

Эволюция доменных процессов при переходе от классического сегнетоэлектрика к сегнетоэлектрику-релаксору

© М.В. Таланов, Л.А. Шилкина, Л.А. Резниченко

Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета,
Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: tmikle-man@mail.ru

Исследованы зависимости относительной диэлектрической проницаемости от величины внешнего смещающего электрического поля керамик системы $y\text{PZN}-m\text{PMN}-n\text{PNN}-x\text{PT}$ ($x = 0.25-0.40$). Показана эволюция доменных процессов при концентрационном переходе от классического сегнетоэлектрика к сегнетоэлектрику-релаксору. Сделаны предположительные выводы о механизмах протекания индуцированных электрическим полем переходов из релаксорного в „нормальное“ сегнетоэлектрическое состояние.

1. Введение

Сегнетоэлектрики-релаксоры (СЭР) являются структурно и химически неупорядоченными на микро- и мезоскопическом уровнях объектами. При этом они отличаются выдающимися характеристиками: гигантской деформацией при воздействии электрического поля (E), высокими значениями относительной диэлектрической проницаемости ($\varepsilon/\varepsilon_0$) и нелинейностью оптических параметров. Все это делает возможным их применение в различных устройствах пьезотехники, в частности в актюаторах. Однако природа и механизмы формирования столь уникальных свойств остаются не до конца понятными.

Все известные модели СЭР при температурах ниже температуры максимума $\varepsilon/\varepsilon_0(T_m)$ можно условно разбить на две группы [1]. Теоретические модели первой группы (см., например, [2]) основываются на предположении о наличии полярных областей, находящихся в неполярной матрице, которое было сделано еще в первых работах, посвященных изучению кристаллов $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PMN) [3]. Модели второй группы (см., например, [4]) предполагают разбиение СЭР на нанодомены, отделенные друг от друга доменными стенками. Считается что путем приложения электрического поля E СЭР можно перевести в „макродоменное“ сегнетоэлектрическое (СЭ) состояние [5], которое может возникать и при уменьшении беспорядка в системе за счет замещения ионами Ti^{4+} комплекса $\text{V}_{1/3}^{2+}\text{Nb}_{2/3}^{5+}$ [6]. При этом формирование „нормальной“ доменной структуры в СЭР должно отразиться на их физических свойствах, в частности, на зависимостях $\varepsilon/\varepsilon_0$ от величины E . Ранее нами в [7] по результатам исследования термочастотных характеристик были установлены границы существования СЭР, СЭ-состояние с размытым фазовым переходом (РФП) и классических сегнетоэлектриков (КС) в керамиках системы на основе СЭР: (PMN, $\text{PbZn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PZN), $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PNN)) и КС $x\text{PbTiO}_3$ (PT) ($x = 0.25-0.40$), легированной барием. Целью данной работы явилось установление эволюции доменных процессов, протекающих при увеличении E в керамиках указанной системы.

2. Объекты, методы получения и исследования образцов

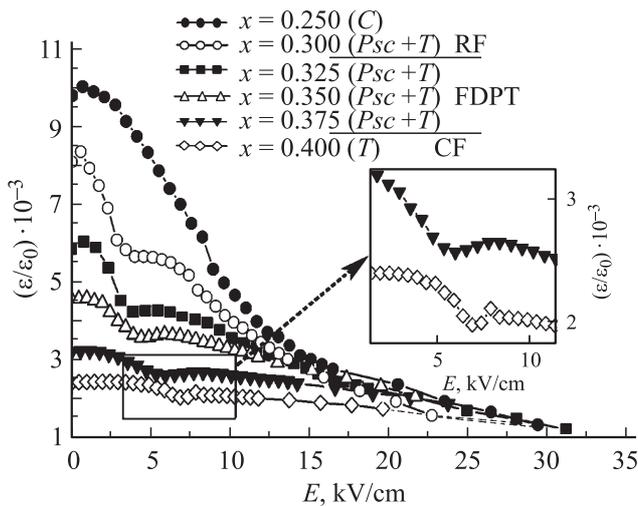
Твердые растворы с $m = 0.1298-0.4844$, $n = 0.1266-0.4326$, $y = 0.0842-0.130$, $x = 0.25-0.40$ получали твердофазным синтезом с элементами колумбитного метода из предварительно синтезированных ниобатов цинка, никеля и магния. Спекание проводили по обычной керамической технологии при $T_{\text{fr}} = 1180^\circ\text{C}$.

Измерительные образцы изготавливались в виде дисков ($\text{O}10 \times 1$ мм). Металлизация осуществлялась двукратным вжиганием серебросодержащей пасты. Рентгенографические исследования проводились методом порошковой дифракции с использованием дифрактометра ДРОН-3 (CoK_α -излучение, фокусировка по Брэггу-Брентано). Для исследования зависимостей $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ использовали специально сконструированный в НИИ физики ЮФУ стенд, включающий LCR-meter Agilent 4263B.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рисунке представлены зависимости $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ исследованных керамик. Видно, что в твердых растворах с высоким содержанием PT наблюдаются типичные для КС зависимости $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$. Спад кривой $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ связан с возрастанием вклада не 180° -ных, а 90° -ных доменов, обладающих меньшими значениями $\varepsilon/\varepsilon_0$. При $E \approx 7\text{ kV/cm}$ наблюдается минимум $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$, обусловленный зажатием не 180° -ных антипараллельных доменов (эффект Драугард-Янга [8]). При дальнейшем увеличении E происходит „насыщение“ кривой $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$, которое объясняется монодоменизацией образца.

При уменьшении содержания PT (x) на фоне общего увеличения $\varepsilon/\varepsilon_0$ происходит уменьшение значений E (см. вставку на рисунке), соответствующих аномалиям $\varepsilon/\varepsilon_0$, связанным с зажатием доменов (как 180° -ных так и не 180° -ных). Это обусловлено появлением и увеличением в объеме псевдокубической фазы Psc — фазы, симметрию которой в силу слабости и размытия рентгенографических максимумов не представляется возможным



Зависимости $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ керамик с различным проявлением СЭ-свойств: КС (CF), СЭРФП (FKPT) и СЭР (RF).

идентифицировать при уменьшении содержания x и, как следствие, понижением сегнетожесткости, свойственной тетрагональным (T) материалам. Кроме того, минимум $\varepsilon/\varepsilon_0$ постепенно эволюционирует в платообразный участок, наблюдаемый в составах со свойствами СЭР ($x \geq 0.3$). Наличие плато на зависимостях $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ СЭР может быть связано с индуцированным переходом в „нормальное“ СЭ-состояние с формированием классической доменной структуры. В керамиках с минимальным содержанием РТ ($x = 0.25$) и кубической симметрией (C) описанная аномалия отсутствует. Следует отметить, что при $E > 15$ kV/cm кривые $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ всех исследованных материалов практически „сливались“ в одну, то есть монодоменизация керамик с различной природой СЭ-свойств приводит их к одному макроскопическому состоянию, не зависящему от содержания РТ. Проявление аномалий $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ ($x = 0.3$) и их отсутствие ($x = 0.25$) в керамиках СЭР, вероятно, связано с различными механизмами перехода в „нормальное“ СЭ состояние. Так, при $x = 0.3$, возможно формирование доменной структуры за счет роста полярных областей в неполярной (слабополярной) матрице с последующим сжатием образовавшихся „макродоменов“, что и приводит к образованию существенных аномалий $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$. В случае с $x = 0.25$, скорее всего, реализуется иной механизм, заключающийся в наличии нанодоменов, объединение которых вносит вклад в величину $\varepsilon/\varepsilon_0$ более равномерно, что и приводит к отсутствию макроскопических аномалий.

4. Заключение

Установлено, что при переходе от КС к СЭР аномалии зависимостей $\varepsilon/\varepsilon_0(E)$ трансформируются от минимумов $\varepsilon/\varepsilon_0$ к платообразным участкам, которые не проявляются при минимальном содержании x , причиной чего

может быть разный механизм перехода в „нормальное“ СЭ-состояние“.

Список литературы

- [1] A.A. Bokov, Z.-G. Ye. *J. Mater. Sci.* **41**, 31 (2006).
- [2] P.N. Timonin. *Ferroelectrics* **199**, 69 (1997).
- [3] G.A. Smolenskii. *J. Phys. Soc. Jpn.* **28** (Supl.), 26 (1970).
- [4] V. Westphal, W. Kleemann, M.D. Glinchuk. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 847 (1992).
- [5] Z.-G. Ye. *Ferroelectrics* **140**, 319 (1993).
- [6] E.V. Colla, N.K. Yushin, D. Vieland. *J. Appl. Phys.* **83**, 3298 (1998).
- [7] М.В Таланов, И.А. Вербенко, А.И. Миллер, Л.А. Шилкина, Л.А. Резниченко. В сб.: Порядок, беспорядок и свойства оксидов (ODPO-13) **2**, 152 (2010).
- [8] M.E. Drougard, D.R. Young. *Phys. Rev.* **94**, 1561 (1954).