

05.2;09;12

## НЕЛИНЕЙНОСТЬ НИЗКОЧАСТОТНОЙ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ НЕУПОРЯДОЧЕННЫХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ

© Н.К.Юшин, Е.П.Смирнова, Г.Н.Юшин

Неупорядоченные сегнетоэлектрики, к которым относятся сегнетоэлектрики с размытым фазовым переходом (СРФП), вызывают широкий интерес как с точки зрения изучения фундаментальных проблем физики неупорядоченного состояния (в частности, существование или отсутствие фазы полярного стекла в этих материалах), так и для возможных практических применений (особенно высокая диэлектрическая проницаемость в широком диапазоне температур и гигантская электрострикция) [1-5]. Наиболее изученным СРФП является магнониобат свинца,  $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$  (PMN), и твердые растворы на его основе.

Целью настоящей работы явилось изучение нелинейности низкочастотной диэлектрической проницаемости неупорядоченных сегнетоэлектриков с размытым фазовым переходом на примере сегнетокерамики твердого PMN и PSN ( $\text{PbSc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ ), а именно 0.55 PMN-0.45 PSN. Основные свойства этого состава описаны в работах [6-7], где дано также описание технологии приготовления образцов для измерений. Данный состав отличается большой величиной, индуцированной полем деформации, которая сохраняется в достаточно широком температурном интервале (см. рис. 1).

Из-за существования в СРФП сильной частотной дисперсии электрических и механических свойств наиболее интересным представляется исследование низкочастотной диэлектрической проницаемости и ее нелинейности. Для анализа в данной работе были взяты данные по измерениям диэлектрической проницаемости обычным мостовым методом на частоте 1 кГц в присутствии внешнего постоянного электрического поля  $E_{\pm}$ , т. е.  $\epsilon(1 \text{ кГц}, E_{\pm})$ ; диэлектрическая восприимчивость  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)$ , вычисленная по зависимости индуцированной поляризации  $P(E)$ , измеренной на частоте 50 Гц методом Соьера-Тауэра, а также восприимчивость  $\epsilon(OS, E)$ , полученная из индуцированной полем квазистатической деформации  $S(E)$  (см. [8,9]).

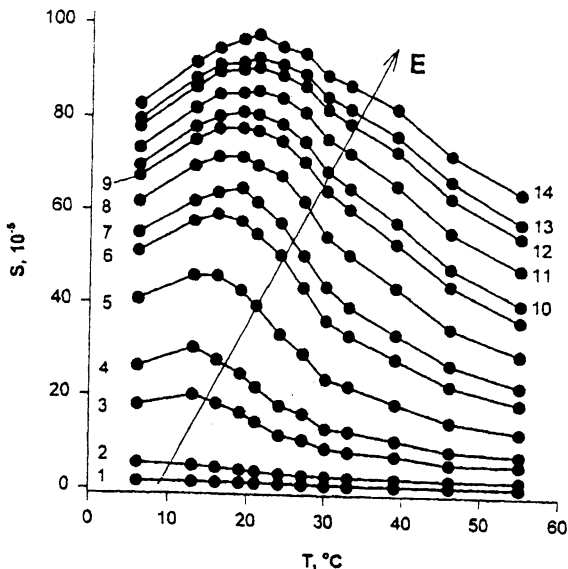


Рис. 1. Температурная зависимость индуцированной полем  $E$  деформации  $S$  в керамике твердого раствора 0.55 PMN-0.45 PSN. Значения поля  $E$ , кВ/см: 1 — 0.95, 2 — 1.9, 3 — 3.79, 4 — 4.74, 5 — 6.64, 6 — 8.53, 7 — 9.48, 8 — 11.37, 9 — 13.27, 10 — 14.2, 11 — 16.1, 12 — 18, 13 — 18.96, 14 — 20.85.

Таким образом, имеется три диэлектрические проницаемости:

1.  $\epsilon(1 \text{ кГц}, E_{\pm})$ , соответствующая проницаемости, измеренной при малом уровне измерительного поля и большом поле смещения  $E_{\pm}$ ;
2.  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)$ , полученная, как  $\partial P(E)/\partial E$ , на частоте 50 Гц при большом уровне измерительного поля;
3.  $\epsilon(QS, E)$ , полученная, как  $\epsilon = \epsilon_0^{-1} E^{-1} Q^{-1/2} S^{1/2}$  (здесь  $\epsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ Ф/м}$  и  $S$  — индуцированная полем деформация,  $Q$  — электрострикционная постоянная материала), в квазистатическом режиме для высокого уровня измерительного поля  $E$ .

Полевые зависимости этих проницаемостей показаны на рис. 2 для комнатной температуры. Видно, что имеет место постепенное уменьшение величины проницаемости с ростом поля, причем следует иметь в виду, что для квазистатической проницаемости  $\epsilon(QS, E)$  и проницаемости на 50 Гц  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)$  величина  $E$  соответствует амплитуде приложенного к образцу поля, а для проницаемости, измеренной на частоте 1 кГц,  $\epsilon(1 \text{ кГц}, E_{\pm})$ , поле  $E$  представляет собой постоянное поле смещения  $E_{\pm}$ . Обращает на себя внимание тот факт, что наиболее сильное изменение наблюдается для  $\epsilon(1 \text{ кГц}, E)$ , а меньше всего изменяется  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)$ .

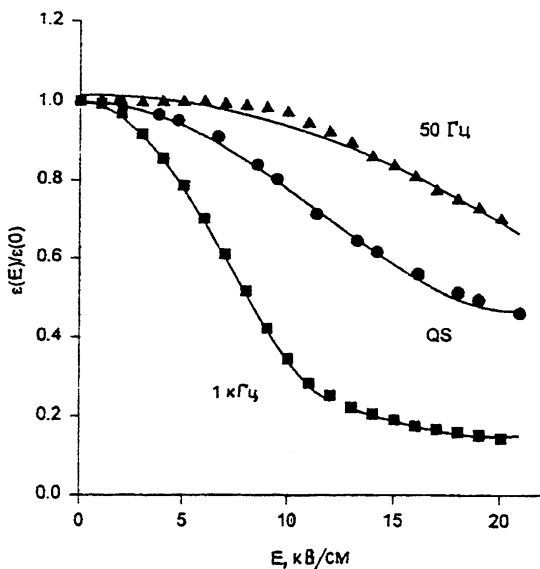


Рис. 2. Полевые зависимости эффективной диэлектрической восприимчивости  $\epsilon(\omega, E)/\epsilon(\omega, 0)$  для керамики 0.55PMN-0.45PSN.  $T = 21^\circ\text{C}$ .

Наблюдаемое изменение  $\epsilon(\omega, E)$  (т. е. для всех частот при  $\omega = \text{QS}$  50 Гц или 1 кГц) можно описать полиномом, содержащим вторые и четвертые степени поля  $E$ , т. е. как

$$\epsilon(\omega, E)/\epsilon(\omega, 0) = a + bE^2 + cE^4, \quad (1)$$

где коэффициент  $b$  — отрицательный, а  $a$  и  $c$  — положительные величины.

Значения коэффициентов  $a$ ,  $b$  и  $c$ , полученные методом наименьших квадратов из экспериментальных данных рис. 2, приведены в таблице. На рис. 2 сплошными кривыми показаны функции аппроксимации, соответствующие уравнению (1). Видно достаточно хорошее соответствие между экспериментом и этими кривыми. Причем следует отметить, что для  $\epsilon(\text{QS}, E)$  по понятным причинам нет данных, соответствующих  $\epsilon(\text{QS}, 0)$ , в качестве коэффициента  $a$  при аппроксимации была выбрана  $a = 1$ . Кроме того, для квазистатической восприимчивости  $\epsilon(\text{QS}, E)$  анализировались данные, полученные при  $E > 2$  кВ/см. Что касается зависимости  $\epsilon(1 \text{ кГц} E)/\epsilon(1 \text{ кГц}, 0)$ , то для полей, меньших 12 кВ/см, верной оказалась аппроксимация с одними коэффициентами  $a$ ,  $b$  и  $c$ , а для  $E > 12$  кВ/см с другими (см. таблицу). Зависимость же  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)/\epsilon(50 \text{ Гц}, 0)$  оказалась соответствующей функции (1), в которой отсутствует член с четвертой степенью поля.

Значения коэффициентов  $a$ ,  $b$  и  $c$  (уравнение (1))

	$a$	$b, 10^{-13} \text{ м}^2 \text{ В}^{-2}$	$c, 10^{-26} \text{ м}^4 \text{ В}^{-4}$	Диапазон полей, кВ/см
QS	1	-2.5424	3.0203	> 2
50 Гц	1.0182	-0.82106	0	< 20
1 кГц	1	-9.5696	29.669	< 12
1 кГц	0.3646	-1.1147	1.4284	> 12

Коэффициенты  $b$  и  $c$  представляют собой нелинейные параметры материала. В этой связи большие значения нелинейных коэффициентов у квазистатической восприимчивости по сравнению с нелинейностью 50 Гц-восприимчивости можно связать с возрастанием нелинейности при понижении частоты. Однако еще бо́льшая нелинейность 1 кГц-восприимчивости, по-видимому, обусловлена тем, что в этом случае мы имеем дело не с амплитудной зависимостью  $\epsilon(\omega, E)$ , а с влиянием постоянного поля смещения на восприимчивость, измеренную на частоте 1 кГц.

Рассмотрим причину наблюдаемого поведения полевых зависимостей восприимчивости и частоту зависимости нелинейных коэффициентов, исходя из модели СРФП как ансамбля релаксаторов, спектр времен релаксации которых непрерывно расширяется по мере понижения температуры (см., например, [10]). При этом следует отметить, что измерения в постоянном поле соответствуют так называемому эргодическому режиму, поскольку система успевает за время действия поля смещения "подстроиться" под новое состояние в отличие от динамических (т. е. амплитудных) зависимостей, когда спектр времен релаксации может оказаться таким, что максимальное время в нем становится бо́льшим обратной частоты измерительного поля, такое состояние системы отвечает неэргодическому режиму. В таком случае более сильная нелинейность, наблюдаемая для зависимости 1 кГц-восприимчивости как функции постоянного поля смещения  $\epsilon(1 \text{ кГц}, E_{\text{см}})$ , соответствует истинной равновесной нелинейности системы. Меньшие же значения нелинейных параметров для восприимчивости, измеренных на 50 Гц для  $\epsilon(50 \text{ Гц}, E)$  и в квазистатическом режимах для  $\epsilon(QS, E)$ , обусловлены тем, что при данной температуре максимальное время релаксации  $\tau_{\text{max}}$  в системе оказалось бо́льшим обратного времени измерений в QS-режиме и тем более бо́льшим, чем  $3\text{нс}$  ( $\tau_{\text{max}} > 1/\omega \approx 1/(2\pi \cdot 50) \approx 0.0032 \text{ с}$ ). Действительно, чем выше частота, тем меньше времени система находится в равновесном состоянии и самые медленные из релаксаторов не успевают подстроиться под новое

значение поля  $E$ , в результате измеряется не полное значение нелинейности. Именно по этой причине полевая зависимость 50 Гц-проницаемости оказалась слабее полевой зависимости проницаемости, измеренной в QS-режиме.

Таким образом, в работе на примере керамики 0.55 PMN-0.45 PSN показано существование значительной нелинейности низкочастотной диэлектрической проницаемости в неупорядоченных сегнетоэлектриках, причем значения нелинейных параметров оказались зависящими от режима приложения поля. Для описания наблюдаемого поведения нелинейности использовалась модель СРФП как системы с широким спектром времен релаксации.

Выполнение данного исследования стало возможным при частичной поддержке Международного научного фонда и правительства Российской Федерации (грант № JJF100).

### Список литературы

- [1] Смоленский Г.А., Бокоев В.А., Исупов В.А. и др. // Физика сегнетоэлектрических явлений. Л.: Наука, 1985. С. 238-262.
- [2] Cross L.E. // *Ferroelectrics*. 1994. V. 151. P. 305-320.
- [3] Uchino K. // *Ferroelectrics*. 1994. V. 151. P. 321-330.
- [4] Yushin N.K. // *Material Science Forum*. 1990. V. 62-64. Pt 1. P. 375-378.
- [5] Юшин Н.К., Смирнова Е.П. и др. // *Изв. АН Сер. физ.* 1993. Т. 57. № 3. С. 26-31.
- [6] Юшин Н.К., Смирнова Е.П., Тараканов Е.А., Соммер Р. // *ФТТ*. 1994. Т. 36. № 5. С. 26-31.
- [7] Izupov V.A., Yushin N.K., Smirnova E.P. et al. // *Ferroelectrics*. 1994. V. 160. N 3-4. P. 239-242.
- [8] Yushin N.K., Smirnova E.P. // *Ferroelectrics Letters*. 1996. V. 20. P. 1000.
- [9] Юшин Н.К., Смирнова Е.П. // *Письма в ЖТФ*. 1995. Т. 21. В. 21. С. 72-77.
- [10] Yushin N.K., Dorogoutsev S.N. // *Ferroelectrics*. 1993. V. 143. P. 49-57.

Физико-механический  
институт  
им. А.Ф. Иоффе РАН  
С.-Петербург

Поступило в Редакцию  
5 апреля 1996 г.