Письма в ЖЭТФ, том 36, вып.2, стр. 26 – 29 *20 июля 1982 г.*

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ШИРИНЫ ЦЕНТРАЛЬНОГО ПИКА ВБЛИЗИ СТРУКТУРНЫХ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ МЕТОДОМ ЭПР

Б.Е.Вугмейстер

Предложен строгий количественный метод определения ширины индуцированного дефектами центрального пика спектра флуктуаций параметра порядка. Метод основан на развитой в работе теории дефектного уширения линий ЭПР вблизи структурных фазовых переходов.

В последние годы различными методами, включая рассеяние нейтронов, рамановскую и мандельштам-бриллюэновскую спектроскопию, было установлено, что в спектре флуктуаций параметра порядка вблизи температуры структурного фазового перехода T_c содержится необычный аномально узкий пик на нулевой частоте, ширина которого находится вне пределов разрешения эксперимента (см., например,[1]). Чрезвычайно большой интерес к проблеме центрального пика связан с явным нарушением общепринятой концепции мягкой моды, стремящейся к нулю при $T \to T_c$. При наличии центрального пика частота мягкой моды остается конечной в точке фазового перехода, а критически уменьшается лишь ширина центрального пика. Поэ-

тому изучение центрального пика крайне важно для правильного понимания природы фазовых переходов. В результате многочисленных исследований выяснилось [2], что за столь малую ширину центрального пика могут быть ответственны только дефекты, способные переориентироваться. При этом критическое сужение центрального пика связано со взаимодействием дефектов, которое вблизи T_c приводит к замедлению их переориентаций.

В [3] была высказана идея о возможности определения ширины центрального пика методом ЭПР, основанная на том, что низкочастотные флуктуации параметра порядка должны вблизи T_c приводить к критическому уширению линий ЭПР. Однако, в связи с отсутствием строгой количественной теории, интерпретация экспериментальных результатов оказалась неоднозначной (например, разброс приводимых значений ширины центрального пика в $SrTiO_3$ составил $70 \div 0{,}6$ Мгц).

В настоящей работе развивается строгая количественная теория определения ширины индуцированного дефектами центрального пика методом ЭПР.

В типичных ситуациях сдвиг частоты ЭПР $\Delta\omega$ линейно связан со значением параметра порядка η в месте расположения парамагнитного зонда $\Delta\omega = a\eta$. Индуцируемое дефектами распределение $\eta(r)$ можно представить в виде [2]

$$\eta(\mathbf{r}_i, t) = \sum_j K_{ij}(\mathbf{r}_{ij})\, h_j(t), \tag{1}$$

где мы для простоты и без ограничений общности рассматриваем случай однокомпонентного параметра порядка с корреляционной функцией $K(r)$. В отсутствие дальнодействующих сил $K(r) \sim r^{-1}e^{-r/r_c}$, r_c – радиус корреляции чистого кристалла, h_i – зависит от ориентации дефекта (который может быть, в частности, электрическим или упругим диполем) и характеризует интенсивность его взаимодействия с параметром порядка. Зависимость h_i от времени учитывает возможные тепловые переориентации дефектов.

Проведем расчет формы линии ЭПР в двух наиболее актуальных предельных случаях – в статическом и в пределе динамического сужения. В статическом пределе форма линии повторяет функцию распределения локальных значений параметра порядка, которая вблизи T_c при $nr_c^3 \gtrsim 1$ (n – концентрация дефектов) в силу центральной предельной теоремы должна быть близка к гауссиану[4]. Поэтому ширина линии описывается вторым моментом M_2:

$$M_2 = a^2 < \eta^2 > = a^2 \int d\mathbf{q} K_{\mathbf{q}} K_{-\mathbf{q}} S_{\mathbf{q}}, \tag{2}$$

где $K_{\mathbf{q}}$ – фурье-компоненты функции $K(r)$, $S_{\mathbf{q}}$ – статический структурный фактор, описывающий корреляции между ориентациями дефектов ($S_{\mathbf{q}} = n < h_i^2 > + n^2 < h_i h_j >_{\mathbf{q}}$) и связанный с динамическим структурным фактором $S_{q\omega}$ соотношением $S_{\mathbf{q}} = \int d\omega S_{\mathbf{q},\omega}/2\pi$.

Отметим, что учет корреляций между ориентациями различных дефектов в задаче об уширении линий ЭПР в настоящей работе проводится впервые. Обычно ограничиваются учетом лишь первого слагаемого в S_q [5], что не справедливо вблизи T_c.

В противоположном статическому предельном случае быстрых переориентаций дефектов имеет место динамическое сужение статического контура, приводящее к лоренцевой форме линии с шириной

$$\lambda = \int_0^\infty dt < \Delta\omega(t)\, \Delta\omega > = a^2 \int d\mathbf{q} K_{\mathbf{q}} K_{-\mathbf{q}} S_{\mathbf{q},\omega=0}. \tag{3}$$

Расчет $S_{q\omega}$ удобно провести с использованием флуктуационно-диссипационной теоремы $S_{q\omega} = (2k_BT/\omega)\chi''_{q\omega}$. Поскольку энергия взаимодействия дефектов V, согласно (1), равна $V = \sum_{ij} K_{ij} h_i h_j$, восприимчивость $\chi_{q\omega}$ в приближении среднего поля может быть определена по аналогии с динамической моделью Изинга [6], что при $T > T_c$ дает

$$\chi_{q\omega} = n < h^2 > / [(1 - i\omega\tau - n < h^2 > K_q / k_BT) k_BT] \tag{4}$$

τ – время переориентации изолированных дефектов. Проводя необходимые вычисления получаем окончательно

$$M_2 = 2A\,(T-T_0)^{-1/2}\left(1+\sqrt{(T-T_c)(T+T_c-T_0)/T(T-T_0)}\right)^{-1}, \qquad (5)$$

$$\lambda = A\tau\,[(T-T_c)(T+T_c-T_0)/T]^{-1/2}, \qquad (6)$$

где $A \backsim n\langle h^2\rangle a^2$, а опущенные коэффициенты зависят от конкретного вида фазового перехода. Приведенная же температурная зависимость M_2 и λ справедлива для любых структурных переходов. T_c есть температура фазового перехода в кристалле с переориентирующимися дефектами [2,7], превосходящая температуру перехода чистого кристалла T_0.

Из (4) для ширины центрального пика Г с учетом связи между T_c и T_0 из (7) получаем

$$\Gamma = \tau^{-1}\,(T-T_c)(T+T_c-T_0)/T(T-T_0). \qquad (7)$$

Учитывая (5) – (7), легко связать Г с измеряемыми параметрами M_2 и λ и, таким образом, определить ширину центрального пика по данным ЭПР.

Согласно (5),(6), режим динамического сужения реализуется не слишком близко к T_c, так как должно выполняться условие $\lambda \ll \sqrt{M_2}$. Это ограничивает экспериментальную возможность определения Г в непосредственной окрестности фазового перехода. Однако, критерий $\lambda \ll \sqrt{M_2}$ выполняется тем ближе к T_c, чем меньше константа A, т.е. чем меньше ширины резонансных линий. При типичных для ЭПР ширинах линий ~ 1 Э можно зафиксировать величины Г ~ Мгц, что значительно превосходит разрешение традиционных методов. Еще более перспективным является использование радиочастотных резонансов, таких как ЯМР и ЯКР, линии которых на несколько порядков уже, и потому динамический режим уширения будет сохраняться значительно ближе к T_c.

Используя экспериментальные данные работы [8], в которой наблюдалось критическое возрастание ширины линии ЭПР центров $Fe^{3+} - V_0$ в $SrTiO_3$ [1)] ($T_c \approx T_0 \approx$ $\approx$ 105 К), мы провели оценку ширины центрального пика (обнаруженного в нейтронных экспериментах[9]). Она дает Г $\approx$ 10 Мгц при $T \approx$ 140 К. Так как в образцах $SrTiO_3$ использованных в[8] $T_c - T_0 < 0{,}5$ К, то согласно (7), критическое уменьшение Г практически не должно наблюдаться при $T - T_c > 1$ К. Поэтому приведенное в[8] значение Г $\lesssim$ 0,6 Мгц при $T \approx 115$ К существенно занижено.

Таким образом, метод ЭПР позволяет определить важный параметр спектра флуктуаций параметра порядка – ширину центрального пика, которая в настоящее время не может быть столь точно определена другими методами. Представляет несомненный интерес проведение подобных экспериментов при контролируемой концентрации примесей, которые смогут количественно ответить на вопрос о роли дефектов в формировании центрального пика.

Автор благодарен В.А.Ацаркину, Э.И.Рашба и М.Д.Глинчук за полезные обсуждения результатов работы.

Литература

1. *Гинзбург В.Л., Леванюк А.П., Собянин А.А.* УФН, 1980, **130**, 615.
2. *Halperin B.I., Varma C.M.* Phys. Rev., 1976, **B14**, 4030.
3. *Th.* von *Waldkirch, Muller K.A., Berlinger W., Heller P.*, Phys. Rev., 1973, **B7**, 1052.
4. *Folk R., Schwabl F.* Solid State Comm., 1974, **15**, 937.
5. *Stoneham A.M.* Rev. Mod. Phys., 1969, **41**, 82.
6. *Suzuki M., Kubo R.* J. Phys. Soc. Japan, 1968, **24**, 51.

---

1) Отметим, что при наличии центрального пика только связанный с ним вклад в ширину линии обладает критической температурной зависимостью[8]

7. *Вугмейстер Б.Е., Глинчук М.Д.* ЖЭТФ, 1980, 79, 947.
8. *Reiter G.F., Berlinger W., Muller K.A., Heller P.* Phys. Rev., 1980, **B21**, 1.
9. *Riste T., Samuelsen E.J., Otnes K., Feder J.* Solid State Comm., 1971, 9, 1455.

Институт проблем материаловедения
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию
26 февраля 1982 г.

После переработки
20 апреля 1982 г.