

сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

4820/2-81

28/9-81
P14-81-443

А.М.Балагуров, И.Д.Датт, Б.Н.Савенко,
Л.А.Шувалов

НЕЙТРОНОГРАФИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
ПРОЦЕССОВ ПОЛЯРИЗАЦИИ
КРИСТАЛЛОВ $KD_2 PO_4$

1981

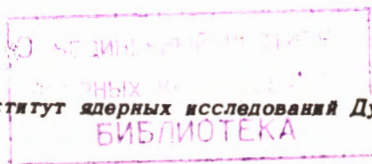
1. ВВЕДЕНИЕ

В предыдущих работах^{/1,2/} было показано, что двухкоординатная нейтронография с использованием дифрактометра по времени пролета является эффективным методом исследования трансформационного двойникования кристаллов. В^{/2/} описано применение этого метода при изучении процесса поляризации кристалла KD_2PO_4 (DKDP), находящегося в сегнетоэлектрической фазе. Было показано, что ниже точки фазового перехода ($T \leq T_c$) в отсутствие электрического поля в кристалле DKDP наблюдается доменная структура, состоящая из четырех $\pm S_a$ и $\pm S_b$ / конфигураций. В процессе поляризации кристалла с малым значением коэрцитивного поля $/E_{zc} \leq 1$ кВ/см/ внешним электрическим полем E_z наблюдается постепенный разворот S_a - и S_b -конфигураций до совпадения их ориентаций, то есть переход S_a -и S_b -доменов в P-домены. В^{/2/} приведены также предварительные результаты исследования процесса переполаризации кристаллов DKDP и сделан вывод о том, что при переключении полярности кристалла внешним полем обратного знака кристалл проходит стадию полидоменного состояния, включающего все четыре конфигурации доменов.

В настоящей работе приведены результаты измерения двумерных нейтронограмм на более жестком /с большей величиной коэрцитивного поля/, чем в работе^{/2/}, кристалле DKDP в процессе его поляризации и переполаризации электрическим полем и обсуждается возможный механизм перестройки доменной структуры кристалла.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Измерения нейтронограмм были выполнены на дифрактометре по времени пролета с однокоординатным позиционно-чувствительным детектором /Д1, рис. 1/^{/3/}. Средний угол рассеяния 2θ составлял 90° , интервал углов рассеяния, охватываемый детектором, - 10° ; угловая ширина одной позиционной группы равнялась $11'$. Используемый интервал длин волн нейтронов $/1 \div 6 \text{ \AA}/$ позволял регистрировать несколько порядков отражения от выбранной кристаллографической плоскости. Например, для направления (0k0) одновременно регистрировались нейтронограммы для /040/, /060/ и /080/ узлов обратной решетки.



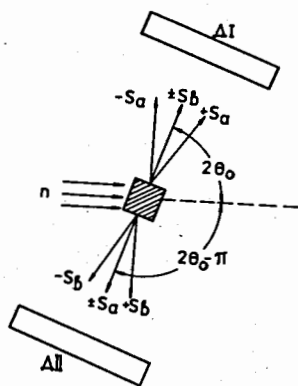


Рис.1. Схема расположения детекторов относительно образца и пучка нейтронов /ДI - позиционно-чувствительный; ДII - обычный детектор/ и схема направлений рассеяния нейтронов при наблюдении (h00) и (0k0) узловых прямых обратной решетки DKDP.

По сравнению с^{1/2/} экспериментальная процедура была дополнена измерением одномерных /по времени пролета/ дифракционных спектров от перпендикулярного узлового ряда. На рис. 1 схематически изображены направления рассеяния нейтронов при наличии в образце доменов $\pm S_a$ - и $\pm S_b$ -конфигураций

для случая наблюдения (h00) и (0k0) узловых прямых объемно-центрированной решетки DKDP /пространственная группа I42d/. Видно, что наличие второго детектора /ДII/ позволяет наблюдать отдельно компоненты узла составной обратной решетки, совпадающие в первом детекторе. Это оказалось необходимым как для более достоверной интерпретации нейтронограмм, так и для регистрации поворотов образца как целого.

Эксперимент проводился на кристалле, который, как и в^{1/2/}, имел объем $V = 1 \text{ см}^3$, с температурой Кюри $T_c = 214 \text{ К}$, но значение его коэрцитивного поля составляло около 2 кВ/см, что в 2,5 раза больше коэрцитивного поля кристалла, исследованного в^{1/2/}. Во время измерений температура образца поддерживалась равной $210 \pm 1 \text{ К}$, продолжительность регистрации нейтронограммы при фиксированном значении внешнего электрического поля составляла в среднем 90 мин. Последовательность воздействия поля на образец подробно описана в^{1/2/}. При проведении цикла переполаризации исходное /монодоменное/ состояние кристалла достигалось непосредственно перед началом цикла и, в отличие от наблюдавшегося в^{1/2/}, соответствовало $+S_a$ -конфигурации доменов.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

На рис. 2 приведены двумерные, а на рис. 3 - одномерные распределения интенсивности рассеянных нейтронов в узлах /060/ и /400/ соответственно обратной решетки кристалла при некоторых значениях напряженности E_z внешнего поля, увеличивающейся от 0 до 4 кВ/см с шагом 0,25 кВ/см. Исходное состояние при $E_z = 0$ было получено при охлаждении образца до $T = 210 \text{ К}$ без

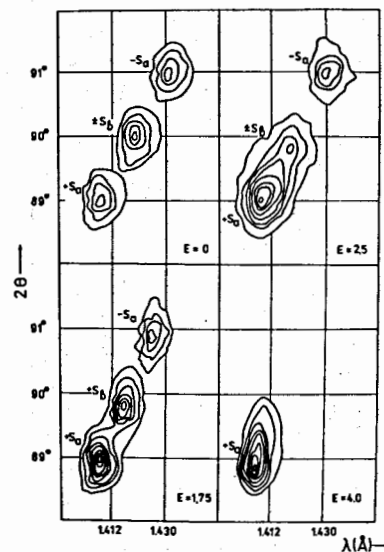


Рис.2. Двумерные распределения интенсивности /контуры с шагом 20/ в узле /060/ кристалла DKDP в процессе поляризации кристалла в электрическом поле E_z .

наложения внешнего поля. В отличие от кристалла, исследованного в^{1/2/}, в данном случае процесс поляризации заканчивается переходом в $+S_a$ -конфигурацию: при этом положение соответствующего дифракционного максимума на рис. 2 практически остается неизменным. Характерной особенностью нейтронограмм является наблюдающееся, начиная с $E_z \approx 1,5 \text{ кВ/см}$, сильное искажение формы дифракционных пиков, соответствующих $+S_a$ - и $+S_b$ -доменам, в то же время максимумы, отвечающие существованию

в образце $-S_a$ - и $-S_b$ -доменов, уменьшаются по интенсивности без изменения формы. При $E_z \geq 2 \text{ кВ/см}$ пики, соответствующие $+S_a$ - и $+S_b$ -доменам, фактически образуют единый максимум.

На рис. 4 приведены двумерные распределения интенсивности в узле /060/ в процессе переполаризации кристалла, находящегося в исходном монодоменном $+S_a$ -состоянии. Отчетливо наблюдается возникновение в кристалле полидоменного состояния, состоящего из всех четырех типов $\pm S_a$ - и $\pm S_b$ -доменов. Характерно также то, что на первой стадии разрушения монодоменного состояния происходит объединение $+S_a$ - и $+S_b$ -компонент дифракционного пика в единый широкий максимум.

При переключении кристалла из $+S_a$ -состояния в $-S_a$ и обратно угловые положения компонент различались на 50° , что несколько меньше удвоенной величины угла спонтанного сдвига α_{xy} . Наблюдаемые в ДII одиночные пики от перпендикулярного узлового ряда /рис. 3/ смещались при этом на $\Delta\lambda/\lambda = 0,0035$, что означает поворот образца как целого на 12° . Таким образом, скорректированная на поворот образца разница угловых положений $\pm S_a$ -компонент приводит к $\alpha_{xy} = 31^\circ$, что соответствует ранее измеренным значениям^{1/1/}.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

В работе^{1/2/} отмечалось, что в идеальном кристалле переключение знака поляризации доменов теоретически должно происходить

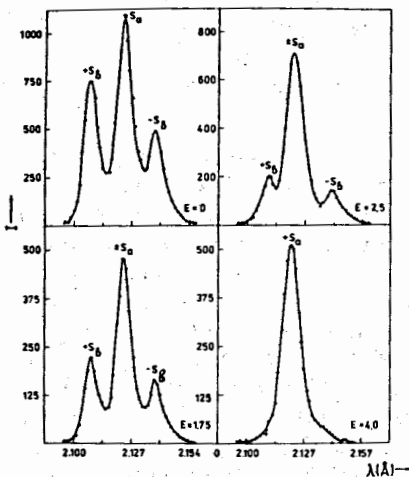


Рис. 3. Форма дифракционных пиков в узле /400/, измеренная детектором ДП одновременно с нейтронограммами рис. 2.

одновременно с поворотом S_a -и S_b -конфигураций навстречу друг другу и заканчиваться в однодоменном состоянии переходом в P-конфигурацию. Именно такое поведение наблюдалось в ¹² для кристалла DKDP с коэрцитивным полем $E_{zc}=0,8$ кВ/см /"мягкий" кристалл/. Однако для исследованного в работе ⁴ кристалла с $E_{zc}=5$ кВ/см /"жесткий" кристалл/ при поляризации поворот S_a - и S_b -доменов отсутствовал *, а переход в однодоменное $+S_a$ -состояние происходил скачкообразно.

Как следует из результатов, изложенных в предыдущем разделе, кристалл с $E_{zc}=2$ кВ/см в процессе поляризации занимает промежуточное положение по отношению к исследованным ранее кристаллам. В кристалле не наблюдается одновременного поворота S_a - и S_b -доменов с переходом в P-конфигурацию, но в то же время переход происходит постепенно и характеризуется образованием

* Кроме незначительного /в пределах 3'/ разворота, связанного с обратным пьезоэлектрическим эффектом.

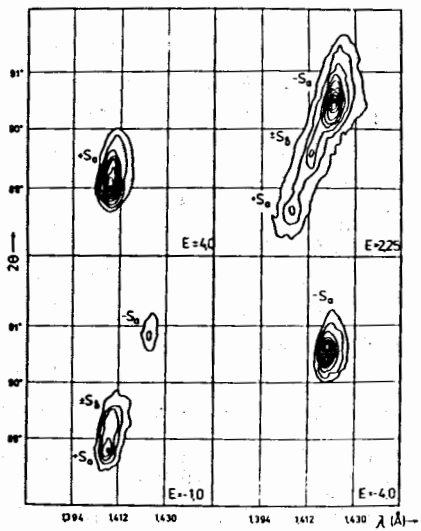


Рис. 4. Двумерные распределения интенсивности /контуры с шагом 25/ в узле /060/ кристалла DKDP в процессе переполаризации кристалла в поле E_z . Исходное состояние кристалла $+S_a$.

единого широкого максимума из $+S_a$ -и $+S_b$ -пиков. Образование подобного максимума можно объяснить только появлением в кристалле доменов с ориентациями, распределенными в интервале между ориентациями $+S_a$ -и $+S_b$ -доменов. Предположение о том, что в процессе переключения доменов в кристаллах типа DKDP возникает промежуточная упаковка, состоящая из доменов P-типа, высказывалось ранее в работе ⁵. Наши данные свидетельствуют скорее о том, что распределение ориентаций промежуточной упаковки доменов является непрерывным. Отсутствие искажений формы $-S_a$ -и $-S_b$ -доменов при переходе кристалла в $+S_a$ -состояние * позволяет предположить, что появление рассеяния во всем интервале углов между ориентациями $+S_a$ -и $+S_b$ -доменов связано с постепенным поворотом $+S_b$ -доменов к $+S_a$ -доменам; так как ориентация $-S_b$ -доменов при этом остается неизменной, то такого рода поворот происходит только в участках кристалла, где уже достигнуто однодоменное $+S_b$ -состояние.

Таким образом, результаты настоящей работы подтверждают модель поляризации кристалла, предложенную в ¹², а именно:

- в начальной стадии происходит переключение знака доменов за счет движения когерентных границ между + и - доменами обеих S_a -и S_b -конфигураций;
- после достижения в некоторой области кристалла состояния с определенным знаком поляризации становится возможным поворот домена в сторону некогерентной границы с доменом альтернативной конфигурации;
- степень взаимности происходящего поворота зависит от реальной структуры кристалла; в "мягких" образцах поворот доменных конфигураций взаимен и постепенен, в "жестких" он происходит скачкообразно, в "промежуточном" случае поворот постепенен, но поворачивается только менее устойчивая конфигурация доменов.

Из полученных данных следует также, что в "промежуточном" случае направление поворота доменной конфигурации от S_a к S_b или наоборот не является абсолютным; в различных участках кристалла происходят как те, так и другие повороты. Возможно, это связано с разной скоростью переключения знака поляризации в доменах S_a и S_b в данной области кристалла; начинает поворачиваться та конфигурация, в которой достигнуто униполярное состояние.

* Разрешающая способность нашего дифрактометра не позволяет наблюдать малые изменения формы дифракционных пиков, отмеченные в работе ⁶.

Это утверждение вытекает из факта существования полидоменного состояния с промежуточными между S_a - и S_b -ориентациями доменов, наблюдаемого при переполаризации кристалла. В частности, процесс монодоменизации исследуемого кристалла включает в себя в отдельных его участках и возможные временные повороты $+S_a - k + S_b$ -конфигурации доменов, приводящие в конечном счете /с помощью обратных поворотов/ к $+S_a$ монодоменному состоянию кристалла.

Отметим также, что интенсивность появляющихся в процессе переполаризации дифракционных максимумов, соответствующих менее устойчивой конфигурации доменов, существенно меньше их первоначальной /до начала поляризации/ интенсивности. Возможно, что многократное циклирование поляризации кристалла внешним полем приведет к полному исчезновению менее устойчивой конфигурации доменов.

Авторы благодарны В.И.Горделию и Г.М.Мироновой за помощь в проведении эксперимента и Ю.М.Останевичу за ряд критических замечаний.

ЛИТЕРАТУРА

1. Balagurov A.M. et al. *phys.stat.sol.(a)*, 1979, 51, p. 367.
2. Балагуров А.М. и др. ФТТ, 1980, 22, с. 2735.
3. Балагуров А.М. и др. ОИЯИ, Р13-80-440, Дубна, 1980.
4. Балагуров А.М. и др. Изв. АН СССР, сер.физ., 1979, 43, с. 1740.
5. Акназаров С.Х., Шабельников Л.Г., Шехтман В.М. ФТТ, 1975, 17, с. 30.
6. Bastie P.M., Bornarel J. *J.Phys.C: Solid. St.Phys.*, 1979, 12, p. 1785.

Рукопись поступила в издательский отдел
1 июля 1981 года.