

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

P17-84-378

Н.М.Плакида, Х.Насрулов*

ВЛИЯНИЕ ВАКАНСИЙ
НА СТРУКТУРНЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД
В SrTiO_3

* ФТИ АН ТаджССР

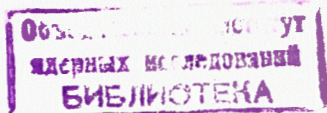
1984

Наличие дефектов сильно влияет на свойства кристаллов, испытывающих структурный фазовый переход /СФП/ /1/. Как показали недавние эксперименты /2-4/, такой дефект, как вакансия иона кислорода, значительно изменяет поведение мягкой фононной моды в перовскитах SrTiO_3 . Это объясняется особой ролью кислорода в возникновении неустойчивости решетки и СФП ввиду его большой анизотропной нелинейной поляризуемости. Микроскопической причиной такой поляризуемости является гибридизация p -состояния кислорода и d -состояния переходного металла. Для сегнетоэлектрической мягкой моды важную роль играет d_ϵ/p_n -гибридизация, тогда как для антидисторсионной мягкой моды важной является d_ϵ/p_σ -гибридизация /5/. Отсутствие иона кислорода приводит к локальному подавлению этой гибридизации и, следовательно, к увеличению частоты и уменьшению температуры СФП. Таким образом, вакансии являются стабилизирующими дефектами в кристалле.

Изучению влияния дефектов на СФП посвящен ряд теоретических работ /см., например /6,7/ /. В настоящей работе нас будет больше интересовать динамика решетки дефектного кристалла при СФП, которая на основе модельного подхода рассматривалась в работах /8,9/. Преимуществом такого модельного подхода является возможность единого описания термодинамических и динамических характеристик кристалла, испытывающего СФП, в рамках одной модели с небольшим числом подгоночных параметров. В частности, как было показано в /10-12/, СФП в перовскитах типа SrTiO_3 с мягкой модой R_{25} может быть удовлетворительно описан в рамках модели локальной нормальной моды, учитывающей лишь вращения октаэдров TiO_6 в кристалле.

Целью настоящей работы является изучение влияния вакансий на СФП в перовскитах типа SrTiO_3 на основе модели локальной нормальной моды, предложенной в /10/. При этом появление вакансий в элементарной ячейке кристалла рассматривается как возникновение дефектной ячейки с параметрами взаимодействия, отличающимися от параметров в идеальном кристалле.

В следующем разделе формулируется гамильтониан модели кристалла с вакансиями. В разделе 2 в приближении среднего поля получена самосогласованная система уравнений для определения частот мягкой моды и параметра порядка. В разделе 3 определяются параметры модели и результаты расчетов сопоставляются с экспериментальными данными /3/. Полученные результаты обсуждаются в разделе 4.



1. ГАМИЛЬТониАН МОДЕЛИ И ПРЕДСТАВЛЕНИЕ ЛОКАЛЬНОЙ НОРМАЛЬНОЙ КООРДИНАТЫ

Будем предполагать, что наличие вакансии приводит к образованию дефектных ячеек, которые можно описать, вводя оператор проектирования $t_{i\ell}^{1/8}$: $t_{1\ell} = 1 - t_{2\ell} = 1/0$, если ячейка ℓ - бездефектная /дефектная/. В перовскитах типа SrTiO_3 мягкая мода R_{25} связана с движением атомов кислорода в плоскости грани куба, и поэтому для описания антидисторсионного СФП достаточно записать гамильтониан, учитывая только эти смещения:

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\ell k \alpha i} \frac{M_{i\ell}}{3} \dot{u}_\alpha(\ell k) t_{i\ell} + \frac{1}{2} \sum_{\ell k \alpha i} \sum_{\ell' k' \beta j} \Phi_{\alpha\beta}^{(i,j)}(\ell, \ell'; k, k') u_\alpha(\ell k) u_\beta(\ell' k') t_{i\ell} t_{j\ell'} + \frac{1}{4} \sum_{\ell k \alpha i} d_1^{(i)} u_\alpha^4(\ell k) t_{i\ell} + \frac{1}{2} \sum_{\ell k \alpha \beta i} d_2^{(i)} u_\alpha^2(\ell k) u_\beta^2(\ell k) t_{i\ell} \quad /1/$$

где $u_\alpha(\ell k)$ - тепловое смещение иона кислорода с номером k в элементарной ячейке ℓ . Обозначая оси координат $\alpha = x, y, z$ цифрами 1, 2, 3, считаем, что $u_\alpha(\ell k) = 0$ для $\alpha = k$. Индекс $i = 1(2)$ при $M_{i\ell}$ - массе элементарной ячейки $\Phi_{\alpha\beta}^{(i,j)}(\ell, \ell'; k, k')$ - гармонической матрицы силовых постоянных d_1 и d_2 - ангармонических взаимодействий ионов кислорода с остальными ионами решетки указывает, что они относятся к бездефектным /дефектным/ ячейкам. Полагаем, что в элементарной ячейке может быть только одна вакансия в одной из эквивалентных позиций. Тогда $M_{1\ell} = 3m$, $M_{2\ell} = 2m$ / m - масса кислорода/, и среднее число дефектных ячеек равняется среднему числу вакансий.

Следуя ^{10, 12/}, введем локальную координату $R_\lambda(\ell)$, определяющую поворот октаэдра относительно оси $\lambda = 1, 2, 3$, с помощью которого смещения $u_\alpha(\ell k)$ выражаются по формуле

$$u_\alpha(\ell k) = \frac{1}{2\sqrt{2}ma^2} \{ \vec{\xi}(k) \times (\vec{R}(\ell + k) - \vec{R}(\ell)) \}_\alpha = \frac{1}{2\sqrt{2}m} e_{\alpha k \lambda} (R_\lambda(\ell + k) - R_\lambda(\ell)), \quad /2/$$

где $e_{\alpha k \lambda}$ - полностью антисимметричный тензор. Вектор $\vec{\xi}(k)$ имеет компоненты $\xi_\alpha(k) = a \cdot \delta_{\alpha k}$ и определяет расстояние между эквивалентными ионами в соседних элементарных ячейках; a - постоянная кубической решетки; $R_\lambda(\ell + k) = R_\lambda(\vec{\ell} + \vec{\xi}(k))$.

Гамильтониан в представлении $R_\lambda(\ell)$ принимает вид

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\ell \ell' \lambda} I_\lambda(\ell, \ell'; \{t_\ell t_{\ell'}\}) \dot{R}_\lambda(\ell) \dot{R}_\lambda(\ell') + \frac{1}{2} \sum_{\ell \ell'} \sum_{\lambda \mu} v_{\lambda\mu}(\ell - \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) R_\lambda(\ell) R_\mu(\ell') + \frac{1}{4} \sum_{\ell \ell'} \sum_{\lambda \mu} \Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) [R_\lambda(\ell) - R_\lambda(\ell')]^2 [R_\mu(\ell) - R_\mu(\ell')]^2, \quad /3/$$

где полный нелокальный момент инерции, гармоническая и ангармоническая матрицы взаимодействия имеют вид

$$I_\lambda(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = I_\lambda(\ell, \ell') - \Delta I_\lambda(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}), \quad v_{\lambda\mu}(\ell - \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = v_{\lambda\mu}(\ell - \ell') - \Delta v_{\lambda\mu}(\ell - \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}), \quad \Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = \Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell') - \Delta \Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}). \quad /4/$$

Здесь $I_\lambda(\ell, \ell')$, $v_{\lambda\mu}(\ell - \ell')$, $\Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell')$ - величины, описывающие идеальный кристалл; они имеют такой же вид, как и в работе ^{10/}. Изменение момента инерции, гармонической и ангармонической матриц взаимодействия за счет дефектов определяются функциями ΔI_λ , $\Delta v_{\lambda\mu}$, $\Delta \Gamma_{\lambda\mu}$:

$$\Delta I_\lambda(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = \frac{1}{12} \sum_{k \alpha} e_{\alpha k \lambda}^2 \frac{1}{2} [t_{2\ell}(\delta_{\ell\ell'} - \delta_{\ell, \ell+k}) + t_{2\ell'}(\delta_{\ell, \ell'} - \delta_{\ell', \ell-k})]; \quad \Delta v_{\lambda\mu}(\ell - \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = \frac{1}{8m} \sum_{k k' \alpha \beta} e_{\alpha k \lambda} e_{\beta k' \mu} \{ \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell') [t_{2\ell}(1 - t_{2\ell'}) + t_{2\ell'}(1 - t_{2\ell})] + \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell' - \xi_k + \xi_{k'}) [t_{2\ell-k}(1 - t_{2\ell'-k'}) + t_{2\ell'-k'}(1 - t_{2\ell-k})] - \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell' - \xi_k) [t_{2\ell-k}(1 - t_{2\ell'}) + t_{2\ell'}(1 - t_{2\ell-k})] - \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell' + \xi_{k'}) [t_{2\ell}(1 - t_{2\ell'-k'}) + t_{2\ell'-k'}(1 - t_{2\ell})] \} + \frac{1}{8m} \sum_{k k' \alpha \beta} e_{\alpha k \lambda} e_{\beta k' \mu} \{ \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell') t_{2\ell} t_{2\ell'} + \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell' - \xi_k + \xi_{k'}) t_{2\ell-k} t_{2\ell'-k'} - \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell' - \xi_k) t_{2\ell-k} t_{2\ell'} - \Delta \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell' + \xi_{k'}) t_{2\ell} t_{2\ell'-k'} \}; \quad /5a/$$

/5b/

$$\Delta\Gamma_{\lambda\mu}(\ell, \ell', \{t_\ell t_{\ell'}\}) = \frac{1}{16} \sum_{ka} \{ \delta_{\lambda\mu} \Delta\Gamma_1 e^{4}{}_{ak\lambda} +$$

$$+ 2(1 - \delta_{\lambda\mu}) \Delta\Gamma_2 \sum_{\beta(\neq a)} e^2{}_{ak\lambda} e^2{}_{\beta k\mu} \{ \frac{1}{2} (t_2 \ell^{\delta_{\ell', \ell+k}} + t_2 \ell'^{\delta_{\ell', \ell-k}}) \},$$

$$\Delta\Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell') = \Phi_{\alpha\beta}^{(11)}(k, k', \ell - \ell') - \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell'), \quad /5в/$$

$$\Delta\Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell') = \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', \ell - \ell') - \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', \ell - \ell'),$$

$$\Delta\Gamma_{1,2} = (2m)^{-2} (d_{1,2}^{(1)} - d_{1,2}^{(2)}).$$

Таким образом, в принятую модель помимо параметров, описывающих динамику R_{25} -моды в идеальном кристалле, входят величины, относящиеся к дефектным ячейкам, которые также считаются подгоночными параметрами.

2. СВОБОДНАЯ ЭНЕРГИЯ И УРАВНЕНИЯ ДЛЯ ПАРАМЕТРА ПОРЯДКА

Для определения свободной энергии системы воспользуемся вариационным методом Боголюбова

$$F_1 = F_0 + \langle H - H_0 \rangle_0, \quad F_0 = -T \ln \text{Sp} e^{-H_0/T}, \quad /6/$$

где пробный гамильтониан

$$H_0 = \frac{1}{2} \sum_{\ell\ell'} \sum_{\lambda} I_{\lambda}(\ell\ell') \dot{R}_{\lambda}(\ell) \dot{R}_{\lambda}(\ell') + \frac{1}{2} \sum_{\ell\ell'} \sum_{\lambda\mu} \phi_{\lambda\mu}(\ell\ell') R_{\lambda}(\ell) R_{\mu}(\ell'); \quad /7/$$

здесь $\phi_{\lambda\mu}(\ell, \ell')$ - вариационный параметр, определяющий псевдогармоническую частоту критической моды в приближении среднего поля для дефектов. Усреднение $\langle \dots \rangle_0$ выполняется с гамильтонианом /7/.

В приближении среднего поля для дефектов усредненный гамильтониан $\langle H - H_0 \rangle_0$ после Фурье-преобразования принимает вид

$$\langle H - H_0 \rangle_0 = \frac{1}{2} \sum_{q\lambda} [I_{\lambda}(q, n) - I_{\lambda}(q)] \langle R_{\lambda}(q) \dot{R}_{\lambda}(-q) \rangle_0 +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{q\mu\lambda} [v_{\lambda\mu}(q, n) - \phi_{\lambda\mu}(q)] \langle R_{\lambda}(q) R_{\mu}(-q) \rangle_0 + \quad /8/$$

$$+ \frac{1}{4N} \sum_{q_1 \dots q_4} \sum_{\lambda\mu} \Gamma_{\lambda\mu}(q_1 \dots q_4, n) \langle R_{\lambda}(q_1) R_{\lambda}(q_2) R_{\mu}(q_3) R_{\mu}(q_4) \rangle_0,$$

где

$$I_{\lambda}(q, n) = \frac{1}{4} (1 - \frac{n}{3}) (2 + \cos q_{\lambda} \cdot a - \sum_{\mu=1}^3 \cos q_{\mu} \cdot a), \quad /8а/$$

$$v_{\lambda\mu}(q, n) = \frac{1}{8m} \sum_{k k'} \sum_{\alpha\beta} e_{ak\lambda} e_{\beta k'\mu} (1 - e^{-iq\xi_k}) (1 - e^{iq\xi_{k'}}) \times$$

$$\times [\Phi_{\alpha\beta}^{(11)}(k k', q) - 2n(1 - n) \Delta\Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k k', q) - n^2 \Delta\Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k k', q)], \quad /8б/$$

$$\Gamma_{\lambda\mu}(q_1 \dots q_4, n) = \frac{1}{N} \Delta(\vec{q}_1 + \vec{q}_2 + \vec{q}_3 + \vec{q}_4) \sum e^{iq\ell} \Gamma_{\lambda\mu}(q, n) \times$$

$$\times (1 - e^{-iq_1\ell}) (1 - e^{-iq_2\ell}) (1 - e^{-iq_3\ell}) (1 - e^{-iq_4\ell}), \quad /8в/$$

$$\Gamma_{\lambda\mu}(q, n) = \frac{1}{16} [\Gamma_1(n) \delta_{\lambda\mu} \sum_{\alpha \neq \lambda} \cos q_{\alpha} \cdot a + 2(1 - \delta_{\lambda\mu}) \Gamma_2(n) \cos q_{\delta} \cdot a], \quad /8г/$$

$$(\delta \neq \lambda, \mu),$$

$\Gamma_{1,2}(n) = \Gamma_{1,2} - n \cdot \Delta\Gamma_{1,2}$ и $n = \langle t_{2\ell} \rangle$ - средняя концентрация дефектов, равная концентрации вакансий.

Структурный переход в точке $\vec{q}_R = (2\pi/a)(1/2, 1/2, 1/2)$, обусловленный конденсацией моды R_{25} , характеризуется трехкомпонентным параметром порядка, который можно связать со статическими поворотами октаэдра TiO_6 , т.е.

$$\langle R_{\lambda}(\ell) \rangle_0 = A_{\lambda} e^{iq_R \ell} \quad /9/$$

или

$$A_{\lambda} = \frac{1}{\sqrt{N}} \langle R_{\lambda}(q_R) \rangle_0. \quad /10/$$

Представляя $R_{\lambda}(q)$ в виде

$$R_{\lambda}(q) = \langle R_{\lambda}(q) \rangle \Delta(\vec{q} - \vec{q}_R) + r_{\lambda}(q) \quad /11/$$

и вводя корреляционную функцию

$$D_{\lambda\mu}(q) = \langle r_{\lambda}(q) r_{\mu}(-q) \rangle_0, \quad /12/$$

для выражения /8/ получим

$$\langle H - H_0 \rangle_0 = E_0 + V_2(D_{\lambda\mu}) + V_4(D_{\lambda\mu}); \quad /13/$$

здесь статистическая энергия E_0 и флуктуационные части имеют вид

$$\frac{2}{N} E_0 = \omega_R^2(n) + \Gamma_1(n) \sum_{\lambda} A_{\lambda}^4 + \Gamma_2(n) \sum_{\lambda \neq \mu} A_{\lambda}^2 A_{\mu}^2, \quad /13а/$$

$$V_2(D_{\lambda\mu}) = \frac{1}{2} \sum_{q\mu\lambda} [v_{\lambda\mu}(q, n) - \phi_{\lambda\mu}(q)] D_{\lambda\mu}(q), \quad /13б/$$

$$V_4(D_{\lambda\mu}) = 4 \sum_{q\lambda\mu} [\Gamma_{\lambda\mu}(0, n) - \Gamma_{\lambda\mu}(q, n)] [A_{\lambda\mu}^2 D_{\mu\mu}(q) + 2A_{\lambda\mu} A_{\mu\lambda} D_{\lambda\mu}(q)] + \quad /13в/$$

$$+ \frac{1}{N} \sum_{\lambda\mu} \sum_{q q'} \Gamma_{\lambda\mu}(q q', n) [D_{\lambda\lambda}(q) D_{\mu\mu}(q') + 2D_{\lambda\mu}(q) D_{\lambda\mu}(q')],$$

где

$$\Gamma_{\lambda\mu}(q q', n) = \Gamma_{\lambda\mu}(0, n) - \Gamma_{\lambda\mu}(q, n) + \Gamma_{\lambda\mu}(q - q', n) - \Gamma_{\lambda\mu}(q', n). \quad /14/$$

Гармоническая частота $\omega_R^2(n)$, зависящая от концентрации дефектов n , определяется формулой

$$\omega_R^2(n) = \omega_{0R}^2 - 2n(1-n)(\omega_{0R}^2 - \omega_{1R}^2) - n^2(\omega_{0R}^2 - \omega_{2R}^2), \quad /15/$$

где

$$\omega_{0R}^2 = 4 \sum_{k\alpha} \sum_{k'\beta} \Phi_{\alpha\beta}^{(11)}(k, k', q_R), \quad \omega_{1R}^2 = 4 \sum_{k\alpha} \sum_{k'\beta} \Phi_{\alpha\beta}^{(12)}(k, k', q_R), \quad /16/$$

$$\omega_{2R}^2 = 4 \sum_{k\alpha} \sum_{k'\beta} \Phi_{\alpha\beta}^{(22)}(k, k', q_R).$$

Пользуясь условием стационарности свободной энергии $\partial F_1 / \partial D_{\lambda\mu}(q)$, находим уравнения для динамической матрицы

$$\phi_{\lambda\mu}(q, n) = v_{\lambda\mu}(q, n) + \delta_{\lambda\mu} [3\Gamma_1(n) A_{\lambda\lambda}^2 \sum_{\alpha \neq \lambda} \gamma_{\alpha}(q) + 2\Gamma_2(n) \gamma_{\delta}(q) \sum_{\nu \neq \lambda} A_{\nu\nu}^2] + 4(1 - \delta_{\lambda\mu}) \Gamma_2(n) \gamma_{\delta}(q) A_{\lambda\lambda} A_{\mu\mu} + \quad /17/$$

$$+ \frac{4}{N} \sum_{q'} [\delta_{\lambda\mu} \sum_{\nu} \Gamma_{\lambda\mu}(q q', n) D_{\nu\nu}(q') + 2\Gamma_{\lambda\mu}(q q', n) D_{\lambda\mu}(q')],$$

$$\text{где } \gamma_{\alpha}(q) = \frac{1}{2} (1 - \cos q_{\alpha} \cdot a).$$

Частота самосогласованных фононов определяется при диагонализации этой матрицы

$$\Omega_{\lambda}^2(q, n) = \sum_{\alpha\beta} e_{\lambda}^{\alpha}(q) \phi_{\alpha\beta}(q, n) e_{\lambda}^{\beta}(q), \quad /18/$$

$e_{\lambda}^{\alpha}(q)$ - полный и ортонормированный базис векторов поляризации. Корреляционная функция в этом базисе имеет вид

$$D_{\alpha\beta}(q, n) = \sum_{\lambda} \frac{e_{\lambda}^{\alpha}(q) e_{\lambda}^{\beta}(q)}{2\Omega_{\lambda}(q, n)} \text{cth} \frac{\Omega_{\lambda}(q, n)}{2T}. \quad /19/$$

Для мягкой моды R_{25} получим уравнение

$$\Omega_{\lambda}^2(q_R, n) = \omega_R^2(n) + 3\Gamma_1(n) [2A_{\lambda\lambda}^2 + \sum_{\alpha \neq \lambda} D_{\lambda\lambda}^{\alpha}(T)] + 2\Gamma_2(n) \sum_{\mu \neq \lambda} [A_{\mu\mu}^2 + D_{\mu\mu}^{\delta}(T)], \quad (\delta \neq \lambda, \mu); \quad /20/$$

здесь использовано обозначение ^{/12/}

$$D_{\lambda\mu}^{\alpha}(T) = \frac{1}{N} \sum_q \gamma_{\alpha}(q) D_{\lambda\mu}(q). \quad /21/$$

Уравнения для равновесных значений параметра порядка получим из условий минимума свободной энергии ^{/12/}:

$$A_{\lambda} \{ \omega_R^2(n) + \Gamma_1(n) [2A_{\lambda}^2 + 3 \sum_{\alpha \neq \lambda} D_{\lambda\lambda}^{\alpha}(T)] + 2\Gamma_2(n) \sum_{\mu \neq \lambda} [A_{\mu\mu}^2 + D_{\mu\mu}^{\delta}(T)] \} + 4\Gamma_2(n) \sum_{\mu \neq \lambda} A_{\mu} D_{\lambda\mu}^{\delta}(T) = 0. \quad /22/$$

Уравнения /19/, /20/ и /22/ составляют самосогласованную систему уравнений для определения зависимости мягкой моды и температуры СФП от концентрации дефектов.

Выше температуры СФП $T > T_R$ система находится в кубической фазе, где $A_{\lambda} = 0$ и все компоненты корреляционной функции одинаковы. Частота мягкой моды трехкратно вырождена:

$$\Omega_{\lambda}^2(q_R, n) = -|\omega_R^2(n)| + 2\Gamma(n) D_{\lambda}(T), \quad /23/$$

где $\Gamma(n) = 3\Gamma_1(n) + 2\Gamma_2(n)$.

При $T < T_R$ система находится в тетрагональной фазе, когда только одна из компонент параметра порядка A_{λ} отлична от нуля. В этой фазе вырождение частоты мягкой моды частично снимается:

$$\Omega_1^2(q_R, n) = 4\Gamma_1(n) A^2, \quad /24/$$

$$\Omega_{2,3}^2(q_R, n) = 2[\Gamma_2(n) - \Gamma_1(n)] A^2 + 2[3\Gamma_1(n) - \Gamma_2(n)] [D_2(T) - D_1(T)],$$

где параметр порядка определяется из уравнения

$$2\Gamma_1(n) A^2 = |\omega_R^2(n)| - 6\Gamma_1(n) D_1(T) - 4\Gamma_2(n) D_2(T). \quad /25/$$

3. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

Для решения полученной в предыдущем разделе самосогласованной системы уравнений и сравнения теоретических результатов с экспериментами ^{/2,3/} воспользуемся приближением типа среднего поля ^{/11/} при вычислении корреляционной функции /19/, /21/;

$$D_{\lambda}(T) \approx \frac{1}{N} \sum_q \frac{1}{2\Omega_{\lambda}(q)} \text{cth} \frac{\Omega_{\lambda}(q)}{2T} \approx \frac{1}{2\Omega_{\lambda}(T)} \text{cth} \frac{\Omega_{\lambda}(T)}{2T}, \quad /26/$$

где в /19/, /21/ мы приняли $\gamma_\alpha(q) \approx \gamma_\alpha(q_R) = 1$, $e_\lambda^\alpha(q) \approx e_\lambda^\alpha(q_R) = \delta_{\lambda\alpha}$ и ввели среднюю по спектру частоты фононов

$$\Omega_\lambda^2(T) = \Omega_\lambda^2(q_R, n) + \Omega^2(n), \quad /26/$$

где $\Omega^2(n)$ имеет смысл полуширины фононной зоны. В этом приближении самосогласованная система уравнений в кубической фазе принимает вид

$$\nu_R^2(t) = -(1 - n\lambda) + \frac{\gamma_0(1 - n\beta)}{\nu} \operatorname{cth} \frac{\nu}{2T}, \quad \nu^2 = \nu_R^2 + f_0(1 - n\alpha), \quad /27/$$

где введены безразмерные величины

$$\nu_R^2 = \frac{\Omega_R^2}{|\omega_{0R}^2|}, \quad \nu^2 = \frac{\Omega_\lambda^2(t)}{|\omega_{0R}^2|}, \quad \gamma = \frac{\Gamma_0}{|\omega_{0R}^2|^{3/2}}, \quad f = \frac{\Omega_0^2}{|\omega_{0R}^2|}, \quad t = \frac{T}{\sqrt{|\omega_{0R}^2|}} \quad /28/$$

и, согласно /4/, /5/, принята следующая линейная зависимость параметров модели от концентрации дефектов:

$$\omega_R^2 = \omega_{0R}^2(1 - n\lambda), \quad \Gamma(n) = \Gamma_0(1 - \beta n), \quad \Omega^2(n) = \Omega_0^2(1 - n\alpha). \quad /29/$$

Температура СФП находится из условия $\nu_R^2(t) = 0$.

Для определения параметров модели γ_0 , f_0 идеального кристалла и параметров λ , α и β , описывающих влияние дефектов, воспользуемся экспериментальными данными^{/3/}. В области высоких температур $\nu_R^2(t)$ линейно зависит от t , что позволяет получить

$$\text{соотношение } \frac{d\nu_R^2(t)}{dt} \approx \frac{2\gamma_0(1 - \beta n)}{f_0(1 - n\alpha)}. \quad \text{Согласно } ^{/3/}, \text{ при } n = 0 \text{ находим}$$

$2\gamma_0/f_0 = 0,48$. Независимо оценивая параметр $f_0 \approx 10$ /см.^{9/} /, получаем $\gamma_0 \approx 2,4$. Параметр λ выбираем, согласно^{/3/}, $\lambda = 0,345/\%^{-1}$. Коэффициенты α и β находятся из наклона кривых $\nu_R^2(t)$ при $n \neq 0$ в области высоких температур и значения частоты $\nu_R^2/t = 0/$ для $n = 2,24\%$, что дает $\alpha \approx 0,025$ и $\beta \approx 0,05$. Результаты расчета $\Omega_R^2(T, n)$ и $T_c(n)$ с этими параметрами представлены на рис.1 и 2 соответственно. Отметим, что $T_c(n)$ имеет линейную зависимость от n лишь в высокотемпературном приближении /пунктирная линия на рис.2/, которое и было использовано в^{/3/} при обработке экспериментальных зависимостей $\Omega_R^2(T, n)$. Более последовательный учет температурной зависимости частоты мягкой моды при $T \rightarrow 0$, согласно уравнениям /27/, приводит к нелинейной зависимости $T_c(n)$ /сплошная кривая на рис.2/. Меньшему значению концентрации $n_c \approx 0,9\%$ соответствует $T_c \approx 0$, вместо $n_c \approx 2\%$, полученного в^{/3/}.

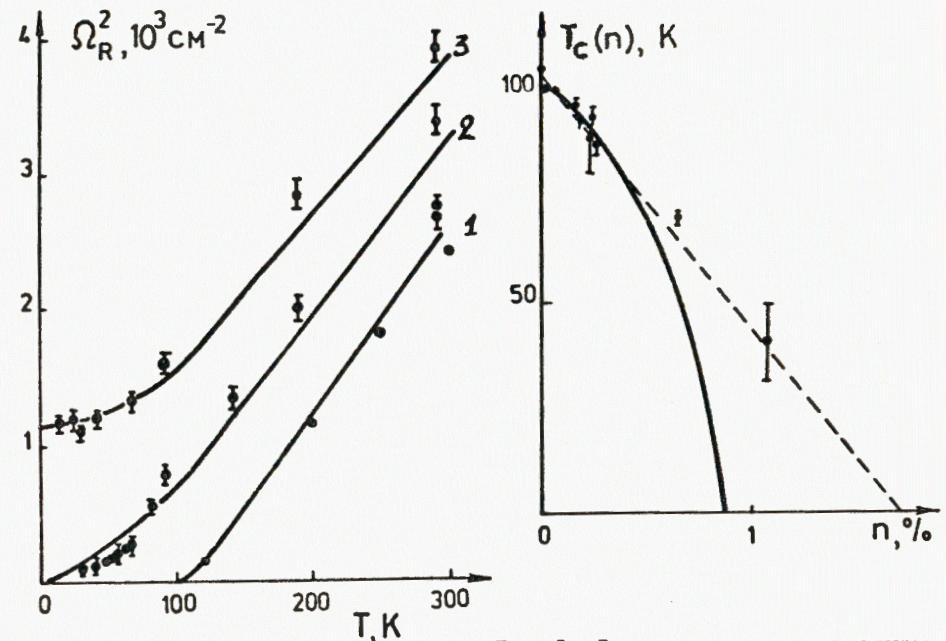


Рис.1. Температурная зависимость частоты мягкой моды $\Omega_R^2(n)$ от концентрации вакансий: 1 - $n = 0$; 2 - $n = 1,06\%$; 3 - $n = 2,24\%$. Сплошные кривые - расчет; точка - эксперимент^{/3/}.

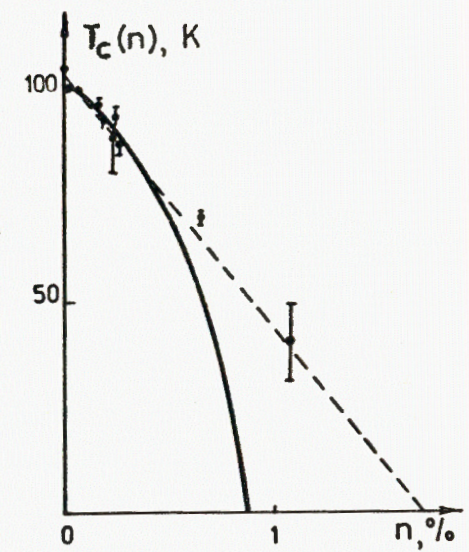


Рис.2. Зависимость температуры структурного фазового перехода $T_c(n)$ от концентрации вакансий $n/\%$. Сплошная кривая - расчет; пунктир - высокотемпературное приближение; точки - эксперимент^{/3/}.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Предложенное в настоящей работе обобщение модели локальной нормальной моды^{/10/} при учете вакансий кислорода в кристаллах типа SrTiO_3 позволяет с помощью небольшого числа параметров удовлетворительно описать экспериментальные результаты, представленные в работах^{/2-4/}. При этом достаточно хорошо воспроизводится как температурная зависимость частоты мягкой моды $\Omega_R^2(t)$, так и ее зависимость от концентрации вакансий n /см. рис.1/. На основе развитой теории проведено также уточнение зависимости температуры фазового перехода $T_c(n)$ /рис.2/. В соответствии с качественными оценками в^{/3/} показано, что наиболее сильно на частоту неустойчивой в гармоническом приближении моды R_{25} : $\omega_R^2 = \omega_{0R}^2(1 - 0,345 \cdot n)$. Средняя частота фононов $\Omega^2(n) = \Omega_0^2(1 - 0,025 \cdot n)$ и эффективное ангармоническое взаимодействие $\Gamma(n) = \Gamma_0(1 - 0,05 \cdot n)$ значительно слабее зависят от концентрации вакансий n , что подтверждает выводы работы^{/3/} об определяющей роли кислорода в возникновении неустойчивости и СФП

в кислородосодержащих кристаллах. Значительный интерес поэтому представляло бы проведение подобных экспериментов по влиянию вакансий на СФП в перовскитах другого типа: $KMnF_3$, $CsPbCl_3$.

Отметим, что приведенные выше линейные зависимости параметров модели от концентрации вакансий n в приближении среднего поля справедливы лишь в области малых концентраций, когда взаимодействием дефектных узлов в решетке можно пренебречь. Численные значения полученных коэффициентов также допускают некоторую вариацию их без существенного ухудшения согласия с экспериментом. В частности, дополнительный учет взаимодействия мягкой моды R_{25} с деформацией кристалла приведет, как и в случае идеального кристалла^{11/}, к определенной перенормировке этих коэффициентов. Кроме того, учет дисперсии частоты мягкой моды при вычислении корреляционной функции^{12/}, как это было предложено в^{12/}, также приведет к некоторому изменению параметров модели и зависимости $T_c(n)$ /рис.2/ в квантовой области низких температур.

Влияние вакансий на динамическую восприимчивость решетки и, в частности, их роль в образовании центрального пика предполагается рассмотреть на основе развитой модели в отдельной работе.

Авторы благодарят А.Ю.Дидыка за помощь в проведении численных расчетов.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гинзбург В.Л., Леванюк А.П. УФН, 1980, 130, с. 615.
2. Bauerle D., Rehwald W. Sol. St. Comm., 1978, 27, p. 1343.
3. Wagner D. et al. Z.Phys., 1980, B37, p. 317.
4. Bauerle D. et al. Z.Phys., 1980, B38, p. 337.
5. Bauerle D. Proc.4th Int.Conf.Ferroelectricity, Leningrad, 1977 (ed. by Taylor G.W., Shyvalov L.A.).
6. Леванюк А.П. и др. ЖЭТФ, 1979, 76, с. 345.
7. Halperin B.I., Varma C.M. Phys.Rev., 1976, B14, p. 4030.
8. Аксенов В.Л., Бретер Х., Плакида Н.М. ФТТ, 1978, 20, с. 1469; Aksienov V.L., Braeter H., Plakida N.H. Ferroelectrics, 1978, 21, p. 497.
9. Аксенов В.Л., Дидык А.Ю. ОИЯИ, P17-83-549, Дубна, 1983.
10. Pytte E., Feder J. Phys.Rev., 1969, 187, p. 1077.
11. Feder J., Pytte E. Phys.Rev., 1970, B1, p. 4803.
12. Konwent H., Plakida N.M. Acta Phys.Pol., 1983, A63, No. 6, p. 755, p. 769, p. 779.

Рукопись поступила в издательский отдел
30 мая 1984 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

	Труды VI Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1978 /2 тома/	7 р. 40 к.
	Труды VII Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц, Дубна, 1980 /2 тома/	8 р. 00 к.
	Труды УШ Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Протвино, 1982 /2 тома/	11 р. 40 к.
D11-80-13	Труды рабочего совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике, Дубна, 1979	3 р. 50 к.
D2-81-543	Труды VI Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1981	2 р. 50 к.
D10,11-81-622	Труды Международного совещания по проблемам математического моделирования в ядерно-физических исследованиях. Дубна, 1980	2 р. 50 к.
D17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
P18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.
D2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	1 р. 75 к.
D9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
D3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.
D11-83-511	Труды совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
D7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р. 55 к.
D2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.
D13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ
ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Индекс	Тематика
1.	Экспериментальная физика высоких энергий
2.	Теоретическая физика высоких энергий
3.	Экспериментальная нейтронная физика
4.	Теоретическая физика низких энергий
5.	Математика
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия
7.	Физика тяжелых ионов
8.	Криогеника
9.	Ускорители
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных
11.	Вычислительная математика и техника
12.	Химия
13.	Техника физического эксперимента
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях
16.	Дозиметрия и физика защиты
17.	Теория конденсированного состояния
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники
19.	Биофизика

Плакида Н.М., Насрулов Х. P17-84-378
Влияние вакансий на структурный фазовый переход в SrTiO_3

Рассмотрена динамическая модель структурного фазового перехода с мягкой модой R_{25} на границе зоны Бриллюэна с учетом вакансий ионов кислорода в титанате стронция. Получено удовлетворительное согласие с экспериментом по рассеянию нейтронов для температурной зависимости частоты мягкой моды и температуры перехода от концентрации вакансий.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1984

Перевод О.С.Виноградовой

Plakida N.M., Nasruloev H. P17-84-378
Structural Phase Transition in SrTiO_3 with Vacancies

A dynamical model of structural phase transition with the zone-boundary soft mode R_{25} in strontium titanate with oxygen vacancies is considered. A satisfactory agreement with experiments on neutron scattering for the temperature dependence of the soft mode and the phase transition temperature for different vacancy concentrations are obtained.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1984