Электрострикционный солитон как модель кластера в высокотемпературной фазе водородосодержащего сегнетоэлектрика

© М.Б. Белоненко, В.В. Кабаков

Волгоградский государственный университет,
400062 Волгоград, Россия

(Поступила в Редакцию 15 сентября 1997 г.)

В рамках микроскопического псевдоспинового формализма кластеры поляризации, экспериментально наблюдаемые в высокотемпературной фазе водородосодержащих сегнетоэлектриков, интерпретированы как солитоны. Данные солитоны возникают вследствие модуляции константы взаимодействия псевдоспинов акустическими колебаниями, что с феноменологической точки зрения представляет собой электрострикционное взаимодействие. Проведен анализ влияния на солитон высших нелинейностей, присутствующих в псевдоспиновой подсистеме, и затухания акустических волн.

1. В недавних экспериментах по исследованию физических свойств параэлектрической фазы сегнетоэлектриков и сегнетоэластиков [1,2] было обнаружено аномальное поведение комплексной диэлектрической проницаемости в параэлектрической фазе кристалла сегнетоэлектрика на низких частотах. Данное поведение было связано с существованием в неполярной фазе сегнетоэлектриков кластеров поляризации, что позволило на качественном уровне объяснить наблюдаемые сильные зависимости диэлектрической проницаемости не только от внешних параметров (НЧ-поля, температуры кристалла), но и от предыстории образца, а следовательно, и от равновесных характеристик самого сегнетоэлектрика. Объяснение экспериментально полученных закономерностей, данное в ряде других работ [3,4] на основе модели "мигающих" диполей, не учитывает всех особенностей динамики сегнетоэлектриков с водородными связями и, кроме того, требует для своего обоснования некоторых дополнительных предположений. Так, в частности, исходя из модели "мигающих" диполей, можно сделать вывод о существовании второго суперионного фазового перехода и увеличении проводимости с ростом температуры, чего в экспериментах не наблюдается [1].

2. Наиболее полно и последовательно, на наш взгляд, все существенные особенности аномального поведения проницаемости могут быть описаны с помощью псевдоспинового формализма, широко применяющегося в теории сегнетоэлектриков [5,6]. Гамильтониан сегнетоэлектрика с водородными связями в псевдоспиновом формализме имеет вид изинговского гамильтониана в скрещенных полях

$$H = -\Omega \sum_j S_j^x - (1/2) \sum_{i,j} J_{ij} S_i^z S_j^z + H_{s-a}, \qquad (1)$$

где Ω, J_{ij} — интегралы туннелирования и обмена i и j сегнетоэлектрических ячеек соответственно, оператор S_j^x есть оператор туннелирования протона j сегнетоэлектрической ячейки, оператор S_j^z есть оператор дипольного момента j сегнетоэлектрической ячейки, H_{s-a} — гамильтониан взаимодействия псевдоспиновой и акустической подсистем. Рассмотрим далее звуковые колебания классическим образом, т. е. будем считать, что акустическая волна полностью определяется вектором смещения u_α ($\alpha = \zeta, \eta, \zeta$ — оси образца), и положим, что в образце распространяется в направлении ζ поперечная звуковая волна, имеющая единственную отличную от нуля компоненту $\mathbf{u} = \big(0, u(\zeta,\eta), 0\big)$. При этом гамильтониан H_{s-a} можно представить в виде

$$H_{s-a} = -d \sum_j \frac{\partial u(\zeta,\eta)}{\partial \zeta} S_j^z - h \sum_{j,i} \frac{\partial u(\zeta,\eta)}{\partial \zeta} S_j^z S_i^z, \qquad (2)$$

где d — соответствующий пьезомодуль, а второе слагаемое возникает вследствие модуляции обменного интеграла J_{ij} полем звуковой волны [6] и при феноменологическом рассмотрении будет соответствовать электрострикции. Уравнения движения Гейзенберга для средних значений псевдоспиновых операторов $\langle S^a \rangle$ (в приближении хаотических фаз и в континуальном пределе) с феноменологически введенными временами продольной и поперечной релаксации псевдоспина T_1 и T_2 тогда имеют вид [5,7]

$$\begin{aligned}
\langle S^x \rangle_t &= \big(J\langle S^z\rangle + A\langle S^z\rangle_{\zeta\zeta} + B\langle S^z\rangle_{\eta\eta} + du_\zeta + hu_\zeta\langle S^z\rangle\big)\langle S^y\rangle \\
&\quad - \big(\langle S^x\rangle - \langle S^x\rangle_0\big) \,/\, T_1, \\
\langle S^y \rangle_t &= \Omega\langle S^z\rangle - \big(J\langle S^z\rangle + A\langle S^z\rangle_{\zeta\zeta} + B\langle S^z\rangle_{\eta\eta} + du_\zeta \\
&\quad + hu_\zeta\langle S^z\rangle\big)\langle S^x\rangle - \langle S^y\rangle \,/\, T_2, \\
\langle S^z \rangle_t &= -\Omega\langle S^y\rangle - \langle S^z\rangle \,/\, T_2,
\end{aligned} \qquad (3)$$

где $J = \sum_{i,j} J_{ij}$, $A = Ja^2$, a — расстояние между соседними ячейками в направлении распространения волны — ζ, $B = Jb^2$, b — расстояние между соседними ячейками в направлении, перпендикулярном направлению распространения волны — η, $\langle S^z\rangle_{\zeta\zeta} = \partial^2\langle S^z\rangle \,/\, \partial\zeta^2$, $\langle S^a\rangle_t = \partial\langle S^a\rangle \,/\, \partial t$, u — эффективная компонента вектора смещения, $\langle S^x\rangle_0$ — равновесное среднее значение оператора туннелирования. Отметим, что в системе (3) учтено, что реальные водородосодержащие сегнетоэлектрики являются квазидвумерными и обычно $A \gg B$ (в качестве примера можно привести CsH_2PO_4).

Система уравнений (3) должна быть дополнена уравнением, описывающим динамику ненулевой компоненты вектора смещений u [7,8],

$$u_{tt} - v^2 u_{\zeta\zeta} - v_1^2 u_{\eta\eta} + \tilde{d}\langle S^z\rangle_\zeta + \tilde{h}\langle S^z\rangle_\zeta^2 + \gamma u_t = 0,$$

$$\tilde{d} = d/\rho, \qquad \tilde{h} = h/\rho, \tag{4}$$

где ρ — плотность кристалла, γ — декремент затухания акустической волны, v и v_1 — соответственно скорости распространения акустической волны в направлениях ζ и η.

3. Полученная полная система уравнений (3), (4) является системой уравнений в частных производных, общий алгоритм решения которых неизвестен. Воспользуемся поэтому для ее анализа методом многомасштабных разложений [9], заметив предварительно, что, поскольку времена T_1, T_2 не превышают 10^{-9} s, а характерный период колебаний акустической волны составляет не более чем 10^{-4} s, уравнения (3) можно решать в приближении $\langle S^a\rangle_t = 0$, позволяющем выразить все псевдоспиновые средние через производные вектора смещений u. Данное приближение физически означает, что псевдоспиновая подсистема адиабатически отслеживает изменения в акустической подсистеме сегнетоэлектрика. В этом случае

$$\langle S^z\rangle = z^{(1)} + z^{(2)} + z^{(3)},$$

$$z^{(1)} = B_1 d u_\zeta, \quad B_1 = \langle S^x\rangle_0 \Big/ \left(\Omega + \frac{1}{\Omega T_2^2} - J\langle S^x\rangle_0\right),$$

$$z^{(2)} = B_1^2 d\left(A u_{\zeta\zeta\zeta} + B u_{\zeta\eta\eta} + h(u_\zeta)^2\right),$$

$$z^{(3)} = c_1 u_{\zeta\zeta\zeta\zeta\zeta} + c_2 u_\zeta u_{\zeta\zeta\zeta} + c_2 (u_\zeta^2)_{\zeta\zeta} + c_3 (u_\zeta)^3,$$

$$c_1 = B_1^3 A^2 d, \qquad c_2 = B_1^3 A d h,$$

$$c_3 = B_1^3 d h^2 - \frac{B_1^2 d^3 T_1}{\Omega\langle S^x\rangle_0 T_2}(JB_1 + 1)^2. \tag{5}$$

Тогда уравнение (4) с учетом (5) будет иметь вид

$$f_{tt} + (B_1 d\tilde{d} - v^2) f_{\zeta\zeta} - v_1^2 f_{\eta\eta} + \gamma f_t + D_1 f_{\zeta\zeta\zeta\zeta}$$

$$+ D_2 (f^2)_{\zeta\zeta} + D_3 f_{\zeta\zeta\eta\eta} + D_4 f_{\zeta\zeta\zeta\zeta\zeta\zeta}$$

$$+ D_5 (f^2)_{\zeta\zeta\zeta\zeta} + D_6 (f f_{\zeta\zeta})_{\zeta\zeta} + D_7 (f^3)_{\zeta\zeta} = 0,$$

$$f = u_\zeta, \quad D_1 = A d\tilde{d} B_1^2, \quad D_2 = 2hd\tilde{d} B_1^2, \quad D_3 = B d\tilde{d} B_1^2,$$

$$D_4 = A^2 d\tilde{d} B_1^3, \quad D_5 = A d\tilde{h} B_1^3, \quad D_6 = 3 A d\tilde{h} B_1^3,$$

$$D_7 = 3 d\tilde{d} h^2 B_1^3 - \frac{d^3 \tilde{d} B_1^3 T_1}{\Omega\langle S^x\rangle_0 T_2}(JB_1 + 1)^2. \tag{6}$$

Для описания динамики распространения импульса в сегнетоэлектрике введем формально малый параметр ε, характеризующий отклонение нашей системы от равновесия, и будем искать решение для f в виде

$$f = \varepsilon^2 U\left(\varepsilon^{1/2} X, \varepsilon^{3/2} T, \varepsilon Y\right),$$

$$X = \zeta - \tilde{v}t, \quad T = t, \quad Y = \eta, \tag{7}$$

где v — скорость распространения волнового пакета. Как и обычно в методе многомасштабных разложений [10,11], условие исчезновения секулярных членов в первом порядке по ε дает

$$\tilde{v}^2 = v^2 - d\tilde{d}\langle S^x\rangle_0 \Big/ \left(\Omega + \frac{1}{\Omega T_2^2} - J\langle S^x\rangle_0\right). \tag{8}$$

В следующем порядке разложения по ε после интегрирования легко получить

$$-2\tilde{v} U_T + A d\tilde{d} B_1^2 U_{XXX} + 4\tilde{h} d^2 B_1^2 U U_X = v_1^2 \partial_X^{-1} U_{YY}. \tag{9}$$

От этого уравнения с помощью замены координат $t = \gamma T$, $x = \alpha X$, $y = \rho Y$, $r = \xi U$, где

$$\gamma = -1/2\tilde{v}, \quad \alpha = (A d\tilde{d} B_1^2)^{-\frac{1}{3}},$$

$$\zeta = 24\tilde{h} d^2 B_1^2 \alpha, \quad \rho^2 = -\alpha\beta/v_1^2,$$

можно перейти к классическому виду уравнения Кадомцева–Петвиашвили (КП) [12]

$$\partial_x\left(r_t + 6 r r_x + r_{xxx}\right) + \beta r_{yy} = 0. \tag{10}$$

Известно, что при $\beta = -1$ данное уравнение имеет устойчивое решение, представляющее собой двумерный солитон — ламп, убывающее как $O(1/x^2, 1/y^2)$ при $|x|, |y| \to \infty$ и двигающееся со скоростью $v_x = P_R^2 + P_I^2$, $v_y = -2P_R$,

$$r = \frac{4\left(-(x' + P_R y') + P_I^2 y'^2 + (3/P_I^2)\right)}{\left((x' + P_R y') + P_I^2 y'^2 + (3/P_I^2)\right)^2}, \tag{11}$$

где $x' = x - (P_R^2 + P_I^2)t$, $y' = y + 2P_R t$.

Приведенное выше решение (11) обязано своим появлением наличию квадратичной нелинейности в уравнении КП (в свою очередь данная нелинейность появилась благодаря учету электрострикционного слагаемого, пропорционального h в гамильтониане (2)) и, следовательно, может быть интерпретировано как электрострикционный солитон. Отметим, что вследствие неэкспоненциального спада ламп имеет гораздо больший размер локализации по сравнению с обычными солитонами, и его можно связать с наблюдаемыми экспериментально [1,2] кластерами в неполярной фазе сегнетоэлектрика. В силу свойств уравнения КП ламп-решения устойчивы, не взаимодействуют друг с другом, и, следовательно, кластеры в предлагаемом подходе также будут устойчивыми.

4. Учет собственных сегнетоэлектрических нелинейностей в следующем порядке разложения по ε, а также учет затухания звуковой волны приводят к тому, что параметры лампа P_R и P_I начинают зависеть от времени. Возмущение уравнения КП, приводящее к зависимости параметров лампа от времени, в следующем порядке разложения по ε будет иметь вид

$$\Pi = M_1 r + M_2 r_{xyy} + M_3 r_{xxxxx} + M_4 (r^2)_{xxx} + M_5 (r r_{xx})_x + M_6 (r^3)_x + M_7 \partial_x^{-1} r_{tt}, \quad (12)$$

где

$$M_1 = -\gamma\tilde{\nu}, \quad M_2 = D_3 \alpha^2 \rho^2, \quad M_3 = D_4 \alpha^5, \quad M_4 = D_5 \zeta \alpha^3,$$
$$M_5 = D_6 \zeta \alpha^3, \quad M_6 = D_7 \zeta^2 \alpha, \quad M_7 = \gamma^2/\alpha.$$

Для учета действия возмущения учтем, что уравнение КП имеет интегралы движения P_x и P_y, интерпретируемые как компоненты импульса лампа,

$$P_x = \frac{1}{2}\int r^2 dxdy, \quad P_y = -\frac{1}{2}\int r_x r_y dxdy. \quad (13)$$

При этом под действием возмущения интегралы движения начинают зависеть от времени следующим образом:

$$(P_x)_t = \int u\Pi d^2 r,$$
$$(P_y)_t = -\frac{1}{2}\int \left(u_y \Pi_x + u_x \Pi_y\right) d^2 r. \quad (14)$$

Применяя для изучения эволюции параметров лампа метод интегралов движения [9] и подставляя в (13), (14) ламп решение (11), получаем

$$(P_I)_t = 2M_1 P_I,$$
$$(P_R P_I^3)_t = 2M_1 P_R P_I^3 \quad (15)$$

и, следовательно, $P_I = P_I(0)\exp\{2M_1 t\}$, $P_R = P_R(0) \times \exp\{-4M_1 t\}$. Таким образом, динамика параметров ламп-решения определяется только скоростью затухания звука (связанной с константой M_1) и не зависит от возмущений, связанных с учетом собственных сегнетоэлектрических нелинейностей в следующем порядке разложения по ε. Из вышеизложенного можно сделать вывод о том, что в прелагаемом подходе кластеры оказываются устойчивыми к псевдоспиновым нелинейностям, а их свойства определяются в основном затуханием акустических волн.

5. Таким образом, на базе вышеизложенной простейшей модели с учетом электрострикции (или с учетом в псевдоспиновом формализме модуляции обменного интеграла звуковыми колебаниями) получены солитонные решения, которые можно интерпретировать как экспериментально наблюдаемые кластеры поляризации в неполярной фазе водородосодержащих сегнетоэлектриков. Основное преимущество предлагаемого подхода состоит в том, что решения получены в рамках только псевдоспинового формализма без каких-либо дополнительных предположений. Вместе с тем за рамками рассмотрения остался вопрос о том, как можно возбудить электрострикционные солитоны в сегнетоэлектрике. Отметим, что, по-видимому, наиболее эффективными являются способ, связанный с резким нагревом–охлаждением (тепловой удар) образца, и способ, связанный с рентгеновским облучением. Электрострикционные солитоны могут возбуждаться, в частности, при тепловом ударе вследствие разной скорости нагрева–охлаждения разных частей образца. При воздействии рентгеновского облучения вследствие срыва дефектов, реально присутствующих в образце, с точек пиннинга могут возникать также локальные акустические деформации, которые в свою очередь вследствие пьезоэффекта могут привести к возбуждению электрострикционных солитонов. Отметим также в заключение, что предложенные выше электрострикционные солитоны могут, в частности, и закрепляться на локальных дефектах кристаллической структуры.

Авторы выражают глубокую благодарность А.В. Шильникову за ценные консультации и ознакомление с данными экспериментов.

Список литературы

[1] А.В. Шильников, Е.Г. Надолинская, В.А. Федорихин, С.В. Родин. Кристаллография **39**, *1*, 84 (1994).
[2] А.В. Шильников, Е.Г. Надолинская, В.М. Варикаш, С.В. Родин. Тез. докл. Рос. науч.-техн. конф. "Диэлектрики-93". СПб (1993). Ч. 1. С. 127.
[3] Н.Д. Гаврилова, А.М. Лотонов. Изв. РАН. Сер. физ. **57**, *3*, 123 (1993).
[4] Ю.Р. Забродский, В.М. Кошкин, Ю.Б. Решетняк. Изв. РАН. Сер. физ. **54**, 1207 (1990).
[5] Р. Блинц, Б. Жекш. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Мир, М. (1975).
[6] В.Г. Вакс. Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. Наука, М. (1973).
[7] М.Б. Белоненко, М.М. Шакирзянов. ЖЭТФ **99**, 860 (1991).
[8] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория упругости. Наука, М. (1982).
[9] Дж.Л. Лэм. Введение в теорию солитонов. Мир, М. (1983).
[10] R.K. Dodd, J.C. Eilbeck, G.D. Gibbon, H.C. Morris. Solitons and Nonlinear Wave Equations. Academic Press, N.Y. (1983).
[11] А. Найфэ. Введение в методы возмущений. Мир, М. (1984).
[12] В.Г. Бакуров. Канд. дис. ИТФ, Черноголовка (1990). С. 93.