

TEORIA DE CAMPO MEDIO PARA UNA TRANSICION FERROELECTRICA

A. Dobry, A. Greco y M Stachiotti

Instituto de Física Rosario (I.F.I.R.), Facultad de Ciencias Exactas, Ingeniería y Agrimensura, Av. Pellegrini 250, 2000 Rosario.

Para tratar modelos anarmónicos de sólidos que presentan transiciones estructurales, la aproximación de fonones autoconsistentes es comúnmente utilizada. Esta teoría de campo medio, a diferencia del usual desacople de sitios, se fundamenta en el desacople de modos en el espacio recíproco. En este trabajo, desarrollamos una aproximación de fonones autoconsistentes para el modelo de polarizabilidad no lineal. Este modelo describe las propiedades dinámicas de materiales ferroeléctricos. Se presentan los diagramas de fase en función de los parámetros relevantes del modelo. Se analiza el comportamiento crítico y se muestra que la aproximación conduce a las mismas anomalías que las encontradas en otros modelos. Por último, se identifica la clase de universalidad del modelo.

La dinámica de óxidos y calcogenuros con diferentes estructuras que presentan modo blando ferroeléctrico, ha sido descrita por medio de un modelo de capas con una interacción cuártica capa-carozo en el anión¹¹. Esto corresponde a la polarizabilidad no lineal del anión (por ej. O²⁻).

La aproximación usada en los tratamientos previos para el cálculo de propiedades dinámicas y termodinámicas, fue linealizar las ecuaciones de movimiento (incluida la condición adiabática) y definir un problema armónico dependiente de la temperatura para los carozos. Esta aproximación dinámica (A.D.) elimina una serie de interacciones efectivas que la condición adiabática genera. Más aún, esta aproximación no conduce a la representación armónica óptima para la energía libre y por lo tanto no corresponde a la usual aproximación de fonones autoconsistentes (SPA)

El propósito de este trabajo es desarrollar la mecánica estadística clásica de la versión pseudo-unidimen-

sional diatómica del modelo de polarizabilidad, partiendo de una formulación exacta para la función de partición. Una aproximación de fonones autoconsistentes es entonces realizada sobre un potencial que rescata todas las interacciones anarmónicas efectivas.

El modelo en estudio, que reproduce el comportamiento del modo ferroeléctrico, está definido por el siguiente potencial:

$$\Phi(\{u\}, \{w\}) = \sum_n \frac{f}{2} (u_{1,n} - u_{1,n+1})^2 + \frac{f}{2} (u_{2,n} - u_{1,n} - w_n)^2 + \frac{f}{2} (u_{2,n} - u_{1,n+1} - w_{n+1})^2 + \Psi(w_n) \quad (1)$$

donde

$$\Psi(w) = (g_2/2) w^2 + (g_4/4) w^4 \quad (2)$$

$u_{\chi,n}$ es el desplazamiento del carozo del χ -ésimo ion en la n -ésima celda y w_n el desplazamiento relativo capa-carozo (Fig. 1). El potencial (2) representa una

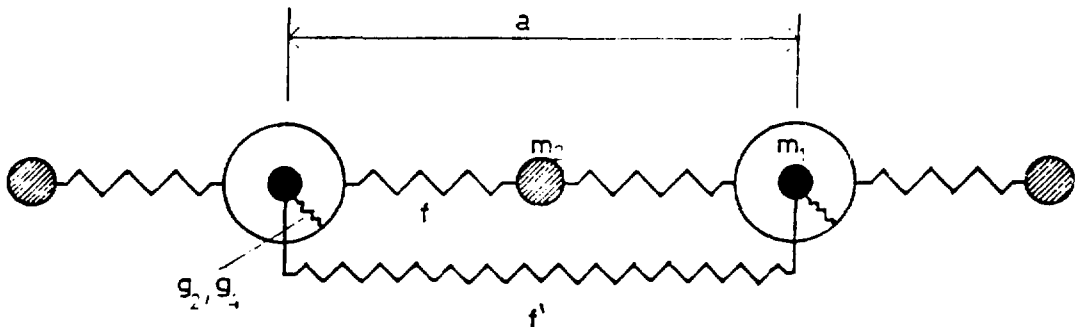


Fig.1: Modelo unidimensional de un ferroeléctrico: m_1, m_2 , masa de aniones y cationes; f, f' , constantes de acoplamiento entre primeros vecinos; g_2, g_4 , constantes de acoplamiento armónica y cuártica entre capas (electrónicas) y carozos (iónicas)

interacción doble pozo entre capas y carozos.

Un correcto tratamiento de la condición adiabática conduce a la siguiente función de partición clásica⁽²⁾:

$$Z = K \int \prod du_n \prod dw_n \prod d\lambda_n \left[\text{Det} \left(\frac{\partial^2 \Phi}{\partial u_n \partial w_n} \right) \times \right. \\ \left. \times \delta \left\{ \frac{\partial}{\partial \lambda_n} \Phi(u_n, w_n) \right\} \right] \times \\ \times \exp \left\{ -\beta \Phi(u_n, w_n) \right\} = \\ = K \int \prod du_n \prod dw_n \prod d\lambda_n \left[\prod (2f + g_2 + 3g_4 w_n^2) \right] \times \\ \times \exp \left\{ -\beta \Phi(u_n, w_n) + i \sum \lambda_n \frac{\partial \Phi}{\partial w_n} \right\}. \quad (3)$$

donde K es una constante proveniente de la integración en los momentos. Las integraciones en las variables u, w, y λ pueden realizarse y esto conduce a un potencial efectivo dependiente sólo de la variable w. Por lo tanto, la función de partición queda:

$$Z = K \int \prod dw_n \exp \left\{ -\beta \Phi_{\text{eff}}(w) \right\} \quad (4)$$

con:

$$\Phi_{\text{eff}}(w) = \sum_n \left[F_{ij} w_i w_j + G_{ij} w_i w_j^3 + H_{ij} w_i^3 w_j^3 \right] - \\ - 1/\beta \sum \ln |2f + g_2 + 3g_4 w_i^2|. \quad (5)$$

Las F_{ij} , G_{ij} y H_{ij} son interacciones efectivas de largo alcance. Estas interacciones, generadas por la condición adiabática, no han sido tenidas en cuenta en anteriores aproximaciones.

Desarrollando el logaritmo hasta orden sexta en la variable w y agregando en Φ_{eff} los efectos de un campo ordenante E, el potencial efectivo queda:

$$\Phi_{\text{eff}} = \sum_{ij} \left\{ \left[F_{ij} - 1/\beta (3g_4 \delta_{ij} / (2f + g_2)) \delta_{ij} \right] w_i w_j + \right. \\ \left. + \left[G_{ij} + 1/2\beta (3g_4 \delta_{ij} / (2f + g_2))^2 \delta_{ij} \right] w_i w_j^3 + \right. \\ \left. + \left[H_{ij} + 1/3\beta (3g_4 \delta_{ij} / (2f + g_2))^3 \delta_{ij} \right] w_i^3 w_j^3 - E \delta_{ij} w_j \right\}. \quad (6)$$

Para un tratamiento aproximado de las propiedades de equilibrio, la función de partición será evaluada en aproximación de fonones autoconsistentes. Escribiendo el potencial en el espacio recíproco y efectuando la aproximación de Hartree⁽⁴⁾, la función de partición queda:

$$Z^{\text{SPA}} = K \int \prod d\tilde{w}(q) \exp \left\{ -\beta [\omega^2(q) \tilde{w}(q) \tilde{w}(-q)/2 + \right. \\ \left. + N^z E_m(q=0) \tilde{w}(w=0) \right\} \quad (7)$$

donde $\omega^2(q)$ y $E_m(q=0)$ provienen de haber realizado todos los promedios de a pares en (6). Al tomar los promedios térmicos, se ha permitido explícitamente un valor de expectación distinto de cero para la variable w. Por lo tanto:

$$w(q) \equiv \tilde{w}(q) + \langle w(q) \rangle = \tilde{w}(q) + N^z \Delta(q) w_0. \quad (8)$$

Esto es $\tilde{w}(q)$ denota la fluctuación de la coordenada w(q). Teniendo en cuenta que $\langle \tilde{w}(q=0) \rangle = 0$, obtenemos la siguiente ecuación de estado:

$$E_m(q=0) = 0 \quad (9)$$

y la susceptibilidad del parámetro de orden (χ):

$$\chi^{-1} = (\partial w_0 / \partial E)^{-1} = \omega^2(q=0) \quad (10)$$

Para calcular la dependencia en temperatura de la susceptibilidad y la temperatura crítica T_c , implícitamente definida por $\omega^2(q=0)=0$, el espectro de frecuencias efectivo $\omega^2(q)$ ha sido calculado numéricamente.

El carácter tridimensional del modelo ha sido dado en los tratamientos previos⁽³⁾ realizando las sumas en el espacio recíproco en forma isotrópica. Con el objetivo de comparar nuestros resultados con los de la AD, tomaremos en los cálculos la relación $\omega^2(q)$ isotrópica y los parámetros ajustados para el KTaO_3 ⁽⁵⁾.

En la fig. 2 mostramos la dependencia de la temperatura de χ . En un rango de temperaturas intermedias se observa una dependencia lineal. Desviaciones de este comportamiento ocurren cerca de T_c y altas temperaturas debido a la saturación⁽⁶⁾. El exponente crítico de la susceptibilidad obtenido es $\gamma=2$. Este valor coincide con los obtenidos usando modelos de iones rígidos⁽⁴⁾ y está en contraste con el valor $\gamma=1$ encontrado en Ref. 3 para este modelo.

La dependencia de T_c del parámetro relevante del modelo g_2 es mostrada en la Fig. 3. Nuestro resultado difiere del comportamiento lineal obtenido con AD. Este comportamiento puede resultar importante para explicar los diagramas de fase correspondientes a ferroeléctricos mixtos como el $\text{KNb}_x\text{Ta}_{1-x}\text{O}_3$ y el $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ ⁽⁷⁾.

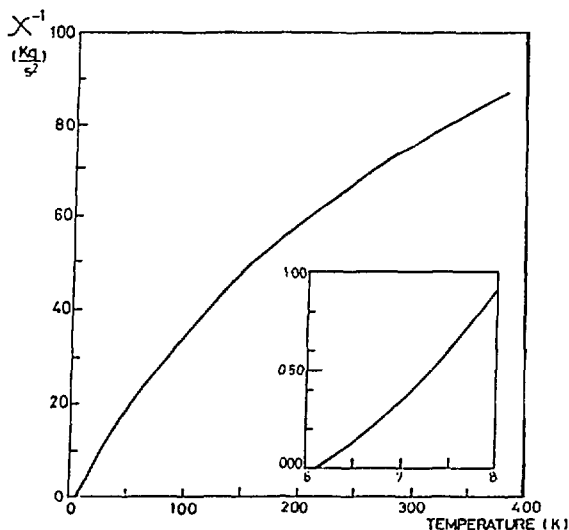


Fig.2: Dependencia de la inversa de la susceptibilidad de la temperatura.

Por otro lado, hemos encontrado, a la temperatura T_c , una solución con $w_0=0$, correspondiente a la fase ordenada. Para esta solución la energía libre es menor que la de la fase desordenada. Esto indica la existencia de una transición de fase de primer orden a una temperatura $T_0 > T_c$. Esta transición es una consecuencia de la aproximación de fonones autoconsistentes [8]. Sin embargo, en el régimen displacivo ($g_2 \rightarrow 0$) $T_0 \rightarrow T_c$ y la transición se vuelve de segundo orden.

Finalmente, una representación del modelo en términos de campos continuos permite identificar la clase de universalidad a la cual pertenece, en lo que se refiere a su comportamiento crítico [9]. Este estudio permite demostrar que el modelo tratado en este trabajo está en la misma clase de universalidad que el modelo de Ising.

REFERENCIAS

[1] A. Bussmann-Holder, H. Bilz y G. Benedek, Phys.

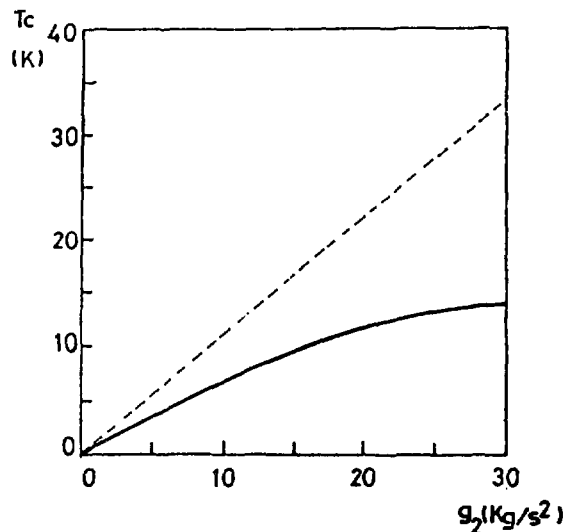


Fig.3: Temperatura crítica en función del parámetro g_2 . La línea sólida representa nuestros resultados mientras la línea de puntos representa los del AD.

- Rev. B **39**, 9214 (1989).
 [2] A. Dobry, A. Greco, R. Migoni y O. Zandron. Phys. Rev. B **39**, 12182 (1989).
 [3] H. Bilz, G. Benedek y A. Bussmann-Holder, Phys. Rev. B **35**, 4840 (1987).
 [4] E. Pytte, Comm. Sol. St. Phys. V, **2**, 41 (1973).
 [5] H. Bilz, A. Bussmann, G. Benedek, H. Büttner y D. Strauch, Ferroelectrics **25**, 339 (1980).
 [6] R. Migoni, H. Bilz, A. Bussmann-Holder y W. Kress. Proceedings of The International Conference on Phonon Physics, Budapest (1985), editado por J. Kollár, N. Kroó, N. Menyárd and T. Siklós (World Scientific, Singapore, 1985), p. 272
 [7] A. Dobry, A. Greco, R. Migoni y M. Stachiotti, resultado no publicado.
 [8] E. Pytte, Phys. Rev. Lett. **28**, 895 (1972).
 [9] D. Amit, H. "Field Theory, the Renormalization Group, and Critical Phenomena", World Scientific (1984).