

06

Критическое рассеяние нейтронов в одноосном релаксоре $\text{Sr}_{0.6}\text{Ba}_{0.4}\text{Nb}_2\text{O}_6$

© С.А. Борисов¹, Н.М. Окунева¹, С.Б. Вахрушев^{1,2}, А.А. Набережнов^{1,2},
Т.Р. Волк³, А.В. Филимонов²

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

² Санкт-Петербургский государственный политехнический университет,
Санкт-Петербург, Россия

³ Институт кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН,
Москва, Россия

E-mail: sergey.borisov@mail.ioffe.ru.

(Поступила в Редакцию 21 марта 2012 г.
В окончательной редакции 5 июля 2012 г.)

Приведены результаты исследования температурной эволюции критического рассеяния нейтронов в кристалле ниобата бария стронция SBN60 в нулевом поле и при приложении постоянного внешнего электрического поля. Показано, что наблюдаемое критическое рассеяние состоит из двух компонент, хорошо описываемых лоренцианом и квадрированным лоренцианом. Эти компоненты по-разному зависят от температуры и от вектора переданного импульса. Приложение внешнего электрического поля существенно подавляет вторую компоненту.

Работа проводилась при поддержке грантов РФФИ 09-02-00329-а и 11-02-00687-а и Минобрнауки России.

1. Введение

Релаксорные сегнетоэлектрики представляют собой широкий класс материалов, специфика свойств которых обусловлена фундаментальным структурным разупорядочением (библиография в обзоре [1]). Для релаксоров характерны высокие значения диэлектрических, пьезо-, пироэлектрических, электро- и нелинейно-оптических характеристик со слабыми температурными зависимостями.

Большинство исследованных релаксоров являются смешанными кубическими перовскитоподобными кристаллами, но наряду с этим существуют слоистые, например на основе $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_6$ [2], и одноосные релаксоры.

Кристаллы сегнетоэлектрических твердых растворов $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN_x, где x — стехиометрический коэффициент, показывающий долю стронция в общем числе катионов, изменяется в пределах $0.2 < x < 0.8$, далее он будет указываться в процентном соотношении), являющиеся объектом исследования в настоящей работе, относятся к одноосным релаксорам [3]. При температурах, зависящих от соотношения $[\text{Sr}]/[\text{Ba}]$, они претерпевают размытый фазовый переход из тетрагональной сегнетоэлектрической фазы (пр. гр. $P4bm$) в centrosymmetricную (пр. гр. $P\bar{4}b2$). С увеличением содержания $[\text{Sr}]$ температура перехода снижается [4], одновременно усиливается релаксорное поведение — возрастает размытие максимума диэлектрической проницаемости ϵ и увеличивается частотная дисперсия $\epsilon(T)$ в этой области. Подобное воздействие, но без увеличения доли стронция, также оказывает сравнительно

слабое легирование ионами редкоземельных (Ln^{3+}) металлов [5,6]. В нелегированных кристаллах SBN_x релаксорное поведение наиболее ярко выражено в составе $x = 0.75$ [4,7,8].

Кристаллы SBN_x принадлежат к структуре незаполненных вольфрамовых бронз, в которой статистически заполнено 5/6 катионных позиций [9]. Основой структуры является трехмерный каркас, сформированный октаэдрами NbO_6 и образующий три типа структурных каналов, направленных вдоль полярной оси c [9]. Наиболее узкие каналы треугольного сечения не заполнены; средние по поперечному размеру четырехугольные каналы (A1) заполнены атомами Sr; наиболее крупные пятиугольные каналы (A2) заполнены атомами Ba и Sr. Делались неоднократные попытки качественно связать релаксорные свойства SBN с разупорядочением Ba и Sr по структурным каналам [7,8,10–12]. С большой долей вероятности можно заключить, что при идентичных условиях выращивания кристаллов заселенность канала A1 атомами Sr слабо зависит от соотношения $[\text{Sr}]/[\text{Ba}]$, то есть характеристики фазового перехода определяются статистикой заселения каналов A2 атомами Sr и Ba [11,12]. Модель случайного поля Изинга (RFIM), развиваемая для объяснения релаксорных свойств SBN (например, [7,8]), основана на предположении о связи случайного поля со стохастическим распределением незаполненных катионных позиций („вакансий“ по терминологии [8]) в A2-каналах. По мере возрастания концентрации $[\text{Sr}]$ содержание „вакансий“ в канале A2 увеличивается [9–12], приводя к возрастанию роли случайных полей и тем самым к усилению релаксорных свойств. По расчетам модели RFIM [7,8] переход SBN_x к

чисто релаксорному поведению реализуется при $x \geq 0.6$, что качественно согласуется с экспериментом.

Согласно современным представлениям [1], фундаментальным свойством релаксорных сегнетоэлектриков является возникновение полярных нанокластеров (или нанодоменов) в неполярной матрице при температурах $T_d \gg T_C$ (где T_C применительно к SBN — температура Кюри, T_d — температура Бёрнса). Модель полярных нанокластеров, существующих в неполярной фазе в интервале $T_C < T < T_d$, была предложена в работе [13] для объяснения нелинейной температурной зависимости показателя преломления $n(T)$ при $T \gg T_{\max}$. Температура T_d начала линеаризации $n(T)$ соответствует исчезновению полярных кластеров.

В высокотемпературной фазе, выше температуры Бёрнса, SBN ведет себя как типичный параэлектрик. По мере снижения температуры и приближения к T_C растет характерный размер кластеров, а ниже этой температуры формируется нанодоменная структура. Для кристаллов SBN60 измерения температурных зависимостей оптических свойств выше T_C и их анализ в рамках модели полярных нанокластеров были впервые выполнены в [14]; оценка дала $T_d \approx 570 \text{ K}^1$ ($T_C \approx 360 \text{ K}$). Существование ненулевой поляризации при $T \gg T_C$ в различных составах SBN было неоднократно подтверждено различными методами. Например, при наблюдении пьезоотклика [8,15] и генерации второй гармоники при $T > T_C$ [16]; также при измерениях мандельштам-бриллюэновского рассеяния было обнаружено появление центрального пика при высоких температурах [17], и т.д. Первое прямое наблюдение полярных нанокластеров в SBN было выполнено методом просвечивающей электронной микроскопии (ТЕМ) [18,19], причем была обнаружена резкая анизотропия размеров. Их протяженность вдоль полярной оси была порядка нескольких μm , поперечное сечение имело размер порядка 10 nm для SBN75. С уменьшением содержания Sr поперечный размер нанокластеров увеличивался до 100–300 nm в SBN50.

Поскольку одной из задач настоящей работы является исследование влияния постоянного электрического поля на характеристики критического рассеяния, остановимся кратко на специфике доменной структуры SBN. Исследования объемными методами (рентгеновская топография [20], оптические [21,22] и нелинейно-оптические измерения [23,24]) и методом зондовой микроскопии [25–27] позволили сделать вывод, что в равновесной доменной структуре SBN „обычные“ объемные сегнетоэлектрические домены сосуществуют с приповерхностными наноразмерными доменами. Первые представляют собой „иглы“ длиной до 200–500 μm и диаметром 2–10 μm . Их параметры не обнаруживают заметной зависимости от состава. Напротив, размеры фракталоподобных приповерхностных нанодоменов существенно зависят от

¹ В дальнейшем были получены другие величины T_d в SBN60, например 650 K в работе [16].

состава. Их длина составляет несколько десятков μm [8], а поперечный размер резко уменьшается с увеличением содержания [Sr]: предельная площадь поперечного сечения составляет 1.1 и 0.05 μm^2 в SBN40 и SBN75 соответственно, что находится в хорошем согласии с данными [18,19]. Эти и другие характеристики нанополярной структуры находятся в разумном согласии с оценками, сделанными на основе модели RFIM [8]. Нанополярная структура, как равновесная [27], так и созданная методом атомно-силовой микроскопии [27,28], сохраняется вплоть до $T = T_C + 20 \text{ K}$, медленно релаксируя путем „размытия“ доменных стенок.

При приложении внешнего поля кристалл монодоменизируется (переключается), причем полевые и кинетические характеристики этого процесса принципиально отличаются от тех же характеристик в модельных сегнетоэлектриках [29,30], что связывается с пиннингом доменов на случайных полях [7,8].

Несмотря на достаточно интенсивные исследования SBN в последние годы, до сих пор нет достаточного понимания микроскопического механизма наблюдаемых явлений, определяющих его релаксорные свойства. В последние годы идет дискуссия, касающаяся критического поведения в кристаллах SBN60–SBN61. Авторами работ [7,17,18,31,32] были использованы различные подходы для описания критических свойств SBN61, однако однозначного решения получено не было. Одной из причин, препятствующих однозначной интерпретации критических свойств, является то, что большинство экспериментов проводится во внешних электрических полях, которые существенно влияют как на обычные домены, так и на полярные нанокластеры. Альтернативой является изучение критических свойств системы путем проведения „невозмущающих“ экспериментов по рассеянию нейтронов и рентгеновского излучения. С этой целью мы провели серию экспериментов по изучению температурной эволюции диффузного рассеяния нейтронов в SBN60.

Первые нейтронные исследования SBN были проведены в ОИЯИ, Дубна. В работах [33,34] изучались особенности фазовых переходов в $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ с различной концентрацией [Sr]. В образцах с высоким содержанием [Sr] ($x > 0.5$) наблюдалось интенсивное анизотропное рассеяние вокруг рефлексов типа $(00L)$, вытянутое в направлении, перпендикулярном оси c . Было отмечено, что оно может быть представлено в виде суммы нескольких компонент, и компонента, зависящая от температуры, связана с размытым фазовым переходом. Исследование зависимости интенсивности квазиупругого рассеяния при различных температурах позволило сделать вывод о том, что при охлаждении образца ФП начинается с зарождения малых областей новой фазы внутри исходной, количество и размеры которых растут по мере охлаждения [34]. Было установлено, что под действием электрического поля диффузное рассеяние уменьшается [35].

В настоящей работе мы предлагаем результат нашего изучения пространственных корреляций параметра порядка в кристалле SBN60 методом рассеяния нейтронов.

2. Методика эксперимента

Все измерения проводились на трехосном нейтронном спектрометре „Нейтрон-3“, установленном на реакторе ВВР-М в Петербургском институте ядерной физики (Гатчина, Ленинградская обл.). В качестве монохроматора использовался монокристалл пиролютитического графита с отражающими плоскостями (002), в качестве анализатора – монокристалл $Cu(111)$. Длина волны падающих нейтронов составляла 2.454 \AA . Энергетическое разрешение, измеренное по ванадию, составляло 0.8 meV , разрешение по переданному волновому вектору составляло: вдоль вектора рассеяния \mathbf{Q} 10^{-2} \AA^{-1} , перпендикулярно вектору \mathbf{Q} $2 \cdot 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ и в вертикальном направлении $1.5 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$.

Кристалл ниобата бария стронция $Sr_{0.6}Ba_{0.4}Nb_2O_6$ (SBN60) был выращен в Институте общей физики им. А.М. Прохорова РАН модифицированным методом Степанова [36]. Образец имел форму параллелепипеда размером $12 \times 12 \times 6 \text{ mm}^3$. Параметры ячейки при комнатной температуре составляли $a = b = 12.470(1) \text{ \AA}$, $c = 3.936(2) \text{ \AA}$. На грани (001) были нанесены серебряные электроды. Образец помещался в криопечь с технической возможностью приложения к образцу электрического поля. Измерения проводились в температурном интервале от 291 K до 424 K , при этом температура регулировалась с точностью $0.5\text{--}1 \text{ K}$. Сканирование велось в квазиупругом режиме.

Основная часть измерений была проведена в плоскости обратной решетки (110) в окрестности узла (002). Дополнительно были также проведены измерения вблизи узла (220).

3. Обработка данных

Для анализа данных применялся подход, аналогичный используемому в случае рассеяния нейтронов в магнетиках со случайными полями и спиновых стеклах. При подгонке полученные результаты описывались суммой гауссиана (брэгговское рассеяние), лоренциана (термодинамические флуктуации), квадрированного лоренциана и линейного фона. Зависимость интенсивности от приведенного волнового вектора $I(q)$ аппроксимировалась следующим феноменологическим выражением [37]

$$I(q) = \frac{I_0 \kappa^2}{q^2 + \kappa^2} + \frac{I_1 \kappa^4}{(q^2 + \kappa^2)^2} + I_{br} e^{-q^2/2\sigma^2} + I_{bkg}, \quad (1)$$

где q — приведенный волновой вектор; κ^2 — квадрат обратного радиуса корреляции, имеющего размерность обратной длины; σ — стандартное отклонение.

Первый член соответствует орнштейн–церниковской корреляционной функции:

$$G(r) = \frac{T_C}{8\pi g r} e^{-r/r_C}, \quad (2)$$

здесь r_C — радиус корреляции; g — коэффициент перед градиентным (флуктуационным) членом в разложении плотности свободной энергии, описывает термодинамические флуктуации (ТФ) с пиковой интенсивностью I_0 . Известно, что в соответствии с положениями флуктуационно-диссипационной теоремы значение I_0 должно быть пропорциональным статической восприимчивости системы $\chi^{(0)}$. Выражение (2) было впервые предложено для описания рассеяния нейтронов в магнетиках со случайными полями [38].

Второй член в выражении (1) соответствует рассеянию на нанодоменах с интенсивностью I_1 при $q = 0$ или конфигурационным флуктуациям (КФ). Третье слагаемое описывает брэгговский вклад, четвертое дает фоновый вклад I_{bkg} в рассеяние.

При обработке результатов наших экспериментов для первых двух членов осуществлялась свертка с функцией разрешения спектрометра по методу Гаусса–Эрмита. Процедура свертки для брэгговского пика не проводилась, так как его ширина существенно меньше ширины функции разрешения, поэтому именно последняя определяла ширину наблюдаемого в эксперименте брэгговского рассеяния. Подгоночными параметрами служили значения пиковых интенсивностей лоренциана, квадрированного лоренциана и обратный радиус корреляции. Ширина брэгговского пика определялась из высокотемпературных измерений, где вклад от I_0 и I_1 пренебрежимо мал, и в дальнейшем фиксировалась.

Температурные зависимости квадрата обратного радиуса корреляции κ^2 и статической восприимчивости системы $\chi^{(0)}$ выше T_C описывались следующими выражениями

$$\kappa^2 = \kappa_0^2 (T - T_C)^{2\nu}, \quad (3a)$$

$$\chi^{(0)} = C (T - T_C)^{-\gamma}. \quad (3b)$$

4. Результаты и обсуждение

4.1. Измерения в нулевом электрическом поле

Как уже отмечалось выше, мы проводили поиск диффузного рассеяния (ДР) в окрестности узлов (002) и (220). В соответствии с ранее опубликованными результатами [34] в окрестности узла (220) в пределах экспериментальных погрешностей ДР нами обнаружено не было. В то же время вокруг узла (002) наблюдалось интенсивное рассеяние нейтронов, сильно зависящее от температуры. Из анализа общих выражений для интенсивности ДР [35] следует, что в окрестности вектора обратной решетки τ может наблюдаться вклад в рассеяние только от смещений, имеющих ненулевую компоненту вдоль этого вектора. Таким образом, вблизи узла (220) смещения вдоль полярной оси (001) не дают вклада в

рассеяние. Соответственно отсутствие рассеяния вблизи этого узла подтверждает связь температурно-зависимого ДР с полярными смещениями.

В дальнейшем все измерения были ограничены окрестностью узла (002). Рассеяние вблизи этого узла было сконцентрировано вокруг брэгговского пика, в плоскостях, перпендикулярных [002]. Рассеяние являлось квазиупругим, то есть энергетическая ширина этого рассеяния была существенно меньше аппаратного разрешения, указанного выше.

Нами были проведены измерения двумерного распределения интенсивности диффузного рассеяния нейтронов в кристалле SBN60 вблизи узла (002) в координатах (hhl) для различных температур. На рис. 1 приведены данные, полученные в результате прямого вычитания двумерного распределения интенсивности при комнатной температуре 291(1) К, из аналогичного, но вблизи предполагаемой температуры перехода 343(1) К. По оси ординат отложены величины приведенного волнового вектора в диапазоне $-0.27a^* < q < +0.27a^*$ (a^* — параметр обратной решетки). Как видно из рисунка, рассеяние наблюдается только при сканировании в направлении, перпендикулярном τ . При сканировании вдоль вектора τ указанное квазиупругое рассеяние практически отсутствует. Это подтверждает предположение о том, что обнаруженное квазиупругое рассеяние обусловлено сегнетофлуктуациями, поскольку известно, что из-за кулоновского взаимодействия продольные флуктуации в сегнетоэлектриках не наблюдаются, а поперечные не могут давать вклад в рассеяние вдоль вектора обрат-

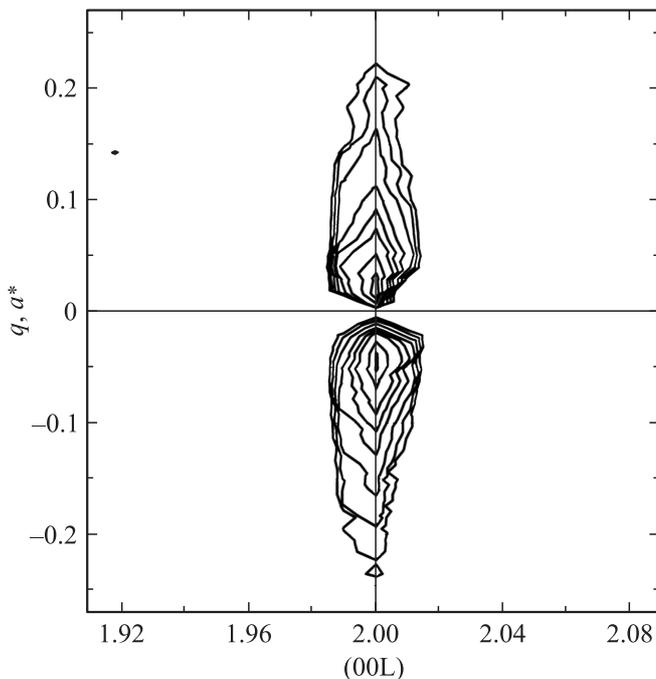


Рис. 1. Двумерное распределение интенсивности диффузного рассеяния нейтронов вблизи узла (002), полученное прямым вычитанием экспериментальных данных при 291(1) К из аналогичных при 343(1) К.

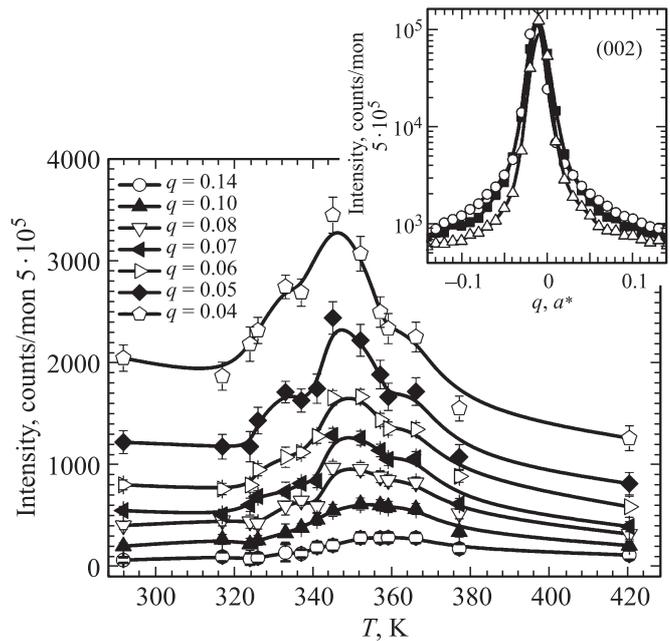


Рис. 2. Температурные зависимости интенсивностей диффузного рассеяния нейтронов $I(q, T)$ в SBN60 при различных значениях q вблизи узла (002). На вставке приведены в логарифмическом масштабе экспериментальные зависимости интенсивности рассеяния в узле (002) при поперечном сканировании по q в диапазоне $(-0.15a^* - +0.15a^*)$ для трех температур: 343(1) К — окружности, 291(1) К — квадраты и 424(1) К — треугольники.

ной решетки. Приведенные факты позволяют соотнести рассматриваемое рассеяние с полярными смещениями ионов.

На рис. 2 приведены температурные зависимости интенсивностей диффузного рассеяния нейтронов $I(q, T)$ в SBN60 для значений приведенного волнового вектора $0.04a^* < |q| < 0.14a^*$ в интервале температур от 291 К до 424 К. Диапазон значений q обусловлен выбранным масштабом рисунка. Необходимо отметить, что при q , меньших $0.03a^*$, интенсивное брэгговское рассеяние не позволяло надежно выделить гораздо более слабое диффузное, а выше $0.18a^*$ диффузное рассеяние сливалось с фоном. Сканирование осуществлялось вблизи узла (002) в направлении [110], перпендикулярном вектору обратной решетки τ . Приведенные на рисунке интенсивности диффузного рассеяния получены после вычитания фона и усреднения по левому и правому крыльям соответствующего спектра (см. вставку на рис. 2). Хорошо видно, что в отличие от кубического релаксора $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (PMN) [39], температурная зависимость интенсивности диффузного рассеяния SBN60 демонстрирует немонотонный ход с широким максимумом 320–370 К, точное положение которого зависит от поперечной компоненты приведенного волнового вектора. Такой вид зависимости $I(q, T)$ может быть обусловлен возникновением нелоренцева вклада в рассеяние (второй член в выражении (1)).

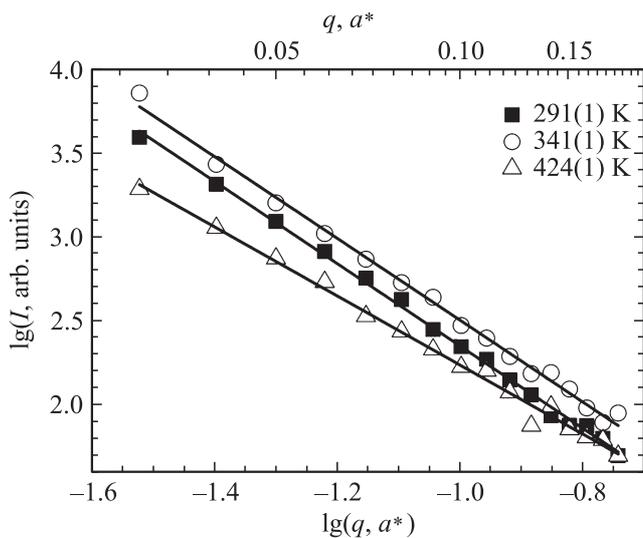


Рис. 3. Зависимость интенсивности от q в дважды логарифмическом масштабе для трех температур: 341(1) К — окружности, 291(1) К — квадраты, 424(1) К — треугольники. Наклоны прямых, полученные в результате линейной аппроксимации: 424(1) К — $-2.06(5)$, 341(1) К — $-2.44(5)$ и 291(1) К — $-2.46(4)$.

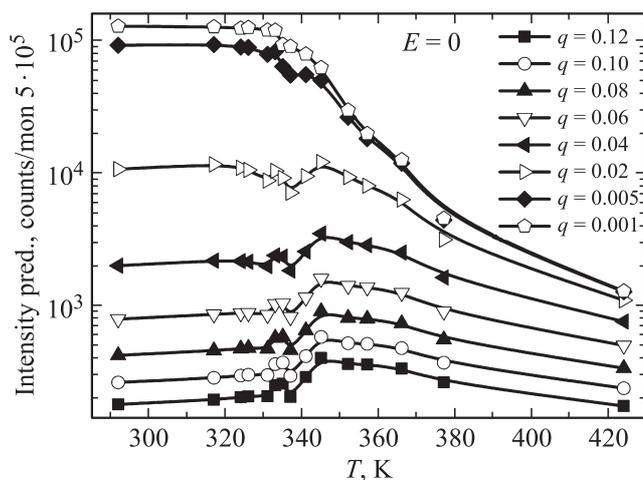


Рис. 4. Температурные зависимости расчетных значений интенсивностей рассеяния при различных q . Кривые — результат процедуры сглаживания.

На рис. 3 приведены зависимости интенсивностей квазиупругого рассеяния от q для трех температур в дважды логарифмическом масштабе. Аналогично рис. 2, интенсивности приводятся для выделенного интервала значений q , в данном случае $0.03a^* < q < 0.18a^*$. Линейный характер свидетельствует о степенной зависимости $I(q)$. При температурах выше точки Кюри степень близка к 2, что говорит о преобладании термодинамических флуктуаций. При понижении температуры наклон растет, что указывает на увеличение вклада от конфигурационных флуктуаций.

Проведенный анализ формы линии показал, что при всех температурах рассеяние хорошо описывается выражением (1). В результате обработки экспериментальных данных были определены температурные зависимости интенсивности брэгговского рассеяния I_{br} и интенсивностей пиков рассеяния I_0 и I_1 . Полученные величины были использованы для расчета температурных зависимостей интенсивности диффузного рассеяния при малых значениях переданного импульса q ($0 < q < 0.03a^*$), которые были недоступны в эксперименте (рис. 4), а также для определения температурной зависимости обратного радиуса корреляции.

Интенсивность рассеяния при малых q монотонно растет с понижением температуры, причем очень резкий рост наблюдается именно в области точки Кюри, а далее зависимость $I(q, T)$ практически выполаживается. Это хорошо видно на рис. 4. При q больше $0.02a^*$ вид зависимости радикально меняется. На расчетных кривых $I(q, T)$ при $q \geq 0.04a^*$ виден только размытый максимум вблизи точки Кюри, что находится в хорошем соответствии с экспериментальными данными, приведенными на рис. 2.

На рис. 5, а приведены расчетные значения для пиковых интенсивностей $I_0(0, T)$ и $I_1(0, T)$ для нескольких температур выше и ниже T_C . Хорошо видно, что интенсивность нелоренцевой компоненты рассеяния $I_1(0, T)$ монотонно растет с понижением температуры вплоть до комнатной. Наличие этой компоненты при температурах существенно выше T_C позволяет сделать вывод о существовании замороженных случайных полей, обусловленных случайным заполнением каналов ионами Sr и Ba (как уже отмечалось выше, число допустимых позиций больше числа ионов в кристалле). Обращает на себя внимание быстрый рост интенсивности рассеяния на КФ при температурах ниже T_C . Выполаживание кривой ниже размытого максимума свидетельствует о формировании в низкотемпературной фазе большого количества нанокластеров.

С понижением температуры интенсивно нарастает и Орнштейн-Церниковская (лоренцева) компонента. В области точки Кюри она проходит через максимум и при температурах ниже $T_C - 20$ К практически не зависит от температуры. В целом полученные данные указывают на то, что аналогично магнетикам со случайными полями, происходит разбиение кристалла на систему нанодоменов. Их формирование начинается уже выше точки Кюри, что подавляет расходимость радиуса корреляции и статической восприимчивости в точке ФП.

Следует особо отметить необычное поведение $I_0(0, T)$. В „нормальных“ сегнетоэлектриках мы ожидали бы критического спада пиковой интенсивности лоренцевой компоненты, пропорциональной (как уже указывалось выше) статической восприимчивости системы. В нашем же случае наблюдается выход этой величины на конечное значение. С другой стороны, такое поведение хорошо согласуется с температурной зависимостью обратного радиуса корреляции, где также

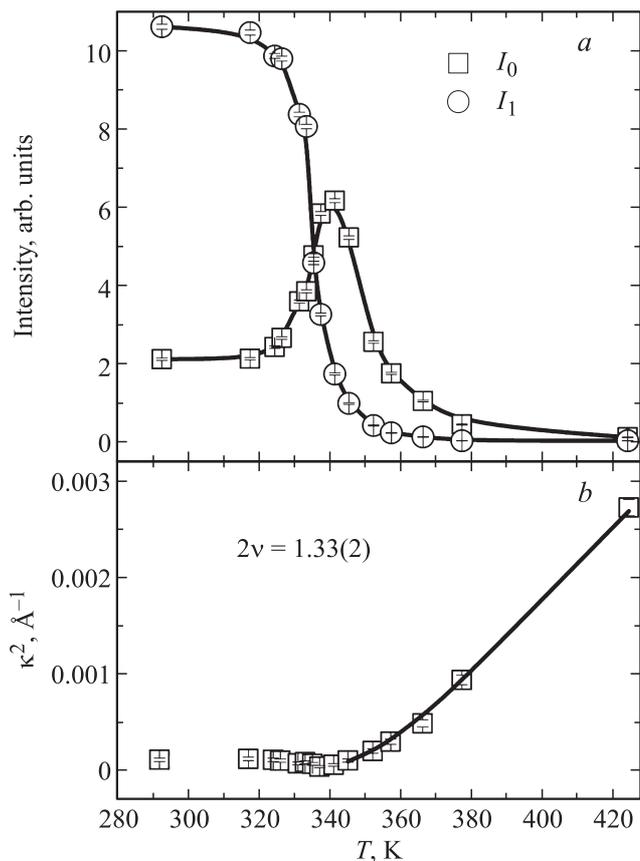


Рис. 5. *a* — температурные зависимости расчетных значений пиковых интенсивностей $I_0(0, T)$ (квадраты) и $I_1(0, T)$ (окружности). *b* — температурные зависимости квадрата обратного радиуса корреляции κ (квадраты), полученные из экспериментальных данных. Кривая — результат подгонки выражением (3).

отсутствует восходящая ветвь при низких температурах (рис. 5, *b*). Ниже 320 К радиус корреляции практически перестает зависеть от температуры. Таким образом, понижение температуры не приводит к возникновению пространственнооднородного полярного состояния.

Полученные результаты позволяют определить значения критических экспонент ν и γ для радиуса корреляции и восприимчивости соответственно.

Как уже отмечалось ранее, при температурах выше T_C квадрат обратного радиуса корреляции κ^2 зависит от приведенной температуры критическим образом с индексом 2ν . При аппроксимации зависимости выражением (3а) были получены значения $2\nu = 1.33(2)$, $T_C = 340.5(12)$ К. Аппроксимация температурной зависимости I_0 выше точки Кюри по формуле (3 б) позволила определить величину критического индекса $\gamma = 1.33(17)$. Можно полагать, что для параметров γ и ν хорошо выполняется скейлинговое соотношение $\gamma = (2 - \eta)\nu$ с параметром Фишера $\eta = 0$ [40].

Из рис. 5, *b* видно, что температурная зависимость обратного радиуса корреляции в точке Кюри претерпевает излом. Ниже этой температуры происходит „за-

мерзание“ радиуса корреляции $r_c = 1/\kappa$ ($= 27(3)$ nm), и кристалл в упорядоченное состояние не переходит.

4.2. Измерения в приложенных электрических полях

При приложении постоянного поля $E = 2.8 \cdot 10^5$ V/m картина наблюдаемого диффузного рассеяния резко изменяется.

На вставке на рис. 6 приведено сравнение температурных зависимостей интенсивностей диффузного рассеяния нейтронов $I(q, T)$ в поле и без поля для нескольких значений приведенного волнового вектора q . Для наглядности величины отнормированы на максимум интенсивности. Легко видеть, что приложение поля существенно подавляет рассеяние как в области ФП, так и ниже него. Выше температуры фазового перехода при больших q существенных различий в поведении рассеяния при приложении поля и при его отсутствии обнаружено не было. Интенсивность диффузного рассеяния при q , стремящемся к нулю, монотонно растет с понижением температуры, в области точки Кюри проходит через слабо выраженный максимум и далее монотонно спадает.

На рис. 6 приведены расчетные значения для пиковых интенсивностей ($q = 0$) $I_0(0, T)$ и $I_1(0, T)$. Как и в

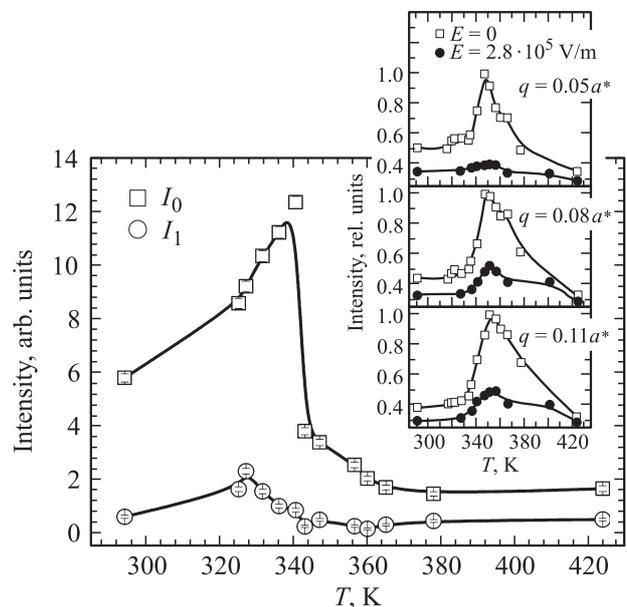


Рис. 6. Температурные зависимости расчетных значений пиковых интенсивностей $I_0(0, T)$ (окружности) и $I_1(0, T)$ (квадраты) для случая приложения постоянного поля $E = 2.8 \cdot 10^5$ V/m. На вставке приведены в относительных единицах экспериментальные данные температурной зависимости интенсивности рассеяния нейтронов при нескольких величинах приведенного волнового вектора q ($0.05a^*$, $0.08a^*$, $0.11a^*$) вблизи узла (002): без приложения электрического поля — окружности; в электрическом поле $E = 2.8 \cdot 10^5$ V/m — квадраты.

случае нулевого поля, экспериментальные данные удовлетворительно описывались суммой лоренциана и квадратированного лоренциана. Необходимо отметить практически полное подавление нелоренцевой компоненты (кривая I_1) во всем диапазоне исследуемых температур. Интенсивность рассеяния на ТФ (кривая I_0) в отличие от случая нулевого поля проходит через максимум в точке ФП. Такое поведение $I_0(0, T)$ и $I_1(0, T)$ свидетельствует о том, что приложение достаточно сильного внешнего поля подавляет процесс формирования нанодоменов и приводит к возникновению макродоменного (возможно, монодоменного) состояния.

5. Заключение

Проведенные исследования температурной зависимости диффузного рассеяния нейтронов для SBN60 показали, что при охлаждении в нулевом поле не возникает пространственно однородного полярного состояния, а происходит разбиение кристалла на нанодомены (ниже 320 К). Полученные экспериментальные результаты хорошо описываются суммой лоренциана и квадратированного лоренциана при всех q . Показано, что ниже точки Кюри происходит „замерзание“ радиуса корреляции, величина которого составляет около 27 nm. Определены значения критических индексов $\nu = 0.67(2)$, $\gamma = 1.33(17)$ и температура Кюри $T_C = 340.5(12)$ К.

Приложение электрического поля $\sim 2.8 \cdot 10^5$ V/m приводит к подавлению процесса формирования нанодоменов и возникновению пространственно однородного полярного состояния.

Авторы выражают благодарность Л.И. Ивлевой за предоставление кристалла SBN60.

Список литературы

- [1] A.A. Bokov, Z.-G. Ye. *J. Mater. Sci.* **41**, 31, (2006).
- [2] A.L. Kholkin, M. Avdeev, M.E.V. Costa, J.L. Bartista. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 5, 662 (2001).
- [3] L. Eric Cross. *Ferroelectrics* **76**, 241 (1987).
- [4] Ю.С. Кузьминов. Сегнетоэлектрические кристаллы для управления лазерным излучением. Наука, М. (1982). 400 с.
- [5] Т.Р. Волк, В.Ю. Салобутин, Л.И. Ивлева, Н.М. Полозков, Р. Панкрат, М. Вёлеке. *ФТТ* **42**, 11, 2066 (2000).
- [6] Lambert K. Chao, Eugene V. Colla, M.B. Weissman. *Phys. Rev. B* **72**, 134 105 (2005).
- [7] W. Kleemann. *J. Non-Crystal. Solids* **307–310**, 66 (2002).
- [8] V.V. Shvartsman, W. Kleemann, T. Łukasiewicz. *J. Dec. Phys. Rev. B* **77**, 054 105 (2008).
- [9] P.B. Jamieson, S.C. Abrahams, J.L. Bernstein. *J. Chem. Phys.* **48**, 5048 (1968).
- [10] А.Е. Андрейчук, А.М. Дорожкин, Ю.С. Кузьминов, И.А. Масляницын, В.Н. Молчанов, А.А. Русаков, В.И. Симонов, В.Д. Шигорин, Г.П. Шипуло. *Кристаллография* **20**, 1094 (1984).
- [11] T.S. Chernaya, B.A. Maksimov, I.V. Verin, L.I. Ivleva, V.I. Simonov. *Crystallogr. Rep.* **42**, 375 (1997).
- [12] Т.С. Черная, Б.А. Максимов, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева, В.И. Симонов. *ФТТ* **42**, 9, 1668 (2000).
- [13] G. Burns, F.H. Dacol. *Solid State Commun.* **48**, 853 (1983).
- [14] A.S. Bhalla, R. Guo, L.E. Cross, G. Burns, F.H. Dacol, R.R. Neurgaonkar. *Phys. Rev. B* **36**, 2030 (1987).
- [15] B.M. Jin, R.Y. Guo, A.S. Bhalla, S.C. Kim. *J. Mater. Sci.* **32**, 8, 2055 (1997).
- [16] S. David, T. Granzow, A. Tunyagi, M. Wöhlecke, T. Woike, K. Betzler, M. Ulex, M. Imlau, R. Pankrath. *Phys. Status Solidi A* **201**, R49 (2004).
- [17] F.M. Jiang, J.-H. Ko, S. Kojima. *Phys. Rev. B* **66**, 184 301 (2002).
- [18] L. Bursill, P. Lin. *Philos. Mag. B* **54**, 157 (1987).
- [19] D. Viehland, Z. Hu, W.-H. Huang. *Philos. Mag. A* **71**, 205 (1995).
- [20] G. Fogarty, B. Steiner, M. Cronin-Golomb, U. Laor, M. Garrett, J. Martin, R. Uhrin. *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2636 (1996).
- [21] J.J. Romero, D. Jaque, J. Garcia Sole, A.A. Kaminskii. *Appl. Phys. Lett.* **81** 22, 4106 (2002).
- [22] Н.Р. Иванов, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева, С.П. Чумакова, А.В. Гинзберг. *Кристаллография* **47**, 1065 (2002).
- [23] U. Voelker, K. Betzler. *Phys. Rev. B* **74**, 132 104 (2006).
- [24] U. Voelker, U. Heine, Ch. Goedecker, K. Betzler. *J. Appl. Phys.* **102**, 114 112 (2007).
- [25] J. Dec, W. Kleemann, S. Miga, V.V. Shvartsman, T. Łukasiewicz, M. Swirkowicz. *Phase Trans.* **80**, 131 (2007).
- [26] Р.В. Гайнутдинов, Т.Р. Волк, А.Л. Толстихина, Л.И. Ивлева. *Письма в ЖЭТФ* **86**, 299 (2007).
- [27] P. Lehnen, W. Kleemann, T. Woike, R. Pankrath. *Phys. Rev. B* **64**, 224 109 (2001).
- [28] L.V. Simagina, E.D. Mishina, S.V. Semin, N.A. Ilyin, T.R. Volk, R.V. Gainutdinov, L.I. Ivleva. *J. Appl. Phys.* **110**, 052 015 (2011).
- [29] В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Т.Р. Волк, Л.И. Ивлева. *ЖЭТФ* **120**, 678 (2001).
- [30] T. Granzow, U. Doerfler, Th. Woike, M. Wohlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann. *Phys. Rev. B* **63**, 174 101 (2001).
- [31] E. Buixaderas, M. Savinov, M. Kempa, S. Veljko, S. Kamba, J. Petzelt, R. Pankrath, S. Kapphan. *J. Phys.: Cond. Matter* **17**, 653 (2005).
- [32] T. Granzow, Th. Woike, M. Wohlecke, M. Imlau, W. Kleemann. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 6, 065 701 (2004).
- [33] А.М. Балагуров, Ф. Прокерт, Б.Н. Савенко. *Сообщ. ОИЯИ Р-14-87-38* (1987); *Phys. Status Solidi A* **103**, 131 (1987).
- [34] Ф. Прокерт, Б.Н. Савенко, Д. Сангаа. *Сообщ. ОИЯИ Р-14-89-769* (1989).
- [35] В.Л. Аксенов, Н.М. Плакида, С. Стаменкович. *Рассеяние нейтронов сегнетоэлектриками / Под ред. Н.М. Плакиды. Энергоатомиздат, М. (1984). 255 с.*
- [36] L.I. Ivleva, N.V. Bogodaev, N.M. Polozkov, V.V. Osiko. *Opt. Mater.* **4**, 168 (1995).
- [37] R.J. Birgeneau, R.A. Cowley, G. Shirane, H. Yoshizawa. *J. Stat. Phys.* **34**, 5/6, 817 (1984).
- [38] Ю.А. Изюмов, Р.П. Озеров. *Магнитная нейтронография. Наука, М. (1966). 532 с.*
- [39] S.B. Vakhrushev, В.Е. Kvyatkovsky, А.А. Nabereznov, N.M. Okuneva, В.Р. Toperverg. *Physica B* **156–157**, 90 (1989).
- [40] J. Scott. *J. Phys.: Cond. Matter* **18**, 7123 (2006).