

УДК 537.226

©1995

О ПРОЦЕССАХ ПЕРЕПОЛЯРИЗАЦИИ В МАГНОНИОБАТЕ СВИНЦА — СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКЕ С РАЗМЫТЫМ ФАЗОВЫМ ПЕРЕХОДОМ

Н. Н. Крайник, Л. С. Камзина

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
(Поступила в Редакцию 12. июля 1994 г.)

Приводятся результаты исследований петель гистерезиса поляризации и петля тока переключения в сегнетоэлектрике с размытым фазовым переходом (магнониобате свинца). В определенном температурном интервале при электрическом поле вдоль [110] и [111] наблюдаются искаженные петли гистерезиса поляризации и петли тока с двумя максимумами. Обсуждаются вероятные причины возникновения подобного гистерезиса, а также возможность использования таких искаженных петель для неразрушающего считывания записанной информации.

Процессы переполяризации в магнониобате свинца $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PMN) изучены недостаточно, несмотря на большое число публикаций, посвященных этому вопросу [1–12]. Между тем исследования процессов переполяризации в сегнетоэлектриках с размытым фазовым переходом являются важными в связи с увеличением интереса к физике неупорядоченных неоднородных систем и с возможностью применений этих материалов в технике, в частности в запоминающих устройствах.

В электрическом поле E в кристаллах PMN наблюдается переход из стеклоподобного состояния, возникающего в отсутствие поля [5,6], в макродоменное сегнетоэлектрическое состояние, сопровождающийся аномалиями диэлектрической проницаемости, коэффициента преломления света и других свойств [3,4,7–10]. При понижении температуры ниже комнатной в переменном поле в PMN постепенно формируются петли гистерезиса поляризации. При измерении в направлениях [110] и [111] было обнаружено возникновение искаженных петель гистерезиса поляризации $P(E)$ [2,4,11], в то время как в направлении [100] петли $P(E)$ имели нормальный вид [1,2] (рис. 1). На петлях гистерезиса тока переключения $i(E)$ в направлениях [110] и [111] на каждой из ветвей петли, соответствующей увеличению мгновенного абсолютного значения поля, наблюдалось два максимума тока [4] (рис. 2). Природа обнаруженных искажений петель гистерезиса осталась неясной.

Представляло интерес более подробно изучить гистерезисные явления при переключении поляризации в PMN в синусоидальных полях для получения информации о низкотемпературных состояниях поляризации в электрическом поле и о возможностях использования этих

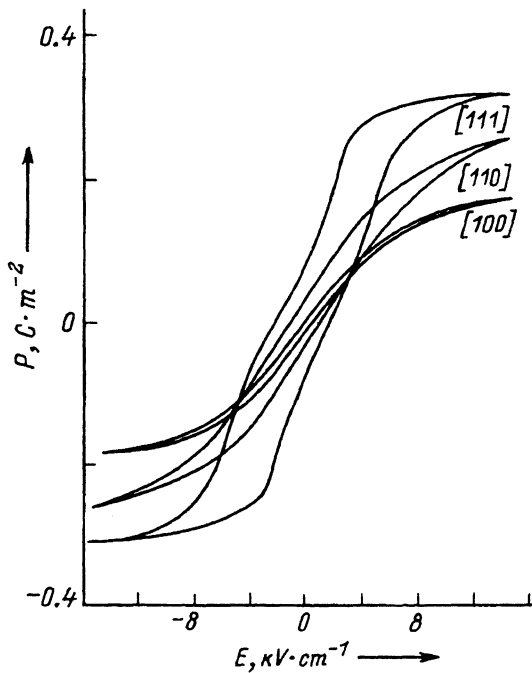


Рис. 1. Петли диэлектрического гистерезиса в кристаллах PMN при температуре 246.5 К для разных направлений приложения электрического поля [2].

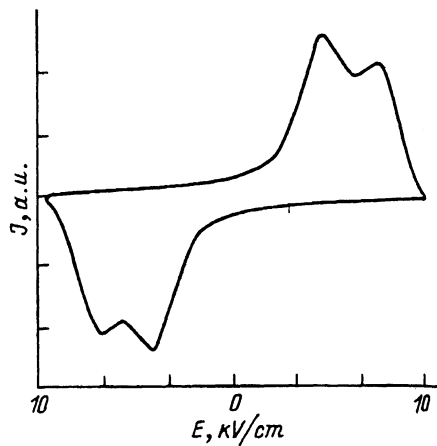


Рис. 2. Петля тока переключения при температуре 93 К в случае приложения электрического поля по направлению [110].

кристаллов в запоминающих устройствах. Ввиду того что изменения в характере гистерезиса проявляются более ярко в петлях тока $i(E)$, следовало провести измерения как зависимостей $P(E)$, так и $i(E)$.

В настоящей работе приводятся результаты исследований петель гистерезиса поляризации и петель тока переключения при разных температурах в электрическом поле до 15 kV/cm с частотой 50 Hz в различных кристаллографических направлениях в кристаллах PMN. Кристаллы были синтезированы модифицированным методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве PbO [12]. Электроды наносились с помощью вжигания серебряной пасты. Использовалась схема Сойлера-Тауэра. Переменное электрическое поле прикладывалось при температуре около 90 К, измерения проводились при нагревании образца.

Выражение для тока переключения в сегнетоэлектрике в синусоидальном поле может быть записано в виде $i \sim dP/dt = dP/dE \cdot dE/dt = \omega(dP/dE)E_0 \cos \omega t$. Таким образом, ток $i \sim dP/dE$ и при нормальной петле гистерезиса $P(E)$ зависимость $|i(E)|$ при возрастании абсолютного значения поля обычно обнаруживает один максимум, соответствующий одному эффективному значению коэрцитивного поля. Если же петля $P(E)$ искажена, то возможно возникновение нескольких максимумов на одной и той же ветви петли гистерезиса, что и наблюдалось ранее в наших экспериментах (рис. 2).

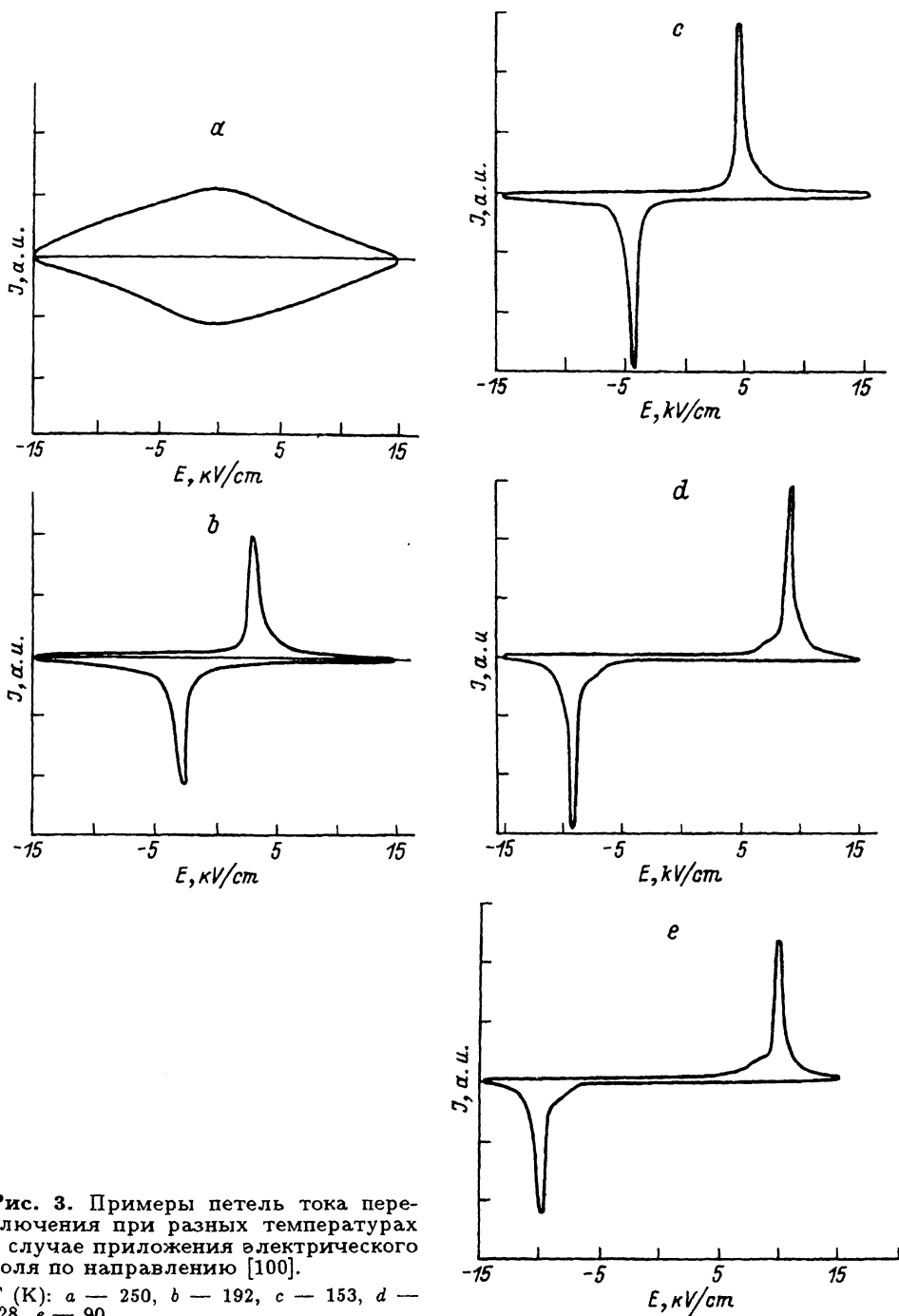


Рис. 3. Примеры петель тока переключения при разных температурах в случае приложения электрического поля по направлению [100].

T (K): *a* — 250, *b* — 192, *c* — 153, *d* — 128, *e* — 90.

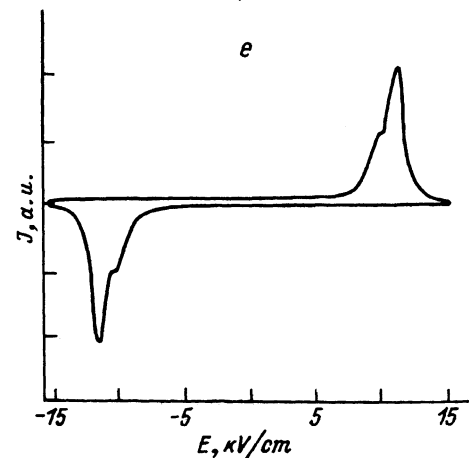
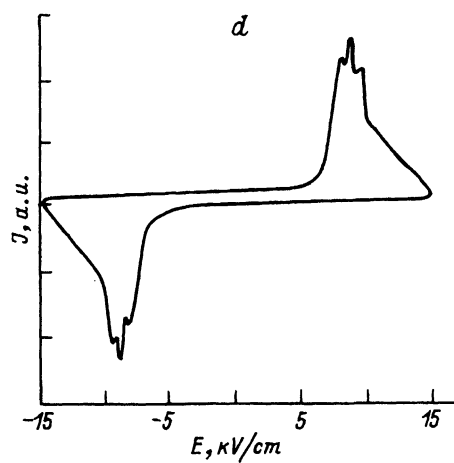
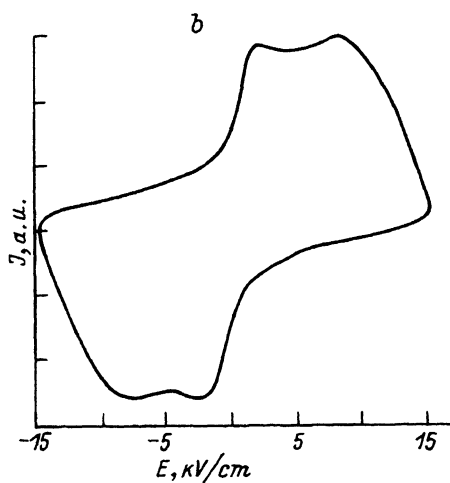
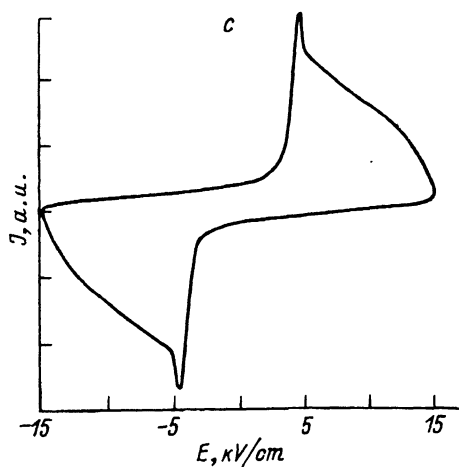
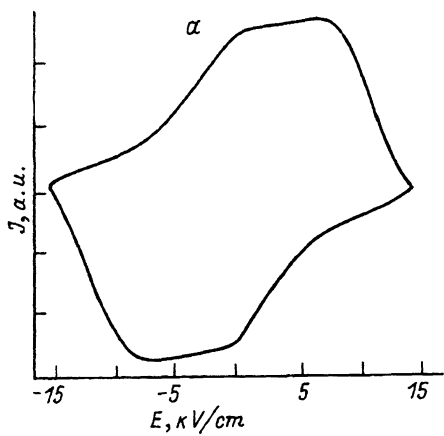


Рис. 4. Примеры петель тока переключения при разных температурах в случае приложения электрического поля по направлению [110].

T (K): a — 233, b — 192, c — 153, d — 128, e — 110.

Примеры петель тока переключения при разных температурах для электрического поля, направленного вдоль [100] и [110], представлены на рис. 3 и 4. В температурном интервале от 90 до 300 К для направления [100] петли тока имеют один максимум (рис. 3, *a-e*). Картина изменяется при приложении электрического поля вдоль направления [110] или [111]. Из рис. 4 видно, что при температурах ниже 120 К наблюдаются петли тока с одним основным довольно четким максимумом (рис. 4, *e*), при повышении температуры петли преобразуются сначала в петли с двумя максимумами тока (рис. 4, *b-d*), а затем при более высоких температурах (рис. 4, *a*) наблюдаются размытые эллипсоидальные петли тока. При этом разность напряженностей полей, соответствующих двум максимумам тока, увеличивается с возрастанием температуры вплоть до температур, выше которых начинают наблюдаться эллипсоидальные петли тока без выраженных максимумов $i(E)$. Картина, аналогичная приведенной на рис. 4 для направления [110], наблюдается также в случае приложения электрического поля по направлению [111]. Характер зависимостей $i(E)$ и $P(E)$ не изменялся при повторных циклах измерений при охлаждении и нагревании образца. Таким образом, в PMN в направлениях [110] и [111] наблюдается не только максимум $i(E)$, соответствующий переключению поляризации в индуцированной полем макромолекулярной сегнетофазе, но также и второй максимум $i(E)$.

Анализ возможных гистерезисных зависимостей тока от величины напряженности электрического поля $i(E)$ в сопоставлении с видом зависимостей поляризации от поля $P(E)$ показывает, что петли тока с двумя максимумами могут соответствовать как не полностью разрешенным двойным петлям гистерезиса $P(E)$, так и не полностью разрешенным тройным петлям $P(E)$. В случае не полностью разрешенной как тройной, так и двойной петли гистерезиса $P(E)$ при небольших мгновенных значениях поля ориентируемая поляризация отлична от нуля, т. е. должно наблюдаться сегнетоэлектрическое состояние. Полное разрешение в этих петлях в PMN могло бы наблюдаться при повышении температуры, если бы продолжалось возрастание разности полей, соответствующих максимумам тока $i(E)$. Однако условия разрешения не достигаются вследствие разрушения индуцированного макромолекулярного сегнетосостояния при этих температурах [2-8] и постепенного исчезновения гистерезиса поляризации.

Не полностью разрешенные двойные петли $P(E)$ могут быть характерны как для сегнетоэлектрических фаз в кристаллах со случайными полями, в частности при старении образца, так и в случае индуцирования фазовых переходов из неполярной фазы в сегнетоэлектрическую. Однако нормальные петли тока, наблюдаемые в PMN при более низких температурах, и сохранение неизменной картины двух максимумов тока в течение длительного времени измерений и при повторении циклов измерений, по-видимому, позволяют предполагать, что возникновение петель с двумя максимумами в PMN не определяется наличием случайных полей и старением образца. Что касается тройных петель гистерезиса, то они, как известно, возникают при индуцировании электрическим полем фазового перехода из одной сегнетоэлектрической фазы в другую. Таким образом, полученные результаты позволяют предполагать, что в PMN наблюдается дополнительный фазовый переход.

Возможность дополнительных фазовых переходов в PMN предполагалась в ряде работ [3,4,10,13,14], однако диаграмма фазовых переходов в зависимости от поля и температуры изучена недостаточно.

Окончательный выбор механизма, объясняющего возникновение двух максимумов тока переключения в PMN, требует дальнейших исследований.

Гистерезисные зависимости в кристаллах PMN сходны с гистерезисными зависимостями при индуцировании фазовых переходов между изоморфными сегнетоэлектрическими фазами, рассмотренными Ишибаши [15]. Возможность возникновения таких фазовых переходов следует из теории Ландау при учете в свободной энергии членов восьмой степени по поляризации. В [15] предложено использовать гистерезисные зависимости при не полностью разрешенной тройной петле для неразрушающего считывания записанной информации.

Рассмотрим это подробнее. Обычно при использовании сегнетоэлектрических кристаллов с классическими петлями гистерезиса (в том числе и тройными) в элементах памяти, при считывании записанной информации требуется приложить электрическое поле, большее коэрцитивного, чтобы переключить весь кристалл из состояния $+P_s$ в состояние $-P_s$. В сегнетоэлектриках с не полностью разрешенной тройной петлей гистерезиса (рис. 5, а) при считывании записанной информации достаточно небольшого электрического поля специальной формы (например, такого, как показано на рис. 5, б), чтобы сначала вызвать переход из индуцированной при записи сегнетофазы в исходную фазу не во всем кристалле, а только в ячейках памяти с направлением поляризации, противоположным направлению считывающего поля. В этой ситуации только в ячейках с состоянием $-P_s$ будет течь ток, так как изменение поляризации вблизи E_1 будет большим, как видно из рис. 5, а, в то время как в ячейках с состоянием $+P_s$ тока не будет. К концу периода приложения электрического поля происходит восстановление поляризации ячеек в состояние, заданное записью. Величина считывающего напряжения, таким образом, меньше записывающего, так как при считывании изменяется только состояние поляризации, связанное с индуцированным фазовым переходом. В случае не полностью разрешенной двойной петли гистерезиса также возможно изменение при считывании только части поляризации, участвующей в записи.

Преимуществами при использовании меньших амплитуд считывающих импульсов по сравнению с амплитудами записывающих импульсов являются, во-первых, ослабление явлений деградации при многократных процессах считывания и восстановления записи, и, во-вторых, увеличение надежности сохранения записи благодаря только частичному разрушению записи при считывании.

Исследование возможности использования в запоминающих устройствах сегнетоэлектриков с не полностью разрешенными тройными, а также двойными петлями гистерезиса требует изучения изменений доменной структуры и экспериментального подбора режимов и величин подаваемых напряжений.

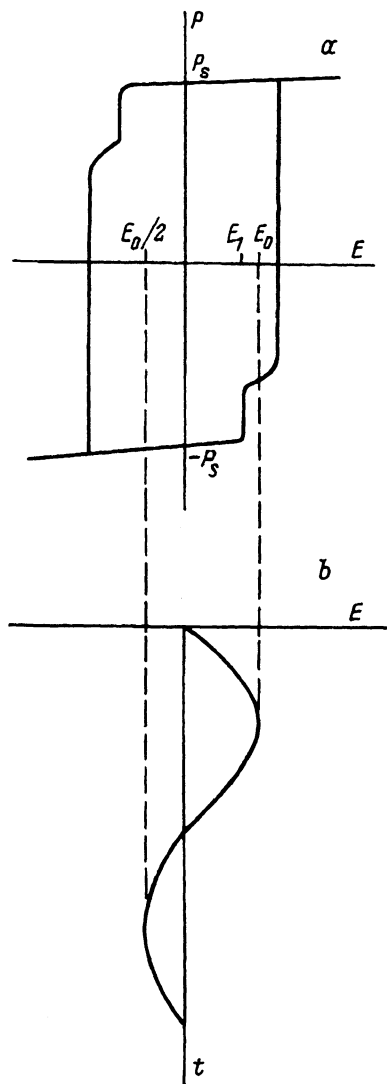


Рис. 5. Деформированная тройная петля гистерезиса (а) и считывающее электрическое напряжение (b).

Таким образом, можно предполагать возможность использования сегнетоэлектриков с размытым фазовым переходом в запоминающих устройствах, и, следовательно, представляют интерес дальнейшие исследования процессов переключения в этих сегнетоэлектриках.

В заключение авторы выражают благодарность В.В.Леманову и О.Ю.Коршунову за обсуждение результатов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 93-02-2604).

Список литературы

- [1] Боков В.А., Мыльникова И.Е. ФТТ **3**, 3, 841 (1961).
- [2] Schmidt G., Arndt H., Borchardt G., v. Cieminski J., Petzsche T., Borman K., Sternberg A., Zirnite A., Isupov V.A. // Phys. Stat. Sol. (a) **63**, 501 (1981).
- [3] Смоленский Г.А., Крайник Н.Н., Кузнецова Л.А., Камзина Л.С., Шмидт Г., Арндт Х. // ФТТ **23**, 5, 1341 (1981).
- [4] Смоленский Г.А., Крайник Н.Н., Камзина Л.С., Кузнецова Л.А. Письма в ЖТФ. **7**, 2, 90 (1981).
- [5] Dorogovtsev S.N., Yushin N.K. Ferroelectrics **112A**, 27 (1990).
- [6] Krainik N.N., Markova L.A. Ferroelectrics **131**, 173 (1992).
- [7] Sommer R., Yushin N.K., van der Klink J.J. // Ferroelectrics **127**, 235 (1992).
- [8] Westphal D., Kleemann W., Glinchuk M.D. Phys. Rev. Lett. **68**, 6, 647 (1992).
- [9] Ye Zuc-Yuang, Schmid H. Ferroelectrics **145**, 83 (1993).
- [10] Krainik N.N., Markova L.A., Karamjan A.A. // Ferroelectrics **143**, 179 (1993).
- [11] Arndt H., Schmidt G., Kamzina L.S., Krainik N.N., Smolenskii G.A. Wissenschaftliche Berichte ZFW, **17**, 224 (1979).
- [12] Мыльникова И.Е., Боков В.А. Рост кристаллов **3**, 438 (1961).
- [13] Smolenskii G.A., Krainik N.N., Trepakov V.A., Ktitorov S.A., Kamzina L.S., Mylnikova I.E., Zhdanova V.V., Sergeev V.P., Kuznetsova L.A. Ferroelectrics, **21**, 521-523 (1978).
- [14] Trepakov V.A., Amitin L.N., Kuznetsov A.I., Kholkin A.L. Phys. Stat. Sol. (a) **69**, 425 (1981).
- [15] Ishibashi Y. Jap. J. Appl. Phys. **37**, Pt. 1, 2a, 327 (1992).