

Исследование сегнетоэлектрических свойств кристаллов ниобата бария-стронция методом сканирующей зондовой микроскопии

© Т.Р. Волк¹, Л.В. Симагина¹, Р.В. Гайнутдинов¹, Е.С. Иванова¹, Л.И. Ивлева², С.В. Митько³

¹ Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН, Москва, Россия

² Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

³ ЗАО «НТ-МДТ», Москва, Россия

E-mail: volk-1234@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 10 мая 2011 г.)

Исследованы сегнетоэлектрические свойства релаксорного сегнетоэлектрика $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ различных составов методом сканирующей зондовой микроскопии, а также макроскопическими поляризационными методами. Результаты измерения петель гистерезиса микро- и макроскопическими методами выявили частотную зависимость коэрцитивного поля в области $f = (0.03-250)$ Hz; с уменьшением частоты E_c регулярно уменьшается. При наблюдении кинетики доменов под действием постоянного напряжения, приложенного к зонду АСМ, обнаружено боковое движение доменных стенок под действием полей $E \ll E_c$. Этот результат качественно объясняет медленную, с гигантскими временами, релаксацию поляризации в $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 09-02-00969а и 11-02-00888а), а также программы ОФН РАН „Физика новых материалов и структур“.

1. Введение

В настоящей работе представлены результаты исследования сегнетоэлектрических свойств кристаллов $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN-x) методом сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ) в совокупности с измерениями макроскопическими (поляризационными) методами. Работа стимулирована несколькими причинами. В целом изучению сегнетоэлектрических процессов на микро- и наноскопическом уровне посвящено весьма ограниченное число работ. Одним из инструментов таких исследований является наблюдение динамики микро- и нанодоменов под действием постоянного напряжения, приложенного к зонду атомно-силового микроскопа (АСМ) [1]. Как показано нами ранее [2–4], SBN является одним из удобных лабораторных объектов для таких экспериментов, поскольку локальное переключение в этих кристаллах может быть реализовано под действием стандартных постоянных напряжений АСМ $U_{\text{DC}} \leq 10$ V. В этих условиях были записаны устойчивые регулярные 1D и 2D-микродоменные структуры различной конфигурации [3,4]. Кристаллы SBN относятся к релаксорным сегнетоэлектрикам, в которых процессы поляризации и переключения изучены явно недостаточно. Поэтому полученный материал информативен для понимания специфики динамики доменов в таких системах в целом. Исследование процессов поляризации в SBN представляет интерес для нелинейной оптики, поскольку SBN перспективен для реализации преобразования излучения на сегнетоэлектрических доменах в режиме фазового квазисинхронизма. Кроме того, в этих кристаллах об-

наружен эффект неколлинеарного (диффузного) преобразования излучения на неупорядоченных доменах (библиография в [5]), благодаря чему неупорядоченная доменная структура SBN часто служит модельным объектом для обсуждения параметрических процессов в неупорядоченных нелинейных средах [6]. В контексте задач нелинейной оптики необходимо проанализировать возможность управления параметрами микродоменной структуры (например, доменной плотностью и ее распределением) путем различных внешних воздействий. В работе сделана попытка сопоставления результатов наблюдения динамики доменов под действием поля зонда АСМ с макроскопическими процессами поляризации.

2. Исследуемые кристаллы и экспериментальные методики

Исследованы кристаллы конгруэнтного состава SBN-0.61, SBN-0.61 с примесью Nd (в дальнейшем SBN-Nd) и SBN-0.75. Кристаллы выращены модифицированным методом Степанова [7]. В SBN-Nd концентрация Nd_2O_3 в расплаве 0.25 wt% (0.29 mol%) соответственно). Интерес к составу SBN-Nd вызван тем, что в этих кристаллах наблюдалась генерация излучения на ионах Nd^{3+} и самоудвоение частоты генерации на присутствующих неупорядоченных доменах [8]. Все исследования микроскопическими и макроскопическими методами выполнены в идентичных неполяризованных („полидоменных“) образцах полярных срезов (001)

толщиной 0.15–0.5 mm. Для обеспечения идентичности исходного полидоменного состояния образцы перед выполнением всех экспериментов отжигались при $T > T_{\max}$ (где T_{\max} — температура максимума диэлектрической проницаемости ϵ_{33} на частоте 1 kHz). В исследуемых кристаллах SBN-0.61, SBN-0.61:Nd и SBN-0.75 $T_{\max} \approx 80, 69$ и 52°C соответственно.

Макроскопическими методами измерялись „квазистатические“ петли диэлектрического гистерезиса $P-E$ и процессы релаксации поляризации $P(t)$. Петли $P-E$ были получены в медленно меняющемся поле с периодами цикла в интервале от 3 до 45 min; изменение амплитуды поля осуществлялось ступенчато с шагом 5 V. Кинетика релаксации поляризации под действием внешнего приложенного поля и деполаризации после его выключения измерялась с применением оригинальной электрометрической методики, детально описанной в [9].

Эксперименты в АСМ проводились в следующих условиях. Измерения микроскопических петель гистерезиса и кинетики доменов под действием поля АСМ велись в режиме микроскопии пьезоэлектрического отклика (PFM). Аналогично [10], измерялся сигнал электромеханического отклика (ЭМО) H_ω , в данной геометрии пропорциональный пьезоэлектрическому коэффициенту d_{33} и тем самым остаточной поляризации P_r . Таким образом, при циклировании напряжения U_{DC} зонда АСМ наблюдаемая петля гистерезиса $H_\omega-U_{DC}$ качественно характеризует $P-E$ петлю. Детали режимов циклирования U_{DC} описаны ниже. Для измерения кинетики поляризационных процессов производилась запись микродоменов путем приложения постоянного напряжения U_{DC} между острием проводящего зонда, контактирующего с полярной поверхностью кристалла, и электродом нижней поверхности. Изменялись зависимость площади доменов S от U_{DC} (при фиксированных временах выдержки под напряжением $t_p = \text{const}$) и от t_p (при фиксированных напряжениях $U_{DC} = \text{const}$). Экспозиционные характеристики площади микродоменов $S(t)$ и $S(U_{DC})$ отражают соответствующие зависимости P_r . Более подробно используемая нами АСМ аппаратура и методика записи доменов описаны в [2–4]. Необходимо подчеркнуть, что при используемых экспозиционных режимах ($U_{DC} = \pm(1-10)$ V, $t_p = 2$ ms–5 min) записанные домены не являются сквозными, поскольку PFM-сканирование противоположной полярной поверхности не выявило доменов, проросших сквозь толщину образцов.

Для обсуждения сегнетоэлектрических свойств в условиях приложения напряжения к зонду АСМ необходима оценка величины пространственного распределения соответствующего локального поля. Для этих оценок предложены разные приближения [11,12]. Нами используется метод, разработанный авторами [11]. Острие зонда рассматривается как заряженная сфера, для которой, следуя [13], рассчитывается распределение электрического потенциала в полубесконечном анизотропном диэлектрике под внешним точечным зарядом.

Такому распределению потенциала соответствуют нормальная E_z и латеральная E_r компоненты поля (направленные соответственно вдоль полярной оси z и вдоль цилиндрической координаты r , лежащей в полярной плоскости (001) перпендикулярно z). Радиальное распределение компоненты E_z , т.е. ее спад вдоль неполярной координаты r относительно центра (точки проекции острия зонда на поверхность кристалла) описывается выражением (1) близким выражению, приведенному в [11]

$$E_z(r) = \frac{2Q_t}{(\sqrt{\epsilon_z \epsilon_r} + 1) \gamma [r^2 + (z/\gamma + R + \delta)^2]^{3/2}}, \quad (1)$$

где z — направление полярной оси, r — расстояние от острия зонда вдоль оси r , R — радиус закругления острия зонда, δ — его расстояние от поверхности, $C_t = Q_t/U_t$ — емкость системы острие–диэлектрический полубесконечный кристалл [14]

$$C_t = R \sin \alpha \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{\sqrt{\epsilon_z \epsilon_r} - 1}{\sqrt{\epsilon_z \epsilon_r} + 1} \right)^n / \sinh(n+1)\alpha, \quad (2)$$

α определяется из выражения

$$\cosh \alpha = 1 + \frac{\delta}{R}, \quad (3)$$

ϵ_z и ϵ_r — диэлектрические проницаемости кристалла вдоль полярного и неполярного направлений соответственно, $\gamma = \epsilon_z/\epsilon_r$. Для рассматриваемого случая $\delta = 0$, $R = 50$ nm. Для примера приведем оценки. Как следует из (1)–(3), величина поля E_z определяется величиной ϵ , т.е. зависит от состава. Для SBN-0.61 ($\epsilon_z = 900$, $\epsilon_r = 450$) значению $U_{DC} = 10$ V соответствует величина поля непосредственно под острием зонда $E_z = 22$ kV/cm. Для SBN-Nd ($\epsilon_z = 1200$, $\epsilon_r = 600$) эта же величина составляет $E_c = 16.5$ kV/cm. Применимость обсуждаемого приближения будет рассмотрена в следующем разделе.

3. Экспериментальные результаты

3.1. Петли диэлектрического гистерезиса

На рис. 1, *a, b* представлены петли гистерезиса $H_\omega-U$, наблюдаемые методом АСМ в исследуемых кристаллах. Эти зависимости, подобно [15], были получены путем приложения в данной точке кристалла цуга импульсов напряжения U_{DC} с меняющейся амплитудой от +10 до –10 V и затем от –10 до +10 V с шагом амплитуды 50 mV. Длительность импульсов напряжения t_p , постоянная для данного цикла, варьировалась от 4 до 1000 ms для разных циклов, интервал между импульсами — 10 ms. Параметры петель, полученных в различных точках образца, находятся в хорошем согласии. Из сравнения формы петель $H_\omega-U$ в кристаллах SBN-0.61, SBN-0.61:Nd и SBN-0.75 (рис. 1, *a*), в соответствии с

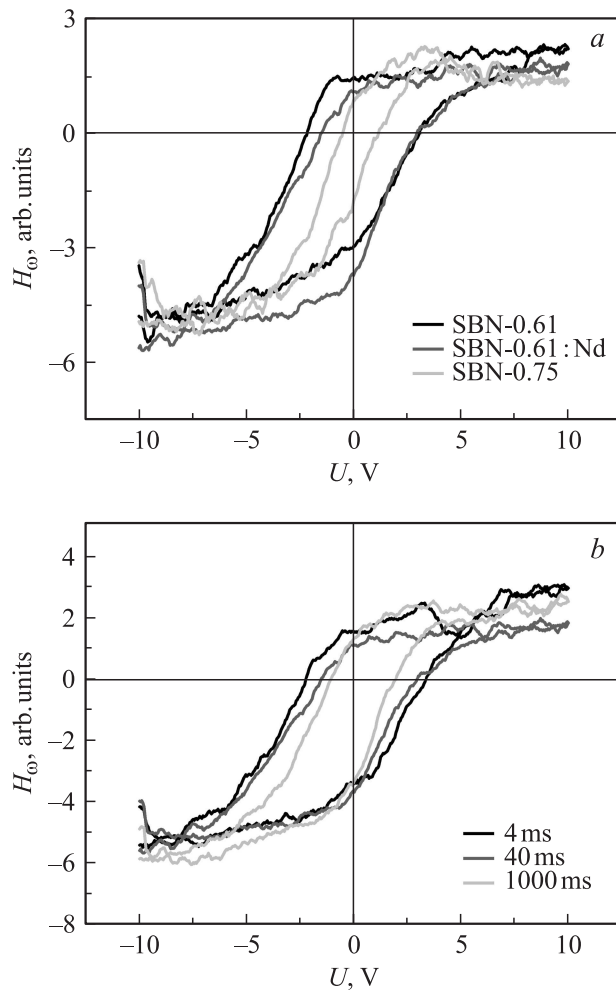


Рис. 1. Петли $H_\omega-U$ гистерезиса в кристаллах SBN различных составов для длительности импульса 40 мс (*a*) и в кристаллах SBN-Nd при различных длительностях импульса (*b*).

данными [16] видно последовательное уменьшение величины коэрцитивного поля E_c , обусловленное снижением T_{\max} в этом ряду составов.

На основе выражений (1)–(3) из петель $H_\omega-U$ гистерезиса были рассчитаны величины E_c , определяемые из полуширины петли. Расчеты проведены для петель, полученных при различных длительностях импульса поля t_p . Как видно из рис. 1, *b*, амплитуда петлей, т.е. величина переключаемого заряда практически не зависит от t_p . Значения E_c для одного и того же состава обнаруживают зависимость от длительности импульса поля и с увеличением t_p регулярно уменьшаются. В левых колонках таблицы приведены E_c , рассчитанные из $H_\omega-U$ петлей гистерезиса для t_p в интервале от 4 до 1000 мс.

Сопоставим петли пьезоэлектрического гистерезиса при микроскопических измерениях с макроскопическими петлями диэлектрического $P-E$ гистерезиса (рис. 2), полученными в квазистатических полях при повторении полевых циклов (цифры у кривых рис. 2 обо-

значают последовательность циклов). В данной работе мы не обсуждаем хорошо известные особенности макроскопических $P-E$ петель гистерезиса в кристаллах SBN (незамкнутость петли при прохождении первого цикла поля, асимметрия по оси P , деградация, т.е. уменьшение переключаемого объема при повторении циклов, и т.д.), неоднократно описанные при измерениях различными методами в низкочастотных полях (например, [9,17]) и качественно интерпретируемые как результат пиннинга (закрепления) доменов. При измерениях АСМ-методом $H_\omega-U$ петлей гистерезиса также отмечалось уменьшение их амплитуды при повторении цикла U_{DC} [2].

Величина E_c из петель $P-E$ гистерезиса, определяемая как полуширина петли для замкнутых циклов, измерялась для разных периодов цикла. Как указано в предыдущем разделе, при измерениях $P-E$ петли амплитуда поля изменяется ступенчато, т.е. после каждого шага амплитуды кристалл выдерживается под действием поля в течение интервала времени t_{fix} , определяемого периодом цикла. Таким образом, зависимость E_c от периода цикла означает зависимость от t_{fix} . Для используемых периодов от 3 до 45 мин $t_{\text{fix}} = 2-30$ с соответственно. Значения E_c , полученные для разных t_{fix} , приведены в правых колонках таблицы; с ростом t_{fix} величина E_c уменьшается. На рис. 3 представлен суммарный результат микро- и макроскопических измерений E_c для кристалла SBN-Nd. Квадратами показана зависимость E_c от длительности импульса t_p , рассчитанная из АСМ-петель гистерезиса, а звездочками — от времени выдержки под полем t_{fix} при измерениях макроскопических $P-E$ петель.

Таким образом, совокупность микро- и макроскопических измерений выявляют регулярное уменьшение E_c с уменьшением частоты ($f = 1/t_p$ и $1/t_{\text{fix}}$ для АСМ- и макроскопических измерений соответственно) $f = (250-0.033)$ Hz. Наблюдаемая корреляция результатов интегральных и микроскопических измерений удивитель-

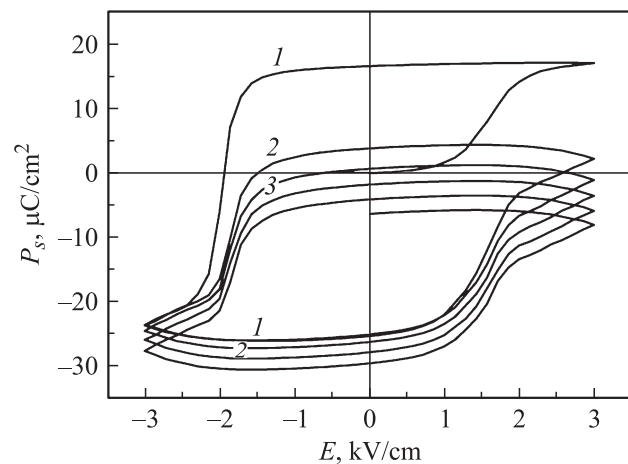


Рис. 2. Петли гистерезиса в кристаллах SBN-Nd, измеренные на частоте $f = 2 \cdot 10^{-4}$ Hz (цифры у кривых обозначают последовательность полевого циклирования).

Зависимость коэрцитивного поля E_c от длительности импульса t_p поля, приложенного к зонду АСМ, и от длительности выдержки под полем t_{fix} при измерениях диэлектрического гистерезиса в медленно меняющемся (квазистатическом) поле

Состав	E_c , kV/cm (данные АСМ)				E_c , kV/cm ($P-E$ петли гистерезиса)			
	t_p				t_{fix}			
	4 ms	40 ms	400 ms	1000 ms	2 s	5 s	15 s	31 s
SBN-0.61		5.4	3.78	3.1				
SBN-Nd	4.5	3.56	2.76	2.4	2.05	1.74	1.8	1.7

тельна, поскольку при АСМ-экспериментах петля $H_\omega-U$ гистерезиса измеряется в области порядка диаметра зонда (≈ 50 nm). На основании зависимости (рис. 3) можно заключить, что величина E_c в SBN-Nd стремится к некоторому равновесному значению $E_c = 1.7-1.8$ kV/cm при временах выдержки под полем ≥ 10 s. Подобная низкочастотная дисперсия E_c в релаксорных сегнетоэлектриках отмечалась ранее в литературе. В кристаллах PMN-PT 70/30 при измерении петель $P-E$ гистерезиса наблюдалось увеличение E_c с ростом частоты поля от 0.01 до 10 Hz [18]. В кристаллах SBN-0.75 при измерениях переключения методом диффузной генерации второй гармоники (ГВГ) также отмечено увеличение E_c с уменьшением длительности импульса переполаризующего поля от 10 до 0.01 s [19]. Более того, в кристаллах SBN-0.66 mol% Ce, обладающих очень сильно размытым фазовым переходом, т.е. наиболее выраженными релаксорными свойствами, зависимость параметров петли гистерезиса от периода полевого цикла проявлялась вплоть до периодов порядка десятков часов (т.е. частот в интервале $f = 10^{-4}-10^{-6}$ Hz) [17]. Следует отметить, что хорошее количественное согласие величин E_c , измеренных макро- и микроскопическим методами, свидетельствует о применимости используемого метода

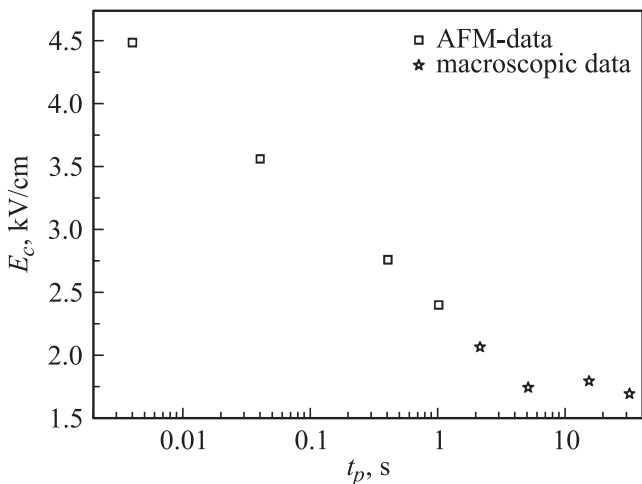


Рис. 3. Зависимость коэрцитивного поля E_c от длительности импульса при измерениях петель $H_\omega-U$ гистерезиса (квадраты) и при измерениях $P-E$ в квазистатическом поле (звездочки).

расчета поля под зондом АСМ [11,13,14] и обосновывает справедливость оценок поля в следующем разделе.

3.2. Процессы поляризации

В этом разделе представлены результаты наблюдений разрастания доменов под действием поля зонда АСМ, сопоставленные с данными по кинетике поляризации $P(t)$.

Под действием напряжения U_{DC} , приложенного к зонду АСМ, кинетика домена в SBN [2-4] выглядит как изотропное расширение поляризованной области круглой формы в сечении. Были измерены зависимости площади домена S от времени выдержки под полем t_p при фиксированном значении U_{DC} . На рис. 4, а приведены зависимости $S(t_p)$ в кристалле SBN-Nd для $U_{\text{DC}} = 8$ и 10 V в интервале времен экспозиции $t_p = (0.03-60)$ s. Экспериментальные детали этих измерений описаны в [2-4]. Отметим, что, согласно результатам измерений в других сегнетоэлектриках, общих закономерностей в экспозиционных зависимостях $S(t_p)$ под действием поля АСМ не имеется; вид этих кривых различается, например, для разных толщин одного и того же материала [20].

Из $S(t_p)$ была рассчитана средняя скорость расширения домена в зависимости от расстояния r от острия зонда вдоль поверхности образца $V_{\text{DW}} = \Delta r_i / \Delta t_p^i$, где $\Delta r_i = r_{2i} - r_{1i}$ — разница радиусов доменов при увеличении времени выдержки под полем на $\Delta t_p^i = t_{p2}^i - t_{p1}^i$. Эти измерения микроскопическим методом подобны классическим экспериментам Миллера-Сэвейджа в BaTiO₃ [21] по измерениям средней скорости бокового смещения доменной стенки. Зависимость V_{DW} от расстояния от острия зонда для $U_{\text{DC}} = 10$ V показана на вставке рис. 4, а. Резкая немонотонность этой кривой обусловлена пространственной неоднородностью поля $E_z(r)$. По достижении некоторого расстояния $R \approx 120-140$ nm от острия зонда движение стенки резко замедляется. С дальнейшим ростом r , когда величина поля $E_z \approx 0.15-0.2$ kV/cm $\ll E_c$, домен продолжает расширяться, хотя и с очень малой скоростью. Из зависимости $V_{\text{DW}}(r)$, используя выражение (1) для пространственного распределения поля $E_z(r)$, получаем зависимость $V_{\text{DW}}(E_z)$ (рис. 4, б). Аппроксимируем $V_{\text{DW}}(E_z)$ активационным законом, описывающим боковое движение доменных стенок в средних полях в модельных

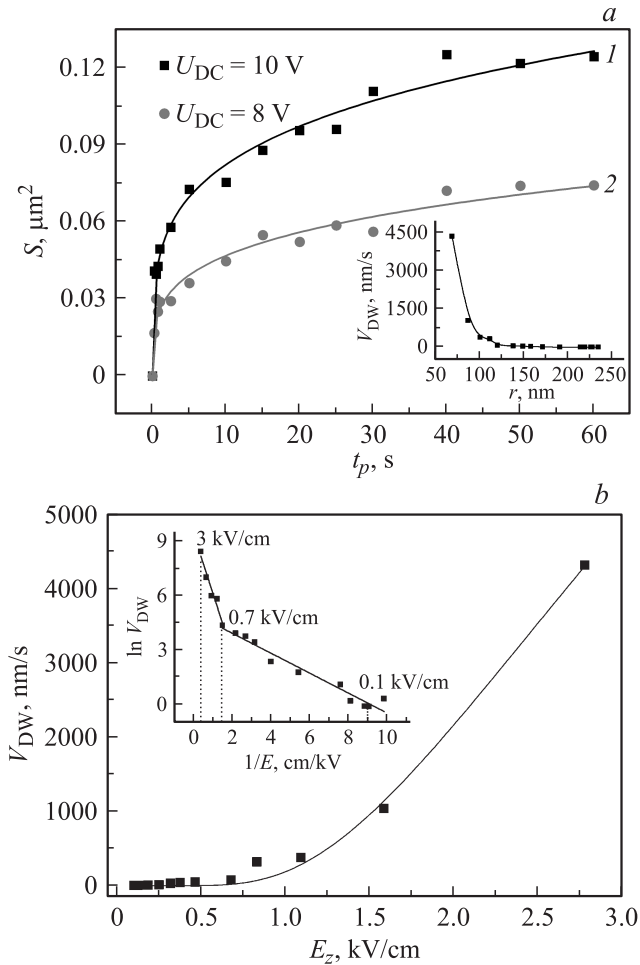


Рис. 4. Зависимость площади домена от времени экспозиции в SBN-Nd для $U_{CD} = 10$ и 8 V (кривые 1 и 2 соответственно), на вставке — зависимость скорости бокового движения доменной стенки V_{DW} от расстояния от центра зонда (a); зависимость скорости бокового движения доменной стенки от аксиальной составляющей поля под зондом E_z , рассчитанной из уравнений (1)–(3); на вставке — аппроксимация $V_{DW}(E_z)$ активационным законом (4) (b).

сегнетоэлектриках

$$V_{DW}(E) = V_{\infty} \exp(-\beta/E), \quad (4)$$

где β — поле активации. Зависимость $\ln V_{DW}(1/E)$ (вставка рис. 4, b) обнаруживает два участка с резко различающимися значениями полей активации $\beta^{HF} = 3.3\text{--}3.4$ kV/cm и $\beta^{LF} = 0.5$ kV/cm в областях $E > 0.8\text{--}1$ kV/cm и $E < 0.7$ kV/cm соответственно. Этот вид зависимости указывает на изменение механизма движения стенки в области поля $E \approx 0.5E_c$. Несмотря на очень грубое приближение проведенных расчетов (усреднение величин S и V_{DW}), значение β^{HF} находится в удовлетворительном согласии с величиной поля активации $\beta = 5.4$ kV/cm, полученной при измерениях импульсного переключения SBN оптическим методом [22].

Сопоставим кинетику $S(t_p)$ с макроскопическими измерениями $P(t)$. На рис. 5, a представлены зависимости $P(t)$ в кристаллах SBN-Nd в полях $E < E_c$ и $E > E_c$ (кривые 1–3 и 4 соответственно). Аналогично результатам для других составов SBN, процесс поляризации во всем интервале полей имеет релаксационный характер. Имеется определенное качественное сходство кривых $P(t)$ и $S(t_p)$. Прежде всего, под действием поля каждой амплитуды величина P (рис. 5, a) так же, как площадь домена, индуцированного полем АСМ (рис. 4, a), стремится к некоторому насыщению, определяемому величиной E . В первом приближении зависимости $S(t_p)$ и $P(t)$ аппроксимируются степенными функциями $Y = ax^m$. Как известно (например, [9,17]), спецификой поляризации SBN является медленная релаксация в полях как $E < E_c$, так и $E > E_c$ (рис. 5, a). Даже под действием полей $E \ll E_c$ кристалл поляризуется, но гигантскими временами релаксации. Наблюдаемое

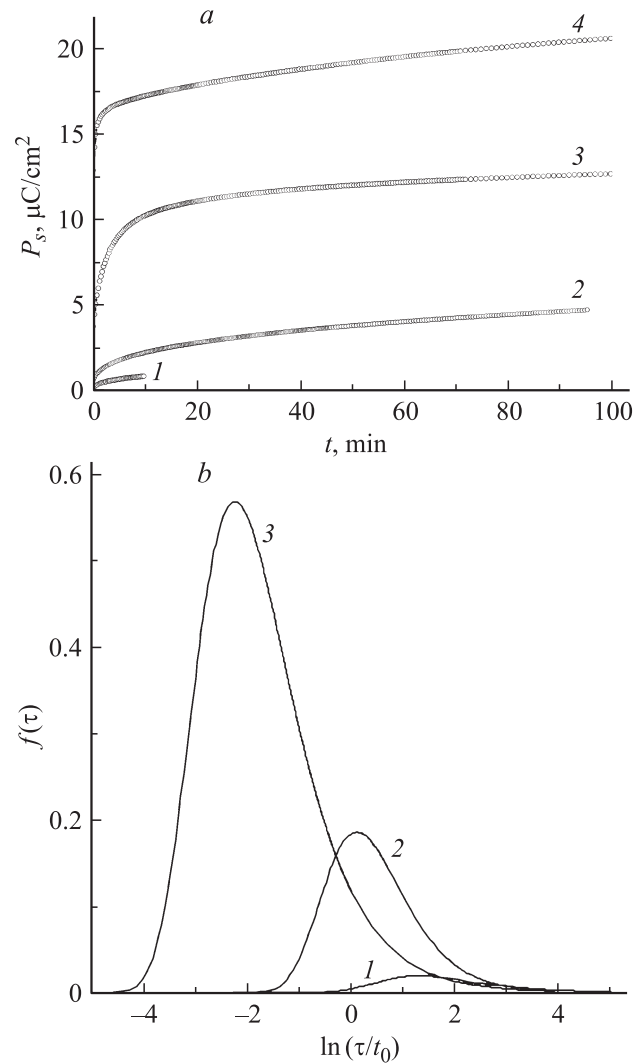


Рис. 5. Кинетика поляризации SBN-Nd в постоянных полях E различной амплитуды (a) и спектры времен релаксации, рассчитанные из (5) (b); $E = 0.5$ kV/cm — (1); 1 kV/cm — (2); 1.28 kV/cm — (3); 2 kV/cm — (4).

в $E \ll E_c$ очень медленное движение доменных стенок (рис. 4, *b*) дает качественное объяснение процессам поляризации под действием малых полей. Разумеется, невозможно искать количественную аналогию полученных зависимостей, в первую очередь, потому, что кривые $P(t)$ характеризуют кинетику поляризации объема, тогда как $S(t_p)$ отражает поведение поверхностного заряда.

Особенности поляризации (деполяризации) кристаллов SBN, иллюстрируемые рис. 5, *a* для SBN-Nd, неоднократно обсуждались [9,17]. Под действием $E < E_c$ и $E > E_c$, поляризация происходит термоактивационно, и лавиннообразный („надбарьерный“) процесс, сопровождающийся пиком тока переключения, не наблюдается вплоть до $E \gg E_c$ [23]. Причиной этой специфики является присутствие в объеме кристалла случайного неоднородно распределенного поля, связанного со структурной неоднородностью материала и приводящего к существованию широкого спектра энергетических барьеров. Для обсуждения экспериментальных зависимостей $P(t)$ развито два непротиворечивых подхода [9,17], основанных на представлении поляризации (деполяризации) сегнетоэлектрического релаксатора в виде аддитивного процесса термоактивационной (моноэкспоненциальной) релаксации независимых центров с различными временами релаксации. Согласно [9], кинетика процесса поляризации в SBN в широком интервале полей с хорошим приближением может быть аппроксимирована эмпирическим степенным законом

$$P(t) = (P_e - P(t))/(P_e - P_0) = 1/(1 + t/a)^n, \quad (5)$$

где P_0 — начальная поляризация, P_e — „равновесная“ поляризация (в насыщении); Re , a и n — свободные параметры. В рамках подхода [9], аппроксимация $P(t)$ функцией (5) позволяет получить распределение времен релаксации $f(\tau)$. Авторы [17] для аппроксимации тех же экспериментальных зависимостей используют универсальный экспоненциальный закон

$$P(t) = P_\infty - P \exp[-(t/\tau)^\beta], \quad (6)$$

где $\beta \leq 1$ (именно для этого случая процесс поляризации может быть представлен как суперпозиция моноэкспоненциальных релаксаций [24]), τ — наиболее вероятный интервал времен релаксации. Экспериментальные зависимости $P(t)$ были аппроксимированы функцией (5). На рис. 5, *b* приведены рассчитанные по методу [9] спектры времен релаксации $f(\tau)$. В полях $E < E_c$, так и при $E > E_c$, релаксация поляризации описывается широким спектром $f(\tau)$. При $E \geq E_c$ наблюдается резкое сужение $f(\tau)$, но процесс все еще характеризуется широким спектром времен релаксации, т.е. широким спектром времен переключения в отличие от модельных сегнетоэлектриков, где при $E > E_c$ кинетика поляризации описывается единственным временем переключения.

4. Обсуждение результатов

Результаты измерений сегнетоэлектрических свойств SBN макро- и микроскопическим методами выявили ряд особенностей процессов поляризации. Установлена низкочастотная зависимость E_c (полуширины петли диэлектрического гистерезиса). С увеличением частоты полевого цикла в интервале 0.03–250 Hz величина E_c регулярно увеличивается. При исследовании кинетики записи доменов методом АСМ обнаружено боковое движение доменной стенки под действием полей $E \ll E_c$. Этот процесс качественно объясняет релаксацию поляризации в SBN с гигантскими временами релаксации в малых полях [9,17].

До настоящего времени не существует достаточно обоснованной модели переключения релаксаторных сегнетоэлектриков. Все наблюдаемые особенности можно лишь качественно обсудить в рамках сценария, предлагаемого в работах Клееманна (ссылки в обзоре [25]). Следует отметить, что постулаты и терминология развиваемого подхода в большой степени повторяют основные представления теории движения дислокаций. Предполагается, что в одноосных релаксаторных сегнетоэлектриках динамика доменов в отличие от модельных сегнетоэлектриков контролируется движением доменных стенок, а не процессом нуклеации доменов. Скорость движения стенок затруднена эффектами пиннинга, причем в качестве центров пиннинга служат случайные поля, присутствующие в объеме релаксаторного сегнетоэлектрика. Уменьшение E_c при низких частотах авторы [17] объясняют снижением „тормозной силы“ центра пиннинга. Не исключая возможности такой качественной интерпретации низкочастотной зависимости E_c , мы можем предложить другое объяснение. В модели случайного поля Айзинга (RFIM), развиваемой Клееманном [25], предлагается неизменность случайного поля при внешних воздействиях, что вполне резонно для SBN, где случайные поля обусловлены разупорядочением ионов Va^{2+} и Sr^{2+} по катионным позициям [16] или допированием неизоэлектронными ионами [25]. Однако мы предполагаем, что при приложении внешнего поля структура случайного поля может измениться за счет экранирования темновыми носителями. Тогда времена пиннинга (депиннинга) будут зависеть от соотношения длительности приложения поля (t_p, t_{fix}) и времени диэлектрической релаксации τ_M ; для $t_p, t_{fix} > \tau_M$ реализуется полное экранирование, т.е. величина E_c выйдет за „квазиравновесное“ значение, соответствующее данной величине темновой проводимости σ_d . Для SBN-Nd ($\epsilon \approx 1200$, $\sigma_d \approx 0.2 \cdot 10^{-11} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$) оценка дает $\tau_M = \epsilon \epsilon_0 / \sigma_d \approx 1 \text{ min}$. Из рис. 3 видно, что величина E_c выходит на квазиравновесное значение при временах выдержки под полем $T_{fix} \geq 10 \text{ s}$, что разумно согласуется с оценкой времени экранирования. В пользу нашего предположения о влиянии экранирования на времена пиннинга свидетельствует работа [26], в которой сделан вывод о подавлении эффектов пиннинга

при фотоиндуцированном увеличении проводимости в кристалле SBN-Ce.

В модели RFIM постулируется [25], что механизм движения доменной стенки в одноосном релаксоре определяется величиной приложенного внешнего поля. В малых полях, недостаточных для депиннинга домена, движение доменной стенки происходит по механизму ползучести (creep); при превышении порогового поля депиннинга механизм движения стенки изменяется. Два участка на кривой зависимости $V_{DW}(E_z)$ (вставка рис. 4, *b*) с двумя различающимися значениями полей активации можно было бы интерпретировать как переход от движения стенки по механизму ползучести в слабых полях к активационному механизму при некотором пороговом поле. Действительно, имеется ряд работ, обсуждающих динамику доменов под действием поля АСМ в терминах ползучести [27,28]. Однако имеющихся в нашей работе результатов недостаточно для обсуждения механизма движения доменных стенок в малых полях. Единственным достоверным выводом является изменение механизма бокового движения стенки в некотором интервале полей $E \approx 0.5E_c$.

Список литературы

- [1] L. Kholkin, S.V. Kalinin, A. Roelofs, A. Gruverman. *Inm: Electrical and Electromechanical Phenomena at the Nanoscale*, Vol. I, Ed. by S. Kalinin and A. Gruverman. Springer, N.Y., (2007). P. 173.
- [2] R.V. Gainutdinov, T.R. Volk, O.A. Lysova, I.I. Razgonov, A.L. Tolstikhina, L.I. Ivleva. *Appl. Phys. B* **95**, 505 (2009).
- [3] Р.В. Гайнутдинов, Т.Р. Волк, О.А. Лысова, А.Л. Толстихина, Л.И. Ивлева. *Письма в ЖЭТФ* **90**, 330 (2009).
- [4] T.R. Volk, L.V. Simagina. R.V. Gainutdinov, A.L. Tolstikhina, L.I. Ivleva. *J. Appl. Phys.* **108**, 042 010 (2010).
- [5] P. Molina, M.O. Ramirez, L.E. Bausa. *Adv. Func. Mater.* **18**, 709 (2008).
- [6] X. Vidal, J. Martorell. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 013 902 (2006).
- [7] L.I. Ivleva, N.V. Bogodaev, N.M. Polozkov, V.V. Osiko. *Opt. Mat.* **4**, 168 (1995).
- [8] M.O. Ramirez, J.J. Romero, P. Molina, L.E. Bausa. *APB* **81**, 827 (2005).
- [9] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк, Д.И. Ивлева. *ЖЭТФ* **93**, 678 (2001).
- [10] А.В. Анкудинов, А.Н. Титков. *ФТТ* **47**, 1110 (2005).
- [11] G. Rosenman, P. Urenski, A. Agronin, Y. Rosenwaks, M. Molotskii. *Appl. Phys. Lett.* **82**, 104 (2003).
- [12] S.V. Kalinin, D.A. Bonnell. *Phys. Rev. B* **65**, 125 408 (2002).
- [13] J. Mele. *An. J. Phys.* **69**, 557 (2001).
- [14] G. van der Zwan, R.M. Mazo. *J. Chem. Phys.* **82**, 3344 (1985).
- [15] G. Zavala, J.H. Fendler, S. Trolrier-McKinstry. *J. Appl. Phys.* **81** 7480 (1997).
- [16] Ю.С. Кузьминов. *Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением*. Наука, М. (1982). С. 399.
- [17] T. Granzow, U. Doerfler, Th. Woike, M. Woehlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann. *PRB* **63**, 174 101 (2001).

- [18] D. Viehland, Y-H. Chen. *J. Appl. Phys.* **88**, 6696 (2000).
- [19] D.V. Isakov, T.R. Volk, M.S. Belsley, L.I. Ivleva. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 032 904 (2008).
- [20] I. Agronin, M. Molotskii, Y. Rosenwaks, G. Rosenmaan, B.J. Rodriguez, A.I. Kingon, A. Gruverman. *J. Appl. Phys.* **99**, 104 102 (2006).
- [21] R.C. Miller, A. Sabage. *Phys. Rev.* **115**, 1176 (1959).
- [22] T.R. Volk, D. Isakov, N. Ivanov, L.I. Ivleva, K. Betzler, A. Tunuagi, M. Woehlecke. *J. Appl. Phys.* **97**, 074 102 (2005).
- [23] Т.Р. Волк, Д.В. Исаков, Л.И. Ивлева, *ФТТ*, **45**, 1463 (2003).
- [24] R.V. Chamberlin. *Phase Transitions* **65**, 169 (1998).
- [25] W. Kleemann. *J. Material Science* **41**, 129 (2006).
- [26] T. Granzow, V. Doerfler, T. Woike, M. Woehlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann. *Europhys. Lett.* **57**, 597 (2002).
- [27] P. Paruch, T. Giamaarchi, T. Tybell, J.-M. Triscone. *J. Appl. Phys.* **100**, 051 6087 (2006).
- [28] N.A. Pertsev, A. Petraru, H. Kohlstedt, R. Waser, I.K. Bdikin, D. Kiselev, A.L. Kholkin. *Nanotechnology* **19**, 375 703 (2008).