

# ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ОТКЛИК РЕЛАКСАТОРНОГО СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКА $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ В НЕЭРГОДИЧНОМ СОСТОЯНИИ ПОСЛЕ СНЯТИЯ ПОСТОЯННОГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ

**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 11 января 2006 г.

На примере релаксаторной системы  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (PMN) анализируются температурные зависимости низкочастотной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'(T)$ , измеренной при нагревании в нулевом поле (режим ZFH) от  $T = 10$  К до  $T = 300$  К после разных условий предшествующего охлаждения системы во внешнем электрическом поле (режим FC). При переходе из неэргодичного релаксаторного состояния (NERS) в эргодичное (ERS) (при  $T_f \approx 216$  К) никаких изменений в температурных зависимостях проницаемости не обнаружено. Однако разница  $\Delta\varepsilon'(T)$  между кривыми, соответствующими разным условиям охлаждения в одном и том же поле, различна по характеру температурной зависимости и величине при  $T \rightarrow (T_f + 9 \text{ К})^-$  (для  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см) и выше. Обнаружено, что приведенные проницаемости  $\varepsilon'_r(T, f)$  для разных условий охлаждения в режиме FC изменяют поведение при переходе через  $T = (T_f + 9 \text{ К})$ . В NERS они «расходятся», причем чем сильнее поле ( $0 \leq E_{dc} \leq 3$  кВ/см), тем значительнее, а в ERS кривые  $\varepsilon'_r(T, f)$  для разных условий охлаждения независимо от поля совпадают. Характер изменения  $\Delta\varepsilon'(T)$  и  $\varepsilon'_r(T, f)$  при переходе из NERS в ERS от частоты не зависит. Различие в поведении диэлектрического отклика при нагревании в режиме ZFH после разных режимов охлаждения (ZFC и FC) системы (даже в слабом поле) как при переходе через  $T_f$ , так и до  $T = 10$  К указывает на различие в характере NERS, формирующегося в этих условиях. Вклад в  $\varepsilon'(T)$  от медленно релаксирующих областей ( $\omega \sim 0.1$  МГц) с поляризацией, реориентируемой после снятия поля, ответствен за то, что при переходе в ERS кривые  $\varepsilon'_r(T, f)$  совпадают не при  $T = T_f$ , при более высокой температуре.

PACS: 77.22.Ch, 61.43.-j, 77.84.Dy, 77.90.+k, 71.55.Jv

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Несмотря на интенсивные исследования последних лет релаксаторных сегнетоэлектриков, базисные вопросы, касающиеся перехода из эргодичного релаксаторного состояния (ERS) в неэргодичное (NERS) и природы релаксаторного состояния (является ли релаксаторная система фрустрированным сегнетоэлектриком или диполь-

ным стеклом с сегнетоэлектрическим упорядочением), по-прежнему остаются открытыми [1–8]. В первую очередь, остается не ясным, почему «замораживание» спектра времен релаксации при  $T_f$ , наблюдаемое в температурной зависимости низкочастотных (0.01 кГц–100 кГц) диэлектрических потерь  $\varepsilon''(T, f)$ , не проявляется в температурной зависимости действительной части низкочастотной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'(T, f)$  [5, 9–11]. Выяснение этого вопроса имеет принципиальное значение, так как обе составляющие определяют поведение комплексной диэлектрической прони-

\*E-mail: kolpakova@mail.ioffe.ru

\*\*P. Czarnecki

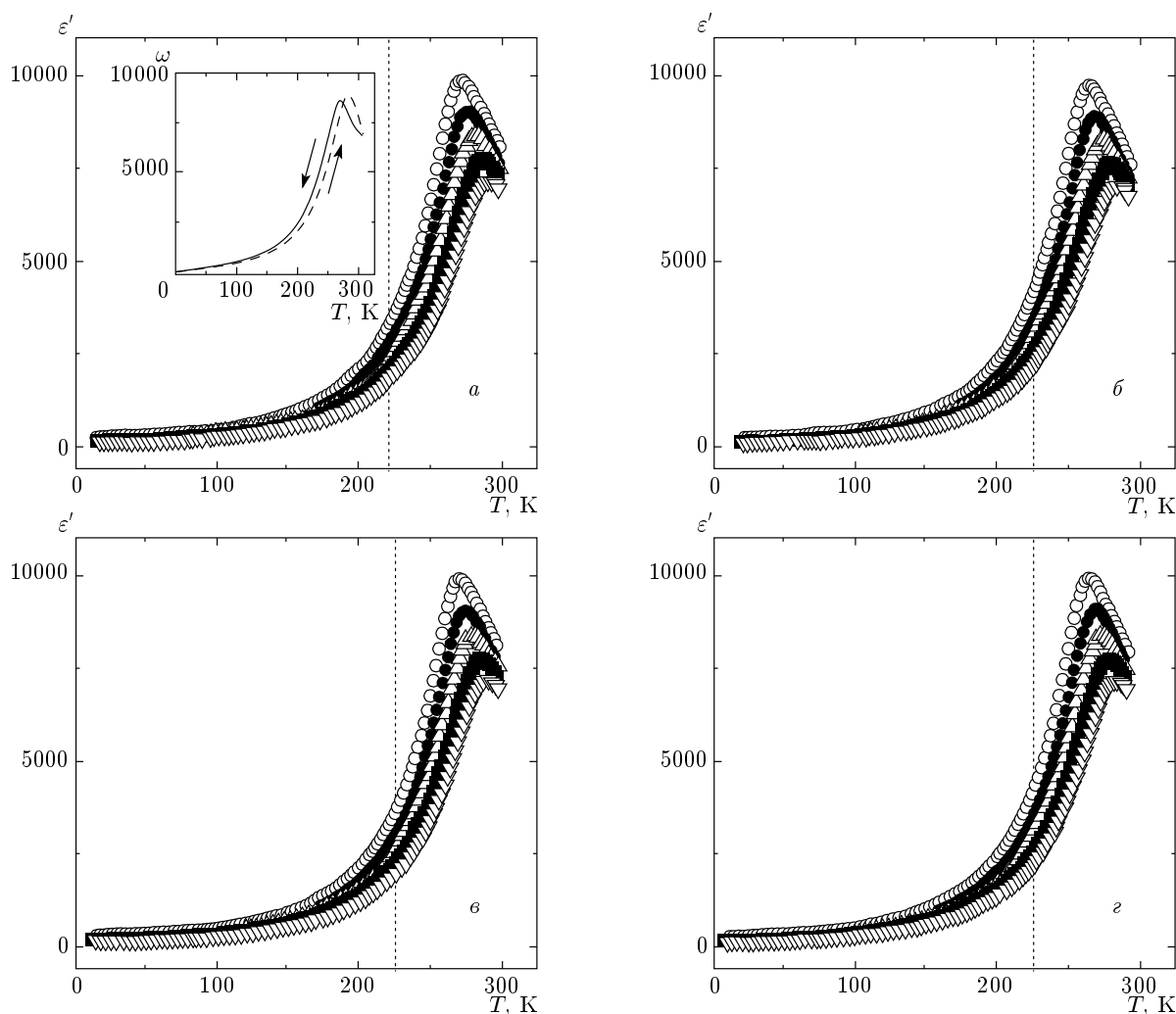
цаемости системы  $\varepsilon^*(T) = \varepsilon'(T, f) - i\varepsilon''(T, f)$ . Обнаружение надежной аномалии в  $\varepsilon'(T)$  при  $T_f$  в нулевом внешнем электрическом поле было бы прямым свидетельством существования перехода системы из ERS в неэргодичное стекловое состояние. Важно это и для понимания природы релаксаторных сегнетоэлектриков, и для выяснения механизма, ответственного за процесс «замораживания», и для изучения свойств NERS. Значительный шаг в решении данной проблемы был сделан благодаря стандартным экспериментам для обнаружения стекловидного состояния в RFE, по аналогии со спиновыми и дипольными стеклами: измерение «расщепления» между квазистатической диэлектрической проницаемостью (либо квазистатической поляризацией) при охлаждении системы во внешнем электрическом dc-поле (режим FC) до некоторой температуры и при нагревании в том же dc-поле после предварительного охлаждения без поля до той же температуры (режим FH/ZFC) [1, 6, 7, 12]. Если dc-поле достаточно слабое, обе кривые совпадают примерно в области  $T_f$ . Серьезным аргументом в пользу существования перехода при  $T_f$  явилось обнаружение аномалии в температурной зависимости диэлектрической нелинейности (третья гармоника низкочастотного диэлектрического отклика) в релаксаторных сегнетоэлектриках при измерениях как без поля, так и в поле [8], а также индуцированной сильным полем (свыше 2 кВ/см) аномалии в температурной зависимости низкочастотной диэлектрической проницаемости (индуцированный dc-полем переход из ERS в сегнетоэлектрическое состояние) [2, 3, 5, 8]. Фактически, в этих экспериментах обсуждается переход из ERS в NERS во внешнем dc-поле. Но при этом никогда не обсуждался вопрос, идентичны ли NERS, формирующиеся в процессе охлаждения системы в режимах ZFC и FC в слабых полях (менее 2 кВ/см), или в режимах FC и FH/ZFC в том же поле. С целью выяснения вопроса о том, существует ли различие между неэргодичными состояниями, развивающимися при изменении интенсивности dc-поля и/или условий охлаждения в режиме FC, была выполнена настоящая работа. В качестве объекта исследования был выбран модельный RFE со структурой перовскита  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (PMN), на котором проводились все известные в литературе эксперименты (см., например, [2, 4–6, 8–14]). По разным данным,  $T_f$  в PMN наблюдается в интервале от  $T = 200$  К до  $T = 220$  К [2, 5, 9, 13, 15].

Очевидно, что стандартные эксперименты, позволяющие обнаружить стекловидное состояние в ре-

лаксаторных сегнетоэлектриках, не могут быть использованы для выяснения указанного вопроса. В данной работе впервые исследованы температурные зависимости низкочастотной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'(T)$ , измеренной в режиме ZFH от  $T = 10$  К до  $T = 300$  К после разных условий предшествующего охлаждения системы в режиме FC: 1) охлаждение в поле от комнатной температуры до  $T = 10$  К, 2) охлаждение в поле от комнатной температуры до заданной температуры значительно ниже  $T_f$ , снятие dc-поля и последующее охлаждение в режиме ZFC до  $T = 10$  К и 3) охлаждение без поля от комнатной температуры до той же температуры ниже  $T_f$ , приложение того же поля и охлаждение в режиме FC до  $T = 10$  К. Такая последовательность приложения и снятия поля при охлаждении не использовалась ранее при исследовании ни спиновых и дипольных стекол, ни релаксаторных сегнетоэлектриков. Эксперименты, предложенные в работе для исследования  $\varepsilon'(T)$ , позволили наблюдать не только изменение поведения релаксаторной системы при переходе в NERS в области  $T_f$ , но и зависимость этих изменений от условий охлаждения в режиме FC и величины dc-поля. Они показали также ключевую роль разных режимов охлаждения (ZFC и FC) системы (даже в слабом поле) при переходе через  $T_f$  в формировании стекловидного NERS и предрасположенности этого состояния к развитию сегнетоэлектрического упорядочения и роль охлаждения до  $T = 10$  К в этих же режимах (ZFC и FC) при «обратном» переходе системы из NERS в ERS.

## 2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследования проводились на уникальном образце высокого оптического качества и структурного совершенства, вырезанном в виде прямоугольного параллелепипеда перпендикулярно кристаллографическим направлениям типа  $[100]_{cub}$ ,  $[011]_{cub}$  и  $[0\bar{1}1]_{cub}$ . Размеры образца составляли соответственно  $1.85 \times 5 \times 4$  мм<sup>3</sup>. Поскольку этот образец предназначен в дальнейшем для оптических измерений, какие-либо изменения его размеров были нежелательны. По этой причине при измерении диэлектрической проницаемости  $\varepsilon'(T)$  максимальное постоянное электрическое поле не превышало 3 кВ/см. На параллельные  $(100)_{cub}$  поверхности были нанесены электроды из серебряной пасты. При измерении диэлектрической проницаемости слабое измерительное поле ( $E_{ac} \approx 5.41$  В/см) и поле смещения ( $0 \leq E_{dc} \leq 3$  кВ/см) прикладывались в направлении



**Рис. 1.** Температурная зависимость диэлектрической проницаемости монокристаллического образца PMN в направлении  $[100]$ , измеренной при нагревании от 10 до 300 К со скоростью 1.5 К/мин для нескольких значений частоты (0.63, 10, 100, 630 и 2511 кГц, сверху вниз) после разных условий охлаждения в поле  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см: а) после охлаждения в режиме ZFC от комнатной температуры до  $T = 10$  К. Вставка: частота 10 кГц, режим ZFC (верхняя кривая) и режим ZFN/ZFC (нижняя кривая); б) после охлаждения в режиме FC от комнатной температуры до  $T = 10$  К; в) после охлаждения в режиме FC от комнатной температуры до  $T = 120$  К, снятия поля и охлаждения в режиме ZFC до  $T = 10$  К; г) после охлаждения в режиме ZFC от комнатной температуры до  $T = 120$  К, приложения поля и охлаждения в режиме FC до  $T = 10$  К. В дальнейшем эта последовательность условий охлаждения указывается в подписях к рисункам как ZFC до 10 К, ZFN/ZFC, FC до 10 К, FC до 120 К и ZFC до 120 К, соответственно

$[100]_{cub}$ . После выключения dc-поля образец сначала «закорачивался» для снятия остаточного поверхностного заряда.

Охлаждение образца в режимах FC и ZFC всегда начиналось от  $T = 320$  К, т. е. от температуры, достаточно высокой, чтобы «стереть» все эффекты предыдущих измерений [2, 4, 5]. Верхний предел температуры предопределялся свойствами материала держателя образца в криостате Oxford Instrument.

Кроме того, после окончания каждого предшествующего цикла измерений («охлаждение–нагревание») образец сначала выдерживался при  $T = 300$  К не менее 10 ч. Низкочастотный диэлектрический отклик в диапазоне частот от 250 Гц до 3 МГц измерялся в режиме ZFN от  $T = 10$  К до  $T = 300$  К с помощью программируемого емкостного моста высокой чувствительности hp-4192A при медленном нагревании со скоростью 1.5 К/мин. Температура об-

разца стабилизировалась с точностью  $\pm 0.05$  К. Точность измерения действительной части диэлектрической проницаемости  $\epsilon'(T)$  была не ниже 0.1%. Это позволяло обнаружить и исследовать относительно слабые изменения диэлектрического отклика релаксаторной системы как в области  $T_f$ , так и в NERS ( $T < T_f$ ).

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

#### 3.1. Диэлектрическая проницаемость и диэлектрические потери, измеренные в режиме ZFH

Типичные кривые  $\epsilon'(T)$  и  $\epsilon''(T)$  для PMN после разных условий охлаждения до  $T = 10$  К показаны соответственно на рис. 1 и 2. Здесь мы впервые сравниваем  $\epsilon'(T)$  (а также  $\epsilon''(T)$ ), измеренные в одинаковых условиях, а именно, при нагревании от  $T = 10$  К до комнатной температуры. В принципе, это дает возможность наблюдать изменения в системе, вызванные разными условиями охлаждения в постоянном поле и увеличением поля. По этой причине на рис. 1а приведены также кривые  $\epsilon'(T)$ , измеренные в режиме ZFC до  $T = 10$  К и затем в режиме ZFH до комнатной температуры.

Во всех случаях температурные зависимости  $\epsilon'$  имеют характерный для релаксаторных сегнетоэлектриков широкий полидисперсионный максимум [9,13], который при понижении частоты растет и смещается в область низких температур (так,  $T_{max} \approx 270$  К на частоте 0.63 кГц). Максимум на кривых  $\epsilon''(T)$  при понижении частоты уменьшается и смещается в область низких температур (рис. 2), что также типично для этих систем. Никаких заметных изменений в положении и величине  $\epsilon'_{max}$  и  $\epsilon''_{max}$  при изменении условий FC не обнаружено. Известно [9,10,14,15], что сильная диэлектрическая дисперсия в релаксаторных сегнетоэлектриках, наблюдаемая в широком диапазоне частот от гигагерц до мегагерц в области  $T_{max}$  (соответствующей  $\epsilon'_{max}$  и  $\epsilon''_{max}$ ), является следствием термического замедления динамики полярных нанокластеров, зарождающихся при  $T_{Burns} \gg T_{max}$ . Но никакого фазового перехода в сегнетоэлектрическое состояние при  $T_{max}$  не происходит. Относительный сдвиг кривых  $\epsilon'(T)$  в режимах ZFC и ZFH/ZFC (рис. 1а, вставка) показывает, что динамика полярных нанокластеров в процессах ZFC и ZFH неодинакова.

Выше  $T_f \approx 216$  К (в режиме ZFH/ZFC) «замораживание» спектра времен релаксации снимается и диэлектрические потери при дальнейшем повышении температуры становятся зависимыми от час-

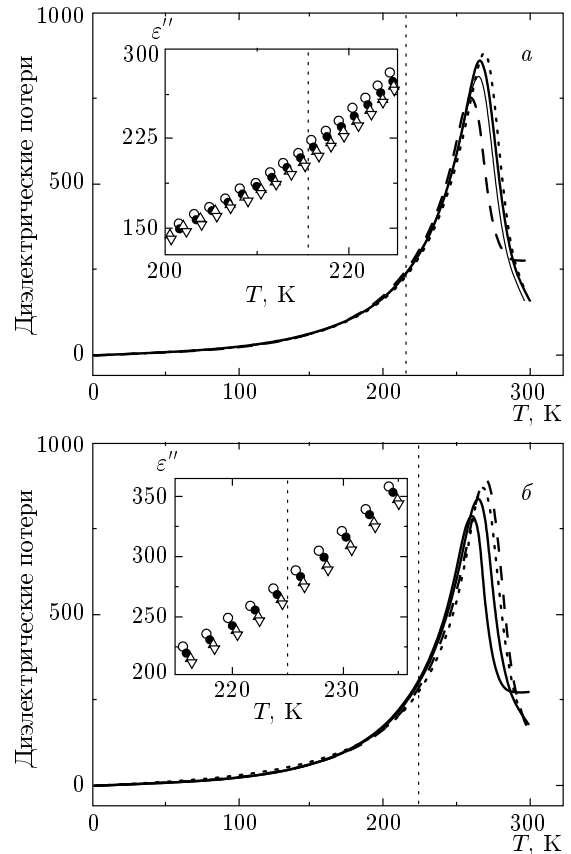
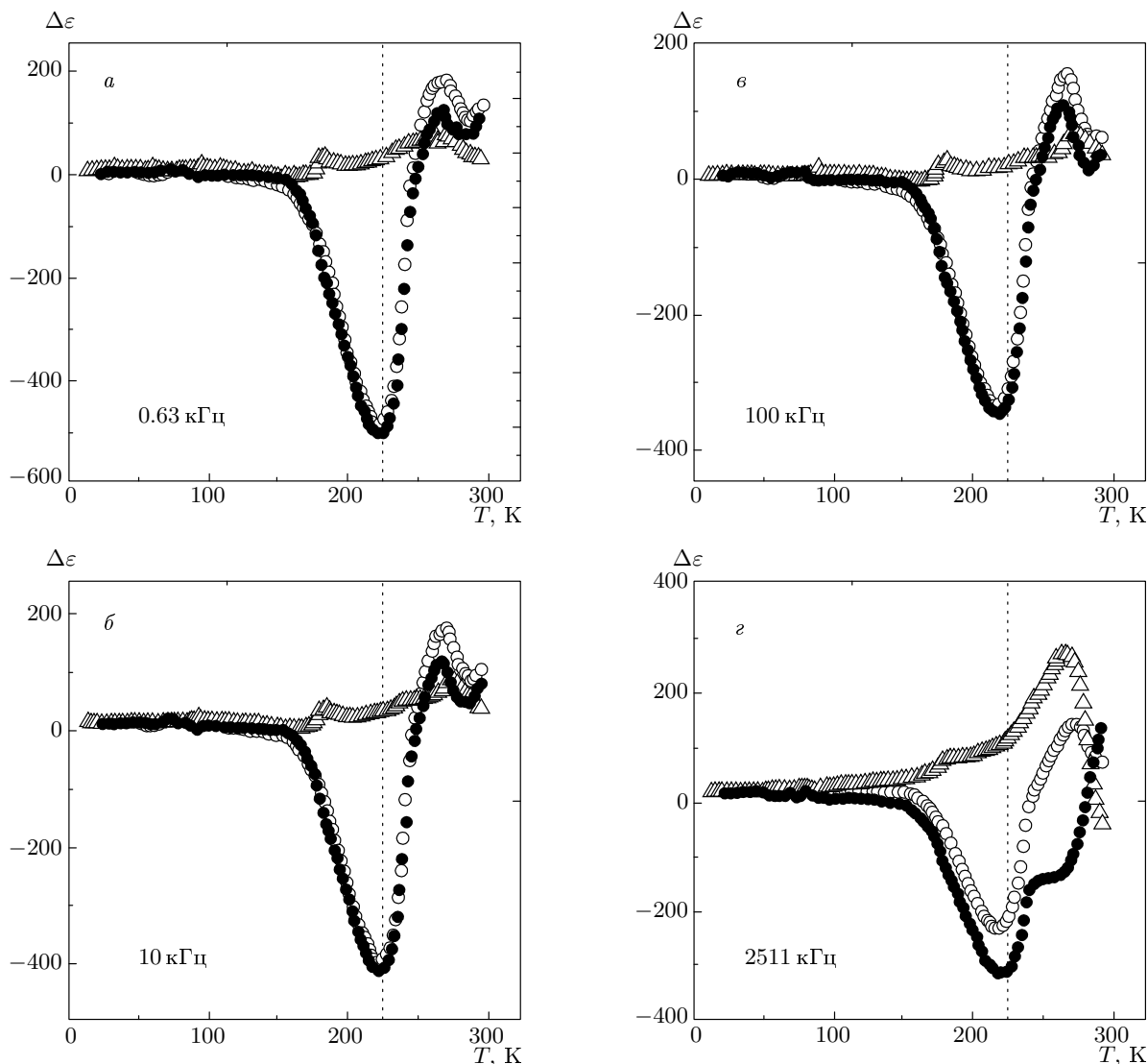


Рис. 2. Температурная зависимость диэлектрических потерь в PMN в направлении [100] для нескольких значений частоты (0.63, 10, 39 и 100 кГц, сверху вниз). Условия измерения те же, что на рис. 1, а) режим ZFC до  $T = 10$  К; б) режима ZFC до  $T = 120$  К; на вставках изображен фрагмент  $\epsilon''(T)$  в области  $T_f$ . Штриховая линия указывает температуру размораживания  $T_f$ , соответствующую переходу из NERS в ERS

тоты (рис. 2а). Так же ведет себя  $\epsilon''(T)$  после охлаждения системы в режиме FC в разных условиях (рис. 2б), но с той разницей, что «размораживание» состояния происходит не при  $T_f$ , а при  $(T_f + 9$  К) (в поле  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см), и при дальнейшем повышении температуры  $\epsilon''$  при изменении частоты изменяется медленнее (ср. вставки к рис. 2а и 2б). Поскольку поведение  $\epsilon''(T)$  для разных условий охлаждения в поле однотипно, на рис. 2 в качестве иллюстрации приведены  $\epsilon''(T)$  только для одного из режимов.

В температурных зависимостях  $\epsilon'$ , приведенных на рис. 1б,в,г, переход из NERS в ERS ни в области  $T_f \approx 216$  К, ни при  $(T_f + 9$  К) тоже никак не проявляется, как и в стандартных экспериментах, обсуждавшихся во Введении. Возможно, это является след-



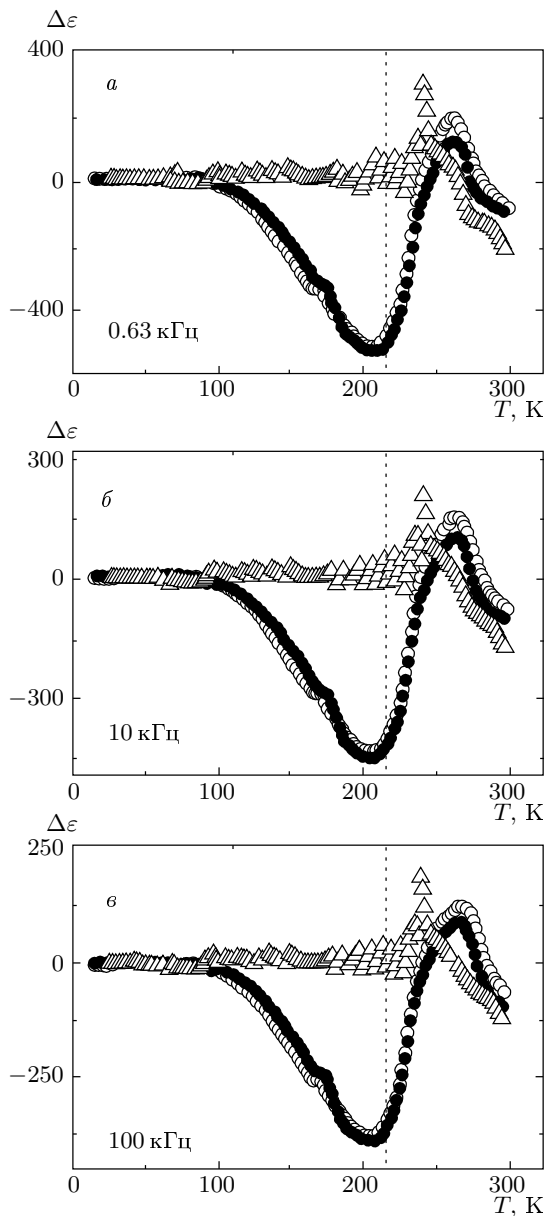
**Рис. 3.** Относительное изменение низкочастотной диэлектрической проницаемости  $\Delta\epsilon'(T)$  при изменении условий охлаждения для различных значений частоты,  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см:  $\circ$  — разница между  $\epsilon'(T)$ , измеренными после охлаждения в режиме ZFC до  $T = 120$  К и охлаждения в режиме FC до  $T = 120$  К,  $\Delta$  — ZFC до  $T = 120$  К и FC до  $T = 10$  К и  $\bullet$  — FC до  $T = 10$  К и FC до  $T = 120$  К

ствием того, что изменения  $\epsilon'(T)$  малы и составляют всего несколько процентов по сравнению с большой величиной  $\epsilon'_{max} \approx 10000$ . В таком случае, как показано в следующих разделах, анализ относительного изменения диэлектрической проницаемости,  $\Delta\epsilon'(T)$ , при изменении условий охлаждения позволяет получить необходимую информацию.

### 3.2. $\Delta\epsilon'(T)$ для разных режимов охлаждения

На рис. 3 показана разница между кривыми  $\epsilon'(T)$ , полученными при варьировании условий ох-

лаждения в одном и том же dc-поле для нескольких значений частоты, а на рис. 4 показана разница между каждой из этих кривых и  $\epsilon'(T)$  в режиме ZFH/ZFC. В целом, в обоих случаях характер изменения диэлектрической проницаемости имеет общие закономерности. При сравнении кривых, полученных после охлаждения в режимах FC и ZFC до 10 К,  $\Delta\epsilon'(T)$  проходит через минимум в области  $(T_f + 9$  К) либо  $T \sim T_f$  (кривые из темных и светлых точек на рис. 3 и 4). При сравнении кривых, полученных после охлаждения либо в режиме FC, либо в режи-



**Рис. 4.** Изменение диэлектрической проницаемости  $\Delta\varepsilon'(T)$  в режиме FC по отношению к режиму ZFH/ZFC для нескольких значений частоты,  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см;  $\circ$  — ZFC до  $T = 120$  К,  $\bullet$  — FC до  $T = 10$  К и  $\Delta$  — FC до  $T = 120$  К

ме ZFC до 10 К,  $\Delta\varepsilon'(T)$  незначительно изменяется с температурой и имеет слабую аномалию в области ( $T_f + 9$  К) либо  $T \sim T_f$  (кривые из треугольников на рис. 3 и 4). Поведение  $\Delta\varepsilon'(T)$  не зависит от частоты, но по абсолютной величине  $\Delta\varepsilon'$  в области минимума быстро увеличивается при понижении частоты. Отметим, что на кривых  $\Delta\varepsilon'(T)$  в области вблизи  $T_{max}$

(соответствующей  $\varepsilon'_{max}$  на данной частоте) тоже наблюдается максимум.

Существенным отличием в поведении  $\Delta\varepsilon'(T)$  для случаев, представленных на рис. 3 и 4, является положение минимума. При сравнении  $\varepsilon'(T)$  в режиме ZFH, соответствующих разным условиям охлаждения, минимум наблюдается при температуре «размораживания» стекольного состояния, характерной для dc-поля (рис. 3). Но при сравнении  $\varepsilon'(T)$  в режиме ZFH/FC и в режиме ZFH/ZFC минимум наблюдается при температуре, близкой к  $T_f$  (рис. 4), аналогично таким же «смешанным» условиям в предыдущих работах [2, 5, 15].

Рассмотренные в данном разделе особенности поведения  $\Delta\varepsilon'(T)$  показывают, что в формировании свойств NERS и соответственно диэлектрического отклика системы в этом состоянии, одинаково важную роль играют режимы охлаждения (ZFC и FC) системы (даже в слабом поле) как при переходе через  $T_f$ , так и до  $T = 10$  К при «обратном» переходе системы из NERS в ERS. Наблюдаемое изменение низкочастотного диэлектрического отклика является следствием существования очень широкого спектра распределения времен релаксации в стекольной фазе от  $10^{-12}$  с до макроскопических величин и очень медленных релаксационных процессов в нанодоменах с поляризацией, ориентированной полем.

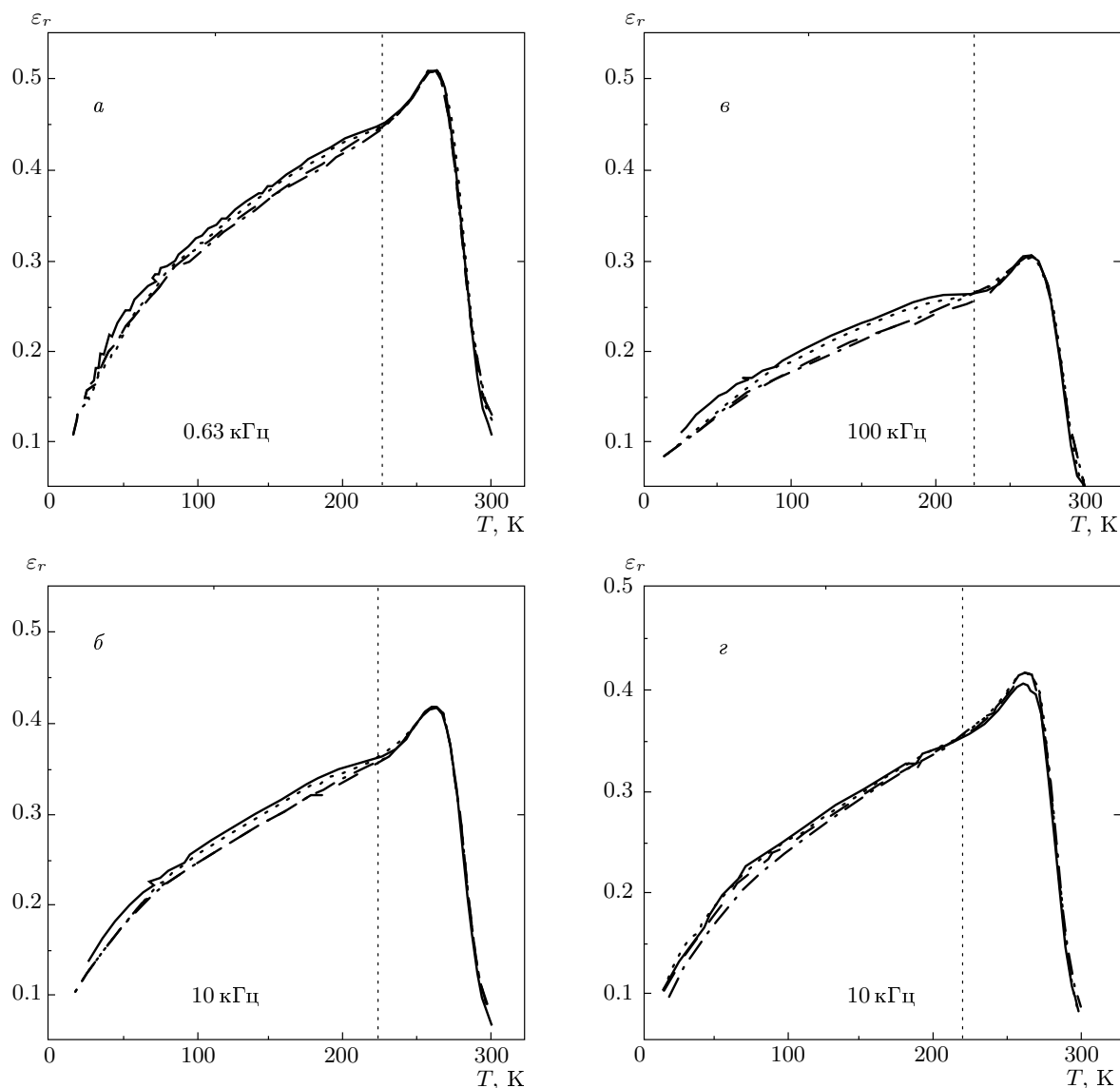
### 3.3. Приведенная проницаемость $\varepsilon'_r(T, f)$ для разных режимов охлаждения

Дополнительным свидетельством того, что наблюдаемые изменения  $\varepsilon'(T)$  при варьировании условий FC связаны с изменением характера формирующегося стекольного NERS, является поведение приведенной диэлектрической проницаемости, т. е.

$$\varepsilon'_r(T, f) = [\varepsilon(T, f) - \varepsilon(T, f_{max})] / \varepsilon(T, f),$$

где  $f$  — варьируемая частота в интервале  $0.5 \text{ Гц} < f < 100 \text{ кГц}$ ,  $f_{max} \gg 100 \text{ кГц}$ . Поскольку в релаксаторных сегнетоэлектриках в области  $T_{max}$ ,  $T_f$  и особенно при переходе в NERS скорость релаксации замедляется, физический смысл имеет рассмотрение релаксационных процессов на низких частотах (обычно от 100 кГц и ниже [2–5, 9, 10, 14]).

На рис. 5 и 6 показано изменение поведения  $\varepsilon'_r(T, f)$  в NERS для разных условий охлаждения. Данные представлены для нескольких значений частоты и dc-поля. Для сравнения на рис. 5 приведены также кривые  $\varepsilon'_r(T, f)$ , соответствующие режиму ZFH/ZFC. Ранее анализ  $\varepsilon'_r(T, f)$  не проводился ни

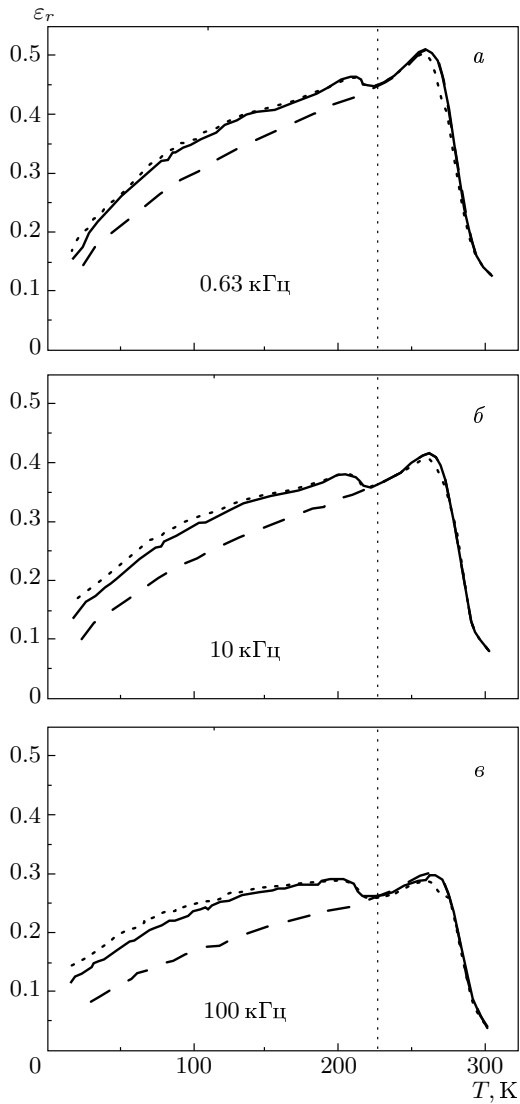


**Рис. 5.** Температурные зависимости приведенной проницаемости  $\epsilon'_r(T, f)$  для нескольких значений частоты и поля,  $f_{max} = 2511$  кГц: 1 — FC до  $T = 120$  К, 2 — FC до  $T = 10$  К, 3 — ZFC до  $T = 120$  К и 4 — ZFH/ZFC до  $T = 10$  К (сверху вниз). Рисунки а, б, в:  $E_{dc} = 1.52$  кВ/см, рис. г:  $E_{dc} = 0.8$  кВ/см. Пунктирная линия указывает температуру перехода из NERS в ERS в поле  $E_{dc}$

для релаксаторных сегнетоэлектриков, ни для спиновых и дипольных стекол.

В NERS кривые  $\epsilon'_r(T, f)$  «расходятся», причем чем сильнее поле, тем значительнее (рис. 5б, 5г и 6б). В ERS кривые независимо от условий FC и величины поля совпадают, но не при  $T_f$ , а при  $(T_f + \Delta T)$ . С увеличением поля  $\Delta T$  составляет примерно 3 К в поле 0.8 кВ/см, 9 К (1.52 кВ/см) и 11 К (2.66 кВ/см) (например, рис. 5а, 5г и 6а). Такой характер поведения  $\epsilon'_r(T, f)$  в NERS и при пе-

реходе из NERS в ERS не зависит от частоты, хотя  $\epsilon'_r(T, f)$  увеличивается при понижении частоты (рис. 5 и 6). Смещение  $(T_f + \Delta T)$  в сторону высоких температур указывает на то, что выше  $T_f$  остается значительный вклад в диэлектрический отклик системы медленно релаксирующих нанообластей с поляризацией, реориентируемой после снятия поля. Время релаксации этих областей сравнимо с временем продолжительности эксперимента после снятия поля ( $\sim 11200$  с или  $\omega \sim 0.1$  мГц на субмиллимет-



**Рис. 6.** Температурные зависимости приведенной проницаемости  $\epsilon'_r(T, f)$  для нескольких значений частоты в поле  $E_{dc} = 2.66$  кВ/см,  $f_{max} = 2511$  кГц: 1 – FC до  $T = 10$  К, 2 – FC до  $T = 120$  К и 3 – ZFC до  $T = 120$  К (сверху вниз)

ровой шкале). Фактически, это первый случай, показывающий существование вклада медленно релаксирующих полярных областей выше  $T_f$  в диэлектрическую проницаемость RFE. Ранее вклад таких областей выше  $T_f$  наблюдался только при исследовании остаточной поляризации при нагревании в режиме ZFH [1, 2, 6, 7, 11, 16–18].

Отметим еще одну особенность в поведении  $\epsilon'_r(T, f)$  в NERS при увеличении поля. В относительно слабом поле ( $E_{dc} < 2$  кВ/см) определяющую роль в изменении диэлектрического отклика

(и, соответственно,  $\epsilon'_r$ ) системы играют релаксационные процессы, связанные с реориентацией поляризации в нанобластях после снятия поля. В процессе охлаждения системы в режиме FC при переходе через  $T_f$  таких областей с ориентированной полем поляризацией образуется больше, чем при охлаждении в режиме ZFC и последующем приложении поля при  $T \ll T_f$ . С другой стороны, снятие поля при  $T \gg 10$  К (а не при 10 К) повышает предрасположенность системы к реориентации поляризации. Поэтому наибольшая приведенная проницаемость для режима ZFH наблюдается после охлаждения в режиме FC до  $T = 120$  К (а не FC до 10 К), а наименьшая — после охлаждения в режиме ZFC до  $T = 120$  К (рис. 5а,б,в, кривые 1–3). В достаточно сильном поле ( $E_{dc} > 2$  кВ/см), наряду с обычным увеличением  $\epsilon'_r(T, f)$  для разных условий охлаждения, происходит «инверсия» последовательности кривых, полученных после охлаждения в режимах FC до  $T = 10$  К и до  $T = 120$  К (рис. 6, кривые 1–3). Поскольку поле вызывает формирование в стекловом NERS областей с дальним сегнетоэлектрическим упорядочением [1–3, 5, 8, 16, 17], приведенная проницаемость системы после охлаждения в режиме FC при переходе через  $T_f$  увеличивается быстрее, чем после охлаждения в режиме ZFC, благодаря более высокой предрасположенности системы к формированию дальнего сегнетоэлектрического упорядочения. «Глубокое» охлаждение системы в режиме FC (до 10 К, а не до 120 К) увеличивает вклад таких областей в диэлектрический отклик при нагревании в режиме ZFH и, следовательно,  $\epsilon'_r(T, f)$ , приводя к инверсии последних. Строго говоря, формирующееся в dc-поле NERS перестает быть однородным стеклом и соответствует смешанному состоянию «стекло + сегнетоэлектрик» одновременно [8, 16].

### 3.4. $\Delta\epsilon'(E)$ для разных условий охлаждения

Для того чтобы проиллюстрировать, что характер NERS зависит не только от условий охлаждения в поле, но и от величины поля, на рис. 7 показано изменение расщепления между  $\epsilon^{ZFC}(T, f)$  и  $\epsilon^{FC}(T, f)$ , приведенными на рис. 1в и 1г, при увеличении поля. Учитывая данные предыдущих разделов,  $\Delta\epsilon'(E) = \epsilon^{ZFC} - \epsilon^{FC}$  при фиксированной температуре и частоте можно записать следующим образом:

$$\Delta\epsilon'(E) = \Delta\epsilon'_{ac} + \Delta\epsilon'_{orient} + \Delta\epsilon'_{FE},$$



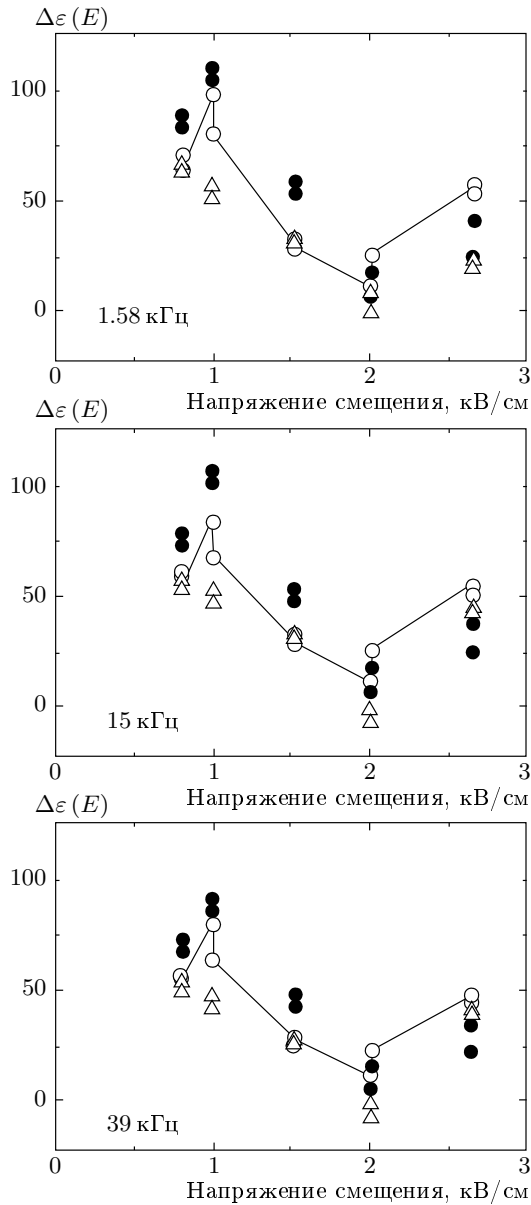


Рис. 7. Расщепление  $\Delta\epsilon'(E) = (\epsilon^{ZFC} - \epsilon^{FC})$  как функция поля для нескольких значений частоты и температуры ниже  $T_f$ :  $\bullet$  —  $T = 200$  К,  $\circ$  —  $170$  К и  $\Delta$  —  $150$  К

где  $\Delta\epsilon'_{ac}$  определяется релаксационными процессами в ас-поле,  $\Delta\epsilon'_{orient}$  определяется процессами, связанными с изменением ориентации поляризации нанообластей после снятия dc-поля, и  $\Delta\epsilon'_{FE}$  определяется процессами, связанными с формированием в NERS областей с дальним сегнетоэлектрическим упорядочением.

Как видно на рис. 7,  $\Delta\epsilon'(E)$  проходит через минимум в области критического поля  $E_{dc}^{crit} \approx 2$  кВ/см

и медленно увеличивается при дальнейшем увеличении поля. Уменьшение  $\Delta\epsilon'(E)$  в поле  $E < E_{dc}^{crit}$  подразумевает, что с увеличением поля происходит перераспределение относительного вклада  $\Delta\epsilon'_{orient}$  и  $\Delta\epsilon'_{FE}$  в  $\epsilon^{FC}(E)$  и  $\epsilon^{ZFC}$  в сторону постепенного увеличения  $\Delta\epsilon'_{FE}$ . Однако изменение относительного вклада  $\Delta\epsilon'_{orient}$  и  $\Delta\epsilon'_{FE}$  в случае  $\epsilon^{FC}(E)$  и в случае  $\epsilon^{ZFC}(E)$  происходит неодинаково. В поле  $E > E_{dc}^{crit}$  доминирует вклад  $\Delta\epsilon'_{FE}$  как в  $\epsilon^{FC}(E)$ , так и в  $\epsilon^{ZFC}(E)$ . Медленный рост  $\Delta\epsilon'(E)$  в поле выше  $E_{dc}^{crit}$  показывает, что для диэлектрического отклика системы при нагревании в режиме ZFN в NERS важны не только процессы, формирующиеся при первоначальном охлаждении системы в режимах ZFC и FC при переходе через  $T_f$ , но также процессы, происходящие после охлаждения системы в режимах ZFC и FC до  $T = 10$  К, т.е. до температуры, от которой начинается измерение. Начиная от  $E_{dc}^{crit}$ , рост  $\Delta\epsilon'(E)$  для разных температур в интервале существования NERS от  $T = 10$  К до  $T_f$  происходит тоже неравномерно (см. рис. 7). Неравномерность увеличения относительного вклада  $\Delta\epsilon'_{FE}$  в  $\Delta\epsilon'(E)$  как с увеличением поля при фиксированной температуре, так и при понижении температуры в фиксированном поле является подтверждением сильной неоднородности NERS, обладающего одновременно свойствами стекла и сегнетоэлектрика. Как следствие, при любом изменении условий охлаждения системы, увеличении dc-поля и понижении/повышении температуры формирующиеся NERS неидентичны.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования действительной части низкочастотного диэлектрического отклика модельной релаксаторной системы PMN в термических и электрических режимах, предложенных в данной работе, были проведены для того, чтобы понять поведение  $\epsilon'(T)$  в RFE при переходе из NERS в ERS и природу NERS, формирующегося при изменении условий охлаждения.

Сравнительный анализ  $\epsilon'(T, f)$ , измеренных в одинаковых условиях нагревания от 10 К до комнатной температуры после разных предшествующих условий охлаждения, показал, что  $\Delta\epsilon'(T)$  и  $\epsilon'_r(T, f)$  претерпевают значительные изменения при переходе из NERS в ERS при  $(T_f + \Delta T)$ , а не  $T_f$ . Смещение  $(T_f + \Delta T)$  в сторону высоких температур при увеличении поля связано с тем, что выше  $T_f$  в диэлектрический отклик системы дают значительный вклад медленно релаксирующие нанообласти ( $\tau \sim 11200$  с

или  $\omega \sim 0.1$  мГц на субмиллиметровой шкале) с поляризацией, реориентируемой после снятия поля. Фактически, это первый случай, когда наблюдается вклад медленно релаксирующих полярных областей в диэлектрическую проницаемость релаксаторного сегнетоэлектрика выше  $T_f$ . Ранее вклад таких областей выше  $T_f$  наблюдался только при исследовании остаточной поляризации при нагревании в режиме ZFN.

Показано, что формирование NERS является многопараметрическим процессом, зависящим от условий охлаждения, величины dc-поля, предшествующего охлаждению системы в режимах ZFC и FC при переходе через  $T_f$ , а также в температурном интервале  $T \ll T_f < 10$  К и «глубины» охлаждения в режиме FC в NERS (до  $T = 10$  К или до произвольной фиксированной температуры  $T \ll T_f$ ). Изменение этих параметров приводит к формированию неидентичных NERS. При увеличении поля NERS становится неоднородным и обладает одновременно свойствами стекла и сегнетоэлектрика.

Авторы благодарны П. А. Марковину за предоставление для исследований уникального образца PMN высокого оптического качества и структурного совершенства.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 04-02-16126).

## ЛИТЕРАТУРА

1. D. Viehland, J. F. Li, S. J. Jang et al., Phys. Rev. B **46**, 8013 (1992).
2. R. Sommer, N. K. Yushin, and J. J. van der Klink, Phys. Rev. B **48**, 13230 (1993).
3. R. Farhi, M. E. Marssi, J. L. Dellis et al., Ferroelectrics **176**, 99 (1996).
4. A. K. Tagantsev and A. E. Glazounov, Appl. Phys. Lett. **74**, 1910 (1999).
5. A. K. Tagantsev and A. E. Glazounov, Phys. Rev. B **57**, 18 (1998).
6. A. Levstik, Z. Kutnjak, C. Filipič et al., Phys. Rev. B **57**, 11204 (1998).
7. Z. Kutnjak, C. Filipič, R. Pirc et al., Phys. Rev. B **59**, 294 (1999).
8. V. Bobnar, Z. Kutnjak, R. Pirc et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 5892 (2000).
9. D. Viehland, M. Wuttig, and L. E. Cross, Ferroelectrics **120**, 71 (1991).
10. D. Viehland, S. Jang, L. E. Cross et al., Phil. Mag. B **64**, 335 (1991).
11. D. Viehland, J. F. Li, S. J. Jang et al., Phys. Rev. B **46**, 8003 (1992).
12. K. Binder and A. P. Young, Rev. Mod. Phys. **58**, 801 (1986).
13. Г. А. Смоленский, В. А. Исупов, ДАН СССР **96**, 53 (1954).
14. E. V. Colla, E. Yu. Koroleva, N. M. Okuneva et al., J. Phys.: Condens. Matter **4**, 3671 (1992).
15. S. Kamba, M. Kempa, V. Bovtun et al., J. Phys.: Condens. Matter **17**, 3965 (2005).
16. N. N. Kolpakova, P. Czarnecki, W. Nawrociak et al., Phys. Rev. B **72**, 024101 (2005).
17. Н. Н. Колпакова, П. Чарнецки, ЖЭТФ **127**, 1091 (2005).
18. T. Granzow, Th. Woike, M. Wöhlecke et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 065701 (2004).