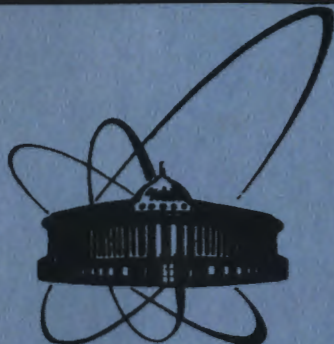


2/IV-84



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

1622/84

P17-83-891

В.Л.Аксенов, А.Ю.Дидык

ВЛИЯНИЕ ДЕФЕКТОВ
НА ПОВЕДЕНИЕ
МЯГКОЙ ФОНОННОЙ МОДЫ

Направлено в журнал "Физика твердого тела"

1983

1. ВВЕДЕНИЕ

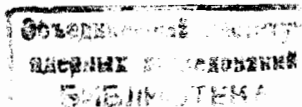
Известно, что дефекты даже при малой их концентрации оказывают сильное влияние на термодинамические и динамические свойства кристаллов, когда в них происходит структурный фазовый переход^{1, 2/}. В значительной степени меняется и поведение основной динамической характеристики структурных переходов - мягкой фононной моды. Однако представления об этих изменениях в настоящее время являются лишь качественными и далеко не полными.

Обычно влияние дефектов на мягкую моду изучается в простейших приближениях типа приближения среднего поля /ПСП/ в предположении независимости дефектов^{3/}, которое выполняется при предельно малой концентрации дефектов, и вне критической области. Это предположение становится неприменимым, когда дефекты в результате высокой их концентрации или возрастания в области фазового перехода радиуса корреляции начинают взаимодействовать между собой. В этом случае необходимо применять более строгие методы конфигурационного усреднения, позволяющие рассматривать корреляционные эффекты в неупорядоченной среде. Наиболее простой вариант такой теории был предложен в^{4/}, где использовалось приближение типа приближения средней Т-матрицы совместно с ПСП. Более последовательный подход, основанный на использовании приближения когерентного потенциала /ПКП/ в теории самосогласованных фононов, был применен в^{5/} для описания сегнетоэлектрических твердых растворов.

В настоящей работе на основе подхода, аналогичного развитому в^{5/}, рассмотрено влияние точечных дефектов различных типов на частоту и затухание мягкой фононной моды при структурном фазовом переходе. В разделе 2 описан гамильтониан модели мягкой моды в кристалле с дефектами четырех типов: жесткими, мягкими, замороженными /"поляризованно" или хаотически/ и квантовыми. В этом же разделе получены уравнения, описывающие структуру дефекта. В разделе 3 получена самосогласованная система уравнений для вычисления частоты и затухания мягкой моды при произвольной концентрации дефектов. В разделе 4 рассмотрено влияние дефектов на поведение мягкой моды и обсуждаются полученные результаты.

2. МОДЕЛЬ

В данной работе мы рассмотрим структурные фазовые переходы типа смещения, для которых характерно наличие мягкой фононной моды. Для модельного описания воспользуемся представлением ло-



кальной нормальной координаты, которая описывает смещения атомов в отдельной элементарной ячейке, участвующих в критическом нормальном колебании ^{6/}. Модельный гамильтониан может быть записан в виде ^{5/}:

$$H = \sum_{na} t_{na} \left[\frac{p_{na}^2}{2m_a} - \frac{A_a}{2} x_{na}^2 + \frac{B_a}{4} x_{na}^4 \right] + \frac{1}{4} \sum_{\substack{nn \\ a\beta}} t_{na} t_{n\beta} \Phi_{nn}^{a\beta} (x_{na} - x_{n\beta})^2, \quad /1/$$

где проекционный оператор $t_{n1} = 1 - t_{n2} = 1$ /или 0/, если в узле решетки n находится элементарная ячейка сорта $a = 1$ /или $a = 2$ /, x_{na} , p_{na} - локальные нормальные координаты и сопряженные им импульсы, описывающие критические колебания в ячейке сорта a узла решетки n , m_a - приведенная масса ячейки. Взаимодействие $\Phi_{nn}^{a\beta}$ описывает эффективное взаимодействие ячеек одной компоненты при $a = \beta$ и ячеек разных компонент при $a \neq \beta$.

В дальнейшем будем полагать, что основная компонента / $a = 1$ / является "мягкой" - для нее одночастичный потенциал имеет два минимума / $A_1 > 0$ /. Такая система характеризуется двумя параметрами: относительной константой связи f_{01} и параметром квантовости λ_1 :

$$f_{01} = \frac{\sum_n \Phi_{nn}^{11}}{A_1} = \frac{\Phi_{01} x_{01}^2}{4V_{01}}; \quad \lambda_1 = \frac{h\Omega_{01}}{4V_{01}}, \quad /1a/$$

где $V_{01} = A_1^2/4B_1$ - глубина одночастичного потенциала, $2x_{01} = 2\sqrt{A_1/B_1}$ - расстояние между его минимумами, $\Omega_{01} = \sqrt{A_1/m_1}$ - частота нулевых колебаний. Фазовому переходу типа смещения соответствует $f_0 \gg 1$. Переход, то есть смещение положений равновесия частиц на величину $\langle x_{n1} \rangle \neq 0$, возможен, если параметр квантовости $\lambda_1 < \lambda_1^c \sim \sqrt{f_0}$ - некоторого критического значения. Это означает, что энергия нулевых колебаний должна быть мала по сравнению с глубиной одночастичного потенциала. При $\lambda_1 > \lambda_1^c$ $\langle x_{n1} \rangle = 0$ даже при нулевой температуре, что и наблюдается в квантовых сегнетоэлектриках ^{7/}.

Дефектная ячейка / $a = 2$ / в зависимости от вида одночастичного потенциала может быть в общем случае нескольких типов. Если $A_2 < 0$, то такой дефект является стабилизирующим, или "жестким". При $A_2 > 0$ и таком соотношении V_{01} и V_{02} , что в дефектной ячейке может происходить смещение частицы за счет ее взаимодействия с соседними частицами, дефект называется "мягким". Если $V_{02} \gg V_{01}$, то такой дефект будем называть сильноангармоническим. В случае, если возможны статистические переориентации в одночастичном потенциале, дефект является "переполаризующимся", или релаксирующим ^{4/}. Если же глубина потенциальных минимумов настолько

велика, что в рассматриваемом интервале температур переориентации невозможны, то дефект называется замороженным. В свою очередь замороженные дефекты могут быть хаотическими или поляризованными, что зависит от способа приготовления образца ^{1/}. Возможен еще один тип дефектов, для которых $\lambda_2 > \lambda_2^c$. Такие дефекты назовем "квантовыми".

Рассмотрим теперь условия равновесия в системе /1/. Представим смещение x_{na} относительно равновесных положений в высокотемпературной /высокотемпературной/ фазе в виде квазиравновесных положений /в низкотемпературной фазе/ $b_{na} = \langle x_{na} \rangle$ и динамических /колебательных/ смещений $u_{na} : x_{na} = b_{na} + u_{na}(t)$. Усредненные по колебаниям решетки уравнения движения для нормальной координаты сорта a в узле решетки n : $d/dt \langle p_{na}(t) \rangle = 0$, позволяют найти квазиравновесные положения b_{na} . Используя /1/ при $t_{na} = 1$, получаем

$$b_{na} [-A_a + B_a (b_{na}^2 + 3\langle u_{na}^2 \rangle)] + \sum_{n'\beta} t_{n'\beta} \Phi_{nn'}^{a\beta} (b_{na} - b_{n'\beta}) = 0. \quad /2/$$

При выводе /2/ мы пренебрегли ангармонической поправкой более высокого порядка $\langle u_{na}^3 \rangle$, то есть использовали приближение первого порядка теории самосогласованных фононов - приближение самосогласованных фононов /ПСФ/^{8/}. Усредняя теперь в /2/ член с взаимодействием по конфигурациям примесей $\langle \dots \rangle_c$ в узлах $n' \neq n$ и пренебрегая корреляцией в расположении примесей, для $b_{na} \equiv b_a$ находим систему уравнений:

$$\eta_1 [\eta_1^2 + 3y_1 - 1] + c_2 f_0^{12} (\eta_1 - \eta_2) = 0, \quad /3a/$$

$$\eta_2 [\kappa (\eta_2^2 + 3y_2) - y] + c_1 f_0^{12} (\eta_2 - \eta_1) = 0, \quad /3b/$$

где введены концентрация компоненты сорта a : $c_a = \langle t_{na} \rangle_c$, и безразмерные переменные

$$\eta_a = \sqrt{\frac{B_1}{A_1}} b_a, \quad y_a = \frac{B_1}{A_1} \langle u_{na}^2 \rangle, \quad y = \frac{A_2}{A_1}, \quad \kappa = \frac{B_2}{B_1}, \quad f_0^{12} = \frac{1}{A_1} \sum_{n'} \Phi_{nn'}^{12}. \quad /4/$$

Как видно из уравнений /3/, для определения температурного поведения параметров порядка необходимо знать среднеквадратичные смещения, которые мы определим в следующем разделе.

3. САМОСОГЛАСОВАННОЕ ВЫЧИСЛЕНИЕ ОДНОФОНОННОЙ ФУНКЦИИ ГРИНА

Рассмотрим двухвременные функции Грина /ФГ/ от операторов смещений $u_{na} = x_{na} - \langle x_{na} \rangle$ для гамильтониана /1/:

$$D_{nn'}(t-t') \equiv \langle\langle u_n(t); u_{n'}(t') \rangle\rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{i\omega(t-t')} D_{nn'}(\omega), \quad /5/$$

где использованы общепринятые обозначения^{/8/}.

Уравнения движения для них после Фурье-преобразования по времени имеют вид

$$[m_a \omega^2 - A_1 \Delta_a] t_{na} D_{nn'}(\omega) = \delta_{nn'} + \sum_{k\beta} t_{na} t_{k\beta} \Phi_{nk}^{a\beta} [D_{nn'}(\omega) - D_{kn'}(\omega)]. \quad /6/$$

Здесь было использовано ПСФ^{/8/}: $\langle\langle u_n^3 | u_{n'} \rangle\rangle = 3 \langle u_n^2 \rangle \langle u_n | u_{n'} \rangle$, введены одночастичные потенциалы:

$$\Delta_a = \begin{cases} 3(\eta_1^2 + y_1) - 1, & a = 1, \\ 3\kappa(\eta_2^2 + y_2) - \gamma, & a = 2. \end{cases} \quad /7/$$

Для упрощения будем считать, что $\Phi_{nk}^{a\beta} \approx \Phi_{nn'}$ для любых $a = 1, 2$ и $\beta = 1, 2^*$. Запишем уравнение /6/ в виде уравнения Дайсона

$$D_{nn'}(\omega) = D_{nn'}^0(\omega) + \sum_k D_{nk}^0(\omega) V_{kk}(\omega) D_{kn'}(\omega) \quad /8/$$

с диагональным потенциалом возмущения:

$$V_{kk}(\omega) = A_1 \left[\frac{\bar{m}}{A_1} \omega^2 - \bar{\Delta} - \sum_{\alpha} t_{k\alpha} \left(\frac{m_{\alpha}}{A_1} \omega^2 - \Delta_{\alpha} \right) - \Sigma(\omega) \right]. \quad /9/$$

Комплексный когерентный потенциал $\Sigma(\omega)$, величина которого будет определена ниже, описывает многократное рассеяние фононов на одном узле. В отличие от^{/5/}, здесь в качестве нулевого приближения взято ПВК, в котором $\bar{m} = c_1 m_1 + c_2 m_2$ и $\bar{\Delta} = c_1 \Delta_1 + c_2 \Delta_2$.

Для определения усредненной по конфигурациям примесей $\langle \dots \rangle_c$ ФГ /8/ воспользуемся теорией многократного рассеяния^{/10/}, согласно которой уравнение /8/ после усреднения может быть записано в виде

$$\bar{D}_{nn'}(\omega) \equiv \langle D_{nn'}(\omega) \rangle_c = D_{nn'}^0(\omega) + \sum_{k,\ell} D_{nk}^0(\omega) \langle T_{k\ell}(\omega) \rangle_c D_{\ell n'}^0(\omega). \quad /10/$$

*Случай произвольных силовых постоянных $\Phi_{nn'}^{a\beta}$ рассмотрен в^{/9/} в приближении виртуального кристалла /ПВК/.

Нулевая ФГ в \vec{q} -представлении определяется выражением

$$D_q^0(\omega) = [A_1 \left(\frac{\bar{m}}{A_1} \omega^2 - \bar{\Delta} - (f_0 - f_q) - \Sigma(\omega) \right)]^{-1}. \quad /11/$$

Матрица рассеяния в /10/ $T_{k\ell}(\omega)$ в свою очередь удовлетворяет уравнению

$$T_{nn'}(\omega) = V_{nn}(\omega) \delta_{nn'} + \sum_{\ell} V_{nn}(\omega) D_{n\ell}^0(\omega) T_{\ell n'}(\omega). \quad /12/$$

Пользуясь одноузельным приближением^{/10/}, из условия равенства нулю матрицы рассеяния ($\langle T_{k\ell}(\omega) \rangle_c = 0$) для когерентного потенциала находим уравнение

$$\frac{-c_1 [c_2 g + \Sigma(\omega)]}{1 + (c_2 g + \Sigma(\omega)) A_1 D_{nn}^0(\omega)} + \frac{c_2 [c_1 g - \Sigma(\omega)]}{1 - (c_1 g - \Sigma(\omega)) A_1 D_{nn}^0(\omega)} = 0. \quad /13/$$

В /13/ введено обозначение

$$g \equiv (\Delta_2 - \Delta_1) + \frac{m_1 - m_2}{A_1} \omega^2. \quad /14/$$

Решая уравнение /13/ относительно $\Sigma(\omega)$, находим два корня:

$$\Sigma_{1,2}(\omega) = - \frac{[1 - (c_1 - c_2) g A_1 D_{nn}^0(\omega)]}{2 A_1 D_{nn}^0(\omega)} \pm \sqrt{\left(\frac{1 - (c_1 - c_2) g A_1 D_{nn}^0(\omega)}{2 A_1 D_{nn}^0(\omega)} \right)^2 + c_1 c_2 g^2}. \quad /15/$$

Обычно в ПКП из этих двух решений выбирается то, которое дает физически правильное поведение наблюдаемых величин. Заметим, что в пределе малых дефектов ($c_2 \ll 1$) решение $\Sigma_1(\omega)$ из /15/ можно переписать в виде

$$\Sigma_1(\omega) \approx \frac{c_1 c_2 g^2 A_1 D_{nn}^0(\omega)}{1 - g A_1 D_{nn}^0(\omega)}. \quad /16/$$

Это выражение совпадает с вычисленным в^{/11/} по теории возмущений при $c_2 \ll 1$. Поэтому в качестве выражения для когерентного потенциала возьмем решение $\Sigma_1(\omega)$.

Вводя безразмерную переменную $\nu^2 = \bar{m} \omega^2 / A_1$, выражение для $\bar{D}_{nn}(\omega) = D_{nn}^0(\omega)$ запишем в виде

$$D_{nn}^0(\nu) = \frac{1}{A_1 N} \sum_{\vec{q}} \frac{1}{z - (f_0 - f_{\vec{q}})} = \frac{1}{A_1} \int_0^{\omega_{\max}} \frac{\rho(\omega^2) d\omega^2}{z - \omega^2}, \quad /17/$$

здесь $z = \nu^2 - \bar{\Delta} - \Sigma(\nu)$ и введена функция плотности состояний $\rho(\omega^2)$, которую выберем в дебаевском приближении:

$$\rho(\omega^2) = \frac{8\omega}{2(2f_0)^{3/2}} \quad /18/$$

Уравнение /15/ с учетом соотношений /17/, /18/ становится уравнением относительно $\Sigma(\nu)$.

Для вычисления среднеквадратичных смещений y_a в /3/, /7/ необходимо знать условные ФГ, которые определяются следующим образом: $D_{n(a)n}(\omega) = \langle t_{na} D_{nn}(\omega) \rangle_c$. Конфигурационные средние вычисляются при условии, что в узле n находится ячейка сорта a . В том же приближении, что и в /13/, условные ФГ могут быть представлены в виде

$$D_{n(1)n}(\omega) = \frac{D_{nn}^o(\omega)}{1 + (c_2 g + \Sigma(\omega)) A_1 D_{nn}^o(\omega)} \quad /19a/$$

$$D_{n(2)n}(\omega) = \frac{D_{nn}^o(\omega)}{1 + (\Sigma(\omega) - c_1 g) A_1 D_{nn}^o(\omega)} \quad /19b/$$

Среднеквадратичные смещения y_a находятся стандартным образом с помощью спектральных теорем и ФГ /19/. Уравнение для них имеет вид

$$y_a = \lambda_a \int_0^\infty d\nu \operatorname{cth} \frac{\lambda_a \nu}{2\Theta} \left[-\frac{A_1}{\pi} \operatorname{Im} D_{n(a)n}(\nu + i\epsilon) \right], \quad /20/$$

где введена безразмерная температура $\Theta = T/(A_1^2/B_1)$. Самосогласованная система уравнений /3/, /7/, /15/, /17/-/20/ определяет однофононную ФГ /11/, /17/, которая описывает реакцию системы на действие внешнего зависящего от времени поля и определяет динамическую восприимчивость системы с гамильтонианом /1/ во всем интервале концентраций дефектов $0 \leq c_2 \leq 1$. Полюса ФГ /динамической восприимчивости/ дают информацию о спектре возбуждений, а ее статический предел $\omega = 0$ - о температуре фазового перехода.

4. ВЛИЯНИЕ ДЕФЕКТОВ НА ПОВЕДЕНИЕ МЯГКОЙ МОДЫ

Рассмотрим однофононную ФГ /11/. В ПВК частота мягкой моды определяется выражением

$$\omega_\infty^2(q) = \bar{\Delta} + (f_0 - f_q) \quad /21/$$

При учете процессов рассеяния фононов на примесях в ПКП частота мягкой моды сдвигается на величину $\delta^2(\vec{q}, \nu) = -\operatorname{Re} \Sigma(\vec{q}, \nu + i\epsilon)$ и у нее появляется затухание $\Gamma(\vec{q}, \nu) = -(1/\nu) \operatorname{Im} \Sigma(\vec{q}, \nu + i\epsilon)$. Для качественного обсуждения рассмотрим предел малых концентраций $c_2 \ll 1$ и упростим выражение /16/ для массового оператора, подставляя в /16/ ФГ в ПВК $\bar{D}_{nn}^o(\nu)$. Тогда, используя /11/, /16/, /21/, получаем для частоты мягкой моды выражение

$$\omega_0^2(q) = \omega_a^2(q) - c_1 c_2 \delta_0^2, \quad /22/$$

где

$$\delta_0^2 = \operatorname{Re} \frac{g^2 \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon)}{g \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon) - 1} \quad /23/$$

Для затухания получаем выражение

$$\Gamma = c_1 c_2 \Gamma_0, \quad \Gamma_0 = \frac{1}{\nu} \operatorname{Im} \frac{g^2 \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon)}{g \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon) - 1} \quad /24/$$

Температура перехода определяется из условия обращения в нуль обратной статической восприимчивости $\chi^{-1}(q = q_c, \omega = 0) = \omega_0^2(q = q_c)$. Спектральная плотность возбуждений /функция рассеяния света или нейтронов/ определяется мнимой частью динамической восприимчивости: $S(q, \nu) = \operatorname{Im} \chi(q, \nu + i\epsilon) = -\operatorname{Im} \bar{D}_q^o(\nu + i\epsilon)$. В области частот $\omega(q) \gg \Gamma$ функция $S(q, \nu)$ имеет резонансный характер с максимумами при частотах $\omega = \pm \omega_0(q_c)$ и полушириной пиков Γ . При этом $\omega_0(q_c) \approx \omega_\infty(q_c)$, поскольку перенормировка частоты, связанная с Γ дисперсионными соотношениями, в этом случае также мала. По мере приближения к точке перехода частота $\omega_0(q_c)$ уменьшается, и в области $\omega_0(q_c) \ll \Gamma$ функция рассеяния принимает резонансный характер с максимумами при $\nu = 0$. В классическом пределе в этом случае

$$S(q, \nu) = \frac{T}{\pi \omega_0^2(q)} \frac{1/\tau_q}{(1/\tau_q)^2 + \nu^2}, \quad /25/$$

где время релаксации $\tau = \Gamma/\omega_0^2(q)$ определяет ширину пика.

Таким образом, при $q_T \rightarrow T_0$ происходит переход из резонансного режима вдали от T_0 , когда $\omega_\infty(q) \gg \Gamma$, в релаксационный режим вблизи T_0 , когда $\omega_0(q) \ll \Gamma$. При этом в самой точке перехода согласно /22/ исходная /высокочастотная/ мягкая мода имеет конечное значение частоты:

$$\omega_\infty^2(T_0) = c_1 c_2 \delta_0^2 \quad /26/$$

В простейшем приближении в пределе малой концентрации дефектов это значение частоты мягкой моды, как и ее затухание /24/, пропорционально c_2 .

В случае замороженных дефектов в функции рассеяния появляется дополнительно к /25/ квазиупругий пик - центральный пик, ширина которого обусловлена процессами переполаризации дефектов /1,4/.

С целью более детального выяснения характера влияния дефектов на поведение мягкой моды был проведен численный анализ системы уравнений /3/, /7/, /15/, /17/-/20/ для переходов в центре

$$\rho(\omega^2) = \frac{3\omega}{2(2f_0)^{3/2}}. \quad /18/$$

Уравнение /15/ с учетом соотношений /17/, /18/ становится уравнением относительно $\Sigma(\nu)$.

Для вычисления среднеквадратичных смещений y_a в /3/, /7/ необходимо знать условные ФГ, которые определяются следующим образом: $D_{n(a)n}(\omega) = \langle t_{na} D_{nn}(\omega) \rangle_c$. Конфигурационные средние вычисляются при условии, что в узле n находится ячейка сорта a . В том же приближении, что и в /13/, условные ФГ могут быть представлены в виде

$$D_{n(1)n}(\omega) = \frac{D_{nn}^o(\omega)}{1 + (c_2 g + \Sigma(\omega)) A_1 D_{nn}^o(\omega)}, \quad /19a/$$

$$D_{n(2)n}(\omega) = \frac{D_{nn}^o(\omega)}{1 + (\Sigma(\omega) - c_1 g) A_1 D_{nn}^o(\omega)}. \quad /19b/$$

Среднеквадратичные смещения y_a находятся стандартным образом с помощью спектральных теорем и ФГ /19/. Уравнение для них имеет вид

$$y_a = \lambda_a \int_0^\infty d\nu \operatorname{cth} \frac{\lambda_a \nu}{2\Theta} \left[-\frac{A_1}{\pi} \operatorname{Im} D_{n(a)n}(\nu + i\epsilon) \right], \quad /20/$$

где введена безразмерная температура $\Theta = T/(A_1^2/B_1)$. Самосогласованная система уравнений /3/, /7/, /15/, /17/-/20/ определяет однофононную ФГ /11/, /17/, которая описывает реакцию системы на действие внешнего зависящего от времени поля и определяет динамическую восприимчивость системы с гамильтонианом /1/ во всем интервале концентраций дефектов $0 \leq c_2 \leq 1$. Полюса ФГ /динамической восприимчивости/ дают информацию о спектре возбуждений, а ее статический предел $\omega = 0$ - о температуре фазового перехода.

4. ВЛИЯНИЕ ДЕФЕКТОВ НА ПОВЕДЕНИЕ МЯГКОЙ МОДЫ

Рассмотрим однофононную ФГ /11/. В ПВК частота мягкой моды определяется выражением

$$\omega_\infty^2(q) = \bar{\Delta} + (f_0 - f_q). \quad /21/$$

При учете процессов рассеяния фононов на примесях в ПКП частота мягкой моды сдвигается на величину $\delta^2(\vec{q}, \nu) = -\operatorname{Re} \Sigma(\vec{q}, \nu + i\epsilon)$ и у нее появляется затухание $\Gamma(\vec{q}, \nu) = -(1/\nu) \operatorname{Im} \Sigma(\vec{q}, \nu + i\epsilon)$. Для качественного обсуждения рассмотрим предел малых концентраций $c_2 \ll 1$ и упростим выражение /16/ для массового оператора, подставляя в /16/ ФГ в ПВК $D_{nn}^o(\nu)$. Тогда, используя /11/, /16/, /21/, получаем для частоты мягкой моды выражение

$$\omega_0^2(q) = \omega_a^2(q) - c_1 c_2 \delta_0^2, \quad /22/$$

где

$$\delta_0^2 = \operatorname{Re} \frac{g^2 \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon)}{g \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon) - 1}. \quad /23/$$

Для затухания получаем выражение

$$\Gamma = c_1 c_2 \Gamma_0, \quad \Gamma_0 = \frac{1}{\nu} \operatorname{Im} \frac{g^2 \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon)}{g \bar{D}_{nn}^o(\nu + i\epsilon) - 1}. \quad /24/$$

Температура перехода определяется из условия обращения в нуль обратной статической восприимчивости $\chi^{-1}(q = q_c, \omega = 0) = \omega_0^2(q = q_c)$. Спектральная плотность возбуждений /функция рассеяния света или нейтронов/ определяется мнимой частью динамической восприимчивости: $S(q, \nu) \sim \operatorname{Im} \chi(q, \nu + i\epsilon) = -\operatorname{Im} \bar{D}_q(\nu + i\epsilon)$. В области частот $\omega(q) \gg \Gamma$ функция $S(q, \nu)$ имеет резонансный характер с максимумами при частотах $\omega = \pm \omega_0(q_c)$ и полушириной пиков Γ . При этом $\omega_0(q_c) \approx \omega_\infty(q_c)$, поскольку перенормировка частоты, связанная с Γ дисперсионными соотношениями, в этом случае также мала. По мере приближения к точке перехода частота $\omega_0(q_c)$ уменьшается, и в области $\omega_0(q_c) \ll \Gamma$ функция рассеяния принимает резонансный характер с максимумами при $\nu = 0$. В классическом пределе в этом случае

$$S(q, \nu) = \frac{T}{\pi \omega_0^2(q)} \frac{i/\tau_q}{(1/\tau_q)^2 + \nu^2}, \quad /25/$$

где время релаксации $\tau = \Gamma/\omega_0^2(q)$ определяет ширину пика.

Таким образом, при $T \rightarrow T_0$ происходит переход из резонансного режима вдали от T_0 , когда $\omega_\infty(q) \gg \Gamma$, в релаксационный режим вблизи T_0 , когда $\omega_0(q) \ll \Gamma$. При этом в самой точке перехода согласно /22/ исходная /высокочастотная/ мягкая мода имеет конечное значение частоты:

$$\omega_\infty^2(T_0) = c_1 c_2 \delta_0^2. \quad /26/$$

В простейшем приближении в пределе малой концентрации дефектов это значение частоты мягкой моды, как и ее затухание /24/, пропорционально c_2 .

В случае замороженных дефектов в функции рассеяния появляется дополнительно к /25/ квазиупругий пик - центральный пик, ширина которого обусловлена процессами переполаризации дефектов /1,4/.

С целью более детального выяснения характера влияния дефектов на поведение мягкой моды был проведен численный анализ системы уравнений /3/, /7/, /15/, /17/-/20/ для переходов в центре

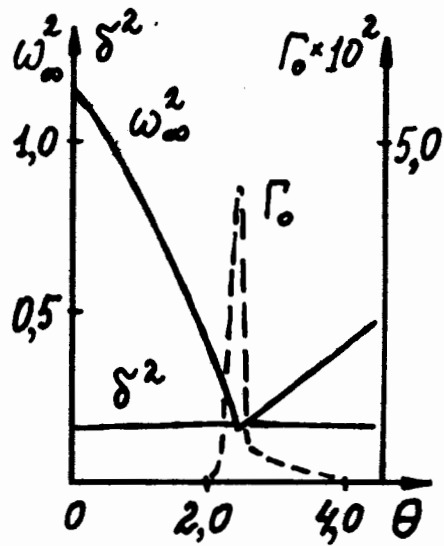


Рис.1. Температурная зависимость параметров мягкой моды ω_∞^2 , δ^2 и ее затухания Γ_0 при концентрации "жестких" дефектов $c_2 = 0,1$.

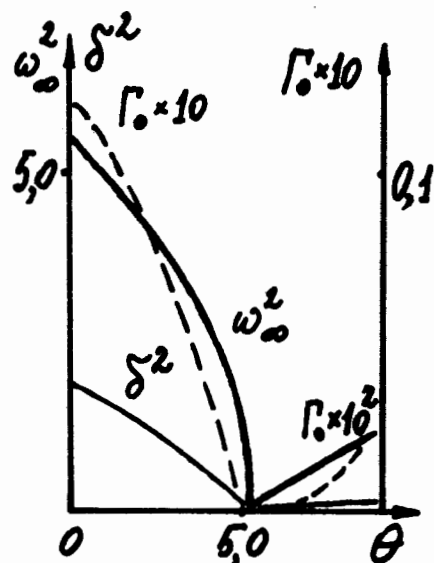


Рис.2. Температурная зависимость параметров мягкой моды ω_∞^2 , δ^2 и ее затухания Γ_0 при концентрации "мягких" дефектов $c_2 = 0,2$.

Таблица 1

Зависимость параметров мягкой моды и температуры фазового перехода от концентрации для "жестких" дефектов

c_2	ω_∞^2	Γ_0	Θ_0
0,05	0,09	$2,8 \cdot 10^{-3}$	3,5
0,10	0,14	$4,3 \cdot 10^{-2}$	2,4
0,15	0,21	$6,6 \cdot 10^{-2}$	1,5
0,20	0,27	$8,9 \cdot 10^{-2}$	0,4
0,25	фазовый переход отсутствует		

зоны Бриллюэна: $q_c = 0$. Обсудим отдельно влияние различных типов дефектов согласно классификации, приведенной в разделе 2.

"Жесткие" дефекты приводят к уменьшению температуры фазового перехода, так что при некоторой критической концентрации переход отсутствует /см. также /8,9/. На рис.1 показана темпера-

турная зависимость величин $\omega_\infty^2/21$, $\delta^2 = -\text{Re} \Sigma_1(\nu^2 = \omega_0^2)$, $\Gamma_0 = (1/\omega_0) \text{Im} \Sigma_1(\nu^2 = \omega_0^2)$ при концентрации дефектов $c_2 = 0,1$ и параметрах модели /1а/, /4/: $\gamma = -5$, $\kappa = 1$, $\lambda_1 = \lambda_2 = 0,01$, $f_0 = 20$. Сдвиг частоты мягкой моды δ^2 и затухание Γ_0 возрастают по мере приближения к температуре фазового перехода Θ_0 , при которой обратная восприимчивость $\chi_0^{-1} = \omega_\infty^2 - \delta^2$ обращается в нуль. В табл.1 приведены значения величин ω_∞^2 , δ^2 , Γ_0 и Θ_0 в зависимости от концентрации. Видно, что эта зависимость близка к линейной. Такое же влияние на характеристики мягкой моды оказывают и квантовые дефекты.

Заметим, что в ПСФ фазовый переход в модели /1/ оказывается переходом первого рода. Однако размер области гистерезиса пропорционален $1/f_0$, тогда как $\Theta_0 \sim f_0$. Поэтому при $f_0 > 10$ этот дефект приближения является несущественным /8/.

"Мягкие" дефекты могут как уменьшать, так и увеличивать температуру перехода, в зависимости от соотношения глубин одночастичных потенциалов основной решетки V_{01} и примеси V_{02} . При $V_{02} > V_{01}$ температура перехода увеличивается, при $V_{02} < V_{01}$ уменьшается /см. также /1,9/. На рис.2 показана зависимость величин ω_∞^2 , δ^2 и Γ_0 от температуры при концентрации дефектов $c_2 = 0,2$ и параметрах модели $\gamma = 10$, $\kappa = 10$, $V_{02} > V_{01}$, $\lambda_1 = \lambda_2 = 0,01$, $f_0 = 20$. В отличие от предыдущего случая сдвиг частоты и затухание уменьшаются по мере приближения к Θ_0 . Кроме того, они имеют нелинейную зависимость от концентрации c_2 .

В согласии с проведенным выше анализом при переходе к Θ_0 система, как и в предыдущем случае, переходит из резонансного в релаксационный режим: два боковых пика функции рассеяния, соответствующие мягкой моде, сдвигаются к центру, сливаясь в один пик при $\omega = 0$. Однако если в случае "жестких" дефектов ширина этого пика увеличивается при $\Theta \rightarrow \Theta_0$ /так как Γ_0 увеличивается при $\Theta \rightarrow \Theta_0$ /, то в случае "мягких" дефектов ширина уменьшается. Этот результат можно качественно объяснить, если учесть, что массовый оператор $\Sigma_1(\omega)$ пропорционален функции $g^2/14$, которая уменьшается при $\Theta \rightarrow \Theta_0$.

"Мягкие" дефекты при $V_{02} > V_{01}$ могут приводить к возникновению фазового перехода в "квантовой" системе, в которой $\lambda > \lambda_c$ и структурный переход в обычных условиях не происходит. На рис.3 приведена зависимость температуры фазового перехода от концентрации в системе с такими же параметрами, как и в предыдущем случае, но для $\lambda_1 = 3$. Такая зависимость наблюдалась в квантовом сегнетоэлектрике титанате стронция SrTiO_3 при введении примесей Ba^{12} . Оценки параметров модели для SrTiO_3 , проведенные на основе анализа данных по рассеянию нейтронов, показывают /13/, что для этого соединения $f_0 = 16$, $\lambda = 3,6$. Таким образом, примесь Ba в SrTiO_3 играет, по-видимому, роль "мягких" дефектов при $V_{02} \gg V_{01}$.

Замороженные хаотические дефекты приводят к понижению Θ_0 /см. также /1,9/. Величины ω_∞^2 , δ и Γ ведут себя так же, как и в случае "жестких" дефектов - как показано на рис.1 /см. /11/9/.

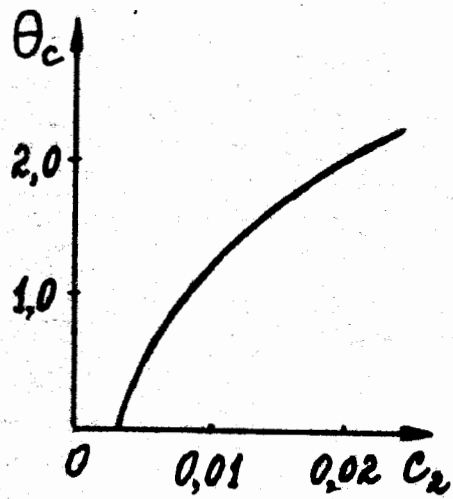


Рис.3. Концентрационная зависимость температуры фазового перехода при $q_c = 0$ в квантовом сегнетоэлектрике с "мягкими" дефектами.

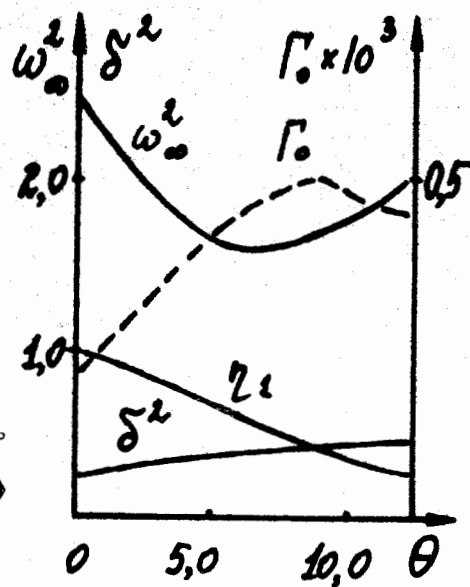


Рис.4. Температурная зависимость параметров мягкой моды ω_∞^2 , δ^2 и ее затухания Γ_0 и параметра порядка η_1 при концентрации замороженных поляризованных дефектов $c_2 = 0,025$.

Замороженные поляризованные дефекты ($\eta_2 = +\sqrt{\gamma/\kappa}$) изменяют температуру перехода в зависимости от знака поляризации: если поляризация дефекта совпадает по знаку с поляризацией параметра порядка в основной решетке /определяемой знаком внешнего поля/, то температура повышается, в противном случае - понижается /см. также ^{1/}/. Более интересный эффект состоит в размытии фазового перехода. На рис.4 представлена зависимость параметров ω_∞^2 , δ^2 , Γ и параметра порядка η_1 от температуры при концентрации $c_2 = 0,025$ и параметрах модели $\gamma = 10$, $\kappa = 10$, $\lambda_1 = \lambda_2 = 0,01$, $f_0 = 20$. Как видно, статическая восприимчивость системы χ_0 в точке перехода не обращается в бесконечность, как в предыдущих случаях, а имеет максимум, характерный для размытых фазовых переходов ^{6/}. Положение максимума в зависимости от температуры слабо изменяется с частотой внешнего поля ν . В табл.2 приведены значения параметров мягкой моды, соответствующие максимуму восприимчивости при $\nu = 0$ в зависимости от концентрации примесей, поляризованных так же, как параметр порядка в основной решетке. При повышении концентрации дефектов все кривые становятся более плоскими и при $c_2 = 0,1$ система оказывается полностью поляризована дефектами.

Таблица 2

Зависимость параметров мягкой моды и температуры, соответствующих максимуму восприимчивости при нулевой частоте поля ν , от концентрации замороженных поляризованных дефектов

c_2	ω_∞^2	δ^2	Γ_0	Θ_m
0,001	0,20	0,015	$2,7 \cdot 10^{-6}$	5,4
0,005	0,54	0,078	$3,1 \cdot 10^{-5}$	6,3
0,025	1,60	0,384	$5,0 \cdot 10^{-4}$	6,9
0,050	2,55	0,718	$1,6 \cdot 10^{-3}$	6,0
0,100	3,80	1,030	$5,3 \cdot 10^{-3}$	фазовый переход отсутствует

Полученные в этом разделе результаты показывают, что развитая теория позволяет на полумикроскопическом уровне описать большое разнообразие свойств структурных фазовых переходов в кристаллах с дефектами. Обсудим пределы применимости теории и возможности ее сравнения с экспериментом. Для описания фононов мы использовали приближение первого порядка теории самосогласованных фононов, справедливое вне критической области, размер которой для данной модели пропорционален $1/f_0$. Далее, мы использовали предположение об однородности параметра порядка: $\eta_n \equiv \eta$, хотя в критической области в результате сильно нелинейных эффектов и при наличии дефектов могут возникать кластеры ближнего порядка ^{2/}. Наконец, неупорядоченность решетки рассматривается в одноузельном приближении метода когерентного потенциала, хотя в критической области важную роль может играть рассеяние фононов на парах дефектов и их кластерах. Таким образом, поведение мягкой моды в критической области требует дополнительного исследования.

Детальное сравнение с экспериментом на данном этапе возможно только на качественном уровне. Это связано главным образом с тем, что во многих имеющихся экспериментах трудно идентифицировать тип дефекта. Для этого, в частности, можно использовать полученное здесь поведение характеристик мягкой фононной моды. Например, эксперименты по изучению влияния примесей бария на фазовые переходы в титанате стронция ^{12/} показывают, что в случае фазового перехода на границе зоны Бриллюэна при $T_c \approx 105$ К примеси проявляются как "жесткие" дефекты. В низкотемпературной же области, где SrTiO_3 является квантовым сегнетоэлектриком, они играют роль "мягких" дефектов, приводящих к возникновению фазового перехода при $q_c = 0$ /см. рис.3/.

Заметим также, что при сравнении с экспериментом поведения затухания мягкой моды необходимо учитывать и другие механизмы. В первую очередь это относится к не рассматриваемому в данной работе фонон-фононному взаимодействию, которое приводит к увеличению затухания при $T \rightarrow T_0^{1/2} \cdot V^{1/4}$, например, было показано, что замороженные дефекты вызывают линейную связь критической моды с другими модами, приводящую к добавке к затуханию, которая ведет себя как $\Delta\Gamma \sim [(T - T_0)/T_0]^{-1/2}$.

Авторы выражают признательность А.П.Леванюку и Н.М.Плакиде за обсуждение результатов работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Леванюк А.П. и др. ЖЭТФ, 1979, 76, с. 345.
2. Bruce A.D., Cowley R.A. Adv. Phys., 1980, 29, p. 219.
3. Thomas H. Ferroelectrics, 1981, 35, p. 89.
4. Halperin B.I., Varma C.M. Phys.Rev.B, 1976, 14, p. 4030.
5. Аксенов В.Л., Бретер Х., Плакида Н.М. ФТТ, 1978, 20, с.1469.
6. Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. "Мир", М., 1981.
7. Hochli U.T. Ferroelectrics, 1981, 35, p. 17.
8. Аксенов В.Л., Плакида Н.М. ТМФ, 1978, 35, с. 114.
9. Aksenov V.L., Didyk A.Yu. Ferroelectrics, 1983, 48, p. 9.
10. Эллиот Р., Крамхансл Дж., Лис П. В сб.: Теория и свойства неупорядоченных материалов. "Мир", М., 1977, с. 11-248.
11. Аксенов В.Л., Дидык А.Ю. ОИЯИ, P17-83-549, Дубна, 1983.
12. Hegenbarth E. Ferroelectrizität, '81/1, Halle Martin-Luther-Universität, 1981, p. 52-63.
13. Аксенов В.Л., Плакида Н.М., Стаменкович С. Рассеяние нейтронов сегнетоэлектриками. Энергоатомиздат, М., 1983.
14. Levanyuk A.P., Sigov A.S. J.Phys.Soc.Jap.Suppl., 1980, B49, p.13.

Рукопись поступила в издательский отдел
26 декабря 1983 года.

Аксенов В.Л., Дидык А.Ю.

P17-83-891

Влияние дефектов на поведение мягкой фононной моды

Рассмотрена динамика решетки модели структурного фазового перехода с дефектами. Развита микроскопический подход на основе метода самосогласованных фононов и приближения когерентного потенциала. Получена температурная и концентрационная зависимость частоты мягкой фононной моды и ее затухания для дефектов различных типов. Обсуждается влияние дефектов на фазовый переход в квантовых сегнетоэлектриках.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1983

Aksenov V.L., Didyk A.Yu.

P17-83-891

Influence of Defects on Soft-Phonon-Mode Behaviour

Lattice dynamics of structural phase transition model with defects is considered. The microscopical approach which is based on the self-consistent phonon field approximation and coherent potential approximation is developed. The temperature and concentrational dependence of soft phonon mode frequency and its damping is obtained for defects of different types. The influence of defects on the phase transition in quantum ferroelectrics are discussed.

The investigation has been performed at the Laboratory of Theoretical Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research, Dubna 1983

Перевод О.С.Виноградовой