

# НЕЭРГОДИЧНОЕ СОСТОЯНИЕ РЕЛАКСАТОРНОГО СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКА $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ В ПОСТОЯННОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

*Н. Н. Колпакова* \*

*Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия*

*П. Чарнецки* \*\*

*Institute of Physics, A. Mickiewicz University  
61-614 Poznan, Poland*

Поступила в редакцию 8 октября 2004 г.

На примере релаксаторной системы  $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  исследована температурная зависимость остаточной поляризации неэргодичного релаксаторного состояния (NERS), полученной из измерений пирозлектрического тока при нагревании в нулевом поле (ZFH) в интервале от 10 до 295 К для двух случаев: 1) после охлаждения образца в постоянном электрическом поле  $E$  (FC) от  $T = 295$  К до заданной температуры значительно ниже температуры «замораживания» релаксаторного состояния ( $T_f \approx 182$  К), снятия поля и последующего охлаждения в нулевом поле (ZFC) до  $T = 10$  К и 2) после ZFC от  $T = 295$  К до той же температуры ниже  $T_f$ , приложения того же поля и FC до  $T = 10$  К. Проведен анализ поведения зависимостей  $P_r^{FC}(T)$  и  $P_r^{ZFC}(T)$ . В поле  $E < 2$  кВ/см кривые  $P_r^{ZFC}$  как функции  $1/T$  имеют широкий слабый максимум в области  $T \approx T_f$ , который исчезает в более сильных полях, тогда как кривые  $P_r^{FC}(1/T)$  пересекаются при  $T \approx T_f$  и не имеют аномалий. Различие в поведении  $P_r^{ZFC}(T)$  и  $P_r^{FC}(T)$  указывает на различие в характере NERS, формирующегося в процессе ZFC и FC системы при переходе через  $T_f$ . При ZFC-режиме для NERS характерно стекольное поведение, при FC-режиме даже в слабом поле появляются признаки сегнетоэлектрического поведения. Для сравнения проведены также аналогичные измерения  $P_r^{ZFC}(T)$  и  $P_r^{FC}(T)$  в классическом сегнетоэлектрике KDP.

PACS: 77.22.-d, 77.22.Ej, 61.43.-j, 77.84.-s, 77.90.+k

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Природа неэргодичного релаксаторного состояния (NERS), появляющегося ниже температуры замораживания  $T_f$  эргодичного релаксаторного состояния (ERS) в релаксаторных сегнетоэлектриках, в последнее десятилетие является предметом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований [1–11]. Предлагаются две основные концепции: 1) состояние типа дипольного стекла, образующегося в результате случайных взаимодействий между полярными нанокластерами в присутствии случайных полей [1–7], либо 2) фрустрированный сегнетоэлектрик, разбитый на нанодомены под дей-

ствием случайных электрических полей [8–11]. Вместе с тем, было показано, что диэлектрический отклик релаксаторного сегнетоэлектрика в сильном постоянном и сильном переменном электрических полях контролируется движением сегнетоэлектрических доменных стенок как в NERS, так и в ERS [10, 11]. С другой стороны, в области температуры максимума диэлектрического отклика релаксаторной системы,  $T_m$  ( $T_m > T_f$ ), обнаружено сосуществование полярных фаз разной природы: реориентируемых полярных кластеров со стеклоподобным «замораживанием» поляризации и закрепленных в результате пиннинг-эффекта нанодоменов с температурно-независимым поведением поляризации [12]. Противоречивость интерпретации природы NERS и поведения ERS в области  $T \rightarrow T_f^+$  может быть связа-

\*E-mail: kolpakova@mail.ioffe.ru, nadia@hoth.amu.edu.pl

\*\*P. Czarnecki

на с тем, что в разных работах исследования диэлектрического отклика релаксаторных сегнетоэлектриков проводились в разных условиях. Основные недостатки этих исследований, затрудняющие интерпретацию результатов с точки зрения единой концепции, следующие: измерения статической либо динамической диэлектрической проницаемости, сканирование температуры при фиксированном либо при сканируемом постоянном электрическом поле, произвольность выбора слабого либо сильного постоянного и переменного электрических полей при измерении, а также произвольность выбора режима охлаждения или нагревания без поля или в постоянном поле (соответственно ZFC или ZFH и FC или FH) и т. д. [1–5, 8–11]. Хотя каждый из этих факторов позволяет выявить характерные особенности в поведении неэргодичной системы, ни один из них не дает ответа на вопрос о причинах различного проявления свойств NERS при изменении условий измерения. Поэтому для ответа на принципиальный вопрос о природе NERS в релаксаторном сегнетоэлектрике необходимы новые эксперименты по изучению свойств таких систем. В данной работе на примере релаксаторной системы  $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  впервые исследована температурная зависимость остаточной поляризации  $P_r$ , полученной из измерений пирозлектрического тока при нагревании в нулевом поле (ZFH) в интервале от 10 до 295 К, для двух случаев: 1) после FC от комнатной температуры до заданной температуры ниже  $T_f$ , снятия постоянного поля и последующего ZFC до  $T = 10$  К и 2) после ZFC от комнатной температуры до той же температуры ниже  $T_f$ , приложения того же поля и FC до 10 К, соответственно  $P_r^{FC}(T)$  и  $P_r^{ZFC}(T)$ . Такая последовательность приложения и снятия поля при охлаждении не использовалась ранее при исследовании ни спиновых и дипольных стекол, ни релаксаторных сегнетоэлектриков. Обычно для выяснения стекольного характера NERS в релаксаторных системах исследования диэлектрического и поляризационного откликов проводятся в режиме FC либо ZFC до заданной температуры значительно ниже  $T_f$  и последующего нагревания в режиме FH либо ZFH от этой температуры до комнатной [3, 5, 9]. В данной работе измерения проводятся в одних и тех же условиях: в режиме ZFH от  $T = 10$  К до комнатной температуры ( $T \gg T_f$ ). Статическая поляризация, определяемая из пиротока, может служить универсальной характеристикой метастабильного NERS релаксаторного сегнетоэлектрика во внешнем электрическом поле, поскольку зависимость поляризации от температуры для кластерной системы и системы с дальним сегнето-

электрическим упорядочением неодинакова [7, 13]. Несмотря на очевидность этого факта, систематические исследования  $P_r(T)$  в релаксаторных системах в разных термических и электрических режимах измерения ранее не проводились [2, 3, 5, 14]. Предложенные в работе новые эксперименты по исследованию  $P_r(T)$  показали, что формирование стекольных и сегнетоэлектрических свойств NERS предопределяется в процессе ZFC и FC (даже в слабом поле) неравновесной системы при переходе через  $T_f$ .

Для исследования выбран пирохлор  $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$  (CN) ( $Fd\bar{3}m - O_h^7$ ), являющийся уникальным примером неразбавленных систем с релаксаторным поведением [15, 16] (в отличие от смешанных перовскитов типа  $\text{PMN-PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  и  $\text{PLZT-Pb}_{1-x}\text{La}_x(\text{Zr}_y\text{Ti}_{1-y})\text{O}_3$  ( $Pm\bar{3}m - O_h^1$ )). Релаксаторные свойства CN вызваны ориентационной неупорядоченностью диполей  $\text{O}-\text{Cd}-\text{O}$  в подрешетке  $(\text{CdO}_8)^{n-}$ , имеющей ромбоэдрическую локальную симметрию  $D_{3d} - \bar{3}m$  [15]. Высокая кубическая симметрия системы в целом и ромбоэдрическая локальная симметрия  $(\text{CdO}_8)^{n-}$ -подрешетки позволяют применять для анализа диэлектрического поведения этого релаксаторного сегнетоэлектрика известные модели спиновых и дипольных стекол [17] и релаксаторных систем [4, 6, 7, 18]. Однако по сравнению с перовскитами типа PMN поведение CN более сложное. В интервале от 300 до 4 К в нем развиваются последовательно следующие состояния: релаксаторное, перекрывающее пара- и сегнетоэлектрическую фазы, сегнетоэластическое (ниже  $T_s = 205$  К), сегнетоэлектрическое (ниже  $T_C = 196$  К), состояние с несоразмерно-модулированной структурой ( $T_{inc} = 85$  К,  $T_{com} = 46$  К) и состояние типа дипольного стекла (ниже  $T_g \approx 18$  К) [19]. Причины появления неупорядоченных состояний разной природы и их взаимосвязь с сегнетоэлектрическим состоянием в этом соединении мало изучены. Релаксаторное состояние в пирохлоре, подобно релаксаторным сегнетоэлектрикам со структурой перовскита, характеризуется диэлектрической дисперсией в широком диапазоне частот в области температуры максимума диэлектрической проницаемости  $T_m \approx 190$  К ( $T_m < T_C < T_s$ ) и последующим замораживанием ERS при  $T_f \approx 183$  К [15, 16].

## 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследования проводились на монокристаллической пластинке типа  $(111)_{cub}$ , которая предва-

рительно отжигалась при  $T = 353$  К в течение 4 ч, чтобы уменьшить внутренние напряжения. Метод порошковой рентгеновской дифракции показал, что она имеет структуру пирохлора, примесь других фаз не обнаружена. На параллельные поверхности пластинки наносились электроды из серебряной пасты. После выключения постоянного поля  $E$  образец сначала закорачивался, чтобы снять остаточный поверхностный заряд. Охлаждение образца (FC и ZFC) всегда начиналось от  $T = 295$  К, т.е. от температуры, достаточно высокой, чтобы «стереть» все эффекты предыдущих измерений. Пироэлектрический ток измерялся в режиме ZFN от 10 до 295 К с помощью программного электрометра высокой чувствительности Keithley-6514 при медленном нагревании со скоростью 1.5 К/мин. Кривые  $P_r(T)$  для каждого значения постоянного поля были получены интегрированием температурной зависимости пиротока. Точность измерения пироэлектрического тока и соответственно поляризации была не ниже 0.05 %. Это позволило обнаружить относительно слабые изменения поляризации в релаксаторной системе как в области  $T_f$ , так и в параэлектрической фазе ( $T > T_f$ ). Стабилизация температуры составляла  $\pm 0.05$  К.

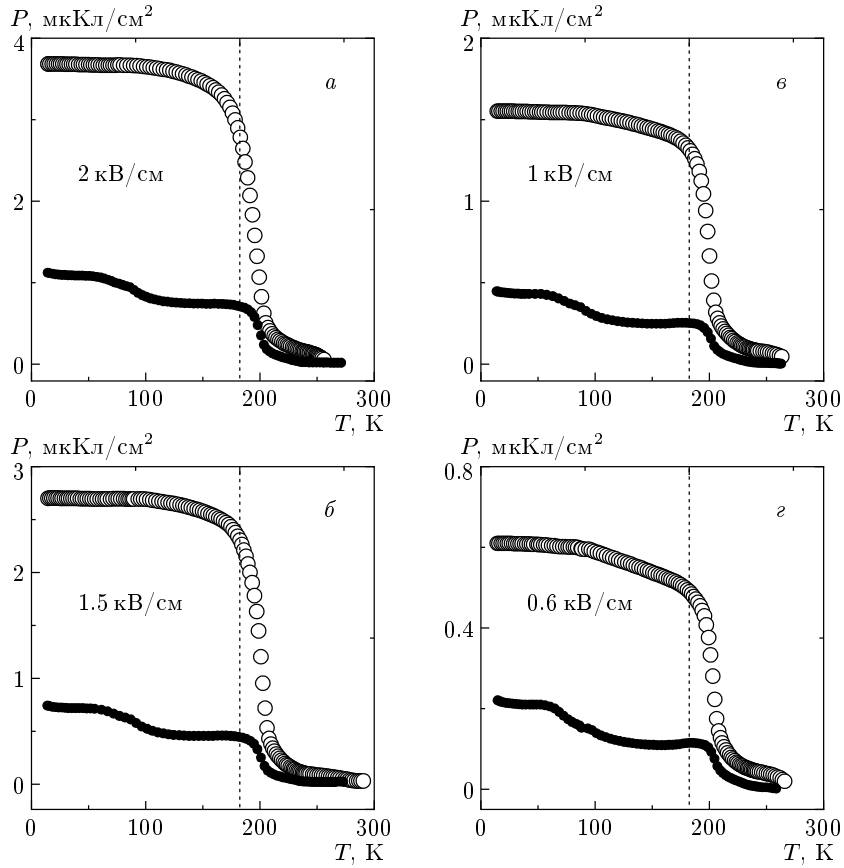
### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Типичные кривые  $P_r^{ZFC}(T)$  и  $P_r^{FC}(T)$  для пирохлора CN после охлаждения до  $T = 120$  К и  $T = 145$  К ( $T \ll T_f$ ) показаны соответственно на рис. 1 и 2. Там же для сравнения приведены кривые  $P_r^{ZFC}(T)$  и  $P_r^{FC}(T)$  для нормального классического сегнетоэлектрика KDP после охлаждения до температуры значительно ниже  $T_C$  (рис. 2г). Исследования поляризации в таких режимах, которые используются в данной работе, ранее не проводились не только в релаксаторных системах, но и в нормальных сегнетоэлектриках. Поэтому сначала на примере KDP проиллюстрируем особенности в поведении поляризации, показывающие, что предложенный метод дает возможность исследовать неупорядоченные и неравновесные состояния полярных систем (процессы поляризации в полидоменных сегнетоэлектриках, релаксаторах, имеющих нанодоменную структуру, спиновых и дипольных стеклах).

При охлаждении в режиме FC (2 кВ/см) образца KDP от комнатной температуры до  $T = 75$  К сегнетоэлектрическое состояние ниже  $T_C$  является монодоменным с ориентацией поляризации в направлении приложенного поля ( $T_C \approx 123$  К,

$E_{coer} \approx 200$  В/см в KDP [13]). После снятия постоянного поля и последующего охлаждения в режиме ZFC до  $T = 10$  К сегнетоэлектрик остается в «замороженном» монодоменном состоянии. При ZFC-режиме от комнатной температуры до той же температуры ниже  $T_C$  состояние сегнетоэлектрика является полидоменным. После приложения того же поля при 75 К и последующего охлаждения в режиме FC до  $T = 10$  К сегнетоэлектрик переходит в монодоменное состояние с ориентацией поляризации в направлении поля. При нагревании образца от 10 до 295 К в нулевом поле изменение  $P_r^{FC}(T)$  соответствует монодоменному состоянию сегнетоэлектрика. Иначе ведет себя  $P_r^{ZFC}(T)$ . При низкой температуре изменение  $P_r^{ZFC}(T)$  соответствует монодоменному состоянию, тогда как при приближении к  $T^- \approx 75$  К и выше этой температуры измеряемая поляризация определяется вкладом поляризации монодоменного и полидоменного состояний. Последнее является неупорядоченным с точки зрения ориентации поляризации в отдельных доменах относительно направления поляризации монодоменного состояния. В результате в нормальном сегнетоэлектрике суммарная величина  $P_r^{ZFC}(T)$  уменьшается по сравнению с  $P_r^{FC}(T)$ .

При охлаждении пирохлора CN в режимах ZFC и FC ( $E < 3$  кВ/см) от комнатной температуры до  $T = 120$  К или  $T = 145$  К «замороженное» состояние релаксаторной системы ниже  $T_f$  является полидоменным. Подобно другим релаксаторным сегнетоэлектрикам полярные нанодомены в пирохлоре «зарождаются» задолго до  $T_f$ , примерно в области  $T \approx 270$  К [20]. При FC-режиме охлаждения в поляризации нанодоменов появляется составляющая в направлении приложенного поля. После снятия поля при  $T \ll T_f$  и последующего охлаждения в режиме ZFC системы до  $T = 10$  К это состояние сохраняется. В случае охлаждения в ZFC-режиме системы до той же температуры ниже  $T_f$ , приложения того же поля и последующего охлаждения в режиме FC до  $T = 10$  К в поляризации «замороженных» нанодоменов тоже появляется составляющая в направлении приложенного поля, но более слабая. Это связано с тем, что NERS характеризуется очень широким спектром распределения времен релаксации от  $10^{-12}$  с до макроскопических величин [3, 5, 8]. Указанная особенность неэргодичного состояния, а также вклад неполяризованных «замороженных» нанодоменов в области  $T^- \approx 120$  К (либо 145 К) и выше приводят к тому, что поляризация  $P_r^{ZFC}(T)$  существенно отличается от  $P_r^{FC}(T)$  как по величине, так и по характеру изменения с температурой при нагре-



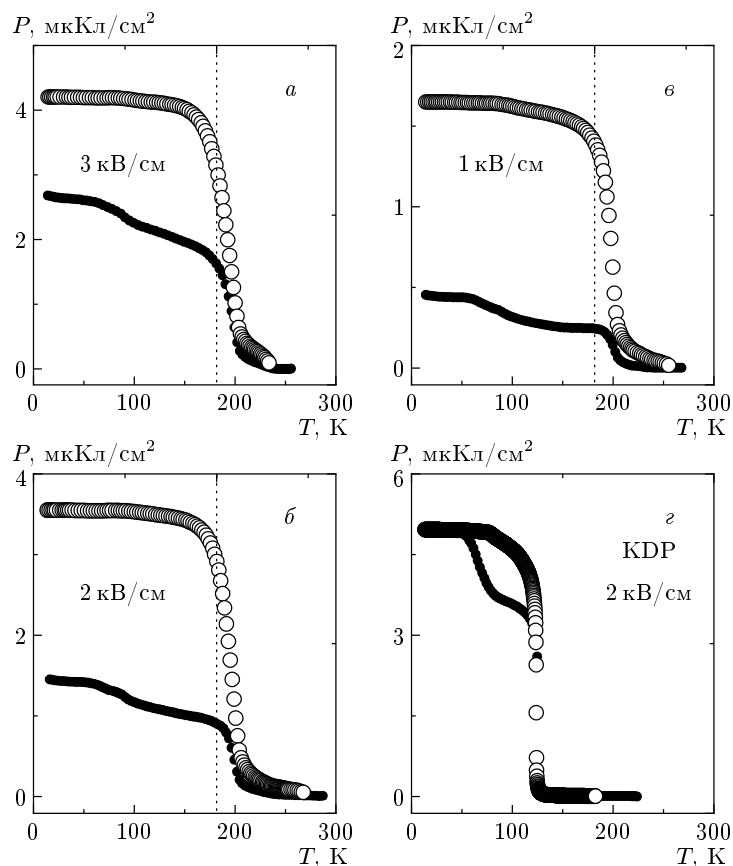
**Рис. 1.** Температурная зависимость остаточной поляризации в монокристалле пирохлора  $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7(\text{CN})$ , полученной из измерений в режиме ZFH пироэлектрического тока после охлаждения в режимах FC ( $\circ$ ) и ZFC ( $\bullet$ ) от  $T = 295$  К до  $T = 120$  К и последующего охлаждения в этих же режимах до  $T = 10$  К для нескольких значений постоянного электрического поля. Скорость нагрева составляет 1.5 К/мин. Штриховая линия указывает температуру замораживания  $T_f$ , соответствующую переходу из ERS в NERS

вании образца от  $T = 10$  К до  $T = 295$  К в нулевом поле (рис. 1 и 2).

В отличие от KDP в пирохлоре CN наблюдается сильное расщепление между ZFH статической поляризацией после FC (ZFH/FC) и после ZFC (ZFH/ZFC) системы ( $\Delta P_r = P_r^{FC} - P_r^{ZFC}$ ). В полях до 2 кВ/см во всем интервале температур от 10 К до  $T_f$  ( $T_f \approx 182$  К для исследуемого образца) расщепление практически не изменяется. Это указывает на то, что состояние системы ниже  $T_f$  полностью заморожено и неэргодично. Ранее в ориентационных стеклах [17] и релаксаторных сегнетоэлектриках [3, 5, 8] такое же сильное расщепление наблюдалось между FC и FH/ZFC статической диэлектрической проницаемостью ( $\Delta\epsilon$ ), а также между FC и FH/ZFC поляризацией ( $\Delta P$ ). Наблюдаемое расщепление является фундаментальным свойством систем стеклоподобной природы и, следовательно,

надежным аргументом в поддержку стеклоподобного характера NERS в CN (по крайней мере, в поле  $E < 2$  кВ/см).

В более сильных полях ( $E > 2$  кВ/см) расщепление между  $P_r^{FC}(T)$  и  $P_r^{ZFC}(T)$  начинает уменьшаться при приближении к  $T_f^-$  (рис. 1а, 2а и 2б). При дальнейшем повышении температуры  $P_r^{FC}$ ,  $P_r^{ZFC}$  и  $\Delta P_r$  быстро уменьшаются по величине при  $T^- \rightarrow 200$  К, а не при  $T^- \rightarrow T_f^-$ . Отметим, что при общепринятой последовательности приложения и снятия поля в стеклах и релаксаторных системах  $\Delta P$  и  $\Delta\epsilon$  быстро уменьшаются при приближении к  $T_f^-$  и обращаются в нуль выше этой температуры [3, 5, 8]. Выше  $T = 200$  К поляризация в пирохлоре становится малой и медленно приближается к нулю при  $T \sim 270$  К, причем  $P_r^{FC}$  всегда больше  $P_r^{ZFC}$  и возрастает с увеличением поля. «Затянутый хвост» поляризации предполагает присут-



**Рис. 2.** Зависимость  $P(T)$ , полученная из измерений в режиме ZFN в пирохлоре CN после охлаждения в режимах FC (○) и ZFC (●) от  $T = 295$  К до  $T = 145$  К и последующего охлаждения в этих же режимах до  $T = 10$  К для нескольких значений постоянного электрического поля (а, б, в); то же в монокристалле KDP после охлаждения при тех же условиях от  $T = 295$  К до  $T = 75$  К и последующего охлаждения до  $T = 10$  К (г). На образце KDP напылены электроды из золота

ствие в ERS полярных кластеров, которые остаются неэргодичными до высоких температур [3]. Еще одна особенность полученных результатов в том, что поведение  $P_r^{FC}(T)$  и  $P_r^{ZFC}(T)$  в области 200 К и выше согласуется с поведением локального параметра порядка  $q$  в пирохлоре [20], а также в соединениях PMN и PLZT [12]. В то же время в соединениях PMN и PLZT поведение FC и FH/ZFC статической диэлектрической проницаемости и поляризации, полученных при общепринятой последовательности приложения и снятия поля, не согласуется с поведением локального параметра порядка  $q$  [2, 5, 12, 14]. Идентичность поведения  $P_r^{FC}(T)$  и  $P_r^{ZFC}(T)$  после охлаждения до  $T = 120$  К и  $T = 145$  К свидетельствует о термической стабильности «замороженного» состояния и зависимости свойств этого состояния только от того, как оно было поляризовано (либо  $E \neq 0$  при прохождении че-

рез  $T_f$ , либо  $E$  прикладывается при  $T \ll T_f$ ).

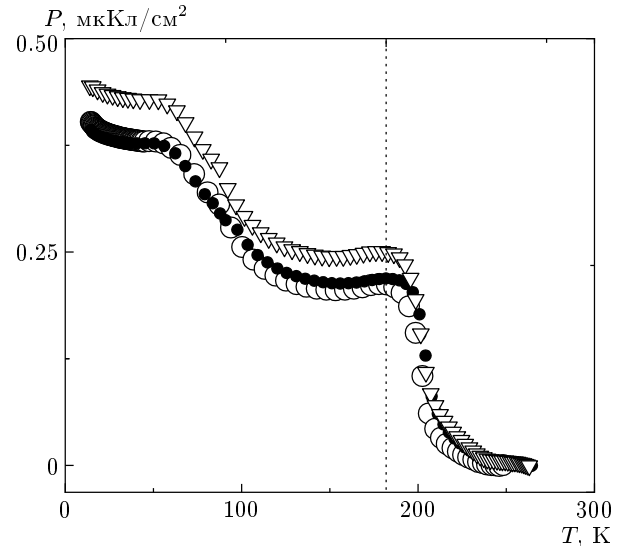
Поскольку ниже  $T_C$  (198 К для исследуемого образца [21]) в пирохлоре развиваются одновременно нормальное сегнетоэлектрическое и релаксаторное сегнетоэлектрическое состояния [15, 16, 19], необходимо принимать во внимание, что оба состояния могут давать вклад в измеряемую поляризацию. Анализ диэлектрических данных, полученных разными методами, показывает, что, по крайней мере, в полях  $E < 4$  кВ/см релаксаторный вклад доминирует. Прежде всего на это указывает характерная для NERS релаксаторной системы большая разница между величинами  $P_r^{FC}$  и  $P_r^{ZFC}$  (рис. 1 и 2). Малые величины  $P_r^{FC} \approx 1.54$  мкКл/см<sup>2</sup>,  $P_r^{ZFC} \approx 0.45$  мкКл/см<sup>2</sup> (при 20 К) для 1 кВ/см и  $P_r^{FC} \approx 0.61$  мкКл/см<sup>2</sup>,  $P_r^{ZFC} \approx 0.22$  мкКл/см<sup>2</sup> (при 20 К) для 0.6 кВ/см в слабом поле типичны скорее для релаксаторных

систем [5, 14]. Для сравнения, при  $T = 20$  К в KDP  $P_r^{FC} = P_r^{ZFC} \approx 5$  мкКл/см<sup>2</sup> в поле 2 кВ/см (рис. 2г). В пирохлоре CN  $P_r^{FC} \approx 4.24$  мкКл/см<sup>2</sup> и  $P_r^{ZFC} \approx 2.7$  мкКл/см<sup>2</sup> в поле 3 кВ/см сравнимы с поляризацией в нормальном сегнетоэлектрике, но расщепление между ними  $\Delta P_r \approx 1.54$  мкКл/см<sup>2</sup> еще остается значительным (рис. 2а). Вследствие того что петли диэлектрического гистерезиса в пирохлоре CN, как и в других релаксаторных системах, сильно вытянуты, появляется большая разница между коэрцитивным полем и полем насыщения поляризации (для исследуемого образца  $E_{coer} \approx 2.5$  кВ/см,  $E_s \approx 10$  кВ/см при  $T = 120$  К). Известно также, что для переключения сегнетоэлектрических доменов в пирохлоре CN необходимо поле большее 4 кВ/см [22].

Использованные в работе режимы охлаждения релаксаторной системы в постоянном электрическом поле впервые позволили обнаружить в температурной зависимости  $P_r^{ZFC}$  широкий слабый максимум ( $\Delta T \approx 40$  К) в области  $T_f$  (рис. 1б, в, г, 2в и 3). Величина максимума  $\Delta P_{max}$  только на 3–5% больше значения поляризации в пологой части кривой (интервал от 120 до 150 К), но на два порядка выше точности измерения поляризации. Поэтому факт существования максимума в области  $T_f$  нельзя игнорировать. Медленное возрастание суммарной поляризации  $P_r^{ZFC}$  при  $T \rightarrow T_f^-$  является непосредственным свидетельством существования «замороженных» нанодоменов с разными макроскопическими временами релаксации.

Величина и положение максимума  $\Delta P_{max}$  не изменяются при увеличении поля до 2 кВ/см (рис. 1 и 2), а также при уменьшении скорости нагревания на порядок (рис. 3). В полях выше 2 кВ/см зависимость  $P_r^{ZFC}$  от температуры становится монотонной, вместо максимума в области  $T_f$  наблюдается излом, и при дальнейшем увеличении поля он исчезает (рис. 2а, б). Эти факты тоже указывают на то, что происхождение максимума на кривых  $P_r^{ZFC}(T)$  обусловлено внутренними свойствами неэргодичного релаксаторного состояния со стеклоподобным поведением, для которого характерные времена релаксации сравнимы с временем продолжительности эксперимента (7600 с, что соответствует частоте 0.13 мГц). Стекольные свойства NERS проявляются до тех пор, пока более сильное поле ( $E > 2$  кВ/см) не индуцирует изменение этого состояния.

Аномалии при  $T_{inc} \approx 85$  К и  $T_{com} \approx 50$  К соответствуют фазовому переходу в пирохлоре [19]. Следует отметить, что в поведении  $P_r^{FC}(T)$ ,



**Рис. 3.** Зависимость  $P(T)$ , полученная из измерений в режиме ZFH в пирохлоре CN после охлаждения в режиме ZFC до  $T = 120$  К и последующего охлаждения в режиме FC до  $T = 10$  К в поле 1 кВ/см для нескольких значений скорости нагревания: 1.5 (верхняя кривая), 0.5 и 0.2 К/мин (нижняя кривая). Слабый широкий максимум в области  $T_f$  обусловлен вкладом поляризации нанодоменов с большими временами релаксации, соответствующими лабораторной шкале

$P_r^{ZFC}(T)$  и  $\Delta P$  в области  $T_{com}$  никаких заметных эффектов пиннинга, характерных для несоразмерно-модулированных структур [23], не обнаружено. Возможно, неэргодичность «замороженного» состояния играет доминирующую роль в поведении системы вплоть до низких температур (т.е. ниже температуры фазового перехода при  $T_{com} < T_{inc}$ ).

Для системы кубической симметрии с ромбоэдрическими искажениями (например, CN) полная статическая поляризация вдоль направления вектора  $\mathbf{E}$  за счет реориентируемых кластеров имеет вид [7]

$$P_t = P_{cl} \operatorname{th} \frac{EP_{cl}L^3}{3kT} = P_{cl} \operatorname{th} \frac{EA}{T}, \quad (1)$$

где  $P_{cl}$  — эффективная поляризация кластера,  $L$  — размер кластера,  $kT$  — термическая энергия,  $k$  — постоянная Больцмана,  $A = P_{cl}L^3/3k$ . Поскольку в данной работе измерения поляризации проводятся в режиме ZFH после снятия поля ( $E \rightarrow 0$ ), что соответствует условию  $EA/T \ll 1$ , соотношение (1) можно записать в виде

$$P_t \propto 1/T, \quad (2)$$

непосредственно применимом к  $P_r^{ZFC}(T)$  и  $P_r^{FC}(T)$ . Соответствующие графики показывают принципиально разное поведение поляризации после процессов ZFC и FC при переходе через  $T_f$  даже в слабом поле (рис. 4). В области около  $T = 200$  К кривые  $P_r^{ZFC}(1/T)$  совпадают, но при приближении к  $T_f^+$  начинают расходиться и при  $T \sim T_f$  имеют широкий максимум в слабом поле либо излом в поле  $E \geq 2$  кВ/см (рис. 4а). Кривые  $P_r^{FC}(1/T)$  в поле  $E < 2$  кВ/см слабо расходятся во всем температурном интервале, при  $T \sim T_f$  они пересекаются и не имеют аномалий (рис. 4б). В поле  $E \geq 2$  кВ/см кривые заметно смещаются к более низкой температуре, показывая, что поведение поляризации больше не соответствует кластерной системе (в отличие от  $P_r^{ZFC}$  в тех же полях). Более того, этот результат подразумевает, что относительно слабое поле в процессе охлаждения системы в режиме FC до температуры ниже  $T_f$  создает предпосылки к формированию сегнетоэлектрического упорядочения дальнего порядка и, следовательно, образованию неоднородного стекольного NERS. В связи с этим для характеристики NERS проведен анализ поведения  $P_r^{FC}(T)$  с помощью известного соотношения для спонтанной поляризации в нормальном сегнетоэлектрике [13]:

$$P_s^2 \propto (T_C - T).$$

Ниже  $T_f$  наблюдается линейное изменение  $(P_r^{FC})^2$  с температурой, если  $E \geq 2$  кВ/см (рис. 4б, вставка), т. е. в этом случае при охлаждении системы в режиме FC эргодичное релаксаторное состояние переходит в сегнетоэлектрическое. Если  $E < 1.5$  кВ/см, зависимость  $(P_r^{FC})^2$  от температуры становится нелинейной, причем отклонение от линейности тем меньше, чем сильнее поле. Последнее означает, что в процессе охлаждения системы в режиме FC в слабом поле в стекольном NERS формируются области с сегнетоэлектрическим упорядочением дальнего порядка.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С целью выяснения природы NERS в релаксаторных сегнетоэлектриках на примере неразбавленной высокосимметричной релаксаторной системы со структурой пироклора  $Cd_2Nb_2O_7$  впервые проведены исследования остаточной поляризации  $P_r(T)$  при нагревании в режиме ZFH от  $T = 10$  К до  $T = 295$  К после двух разных способов предшествующего охлаждения FC от  $T \gg T_f$  до 10 К. Проведен анализ температурных и полевых зависимостей  $P_r^{FC}(T)$ ,

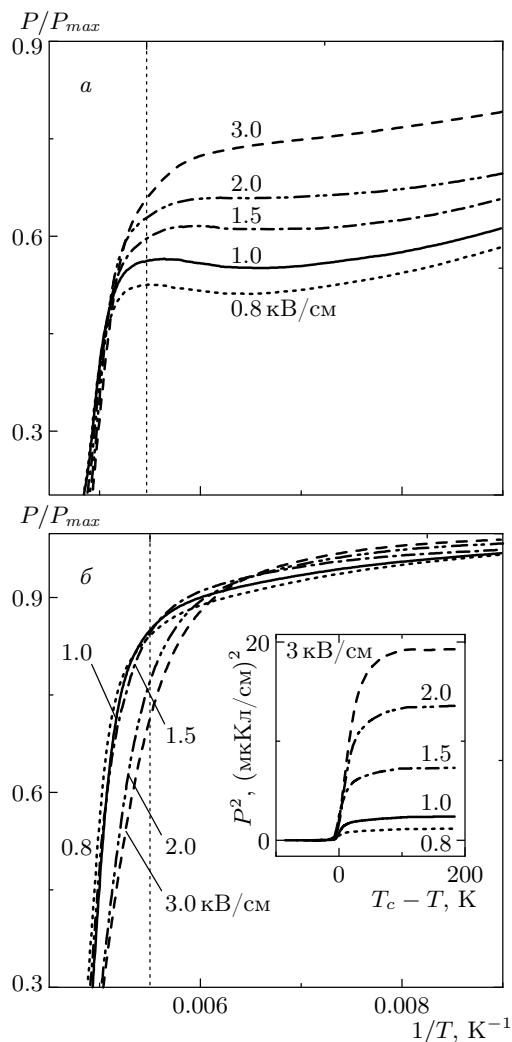


Рис. 4. Зависимости приведенной поляризации  $P/P_{max}$ , полученные из измерений в режимах ZFC (а) и FC (б) в пироклоре CN, от обратной температуры для нескольких значений постоянного поля;  $P_{max}$  соответствует поляризации при 10 К для каждого значения поля

$P_r^{ZFC}(T)$  и  $\Delta P$  с учетом современных представлений об особенностях ориентационных стекол и релаксаторных сегнетоэлектриков со стекольным поведением. Показано, что ключевую роль в формировании свойств неэргодичного состояния играет фактор внешнего постоянного электрического поля при переходе системы через температуру «замораживания»  $T_f$  (т. е.  $E = 0$  или  $E \neq 0$ ). Полученный результат имеет принципиальное значение для физики релаксаторного сегнетоэлектричества, поскольку позволяет понять причину и условия неоднозначного проявления свойств NERS (стеколь-

ных либо сегнетоэлектрических) в релаксаторных системах. Разное поведение поляризации  $P_r^{FC}(T, E)$  и  $P_r^{ZFC}(T, E)$  может быть также использовано для выяснения стекольного и сегнетоэлектрического характера NERS в релаксаторных системах любого типа, включая модельный релаксаторный сегнетоэлектрик PMN.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 04-02-16126) и КВН (Польша, грант № 2 P03B 04722).

## ЛИТЕРАТУРА

1. D. Viehland, M. Wuttig, and L. E. Cross, *Ferroelectrics* **120**, 71 (1991).
2. D. Viehland, J. F. Li, S. J. Jang et al., *Phys. Rev. B* **46**, 8003 (1992).
3. D. Viehland, J. F. Li, S. J. Jang et al., *Phys. Rev. B* **46**, 8013 (1992).
4. V. Bobnar, Z. Kutnjak, R. Pirc et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5892 (2000).
5. A. Levstik, Z. Kutnjak, C. Filipič et al., *Phys. Rev. B* **57**, 11204 (1998).
6. R. Pirc, R. Blinc, and Z. Kutnjak, *Phys. Rev. B* **65**, 214101 (2002).
7. A. J. Bell, *J. Phys.: Condens. Matter* **5**, 8773 (1993).
8. V. Westphal, W. Kleemann, and M. D. Glinchuk, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 847 (1992).
9. R. Sommer, N. K. Yushin, and J. J. van der Klink, *Phys. Rev. B* **48**, 13230 (1993).
10. A. E. Glazounov, A. K. Tagantsev, and A. J. Bell, *Phys. Rev. B* **53**, 11281 (1996).
11. A. K. Tagantsev and A. E. Glazounov, *Phys. Rev. B* **57**, 18 (1998).
12. R. Blinc, J. Dolinšek, A. Gregorovič et al., *Phys. Rev. Lett.* **83**, 424 (1999).
13. F. Jona and G. Shirane, *Ferroelectric Crystals*, Pergamon Press, Oxford–Paris (1962).
14. R. Farhi, M. El Marssi, J.-L. Dellis et al., *Ferroelectrics* **176**, 99 (1996).
15. N. N. Kolpakova, P. P. Syrnikov, A. O. Lebedev et al., *J. Appl. Phys.* **90**, 6332 (2001).
16. Н. Н. Колпакова, П. Чарнецки, В. Наврочик и др., *ЖЭТФ* **121**, 462 (2002).
17. K. Binder and A. P. Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
18. D. Viehland, S. J. Jang, L. E. Cross et al., *J. Appl. Phys.* **69**, 414 (1991).
19. N. N. Kolpakova, I. L. Shul'pina, M. P. Shcheglov et al., *Ferroelectrics* **240**, 265 (2000).
20. Н. Н. Колпакова, *ЖЭТФ* **123**, 607 (2003).
21. N. N. Kolpakova, P. Czarnecki, W. Nawrocik et al., *Ferroelectrics* **302**, 233 (2004).
22. Z.-G. Ye, N. N. Kolpakova, J.-P. Rivera et al., *Ferroelectrics* **124**, 275 (1991).
23. K. Hamano, Y. Ikeda, T. Fujimoto et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 2278 (1980).