

06,05,11

Особенности низкочастотного поляризационного отклика в области сегнетоэлектрического фазового перехода в мультиферроике TbMnO₃

© В.А. Трепаков^{1,2}, О.Е. Квятковский¹, М.Е. Savinov², А. Dejneka²,
Х. Wang³, S.-W. Cheong³

¹ Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Institute of Physics of the Czech Academy of Sciences, Prague, Czech Republic

³ Rutgers Center for Emergent Materials and Department of Physics and Astronomy, Rutgers University, New Jersey, USA

E-mail: trevl@mail.ioffe.ru

(Поступила в Редакцию 12 апреля 2016 г.)

Проведено детальное экспериментальное и теоретическое исследование необычного поведения низкочастотной (10 Hz–1 MHz) диэлектрической проницаемости в монокристаллах сегнетоэлектрика мультиферроика TbMnO₃ в области узкого температурного пика диэлектрической проницаемости, связанного с фазовым переходом в сегнетоэлектрическую фазу ($T_C \approx 27.4$ К). Обнаружено, что величина максимума $\epsilon'_c(\omega, T)$ резко уменьшается с ростом частоты измерительного поля, в то время как температурное положение максимума от частоты не зависит. Показано, что наблюдаемые особенности поляризационного отклика могут быть удовлетворительно описаны в рамках теории релаксации поляризации Ландау–Халатникова.

Часть работы, выполненная в Университете Рутгерса (авторы Х. Wang и S.-W. Cheong), была поддержана грантом Рутгерсовского университета DOE No. DE-FG02-07ER46382.

1. Введение

Свойства мультиферроика TbMnO₃ привлекают особое внимание. В этом материале было впервые обнаружено сегнетоэлектрическое упорядочение, индуцированное спиральной волной спиновой плотности, возникающей при антиферромагнитном (AFM) фазовом переходе [1]. При комнатной температуре TbMnO₃ имеет искаженную структуру перовскита с орторомбической симметрией ($Pbnm-D_{2h}^{16}$) и является парамагнетиком. Существование нескольких конкурирующих обменных взаимодействий приводит к спиновому и орбитальному упорядочению в системе ян-теллеровских ионов Mn(III) с электронной конфигурацией (t_{2g}^3, e_g^1) и к последовательности AFM-фазовых переходов. Сначала при $T_N \sim 41$ К происходит переход в несоразмерную синусоидально модулированную AFM-фазу. При дальнейшем охлаждении до $T_{\text{lock}} \sim 27$ К происходит переход в AFM-фазу с геликоидальной (спиральной) волной спиновой плотности с потерей инверсионной симметрии, что делает систему полярной с электрической поляризацией, направленной вдоль оси c [1–3]. В результате, ниже T_{lock} наряду с магнитным возникает также и сегнетоэлектрический дальний порядок, т.е. при $T_c = T_{\text{lock}}$ происходит сегнетоэлектрический фазовый переход 2-го рода [1].¹ При этом в магнитном поле порядка нескольких тесла магнитоэлектрический

и магнитоёмкостный эффекты оказываются гигантскими, достигая величин $\Delta P \sim 600 \mu\text{C}/\text{m}^2$ и $\Delta\epsilon'_c/\epsilon'_c \sim 10\%$ [1,4]. Механизм перехода в сегнетоэлектрическую фазу в TbMnO₃ может быть описан в рамках феноменологической теории [5–7]. При этом константа магнитоэлектрического взаимодействия пропорциональна спин-орбитальному взаимодействию (SOI), т.е. она сама и все связанные с ней величины, например, индуцированная электрическая поляризация и константа Кюри–Вейсса, имеют релятивистский порядок малости [5–7]. Благодаря магнитоэлектрическому взаимодействию в AFM-фазе со спиральной волной спиновой плотности сегнетоэлектричество чисто электронной природы возникает уже в зажатом кристалле, т.е. без учета релаксации решетки ниже точки фазового перехода в сегнетоэлектрическую фазу [8–10]. Следует подчеркнуть, однако, что понижение симметрии распределения электронной плотности с необходимостью приводит к понижению решеточной симметрии и появлению ионного вклада в поляризацию \mathbf{P}^{ion} . Выполненные в работах [9–11] расчеты вкладов различной природы в поляризацию в TbMnO₃ дают для электронного вклада значения $P^{\text{el}} \sim 5 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [9] и $32 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [10,11] соответственно. Для полной спонтанной поляризации, включающей вклад ионных смещений \mathbf{P}^{ion} , расчеты дают значения $P_s \sim 424 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [9] и $467 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [10,11], удовлетворительно согласующиеся с экспериментом [3]. Расчеты [9–11] показали, что соответ-

¹ В соответствии с принятой терминологией [12] этот переход является псевдособственным, поскольку спонтанная поляризация \mathbf{P}_s

является вторичным параметром порядка по отношению к намагниченности.

ствующие смещения ионов из высокосимметричных положений являются аномально малыми ($< 0.01 \text{ \AA}$). В то же время, учитывая малость спонтанной поляризации $P_s \sim 500 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [3] в TbMnO_3 (в 10^3 – 10^4 раз меньшей, чем в BaTiO_3), эти смещения оказываются достаточными для получения разумных значений P^{ion} .

Выяснение природы сегнетоэлектрического фазового перехода в TbMnO_3 , роли электронной подсистемы в формировании диэлектрического (поляризационного) отклика требуют дальнейших исследований, прежде всего — температурно-частотных зависимостей диэлектрической проницаемости. Насколько нам известно, подобные исследования проводились в весьма ограниченном объеме только в нескольких работах [1,13,14], не затрагивая деталей поведения поляризационного отклика в области узкого температурного пика $\epsilon'_c(T)$, отвечающего сегнетоэлектрическому фазовому переходу в TbMnO_3 . При этом характеристики аномально узкого температурного максимума и его температурно-частотные зависимости практически не исследовались.

В настоящей работе приводятся результаты детальных экспериментальных исследований температурно-частотных зависимостей низкочастотного поляризационного отклика (диэлектрической проницаемости $\epsilon'_c(\omega, T)$) в TbMnO_3 в области узкого температурного пика $\epsilon'_c(0, T)$ в окрестности температуры сегнетоэлектрического фазового перехода T_c и теоретический анализ полученных результатов в рамках феноменологической теории Ландау–Гинзбурга сегнетоэлектрических фазовых переходов 2-го рода типа смещения и теории критической релаксации поляризации Ландау–Халатникова [16,17].² Обсуждаются причины узости пика низкочастотной диэлектрической проницаемости и его аномальной частотной дисперсии.

2. Методика эксперимента

В эксперименте использовались монокристаллы TbMnO_3 выращенные методом зонной плавки в Рутгерсовском университете (Университете штата Нью-Джерси). Идентификация и качество монокристаллов контролировались методом рентгеновской дифракции и свидетельствовали о высоком совершенстве орторомбической $Pbmn$ кристаллической структуры и отсутствии посторонних фаз. Электрическое сопротивление экспериментальных образцов измерялось четырехзондовым методом и составило при комнатной температуре $\sim 175 \text{ k}\Omega \cdot \text{cm}$, что отвечает состоянию моттовского изолятора. Знак термоэдс свидетельствовал о p -типе проводимости. Измерения комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon_c = \epsilon'_c + i\epsilon''_c$ проводились мониторингом поляризационного отклика на ac электрическое поле $\sim 30 \text{ V}/\text{cm}$ в области частот 100 Hz – 1 MHz с помощью 4192 LF Hewlett-Packard Impedance Analyzer,

² Предварительное сообщение об этих результатах было сделано на Международном симпозиуме по сегнетоэлектричеству в Риге [15].

совмещенного с He-прокачанным криостатом. В качестве датчика температуры использовался кремниевый диод Silicon Diode „Lake Shore“ DT470. Установка позволяла проводить температурные измерения в области 7 – 300 K при изменении температуры со скоростью 10 – $20 \text{ mK}/\text{s}$ и детальные измерения в области узкого температурного максимума со стабилизацией температуры измерения в пределах $\pm 15 \text{ mK}$. Ориентация образцов проводилась на основании измерений Лауэ рентгеновской дифракционной структуры. Образцы изготавливались в виде прямоугольных полированных пластин размерами $3 \times 2 \times 0.5 \text{ mm}$ с плоскостями, ориентированными перпендикулярно базовым кристаллографическим осям. В диэлектрических измерениях использовались плоские конденсаторы с Pt–Au электродами, осажденными термическим испарением на противоположные плоскости ab , перпендикулярные оси c , вдоль которой прикладывалось измерительное электрическое поле.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1 приведены температурные зависимости низкочастотной диэлектрической проницаемости $\epsilon'_c(\omega, T)$, измеренные вдоль оси c для нескольких значений частоты измерительного переменного электрического поля. В исследованном температурно-частотном интервале отчетливо видны характерный узкий пик диэлектрической проницаемости при $T_c = 27.4 \text{ K}$, выраженная частотная дисперсия в области 70 – 100 K и рост дисперсии и величины диэлектрической проницаемости при более высоких температурах. На рис. 2 температурная зависимость диэлектрической проницаемости показана в увеличенном масштабе для области температур 10 – 85 K , демонстрируя, в частности, присутствие перекрывающихся высоко- и низкотемпературного дисперсионных вкладов, формирующих „фоновую подставку“ и влияющих на экспериментально измеряемую величину максимума острого пика $\epsilon'_c(\omega, T)$. Общая картина наблюда-

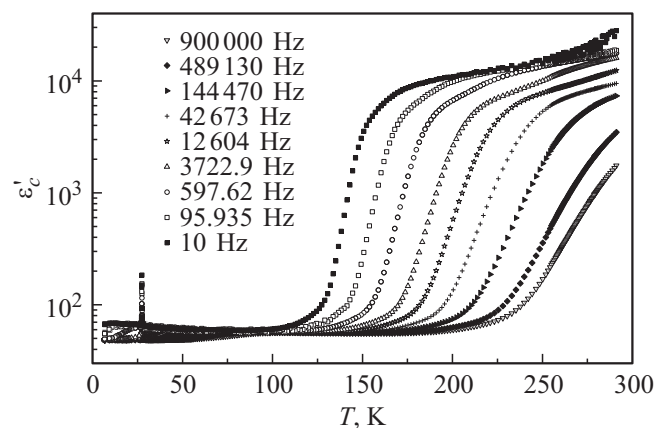


Рис. 1. Диэлектрическая проницаемость вдоль оси c (ϵ'_c) при нескольких избранных частотах.

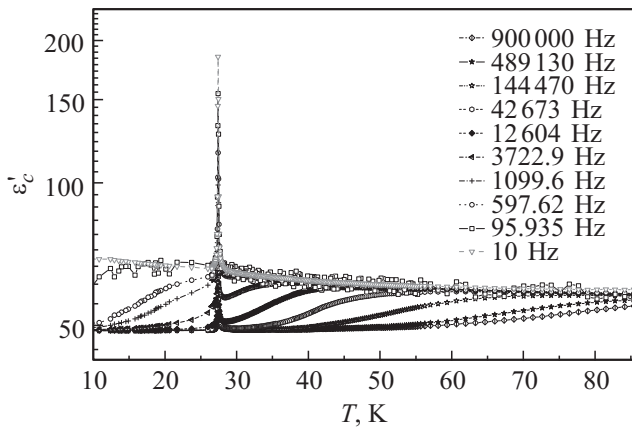


Рис. 2. Температурно-частотная зависимость ϵ'_c в увеличенном масштабе в области 10–85 К.

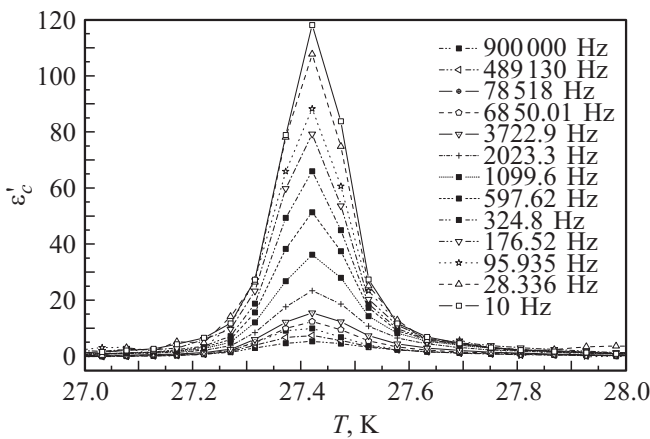


Рис. 3. Диэлектрическая проницаемость ϵ'_c в области узкого температурного пика при нескольких избранных частотах. Для наглядности экспериментальные точки соединены линиями.

емых температурно-частотных зависимостей диэлектрической проницаемости, наличие и положение связанного с сегнетоэлектрическим фазовым переходом необычно узкого пика на температурной зависимости $\epsilon'_c(\omega, T)$ в основном согласуются с данными работ [1,13,14]. В работах [13,14] обсуждалась главным образом „фоновая“ дисперсия ϵ' на частотах 1–100 кГц в области температур 5–60 К, являющаяся „подставкой“ для узкого пика в окрестности температуры Кюри. На наш взгляд, наблюдаемый в этих работах релаксационный характер дисперсии $\epsilon'_c(\omega, T)$ не связан с аномальным поведением диэлектрической проницаемости вблизи T_c , т.е. с критической релаксацией поляризации вблизи точки сегнетоэлектрического фазового перехода 2-го рода, который происходит в TbMnO₃ и DyMnO₃. Исследование релаксационного механизма „фоновой“ дисперсии, который в области высоких температур является, скорее всего, механизмом Максвелла–Вагнера (см., например, [18]) выходит за рамки настоящей работы и не обсуждается далее.

На рис. 3 показано поведение диэлектрической проницаемости в области узкого температурного пика $\epsilon'_c(\omega, T)$, полученное после выделения „фоновых“ релаксационных вкладов. Измерения проводились с температурным разрешением ± 15 мК. Хорошо видно, что в рассматриваемом диапазоне частот величина максимума $\epsilon'_{c,max}(\omega)$ уменьшается с частотой измерительного ac электрического поля, при этом видимого изменения температурного положения максимума в эксперименте не наблюдается. Обнаруженное поведение существенно отличается от обычной релаксационной картины и полученные характеристики низкочастотного поляризационного отклика в области сегнетоэлектрического фазового перехода в TbMnO₃ требуют специального анализа и объяснения.

Рассмотрим подробнее частотно-температурные зависимости диэлектрической проницаемости $\epsilon'_c(\omega, T)$ в области температурного пика. Согласно Мостовому [5], свободную энергию для TbMnO₃ можно представить как

$$F(\mathbf{M}, \mathbf{P}) = \tilde{F}(\mathbf{M}) + \frac{1}{2} \chi_0^{-1} P^2 + F_{int}(\mathbf{M}, \mathbf{P});$$

$$F_{int} = \lambda \mathbf{P} \cdot [(\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{M} - \mathbf{M}(\nabla \cdot \mathbf{M})], \quad (1)$$

где магнитоэлектрическое взаимодействие описывается в форме инварианта Лифшица с константой λ пропорциональной спин-орбитальному взаимодействию (SOI) [5–7]. Соответственно для поляризации из (1) следует выражение $\mathbf{P} = -\lambda \chi_0 [(\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{M} - \mathbf{M}(\nabla \cdot \mathbf{M})]$. При этом волна спиновой плотности $\mathbf{M} = M_b \mathbf{e}_y \times \cos \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r} + M_c \mathbf{e}_z \cos \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r} + M_a \mathbf{e}_x$ с волновым вектором $\mathbf{Q} = (0, Q_b, 0)$ при $M_b \cdot M_c \neq 0$ (циклоидальная структура) сопровождается однородной электрической поляризацией, определяемой выражениями³

$$\langle \mathbf{P} \rangle = \frac{1}{V} \int d\mathbf{r} \mathbf{P} = (0, 0, P_c), \quad P_c = -\chi_0 \lambda Q_b M_b M_c. \quad (2)$$

С „магнитной стороны“ вклад магнитоэлектрического взаимодействия в свободную энергию $F_{int}(\mathbf{M}, \mathbf{P})$ имеет чисто электронную (спиновую) природу. В то же время, он имеет двойственную природу со стороны электрической подсистемы, поскольку электрическая поляризация является суммой чисто электронного вклада \mathbf{P}^{el} (при фиксированных положениях ионов) и ионного вклада \mathbf{P}^{ion}

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{el} + \mathbf{P}^{ion}. \quad (3)$$

Последний связан со смещениями ионов из высокосимметричных положений, индуцированными понижением симметрии распределения электронной плотности при магнитном переходе и в приближении линейного отклика имеет вид $P_i^{ion} = (e/v_c) \sum Z_{ij}(s) u_{sj}$, где $Z_{ij}(s)$ — тензор эффективного заряда Борна. С другой стороны,

³ Оси и пространственные индексы в обозначениях соответствуют пространственной группе № 62 в установке $Pbmn$. Во избежание недоразумений отметим, что в [5] используются также обозначения в стандартной установке $Pnma$, которая отличается ориентацией главных осей.

учитывая, что статическая диэлектрическая восприимчивость χ_0 (при $\mathbf{M} = 0$) равна сумме электронного χ_∞ и решеточного (фононного) χ_{ph} вкладов $\chi_0 = \chi_\infty + \chi_{ph}$, находим из (2) и (3), что в линейном приближении $P_c^{el} = -\chi_\infty \lambda Q_b M_b M_c$ и $P_c^{ion} = -\chi_{ph} \lambda Q_b M_b M_c$. Таким образом, оказывается, что электронный и решеточный вклады в спонтанную поляризацию связаны простым соотношением, следующим уже из феноменологической теории: P_c^{el} и P_c^{ion} должны быть одного знака, а их отношение равно отношению соответствующих восприимчивостей, т.е. $P_c^{el}/P_c^{ion} = \chi_\infty/\chi_{ph}$. Из результатов наших низкочастотных диэлектрических измерений следует, что для $TbMnO_3$ $\chi_\infty/\chi_{ph} \approx 0.1$, откуда получаем, что $P_c^{el} \approx 0.1 P_c^{ion}$. Результаты расчетов из первых принципов [9,10] дают для P_c^{ion} значения, правильные как по знаку, так и по порядку величины. Несколько хуже обстоит дело с электронным вкладом P_c^{el} , для которого оба расчета дают неправильный знак и слишком малые значения. Последнее, возможно, связано с тем, что в обеих работах вклад от электронной f -оболочки тербия в поляризацию не рассматривался. Заметим также, что найденное в [10] отношение значений поляризации $P_c(Q_b)$ для двух гипотетических модулированных структур $P_c(1/2)/P_c(1/3) = 1.48$ находится в очень хорошем согласии с результатом феноменологической теории $P_c(1/2)/P_c(1/3) = 3/2$, который следует из (2).

4. Низкочастотная релаксация вблизи T_c

Поведение диэлектрической восприимчивости в области низких частот в окрестности точки Кюри может быть описано, принимая во внимание релаксационную динамику поляризации, которая для однородной поляризации описывается уравнением Ландау–Халатникова [16,17]

$$\frac{\partial}{\partial t} P_c = -\gamma \frac{\partial}{\partial P_c} \Phi(\mathbf{P}) = -\gamma \chi_{zz}^{-1}(0) P_c + \gamma E_c, \quad (4)$$

где $\Phi(\mathbf{P}) = F(\mathbf{P}) - \mathbf{P} \cdot \mathbf{E}$, $F(\mathbf{P})$ — полная свободная энергия как функция поляризации, возникающая из (1) после решения магнитной задачи, и $\chi_{zz}(0) = \chi_{zz}(\omega = 0, T)$ является статической диэлектрической восприимчивостью. Переходя к Фурье-компонентам $P_c(\omega)$ и $E_c(\omega)$, находим из (4) уравнение для P_c : $-i\omega P_c = -\gamma \chi_{zz}^{-1}(0) P_c + \gamma E_c$. Откуда, учитывая, что $P_c(\omega) = \chi_{zz}(\omega) E_c(\omega)$, получаем для восприимчивости выражение $\chi_{zz}(\omega, T) = (\chi_{zz}^{-1}(0) - i\omega/\gamma)^{-1}$, применимость которого, как и исходного уравнения (4), в теории Ландау–Халатникова ограничена областью низких частот $\omega \ll \gamma$. В [5] было найдено, что вблизи точки Кюри T_c выполняется закон Кюри–Вейсса для $\chi_{zz}(0) \equiv \chi_{zz}(\omega = 0, T)$ с константой Кюри–Вейсса C , квадратичной по спин-орбитальному взаимодействию: $C \propto (\lambda \chi_0 Q_b)^2$. С учетом сказанного, можно представить

реальную и мнимую части диэлектрической проницаемости вблизи точки Кюри как

$$\begin{aligned} \varepsilon'(\omega, T) &= \varepsilon_0 + \frac{4\pi\kappa(T)}{\kappa^2(T) + \omega^2/\gamma^2}, \\ \varepsilon''(\omega, T) &= \frac{4\pi\omega/\gamma}{\kappa^2(T) + \omega^2/\gamma^2}, \\ \kappa(T) &= \begin{cases} 4\pi \frac{T-T_c}{C}, & T \geq T_c \\ 8\pi \frac{T_c-T}{C}, & T < T_c \end{cases}, \end{aligned} \quad (5)$$

где $\varepsilon_0 = 1 + 4\pi\chi_0$ — диэлектрическая проницаемость вдали от T_c . Из (5) следует, что как функция температуры $\varepsilon'(\omega, T)$ имеет два максимума: в параэлектрической фазе ($T > T_c$) при $T_{m,>} = T_c + C\omega/4\pi\gamma$ и в сегнетоэлектрической фазе ($T < T_c$) при $T_{m,<} = T_c - C\omega/8\pi\gamma$ с одним и тем же значением в обоих максимумах

$$\varepsilon'_{max}(\omega) = \varepsilon'(\omega, T_{m,>}) = \varepsilon'(\omega, T_{m,<}) = \varepsilon_0 + 2\pi\gamma/\omega. \quad (6)$$

Рассмотрим несколько важных для дальнейшего обсуждения экспериментальной ситуации характерных температурных интервалов:

1) $\Delta T_m = T_{m,>} - T_{m,<}$ — расстояние между максимумами,

2) θ_{max} — расстояние на половине высоты между крайней правой точкой кривой $\varepsilon'_{c,>}(\omega, T) - \varepsilon_0$ и крайней левой точкой кривой $\varepsilon'_{c,<}(\omega, T) - \varepsilon_0$ (ширина на половине высоты двойного пика $\varepsilon'_c(\omega, T)$),

3) θ_{min} — расстояние на половине высоты между крайней левой точкой кривой $\varepsilon'_{c,>}(\omega, T) - \varepsilon_0$ и крайней правой точкой кривой $\varepsilon'_{c,<}(\omega, T) - \varepsilon_0$ (температурный зазор на половине высоты между двумя пиками $\varepsilon'_c(\omega, T)$). Учитывая (5), находим

$$\Delta T_m = \frac{3C\omega}{8\pi\gamma},$$

$$\theta_{max} = (2 + \sqrt{3})\Delta T_m, \quad \theta_{min} = (2 - \sqrt{3})\Delta T_m. \quad (7)$$

5. Сравнение с экспериментом

Обсудим представленные на рис. 3 зависимости $\varepsilon'_c(\omega, T)$ с точки зрения развитой выше теоретической модели. Видно, что основное расхождение заключается в количестве максимумов на температурной зависимости $\varepsilon'_c(\omega, T)$. На рис. 3 наблюдается один максимум во всем частотном диапазоне $\omega = 10 - 10^6$ Hz, теория же предсказывает два асимметричных относительно точки Кюри максимума. Согласно (6), (7) с уменьшением частоты эти максимумы сближаются и растут, вырождаясь в один бесконечный пик при $T = T_c$ в статическом случае $\omega = 0$. Отсюда следует, что использованные в эксперименте частоты недостаточно велики для наблюдения двух пиков проницаемости, а расстояние между максимумами ΔT_m на экспериментальной кривой рис. 3

меньше экспериментальной погрешности определения температуры δ_T , т.е. ΔT_m удовлетворяет условию

$$\Delta T_m = \frac{3C\omega}{8\pi\gamma} \leq \delta_T. \quad (8)$$

Из рис. 3 видно, что экспериментальные пики имеют аномально малую ширину: все они сливаются с фоном при $T < 27$ и $T > 28$ К. Ширина на полувысоте для всех частот (оценка θ_{\max}) составляет порядка 0.1–0.15 К, т.е. для расстояния между максимумами $\epsilon'_c(\omega, T)$ это дает оценку (см. (7)) $\Delta T_m \approx 0.03$ К. Оценку того же порядка можно получить непосредственно из выражения (7) для ΔT_m , учитывая неравенство $\omega \ll \gamma$ и замечая, что по экспериментальной зависимости $\epsilon'_c(10 \text{ Hz}, T)$ можно оценить по порядку величины константу Кюри–Вейсса как $C \sim 1$ К. В результате получаем оценку сверху $\Delta T_m = 3C\omega/8\pi\gamma \ll 3C/8\pi \approx 0.12$ К. Эти оценки показывают, что для всего рассматриваемого диапазона частот погрешность экспериментального определения температуры $\delta_T \geq 0.01$ – 0.05 К делает невозможным разрешение двух максимумов $\epsilon'_c(\omega, T)$. Дополнительная трудность связана с тем, что минимальное расстояние между крыльями двух пиков на половине высоты θ_{\min} (щель между пиками) почти в 14 раз меньше чем полуширина двойного пика, т.е. меньше 0.01 К, что с учетом погрешности измерения самой величины ϵ'_c делает затруднительным прорисовку рельефа экспериментальной кривой в промежутке температур между двумя максимумами. Следует отметить, что неравенство (8) накладывает ограничение (по крайней мере в пределах диапазона 10– 10^6 Hz) на величину γ : $\gamma \geq 3\omega C/8\pi\delta_T$. С другой стороны, учитывая вытекающее из (6) выражение $\gamma = (\omega/2\pi)(\epsilon'_{\max}(\omega) - \epsilon_0)$, получаем, что для описания экспериментальных зависимостей, представленных на рис. 3, в рамках рассматриваемой теории необходимо выполнение неравенства $\epsilon'_{\max}(\omega) - \epsilon_0 = 2\pi\gamma/\omega \geq 0.75C/\delta_T \approx 25$. С учетом неравенства $\omega \ll \gamma$ выражение (6) дает прямую оценку $\epsilon'_{\max}(\omega) - \epsilon_0 \gg 2\pi$. Эти оценки находятся в согласии, что говорит о разумности теоретической модели. В то же время, из рис. 3 видно, что эти оценки выполняются при $\omega \leq 2$ КHz и нарушаются при более высоких частотах. Возможная причина расхождения теории и эксперимента связана, по-видимому, с экспериментальными ограничениями. Дело в том, что малость константы Кюри–Вейсса приводит к аномально малой ширине кривой $\epsilon_c(0, T)$, и к связанным с этим трудностям определения с достаточной точностью температуры максимума кривой $\epsilon_c(0, T)$, отождествляемой с температурой Кюри–Вейсса T_c , и формы кривых $\epsilon'_c(\omega, T)$ в области низких частот вблизи предполагаемой точки Кюри. В частности, этим может объясняться несоответствие поведения $\epsilon'_c(\omega, T)$ на половине высоты на экспериментальных кривых рис. 3 и теоретического предсказания (9) линейного роста с частотой ширины θ_{\max} двойного пика на полувысоте. Таким образом, аномальная узость температурного пика на кривых

$\epsilon'_c(\omega, T)$ в TbMnO₃ не позволяет наблюдать двойные максимумы диэлектрической проницаемости в области сегнетоэлектрического ФП в рассматриваемом диапазоне частот при используемой в работе точности определения температуры ($\cong 15$ мК). Отметим также, что расширение диапазона частот в сторону их увеличения лишено смысла, поскольку при $\omega \geq 1$ MHz аномальный вклад в $\epsilon'_c(\omega, T)$ начинает сливаться с фоном (см. рис. 3) вследствие погрешности определения фоновой подставки диэлектрической проницаемости и погрешности измерения $\epsilon'_c(\omega, T)$. Завершая сравнение теории и эксперимента, заметим, что предложенная теоретическая модель качественно верно описывает две наиболее выраженные особенности наблюдаемой низкочастотной диэлектрической релаксации, связанные с поведением $\epsilon'_c(\omega, T)$ вблизи точки Кюри T_c : 1) быстрое уменьшение величины $\epsilon'_{\max}(\omega)$ с ростом ω и 2) отсутствие частотной зависимости положения максимума на температурной шкале. В то же время имеющиеся экспериментальные ограничения (погрешности определения температуры и измерения $\epsilon'_c(\omega, T)$, а также выделения фонового вклада в дисперсию диэлектрической проницаемости) не позволяют наблюдать форму температурной кривой $\epsilon'_c(\omega, T)$ с двумя максимумами в области высоких частот, предсказываемую теорией Ландау–Халатникова для критической релаксации поляризации. В этом смысле ситуация в TbMnO₃ оказывается существенно отличной от сегнетоэлектрика типа порядок беспорядок Ca₂Sr(C₂H₅CO₂)₆ с $T_c = 283$ К и $C = 74$ К [19] и мультиферроика MnWO₄ с $T_c = 12.6$ К [20], в которых двойные максимумы, связанные с релаксацией поляризации в области сегнетоэлектрического фазового перехода, удалось наблюдать на гораздо более высоких частотах: порядка 50–100 MHz в Ca₂Sr(C₂H₅CO₂)₆ и порядка 200–500 MHz в MnWO₄. Выделение двойного максимума проницаемости в TbMnO₃ затруднено в значительной степени из-за наличия „фонового“ вклада в дисперсию $\epsilon'_c(\omega, T)$, отсутствующего как в MnWO₄ [21], так и в Ca₂Sr(C₂H₅CO₂)₆ [19].

6. Заключение

В работе детально исследовано температурно-частотное поведение низкочастотной диэлектрической проницаемости $\epsilon'_c(\omega, T)$ вблизи точки Кюри $T_c = 27.4$ К и обнаружена необычная дисперсия $\epsilon'_c(\omega, T)$ в области острого пика диэлектрической проницаемости с максимумом в предполагаемой точке Кюри: величина температурного максимума $\epsilon'_{\max}(\omega)$ уменьшается с частотой, в то время как положение максимума на температурной шкале не зависит от частоты. Полученные в работе результаты, анализ и сопоставление с опубликованными работами других авторов указывают на то, что в TbMnO₃ при $T_c = 27.4$ К происходит сегнетоэлектрический фазовый переход 2-го рода типа смещения. Наблюдаемые особенности поляризационного отклика в

области узкого пика на кривых $\epsilon'_c(\omega, T)$ обусловлены малостью постоянной Кюри–Вейсса $C \sim 1$ К и могут быть описаны в рамках теории критической релаксации поляризации Ландау–Халатникова, хотя непосредственное наблюдение двойного максимума проницаемости в области высоких частот TbMnO_3 затруднено из-за наличия „фонового“ вклада в дисперсию $\epsilon'_c(\omega, T)$.

В.А. Трепаков признателен А.П. Леванюку за полезные дискуссии и С. Камба за ценное замечание.

Список литературы

- [1] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima, Y. Tokura. *Nature (London)* **426**, 55 (2003).
- [2] T. Kimura. *Ann. Rev. Mater. Res.* **37**, 387 (2007).
- [3] Y. Yamasaki, H. Sagayama, T. Goto, M. Matsuura, K. Hirota, T. Arima, Y. Tokura. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 147204 (2007); Erratum: *Phys. Rev. Lett.* **100**, 219902 (2008).
- [4] N. Abe, K. Taniguchi, S. Ohtani, T. Takenobu, Y. Iwasa, T. Arima. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 227206 (2007).
- [5] M. Mostovoy. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 067601 (2006).
- [6] В.Г. Барьяхтар, В.Г. Львов, Д.А. Яблонский. *Письма в ЖЭТФ* **37**, 565 (1983).
- [7] Е.П. Стефановский, Д.А. Яблонский. *Физика низких температур* **12**, 844 (1986).
- [8] H. Katsura, N. Nagaosa, A.V. Balatsky. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 057205 (2005).
- [9] H.J. Xiang, S.-H. Wei, M.-H. Whangbo, J.L.F. Da Silva. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 037209 (2008).
- [10] A. Malashevich, D. Vanderbilt. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 037210 (2008).
- [11] A. Malashevich. Ph. D Thesis, Rutgers University of New Jersey, 2009.
- [12] А.П. Леванюк, Д.Г. Санников. *УФН* **112**, 561 (1974).
- [13] T. Goto, T. Kimura, G. Lawes, A.P. Ramirez, Y. Tokura. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 257201 (2004).
- [14] F. Schrettle, P. Lunkenheimer, J. Hemberger, V.Yu. Ivanov, A.A. Mukhin, A.M. Balbashov, A. Loidl. *Phys. Rev. Lett.* **102**, 207208 (2009).
- [15] V.A. Trepakov, A.G. Dejneka, O.E. Kvyatkovskii, Z. Potucek, M.E. Savinov, L. Jastrabik, X. Wang, S.-W. Cheong. *Structure, Optical and Dielectric Spectroscopy of TbMnO₃ Multiferroic*. 12th Russia/SIC/Baltic/Jpn Symp. Ferroelectricity and 9th Int. Conf. Functional Materials & Nanotechnologies. Riga, Latvia (2014).
- [16] Л.Д. Ландау, И.М. Халатников. *ДАН СССР* **96**, 469 (1954).
- [17] Л.Д. Ландау. Л.П. Питаевский. *Теоретическая физика*. Т. 10. Наука, М. 1979.
- [18] P. Lunkenheimer, V. Bohnar, A.V. Pronin, A.I. Rutis, A.A. Volkov, A. Loidl. *Phys. Rev. B* **66**, 952105 (2002).
- [19] E. Nakamura, E. Hosoya. *J. Phys. Soc. Jpn.* **23**, 844 (1967).
- [20] D. Niermann, C.P. Grams, P. Becker, L. Bohatý, H. Schenck, J. Hemberger. *Phys. Rev. Lett.* **114**, 037204 (2015).
- [21] K. Taniguchi, A. Abe, T. Takenobu, Y. Iwasa, T. Arima. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 097203 (2006).