию» ионов Li<sup>+</sup> в потенциальных минимумах, соответствующих направлению приложенного поля. Это в свою очередь обусловливает уменьшение «боднородничающего» влияния флуктуаций локальных полей на характер уширения линии ЭПР. В то же время отсутствие указанного эффекта в кристалле KTN согласуется с нашим предположением об отсутствии прямой связи упругого момента Nb, низкочастотная динамика которого проявилась в эксперименте, с его электрическим дипольным моментом.<sup>3</sup> Что касается упругого момента Nb, связанного собственно с его возможным нецентральным смещением, то, по-видимому, из-за малости последнего (по крайней мере по сравнению с нецентральным смещением Li) его высокочастотная динамика (в оптическом диапазоне) не проявилась в экспериментах по насыщению линии ЭПР.

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Halperin B. J., Varma C. M. Phys. Rev. B, 1976, vol. 14, N 9, p. 4030—4044.
- [2] Бугемайстер Б. Е., Глинчук М. Д. ЖЭТФ, 1980, т. 79, № 3, с. 947—952.
- [3] Van der Klink J. J., Rytz D. D., Bozsa F., Höchli U. T. Phys. Rev. B, 1983, vol. 27, N 1, p. 89—101.
- [4] Prater R. L., Chase L. L., Boatner L. A. Phys. Rev. B, 1981, vol. 23, N 1, p. 221—231.
- [5] Kleeman W., Schafer F. J., Rytz D. D. Phys. Rev. Lett., 1985, vol. 54, N 18, p. 2038—2041.
- [6] Бугемайстер Б. Е., Глинчук М. Д., Печений А. П. ФТТ, 1984, т. 26, № 11, с. 3389—3396.
- [7] Lyons K. B., Fleury P. A., Rytz D. Phys. Rev. Lett., 1986, vol. 57, N 17, p. 2207—2210.
- [8] Samara G. A. Phys. Rev. Lett., 1984, vol. 53, N 3, p. 298—301; Jap. J. Appl. Phys., Suppl., 1985, vol. 24, pt 2, p. 80—84.
- [9] Лагута В. В., Глинчук М. Д., Кармазин А. А., Быков И. П. ФТТ, 1985, т. 27, № 1, с. 162—166.
- [10] Быков И. П., Глинчук М. Д., Кармазин А. А., Лагута В. В. ФТТ, 1983, т. 25, № 12, с. 3586—3590.
- [11] Абрагам А. Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963, гл. 3.
- [12] Hasegawa S., Yazaki S. Thin Solid Films, 1979, vol. 55, p. 15—24.
- [13] Глинчук М. Д., Зарецкий И. М., Печений А. П., Антимирова Т. В. ФТТ, 1985, т. 27, № 12, с. 3554—3560.
- [14] Clough S., Scott C. A., J. Phys. C, 1968, vol. 1, N 4, p. 919—931.
- [15] Wolf E. L. Phys. Rev., 1966, vol. 142, N 2, p. 559—569.
- [16] Watanabe T., Mori Y., Ohkura H. J. Phys. Soc. Jap., 1978, vol. 45, p. 899—905.
- [17] Portis A. M. Phys. Rev., 1953, vol. 91, N 5, p. 1071—1078.
- [18] Blombergen N., Parcell E. M., Pound R. V. Phys. Rev., 1948, vol. 73, N 7, p. 679—712.
- [19] Castner T. G. Phys. Rev., 1959, vol. 115, N 6, p. 1506—1515.
- [20] Глинчук М. Д., Кармазин А. А., Смолянинов И. М. Изв. АН СССР. Сер. физ., 1987, т. 51, № 10, с. 1699—1700.
- [21] Гейфман И. Н., Глинчук М. Д., Круликовский Б. К. ЖЭТФ, 1978, т. 75, № 5, с. 1468—1473.
- [22] Van der Klink J. J., Rod S., Châtelain A. Phys. Rev. B, 1986, vol. 33, N 3, p. 2084—2087.
- [23] Kugel G. E., Fontana M. D., Kress W. Phys. Rev. B, 1987, vol. 35, N 2, p. 813—818.

Институт проблем  
материаловедения АН УССР  
Киев

Поступило в Редакцию  
23 ноября 1987 г.  
В окончательной редакции  
25 мая 1988 г.

<sup>3</sup> Хотя влияние электрического поля на эффект насыщения линии ЭПР не проявилось бы в настоящем эксперименте и в случае, например, достаточно большого туннелирования нецентральных ионов между дипольно-неэквивалентными положениями или надбарьерного движения.