

УДК 538.956

М.Б. Белоненко, Е.В. Демушкина, А.С. Сасов**ДОЛГОЖИВУЩИЕ СОСТОЯНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКАХ С НЕСОРАЗМЕРНОЙ ФАЗОЙ**

Найдены двумерные долгоживущие состояния солитонного типа в сегнетоэлектриках типа порядок — беспорядок с несоизмерной фазой. Показана временная эволюция затравочных состояний поляризации в зависимости от различных параметров. Исследовано влияние ферроэлектрических параметров на долгоживущее состояние.

In the present paper we found out two-dimensional long-living states of soliton type in order-disorder type ferroelectrics with incommensurate phase. We showed evolution in time of initial fuse polarization states to such formations depending on different parameters. We also searched influence of ferroelectric parameters on long-living state parameters.

Необходимость предсказания новых свойств и особенностей в уже давно исследуемых экспериментально веществах актуализирует вопрос о математическом описании процессов развития доменной структуры различных кристаллов. Ярким представителем сегнетоэлектриков с несоизмерной фазой является NaNO_2 — теоретически и экспериментально наиболее хорошо изученное соединение, как с ярко выраженными полупроводниковыми свойствами, так и с характерной последовательностью фазовых переходов. Полупроводниковые свойства нитрита натрия можно рассчитать, например, с использованием методов химической физики [1]. Однако вопрос об изучении нитрита натрия именно как сегнетоэлектрика типа порядок — беспорядок остается до сих пор открытым. В данной работе уделяется внимание динамике доменной структуры данного кристалла, а именно нахождению долгоживущих состояний солитонного типа. Исследование таких локализованных состояний является чрезвычайно важной задачей, так как они могут являться центрами образования «кластеров-предшественников» [2], ответственных за наблюдаемые аномалии в поведении комплексной диэлектрической проницаемости в параэлектрической фазе. Кроме того, и собственно вышеупомянутые локализованные состояния могут вносить нетривиальный вклад в поведение диэлектрической проницаемости [3].

Модель описывалась *системой уравнений* на псевдоспиновые переменные (для поляризации учитывалось влияние ближайших восьми ячеек) и эффективную компоненту вектора смещений. Поляризационные свойства сегнетоэлектриков во всех диапазонах температур и приложенных внешних электрических полей, с высокой степенью точности можно описать с помощью псевдоспинового формализма. Для кристаллов типа NaNO_2 гамильтониан задачи будет иметь вид:

$$H = -\frac{1}{2} \sum_j S_{ij}^z (J_{ij} (S_{i+1,j}^z + S_{i-1,j}^z + S_{i,j+1}^z + S_{i,j-1}^z) + J_{ij}^1 (S_{i+2,j}^z + S_{i-2,j}^z) + J_{ij}^2 (S_{i,j+2}^z + S_{i,j-2}^z)) - E_0 \sum_j S_j^z + H_{sa} + H_T, \quad (1)$$

где S_j^z имеет смысл оператора электрического дипольного момента j -й ячейки; J_{ij} — обменный интеграл, перенормированный с учетом теплового

движения атомов; E_0 — приложенное к образцу постоянное электрическое поле; символы i, j нумеруют узлы решетки в двух взаимно перпендикулярных направлениях.

Оператор H_{sa} представляет собой гамильтониан взаимодействия псевдоспиновой системой со звуком, возбуждаемым в образце благодаря пьезоэффекту. Конкретный вид H_{sa} зависит от направления распространения и вида звуковых колебаний по отношению к кристаллографическим осям x' , y' , z' . Ограничимся рассмотрением звуковых колебаний одного типа и запишем в предположении, что звук обусловлен линейным пьезоэффектом [4]:

$$H_{sa} = - \sum_j d \frac{\partial U(y'z, t)}{\partial y'} S_j^z, \quad (2)$$

где d — соответствующий пьезомодуль; U — величина вектора смещения; H_T — гамильтониан взаимодействия псевдоспиновой системы с термостатом, ответственный за поглощение энергии псевдоспиновой системой.

Отметим, что поскольку поглощение энергии носит релаксационный характер необходимо вывести соответствующие кинетические уравнения для данного случая. Такие кинетические уравнения можно вывести методом неравновесного статистического оператора Зубарева [4] и методом Глаубера [5]. Отметим, что хотя результаты вывода кинетических уравнений этими методами различаются в случаях для параметров гамильтониана, соответствующих рассматриваемым кристаллам, данные уравнения совпадают с уравнениями Блоха для вектора псевдоспина, приведенными в [6]. Так в подходе Глаубера, используемом здесь в силу его простоты, рассмотрим вероятности $P\{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}$ обнаружить псевдоспины в состояниях $\{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}$ в момент времени t . Предполагается, что зависимость от времени этой функции вероятности задается основным кинетическим уравнением:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} P\{\dots, \sigma_{qf}, \dots\} = & - \sum_q w_q \{\dots, \sigma_{qf}, \dots\} P\{\dots, \sigma_{qf}, \dots\} + \\ & + \sum_q w_q \{\dots, -\sigma_{qf}, \dots\} P\{\dots, -\sigma_{qf}, \dots\}, \end{aligned} \quad (3)$$

где $w_q \{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}$ — переверота псевдоспина вероятность из-за контакта с тепловым резервуаром, а псевдоспин с индексом qf переходит из состояния σ_{qf} в состояние $-\sigma_{qf}$ в течение единичного промежутка времени. Предположим, что теплоемкость термостата достаточна, велика так, что он находится всегда в равновесии. Исходя из условия детального баланса — в равновесии

$$\frac{w_q \{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}}{w_q \{\dots, -\sigma_{qf}, \dots\}} = \frac{P_0 \{\dots, -\sigma_{qf}, \dots\}}{P_0 \{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}}. \quad (4)$$

Здесь $P_0 \{\dots, \sigma_{qf}, \dots\}$ — функция равновесного распределения, пропорциональная фактору Максвелла — Больцмана $\exp(-\beta H)$; выражение для веро-

ятности спинового перехода $w_{qf} \{ \dots, \sigma_{qf}, \dots \}$ может быть записано следующим образом:

$$w_{qf} \{ \dots, \sigma_{qf}, \dots \} = \frac{1}{2\alpha} \left[1 - \sigma_{qf} \tanh \frac{1}{2} \beta E_{qf} \right]. \quad (5)$$

Параметр α описывает временной масштаб, на котором в системе происходят все переходы, E_{qf} обозначает оператор поля, действующего на спин qf , и в приближении среднего поля данный оператор заменяется его средним значением. Для средних значений величин, составленных из произведений спинов

$$\prod_f \sigma_{qf} = \sum_{\{\sigma\}} \prod_f \sigma_{qf} P \{ \dots, \sigma_{qf}, \dots, t \} \quad (6)$$

(сумма пробегает по всем 2^N состояниям системы), используя уравнения (5), легко получить:

$$-\alpha \frac{d}{dt} \left\langle \prod_f \sigma_{qf} \right\rangle = \sum_f \left\langle \prod_{f'} \sigma_{qf'} \left[1 - \sigma_{qf} \tanh \frac{1}{2} \beta E_{qf} \right] \right\rangle. \quad (7)$$

Здесь сумма пробегает только по спинам в произведении $\prod_{f'}$. Данное уравнение необходимо дополнить уравнением для звуковой волны, которое в заданных приближениях будет иметь вид

$$u_{tt} - v_0^2 u_{y'y'} - v_0^2 u_{z'z'} + d_1 \langle S^z \rangle_{y'} = 0, \quad (8)$$

где v_0 — скорость звука; $d_1 = d / \rho$; ρ — плотность образца.

Поскольку обсуждаемые в данной работе сегнетоэлектрики являются квазидвухмерными, необходимо для адекватного рассмотрения их свойств решать пространственно-двухмерную задачу. Кинетическое уравнение для описания динамики поляризации $\langle S^z \rangle$ можно записать следующим образом:

$$\langle \dot{S}^z \rangle = \frac{1}{2T_1} \text{th} \left(\beta \left(J_{ij} (S_{i+1,j}^z + S_{i-1,j}^z + S_{i,j+1}^z + S_{i,j-1}^z) + J_{ij}^1 (S_{i+2,j}^z + S_{i-2,j}^z) + P_{ij} \right) \right) - \frac{\langle S^z \rangle}{T_1}, \quad (9)$$

где

$$P_{ij} = J_{ij}^2 (S_{i,j+2}^z + S_{i,j-2}^z) + du_\xi + E;$$

J, J_1, J_2 — интегралы обменного взаимодействия атома в данном узле с ближайшими соседними и следующими за ними атомами в двух взаимно перпендикулярных направлениях y' и z' ; E — внешнее электрическое поле; β — обратная температура; $\langle S^z \rangle$ — неравновесное среднее оператора электрического дипольного момента в узле i, j ; T_1 — время релаксации.

Данное уравнение необходимо решать совместно с уравнением для звуковых колебаний

$$u_{tt} - v_0^2 u_{y'y'} - v_0^2 u_{z'z'} + \frac{d}{\rho} z_{y'} = 0, \quad (10)$$

где u — эффективная компонента вектора смещений; d — соответствующий пьезомодуль; ρ — плотность образца. Уравнения (9)—(10) решались численной схемой «крест». В качестве затравочных состояний выбиралось несколько видов поляризации. Типичная эволюция затравочных состояний поляризации приведена на рис. 1 и 2.

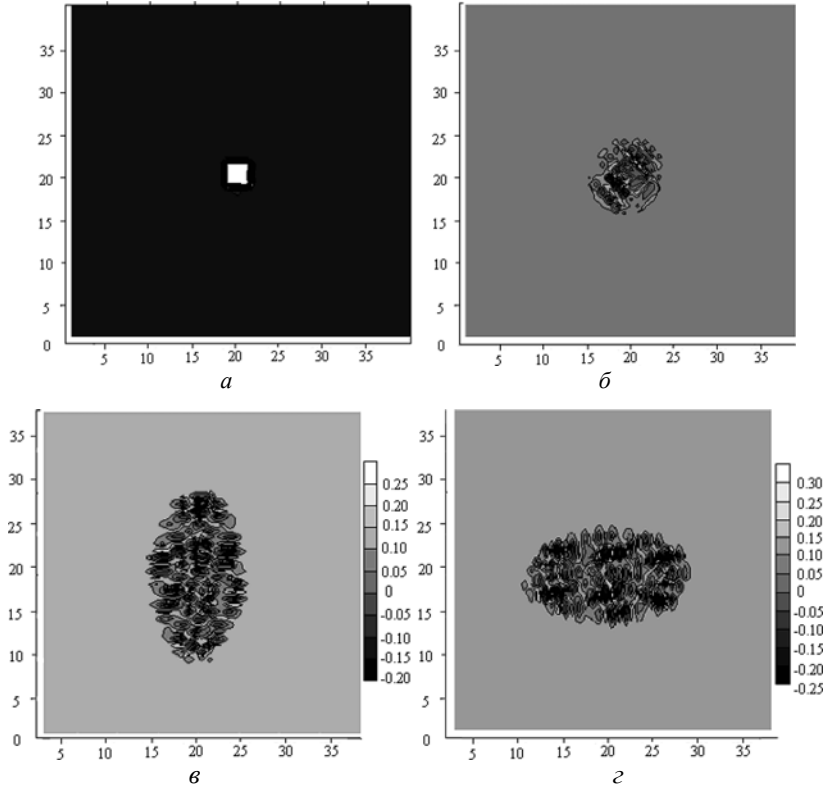


Рис. 1. Эволюция начального состояния: a — при $E = 10^5 \frac{V}{m}$, $\beta = \frac{1}{283} K^{-1}$, $v_0 = 1$ для различных значений параметров: $\bar{b}$ — $J_1 = 82,5 K$, $J_2 = 82,5 K$; $\bar{в}$ — $J_1 = 49,5 K$, $J_2 = 115,5 K$; $\bar{г}$ — $J_1 = 115,5 K$, $J_2 = 49,5 K$ ($k = \hbar = c = 1$). Единицы шкалы яркости соответствуют величине поляризации, нормированной на поляризацию насыщения

Выводы. 1. Динамика доменной структуры кристалла, как показано на достаточно больших временах, имеет локализованную структуру, что позволяет сделать вывод о том, что данные образования являются долгоживущими состояниями солитонного типа.

2. Устойчивые состояния солитонного типа существуют в достаточно широком диапазоне параметров кристалла, и обусловлены, по всей видимости, дипольными взаимодействиями сегнетоэлектрических ячеек из второй координационной сферы.

3. Локализованные устойчивые состояния могут являться центрами образования «кластеров-предшественников», ответственных за наблюдаемые аномалии в поведении комплексной диэлектрической проницаемости в параэлектрической фазе.

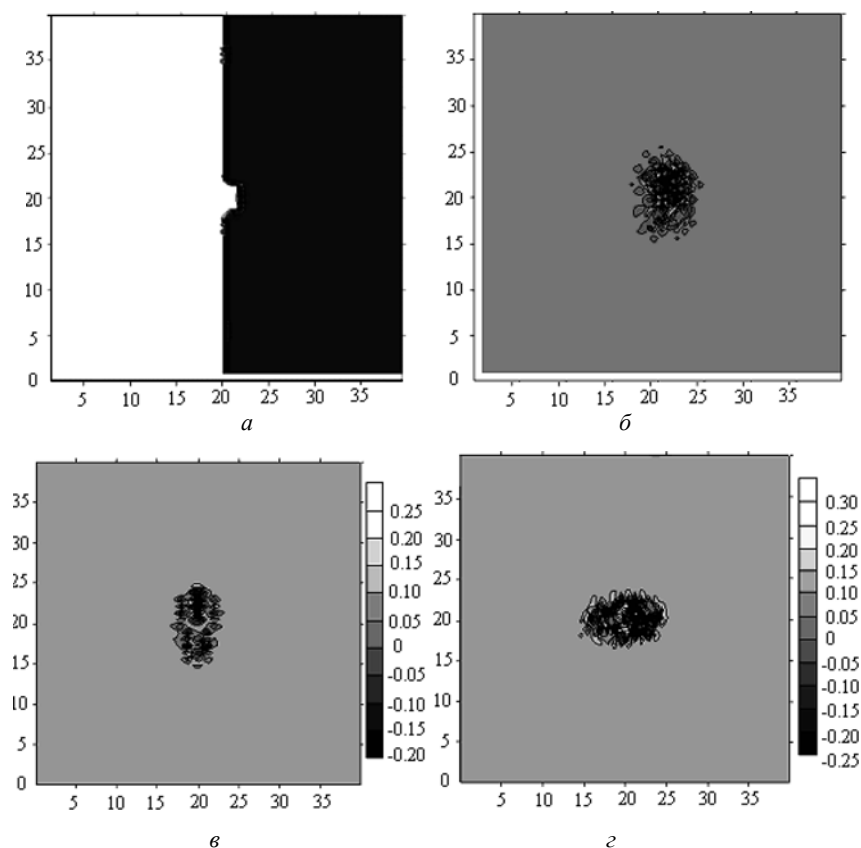


Рис. 2. Эволюция начального состояния: *a* — при $E = 10^5 \frac{V}{m}$, $\beta = \frac{1}{283} K^{-1}$, $v_0 = 1$ для различных значений параметров: *б* — $J_1 = 82,5 K$, $J_2 = 82,5 K$; *в* — $J_1 = 49,5 K$, $J_2 = 115,5 K$; *г* — $J_1 = 115,5 K$, $J_2 = 49,5 K$ ($k = \hbar = c = 1$). Единицы шкалы яркости соответствуют величине поляризации, нормированной на поляризацию насыщения

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Белоненко М.Б. Электронное строение сегнетоэлектрика– полупроводника NaNO_2 . / М.Б. Белоненко, Н.Г. Лебедев, В.В. Немеш // Хим. физ. 1998. Т. 17. № 3. С. 131—132.
2. О некоторых особенностях сегнетоэлектрического фазового перехода в кристаллах дигидрофосфата цезия в связи с их предысторией / Н.М. Галиярова, С.В. Горин, Л.Х. Вологирова и др. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1990. Т. 54. № 4. С. 795—800.
3. Аномальное поведение комплексной диэлектрической проницаемости кристалла диглициннитрата на низких и инфранизких частотах в параэлектрической фазе / А.В. Шильников, Е.Г. Надолинская, В.А. Федорихин, С.В. Родин // Кристаллография. 1994. Т. 39. № 1. С. 84—92.
4. Белоненко М.Б. Кинетические уравнения для Изинговского магнетика в параллельном переменном поле / М.Б. Белоненко, И.С. Донская, А.Р. Кессель. // ТМФ. 1991. Т. 88. № 1. С. 222—236.
5. Dielectric, piezoelectric, and elastic properties of the Rochelle salt $\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$: A theory / R.R. Levitskii, I.R. Zachek, T.M. Verkholyak, P.A. Moina // Phys. Rev. 2003. В 67. 174112.
6. Блинц Р. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики / Р. Блинц, Б. Жекш. М. : Мир, 1975. 398 с.

© Белоненко М.Б., Демушкина Е.В., Сасов А.С., 2006