

FORMACION DE REGIONES POLARIZADAS COHERENTEMENTE EN EL VIDRIO DE DIPOLOS $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$

M.G.Stachiotti, R.L.Migoni

Instituto de Física Rosario, Universidad Nacional de Rosario y CONICET,

Bv. 27 de Febrero 210 Bis, 2000 Rosario ,

y U.T.Höchl

IBM Zürich Research Laboratory, Suiza.

Utilizando un modelo de capas no lineal, se calculó el valor del dipolo eléctrico local producido por una impureza de Li^+ en KTaO_3 . La comparación con mediciones experimentales de la constante dieléctrica en función de la concentración, nos indujo a introducir un modelo de "clusters" independientes. Estos "clusters" consisten en varios dipolos que se alinean produciendo una región de polarización coherente cuya dimensión puede ser estimada. Para baja concentración de impurezas, nuestra estimación está en buen acuerdo con mediciones ópticas realizadas recientemente.

Los cristales con estructura de perovskita son uno de los sistemas más extensamente estudiados^[1]. Es remarcable el hecho que para el KTaO_3 puro, como así también para el cristal mixto de $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$, las transiciones a una fase polar ordenada han sido correctamente predichas sobre la base de un modelo de polarizabilidad no lineal^[2]. Sin embargo, la situación es diferente cuando se dopa al KTaO_3 con Li^+ . El ión Li^+ que reemplaza al K^+ , debido a su menor radio iónico, se ubica fuera de centro a lo largo de una de las seis direcciones cúbicas equivalentes $[001]$ ^[3]. El momento dipolar resultante polariza la red de forma tal que se genera una región, alrededor de la impureza, cuyo momento dipolar local (P_{loc}) es mayor que el correspondiente al desplazamiento del Li^+ (P_{Li}). Este hecho ha sido confirmado por evidencia experimental^[4] y por un cálculo numérico basado, también, en un modelo de polarizabilidad no lineal^[5].

Es pensado que los momentos dipolares locales, asociados a cada impureza de Li^+ , interactúan en forma aleatoria y dan lugar a la aparición de una fase de vidrio de dipolos, análoga a la de vidrio de spin para momentos magnéticos^[6]. Con el objeto de entender el origen del comportamiento vítreo, es necesario conocer cómo es la interacción efectiva entre las polarizaciones locales. Por lo tanto es interesante poder determinar la forma y tamaño de las regiones polarizadas y su dependencia con la temperatura. En un trabajo reciente, hemos estudiado la dependencia con la temperatura de las regiones polarizadas, utilizando el modelo de polarizabilidad no lineal, en aproximación cuasiar-

mónica^[7], obteniendo como resultado que $P_{\text{loc}} / P_{\text{Li}} \cong 4$ en un amplio rango de temperaturas. Sin embargo, estas predicciones están en contradicción con lo encontrado en otros modelos formulados previamente: el modelo de iones rígidos^[8] y el modelo de acoplamiento con fonones^[9]. Por lo tanto es necesario someter nuestros resultados a una comprobación experimental.

Un experimento en el cual un cristal de $\text{Li}_x\text{K}_{1-x}\text{TaO}_3$ fue enfriado bajo la acción de un campo eléctrico y luego se midió la carga relajada durante el calentamiento, permitió obtener un valor de la polarización local del orden de 4.5 e Å por cada impureza de Li, dando esto como resultado que $P_{\text{loc}}/P_{\text{Li}} \cong 4.5$. El modelo de iones rígidos da un efecto de *screening*, esto es: el factor de agrandamiento para la polarización es < 1 . Por otro lado, el modelo de acoplamiento con fonones sobrestima dicho valor en un factor 25 ($P_{\text{loc}} / P_{\text{Li}} \cong \epsilon\gamma / 3 \cong 100$). Otro resultado, independiente del anterior, lo da la comparación con la medición de la polarización remanente. En nuestro modelo, el 99% de la nube de polarización que refuerza al momento dipolar de cada impureza, se encuentra en una región que involucra un radio de tres constantes de red^[7] ($r=3a$). Por lo tanto, la polarización total debería ser una función lineal de la concentración de Li para $x < (r/a)^3 \cong 0.04$, con una pendiente $\partial P/\partial x = P_{\text{loc}} / a^3 \cong 1.35 \text{ C} / \text{m}^2$. Además, P debería saturar para grandes valores de x ($x > 0.04$) al valor de $50\text{mC} / \text{m}^2$. La inspección de la Figura 1 confirma estos resultados prácticamente en forma cuantitativa. Las desviaciones alrededor del valor $x = 0.04$ son atribuidas a la interacción

entre las polarizaciones locales, las que se tornan más importantes a medida que aumenta la concentración.

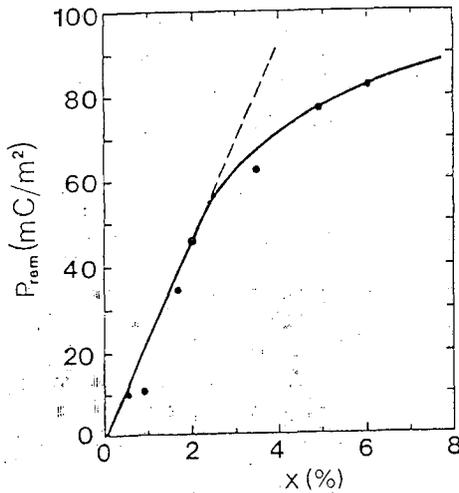


Figura 1: Polarización a T_v para muestras con diferente concentración de Li. La tangente corresponde a $\partial P/\partial x \cong 2Cm^{-2}$. La teoría predice $\partial P/\partial x \cong 1.35 m^{-2}$ y una saturación a mCm^{-2} .

Sin embargo, cuando comparamos nuestros resultados con mediciones de la constante dieléctrica, encontramos una discrepancia. P_{loc} es una variable dinámica y puede ser medida a través de la susceptibilidad dieléctrica. Polarizaciones locales independientes tienen una susceptibilidad de Debye ϵ_d dada por $\epsilon_d = N \cdot P_{loc} / 3kT \epsilon_0$, donde N es la densidad de dipolos ($N = x / a^3$). Por lo tanto, ϵ_d es proporcional a la concentración. En la Figura 2 se observa la dependencia de la constante dieléctrica en función de la concentración, medida a la temperatura de vidrio T_v , notándose un aumento no lineal. Sin embargo, tenemos un argumento plausible para esta discrepancia: vamos a asumir que los efectos de la interacción son alinear a n dipolos dentro de una pequeña región y que esas regiones son mutuamente independientes. En esta aproximación (*clusters* independientes) se tiene:

$$\epsilon \cong (N/n) (n P_{loc})^2 / 3 k T \epsilon_0 \cong n \epsilon_d$$

A partir de la Figura 2 se puede estimar el valor de n a distintas concentraciones y determinar el tamaño de estas regiones coherentemente polarizadas.

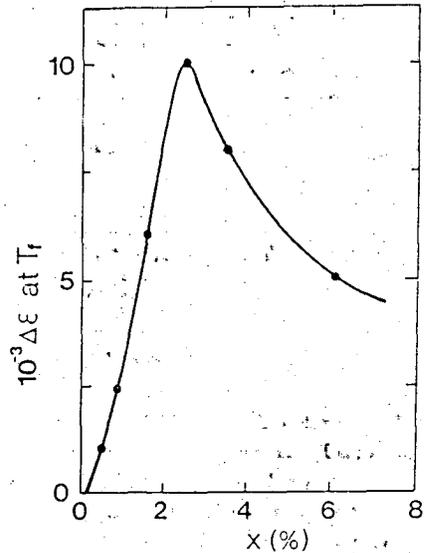


Figura 2: Susceptibilidad dieléctrica vs. la concentración de Li a la temperatura $T = T_v$.

La longitud de correlación ξ está dada por:

$$\xi = a (n^2/x)^{1/3}$$

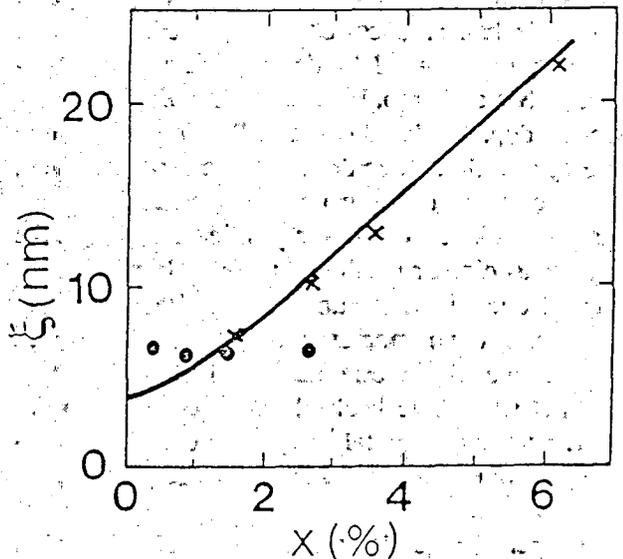


Figura 3: Longitud de correlación para la polarización (o tamaño del cluster) : (x) a partir de generación de luz por el segundo armónico; (o) predicha por la teoría.

En la figura 3 hemos representado esta longitud en función de x , encontrando un valor $\cong 6 \text{ nm}$ para $x < 0.02$. Para mayores valores de x la aproximación de *clusters* independientes ya no es válida. Una observación directa de la correlación polar es posible mediante una experiencia óptica de generación del segundo armónico^[10]. Los resultados también son representados en la Figura 4. Podemos notar

que los dos conjuntos de datos son compatibles y ambos presentan una clara evidencia para la correlación, lo cual es consecuencia de la interacción entre polarizaciones locales.

REFERENCIAS

1. Lines M. and Glass A. 1977 Principles and Application of Ferroelectrics and Related Materials (Oxford: Clarendon p 138)
2. R.Migoni, H.Bilz and D.Bäuerle, Phys.Rev.Lett. 37: 1155 (1976)
3. J.Van der Klink, D.Rytz, F.Borsa and U.Höchli, Phys.Rev.B 27 89 (1983).
4. U.Höchli, H.Weibel and L.Boatner, J.Phys.C: Solid State Phys. 12 L563 (1979).
5. M.Stachiotti and R.Migoni, J.Phys.: Condens. Matter 2 4341 (1990).
6. K.Binder and A.Young, Rev.Mod.Phys. 58 801 (1986).
7. M. Stachiotti y R. Migoni, Anales ADA, p..., 1990.
8. J.Van der Klink and S.Khanna, Phys.Rev. B 29 2415 (1984).
9. B.Vugmeister and M.Glinchuk, Rev.Mod.Phys. 62 993 (1990).
10. G.Azzini, G.Banfi, E.Giulotto and U.Höchli, Phys.Rev. B 43 7473 (1991).

CEILAP
CITEFA - CONICET
ZUFRIATEGUI Y VARELA
1603 VILLA MARTELLI
REPUBLICA ARGENTINA