

- [1] Баранский П. И., Беляев А. Е., Городничий О. П. // Материалы VII Всес. симп. «Полупроводники с узкой запрещенной зоной и полуметаллы». Львов, 1986. С. 183.
 [2] Аннаниязов А. Н., Беляев А. Е., Гарягдыев Г., Здебский А. П., Сальков Е. А. // Укр. физ. журн. 1988. Т. 33. № 11. С. 1694—1696.
 [3] Krevchik V. D., Muminov R. A., Yafasov A. Ya. // Phys. St. Sol. (a). 1981. V. 63. N 1 P. K159—K162.
 [4] Кусов А. А. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 5. С. 1574—1575.
 [5] Кусов А. А., Кондырев А. М., Чмель А. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 5. С. 1364—1369.
 [6] Окулич В. И. // Автореф. канд. дис. Горький, 1976.
 [7] Dornhaus R., Nimitz G. Narrow Gap Semicond. Berlin, 1985. P. 119—281.
 [8] Горшков А. В., Зайтов Ф. А., Исаев Ф. К., Шаляпина Г. М. // Изв. АН АзССР, физ., техн., матем. 1982. № 5. С. 91—93.
 [9] Скупов В. Д., Тетельбаум Д. И. // ФТП. 1987. Т. 21. № 8. С. 1495—1497.
 [10] Инденбом В. Л. // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5. № 8. С. 489—492.

Институт полупроводников АН СССР
Киев

Поступило в Редакцию
3 января 1990 г.

© Физика твердого тела, том 32, № 7, 1990
Solid State Physics, vol. 32, N 7, 1990

УЛЬТРАЗВУКОВЫЕ АНОМАЛИИ В $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$: ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД ИЛИ ДЕФЕКТЫ?

В. В. Леманов, А. Б. Шерман, Г. О. Андрианов, И. Эргашев

Вопрос о возможном влиянии на сверхпроводимость структурного фазового перехода, предшествующего сверхпроводящему переходу, обсуждается уже давно, в частности, в связи с соединениями типа А-15 (см., например, [1]). Вскоре после открытия высокотемпературных сверхпроводников со структурой типа перовскита возник вопрос о возможности в них сегнетоэлектрического фазового перехода как «предвестника-инициатора» сверхпроводящего фазового перехода. Связано ли такое инициирование с мягкими модами или с сегнетоэлектрической доменной структурой, или с какими-то еще неизвестными механизмами, пока не ясно, но очевидно, что основной задачей здесь является прежде всего экспериментальное подтверждение (или опровержение) существования сегнетоэлектрического фазового перехода. Перечислим основные имеющиеся в литературе экспериментальные данные по этому вопросу для керамики $\text{R}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$, на основании которых авторы делают выводы о возможности сегнетоэлектрического фазового перехода.

На частотах около 1 ГГц при комнатной температуре наблюдается резонансное поглощение СВЧ мощности [2]. В спектрах комбинационного рассеяния света [3] ниже определенной температуры возникает линия 644 см^{-1} , запрещенная симметрией D_{2h} , на основании чего делается вывод о фазовом переходе $D_{2h} \rightarrow C_{2v}$. В работе [4] линия 643 см^{-1} возникала при температурах ниже 200°C . При этих же температурах наблюдались аномалии коэффициентов теплового расширения. Авторы [4] делают вывод о размытом сегнетоэлектрическом фазовом переходе в интервале температур от 100 до 200°C . Используя температурные зависимости постоянных решетки, авторы [4] построили температурную зависимость спонтанной поляризации, которая возникает при температуре около 160°C , а при комнатной температуре достигает величины 10 мкКл/см^2 (для размытого фазового перехода можно говорить лишь о среднеквадратичной поляризации). Все перечисленные данные нельзя, однако, рассматривать как окончательное доказательство наличия сегнетоэлектрического фазового перехода. Прямым доказательством могли бы быть диэлектрические аномалии. Низкочастотные измерения диэлектрической проницаемости [4–6] показали,

что проникаемость достигает больших величин (10^3 — 10^4) и имеет максимум при температурах вблизи и выше комнатной, что, казалось бы, подтверждает наличие сегнетоэлектрического перехода. Однако высокая проводимость образцов, влияние электродов, межзеренных контактов и прослоек могут сильно исказить полученные результаты. В частности, как показывают наши эксперименты, трудно получить воспроизводимые данные по температурной зависимости диэлектрической проницаемости.

В настоящей работе использовались ультразвуковые измерения, которые обладают рядом преимуществ по сравнению с другими методами. Проводились измерения температурной зависимости затухания продольных ультразвуковых волн с частотами 10, 30, 50 и 90 МГц в интервале температур от комнатной до 200 °С. Образцы керамики $YBa_2Cu_3O_x$ изготавливались по обычной керамической технологии и отжигались в разных

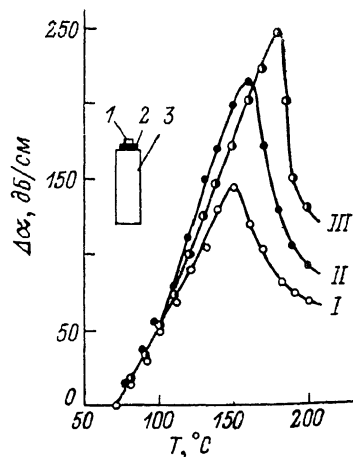


Рис. 1. Температурные зависимости затухания продольных ультразвуковых волн с частотами 30 (I), 50 (II) и 90 МГц (III).

«Привязка» всех данных осуществлена при 70 °С, $x \approx 6.6$. Схема эксперимента: 1 — пьезопреобразователь, 2 — образец, 3 — звукопровод из плавленного кварца.

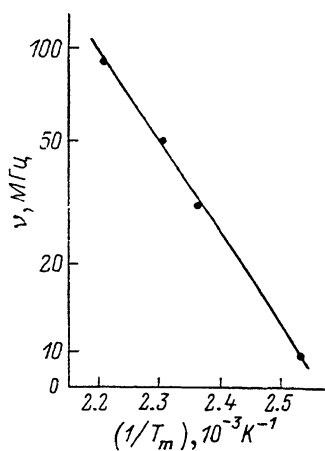


Рис. 2. Зависимость частоты ультразвука от обратной температуры, соответствующей максимуму поглощения.

условиях для контролируемого изменения величины x (от 6.2 до 6.8). Эта величина определялась исходя из описанных в литературе условий отжига. Ввиду большого затухания образцы изготавливались в виде тонких дисков толщиной 500 мкм и для измерений использовался буферный звукопровод из плавленного кварца длиной около 1 см (рис. 1). Измерялась амплитуда первого ультразвукового импульса (длительность импульсов около 1 мкс) и его зависимость от температуры. Из этих данных определялось изменение затухания ультразвуковых волн при изменении температуры. Измерения показали, что при повышении температуры затухание растет, достигает при некоторой температуре максимальной величины и затем падает (рис. 1). Обнаруженные пики поглощения наблюдались для разных значений x , причем их положение не очень сильно зависело от x . Температура, при которой наблюдаются пики поглощения, зависит от частоты и для образца с $x \approx 6.6$ составляет 120, 150, 160 и 180 °С для частот 10, 30, 50 и 90 МГц соответственно. Температурный гистерезис отсутствовал, и пики хорошо воспроизводились. Так, измерения одного и того же образца в течение трех месяцев давали одинаковые результаты.

С чем могут быть связаны наблюдаемые пики поглощения? Фазовый переход в антиферромагнитное состояние, который имеет место в этой же области температур при малых x , не может объяснить эти пики, поскольку они наблюдаются и при больших x . Сдвиг пиков по температуре

с изменением частоты говорит об их релаксационной природе, т. е. они должны описываться обычным выражением

$$\Delta\alpha = A\Omega^2\tau/(1 + \Omega^2\tau^2), \quad (1)$$

где $\Omega = 2\pi\nu$ — частота ультразвука, τ — время релаксации.

Формула (1) определяет и релаксационное затухание Ландау—Халатникова в области фазового перехода, а τ тогда имеет смысл времени релаксации параметра порядка. Однако, поскольку в этом случае $\tau \sim (T_c - T)^{-n}$, где обычно $n \simeq 1$, сдвиг пиков поглощения с увеличением частоты должен происходить в сторону низких температур в противоречии с экспериментом. Таким образом, пики не связаны с обычным фазовым переходом.

Другая возможность состоит в том, что формула (1) описывает поглощение, обусловленное релаксацией дефектов (упругих диполей). В этом случае τ есть время релаксации дефектов

$$\tau = \tau_0 \exp(W/kT), \quad (2)$$

где W — энергия активации для движения дефектов. Максимум затухания при $\Omega\tau = 1$ соответствует температуре T_m

$$\Omega = \Omega_0 \exp(-W/kT_m). \quad (3)$$

На рис. 2 приведена экспериментальная зависимость частоты от обратной температуры T_m , соответствующей максимуму поглощения. Экспериментальные данные по положению пиков поглощения хорошо описываются зависимостью (3) при $W = 0.6$ эВ и $\Omega_0 = 2 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. Полученное значение энергии активации может соответствовать перескокам иона между соседними положениями в решетке; что касается частоты «попыток» Ω_0 , то ее значение получилось неправдоподобно большим и его, вообще говоря, невозможно сопоставить с какими-либо движениями решетки. Если столь высокая частота не отражает какой-то специфической особенности рассматриваемых материалов, то следует сделать вывод о неприменимости выражений (1)—(3) к экспериментальным данным. Для выяснения этого вопроса рассмотрим форму линии поглощения. Здесь все очень сильно зависит от выбора фонового (решеточного) затухания. Этот выбор не является однозначным, причем главным образом со стороны низких температур. В частности, можно получить пик поглощения с очень длинным низкотемпературным «хвостом», который не описывается формулой (1). В этом случае для объяснения формы линии поглощения необходимо предположить наличие набора времен релаксаций со специфической функцией распределения и тогда уже нельзя рассчитывать W и Ω_0 по формуле (1). Известно [7], что в классических сегнетоэлектриках—перовскитах с размытым фазовым переходом ультразвуковое поглощение в области перехода объясняется очень широким спектром времен релаксаций, причем пик поглощения с увеличением частоты смещается в сторону высоких температур, как и в нашем случае.

Окончательное выяснение природы обнаруженных пиков поглощения требует дальнейших исследований. Представляется, в частности, важным проведение абсолютных измерений ультразвукового поглощения, например, акустооптическим методом.

Авторы благодарят П. П. Сырникова за предоставление образцов.

Работа выполнялась в рамках проекта № 347 Государственной программы по высокотемпературной сверхпроводимости.

Список литературы

- [1] Леванюк А. П., Сурис Р. А. // УФН. 1967. Т. 91. № 1. С. 113—120.
- [2] Шербаков А. С. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 46. № 6, С. 111—113; 1989. Т. 49. № 2. С. 102—105.
- [3] Zhaug M.-S. e. a. // Sol. St. Comm. 1988. V66. P. 487—490.
- [4] Kurtz S. K. e. a. // Mater. Lett. 1988. V6. N 10. P. 317—320; USA—USSR Seminar on Ferroelectrics. Univ. Colorado, Boulder, 1989.

- [5] Testardi L. R. e. a. // Phys. Rev. 1988. V. 37B. N 4. P. 1324—2327
 [6] Ищук В. М. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1989. Т. 49. № 6. С. 341—344.
 [7] Юшин Н. К. и др. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 10. С. 2947—2952.

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе
 АН СССР
 Ленинград

Поступило в Редакцию
 10 января 1990 г.

УДК 539.2.537.226

© Физика твердого тела, том 32, № 7, 1990
 Solid State Physics, vol. 32, N 7, 1990

ПРИРОДА ОСОБЕННОСТЕЙ КООПЕРАТИВНОГО ПОВЕДЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ Na В KTaO₃

М. Д. Глинчук, И. М. Смолянинов

В последнее время вопрос о характере упорядочения в K_{1-x}Na_xTaO₃ в низкотемпературной фазе приобрел особую актуальность. Это связано с тем, что, как первоначально предполагалось [1], в K_{1-x}Na_xTaO₃ и K_{1-x}Li_xTaO₃ (KTL) происходят подобные фазовые переходы. Однако в измерениях по двупреломлению [2] проявилось отличие KTL от K_{1-x}Na_xTaO₃. Так, при T_g ≈ 28 К (x ≈ 0.21) появляются тетрагональные домены (аналогично KTL), а при дальнейшем понижении температуры T < T_g → 25 К двупреломление уменьшается и исчезает (в отличие от KTL). В [2] это связывалось с увеличением беспорядка и возникновением фазы дипольного стекла. Другая важная особенность низкотемпературной фазы проявилась при исследовании квадрупольной релаксации ²³Na методом ЯМР в K_{1-x}Na_xTaO₃ при 0.05 ≤ x ≤ 0.18 [3]. На основе этих исследований был сделан вывод, что в K_{1-x}Na_xTaO₃ низкотемпературная фаза находится в состоянии структурного стекла, аналогичного структурному стеклу в KBr_{1-x}(CN)_x [4].

Таким образом, поскольку нецентральные примеси обладают как упругими, так и электрическими дипольными моментами и квадрупольное взаимодействие может быть больше электродипольного, то возникает необходимость исследовать характер упорядочения электрических диполей в фазе квадрупольного стекла. Причем кооперативное поведение электрических диполей в сильно поляризуемой решетке будет отличаться от случая слабо поляризуемой решетки (например, KBr_{1-x}(CN)_x); в первом случае взаимодействие знакопостоянное [5], а во втором случае — знакопеременное, которое приводит к состоянию дипольного стекла [6].

В настоящей работе рассмотрено кооперативное сегнетоэлектрическое поведение нецентральных примесей, обладающих большими упругими и малыми электродипольными моментами при наличии больших случайных полей. Показано, что случайные упругие поля приводят к разбиению нецентральных примесей на три независимые группы диполей с направлением поляризации вдоль направлений типа [100], в каждой из которых происходит перколяционный фазовый переход.

Нецентральные примеси (НП) обладают как электрическими d_i = d_i · S_i (S_i — единичный вектор нецентрального смещения примеси; в дальнейшем будут рассматриваться направления типа [100]), так и упругими квадрупольными моментами Ω_{αβ} = Ω (S_i^αS_i^β - δ_{αβ}/3), где Ω ~ Ω_{||} - Ω_⊥ — компонента тензора вдоль оси вытянутости диполя, Ω_⊥ — компонента тензора перпендикулярно оси вытянутости диполя. Гамильтониан для НП в мягкой решетке при наличии случайных упругих полей имеет вид

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} V_{ij} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) - \sum_i \Omega(\mathbf{r}_i) \varepsilon(\mathbf{r}_i) (\vec{u}^i \cdot \mathbf{S}_i)^2. \quad (1)$$