

О кинетике медленной поляризации сегнетоэлектрического релаксора магнониобата свинца

© В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Е.В. Пронина

Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова Российской академии наук,
117333 Москва, Россия

E-mail: glad@ns.crys.ras.ru

(Поступила в Редакцию 4 июня 2002 г.

В окончательной редакции 24 декабря 2002 г.)

Приводятся результаты регистрации поляризации и реполяризации (100)-среза образца кристалла магнониобата свинца в медленно изменяющемся и постоянном электрических полях в температурном интервале, включающем релаксорное и индуцируемое полем сегнетоэлектрическое состояния. Показано, что поляризация во всем интервале имеет характерные для релаксоров особенности: несовпадение разомкнутых траекторий поляризации для нескольких первых циклов квазистатических петель диэлектрического гистерезиса и гигантские времена релаксации. Медленная термоактивационная стадия релаксации следует универсальному степенному временному закону, позволяющему восстановить возможные простые спектры распределения времени релаксации. Построены температурные зависимости некоторых параметров релаксации и спектров и обсуждаются их различия в релаксорной и сегнетоэлектрической фазах.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 02-02-16823) и INTAS (N 01-0173).

Кристалл магнониобата свинца $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PMN) является типичным представителем смешанных твердых оксидных соединений со структурой перовскита, впервые синтезированных и исследованных Г.А. Смоленским с сотрудниками и получивших название сегнетоэлектрических релаксоров [1,2]. В отличие от обычных сегнетоэлектриков у релаксоров структура существенно разупорядочена из-за флуктуаций состава, а фазовый переход в полярное состояние размыт в широкой области температур (область Кюри) [2,3].

В области Кюри неоднородная макроскопическая структура PMN представляет собой неполярную матрицу, содержащую мелкие полярные области $\sim 100 \text{ \AA}$ (нанодомены), суммарная по объему кристалла поляризация которых равна нулю, диэлектрическая проницаемость имеет широкий максимум при температуре $T_m \cong 270 \text{ K}$ и ярко выраженную дисперсию в низкочастотном диапазоне, петли диэлектрического гистерезиса имеют плохо выраженное „насыщение“ и медленно деградируют при нагревании [4]. Внешнее постоянное электрическое поле при $T \cong 215 \text{ K}$ вызывает фазовый переход из релаксорного в сегнетоэлектрическое состояние, при этом симметрия понижается от группы $m3m$ до $3m$, появляются двупреломление, обычная крупномасштабная доменная структура [5] и отчетливо выраженные диэлектрические аномалии [6,7]. Возможная фазовая диаграмма PMN в координатах электрическое поле–температура приводится в [6–8].

Сегнетоэлектрические релаксоры, представляющие фундаментальный и практический интерес благодаря необычно высоким значениям поляризации, диэлектрической проницаемости и многим другим зависящим от них физическим характеристикам, интенсивно исследуются в настоящее время. Ежегодно появляется более

десять работ, посвященных новым материалам с релаксорными свойствами (см., например, [9,10]) и новым особенностям физических свойств релаксоров. Диэлектрические свойства PMN исследовались, как правило, в переменных низкочастотных электрических полях [1–17] или в переменных полях и постоянном смещающем поле [6–8,11–14,18]. Показано, что основной вклад в высокую диэлектрическую проницаемость связан с движением доменных границ [13]; сегнетоэлектрический переход, индуцируемый электрическим полем, наблюдается по аномалиям диэлектрической проницаемости, по-видимому, на трех срезах (111), (110), (100) кристалла [14,18], наиболее вероятное время релаксации по данным измерения дисперсии диэлектрической проницаемости достигает при низких температурах гигантских значений [8,15], анализируется механизм нелинейной по полю составляющей поляризации [13,15,18].

В настоящем сообщении приводятся результаты исследования поляризации среза (100) кристалла PMN при медленно изменяющемся (квазистатическом) электрическом поле и релаксации поляризации для процессов поляризации и деполяризации в реальном времени при постоянных полях [19] в интервале температур, включающем релаксорное и сегнетоэлектрическое состояния. Такое исследование позволяет составить представление о наиболее долгоживущих метастабильных состояниях кристалла, время отклика которых на внешнее поле превышает 3 h, что соответствует частоте поля $\leq 10^{-4} \text{ Hz}$.

1. Методика измерений

Измерение диэлектрической проницаемости ϵ проводилось по стандартной мостовой схеме в слабом переменном поле с частотой 1 kHz, а поляризации и де-

поляризации — компенсационным электрометрическим методом с помощью равноплечего моста, в диагональ которого включался нуль-индикатор-электрометр В7-29. Четыре плеча моста составляли исследуемый образец, эталонная емкость C и источники поляризующего $U(t)$ и компенсирующего $u(t)$ напряжений. Компенсация напряжения в диагонали моста осуществлялась программным способом на персональном компьютере IBM PC и периферийных управляемых блоках. Изменение компенсирующего напряжения $u(t)$ воспроизводилось на мониторе в режиме реального времени. По этим данным рассчитывались поляризация $P = Cu(t)/S$ (S — площадь электродов) и ее изменение со временем t и напряжением U . Максимальная чувствительность моста по напряжению составляет $20 \mu\text{V}$, по заряду — $2 \cdot 10^{-9} \mu\text{C}$ при $C = 10 \text{ pF}$. Подробное описание устройства и работы автоматического электрометрического моста при регистрации релаксации поляризации со временем приводится в [20], при регистрации петель диэлектрического гистерезиса в квазистатическом поле — в [21]. Период изменения поля $\sim 1 \text{ h}$. Время регистрации релаксации поляризации $\sim 3 \text{ h}$, что соответствует нижней границе частоты 10^{-4} Hz . Такое время выбиралось из соображений приемлемых величин ошибок при оценке параметров спектров распределения времен релаксации PMN, так как ошибка уменьшается при увеличении продолжительности измерений [22]. Образец для исследований представлял собой прямоугольную пластину размером $3 \times 2 \times 0.2 \text{ mm}$, большая грань которой являлась срезом (100) кристалла PMN. Электроды для измерений наносились на большую грань серебряной пастой.

2. Результаты и обсуждение

2.1. Диэлектрическая проницаемость. Фазовым превращениям PMN при понижении температуры соответствуют два максимума диэлектрической проницаемости ϵ , измеренной в слабом переменном электрическом поле частотой 1 kHz (рис. 1). Большой широкий максимум ϵ отмечает среднюю по образцу температуру $T_m \cong 270 \text{ K}$ перехода в релаксорное состояние. Небольшой узкий максимум находится при температуре $T_c \cong 215 \text{ K}$ сегнетоэлектрического фазового перехода и наблюдается только при одновременном воздействии на кристалл слабого переменного и постоянного поля 3 kV/cm (вставка на рис. 1). Величина этого узкого максимума много меньше наблюдаемого в [6–8,14] для пластинок образцов срезов (111) и (110). О диэлектрических аномалиях при сегнетоэлектрическом фазовом переходе под смещающим электрическим полем для образца среза (100) сообщалось также в [14,18].

2.2. Квазистатические петли диэлектрического гистерезиса. Регистрация каждой петли зависимости поляризации от электрического поля проводилась после нагревания до температуры $T = 300 \text{ K} > T_m$ и последующего охлаждения образца

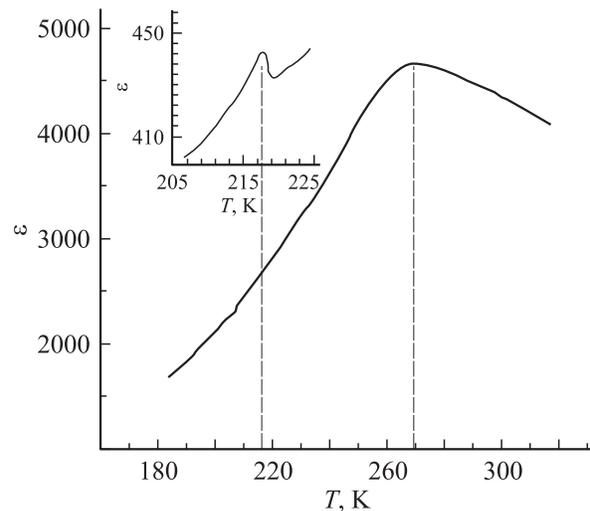


Рис. 1. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости ϵ кристалла PMN на частоте 1 kHz . На вставке — ϵ в области сегнетоэлектрического фазового перехода в смещающем поле $E = 3 \text{ kV/cm}$.

до заданной температуры в нулевом поле, т.е. образец не подвергался отжигу, который проводится обычно при более высокой температуре [15]. После охлаждения начальная средняя по образцу поляризация равна нулю, так как у кристалла PMN в нулевом поле отсутствует пьезоэлектрический эффект. Петли гистерезиса для различных температур, представленные на рис. 2, не имеют отчетливо выраженного „насыщения“, а их амплитуда быстро возрастает с ростом амплитуды переполяризующего поля, так как образцы PMN с ориентацией (100) по данным оптического наблюдения доменов [7] не становятся монодоменными даже в полях вплоть до 150 kV/cm . Необычным является вид петель гистерезиса PMN. В отличие от однородных сегнетоэлектриков траектории нескольких первых циклов петель представляют собой разомкнутые и не совпадающие кривые с уменьшающейся амплитудой. Затем уменьшение амплитуды прекращается, и петли принимают привычный вид, т.е. становятся как обычно воспроизводимыми. Различие первых циклов петель особенно велико в индуцируемой полем сегнетоэлектрической фазе, в релаксорном состоянии это различие уменьшается при нагревании и выше температуры T_m практически исчезает (рис. 2). Такие особенности петель характерны, по-видимому, для всех релаксорных сегнетоэлектриков, и впервые обнаружены и исследованы нами в [23] и позднее также в [24] у ниобата бария-стронция (SBN) с примесями — в отличие от обычных петель для однородного сегнетоэлектрика TGS [25].

Происхождение своеобразных петель, возможно, связано со случайными внутренними локальными электрическими полями E_i , возникающими в объеме релаксора вследствие флуктуаций состава и понижения локальной симметрии. Поле E_i искажает форму зависимости

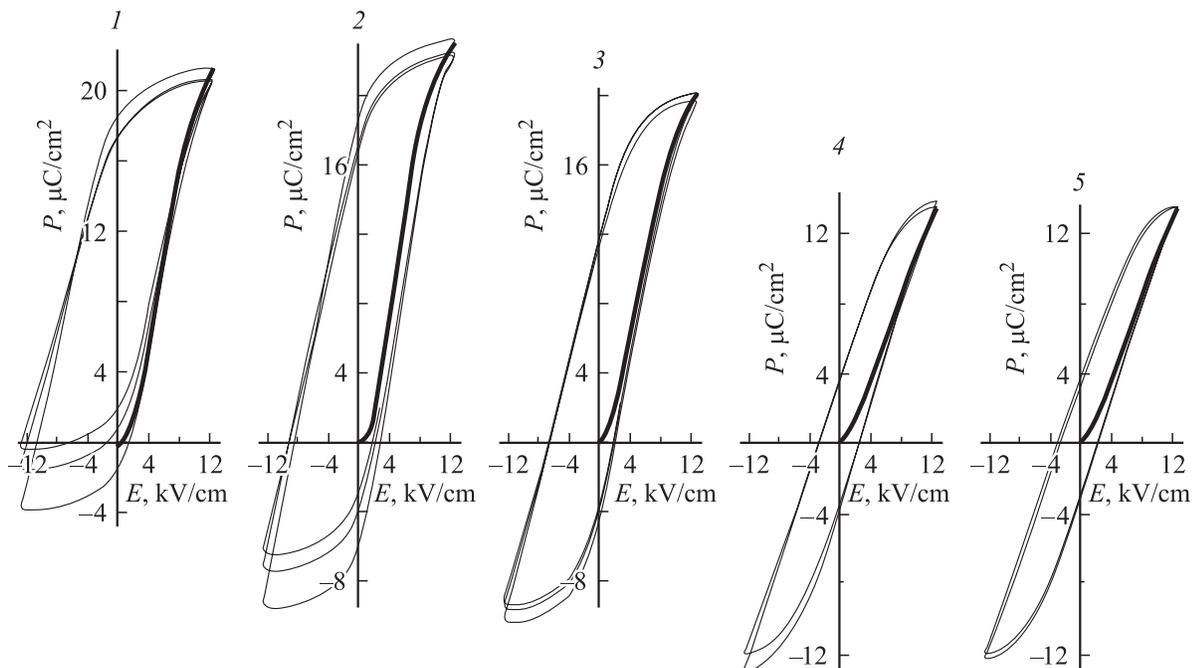


Рис. 2. Квазистатические петли диэлектрического гистерезиса кристалла PMN при различных температурах T , К: 1 — 200, 2 — 210, 3 — 230, 4 — 274, 5 — 283.

локальной свободной энергии F от поляризации P , которая становится асимметричной двухминимумной функцией P [4]. Поэтому до регистрации петли одна часть кристалла может находиться в метастабильном состоянии (с мелким минимумом F), а другая — в стабильном (с глубоким минимумом F). При включении переменного квазистатического поля E определенной амплитуды многие области кристалла успевают перейти в стабильное состояние с глубоким минимумом F , из которого обратный переход в прежнее состояние становится практически невозможным из-за слишком большого барьера. В результате часть кристалла не принимает участия в дальнейшем процессе переполяризации, траектории петель не замыкаются и уменьшаются по амплитуде до тех пор, пока в поле выбранной величины не закончатся возможные переходы в стабильные состояния [23]. По-видимому, в большом поле, которое должно ликвидировать все барьеры при переполяризации, петля диэлектрического гистерезиса должна быть всегда воспроизводимой как у всех однородных сегнетоэлектриков.

Петли на рис. 2 являются униполярными, т.е. кристалл PMN, не имеющий начальной поляризации, после многократного циклического изменения поля становится частично поляризованным в одном из двух противоположных направлений. Униполярность тем больше, чем ближе кристалл к индуцированному полем сегнетоэлектрическому состоянию с крупномасштабной неоднородной (доменной) структурой. Такая же особенность петель гистерезиса наблюдалась нами в релаксорном сегнетоэлектрике SBN [23]. Униполярность

образца кристалла не определяется начальным направлением электрического поля, так как при изменении его знака на противоположный она остается прежней (рис. 3). Независимость наведенной переменным полем униполярности от знака первой четверти периода поля свидетельствует о том, что эта особенность поляризации является характеристикой конкретного образца с неравными поляризуемостями в двух противоположных эквивалентных по симметрии направлениях. Похожая ситуация наблюдается, как правило, у всех образцов обычных сегнетоэлектриков с крупномасштабной доменной структурой и, в частности, у релаксоров SBN [26], у которых даже в отсутствие электрического поля в полярной фазе существует легко обнаруживаемый пироэлектрический эффект, используемый часто для идентификации сегнетоэлектрического фазового перехода. Кристалл PMN с релаксорной и сегнетоэлектрической фазами позволяет проследить за тем, как наведенная полем униполярность изменяется с изменением масштаба неоднородностей.

Далее по данным регистрации процессов поляризации и деполяризации будет показано, что специфические для релаксоров петли диэлектрического гистерезиса кристаллов PMN не имеют однозначных коэерцитивного поля и равновесной поляризации, величина которой у однородных сегнетоэлектриков всегда определена и равна спонтанной поляризации.

2.3. Релаксация поляризации. Анализ результатов регистрации поляризации P в постоянных электрических полях позволяет получить данные о некоторых параметрах кристалла с долгоживущими метастабиль-

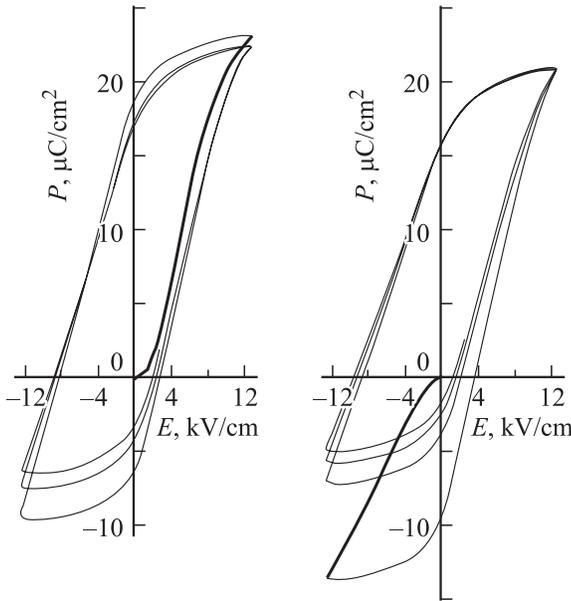


Рис. 3. Квазистатические петли диэлектрического гистерезиса кристалла PMN для различных начальных направлений переполяризующего поля при $T = 210$ K.

ными состояниями на больших временах. На рис. 4 приведены кривые релаксации P для кристалла PMN при включении (процесс поляризации) и выключения (процесс деполяризации) поля $E = 3$ kV/cm. Оба процесса начинаются скачком ΔP (вставки на рис. 4), а затем продолжаются по термоактивационному механизму. Скачки ΔP существуют всегда независимо от того, больше или меньше E полуширины петли гистерезиса; чем больше E , тем больше ΔP . Начальная быстрая стадия релаксации в виде скачка ΔP при любой величине поля E является свидетельством отсутствия однозначного коэрцитивного поля E_c , которое распределено по объему кристалла в широком интервале значений. В обычном однородном сегнетоэлектрике величина поля E_c четко определена, и при включении $E < E_c$ сразу начинается медленный процесс релаксации без предварительного скачка, который появляется только в случае, если $E > E_c$ [25].

Медленная термоактивационная стадия релаксации $P(t)$ у PMN, так же как и у других релаксаторов [25], с высокой точностью подчиняется универсальному степенному закону

$$p(t) = (P_e - P(t)) / (P_e - P_0) = 1 / (1 + t/a)^n, \quad (1)$$

где P_0 — начальная поляризация, P_e — равновесная, P_e, a, n — свободные параметры.

На рис. 4 значками показаны экспериментальные значения $P(t)$, сплошными линиями — расчет по формуле (1), а сплошными горизонтальными — равновесные P_e , к которым асимптотически приближаются значения $P(t)$. Отклонение экспериментальных значений

от расчетных не превышает 0.5%. Аппроксимация данных измерения $P(t)$ степенной функцией (1) с тремя свободными параметрами P_e, a, n проводилась методом наименьших квадратов по стандартной программе. Отметим, что эмпирический степенной закон (1) для релаксации, по-видимому, является универсальным для многих неоднородных систем, поскольку при определенных ограничениях на величины свободных параметров он практически не отличается от различных других неэкспоненциальных функций, предлагаемых ранее для описания релаксации некоторых материалов [26]. Нетрудно также убедиться в том, что в отличие от давно известного закона релаксации Кольрауша, во-первых, закон (1) дает более правильное описание релаксации $P(t)$ на малых временах, так как производная $dP(t)/dt$ всегда должна быть конечной величиной, и, во-вторых, в приближении независимости центров релаксации закону (1) строго соответствует простая функция $f(\tau)$ распределения времени релаксации τ . Функция $f(\tau)$ и безразмерная поляризация $p(t)$ в (1) связаны соотношением

$$p(t) = \int_0^{\infty} f(\tau) \exp(-t/\tau) d\tau.$$

Функции $\tau^2 f(\tau)$ и $p(t)$ являются соответственно оригиналом и изображением интегрального преобразования Лапласа [27], и если степенной закон (1) выполняется с удовлетворительной точностью, тогда для функции $f(\tau)$ можно написать выражение

$$f(\tau) = (1/\Gamma(n)) a^n \tau^{(1-n)} \exp(-a/\tau), \quad (2)$$

где $\Gamma(n)$ — гамма-функция. Распределение $f(\tau)$ имеет максимум при $\tau = a/(1+n)$. Иногда удобнее пользоваться безразмерной функцией $g = \tau f(\tau)$, которая является распределением $\ln \tau$ или распределением барьеров для центров релаксации по энергии U , где согласно закону Аррениуса $U = kT \ln(\tau/\tau_0)$, τ_0 — кинетический коэффициент.

Рассчитанные по экспериментальным данным для $P(t)$ по формуле (2) функции $f(\tau)$ для процессов поляризации и деполяризации при тех же температурах приведены также на рис. 4. Функции $f(\tau)$ являются нормированными, т. е.

$$\int_0^{\infty} f(\tau) d\tau = 1.$$

Нетрудно убедиться в том, что площади S , ограниченные на рисунке кривыми $f(\tau)$ и горизонтальными прямыми, проведенными на уровне $f(\tau) = 0.1 f_{\max}$ (f_{\max} — максимальное значение), много меньше 1. Это означает, что распределение $f(\tau)$ должно включать в себя очень большие времена релаксации τ , которые выходят за рамки графиков. С уменьшением всех времен τ в спектре

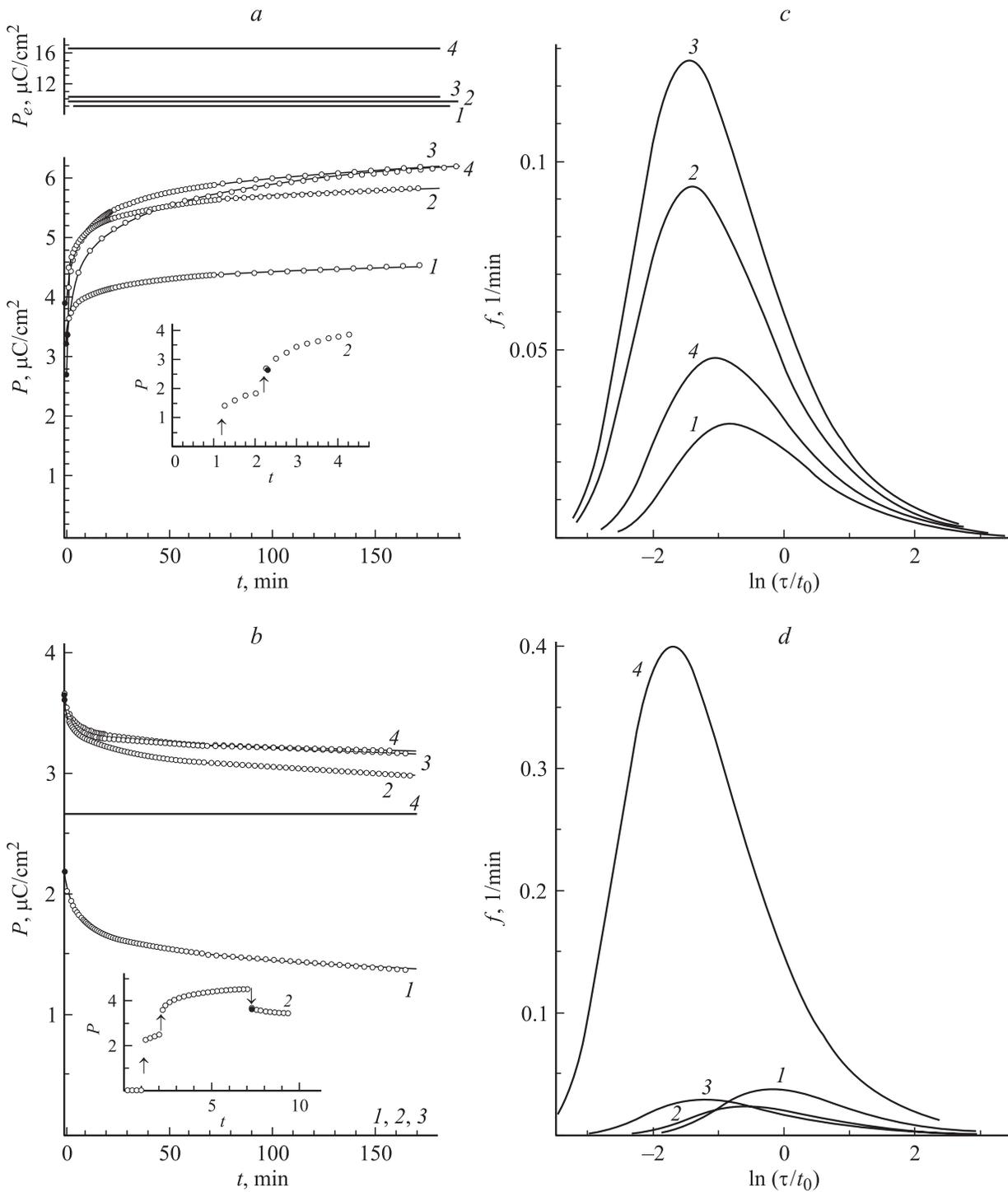


Рис. 4. Медленные процессы поляризации (*a*) и деполяризации (*b*) кристалла PMN и спектры $f(\tau)$ распределения времени релаксации τ (*c, d*) при различных температурах T , К: 1 — 257, 2 — 230, 3 — 215, 4 — 205. Поляризующее поле $E = 3 \text{ kV/cm}$. Сплошные кривые — расчет, кружки — эксперимент. Сплошные горизонтальные линии — равновесные значения P_e , $t_0 = 1 \text{ min}$. На вставках — начало процессов поляризации и деполяризации (скачки P отмечены стрелками).

спектр становится уже и выше, его максимум смещается влево и увеличивается ограничиваемая кривой $f(\tau)$ площадь S . Рассчитанные по экспериментальным данным некоторые параметры релаксации и спектров распределения $f(\tau)$, а также площади S приведены в Таблице.

Релаксация поляризации $P(t)$ и спектры $f(\tau)$ регистрировались в широком интервале температур. На рис. 5 приведены температурные зависимости параметров релаксации и спектров для поляризующего поля $E = 3 \text{ kV/cm}$. Видно, что при фазовом переходе

Параметры релаксации поляризации P и спектров распределения $f(\tau)$ кристалла PMN в поле $E = 3 \text{ kV/cm}$

| Процесс | $T, \text{ K}$ | $P_0, \mu\text{C/cm}^2$ | $P_e, \mu\text{C/cm}^2$ | $a, \text{ min}$ | n | $\tau_m, \text{ min}$ | S |
|---------------|----------------|-------------------------|-------------------------|-------------------|-------------------|-----------------------|------|
| Поляризация | 257 | 3.37 | 9.3 ± 0.7 | 0.45 ± 0.02 | 0.037 ± 0.001 | 0.44 ± 0.02 | 0.09 |
| | 230 | 3.95 | 9.6 ± 0.1 | 0.252 ± 0.004 | 0.062 ± 0.001 | 0.24 ± 0.004 | 0.15 |
| | 215 | 3.28 | 10.38 ± 0.07 | 0.244 ± 0.003 | 0.080 ± 0.001 | 0.23 ± 0.003 | 0.18 |
| | 205 | 2.71 | 16.7 ± 0.12 | 0.362 ± 0.002 | 0.046 ± 0.005 | 0.346 ± 0.002 | 0.11 |
| Деполяризация | 257 | 2.18 | 0 ± 0.2 | 0.89 ± 0.06 | 0.086 ± 0.011 | 0.65 ± 0.06 | 0.2 |
| | 230 | 3.64 | 0 ± 0.5 | 0.57 ± 0.03 | 0.034 ± 0.006 | 0.55 ± 0.03 | 0.09 |
| | 215 | 3.66 | 0 ± 0.26 | 0.287 ± 0.005 | 0.022 ± 0.002 | 0.281 ± 0.005 | 0.06 |
| | 205 | 3.62 | 2.67 ± 0.02 | 0.18 ± 0.005 | 0.09 ± 0.003 | 0.165 ± 0.005 | 0.42 |

в сегнетоэлектрическое состояние при $T \cong 215 \text{ K}$ параметры P_e и S возрастают, а в области перехода наиболее вероятное время релаксации $\tau_m = a/(1+n)$, отвечающее максимуму распределения $f(\tau)$, имеет четко выраженный минимум. Поскольку энергия U барьеров линейно связана с $\ln \tau$, можно сказать также, что энергии U в области перехода проходят через минимум. Иначе говоря, при охлаждении кристалла до его индуцированного полем перехода в сегнетоэлектрическую фазу, он становится более „мягким“ к воздействию внешнего электрического поля, и процессы поляризации и деполяризации ускоряются. При дальнейшем охлаждении появляется крупномасштабная доменная структура [5], и энергия барьеров опять увеличивается, а релаксация замедляется.

Непрерывные спектры распределения времени релаксации поляризации PMN строились ранее по данным измерения мнимой части диэлектрической проницаемости в слабом переменном электрическом поле $10^{-3} - 10 \text{ Hz}$ без смещающего постоянного поля. Такие спектры, так же как приведенные в настоящей работе, имеют характерную для неоднородных систем аномально большую ширину, увеличивающуюся при понижении температуры, однако в постоянных смещающих полях, индуцирующих сегнетоэлектрический фазовый переход, спектры не исследовались [15,17].

По-видимому, одним из главных результатов исследования релаксации является температурная зависимость равновесного значения поляризации P_e для процесса деполяризации. На рис. 5, *b* видно, что в температурной области релаксорной фазы кристалла PMN значение P_e везде равно нулю и только в сегнетоэлектрической области отлично от нуля. Это означает, что квазистатические петли диэлектрического гистерезиса при реполяризации в поле $E = 3 \text{ kV/cm}$ с периодом $\sim 1 \text{ h}$ являются термодинамически неравновесными характеристиками, и при увеличении периода поля их форма и амплитуда должны приближаться к равновесным. В пределе для очень больших периодов поля в релаксорной фазе петля должна вырождаться в нелинейную зависимость P от E с нулевыми значениями остаточной поляризации P_e и „коэргитивного“ поля, а в сегнетоэлектрической фазе должна сохранить свою привычную форму. Возможно,

что такая ситуация имеет место для более высоких значений амплитуд реполяризующего поля. В этом случае термодинамически равновесные диэлектрические свойства релаксорного и сегнетоэлектрического состояний, отличающихся масштабом неоднородностей, будут принципиально различными. О температурной зависимости остаточной поляризации, имеющей отличные от нуля значения в сегнетоэлектрической фазе и равные нулю в релаксорной фазе, для среза (100) кристалла PMN сообщалось также в [14]. Эти данные получены из петель диэлектрического гистерезиса в переменном электрическом поле и согласуются с нашими.

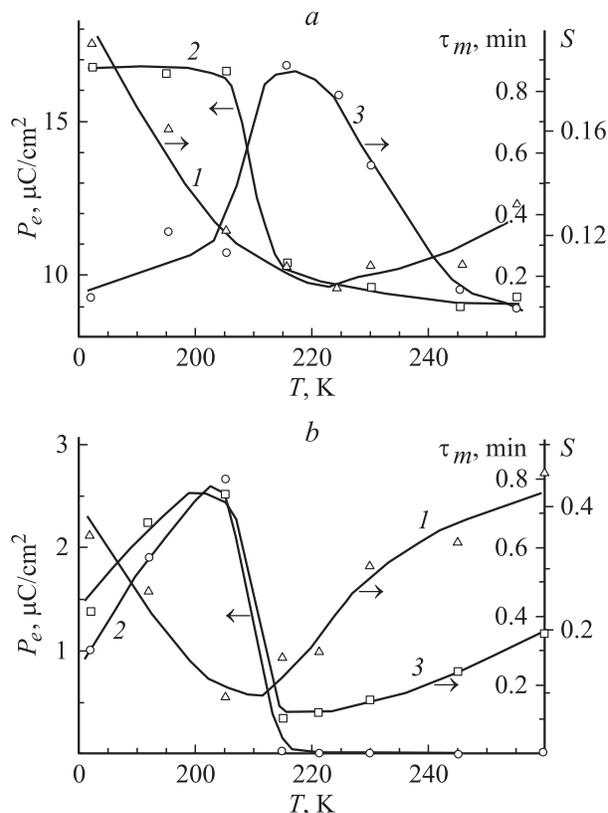


Рис. 5. Температурные зависимости параметров τ_m (1), P_e (2), S (3) релаксации и спектров распределения $f(\tau)$ для процессов поляризации (а) и деполяризации (б).

Таким образом, исследование медленной кинетики поляризации сегнетоэлектрического релаксора магнитообата свинца позволяет зарегистрировать его реакцию на внешнее воздействие, включающую отклик долгоживущих метастабильных состояний, характерных для таких существенно неоднородных материалов. Регистрация такого отклика выявляет особенности диэлектрических свойств PMN обусловленные случайными внутренними электрическими полями: своеобразный вид первых неповторяющихся циклов петель диэлектрического гистерезиса и резкое изменение параметров спектра распределения времени релаксации при индуцированном электрическим полем переходе из сегнетоэлектрической в релаксорную фазу. Экстраполяция результатов измерений на большие времена дает также возможность оценить характеристики кристалла, близкие к его термодинамически равновесным значениям.

Авторы признательны С.Г. Лушникову (ФТИ РАН) за предоставленный для исследований кристалл, Т.Р. Волк — за интерес к работе и полезные обсуждения результатов.

Список литературы

- [1] Г.А. Смоленский, В.А. Исупов, А.И. Аграновская. ФТТ **1**, 167 (1959).
- [2] Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, Н.Н. Крайник, Р.Е. Пасынков, М.С. Шур. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Наука, Л. (1971). С. 355.
- [3] М. Лайнс, А. Гласс. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. Мир, М. (1981). С. 316.
- [4] L.E. Cross. *Ferroelectrics* **76**, 241 (1987).
- [5] В.А. Боков, И.Е. Мельникова. ФТТ **3**, 3, 841 (1961).
- [6] R. Sommer, N.K. Yushin, J.J. Van der Klink. *Ferroelectrics* **127**, 1–4, 235 (1992).
- [7] Zuo-Guang Ye, H. Schmid. *Ferroelectrics* **145**, 83 (1993).
- [8] R. Sommer, N.K. Yushin, J.J. Van der Klink. *Phys. Rev. B* **48**, 18, 13 230 (1993).
- [9] A.A. Bokov, Z.-G. Ye. *J. Phys. Condens. Matter* **12**, L541 (2000).
- [10] A.A. Bokov, Z.-G. Ye. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 12, 1888 (2000).
- [11] A. Levstik, Z. Kutnjak, G. Filipic, R. Pirc. *Phys. Rev. B* **57**, 18, 11 204 (1998).
- [12] R. Blinc, J. Dolinsek, A. Gregorovic, B. Zalar, C. Filipic, Z. Kutnjak, A. Levstik, R. Pirc. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2, 424 (1999).
- [13] A.K. Tagantsev, A.E. Glazunov. *Phase Transitions* **65**, 1–4, 117 (1998).
- [14] H. Arndt, F. Sauerbier, G. Schmidt. *Ferroelectrics* **79**, 145 (1988).
- [15] E.V. Colla, E.Yu. Koroleva, N.M. Okuneva, S.B. Vakhrushev. *J. Phys. Condens. Matter.* **4**, 3671 (1992).
- [16] R. Pirc, R. Blinc, Z. Kutnjak. *Ferroelectrics* **267**, 139 (2002).
- [17] N.K. Yushin, S.N. Dorogovtsev. *Ferroelectrics* **134**, 265 (1992).
- [18] Z. Kutnjak, A. Levstik, R. Pirc. *Ferroelectrics* **270**, 283 (2002).
- [19] A.K. Jonscher. *Dielectric relaxation in solids*. Chelsea Dielectrics, London (1983).
- [20] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, С.В. Нехлюдов, Е.С. Иванова. ФТТ **39**, 11, 2046 (1997).
- [21] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, С.В. Нехлюдов, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева. ФТТ **42**, 7, 1296 (2000).
- [22] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Е.С. Иванова, С.В. Нехлюдов. ФТТ **41**, 3, 499 (1999).
- [23] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, С.В. Нехлюдов, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева. *Письма в ЖЭТФ* **71**, 1, 328 (2000).
- [24] T. Granzow, U. Dorfler, Th. Woike, M. Wohlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann. *Phys. Rev. B* **63**, 174 101 (2001).
- [25] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк. ФТТ **44**, 2, 351 (2002).
- [26] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева. *ЖЭТФ* **120**, 8, 1 (2001).
- [27] В.И. Диткин, А.П. Прудников. *Справочник по операционному исчислению*. Высш. шк., М. (1956). 466 с.