

## Диэлектрические и оптические свойства монокристаллов сегнетоэлектрика-релаксора $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.8}\text{Ti}_{0.2}\text{O}_3$ (PMNT–0.2)

© Л.С. Камзина\*, И.П. Раевский, С.М. Емельянов, С.И. Раевская, Е.В. Сахар

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

Научно-исследовательский институт физики Ростовского государственного университета,  
344090 Ростов-на-Дону, Россия

(Поступила в Редакцию 13 октября 2003 г.)

Исследованы диэлектрические и оптические (оптическое пропускание, малоугловое рассеяние света, дупреломление) свойства монокристаллов PMNT–0.2 и их изменения под действием постоянного электрического поля. Обнаружено аномальное увеличение дупреломления при переходе из ромбоэдрической сегнетоэлектрической в неоднородную релаксорную фазу (температура спонтанного сегнетоэлектрического перехода  $T_{sp}$ ). Ниже температуры  $T_{sp}$  в электрическом поле наблюдались аномалии диэлектрических и оптических свойств, обусловленные переориентацией и укрупнением доменов. В PMNT–0.2 в отличие от исследовавшихся ранее сегнетоэлектриков-релаксоров типа  $\text{PbB}'_{1/3}\text{B}''_{2/3}\text{O}_3$  и  $\text{PbB}'_{1/2}\text{B}''_{1/2}\text{O}_3$  ни индуцирование сегнетоэлектрической фазы электрическим полем, ни термостимулированное разрушение сегнетоэлектрического состояния не проходят по перколяционному механизму (не сопровождаются аномально узкими максимумами малоуглового рассеяния света). Это связывается с неоднородной структурой релаксорной фазы, вследствие чего фазовый переход происходит не одновременно в различных областях кристалла.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 01-02-17801 и 01-03-33119) и Программы ОФН РАН.

Твердые растворы  $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-x\text{PbTiO}_3$  (PMNT– $x$ ), являющиеся классическими модельными объектами для исследования физики сегнетоэлектриков-релаксоров, интенсивно изучаются в последнее время [1–9]. Это связано как с большой практической значимостью данных материалов, обладающих уникальными диэлектрическими, пьезоэлектрическими, электрострикционными и другими свойствами, так и с возможностью, изменяя содержание  $\text{PbTiO}_3$ , менять в широких пределах свойства этих веществ от типично релаксорных до свойств, присущих нормальным сегнетоэлектрикам. В классическом сегнетоэлектрике-релаксоре PMN, несмотря на возникновение ниже температуры  $T_B \approx 360^\circ\text{C}$  полярных нанодоменов (3–5 nm) и увеличение их числа и среднего размера при дальнейшем понижении температуры, структурный фазовый переход не происходит и кристалл остается в макроскопически кубической фазе вплоть до 5 K [2,4,10]. В то же время у составов PMNT– $x$  уже при  $x \approx 0.05$  наряду с релаксорным поведением рентгенографически регистрируется переход в ромбоэдрическую фазу [4,5]. При  $x \approx 0.10$  в керамике [6] и  $\approx 0.20$  в кристаллах [7] этот спонтанный переход из релаксорной, макроскопически кубической фазы в ромбоэдрическую сегнетоэлектрическую фазу становится заметен уже на температурной зависимости  $\epsilon$  и проявляется в виде ступеньки, температура которой практически не зависит от частоты [11]. В то же самое время существует значительная частотная зависимость как температуры максимума  $\epsilon(T_m)$ , так и величины максимума  $\epsilon(\epsilon_m)$ , которая сохраняется вплоть до морфотропной фазовой границы между ромбоэдрической и тетрагональной фазами, наблюдаемой при

$x \approx 0.31$  [3,7]. Ромбоэдрическая сегнетоэлектрическая фаза может быть индуцирована в PMN только при приложении электрического поля [2,7,12,13]. Процесс индуцирования имеет кинетический характер и проходит в две стадии: на первой увеличивается число полярных областей, а их размер практически не изменяется со временем, а на второй эти области сливаются и образуют бесконечный кластер [12,13]. Вторая стадия начинается спустя некоторое время  $\tau$  после приложения поля (это „время задержки“  $\tau$  сильно зависит от величины поля и температуры), когда полярные области заполняют достаточно большую часть объема образца. В кристаллах PMNT, так же как и в PMN, в электрическом поле возникает индуцированный фазовый переход, причем величина критического поля, при котором индуцирование сегнетоэлектрической фазы происходит за время, сравнимое с временем эксперимента, уменьшается с ростом  $x$  и при  $x \approx 0.15$ – $0.20$  обращается в нуль [7], что соответствует появлению спонтанного перехода из релаксорного состояния в сегнетоэлектрическое.

Свойства PMNT, в частности особенности индуцирования сегнетоэлектрической фазы, исследовались главным образом с помощью структурных и диэлектрических методов. В то же время оптические методы исследования кристаллов (пропускание, дупреломление, малоугловое рассеяние света — МРС) являются более чувствительными и информативными, чем диэлектрические, особенно при изучении процессов, связанных с изменением размеров неоднородностей при фазовых переходах. Они были успешно применены для изучения фазовых переходов в подобных соединениях. Исследования дупреломления использовались для изучения

кинетики индуцирования сегнетоэлектрического состояния в кристаллах PMN и PMNT–0.1 [13]. В [14] при изучении индуцированного фазового перехода в кристаллах PMN на температурной зависимости MPC был обнаружен острый пик, свидетельствующий о перколяционном характере перехода и о возникновении крупномасштабной структуры при этом переходе. Если фазовый переход проходит по перколяционному типу, то средний размер кластера новой фазы на пороге протекания стремится к размеру образца, формируется крупномасштабная неоднородная структура и фазовый переход должен сопровождаться появлением аномально узких пиков интенсивности MPC (минимумом оптического пропускания). В стехиометрических кристаллах  $\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$  (PSN) и  $\text{PbSc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2}\text{O}_3$  (PST) [15,16] с разной степенью упорядочения ионов на температурной зависимости MPC в отсутствие электрического поля наблюдается узкий пик при температуре спонтанного фазового перехода из релаксорного состояния в сегнетоэлектрическое.

В последние годы особое внимание привлекают кристаллы PMNT, состав которых близок к морфотропной области. Эти кристаллы обладают значительно более высокой пьезочувствительностью, чем керамики такого же состава, что связывается с возможностью прикладывать к кристаллам поле вдоль определенного кристаллографического направления [17–19]. Особенностью таких кристаллов является сосуществование в широких интервалах температур фаз с различной симметрией (кубической, ромбоэдрической, тетрагональной, моноклинной) [18,19]. Подобная гетерофазность характерна для твердых растворов многих релаксоров. Причинами ее могут быть как концентрационная неоднородность, так и пространственно-неоднородная степень упорядочения разновалентных *B*-катионов. Ранее нами при исследовании твердых растворов  $(1-x)\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3-(x)\text{BaSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$  (PBSN–*x*) было установлено, что оптические свойства монокристаллов с  $x = 0.04$  аналогичны свойствам чистого кристалла PSN. При увеличении содержания Ba до  $x = 0.06$  кристаллы становились более гетерофазными и индуцирование электрическим полем сегнетоэлектрической фазы уже не сопровождалось узким пиком MPC, т.е. не проходило по перколяционному механизму [20,21]. Это позволяет предполагать, что изменения свойств гетерофазных кристаллов-релаксоров под действием электрического поля характеризуются существенными особенностями.

Настоящая работа посвящена исследованию диэлектрических и оптических свойств кристаллов PMNPT–0.2 и их изменений под действием электрического поля в широком интервале температур. Выбор в качестве объекта исследования соединений PMNPT–0.2 обусловлен, с одной стороны, тем, что в них в широких интервалах температур сосуществуют фазы с различной симметрией (кубическая, ромбоэдрическая) и свойствами (релаксор, сегнетоэлектрик), а с другой стороны,

тем, что кристаллы подробно изучены рентгенографическими методами, что облегчает интерпретацию полученных результатов [8,9,22].

Диэлектрические и оптические свойства монокристаллов PMNT–0.2 ранее не изучались. Температурные зависимости  $\epsilon$  соединений PMNPT–0.2 и их изменения в постоянном электрическом поле исследовались только в керамических образцах [3]. Авторы работы [8], используя рентгеноструктурные методы, показали, что в PMNT–0.2, так же как и в PMN, в электрическом поле возникает индуцированный фазовый переход в полях, превышающих некоторое пороговое значение. Этот индуцированный переход сопровождался неоднородными микродеформациями структуры и в полях напряженностью несколько кВ/см протекал длительное время — до 40 min. Однако фазовая диаграмма (поле–температура) кристаллов PMNT–0.2 отличается от фазовой диаграммы PMN из-за наличия спонтанного сегнетоэлектрического перехода в нулевом поле. Наблюдаемые аномалии были не всегда четко выражены, что часто представляло определенные экспериментальные трудности для их обнаружения.

## 1. Выращивание монокристаллов и методика эксперимента

Прозрачные кристаллы PMNT–0.2 желтого цвета в виде кубов с ребром до 6 mm, имевших огранку по плоскостям (001) перовскитового базиса, были получены методом спонтанной кристаллизации из раствора в расплаве с использованием в качестве растворителя смеси  $\text{PbO}-\text{B}_2\text{O}_3$  [23]. Состав кристаллов определялся с помощью растрового микроскопа-микрoанализатора „Сamebaх–Micro“. Образцы для исследований вырезались в виде пластин параллельно естественным (001) граням кристалла и полировались.

Постоянное электрическое поле прикладывалось в направлении [100], свет распространялся в направлении [001]. Использовались разные режимы приложения электрического поля: охлаждение без поля („zero field cooling“ — ZFC), нагрев без поля („zero field heating“ — ZFH), нагрев в поле после охлаждения без поля („field heating after ZFC“ — FHaZFC), охлаждение в поле (FC), нагрев в поле после охлаждения в поле (FHaFC) и нагрев без поля после охлаждения в поле (ZFHaFC). После каждого приложения поля образцы перед каждым новым измерением прогревались при температуре 150°C в течение 0.5 часа. Скорость изменения температуры образца варьировалась от 2 до 18°C/min.

Для оптических измерений использовался He–Ne лазер. Исследовались оптическое пропускание и малоугловое рассеяние света, измеренное в геометрии пропускания [24]. Двупреломление образца определялось из соотношения  $I = I_0 \sin^2 \pi \Delta n d / \lambda$ , где  $I_0$  — интенсивность падающего света;  $I$  — интенсивность света, прошедшего через образец, находящийся между двумя скрещенными

поляризаторами, причем оптическая ось образца составляла угол в  $45^\circ$  с направлением поляризации падающего света;  $\Delta n$  — двупреломление;  $\lambda$  — длина волны света;  $d$  — толщина образца.

Диэлектрические измерения образцов проводились на частотах 0.1–100 kHz с помощью моста переменного тока P5083 и измерителя добротности E4-7.

## 2. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены температурные зависимости  $\epsilon$  при разных частотах измерительного поля (рис. 1, *a*), а также оптического пропускания и  $\epsilon$ , измеренные в режиме нагревания и охлаждения (рис. 1, *b*), для монокристалла PMNT–0.2. На температурных зависимостях  $\epsilon$ , кроме размытого максимума в области  $T_m \approx 80$ – $85^\circ\text{C}$ , имеется ступенька при температурах на  $15$ – $20^\circ\text{C}$  ниже  $T_m$ , соответствующая спонтанному переходу между релаксорной и сегнетоэлектрическими фазами, температурное положение которой практически не зависит от частоты. Частотная дисперсия  $\epsilon$  резко усиливается выше температуры ступеньки (рис. 1, *a*). Для оценки размытия максимума  $\epsilon$  использована хорошо зарекомендовавшая себя при описании свойств большого числа релаксоров различных типов формула [25]

$$\frac{\epsilon_A}{\epsilon} = 1 + 0.5 \frac{(T - T_A)^2}{\sigma^2}, \quad (1)$$

где  $\epsilon_A (> \epsilon_m)$  и  $T_A (< T_m)$  — параметры, имеющие смысл максимального значения и температуры максимума статической диэлектрической проницаемости;  $\sigma$  — параметр размытия перехода. В отличие от широко используемой подобной формулы Исупова [1], в которой вместо  $\epsilon_A$  и  $T_A$  стоят  $\epsilon_m$  и  $T_m$ , значение  $\sigma$ , определяемое с помощью формулы (1), не зависит от частоты. При независимом варьировании подгоночных параметров наилучшее согласие с экспериментальными данными получается при значениях  $\epsilon_A = 46\,940$ ,  $T_A \approx 65^\circ\text{C}$ ,  $\sigma \approx 27\text{K}$ . Квадратичный закон Кюри–Вейсса выполняется вплоть до температур  $\approx 280$ – $290^\circ\text{C}$ . При температурах выше  $\approx 300^\circ\text{C}$  выполняется линейный закон Кюри–Вейсса с параметрами  $T_{CW} \approx 190^\circ\text{C}$  и  $C \approx 1.3 \cdot 10^5\text{K}$ .

В координатах Аррениуса зависимость  $T_m$  от  $f$  сильно отклоняется от линейной, что свидетельствует о недебаевском характере релаксации, типичном для сегнетоэлектриков-релаксоров [11]. В то же время зависимость  $T_m$  от  $f$  хорошо описывается законом Фогеля–Фулчера

$$f = f_0 \exp[-\Delta E/k(T_m - T_0)], \quad (2)$$

где  $f_0$  — частота попыток преодоления потенциального барьера  $\Delta E$ ;  $k$  — постоянная Больцмана;  $T_0$  — температура Фогеля–Фулчера, интерпретируемая как температура „статического замораживания“ электрических диполей или перехода в состояние дипольного стекла [11].

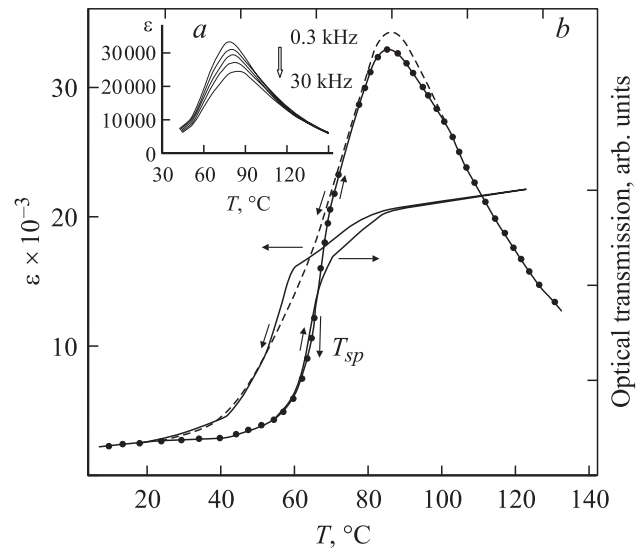


Рис. 1. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  при разных частотах измерительного поля (*a*), а также  $\epsilon$  на частоте 1 kHz и оптического пропускания, измеренные в режиме нагревания и охлаждения (*b*) для монокристаллов PMNT–0.2.

Для PMNT–0.2  $f_0 \sim 7 \cdot 10^{10}\text{Hz}$ , что близко к значениям  $f_0$  для классических сегнетоэлектриков-релаксоров [11]. Значение  $T_0 \approx 64^\circ\text{C}$  приблизительно совпадает с температурой ступеньки  $\epsilon(T)$  (температурой спонтанного сегнетоэлектрического перехода  $T_{sp}$ ), что характерно для других релаксоров, испытывающих спонтанный переход в сегнетоэлектрическое состояние. Величина энергии активации  $\Delta E$  в законе Фогеля–Фулчера для PMNT–0.2 ( $\Delta E \approx 0.026\text{eV}$ ) также близка к значениям, наблюдавшимся в соединениях со спонтанным переходом релаксор-сегнетоэлектрик ( $\Delta E \approx 0.023\text{eV}$  для PST [11]), в то время как, например в  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ , где релаксорное состояние устойчиво, значения  $\Delta E$  существенно выше ( $\approx 0.07$ – $0.1\text{eV}$  [11]).

Как видно из рис. 1, аномалия на кривой  $\epsilon$ , соответствующая спонтанному фазовому переходу при  $T_{sp}$ , выражена недостаточно четко, в то время как оптическое пропускание при этой температуре резко возрастает (рис. 1, *b*). Температурный гистерезис  $\sim 10$ – $11^\circ\text{C}$ , наблюдаемый при диэлектрических и оптических измерениях, является одной из основных черт фазового перехода первого рода. Однако поведение оптического пропускания в кристаллах PMNT–0.2 при спонтанном фазовом переходе отличается от подобных зависимостей в кристаллах PST, PSN и PBSN–0.04 [15,16,20], в которых этот переход проходит по перколяционному типу и сопровождается минимумом оптического пропускания (пиком MPC). Одной из возможных причин отличия природы спонтанного фазового перехода в этом кристалле может быть неоднородность фазы, расположенной выше температуры  $T_{sp}$ . Это согласуется с данными рентгеновских измерений [9], свидетельствующими

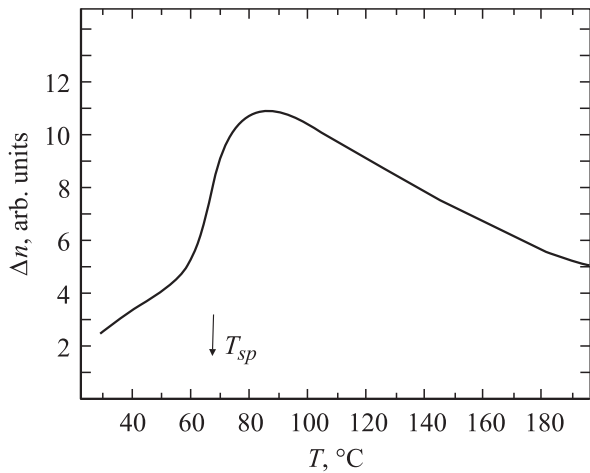


Рис. 2. Температурная зависимость дупреломления кристалла PMNT-0.2.

о присутствии трех неоднородных фаз, предшествующих появлению в ходе охлаждения при  $T_{sp} \sim 55\text{--}65^\circ\text{C}$  ромбоэдрической сегнетофазы; эргодического дипольного стекла ( $T_{DG1} \sim 120\text{--}130^\circ\text{C}$ ), неэргодического дипольного стекла ( $T_{DG2} \sim 90\text{--}100^\circ\text{C}$ ) и смешанной фазы ( $T_M \sim 65\text{--}80^\circ\text{C}$ ), в которой сосуществуют сегнетоэлектрические и стекольные области. При этих температурах наблюдаются также аномалии температурной эволюции формы рефлекса (224) и интегральной интенсивности рефлекса (005), которые авторы объясняют существенной перестройкой структуры кристалла, так как эти аномалии являются признаком изменения размеров и количества полярных кластеров и/или появления дополнительных неоднородных деформаций в кристалле, вызванных атомными смещениями, нарушающими центросимметричность кубических элементарных ячеек.

По-видимому, таким нарушением центросимметричности кубических ячеек и появлением дополнительных хаотических атомных смещений можно объяснить и обнаруженную нами аномальную температурную зависимость дупреломления (рис. 2). Вместо ожидаемого отсутствия  $\Delta n$  выше температуры  $T_{sp}$ , что характерно для релаксорной фазы таких кристаллов, как PMN, PMNT-0.1 [15], мы наблюдали в области  $T_{sp}$  максимум  $\Delta n$ . С ростом температуры дупреломление уменьшалось и только при температурах значительно выше  $T_{DG1}$  ( $T \sim 200^\circ\text{C}$ ) уже слабо зависело от температуры.

Смешанной фазе кристалла PMNT-0.2 ( $T_{sp} < T < T_M$ ) свойственна неэргодичность, т. е. зависимость состояния кристалла от термодинамического пути на  $T$ - $E$  диаграмме. Свойства кристалла в этой фазе могут зависеть не только от величины электрического поля, но и от способа его приложения. Авторы работы [22], изучая изменения интенсивности и формы рентгеновских рефлексов в электрическом поле, обнаружили, что в смешанной фазе, содержащей области как сегнетоэлектрической

ромбоэдрической фазы, так и хаотически неоднородные спонтанно-деформированные области фазы дипольного стекла, приложенное в направлении [100] электрическое поле, превышающее некоторое пороговое значение  $(1\text{--}4) \cdot 10^5 \text{ V/cm}$ , индуцирует переход в сегнетоэлектрическую фазу с временами релаксации 40–50 min.

Проведенные измерения оптического пропускания и более чувствительные измерения МРС в электрических полях до  $2.5 \text{ kV/cm}$  и при разных режимах приложения электрического поля не обнаружили каких-либо аномалий, связанных с индуцированием сегнетоэлектрического перехода в температурной области выше  $T_{sp}$ . На рис. 3 представлены температурные зависимости интенсивности МРС, снятые в режиме нагревания и охлаждения в отсутствие (кривые 1, 2) и при приложении постоянного электрического поля  $1 \text{ kV/cm}$  (кривые 3–5). Увеличение интенсивности МРС и небольшой широкий максимум, наблюдаемый в области температуры спонтанного фазового перехода  $T_{sp}$ , связан с укрупнением доменов и появлением достаточно больших макродоменных областей. Более четко эта аномалия проявляется при охлаждении образца в электрическом поле (режим FC, кривая 3) и при разрушении сегнетоэлектрического состояния при температуре  $T_{sp}$  при нагреве (режим ZFHaFC, кривая 4). Аномально узкого пика на температурной зависимости МРС, свидетельствующего о перколяционном характере перехода, не обнаружено даже в электрическом поле. В то же время в режиме FC (кривая 3) температура спада интенсивности МРС выше, чем в отсутствие поля (кривая 1), что говорит в пользу того, что индуцирование сегнетоэлектрической фазы все же имеет место. Причин отсутствия в нашем эксперименте индуцированного перехода может быть несколько. Неоднородная структура релаксорной фазы — сосуществование в широком интервале температур областей макроскопически кубической и ромбоэдрической фаз, относительный объем которых зависит от температуры и величины электрического поля [9], может приводить к тому, что фазовый переход происходит не одновре-

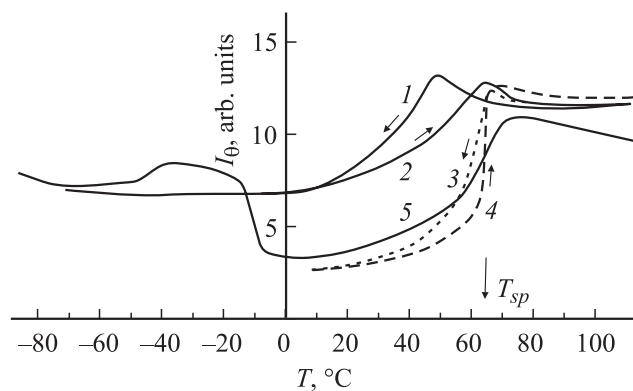
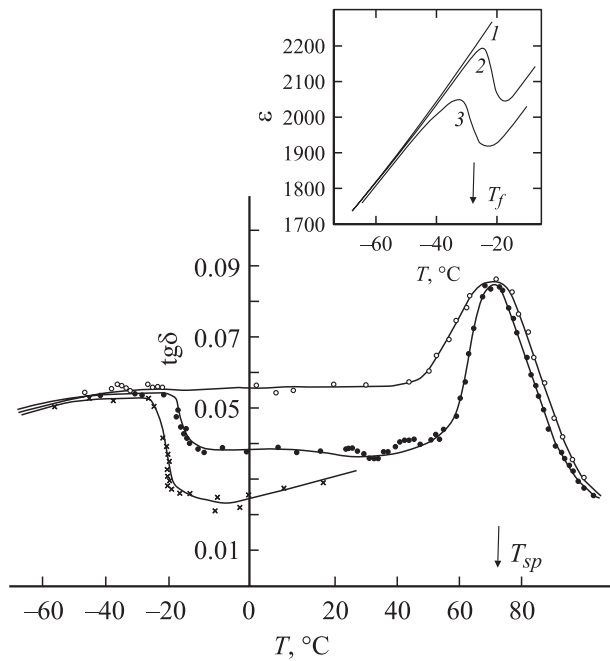


Рис. 3. Температурные зависимости интенсивности МРС (угол рассеяния  $40^\circ$ ), измеренные в разных режимах приложения электрического поля напряженностью  $1 \text{ kV/cm}$ : 1 — ZFC, 2 — ZFHaZFC, 3 — FC, 4 — ZFHaFC, 5 — FHaZFC.



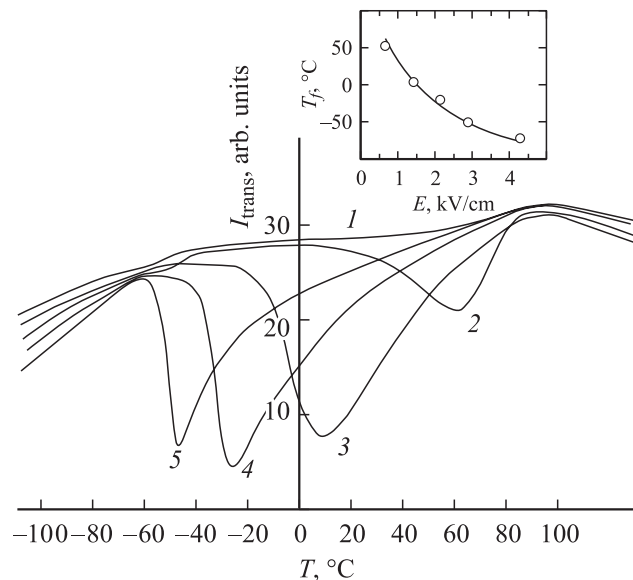
**Рис. 4.**  $\text{tg } \delta$  и  $\epsilon$  (вставка) как функции температуры, измеренные на частоте 50 kHz в режиме FHaZFC в разных электрических полях  $E$ , kV/cm: 1 — 0, 2 — 1.5, 3 — 2.2.

менно в различных областях кристалла. Другой причиной может быть то, что время прохождения фазового перехода слишком велико (для кристаллов PMNT–0.2 при напряженности электрического поля 1–2 kV/cm оно составляет порядка 50 min [22]), и при использовавшихся скоростях охлаждения кристалла (1–8°C/min) равновесное состояние не достигается и образования бесконечного кластера сегнетоэлектрической фазы не происходит.

В электрическом поле были обнаружены низкотемпературные аномалии диэлектрических свойств и оптического пропускания, ранее не наблюдавшиеся в PMNT. На рис. 4, 5 представлены температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь ( $\text{tg } \delta$ ) и  $\epsilon$  (рис. 4) и оптического пропускания (рис. 5) в разных электрических полях, измеренные в режиме FHaZFC. На температурных зависимостях  $\text{tg } \delta$  (кривая 1 на рис. 4) и  $\epsilon$  (кривая 1, вставка) при температурах ниже  $T_{sp}$  в отсутствие электрического поля никаких аномалий не наблюдалось, в то время как в электрическом поле при некоторой температуре  $T_f$  появляются небольшой максимум на кривых  $\epsilon$  (кривые 2, 3 вставка) и резкое уменьшение  $\text{tg } \delta$  (кривые 2, 3). С увеличением величины электрического поля температура наблюдаемых аномалий сдвигается в область низких температур. Еще более четкие аномалии в области  $T_f$  наблюдаются на температурных зависимостях оптического пропускания (кривые 2–5 на рис. 5). Минимум на кривой оптического пропускания свидетельствует об увеличении рассеяния, особенно под малыми углами, связанного с увеличением

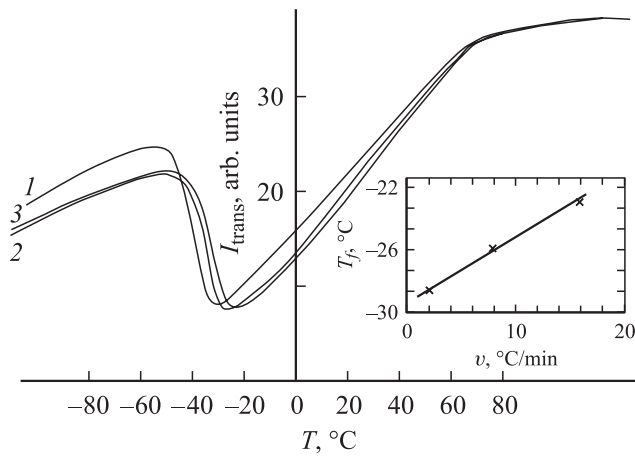
размеров неоднородностей и, следовательно, с фазовым переходом. Подобные низкотемпературные аномалии наблюдались в электрических полях при исследовании диэлектрических свойств в неполяризованной керамике PLZT 8/65/35 [26] и в керамике PST, обладающей спонтанным фазовым переходом [27]. Авторы работы [26] предположили, что низкотемпературная аномалия  $\epsilon$  в электрическом поле связана с переходом из микроскопической в макроскопическую фазу и возникновением поляризации, в то время как в веществах, которые уже спонтанно перешли в отсутствие электрического поля в сегнетоэлектрическую фазу, таких как PST, аномалия  $\epsilon$  связывается с переориентацией доменов в электрическом поле [27].

В кристаллах PMNT–0.2, который в отсутствие электрического поля при низких температурах находится в сегнетоэлектрической полидоменной ромбоэдрической фазе, приложение электрического поля приводит к укрупнению доменов и их переориентации. При постоянной скорости нагрева температура этого перехода сдвигается в сторону низких температур с увеличением напряженности поля (рис. 4, 5). В полях, меньших 0.5 kV/cm, низкотемпературная аномалия не наблюдалась (кривая 1 на рис. 5). При температурах ниже  $T_f$  электрическое поле не в состоянии переориентировать спонтанно сформировавшуюся сегнетоэлектрическую доменную структуру. При повышении температуры и приближении к  $T_f$  увеличивается тепловая энергия, необходимая для изменения („размораживания“) этой доменной структуры, и это дает возможность сегнетоэлектрическим доменам переориентироваться в электрическом поле. Эта новая доменная конфигурация,



**Рис. 5.** Температурные зависимости оптического пропускания, измеренные в режиме FHaZFC в разных электрических полях  $E$ , kV/cm: 1 — 0.25, 2 — 0.6, 3 — 1.3, 4 — 1.8, 5 — 2.6. Вставка — зависимость температуры аномалии  $T_f$  от величины электрического поля.





**Рис. 6.** Температурные зависимости оптического пропускания, измеренные в режиме FNaZFC в поле  $1.8 \text{ kV/cm}$ , при разных скоростях нагрева образца ( $^{\circ}\text{C/min}$ ): 1 — 2, 2 — 8, 3 — 16. Вставка — зависимость температуры аномалии  $T_f$  от скорости нагрева образца.

поддерживаемая электрическим полем, будет существовать до тех пор, пока тепловая энергия не разрушит сегнетоэлектрическое состояние, что соответствует переходу в релаксорное состояние при  $T_{sp}$ .

С уменьшением скорости нагрева образца при фиксированном значении смещающего поля  $T_f$  понижается (рис. 6). Ранее подобная зависимость температуры  $T_f$  от скорости нагрева образца наблюдалась только в релаксорах PMN [14], PZLT [26] и PBSN-6 [21] и связывалась с наличием больших времен релаксации процессов ориентации поляризации в стеклоподобном состоянии. В соединениях, в которых низкотемпературная фаза является сегнетоэлектрической, подобная зависимость наблюдалась впервые. По-видимому, либо электрическое поле, используемое в наших экспериментах, не в состоянии переориентировать и укрупнить домены за время проведения эксперимента, либо сегнетоэлектрическая фаза не является полностью однородной и при низких температурах имеются участки разупорядоченного состояния. Для более точного определения изменений свойств кристалла в области температур вблизи и выше  $T_f$  в электрическом поле необходимо использовать квазистатический метод измерений [7], а не динамический, который использовался в данной работе. Заметим, что смещение температуры  $T_f$  в кристаллах PMNT-0.2 с изменением скорости нагрева образца происходит в 2 раза медленнее, чем в типичных релаксорах, находящихся при низких температурах в стеклоподобном состоянии.

Таким образом, в кристаллах PMNT-0.2, используя оптические методы исследования, удалось обнаружить аномальное увеличение двупреломления при переходе в релаксорную фазу, связанное, вероятно, с нарушением centrosymmetry кубических ячеек и появлением дополнительных хаотических атомных смещений. При

температуре ниже  $T_{sp}$  в электрическом поле обнаружены аномалии диэлектрических и оптических свойств, обусловленные переориентацией и укрупнением доменов в электрическом поле. В отличие от исследованных ранее сегнетоэлектриков-релаксоров типа  $\text{PbB}'_{1/3}\text{B}''_{2/3}\text{O}_3$  и  $\text{PbB}'_{1/2}\text{B}''_{1/2}\text{O}_3$ , а также твердых растворов с малым содержанием второго компонента (PBSN-4) ни индуцирование сегнетофазы электрическим полем, ни термостимулированное разрушение сегнетоэлектрического состояния в монокристаллах PMNT-0.2 не проходят по перколяционному механизму (не сопровождаются аномально узкими максимумами малоуглового рассеяния света). Это связывается с неоднородной структурой релаксорной фазы — сосуществованием в широком интервале температур областей макроскопически кубической и ромбоэдрической фаз, относительный объем которых зависит от температуры и величины электрического поля, что приводит к тому, что фазовый переход происходит не одновременно в различных областях кристалла.

Авторы выражают благодарность О.Е. Квятковскому и А.А. Бокову за помощь при обсуждении результатов работы.

## Список литературы

- [1] Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, Н.Н. Крайник, Р.Е. Пасынков, А.И. Соколов, Н.К. Юшин. Физика сегнетоэлектрических явлений. Наука, Л. (1985). 396 с.
- [2] L.T. Cross. *Ferroelectrics* **76**, 241 (1987).
- [3] O. Noblanc, P. Gaucher, G. Calvarin. *J. Appl. Phys.*, **79**, 8, 4291 (1996).
- [4] B. Dkhil, J.M. Kiat, G. Kalvarin, G. Baldinozzi, S.B. Vakh-rushev, S. Suard. *Phys. Rev. B* **65**, 2, 024 104 (2001).
- [5] Z.-G. Ye, Y. Bing, G. Gao, A.A. Bokov, P. Stephens, B. Nohe-da, G. Shirane. *Phys. Rev. B* **67**, 10, 104 104 (2003).
- [6] O. Bidault, E. Husson, A. Morell. *J. Appl. Phys.* **82**, 11, 5674 (1997).
- [7] E. Colla, N. Yushin, D. Viehland. *J. Appl. Phys.* **83**, 6, 3298 (1998).
- [8] И.П. Захарченко, О.А. Бунина, П.Н. Тимонин, Ю.А. Трусов, В.П. Сахненко. *Кристаллография* **43**, 1, 71 (1998).
- [9] И.П. Захарченко, О.А. Бунина, П.Н. Тимонин, В.П. Сахненко. *Кристаллография* **45**, 6, 1043 (2000).
- [10] N. de Mathan, E. Husson, G. Calvarin, J.R. Gavarrin, A.W. Hewat, A. Morell. *J. Phys: Condens. Matter* **3**, 8159 (1991).
- [11] F. Chu, I.M. Reaney, N. Setter. *Ferroelectrics* **151**, 1-4, 343 (1994).
- [12] B. Dkhil, J.M. Kiat. *J. Appl. Phys.* **90**, 9, 4576 (2001).
- [13] K. Fujishiro, T. Iwase, Y. Uesu, Y. Yamada, B. Dkhil, J.M. Kiat, S. Mori, N. Yamamoto. *J. Phys. Soc. Jap.* **69**, 7, 2331 (2000).
- [14] Л.С. Камзина, Н.Н. Крайник, О.Ю. Коршунов. *ФТТ* **37**, 9, 2765 (1995).
- [15] Л.С. Камзина, А.Л. Корженевский. *Письма в ЖЭТФ* **50**, 3, 146 (1989).
- [16] Л.С. Камзина, Н.Н. Крайник. *ФТТ* **42**, 9, 1664 (2000).

- [17] S. Park, T.R. Shrout. *J. Appl. Phys.* **82**, 1804 (1997).
- [18] Z.-G. Ye, M. Dong. *J. Appl. Phys.* **87**, 5, 2312 (2000).
- [19] C.-S. Tu, C.-L. Tsai, V.H. Schmidt, H. Luo, Z. Yin. *J. Appl. Phys.* **89**, 12, 7908 (2001).
- [20] Л.С. Камзина, И.П. Раевский, В.В. Еремкин, В.Г. Смотров. *ФТТ* **44**, 9, 1676 (2002).
- [21] Л.С. Камзина, И.П. Раевский, В.В. Еремкин, В.Г. Смотров, Е.В. Сахар. *ФТТ* **45**, 6, 1061 (2003).
- [22] I.N. Zakharchenko, O.A. Bunina, P.N. Timonin, Y.A. Trusov, V.P. Sakhnenko. *Ferroelectrics* **199**, 1-4, 187 (1997).
- [23] С.М. Емельянов, Н.П. Проценко, В.А. Загоруйко, Т.В. Соколова, С.М. Зайцев. *Изв. АН СССР. Неорган. материалы* **27**, 3, 431 (1991).
- [24] L.S. Kamzina, N.N. Krainik. *Ferroelectrics* **223**, 27 (1999).
- [25] A.A. Bokov, Y.-H. Bing, W. Chen, Z.-G. Ye, S.A. Bogatina, I.P. Raevski, S.I. Raevskaya, E.V. Sahkar. *Phys. Rev. B* **68**, 5, 052 102 (2003).
- [26] Y. Xi, C. Zhili, L.E. Cross. *J. Appl. Phys.* **54**, 6, 3399 (1983).
- [27] F. Chu, G.R. Fox, N. Setter. *J. Am. Cer. Soc.* **81**, 6, 1577 (1998).