

05

Низкочастотная релаксационная динамика монокристалла магнониобата свинца во внешних полях при 220 К

© А.Ю. Молоков¹, А.В. Филимонов², С.Б. Вахрушев^{1,3}, Е.Ю. Королева¹¹ ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, Россия² Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия³ Тихоокеанский государственный университет, Хабаровск, Россия

E-mail: molokov.ayu@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 26 мая 2026 г.

В окончательной редакции 1 июля 2026 г.

Принято к публикации 1 июля 2026 г.

Исследована низкочастотная релаксационная динамика монокристалла магнониобата свинца при температуре 220 К во внешних электрических полях от 0 до 10 кВ/см, приложенных в направлении $\langle 111 \rangle$. Обнаружена критическая релаксационная мода, диэлектрическая сила которой возрастает при приближении к индуцированному фазовому переходу. Переход из стеклоподобной в полярную фазу при 220 К происходит скачком и близок к переходу первого рода (в отличие от кроссовера между параэлектрической и сегнетоэлектрической фазами при пересечении линии Видома при 246 К).

Ключевые слова: релаксоры, магнониобат свинца, диэлектрическая спектроскопия.

DOI: 10.61011/PJTF.2026.20.63602.20783

Релаксоры представляют собой класс материалов, интерес к которым обусловлен как возможностью их использования для создания электромеханических преобразователей/актюаторов, устройств хранения энергии и электрокалорических устройств [1–3], так и в контексте фундаментальных исследований [4]. В отличие от классических сегнетоэлектриков, где наблюдается резкий пик диэлектрической проницаемости ϵ , релаксоры демонстрируют широкий частотно-зависимый максимум и высокое значение ϵ в широком температурном диапазоне [5]. Одной из проблем в понимании физики релаксоров до сих пор остается выявление природы их состояния при низких температурах.

Магнониобат свинца $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ (PMN) рассматривается как модельный релаксор. Диэлектрическая проницаемость PMN достигает десятков тысяч на низких частотах [6]. Наблюдаемый максимум ϵ не связан с переходом в полярное состояние, PMN остается в кубической фазе вплоть до 4 К [7]. PMN не претерпевает спонтанного сегнетоэлектрического (СЭ) фазового перехода (ФП), однако приложением внешнего электрического поля выше порогового можно индуцировать СЭ фазовый переход [8–10]. При охлаждении в полях выше порогового на низкотемпературном плече диэлектрического максимума появляется дополнительный пик, связанный с фазовым переходом.

В работе [7] была предложена E – T фазовая диаграмма PMN, которая впоследствии уточнялась для разных кристаллографических направлений [9–11]. Большинство исследований проводилось в постоянном внешнем поле при изменении температуры и на нескольких измерительных частотах. Поведение диэлектрического отклика при постоянной температуре при изменении

внешнего поля в широком диапазоне измерительных частот практически не исследовалось. В работе [12] изучалось влияние внешнего поля, приложенного в разных направлениях, на диэлектрическую проницаемость монокристаллов и керамики PMN на частоте 100 Нз. В [13] представлены результаты синхронных измерений сигнала пьезоотклика и электрической емкости при переключении поляризации PMN при постоянной температуре и изменении внешнего электрического поля, приложенного в направлении $\langle 111 \rangle$. Анализ диэлектрического отклика PMN на нескольких порядках измерительной частоты мог бы дать более полную картину эволюции низкочастотной динамики PMN при приложении внешнего электрического поля.

В работе [14] было исследовано поведение диэлектрических спектров монокристалла PMN при 246 К в приложенных в направлении $\langle 111 \rangle$ полях величиной от 0 до 7 кВ/см. Было выделено две релаксационные моды, по всей видимости связанные с динамикой полярных нанообластей: низкочастотная переориентационная и высокочастотная „breathing“ [14]. В параэлектрической (ПЭ) фазе наблюдалось быстрое ужесточение спектра (сдвиг максимума потерь в высокочастотную часть спектра), при котором характерное время релаксации низкочастотного процесса изменилось от 10 до 10^{-4} с. Было выдвинуто предположение, что при приложении полей выше 6 кВ/см в направлении $\langle 111 \rangle$ кристалл перешел в сегнетоэлектрическое состояние.

В работах [14,15] была рассмотрена эволюция диэлектрических спектров при переходе из ПЭ-фазы в СЭ-фазу при температурах выше температуры трикритической точки T_{cp} , при пересечении так называемой линии Видома [11] (см. фазовую диаграмму на вставке к рис. 1, b).

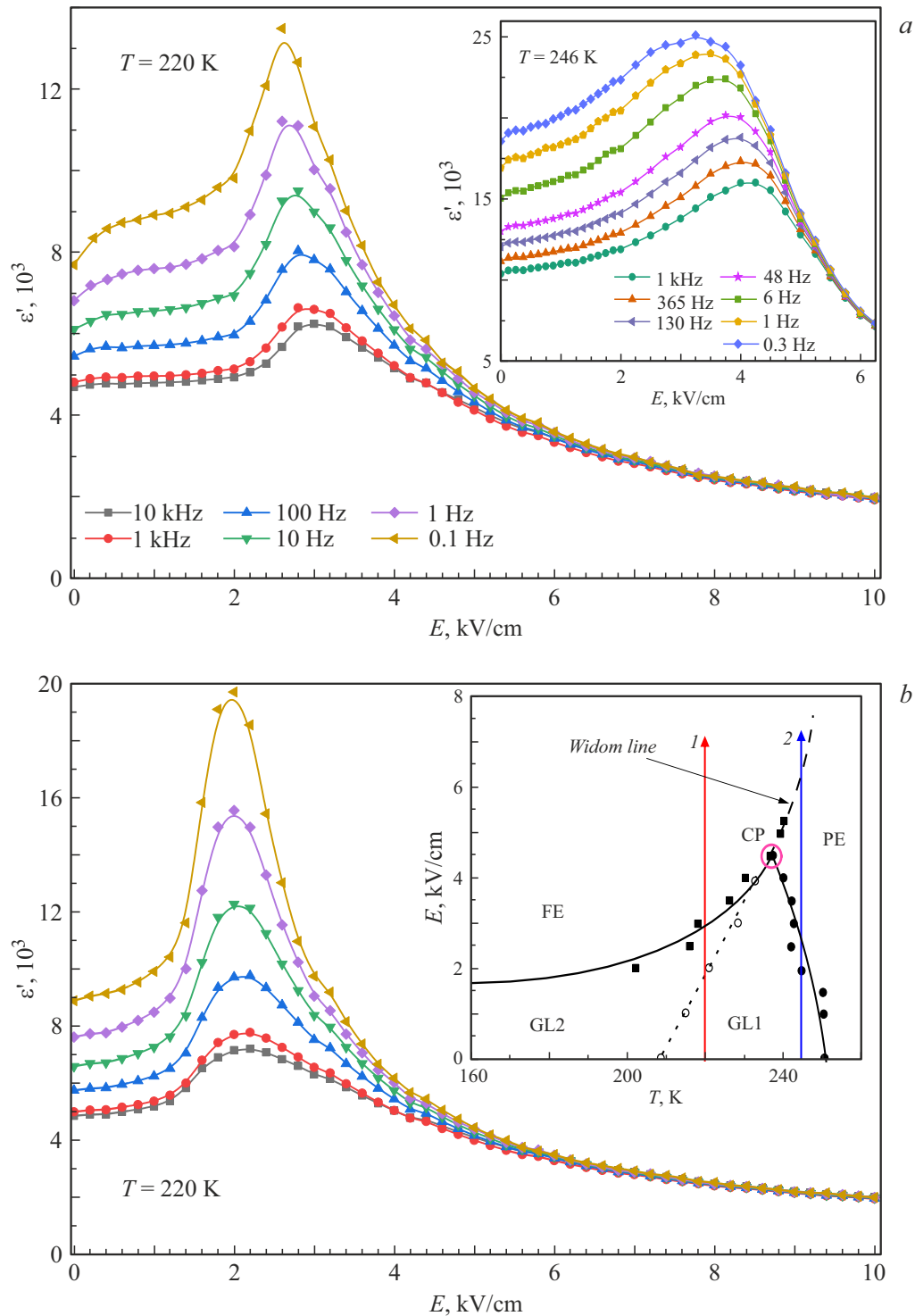


Рис. 1. Полевые зависимости диэлектрической проницаемости ϵ' монокристалла PMN <111> при 220 K на нескольких измерительных частотах. *a* — при увеличении внешнего поля. На вставке приведены аналогичные зависимости из работы [14] при 246 K. *b* — при уменьшении внешнего поля. На вставке — E - T фазовая диаграмма PMN <111>. PE — параэлектрическая фаза, FE — сегнетоэлектрическая фаза, GL1 и GL2 — устойчивое и неустойчивое стеклоподобные состояния соответственно. Сплошная линия между FE и GL — линия ФП первого рода. Штриховой линией показана линия Видома. CP — трикритическая точка. Стрелками 1 и 2 показаны линии, соответствующие измерению диэлектрического отклика по полям при температурах 220 и 246 K.

Переход через линию Видома происходит непрерывно, но с резким изменением свойств (кроссовер между ПЭ- и СЭ-состояниями). Ниже трикритической точки наблюдается ФП из стеклоподобной фазы в сегнетоэлектрическую (линия ФП первого рода на фазовой диаграмме на вставке к рис. 1, *b*), и критическая динамика при переходе должна принципиально отличаться от динамики при переходе через линию Видома. Цель настоящей работы состоит в исследовании эволюции диэлектрических спектров PMN во внешних полях в температурной области ниже температуры T_{cp} .

Исследования проводились на монокристалле PMN, выращенном в Институте физики Южного федерального университета. Образец был вырезан в виде пластинки размером $3 \times 2 \text{ mm}$ с толщиной 0.25 mm . Большие грани пластинки перпендикулярны направлению $\langle 111 \rangle$. На большие поверхности были нанесены золотые электроды с подслоем хрома. Диэлектрические исследования проводились на широкополосном диэлектрическом спектрометре с криосистемой Novocontrol BDS80 с блоком высокого напряжения HVB1000 (Novocontrol Technologies GmbH & Co. KG). Амплитуда измерительного напряжения 1 V . Величина постоянного электрического поля варьировалась в диапазоне $0\text{--}10 \text{ kV/cm}$. Частотный интервал измерений от 0.1 Hz до 10 kHz . Перед измерениями образец отжигался при температуре 450 K для устранения эффектов памяти, а затем охлаждался до заданной температуры без внешнего поля. Поле прикладывалось при температуре 220 K .

На рис. 1, *a* показаны полевые зависимости диэлектрической проницаемости ϵ' PMN при 220 K на нескольких измерительных частотах в режиме увеличения внешнего поля от 0 до 10 kV/cm , а на рис. 1, *b* — при уменьшении поля от 10 до 0 kV/cm . С увеличением поля (рис. 1, *a*) ϵ' растет, и этот рост выражен тем сильнее, чем ниже измерительная частота. При полях $E \approx 2.75\text{--}3 \text{ kV/cm}$ кривая $\epsilon'(E)$ проходит через максимум. В этой области наблюдается наиболее сильная частотная дисперсия. При дальнейшем увеличении поля диэлектрическая проницаемость резко снижается. Одновременно с этим уменьшается и частотная дисперсия, которая практически исчезает при $E \approx 7 \text{ kV/cm}$. В режиме уменьшения поля от 10 до 0 kV/cm (рис. 1, *b*) наблюдается похожее поведение, однако максимум $\epsilon'(E)$ смещается в область меньших полей ($2\text{--}2.5 \text{ kV/cm}$), а амплитуда пика больше. Таким образом, наблюдается заметный гистерезис по полю. Наблюдаемый пик диэлектрической проницаемости может быть связан с фазовым переходом в индуцированное СЭ-состояние. Это предположение хорошо согласуется с $E\text{--}T$ фазовой диаграммой PMN $\langle 111 \rangle$, представленной на вставке к рис. 1, *b* [9–11]. На фазовой диаграмме сплошная линия — линия фазового перехода первого рода. СР — трикритическая точка, которая завершает критическую линию сегнетоэлектрических переходов первого рода. Штриховая линия — линия Видома, область сверхкритических аномалий, исходящих из критической точки [11].

Стрелкой 1 показана линия на фазовой диаграмме, по которой мы проходим в настоящей работе (220 K), а стрелкой 2 — линия, исследованная в работе [14] (246 K).

Согласно фазовой диаграмме, при температуре 220 K в полях порядка 2.5 kV/cm кристалл PMN $\langle 111 \rangle$ претерпевает СЭ фазовый переход. Переход из стеклоподобного состояния в индуцированное сегнетоэлектрическое является фазовым переходом первого рода [11], что объясняет наблюдаемый гистерезис положения максимума $\epsilon'(E)$.

Чтобы сравнить характер полевых зависимостей $\epsilon'(E)$ для двух разных температур, на вставке к рис. 1, *a* представлены полевые зависимости ϵ' PMN $\langle 111 \rangle$ при температуре 246 K при увеличении внешнего поля из работы [14]. Видны качественные различия в характере этих зависимостей. При 246 K на полевых зависимостях $\epsilon'(E)$ наблюдается широкий частотно-зависимый максимум. В полях выше 4 kV/cm частотная дисперсия ϵ' резко уменьшается и практически полностью исчезает при $E \approx 6 \text{ kV/cm}$, где происходит переход в сегнетоэлектрическое состояние [14]. Изменение диэлектрической проницаемости при этом происходит плавно, так как мы пересекаем линию Видома на фазовой диаграмме (см. вставку к рис. 1, *b*), положение максимума зависит от измерительной частоты. Эти результаты подтверждают, что линия Видома в PMN соответствует кроссоверу динамики, а не ФП. При температуре 220 K картина принципиально иная. Вместо широкого „горба“ формируется узкий пик, положение которого слабо зависит от измерительной частоты ($2.75\text{--}3 \text{ kV/cm}$). На правом склоне пика частотная дисперсия сохраняется вплоть до полей $E \approx 7 \text{ kV/cm}$. На $E\text{--}T$ фазовой диаграмме PMN $\langle 111 \rangle$ видно, что при 220 K мы пересекаем линию фазового перехода первого рода из стеклоподобного состояния в сегнетоэлектрическое.

На рис. 2 представлены частотные зависимости диэлектрических потерь ϵ'' монокристалла PMN $\langle 111 \rangle$, измеренные при различных напряженностях внешнего поля при температуре 220 K . В полях $> 2.5 \text{ kV/cm}$ вид спектров существенно меняется. Для количественного анализа спектров была проведена их аппроксимация модельной функцией, позволяющей разложить спектр на несколько релаксационных процессов. Для описания релаксационных процессов использовалась функция Коула–Коула, позволяющая описать спектры, симметрично уширенные по сравнению с дебаевским:

$$\epsilon^*(\omega) = \frac{\Delta\epsilon_1}{(1 + (i\omega\tau_1)^{\alpha_1})} + \frac{\Delta\epsilon_2}{(1 + (i\omega\tau_2)^{\alpha_2})},$$

где $\Delta\epsilon = \epsilon_0 - \epsilon_\infty$ — диэлектрическая сила процесса (разница между статической диэлектрической проницаемостью и высокочастотной диэлектрической проницаемостью), τ — характерное время релаксации, α — коэффициент уширения спектра ($0 < \alpha \leq 1$, где $\alpha = 1$ — соответствует дебаевскому процессу), индексами 1 и 2 обозначены релаксационные

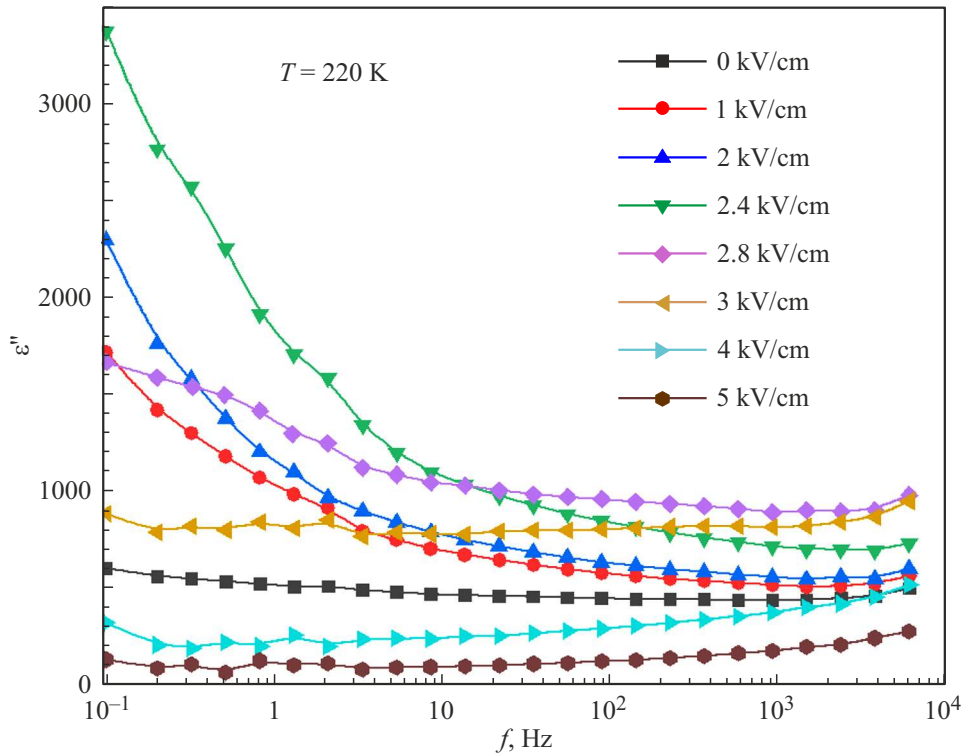


Рис. 2. Частотные зависимости диэлектрических потерь монокристалла PMN $\langle 111 \rangle$ в различных по величине внешних электрических полях при температуре 220 K.

процессы. Аппроксимация проводилась совместно как для действительной, так и для мнимой части ϵ для уменьшения ошибки. В результате удалось выделить два релаксационных процесса и получить полевые зависимости их параметров.

На рис. 3 приведены полевые зависимости диэлектрической силы $\Delta\epsilon$ выделенных релаксационных процессов. Индекс 1 (квадраты и треугольники) соответствует зависимостям, относящимся к низкочастотному релаксационному процессу, а индекс 2 (кружки и ромбы) — зависимостям, относящимся к высокочастотному процессу. В области $E \approx 2.5$ kV/cm на полевых зависимостях обоих процессов наблюдается разрыв, связанный с невозможностью корректного описания диэлектрических спектров вблизи точки фазового перехода первого рода. Характерная частота релаксации (обратное время релаксации $f = 1/\tau$) низкочастотного процесса во всем исследованном интервале полей находилась за пределами нашего частотного окна и была зафиксирована на уровне 10^{-3} Hz. Характерная частота релаксации высокочастотного процесса с увеличением поля плавно снижалась, а после фазового перехода постепенно увеличивалась.

Основной вклад в отклик в полях ниже 2.75 kV/cm вносит низкочастотный процесс. Наблюдается резкий рост $\Delta\epsilon$ этого процесса с увеличением поля вплоть до значения $E \approx 2.75$ kV/cm, при котором происходит фазовый переход в СЭ-фазу. После перехода $\Delta\epsilon$ скачком падает (примерно в 5 раз), после чего плавно уменьшается

при дальнейшем увеличении поля. Такое поведение существенно отличается от поведения низкочастотного релаксационного процесса в PMN при 246 K [13], где в слабых полях величина $\Delta\epsilon$ оставалась постоянной и затем начинала плавно убывать с ростом поля. Полевая зависимость $\Delta\epsilon_1$ может быть описана критической зависимостью вида $\epsilon'(E) \sim 1/(E - E_{cr})$ с $E_{cr} \sim 3.3$ kV/cm.

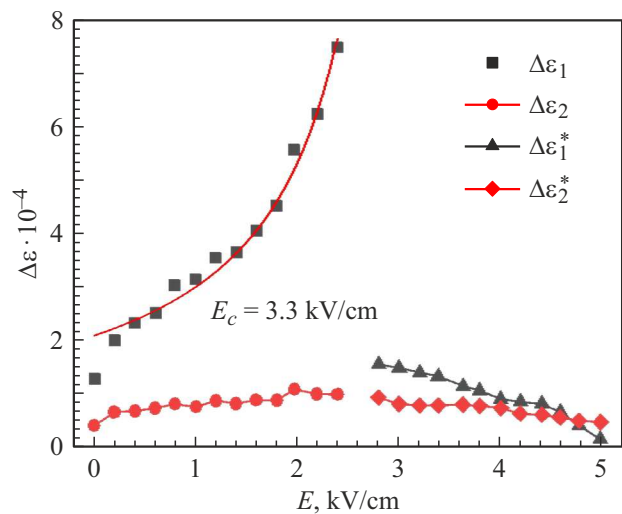


Рис. 3. Полевые зависимости диэлектрической силы $\Delta\epsilon$ низкочастотного ($\Delta\epsilon_1$, $\Delta\epsilon_1^*$) и высокочастотного ($\Delta\epsilon_2$, $\Delta\epsilon_2^*$) релаксационных процессов до ($\Delta\epsilon_1$, $\Delta\epsilon_2$) и после ($\Delta\epsilon_1^*$, $\Delta\epsilon_2^*$) фазового перехода.

Можно предположить, что низкочастотный релаксационный процесс в PMN при 220 К связан с сегнето-электрическим ФП. Характерное время релаксации во всем интервале полей находится за пределами нашего измерительного окна, т.е. превышает 10^3 с, что согласуется с литературными данными, в том числе и нашими [6], для температур ниже температуры фризинга. Резкого увеличения характерной частоты этого процесса в полях, которое было обнаружено при 246 К [14], не наблюдается.

Высокочастотный процесс вносит значительно меньший вклад в диэлектрический отклик до ФП. Его диэлектрическая сила $\Delta\epsilon_2$ остается практически постоянной во всем исследованном диапазоне полей и не обнаруживает заметной реакции на фазовый переход.

Таким образом, нами исследована низкочастотная релаксационная динамика монокристалла магнониобата свинца PMN при температуре 220 К (ниже трикритической точки на фазовой диаграмме) во внешних электрических полях, приложенных в направлении $\langle 111 \rangle$. Обнаружена критическая мода, $\Delta\epsilon$ которой расходится с $E_{cr} \sim 3.3$ кВ/см, связанная с фазовым переходом из стеклоподобной в полярную фазу. Продемонстрировано принципиальное различие влияния электрического поля, приложенного в направлении $\langle 111 \rangle$, на низкочастотную динамику монокристалла PMN при пересечении линии фазового перехода первого рода (при 220 К) и при пересечении линии Видома (при 246 К).

Финансирование работы

Работа С.Б. Вахрушева выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (проект № FEME-2024-0005).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.D. Bobic, M.M. Vijatovic Petrovic, B.D. Stojanovic, in *Magnetic, ferroelectric, and multiferroic metal oxides* (Elsevier, 2018), p. 233–249.
DOI: 10.1016/B978-0-12-811180-2.00011-6
- [2] R.A. Cowley, S.N. Gvasaliya, S.G. Lushnikov, B. Roessli, G.M. Rotaru, *Adv. Phys.*, **60** (2), 229 (2011).
DOI: 10.1080/00018732.2011.555385
- [3] Z. Wu, Z. Fan, W. Li, X. Chen, X. Huang, Q. Zhu, B. Tian, J. Jiao, C. Yang, A. Gao, C.-G. Duan, *Appl. Phys. Lett.*, **127** (26), 264101 (2025). DOI: 10.1063/5.0295247
- [4] C.W. Ahn, C.H. Hong, B.Y. Choi, H.P. Kim, H.S. Han, Y. Hwang, W. Jo, K. Wang, J.F. Li, J.S. Lee, I.W. Kim, *J. Kor. Phys. Soc.*, **68** (12), 1481 (2016). DOI: 10.3938/jkps.68.1481
- [5] L.E. Cross, *Ferroelectrics*, **76**, 241 (1987).
DOI: 10.1080/00150198708016945
- [6] E.V. Colla, E.Yu. Koroleva, N.M. Okuneva, S.B. Vakhruшев, *J. Phys.: Condens. Matter*, **4** (13), 3671 (1992).
DOI: 10.1088/0953-8984/4/13/026
- [7] N. De Mathan, E. Husson, G. Calvarn, J.R. Gavarri, A.W. Hewat, A. Morell, *J. Phys.: Condens. Matter*, **3** (42), 8159 (1991). DOI: 10.1088/0953-8984/3/42/011
- [8] E.B. Колла, С.Б. Вахрушев, Е.Ю. Королева, Н.М. Окунева, *ФТТ*, **38** (7), 2183 (1996). [E.V. Colla, S.B. Vakhruшев, E.Yu. Koroleva, N.M. Okuneva, *Phys. Solid State*, **38** (7), 1202 (1996).]
- [9] E.V. Colla, E.Yu. Koroleva, A.A. Nabereznov, N.M. Okuneva, *Ferroelectrics*, **151** (1), 337 (1994).
DOI: 10.1080/00150199408244758
- [10] X. Zhao, W. Qu, X. Tan, A.A. Bokov, Z.G. Ye, *Phys. Rev. B*, **75**, 104106 (2007). DOI: 10.1103/PhysRevB.75.104106
- [11] Z. Kutnjak, R. Blinc, Y. Ishibashi, *Phys. Rev. B*, **76** (10), 104102 (2007). DOI: 10.1103/PhysRevB.76.104102
- [12] A.E. Glazounov, A.K. Tagantsev, *Ferroelectrics*, **201** (1), 305 (1997). DOI: 10.1080/00150199708228381
- [13] А.Ф. Вакуленко, С.Б. Вахрушев, Е.Ю. Королева, *ФТТ*, **62** (10), 1670 (2020). DOI: 10.21883/FTT.2020.10.49917.103 [A.F. Vakulenko, S.B. Vakhruшев, E.Yu. Koroleva, *Phys. Solid State*, **62** (10), 1873 (2020).
DOI: 10.1134/S1063783420100340].
- [14] E.Yu. Koroleva, A.Yu. Molokov, S.B. Vakhruшев, *J. Adv. Dielectr.*, **13** (2), 2250021 (2023).
DOI: 10.1142/S2010135X22500217
- [15] E.Yu. Koroleva, Yu.N. Sotskova, A.Yu. Molokov, A.F. Vakulenko, N. Zhang, F. Li, S.B. Vakhruшев, *Ceram. Int.*, **49** (24), 40644 (2023). DOI: 10.1016/j.ceramint.2023.10.045