

## Закон Фогеля–Фулчера — характерная особенность сегнетостекольной фазы в танталате калия, допированном литием

© В.В. Лагута, М.Д. Глинчук, И.В. Кондакова

Институт проблем материаловедения Национальной академии наук Украины,  
03680 Киев, Украина

E-mail: dep4@materials.kiev.ua

(Поступила в Редакцию 31 октября 2003 г.)

Проведены измерения динамического диэлектрического отклика и нелинейной диэлектрической восприимчивости  $K_{1-x}Li_xTaO_3$  ( $x = 0.01, 0.016$  и  $0.03$ ) в постоянном электрическом поле для области температур  $4 \leq T \leq 150$  К. Обнаружено, что в образцах с двумя меньшими концентрациями лития электрическое поле  $E$  уменьшает диэлектрическую восприимчивость  $\epsilon'$ . В образце с концентрацией лития  $x = 0.03$  наблюдалось как уменьшение ( $E > 1$  кВ/см), так и увеличение ( $E < 0.5$  кВ/см) восприимчивости. Установлено, что наблюдаемая зависимость положения максимума  $\epsilon'$  от температуры и частоты измерительного поля в образцах с меньшей концентрацией примесей лития ( $x = 0.01, 0.016$ ) удовлетворяет закону Аррениуса, а в образцах с большей концентрацией примесей ( $x = 0.03$ ) — закону Фогеля–Фулчера. Теоретическое описание, выполненное в рамках теории случайного поля, подтвердило найденные экспериментально закономерности и позволило сделать вывод о том, что закон Аррениуса характерен для дипольного стекла, а закон Фогеля–Фулчера — для смешанной сегнетостекольной фазы с сосуществованием ближнего и дальнего полярного порядка. Таким образом, измерения диэлектрического отклика можно использовать для идентификации фазы сегнетостекла в любом разупорядоченном сегнетоэлектрике.

Разупорядоченные сегнетоэлектрики привлекают пристальное внимание ученых благодаря своим необычным свойствам. Танталат калия с примесными ионами лития и ниобия, занимающими нецентральные положения в решетке, часто рассматривается как модель разупорядоченного сегнетоэлектрика. Все свойства  $K_{1-x}Li_xTaO_3$  (KLT) и  $KTa_{1-x}Nb_xO_3$  (КТН) сильно зависят от концентрации нецентральных ионов  $Li^+$  или  $Nb^{5+}$  даже при малых концентрациях  $x < 0.1$  [1,2]. В частности, состояние дипольного стекла (DG) с полярными кластерами ближнего порядка реализуется при  $x < x_c$ , в то время как при больших концентрациях ( $x_0 \geq x \geq x_c$ ) имеет место смешанная фаза сегнетостекла (FG), в которой сосуществуют дальний и ближний полярный порядок. С дальнейшим увеличением концентрации примесей при  $x \geq x_0$  возникает сегнетофаза (FE). Измерения критической концентрации дают следующие значения:  $x_c = 0.022$  (KLT) и  $x_c = 0.008$  (КТН) (см., например, [3]). Расчеты показывают, что как значение критической концентрации  $x_c$ , так и вся фазовая диаграмма разупорядоченных сегнетоэлектриков определяются видом и параметрами функции распределения случайных электрических полей, а именно отношением величин наиболее вероятного поля  $E_0$  и полуширины  $\Delta E_i$ . В то время как величина  $E_0$  полностью определяется вкладом электрических диполей и пропорциональна их концентрации ( $E_0 \sim x$ ) [1], значение  $\Delta E_i$  зависит также от вклада других источников случайных полей, например точечных зарядов и центров дилатации [4]. Заметим, что учет вкладов этих дополнительных источников случайных полей помогает объяснить достаточно большое значение критической концентрации в KLT.

В общем случае реализация DG-, FG- и FE-фаз соответствует следующим значениям параметров:

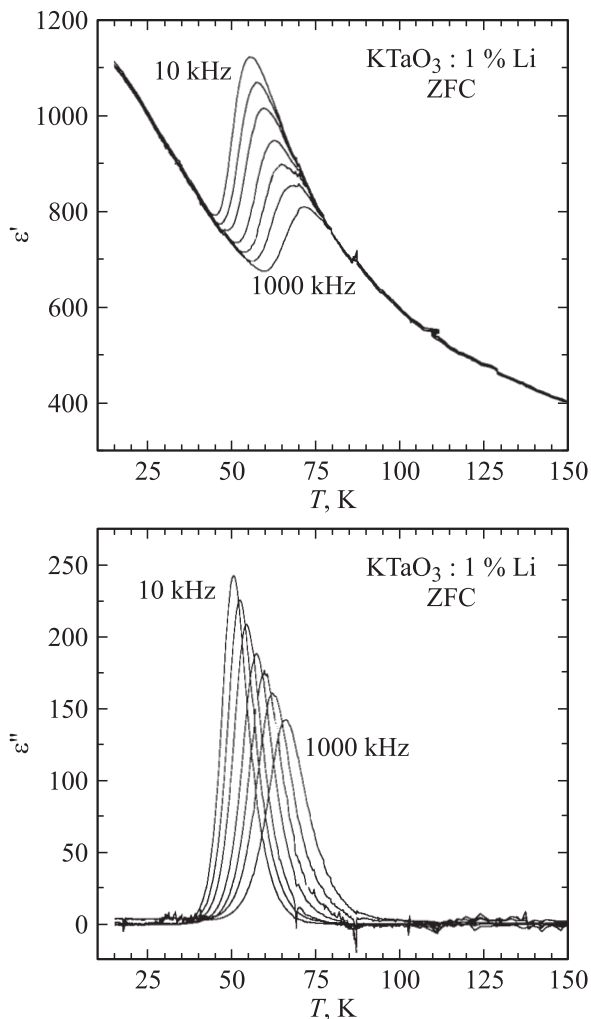
$E_0/\Delta E_i < 1$ ,  $E_0/\Delta E_i \geq 1$  и  $E_0/\Delta E_i \gg 1$ . Выделение и идентификация DG- и FG-фаз во многих разупорядоченных сегнетоэлектриках, в частности релаксорах, до сих пор является наиболее сложной задачей. Неэргодичное поведение и процессы с большими временами релаксации характерны для обеих этих фаз, хотя вначале с их помощью описывалось только стекольное состояние. С другой стороны, теоретическое рассмотрение влияния внешних постоянных электрических полей на диэлектрическую восприимчивость показало, что в DG-фазе дополнительное внешнее постоянное поле всегда приводит к уменьшению диэлектрического отклика, тогда как в смешанной FG-фазе постоянное внешнее поле может как снижать, так и увеличивать отклик [5,6]. Следовательно, измерения нелинейной восприимчивости могут быть использованы для идентификации FG-фазы. Принимая во внимание тот факт, что в модельном разупорядоченном сегнетоэлектрике KLT DG- и FE-фазы существуют соответственно при значениях концентраций  $x < x_c = 0.022$  [7] и  $x \geq x_0 = 0.05$  [8], можно ожидать появления FG-фазы в образцах с промежуточной концентрацией примесей. Таким образом, измерения нелинейного отклика в образцах с концентрацией примесей в указанном диапазоне можно использовать для идентификации FG-фазы. Кажется разумным также сравнить экспериментально и теоретически полученное поведение динамической диэлектрической восприимчивости в области концентраций лития, соответствующих DG- и FG-фазам.

В настоящей работе представлены результаты измерений динамического диэлектрического отклика и нелинейной восприимчивости во внешнем постоянном электрическом поле для идентификации FG-фазы в KLT. Мы предлагаем также иной метод разделения DG- и

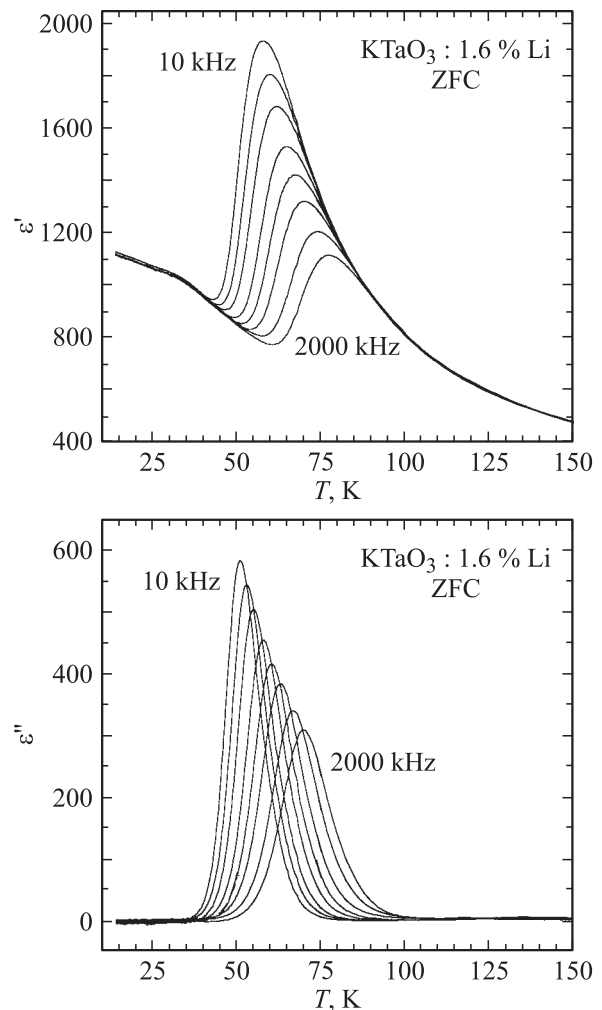
FG-фаз на основе изучения температурных зависимостей динамического диэлектрического отклика. В работе экспериментально и теоретически показано, что температуры максимума диэлектрической восприимчивости при измерении на различных частотах удовлетворяют закону Аррениуса для DG-состояния и закону Фогеля–Фулчера для FG-фазы. Поскольку при исследовании неупорядоченных сегнетоэлектриков измерения температурных и частотных зависимостей диэлектрической восприимчивости, как правило, проводятся, предложенный нами метод идентификации DG- и FG-фаз кажется многообещающим.

## 1. Экспериментальная методика и результаты

Исследовались монокристаллические образцы  $\text{KTaO}_3$ , допированные ионами лития с концентрацией 1, 1.6 и 3 at.%. Типичный размер кристаллов состав-



**Рис. 1.** Температурные зависимости действительной  $\epsilon'$  и мнимой  $\epsilon''$  частей диэлектрической константы  $\text{KTaO}_3$ : 1% Li и их частотная дисперсия.

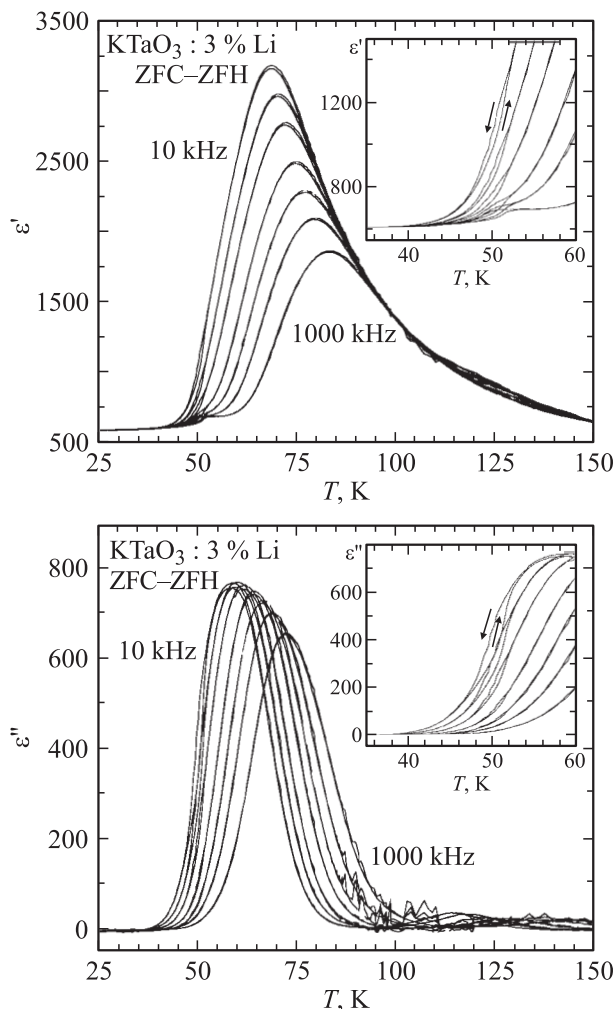


**Рис. 2.** Температурные зависимости  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$   $\text{KTaO}_3$ : 1.6% Li и их частотная дисперсия.

лял  $3 \times 2 \times 1$  mm, грани были параллельны плоскостям (001). Электроды наносились серебряной пастой на противоположные грани.

Диэлектрический отклик измерялся с помощью моста НР 4275А (частота переменного электрического поля от 10 kHz до 2 MHz) в зависимости от частоты и температуры при величине внешнего электрического постоянного поля до 2000 V/cm. Температура варьировалась от 300 до 4.2 K, скорость нагревания составляла 0.2–0.3 K/min.

На рис. 1 и 2 представлены температурные и частотные зависимости диэлектрической восприимчивости и потерь, измеренные на образцах с концентрацией лития 1 и 1.6% при нулевом постоянном электрическом поле, вид которых характерен для таких концентраций лития. На рис. 3 показаны температурные и частотные зависимости диэлектрической восприимчивости и потерь для  $\text{KTaO}_3$ : 3% Li. При  $T < T_m$  ( $T_m$  — температура максимума диэлектрической восприимчивости) наблюдаются некоторые особенности, а именно: при



**Рис. 3.** Температурные зависимости  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$   $\text{KTaO}_3$ : 3% Li и их частотная дисперсия. На вставках показана аномалия диэлектрического отклика при  $T \approx 50$  К.

$T \approx 50$  К отчетливо видно ступенчатое уменьшение величин  $\epsilon'$  и  $\epsilon''$  (см. вставки на рис. 3). Более того, эта аномалия претерпевает гистерезис при нагревании и охлаждении. Заметим, что температура основного пика диэлектрической восприимчивости не зависит от режима прохождения (т.е. одинакова при нагревании и охлаждении). Второй отличительной особенностью аномалии при  $T \approx 50$  К является ее бездисперсионность; по крайней мере в частотном диапазоне  $10^4 - 2 \cdot 10^6$  Hz температура  $\epsilon$ -прыжка не зависит от частоты переменного электрического поля.

В рассматриваемых образцах с тремя концентрациями лития мы анализировали температурные зависимости дисперсии диэлектрической восприимчивости вблизи  $T_m$ , предполагая, что релаксация диполей лития имеет дебаевский характер и частота реориентации диполей подчиняется закону Аррениуса

$$v = v_0 \exp(U/T_m) \quad (1)$$

либо закону Фогеля–Фулчера

$$v = v_0 \exp[U/(T_m - T_g)], \quad (2)$$

где предэкспоненциальный множитель  $v_0$ , активационный барьер  $U$  и „температура замерзания“  $T_g$  являются подгониочными параметрами. Величины этих параметров представлены в таблице. Их значения свидетельствуют о том, что в образцах с низкой концентрацией Li (1 и 1.6%) дисперсия  $\epsilon$  определяется динамикой индивидуальных (изолированных или слабо взаимодействующих) диполей Li и хорошо описывается законом Аррениуса, что находится в согласии с результатами ЯМР-исследования  $^7\text{Li}$  [1]. Для образцов с 3% Li дисперсия  $\epsilon$  уже не описывается простым законом Аррениуса, и лучшего согласия с экспериментом при разумных значениях параметров можно достичь, описывая температурную зависимость частоты реориентации диполей законом Фогеля–Фулчера. Именно такой подход чаще всего используется для описания динамики соединений, содержащих фазу дипольного стекла.

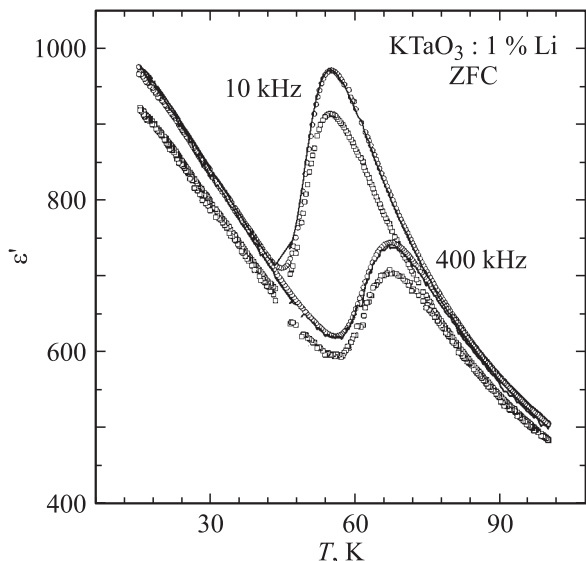
Для изучения нелинейных эффектов диэлектрической проницаемости прикладывалось внешнее постоянное электрическое поле  $E$ . При измерении диэлектрической проницаемости применялись следующие режимы: охлаждение в поле (FC) и охлаждение в поле–нагревание без поля (FC–ZFH). После каждого измерения в постоянном электрическом поле образец нагревался до комнатной температуры для удаления пространственного заряда, который аккумулировался вблизи электродов, что приводило к уменьшению измеряемых значений емкости образца. С другой стороны, влияние пространственного заряда при низких температурах (4–150 К) можно также учесть, если предположить существование некоторой температурно-независимой емкости, соединенной параллельно с емкостью „идеального“ образца. Очевидно, что эта дополнительная емкость, зависящая от напряженности и величины электрического поля, может быть определена путем сравнения значений  $\epsilon'(T)$ , измеренных в режиме ZFC сразу после приложения постоянного поля и после медленного нагревания (4–6 h) при 400–500 К. На рис. 4 в качестве примера представлены результаты измерений  $\epsilon'(T)$  до и после приложения поля, а также данные, учитывающие поправку к  $\epsilon'(T)$  путем введения параллельно соединенной емкости  $C_0$ . Видно, что

Динамические характеристики диэлектрического отклика  $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$

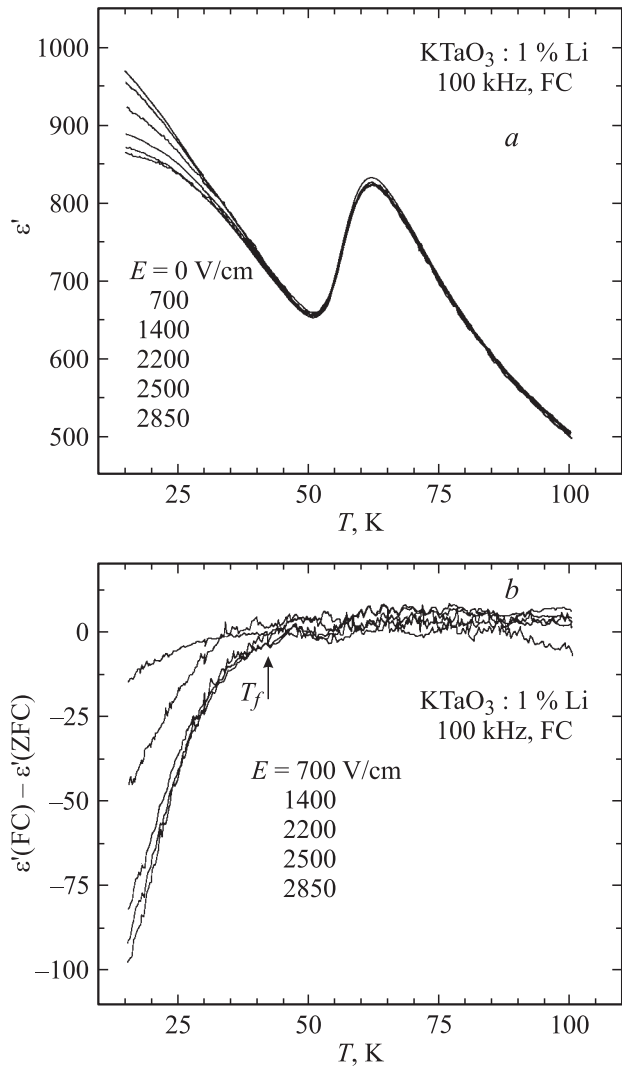
Параметр	x					
	0.01		0.016		0.03	
	Эксперимент	Теория	Эксперимент	Теория	Эксперимент	Теория
$U, \text{K}$	970	1109	994	1150	918	860
$v_0, \text{Hz}$	$2.4 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{12}$	$2.9 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{12}$	$3.9 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{12}$
$T_g, \text{K}$	0	0	0	0	12	15

параллельно соединенная емкость позволяет достаточно хорошо учесть влияние пространственного заряда.

На рис. 5, *a* приведены данные диэлектрических измерений в режиме FC для  $\text{KTaO}_3: 1\% \text{Li}$  с учетом эффекта пространственного заряда. Температурная зависимость нелинейной части диэлектрической восприимчивости, т.е. величина  $\varepsilon'(T, E) - \varepsilon'(T, 0)$ , представлена на рис. 5, *b*. Видно, что при температурах ниже некоторой температуры  $T_g$ , которую обычно называют „температурой замерзания“ дипольного стекла (температура, при которой дипольная система теряет свою эргодичность), диэлектрическая восприимчивость в постоянном электрическом поле уменьшается. Подобное поведение  $\varepsilon'(T)$  в поле наблюдалось и в  $\text{KTaO}_3: 1.6\% \text{Li}$ . В образцах  $\text{KTaO}_3: 3\% \text{Li}$  влияние электрического поля на восприимчивость было существенно иным. Заметное влияние электрического поля наблюдалось лишь при  $T < 50 \text{ K}$ . В слабых электрических полях ( $E \leq 0.5 \text{ kV/cm}$ ) и при  $T \leq 50 \text{ K}$  значения  $\varepsilon'$  возрастали, однако при  $E \geq 1 \text{ kV/cm}$  диэлектрическая восприимчивость уменьшалась, т.е. величина  $\varepsilon'(T, E) - \varepsilon'(T, 0)$  была как положительной, так и отрицательной (рис. 6, *a* и *b*). Одновременно на температурной зависимости  $\varepsilon'$  в области температур  $T < 50 \text{ K}$  появлялся широкий максимум. Возможно, с возрастанием частоты указанный максимум сдвигается в область более высоких температур, однако мы не беремся анализировать здесь этот эффект из-за неопределенности положения данного пика. Обнаружено также существенное влияние постоянного электрического поля на скачок значений  $\varepsilon'$  при  $T \approx 50 \text{ K}$ . Аномалия становится меньше и полностью исчезает в полях величиной  $1-2 \text{ kV/cm}$ .



**Рис. 4.** Температурная зависимость  $\varepsilon'$   $\text{KTaO}_3: 1\% \text{Li}$ , измеренной в режиме охлаждения без поля (ZFC) до приложения постоянного электрического поля (кружки) и после приложения поля  $E_0 = 1.4 \text{ kV/cm}$  (квадраты). Сплошные линии представляют скорректированные экспериментальные данные после исключения влияния пространственного заряда.



**Рис. 5.** *a*) Влияние постоянного электрического поля на температурную зависимость  $\varepsilon'$   $\text{KTaO}_3: 1\% \text{Li}$ , измеренной в режиме FC на частоте  $100 \text{ kHz}$ . *b*) Температурная зависимость нелинейной части  $\varepsilon'$ .

## 2. Диэлектрическая восприимчивость в рамках теории случайных полей

Рассмотрим температурные и частотные зависимости диэлектрической восприимчивости разупорядоченных сегнетоэлектриков. В общем случае диэлектрическая восприимчивость определяется реориентационным движением электрических диполей. В разупорядоченных сегнетоэлектриках скорость реориентаций диполей сильно зависит от случайных полей в месте их нахождения из-за влияния этих полей на величину барьера между эквивалентными равновесными положениями диполей с разными направлениями дипольного момента [9]. Очевидно, что наблюдаемый диэлектрический отклик может быть получен путем усреднения по величинам случайных полей с учетом их функции распределения. В работе [5] для диполей с двумя возможными ориентациями

было выполнено усреднение с функцией распределения, учитывающей как линейные, так и нелинейные эффекты во внешних и внутренних (случайных) полях [10], и получено следующее выражение для диэлектрической восприимчивости:

$$\frac{4\pi}{\varepsilon_0} \chi = \frac{Q}{1-Q}, \quad (3)$$

$$Q = \frac{2E_0}{\pi} \int_0^\infty \int_0^\infty \text{th} \left( \frac{E_i}{kT} \right) \exp(-A\rho^{3/2} - C\rho^2) \times \sin(\rho E_i) \frac{\rho \cos(\rho(E + E_0L))}{1 + i\omega\tau_1(E_i)} dE_i d\rho, \quad (4)$$

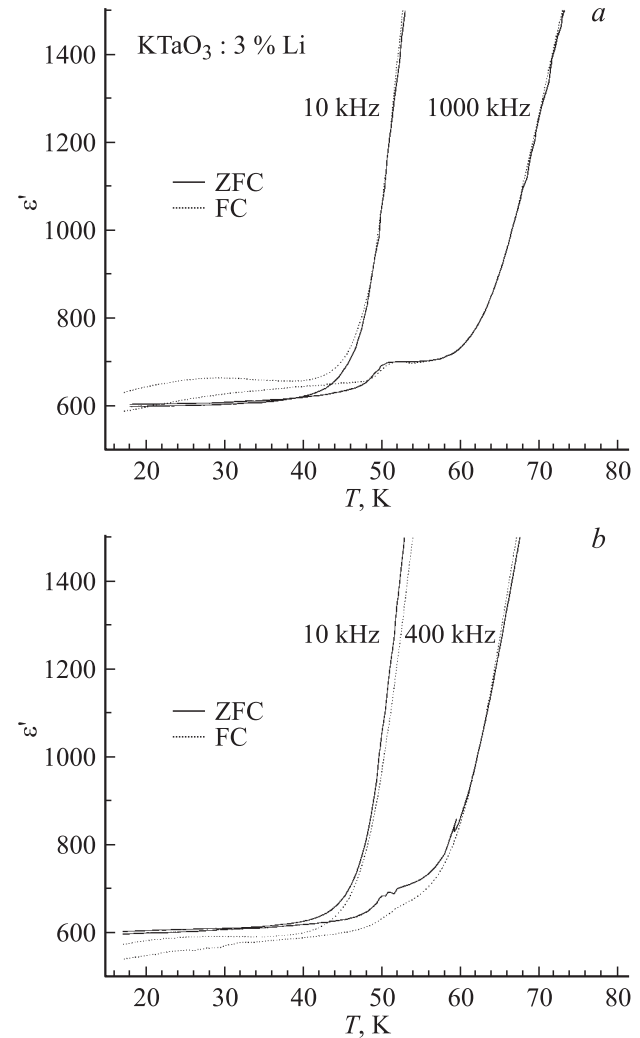
$$A = \frac{32}{15} \left( \frac{\pi Ze}{2\varepsilon_0} \right)^{3/2} n_1, \quad C = \frac{16\pi}{15} \left( \frac{d^*}{\varepsilon_0 r_c^3} \right)^2 n r_c^3, \\ E_0 = \frac{4\pi n d^{*2}}{\varepsilon_0}, \quad \tau_1 = \bar{\tau} \frac{\text{ch}(2E_i/kT)}{\text{ch}(E_i/kT)}. \quad (5)$$

Здесь  $E$  — внешнее постоянное электрическое поле, а переменное измерительное поле предполагается малым и стремится к нулю;  $n$  — концентрация электрических диполей с дипольным моментом  $d$ ;  $d^* = d\gamma(\varepsilon_0 - 1)/3$ ,  $\gamma$  — фактор Лорентца,  $\varepsilon_0$  — статическая диэлектрическая восприимчивость  $\text{KTaO}_3$  как основной решетки;  $L$  — сегнетоэлектрический параметр порядка (безразмерная поляризация), характеризующий число когерентно ориентированных диполей;  $n_1$  — концентрация точечных заряженных дефектов с зарядом  $Ze$ ;  $r_c$  — корреляционный радиус основной решетки;  $E_i$  — внутренние случайные поля с функцией распределения, полученной в рамках статической теории (см. [4]). Здесь  $\bar{\tau} = \tau_0 \exp(U/kT)$  — закон Аррениуса для реориентационного движения диполей между двумя эквивалентными положениями с барьером высотой  $U$ . Уравнение (4) было получено в предположении, что релаксация каждого изолированного диполя к своему равновесному значению имеет дебаевский характер.

Таким образом, уравнения (3)–(5) описывают зависимость диэлектрической восприимчивости от температуры, частоты, величины внешнего постоянного электрического поля, параметров основной решетки и источников случайных полей.

Проведенные в работе [5] вычисления нелинейной по внешнему постоянному электрическому полю восприимчивости на основании формул (3), (4) показали, что при значениях параметров, соответствующих FG-фазе, постоянное поле может уменьшать или увеличивать диэлектрический отклик, что зависит от величины этого поля и температуры. В DG-фазе постоянное поле любой величины лишь уменьшает диэлектрическую восприимчивость во всем диапазоне температур.

Результаты измерений, представленных на рис. 5, 6, подтверждают этот теоретический вывод: для KLT с концентрацией  $x = 0.01$  и  $0.016$ , что соответствует



**Рис. 6.** Температурная зависимость  $\varepsilon'$  в  $\text{KTaO}_3$ : 3% Li, измеренной в режиме ZFC (сплошная линия) и в режиме FC (пунктирная линия) в постоянных электрических полях 0.5 (a) и 2 кВ/см (b).

DG-фазе (так как  $x < x_c = 0.022$ ), внешнее поле уменьшает восприимчивость (рис. 5). В образцах с  $x = 0.03$ , т.е. в FG-фазе, влияние поля  $E$  существенно иное (рис. 6). Видно, что при  $E \leq 0.5$  кВ/см и  $T \leq 50$  К  $\varepsilon'$  увеличивается, в то время как при  $E > 1$  кВ/см  $\varepsilon'$  уменьшается, т.е. значение  $\varepsilon'(T, E) - \varepsilon'(T, 0)$  может быть как положительным, так и отрицательным.

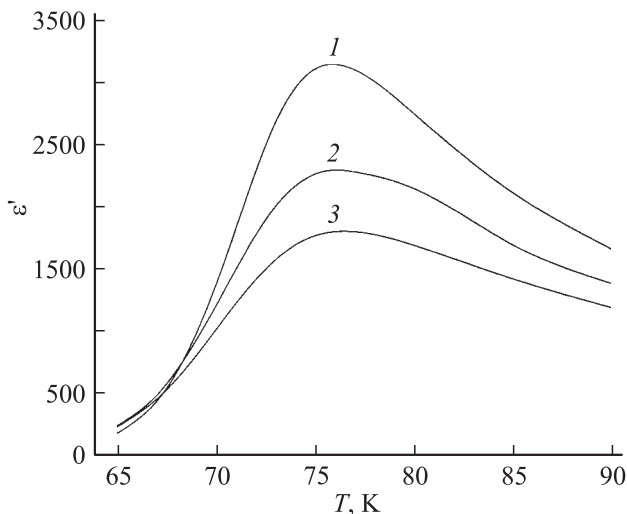
Рассмотрим теперь частотную и температурную зависимости диэлектрической восприимчивости в отсутствие внешнего постоянного электрического поля ( $E = 0$ ). Вычисления были проведены на основании формул (3) и (4) для значений параметров, соответствующих полученным ранее в KLT методом ЯМР для одиночных ионов лития [11]:  $U = 1000$  К,  $\tau_0 = 10^{-13}$  с и  $x = 0.01, 0.016, 0.03$ . Температурно-зависимые значения радиуса корреляции, используемые в уравнении (5), были вычислены на основании выражения для статической диэлектрической восприимчивости чистого танталата калия, величина



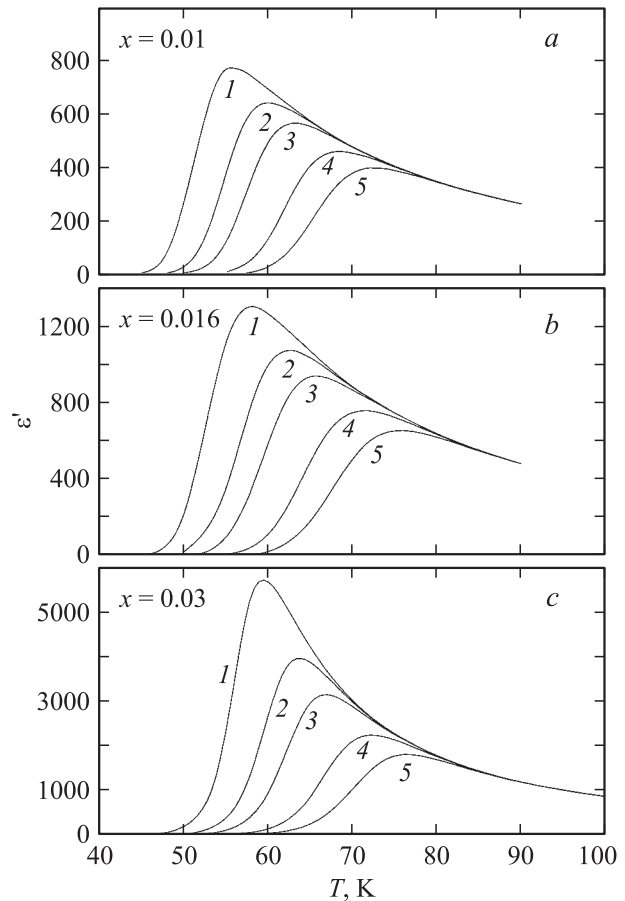
которой пропорциональна частоте мягкой моды (формула Баррета), со значениями параметров, указанными в работе [12]. Значения  $\epsilon_0$  в (4), (5) были взяты из феноменологического выражения для чистого  $\text{KTaO}_3$ :  $\epsilon_0 = 48 + C/(T - T_0)$ , где  $C = 5 \cdot 10^4 \text{ K}$ ,  $T_0 \cong 12.9 \text{ K}$ . Мы также предполагали, что значительный вклад в ширину функции распределения случайных полей вносят примесные точечные заряды. Отсюда следует, что, поскольку априори ничего не известно о концентрации и других характеристиках точечных зарядов в KLT, параметр  $A$ , определяемый этими дефектами, может быть подгоночным параметром теории и эксперимента. Подчеркнем, что изменения значения  $A$  не приводят к сдвигу максимума  $\epsilon'(T)$  (т.е.  $T = T_m$ ), а лишь уширяют функцию распределения и уменьшают ее интенсивность (рис. 7). Поскольку  $T = T_m$  является наиболее важной характеристикой, определяющей температурную зависимость скорости релаксации, ясно, что выбор значения  $A$  не влияет на релаксационное поведение.

На рис. 8, *a-c* представлены результаты расчетов  $\epsilon'(\omega, T)$  по формулам (3), (4) для  $x = 0.01$ , 0.016 и 0.03. Полученные значения  $T_m(\nu)$  с хорошей точностью описываются законом Аррениуса со значениями параметров  $U = 1100 \text{ K}$ ,  $\nu_0 = 4 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$  и  $U = 1150 \text{ K}$ ,  $\nu_0 = 4 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$  для  $x = 0.01$  и 0.016 соответственно. Наши попытки описать  $T_m(\nu)$  для  $x = 0.03$  законом Аррениуса с разумными значениями параметра  $\nu_0$  потерпели неудачу. Описать эксперимент оказалось возможным только с помощью закона Фогеля–Фулчера (2) со значениями параметров  $\nu_0 = 4 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$ ,  $T_g = 15 \text{ K}$ .

Сравнение с измеренными значениями параметров показывает, что теория хорошо описывает эксперимент и значения параметров законов Аррениуса и Фогеля–Фулчера, полученные теоретически и экспериментально,



**Рис. 7.** Теоретические температурные зависимости диэлектрической проницаемости (действительная часть) в KLT на частоте  $10^6 \text{ Hz}$  для различных концентраций точечных зарядов  $A$ . 1 —  $A_1$ , 2 —  $2A_1$ , 3 —  $3A_1$  (где  $A_1$  — некоторая относительная величина).



**Рис. 8.** Теоретические температурные зависимости диэлектрической проницаемости (действительная часть) в KLT на частотах  $10^4$  (1),  $4 \cdot 10^4$  (2),  $10^5$  (3),  $4 \cdot 10^5$  (4) и  $10^6 \text{ Hz}$  (5) для концентраций лития 1 (a), 1.6 (b), 3% (c).

достаточно близки (см. таблицу). Таким образом, как экспериментальное исследование, так и теоретическое описание позволяют сделать вывод о справедливости закона Аррениуса для фазы дипольного стекла ( $x = 0.01$ ; 0.016) и закона Фогеля–Фулчера для сегнетостекольной фазы ( $x = 0.03$ ) в KLT.

### 3. Обсуждение результатов

Исследования модельного разупорядочения сегнетоэлектрика  $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{TaO}_3$  показали, что скорости релаксации описываются законами Аррениуса и Фогеля–Фулчера соответственно при  $x < x_c$  (DG-фаза) и при  $x > x_c$  (FG-фаза). Необходимо отметить, что теоретически скорость диэлектрической релаксации в KLT ( $x > x_c$ ) уже описывалась законом Фогеля–Фулчера ранее в работе [13]. Однако в течение многих лет для описания диэлектрических спектров в KLT обычно использовался закон Аррениуса для всего диапазона концентраций лития [1,2]. Поэтому представленные здесь экспериментальные данные являются фактически

первым наблюдением закона Фогеля–Фулчера в KLT при  $x_0 > x > x_c$ . Исследования  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  проходили практически по тому же сценарию. Самара [14] впервые показал, что при  $x > x_c = 0.008$ , т.е. в FG-фазе, описание релаксационных процессов может быть выполнено с помощью закона Фогеля–Фулчера вместо закона Аррениуса, который остается справедливым только для малых концентраций, т.е. в DG-фазе (см. [1–3] и ссылки в них). Существенным преимуществом соединений KLT и KTN по сравнению с более сложными разупорядоченными сегнетоэлектриками, такими как релаксоры (например,  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PMN)), является возможность получать DG- и FG-фазы путем изменения концентрации ионов Li или Nb и исследовать особенности их свойств. Поскольку природа фаз во всех разупорядоченных сегнетоэлектриках одинакова, выполненные в представленной работе исследования KLT открывают возможность идентификации DG- и FG-фаз в любых разупорядоченных сегнетоэлектриках, включая релаксоры. В частности, принимая во внимание тот факт, что закон Фогеля–Фулчера применяется для описания диэлектрической релаксации во всех релаксорах (см., например, [15,16]), можно сделать вывод, что все сегнетоэлектрические релаксоры находятся в FG-фазе, в которой сосуществует ближний и дальний полярный порядок. Это утверждение находится в хорошем согласии с результатами измерений нелинейной диэлектрической восприимчивости в PMN, в которой постоянное электрическое поле приводило как к уменьшению, так и к увеличению восприимчивости [6] (подобно наблюдаемым нами изменениям в KLT при  $x = 0.03$ ). Заметим, что такое же влияние поля  $E$  на диэлектрическую восприимчивость, а именно увеличение диэлектрического отклика при некоторых значениях  $T$  и  $E$ , наблюдалось ранее в KLT с  $x = 0.026$  [17] и  $0.035$  [18].

Причины возникновения слабого максимума  $\varepsilon'(T, \nu)$  в KLT при  $x = 0.03$  и  $T \approx 50$  К пока неясны. Подобные аномалии при измерениях  $\varepsilon'(T)$  с наличием гистерезиса наблюдались и ранее при  $x = 0.026$  [7]. Не исключено, что эти аномалии в FG-фазе связаны с фазовым переходом первого рода в областях с дальним порядком. Ранее теоретически предсказывались два типа аномалий диэлектрического отклика разупорядоченных сегнетоэлектриков в FG-фазе [12]. Дополнительные исследования, направленные на выяснение природы аномалий диэлектрического отклика в модельном разупорядоченном сегнетоэлектрике KLT, проводятся в настоящее время.

## Список литературы

- [1] B.E. Vugmeister, M.D. Glinchuk. *Rev. Mod. Phys.* **82**, 4, 993 (1990).
- [2] U.T. Hochli, K. Knorr, A. Loidl. *Adv. Phys.* **39**, 5, 405 (1990).
- [3] W. Kleemann. *Int. J. Mod. Phys.* **7**, 13, 2469 (1993).
- [4] M.D. Glinchuk, V.A. Stephanovich. *J. Phys.: Cond. Matter* **6**, 6317 (1994).

- [5] M.D. Glinchuk, V.A. Stephanovich. *J. Phys.: Cond. Matter* **10**, 11081 (1998).
- [6] A.E. Glazunov, A.K. Tagansev. *Ferroelectrics* **201**, 305 (1997).
- [7] W. Kleemann, S. Kutz, D. Rytz. *Europhys. Lett.* **4**, 2, 239 (1987).
- [8] S.R. Andrews. *J. Phys.: Cond. Matter* **18**, 1357 (1985).
- [9] М.Д. Глинчук, В.А. Стефанович. *ФТТ* **44**, 5, 905 (2002).
- [10] M.D. Glinchuk, R. Farhi, V.A. Stephanovich. *J. Phys.: Cond. Matter* **9**, 10237 (1997).
- [11] J.J.V. d. Klink, D. Rytz, F. Borsa, U.T. Hochli. *Phys. Rev. B* **27**, 1, 89 (1983).
- [12] M.D. Glinchuk, V.A. Stephanovich. *Ferroelectrics* **169**, 281 (1995).
- [13] M.D. Glinchuk, V.A. Stephanovich. *Ferroelectrics Lett.* **22**, 113 (1997).
- [14] G.A. Samara. *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2, 298 (1984).
- [15] B.D. Viehland, S. Jang, L.E. Cross. *Phyl. Mag. B* **64**, 3, 335 (1991).
- [16] E. Glazunov, A.K. Tagansev. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 6, 856 (1998).
- [17] U.T. Hochli, D. Rytz, J.J.V. d. Klink, F. Borsa. *Solid State Commun.* **49**, 9, 863 (1984).
- [18] Y. Yacoby, A. Agranat, I. Ohana. *Solid State Commun.* **45**, 8, 757 (1983).