

06,07

## Низкотемпературная активация фононов в сегнетоэлектриках

© Д.В. Кузенко

Научно-исследовательский институт „Реактивэлектрон“,  
Донецк, Россия

E-mail: danil.kuzenko.84@yandex.ru

Поступила в Редакцию 24 июня 2024 г.

В окончательной редакции 7 июля 2024 г.

Принята к публикации 8 июля 2024 г.

Представлено исследование температурной зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  квантовых сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  и твердого раствора на их основе  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  при температурах от 5 до 300 К, для описания которой применена экспоненциальная функция с вероятностным фактором Больцмана и самосогласованным предэкспоненциальным множителем. Показано, что такой подход в низкотемпературном квантовом пределе согласуется с формулой Барретта, а в высокотемпературном — с законом Кюри-Вейсса. Исходя из этого, определены энергии активации процессов, протекающие на трех выделенных температурных участках (5–30; 30–80; 80–300 К), где зависимость  $\varepsilon(T)$  имеет экспоненциальный вид. Предполагается, что для  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  такие активационные процессы обусловлены температурным возбуждением фононов при приближении к температуре Дебая. Для  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  отклонение зависимости  $\varepsilon(T)$  при  $T = 30-80$  К от экспоненциальной объясняется фонон-фононными взаимодействиями нормальных мод колебаний кристалла.

**Ключевые слова:** квантовый сегнетоэлектрик, энергия активации, титанат стронция, танталат калия, диэлектрическая проницаемость, фононы.

DOI: 10.61011/FTT.2024.09.58780.167

### 1. Введение

Кристаллы  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  являются неорганическими соединениями со структурой кислородно-октаэдрического перовскита с общей формулой  $\text{ABO}_3$ , в которых одно- (К) или двухвалентный (Sr) металл расположен в вершинах кубической элементарной ячейки, а пяти- (Та) или четырехвалентный металл (Ti) расположен в центре куба. Атомы кислорода О при этом располагаются в центрах граней.  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  относят к потенциальным (виртуальным) либо квантовым [1] сегнетоэлектрикам типа смещения, в которых сегнетоэлектрический фазовый переход подавлен квантовыми флуктуациями [2]. При низких температурах  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  проявляют схожесть в близости к сегнетоэлектрическому состоянию, а также в наличии взаимодействия между мягкой оптической модой и поперечной акустической ветвью, которое приводит к смягчению акустической ветви [2]. Однако,  $\text{KTaO}_3$  имеет кубическую симметрию вплоть до температуры 4 К, где он почти теряет стабильность по отношению к конденсации мягкой моды. В то же время, у  $\text{SrTiO}_3$  вблизи 105 К существует связанный с поворотом кислородных октаэдров структурный фазовый переход [2], являющийся сегнетоэластическим [3]. Отмечено наличие индуцированной легированием сегнетоэлектрической фазы [4]. В описании квантового параэлектричества часто используются теоретические расчеты из первых принципов, основанные на рассмотрении электронной подсистемы теорией функционала плотности (DFT) и

решении одночастичного уравнения Шредингера с потенциалом, рассчитанным с помощью DFT [5].

Интерес к квантовым сегнетоэлектрикам обусловлен также их практическим применением. Так  $\text{SrTiO}_3$  в виде объемных кристаллов и тонких пленок используется в качестве подложек для выращивания оксидных слоев высокотемпературных сверхпроводников ввиду близости их параметров решетки [6]. В гетероструктуре, состоящей из эпитаксиальных слоев  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ , на границах раздела  $\text{KO}^-/\text{TiO}_2^0$  и  $\text{TaO}^{+2}/\text{SrO}^0$  обнаружен признак двумерного дырочного (2DHG) и электронного газа (2DEG) соответственно [7]. Это открывает новые перспективы в оксидной электронике и спинтронике, поскольку физические явления, связанные с двумерным электронным газом, захваченным на границах раздела таких гетероструктур, включают в себя спиновую поляризацию, сверхпроводимость, квантовые осцилляции магнитосопротивления, спин-поляризованный транспорт электронов, постоянный фототок, эффект Рашбы, топологический эффект Холла и обратный эффект Эдельштейна [8].

В предлагаемой статье проведен активационный анализ температурной зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  при низких температурах (5–300 К) квантовых сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ , а также твердого раствора на их основе  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$ . Этот метод был использован ранее для определения спектра энергий активации доменной и дефектной структур классических сегнетоэлектриков  $\text{BaTiO}_3$  и  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  [9,10] на

основе установленного температурно-активационного механизма температурной зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  сегнетоэлектриков [11,12].

Стоит отметить, что литературной анализ общедоступной мировой научной литературы показал отсутствие сведений о проведении активационного анализа температурной зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  квантовых сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ , что свидетельствует о новизне приведенного в предлагаемой статье материала.

## 2. Методика эксперимента

В статье анализируются экспериментальные данные по измерению диэлектрической проницаемости кристаллов  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ , полученные авторами статьи [13], а также твердого раствора  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$ , полученные авторами статьи [14].

Исследуемый образец  $\text{KTaO}_3$  представлял собой кристалл, выращенный методом затравки, в виде пластины  $10 \times 10 \times 0.5 \text{ mm}$  с эпитолированной (100) поверхностью (МТИ Со.) [13]. Исследуемые образцы  $\text{SrTiO}_3$  — кристаллы, выращенные методом Вернейля в виде пластины размером  $10 \times 10 \times 0.5 \text{ mm}$  с зеркально-полированной поверхностью (100) (Furuuchi Chemical) [13]. На поверхности методом напыления наносились золотые электроды. Диэлектрическая проницаемость (действительная  $\varepsilon'$  и мнимая  $\varepsilon''$  части) измерена с использованием прецизионного измерителя LCR (HP 4284A) с приложенным напряжением 0.5 V с частотой 100 kHz. Температуру образцов контролировали в диапазоне температур 4–325 K с использованием гелиевого холодильника замкнутого цикла (Daikin Industries CG308SBR) [13].

Образцы  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  получены авторами статьи [14] по керамической технологии в виде тонких пластин с золото-платиновыми напыленными электродами. Измерения комплексной диэлектрической проницаемости выполнялись с помощью анализатора 4192 LF Hewlett Packard Impedance Analyzer при амплитудном значении измерительного переменного поля 100 V/cm с частотой 100 kHz. Температуру образцов контролировали в диапазоне температур 4.2–300 K с использованием проточного He-криостата [14].

По полученным из эксперимента температурным зависимостям диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  построена зависимость  $\ln(\varepsilon) - 1/kT$  и из участков этой зависимости которые удовлетворяют уравнению

$$\ln(\varepsilon(T)) = \pm \frac{U}{kT} + \ln(a) \quad (1)$$

определены параметры активационного процесса (энергия активации  $U$  и предэкспоненциальный множитель  $a$ ) [9].

## 3. Результаты и обсуждение

Согласно представлениям о нормальных колебаниях атомных подрешеток кристалла, которые являются дипольными, каждое такое нормальное колебание дает вклад в диэлектрическую проницаемость  $\varepsilon$  кристалла согласно выражению

$$\varepsilon = \frac{\partial P}{\partial E} = \frac{zN}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2}, \quad (2)$$

где  $P$  — поляризация, связанная с нормальным колебанием,  $E$  — амплитуда переменного электрического поля частотой  $\omega$ ,  $z$  — эффективный динамический заряд данной моды колебания (равный заряду иона для простейшей модели),  $N$  — количество ионов, участвующих в колебании,  $m$  — приведенная масса для данного нормального колебания,  $\omega_0$  — частота нормального колебания [15].

Следует отметить, что выражение (2) является основополагающим в теории Гинзбурга–Андерсона–Кокрена (ГАК) для сегнетоэлектрических переходов типа смещения, которые происходят в сегнетоэлектриках со структурой перовскита.

Исходя из этого, диэлектрическую проницаемость можно считать макроскопическим параметром, отражающим динамику решетки сегнетоэлектрика и обусловленным фоновым спектром кристалла. При низких температурах анализ температурных зависимостей диэлектрической проницаемости сегнетоэлектрика позволяет определить процессы активации фононов при минимальном влиянии тепловых возбуждений. Для этого в данной работе исследуются зависимости  $\varepsilon(T)$  квантовых сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$  и твердого раствора на их основе  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  в диапазоне температур 5–300 K, полученные авторами работ [13] и [14] соответственно (рис. 1).

Для определения параметров термоактивационных процессов проявления дипольной активности элементов структуры сегнетоэлектрика, экспериментальная зависимость  $\varepsilon(T)$  (рис. 1) построена в координатах  $\ln(\varepsilon) - 1/kT$  (рис. 2). Участки, на которых эта зависимость близка к линейной зависимости, описываются уравнением (1), которое преобразуется в уравнение экспоненциального вида

$$\varepsilon(T) = a \exp\left(\pm \frac{U}{kT}\right). \quad (3)$$

Уравнение (3), содержащее вероятностный фактор Больцмана, справедливо для термоактивационных процессов и позволяет определить энергию активации  $U$  данного процесса. Знак „ $\pm$ “ учитывает снижение или рост диэлектрической проницаемости при нагревании сегнетоэлектрика.

Возможность описания температурной зависимости диэлектрической проницаемости уравнением вида (3) с одним временем активации рассмотрена в работе [11],

**Таблица 1.** Значения коэффициента  $a$  и энергии активации  $U$  уравнения (1) на 3-х участках зависимости  $\ln(\epsilon)(1/kT)$  (рис. 2) исследованных образцов

Образец	1-й участок		2-й участок		3-й участок	
	$a$	$U, \text{eV}$	$a$	$U, \text{eV}$	$a$	$U, \text{eV}$
$\text{KTaO}_3$	3615.19	0.0001	632.13	0.0031	167.24	0.0131
$\text{SrTiO}_3$	14249.83	0.0003	1249.13	0.0050	117.89	0.0231
$(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$	1838.12	0.0004	—	—	902.44	0.0045

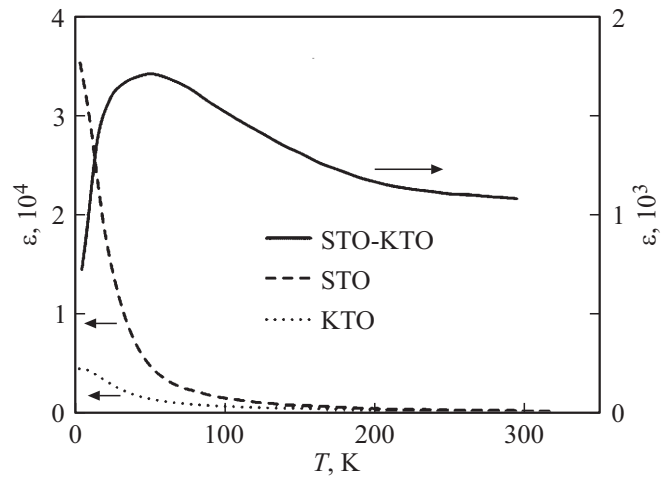
на основании чего в работе [12] для сегнетоэлектрика на основе твердого раствора  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  получено уравнение для зависимости  $\epsilon(T)$  в сегнетоэлектрической фазе с тремя энергиями активации.

$$\epsilon(T) = \sum_{i=1}^{i=3} a_i \exp(a_2 U_i) (a_3 T - a_4)^{-1} \exp\left(-\frac{U_i}{kT}\right). \quad (4)$$

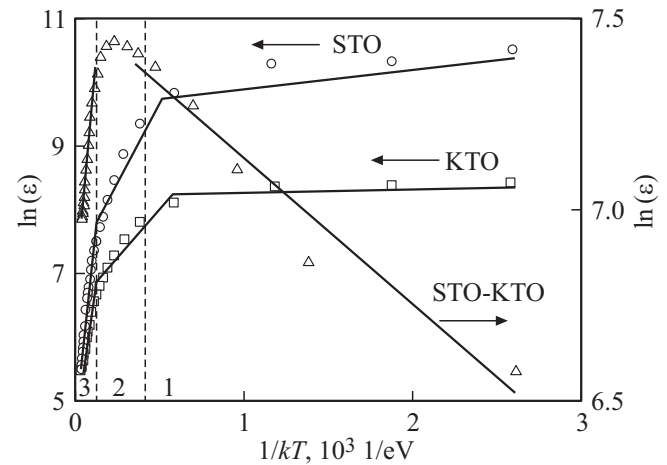
Применение этого подхода позволило для сегнетоэлектриков  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  и  $\text{BaTiO}_3$  определить процессы активации взаимодействия их доменных и дефектных структур при температурах ниже температуры Кюри и их энергии активации. А именно, малые колебания доменных стенок при энергиях активации ниже 0.1 eV; срыв доменных стенок с мест закрепления на дефектах структуры (преимущественно кислородных вакансиях) при энергиях активации от 0.1 до 1 eV; распад доменной структуры, инициированный миграцией кислородных вакансий при энергиях активации выше 1 eV [10].

Результаты обработки экспериментальных данных рис. 1, изображенные на рис. 2, показывают, что для образцов  $\text{KTaO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$  и  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  на зависимости  $\ln(\epsilon) - 1/kT$  можно условно выделить три интервала температур (1-й — 5–30; 2-й — 30–80; 3-й — 80–300 К), на которых зависимости можно аппроксимировать линейным уравнением (3). Исходя из этого, определены значения коэффициента  $a$  и энергии активации  $U$  (табл. 1). Следует обратить внимание на то, что для образцов  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  на трех выделенных участках температур переход от первого к третьему сопровождается ростом величины энергии активации. А для образца  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  на втором участке наблюдается максимум зависимости и изменение знака энергии активации, что в дальнейшем будет связано нами с процессом активации фонон-фононного взаимодействия.

Необходимо отметить, что, согласно ранним исследованиям теплоемкости сегнетоэлектриков с применением функции Дебая, для  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  были определены температуры Дебая (311 и 413 К соответственно) [16], температуры, при которых происходит температурное возбуждение всех частот нормальных колебаний кристаллической решетки. А это означает, что для  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  монотонное увеличение энергии активации на участках 1–3 рис. 2 с ростом температуры до 300 К может быть обусловлено постепенным вовлечением в

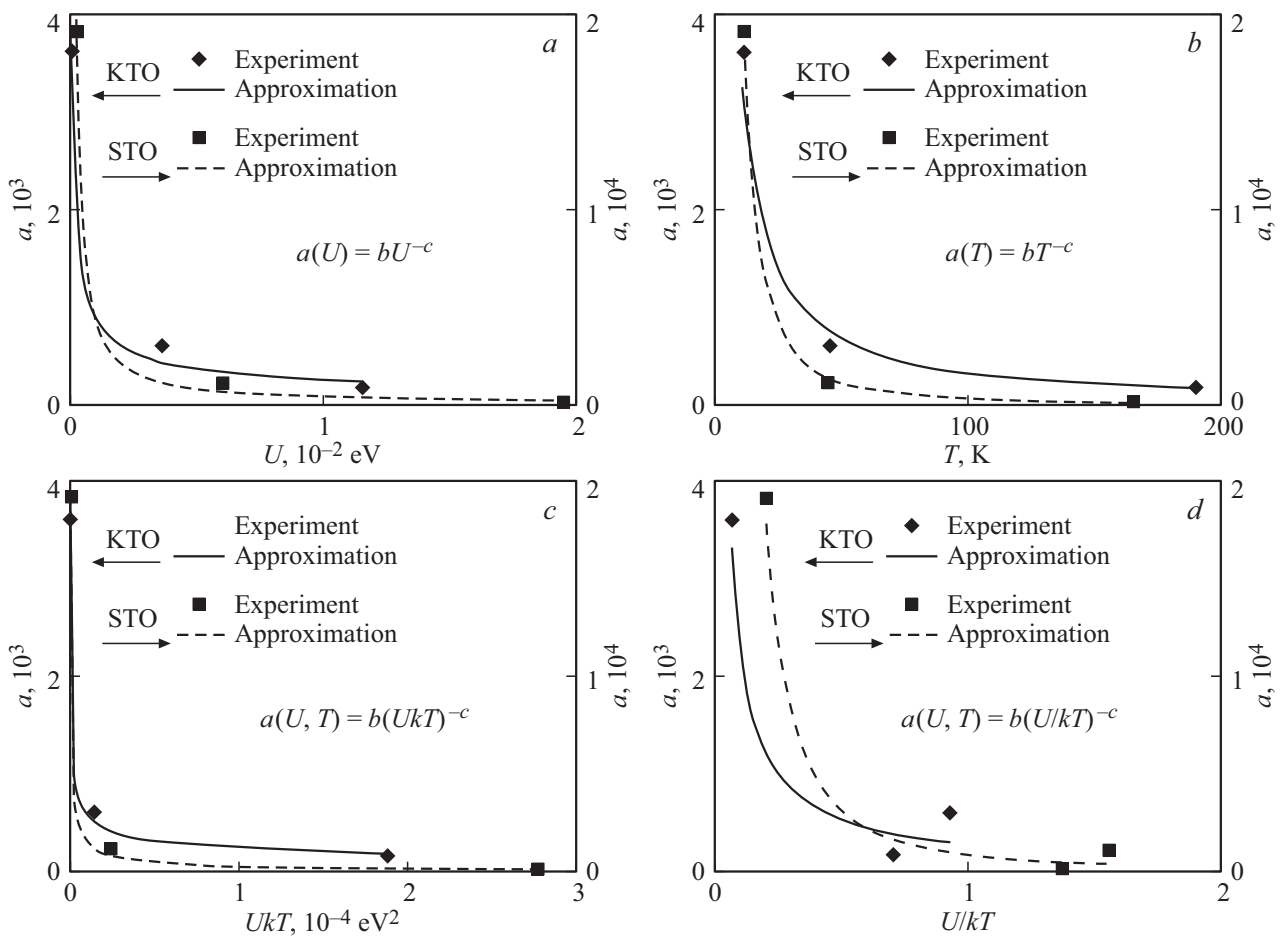


**Рис. 1.** Температурные зависимости  $\epsilon(T)$  для сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$  (KTO),  $\text{SrTiO}_3$  (STO) и  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  (STO-KTO) по данным [13] и [14].



**Рис. 2.** Экспериментальные (маркеры) и аппроксимированные (линии) зависимости  $\ln(\epsilon) - 1/kT$  для  $\text{KTaO}_3$  (KTO),  $\text{SrTiO}_3$  (STO) и  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  (STO-KTO) на температурных интервалах  $\Delta T$ : 1 — 5–30; 2 — 30–80; 3 — 80–300 К.

колебательный процесс отдельных нормальных мод кристаллической решетки перовскита без существенного фонон-фононного взаимодействия между ними. В твердом растворе  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  на втором температурном участке зависимости  $\ln(\epsilon)(1/kT)$  рис. 2,



**Рис. 3.** Экспериментальные (маркеры) и аппроксимированные (линии) зависимости  $a(U)$  (a),  $a(T)$  (b) и  $a(U, T)$  (c, d) для образцов  $\text{KTaO}_3$  (KTO) и  $\text{SrTiO}_3$  (STO).

по-видимому, происходит активация фонон-фононного взаимодействия нормальных мод колебаний, присущих  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ . А это приводит к наличию широкого максимума (около 100 K) на этом участке при  $T \approx 43$  K (рис. 2). Наличие этого максимума может свидетельствовать о фазовом переходе, поскольку величина диэлектрической проницаемости в низкотемпературной области заметно ниже чем в высокотемпературной [14].

Активационный анализ температурной зависимости диэлектрической проницаемости сегнетоэлектриков  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  и  $\text{BaTiO}_3$  позволил нам ранее в работе [9] определить для трех активационных процессов, протекающих при нагреве до температуры Кюри, зависимость коэффициента  $a$  уравнения (3) от энергии активации  $U$  для каждого из исследуемых образцов. Эта зависимость имела экспоненциальный вид

$$a_i(U_i) = a_0 \exp(U_i/U_0), \quad (5)$$

где  $a_0$  и  $U_0$  — коэффициенты. Такая общая зависимость позволила рассматривать процесс приближения к сегнетоэлектрическому фазовому переходу как последовательный переход между процессами активации дипольных элементов структуры, самосогласованный зависи-

мостью (5). Следует отметить, что самосогласованность предэкспоненциального коэффициента  $a$  рассматривается нами как повторяемость зависимости (5) на всем исследованном спектре энергий активации дипольных элементов структуры.

При этом, в отличие от указанных результатов работы [9], для квантовых сегнетоэлектриков  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$ , исследуемых нами сейчас, анализ результатов, приведенных на рис. 2 и в табл. 1 показал, что предэкспоненциальный коэффициент  $a$  может иметь зависимость как от энергии активации  $U$  и температуры  $T$ , так и их комбинации (рис. 3), т.е. быть самосогласованным на всем измеренном интервале температур

$$a(U) = bU^{-c}, \quad (6)$$

$$a(T) = bT^{-c}, \quad (7)$$

$$a(U, T) = b(UkT)^{-c}, \quad (8)$$

$$a(U, T) = b(U/kT)^{-c}, \quad (9)$$

где  $b$  и  $c$  — коэффициенты. При этом отсутствует экспоненциальная зависимость вида (5), характерная для

**Таблица 2.** Значения величины достоверности аппроксимации  $R^2$  исследованных зависимостей  $f(x)$  для исследуемых образцов

$f(x)$		$R^2$		
		KTaO <sub>3</sub>	SrTiO <sub>3</sub>	(SrTiO <sub>3</sub> ) <sub>0.85</sub> –(KTaO <sub>3</sub> ) <sub>0.15</sub>
$\ln(\epsilon)(1/kT)$	1	0.8713	0.8529	0.9542
	2	0.9254	0.9243	–
	3	0.9621	0.9199	0.9845
$a(U)$		0.9957	0.9993	–
$a(T)$		0.9957	0.9995	–
$a(UkT)$		0.9988	0.9997	–
$a(U/kT)$		0.9801	0.9972	–

классических сегнетоэлектриков, что является новым результатом по отношению к исследованию [9].

Для всех полученные в работе аппроксимаций экспериментальных и расчетных параметров и коэффициентов вычислены величины достоверности аппроксимации  $R^2$  (табл. 2).

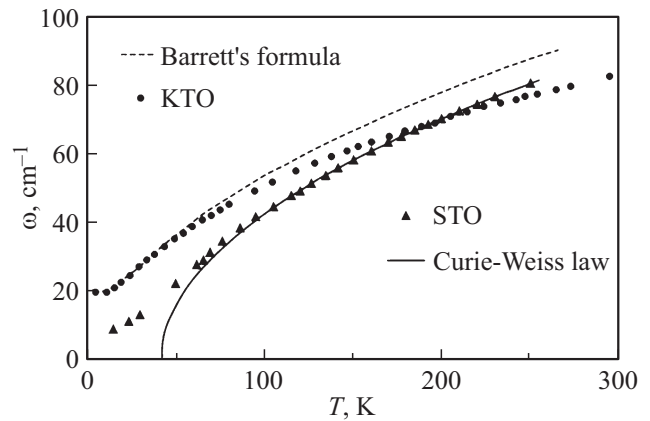
Экспоненциальную зависимость (3) для  $\epsilon(T)$  можно рассматривать как альтернативу моделям диэлектрического отклика квантовых сегнетоэлектриков при низких температурах, которые имеют определенные области применимости. При изучении квантовых сегнетоэлектриков сегодня существует несколько подходов: теория Барретта [17] в рамках одноионной модели Слетера; теория Речестера [18] и теория Вендика [19] в рамках теории мягкой сегнетоэлектрической моды. Авторами этих моделей были предложены уравнения для температурных зависимостей диэлектрической проницаемости и частоты мягкой сегнетоэлектрической моды.

Наиболее известной, и в то же время имеющая некоторую критику, является формула Барретта [17]:

$$\epsilon(T) = M \left( \frac{1}{2} T_1 \coth\left(\frac{T_1}{2T}\right) - T_0 \right)^{-1}, \quad (10)$$

где  $M$  и  $T_0$  — параметры, зависящие от значений электронной поляризуемости различных атомов решетки и от геометрии решетки сегнетоэлектрика;  $T_1$  — характерная температура, отделяющая низкотемпературную область, где важны квантовые эффекты и не выполняется закон Кюри-Вейсса, от высокотемпературной области, где зависимость  $\epsilon(T)$  подчиняется закону Кюри-Вейсса.

Для квантовых сегнетоэлектриков формула Барретта нашла широкое обсуждение и дополнения [20]. Исходя из формулы (10) получают и выражение для температурной зависимости частоты мягкой моды  $\epsilon(T)$ . Так на рис. 4 видно, что экспериментальные зависимости  $\epsilon(T)$  для KTaO<sub>3</sub> и SrTiO<sub>3</sub> при температуре около 80 К имеют расхождения с теоретическими кривыми, полученными по формуле Барретта (9) и классическому закону Кюри-Вейсса соответственно.



**Рис. 4.** Температурные зависимости полярных мягких мод образцов KTaO<sub>3</sub> (KTO) [21] и SrTiO<sub>3</sub> (STO) [6], аппроксимированные формулой Барретта (9) и законом Кюри-Вейсса.

В определенных температурных интервалах для некоторых квантовых сегнетоэлектриков (например, для SrTiO<sub>3</sub> при  $T$  от 10 до 75 К [22] или для KTaO<sub>3</sub> ниже 50 К [23]) зависимость обратной диэлектрической проницаемости от температуры является неклассической и имеет вид

$$\epsilon^{-1}(T) = A_0 + \alpha T^2, \quad (11)$$

что объясняется квантовой теорией критичности, дополненной эффектами дальнедействующих дипольных взаимодействий и связью поля электрической поляризации с акустическими фононами [23].

При этом, как показывают модельные расчеты и эксперимент, кроссовер от низкотемпературного поведения  $T^2$  к высокотемпературному классическому поведению для KTaO<sub>3</sub> и SrTiO<sub>3</sub> возникает при температурах 50–100 К [23], что приблизительно соответствует второму температурному интервалу, выделенному нами на рис. 2. Температурная зависимость восприимчивости вблизи как классических, так и квантовых критических точек может быть определена с использованием самосогласованной теории среднего поля, в которой поправки на флуктуации, обусловленные ангармоничностью, определяются флуктуационно-диссипационной теоремой [24].

Стоит отметить, что в работе [18] при исследовании квантовых эффектов при фазовых переходах второго рода при низких температурах, рассчитана температурная зависимость энергетической щели  $\delta\Delta(T)$  в спектре критического оптического фонона в приближении теории возмущений и получено три температурных интервала. При низких температурах зависимость  $\delta\Delta^2(T)$  имеет экспоненциальный вид ( $\sim \exp(-\Delta_0/T)$ ); при средних температурах — квадратичную зависимость ( $\sim T^2$ ); при высоких — описывается классическим законом Кюри-Вейсса.

Как отмечено в обзоре [25], экспериментально показано, что для SrTiO<sub>3</sub> и KTaO<sub>3</sub> температурные зависимости диэлектрической проницаемости  $\epsilon(T)$  и частоты мягкой моды  $\epsilon(T)$  имеют температуру  $T_1$ , выше которой

$\varepsilon(T)$  удовлетворяет закону Кюри-Вейсса, а  $\omega^2$  линейно растет с температурой по закону  $A(T - T_0)$ . Для  $\text{SrTiO}_3$   $T_1 = 100$  К,  $T_0 = 40$  К. Для  $\text{KTaO}_3$   $T_1 = 30$  К,  $T_0 = 4$  К.

Предлагаемое в нашей работе уравнение (3) для температурной зависимости диэлектрической проницаемости основывается на классических представлениях статистической физики и, как показано в [26], при температурах выше температуры Кюри его можно привести к закону Кюри-Вейсса с постоянной Кюри-Вейсса  $C$ :

$$C = \frac{U - kT_0 \ln(a)}{k}, \quad (12)$$

где  $U$  — энергия активации,  $T_0$  — температура Кюри-Вейсса (близка к температуре Кюри  $T_C$ ),  $a$  — предэкспоненциальный множитель уравнения (3),  $k$  — постоянная Больцмана.

При рассмотрении квантового низкотемпературного предела (когда  $T \ll T_1$ ) и учитывая, что гиперболический котангенс имеет вид

$$\coth(x) = \frac{\exp(2x) + 1}{\exp(2x) - 1}, \quad (13)$$

формулу Барретта (10) можно представить в виде зависимости

$$\varepsilon(T) = A(M, T_0, T_1, T) \exp\left(\frac{T_1}{T}\right), \quad (14)$$

где  $M, T_0, T_1$  — параметры сегнетоэлектрика. Тогда формула Барретта может быть сведена к экспоненциальному уравнению (3).

Таким образом, нами с полной определенностью показано, что, как и в случае классических сегнетоэлектриков, для квантовых сегнетоэлектриков диэлектрический отклик при низких температурах может быть описан экспоненциальной функцией, содержащей вероятностный фактор Больцмана  $\exp(U/kT)$ . Это является следствием того, что диэлектрический отклик сегнетоэлектрика во многом определяется фоновым спектром кристалла, состоящим из нормальных мод колебаний кристаллической решетки. Отклонение от такой экспоненциальной зависимости, по-видимому, обусловлено фонон-фононным взаимодействием, вызванным структурными изменениями при определенных температурах, как например для  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  в интервале температур 30–80 К (рис. 2), где по мнению авторов работа [14] происходит фазовый переход.

## 4. Заключение

На основе анализа температурных зависимостей диэлектрической проницаемости  $\varepsilon(T)$  квантовых сегнетоэлектриков типа смещения  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  в интервале температур 5–300 К установлено, что эту зависимость можно условно разделить на три интервала температур (1-й — 5–30; 2-й — 30–80; 3-й — 80–300 К), с различной для каждого интервала энергией активации.

При этом, переход между активационными процессами является самосогласованным, о чем свидетельствует монотонный рост энергии активации с ростом температуры и самосогласованная зависимость предэкспоненциального множителя (от температуры и энергии активации). А поведение диэлектрической проницаемости при приближении к температуре Дебая объясняет последовательную активацию фононов, связанных с нормальными модами колебаний кристаллической решетки. Возбуждение более высокотемпературных мод приводит к снижению активности дипольной моды или ее компенсации другими модами нормальных колебаний. Об этом свидетельствует уменьшение диэлектрической проницаемости с ростом температуры образцов  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{SrTiO}_3$  от 5 до 300 К. В то же время, максимум диэлектрической проницаемости для твердого раствора  $(\text{SrTiO}_3)_{0.85}-(\text{KTaO}_3)_{0.15}$  во втором интервале температур (30–80 К) может являться проявлением фонон-фононного взаимодействия дипольно-активных нормальных мод колебаний кристаллической решетки.

Полученное уравнение для температурной зависимости диэлектрической проницаемости и содержащее вероятностный фактор Больцмана позволило впервые определить численные значения энергии активации процессов, связанных с температурным возбуждением фононов. В квантовом низкотемпературном пределе это уравнение согласуется с известной формулой Барретта, а в высокотемпературном пределе — с классическим законом Кюри-Вейсса для диэлектрической проницаемости.

Таким образом, показана возможность теоретического описания зависимости от температуры параметров диэлектрического отклика как классических, так и квантовых (низкотемпературных) сегнетоэлектриков, помещенных во внешнее электрическое поле, причем это описание справедливо в рамках модели термоактивационных процессов с широким спектром значений энергий активации фононов как в отсутствие, так и при наличии значимых фонон-фононных взаимодействий.

## Финансирование работы

Работа является частью выполнения Государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации „Активационные механизмы фазовых переходов в сегнетоэлектрических материалах“ (FREU-2023-0001).

## Конфликт интересов

Автор заявляет об отсутствии конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] D. Rytz, U.T. Höchli, H. Bilz. Phys. Rev. B **22**, 1, 359 (1980).
- [2] М. Лайнс, А. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные материалы. Мир, М. (1981). С. 273.

- [3] В.В. Леманов, С.А. Гриднев, Е.В. Ухин. ФТТ **44**, 6, 1106 (2002).
- [4] П.А. Марковин, В.А. Трепаков, М.Е. Гужва, А. Dejneka, А.Г. Раздобарин, О.Е. Квятковский. ФТТ **60**, 9, 1748 (2018).
- [5] T. Esswein, N.A. Spaldin. Phys. Rev. Res. **4**, 033020 (2022).
- [6] A. Yamanaka, M. Kataoka, Y. Inaba, K. Inoue, B. Hehlen, E. Courtens. EPL **50**, 5, 688 (2000).
- [7] S. Bhattacharya, S. Jena<sup>1</sup>, S. Datta. J. Phys.: Conf. Ser. **2518**, 012019 (2023).
- [8] A. Gupta, H. Silotia, A. Kumari, M. Dumen, S. Goyal, R. Tomar, N. Wadehra, P. Ayyub, S. Chakraverty. Adv. Mater. **34**, 9, 2106481 (2022).
- [9] Д.В. Кузенко. Изв. РАН. Сер. физ. **5**, (2024). В печати.
- [10] Д.В. Кузенко. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования **5**, (2024). В печати.
- [11] D.V. Kuzenko. J. Adv. Dielectrics **12**, 3, 2250010 (2022).
- [12] Д.В. Кузенко. Вестн. ДонНУ. Сер. А **4**, 15 (2022).
- [13] H. Fujishita, S. Kitazawa, M. Saito, R. Ishisaka, H. Okamoto, T. Yamaguchi. J. Phys. Soc. Jpn **5**, 7, 074703 (2016).
- [14] В.А. Трепаков, В.С. Вихнин, П.П. Сырников, Ф. Смугный, М. Савинов, Л. Ястрабик. ФТТ **39**, 11, 2040 (1997).
- [15] Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, Н.Н. Крайник, Р.Е. Пасынков, М.С. Шур. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Наука, Л. (1971). С. 121.
- [16] W.N. Lawless. Phys. Rev. B **17**, 3, 1458 (1978).
- [17] J.H. Barrett. Phys. Rev. **86**, 118 (1952).
- [18] А.Б. Речестер. ЖЭТФ **60**, 782 (1971).
- [19] О.Г. Вендик. ФТТ **14**, 4, 989 (1972).
- [20] K.A. Muller, H. Burkard. Phys. Rev. B **19**, 7, 3593 (1979).
- [21] H. Vogt. Phys. Rev. B **51**, 13, 8046 (1995).
- [22] B. Pietrass, E. Hegenbarth. J. Low Temp. Phys. **7**, 3–4, 201 (1972).
- [23] S.E. Rowley, L.J. Spalek, R.P. Smith, M.P.M. Dean, M. Itoh, J.F. Scott, G.G. Lonzarich, S.S. Saxena. Nature Phys. **10**, 367 (2014).
- [24] P. Chandra, G.G. Lonzarich, S.E. Rowley, J.F. Scott. Rep. Prog. Phys. **80**, 11, 112502 (2017).
- [25] О.Е. Квятковский. ФТТ **43**, 8, 1345 (2001).
- [26] Д.В. Кузенко. ФТТ **66**, 5, 723 (2024).

Редактор Т.Н. Василевская