

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

P14-87-38

А.М.Балагуров, Ф.Прокерт\*, Б.Н.Савенко

РАЗМЫТЫЙ ФАЗОВЫЙ ПЕРЕХОД  
И НЕСОИЗМЕРИМАЯ МОДУЛЯЦИЯ СТРУКТУРЫ  
В КРИСТАЛЛЕ  $\text{Sr}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{Nb}_2\text{O}_6$

---

\* Центральный институт ядерных исследований АН ГДР,  
Россендорф

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Кристаллы твердого раствора  $\text{Sr}_x \text{Ba}_{1-x} \text{Nb}_2 \text{O}_6$  (SBN - x) при комнатной температуре и при  $0,25 \leq x \leq 0,75$  являются сегнетоэлектриками, принадлежат к тетрагональной сингонии и имеют структуру типа вольфрамовой бронзы<sup>/1/</sup>. Структура SBN не полностью упорядочена: помимо позиционного беспорядка атомов кислорода в  $\text{NbO}_6$ -октаэдрах существует беспорядок, связанный с заполнением шести эквивалентных кристаллографических положений пятью атомами Sr или Ba. Фазовый переход ( $T_c \approx 350$  К и зависит от x) из высокотемпературной параэлектрической (вероятно, с симметрией  $4/mmm$ ) фазы в сегнетофазу ( $4mm$ ) имеет размытый характер, что отражает релаксационный механизм возникновения сегнетоэлектрических эффектов в SBN.

В работах<sup>/2,3/</sup> в кристаллах SBN с составами  $x = 0,33 \div 0,75$  наблюдалось сильное диффузное рассеяние рентгеновских лучей в плоскостях, перпендикулярных  $c^*$ , и обнаружены слабые сверхструктурные рефлексии типа  $(h/3, k/3, l/2)$ . Позднее, в работах Шнека и др.<sup>/4,5/</sup>, была найдена несоизмеримая модуляция основной структуры различных представителей тетрагональной вольфрамовой бронзы. В этих работах показано, что в кристаллах SBN-71 при комнатной температуре существует несоизмеримая фаза с вектором модуляции  $\vec{q}_\delta = \pm \frac{1+\delta}{4} \vec{a}^* \pm \frac{1+\delta}{4} \vec{b}^* + \frac{1}{2} \vec{c}^*$  ( $\vec{a}^*, \vec{b}^*, \vec{c}^*$  — базисные векторы обратной решетки) и параметром модуляции  $\delta = 0,26 \pm 0,05$ . Комбинации знака у  $\vec{a}^*$  и  $\vec{b}^*$  дают 4 возможных направления вектора  $\vec{q}_\delta$ . Наблюдаемую дифракционную картину оказалось невозможным проинтерпретировать в рамках соизмеримой сверхструктуры, предложенной в<sup>/3/</sup>.

В работе<sup>/6/</sup> на кристаллах SBN-60 и SBN-75 в диапазоне температур от 100 до 800 К изучались двойное лучепреломление и релеевское рассеяние света, а также измерялись коэффициенты теплового расширения ( $S_1$  вдоль  $\vec{a}$  и  $S_3$  вдоль  $\vec{c}$ ) и диэлектрическая постоянная  $\epsilon_{33}$ . Помимо известного размытого фазового перехода с максимумом  $\epsilon_{33}$  при  $T_c$  и сильным возрастанием светорассеяния, при температуре около 700 К обнаружены признаки еще одного размытого перехода, сопровождающегося аномалиями в двойном лучепреломлении и тепловом расширении. Авторы<sup>/6/</sup> обсуждают возможность возникновения сегнетоэластической фазы с симметрией  $mmm$  и постулируют симметрию  $mm2$  для сегнетоэлектрической фазы. Однако их выводы основаны исключительно на существовании аномалии коэффициента  $S_1$  и на оптическом наблюдении доменоподобной картины при механическом или электрическом воздействии на кристалл.

В настоящей работе сделана попытка, используя возможности нейтронной дифрактометрии, получить дополнительные данные как о характере модуляции структуры кристаллов SBN, так и об особенностях фазовых переходов в сегнетоэлектриках релаксационного типа.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Измерения дифракционных спектров проведены на нейтронном дифрактометре ДН-2<sup>77</sup>, действующем на импульсном реакторе ИБР-2 в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ, и на трехосном спектрометре TKSN-400 в Россендорфе (ГДР).

Дифрактометр во времени пролета ДН-2 имеет однокоординатную позиционно-чувствительную детекторную систему, что позволяет вести параллельную регистрацию дифракционных данных в двумерном секторе обратного пространства. Размеры сектора определяются интервалом углов рассеяния и рабочим диапазоном длин волн и при среднем угле  $2\theta_0 = 90^\circ$  составляют  $\Delta\theta = \pm 2,5^\circ$ ,  $1 \text{ нм}^{-1} \leq r \leq 15 \text{ нм}^{-1}$ ,  $r = 2 \sin\theta/\lambda$  — модуль вектора обратной решетки. Разрешающая способность дифрактометра по  $\Delta r/r$  равна 1% при  $\lambda = 0,4 \text{ нм}$ , развертка спектров по длине волны и углу рассеяния в наших экспериментах велась с шагами 0,001 нм и 15 угл.мин. соответственно. Возможность одновременного наблюдения как основных рефлексов, так и их сателлитов в протяженном секторе обратного пространства является основным достоинством дифрактометра во времени пролета с позиционным детектором при исследовании модулированных структур.

Трехосный спектрометр TKSN-400 позволяет провести сканирование обратного пространства по любому заранее определенному направлению. Ограничения в выборе области сканирования связаны с максимально достижимым углом рассеяния  $2\theta_{\max} = 85^\circ$ . TKSN-400 оборудован монохроматором и анализатором из пиролиитического графита (использовалась плоскость (002)), горизонтальная коллимация составляла 60', 40', 40', 85' (перед монохроматором, образцом, анализатором и детектором соответственно), вертикальная коллимация была сравнительно грубой ( $\sim 3^\circ$ ), анализатор настраивался на регистрацию упругого рассеяния.

В отличие от данных, полученных на ДН-2, дифракционные пики, измеренные на трехосном спектрометре, содержат вклад от высших порядков отражения, и при исследовании сверхструктур или систематических погасаний необходимо предпринять специальные меры для исключения высших гармоник в первичном пучке нейтронов. В наших экспериментах для этого использовался графитовый фильтр, но, к сожалению, полного подавления гармоник при номинальной энергии нейтронов первичного пучка  $E_1 = 13,8 \text{ мэВ}$  ( $\lambda = 0,2435 \text{ нм}$ ) достичь не удалось.

Монокристалл SBN состава  $\text{Sr}_{0,7}\text{Ba}_{0,3}\text{Nb}_2\text{O}_6$  был выращен по методу Чохральского. Интенсивность сверхструктурных дифракционных пиков весьма мала, поэтому для экспериментов использовался кристалл сравнительно большого объема,  $\sim 1 \text{ см}^3$ . На грани (001) были нанесены электроды. Вследствие большого содержания стронция температура фазового перехода оказалась около 350 К.

Сканирование обратного пространства на ДН-2 велось в плоскости  $(\bar{1}10)$ , центральные линии секторов соответствовали направлениям:  $[001]$ ,  $[110]$ ,  $[111]$  и  $[121]$ . Сканирование на TKSN-400 велось в плоскостях (110) и (001). Набор данных выполнен при комнатной температуре на ДН-2 и TKSN-400 и при нескольких температурах вплоть до 773 К на ДН-2. Измерения с наложением на кристалл электрического поля ( $E \leq 4 \text{ кВ/см}$ ) проводились только при комнатной температуре. Для краткости дифракционные спектры, измеренные на ДН-2 и TKSN-400, обозначаются далее как TOF- и TAS-спектры соответственно.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Характер дифракционных спектров, зарегистрированных от одного образца при одинаковых условиях, оказался зависящим от предыстории кристалла — как процессы старения, так и действие в течение некоторого времени электрического поля оказывают на спектры большое влияние. Можно выделить два типа наблюдавшихся в наших экспериментах состояний кристалла:

- сразу после температурной деполяризации, то есть после нагрева образца до  $T > T_c$  и охлаждения в отсутствие электрического поля;
- после длительной выдержки (старения) при комнатной температуре или под действием электрического поля.

Дифракционные спектры, измеренные в парафазе (при  $T > T_c$ ) и сразу после деполяризации, совпадают по своим основным характеристикам. Признаки несоизмеримой модуляции структуры наблюдались во всех состояниях кристалла.

### 3.1. Кристалл после температурной деполяризации

Если кристалл нагрет выше точки сегнетоэлектрического фазового перехода и затем охлажден в отсутствие электрического поля, то наблюдается дифракционная картина с пиками от основной структуры и несоизмеримой модулированной структуры, описанной в работе Шнека и др.<sup>15/</sup>. Сателлитные рефлексы  $\vec{r}^\delta$  обнаружены в точках обратного пространства:

$$\vec{r}_{hklm}^\delta = \vec{r}_{hkl} + m\vec{q}_\delta,$$

где  $h, k, l, m$  — целые числа,  $\vec{r}_{hkl}$  — вектор обратной решетки,  $\vec{q}_\delta$  — вектор модуляции, используемый как четвертый базисный вектор.

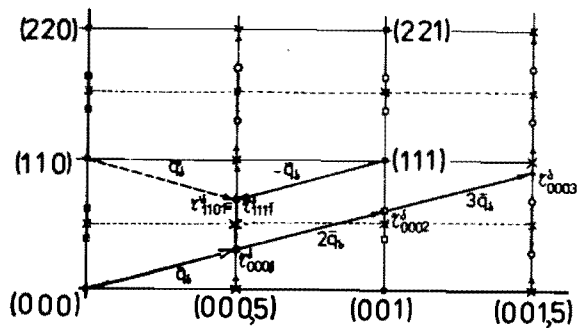


Рис. 1. Схема расположения узлов в сечении  $(h h l)$  обратной решетки SBN. Показаны положения основных узлов ( $\bullet$ ), сверхструктурных  $(h/2 h/2 l/2)$ -типа ( $\times$ ) и спутных узлов. Для несоизмеримой системы показаны векторы для спутников 1-го ( $\circ$ ), 2-го ( $\square$ ) и 3-го ( $\Delta$ ) рангов. Направления  $\vec{q}_\delta$  (прерывистая линия) и  $\vec{q}_\delta$  симметрично эквивалентны и дают одну систему спутников.

Ситуация проиллюстрирована на рис. 1, где показаны основные, сверхструктурные и спутные (для  $m = 1, 2, 3$ ) рефлексы в сечении  $(h h l)$  кристалла. Параметр модуляции  $\delta = 0,22 \pm 0,01$  был определен по позициям спутников 1-го ранга ( $m=1$ ) в TAS-спектрах. В этих же спектрах идентифицированы пики, соответствующие спутникам высших рангов: 2-го и 4-го (векторы модуляции  $2\vec{q}_\delta$  и  $4\vec{q}_\delta$ ), появляющиеся в сечениях  $(h k l)$ -типа, и 3-го (вектор модуляции  $3\vec{q}_\delta$ ), появляющиеся в сечениях  $(h k l + \frac{1}{2})$ -типа (рис. 2).

В этом состоянии кристалла пики в TOF-спектрах хорошо идентифицируются при  $\delta = 0,22$  и значениях параметров решетки  $a = 1,255 \pm 0,005$  нм и  $c = 0,395 \pm 0,002$  нм. На рис. 3 проиллюстрировано появление системы спутников 2-го ранга в TOF-спектрах в плоскости  $(001)$ . Положения спутников (рис. 4) согласуются с наличием модуляции по направлениям  $[110]$  и  $[\bar{1}\bar{1}0]$  тетрагональной решетки, то есть описываются четырьмя векторами:

$$2\vec{q}_\delta = 2\left[\frac{1+\delta}{4}(\pm \vec{a}^* \pm \vec{b}^*) + \frac{1}{2}\vec{c}^*\right] = 0,61(\pm \vec{a}^* \pm \vec{b}^*) + \vec{c}^*$$

### 3.2. Зависимость структуры от температуры

После температурной деполяризации повторные циклы нагревания кристалла выше  $T_c$  и его охлаждения до комнатной температуры не приводят к каким-либо заметным изменениям дифракционных спектров. Происходящая при  $T_c$  перестройка структуры кристалла проявляется лишь в появлении широких полос диффузионного рассеяния, вытянутых перпендикулярно оси  $c^*$ . На рис. 5а и б сравнены двумерные  $(2\theta, \lambda)$ -распределения интенсивности вокруг узла  $(001)$  выше и ниже  $T_c$ , из которых видно, кроме того, что направления векторов модуляции и полос диффузного рассеяния не совпадают.

При повышении температуры положения спутников никак не изменяются, но их интенсивность монотонно уменьшается и при 773 К

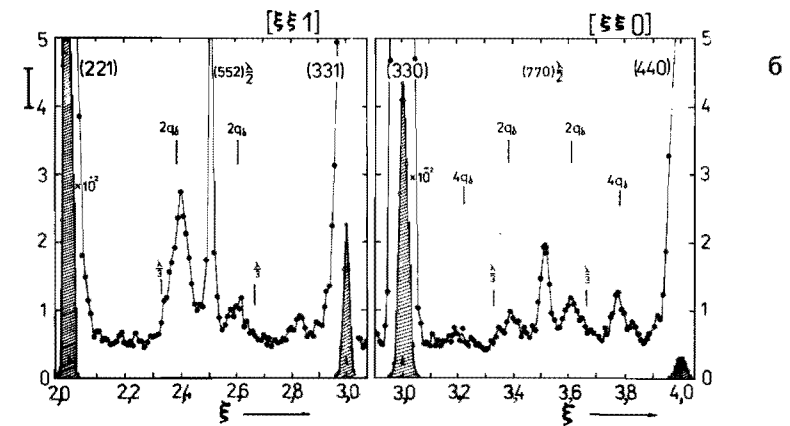
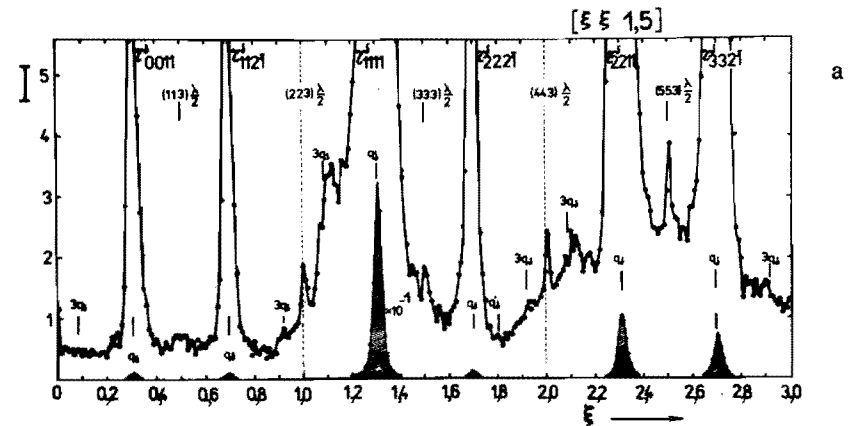


Рис. 2. TAS-спектр, измеренный при  $E_i = E_f = 13,8$  мэВ после температурной деполяризации кристалла вдоль направления  $\vec{Q} = (2\pi/a)(\xi\xi(a/c)l)$ : а) при  $0 \leq \xi \leq 3,0$  и  $l = 1,5$ . Видны интенсивные спутники 1-го ранга  $\vec{q}_\delta$  и спутники 3-го ранга  $3\vec{q}_\delta$ ; б) при  $2,95 \leq \xi \leq 4,05$  и  $l = 0$  (справа) и  $1,95 \leq \xi \leq 3,05$  и  $l = 1$  (слева). Видны очень интенсивные брэгговские пики  $(h k l)$  и спутники 2-го ранга  $2\vec{q}_\delta$ . Два пика  $4\vec{q}_\delta$  являются спутниками 4-го ранга.

несоизмеримая модуляция почти полностью исчезает (рис. 6). Температурная зависимость интегральной интенсивности  $(o o l)$ -рефлексов представлена на рис. 7. Наблюдаемые изменения, особенно сильное уменьшение интенсивности пиков  $(005)$  и  $(10 1 0)$ , а также наличие гистерезиса в зависимости интенсивности от температуры, позволяют предположить существование еще одного структурного фазового перехода в области между 500 и 773 К.

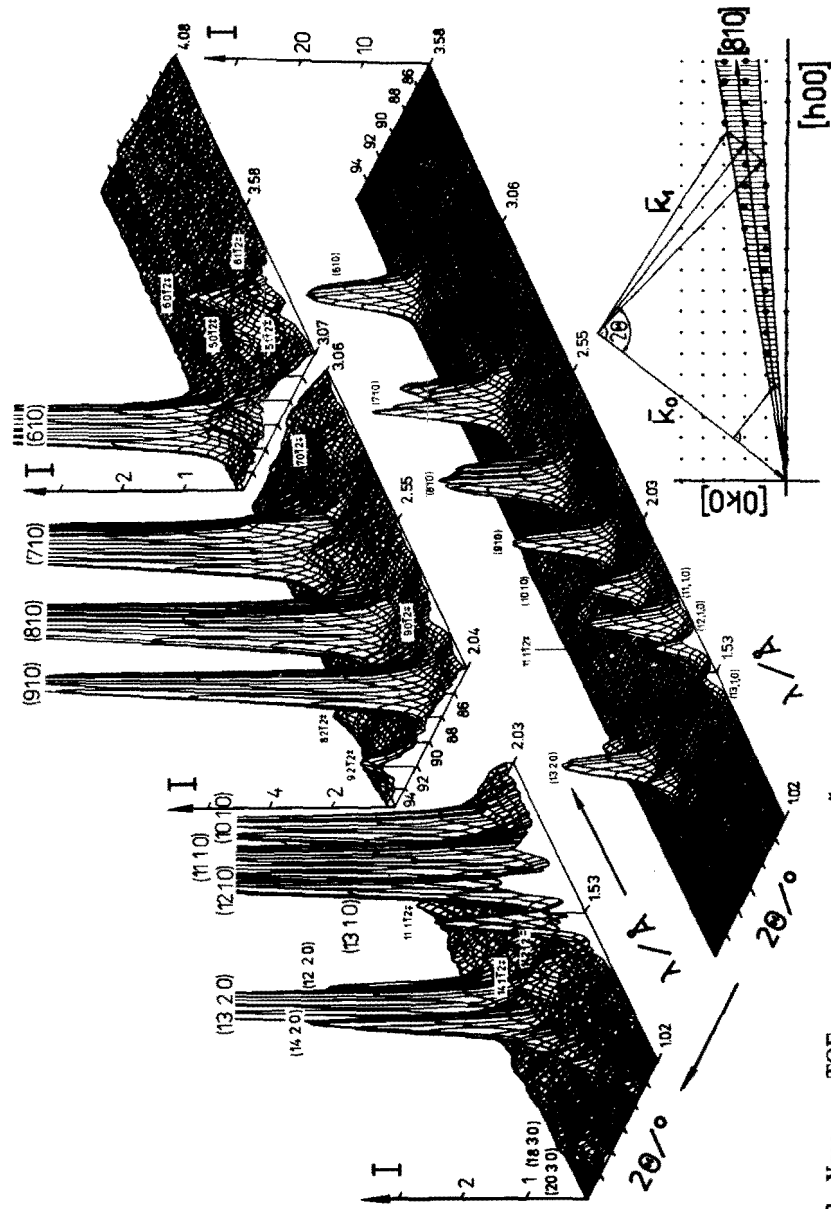


Рис. 3. Участок TOF-спектра, измеренный при комнатной температуре после деполяризации кристалла. На верхнем рисунке спектр представлен в большом масштабе. Диаграмма рассеяния показывает ориентацию сектора (810), ограниченного пределами  $\Delta\theta = \pm 2,5^\circ$  по углу Брэгга и  $0,102 \text{ нм} \leq \lambda \leq 0,408 \text{ нм}$  по длине волны. Сателлиты 2-го ранга обозначены через  $hkl2^\pm$ , брэгговские пики — через  $(hko)$ .

Рис. 4.  $(\Delta h, \Delta k)$  -карта позиций пиков  $(h + \Delta h, k + \Delta k, 0)$  TOF-спектра, показанного на рис. 3. Цифры — значения  $h$ , символы  $\circ, \square, \square$  и  $\Delta$  —  $k=0, 1, 2, 3$  соответственно. Точки на пересечении прерывистых линий — расчетные позиции четырех сателлитов 2-го ранга:  $2\vec{q}_\delta (\equiv 2\vec{q}_\delta^\pm), 2\vec{q}'_\delta (\equiv 2\vec{q}'_\delta), 2\vec{q}_\delta^\pm, 2\vec{q}'_\delta^\pm$ .

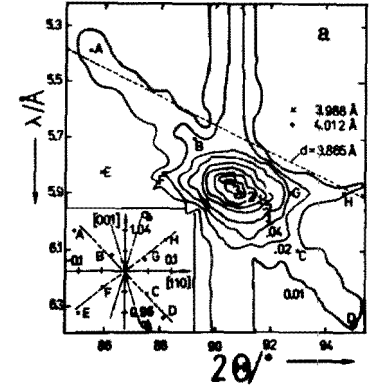
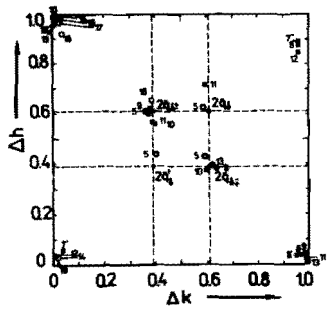


Рис. 5. Распределение интенсивности в узле (001) обратной решетки кристалла в координатах  $(2\theta, \lambda)$ . Два максимума расщепленного пика обозначены через  $\times$  и  $+$ . Прерывистая линия —  $d(2\theta, \lambda) = d_0 = 0,3865 \text{ нм}$ . а)  $T = 773 \text{ K}$ . Направления полос диффузного рассеяния помечены точками (A, B, ...), обозначенными и на вставке. Видно, что они не совпадают с направлениями несоизмеримой модуляции  $\vec{q}_\delta$  и  $\vec{q}'_\delta$ ; б) то же при  $T = 293 \text{ K}$  после температурной деполяризации кристалла.

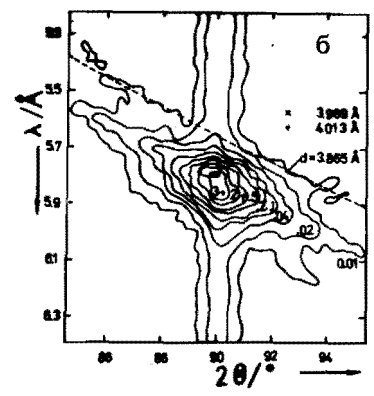


Рис. 6. Зависимость от температуры интегральной интенсивности сателлитов второго ранга (9, 2 1 2), брэгговских пиков (11 10) и (10 1 0) и двух компонент расщепленного пика (710). Вертикальная линия проведена для  $T = T_c$ .

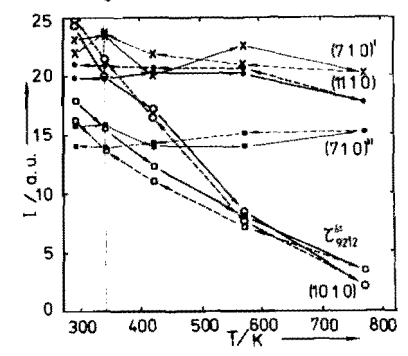
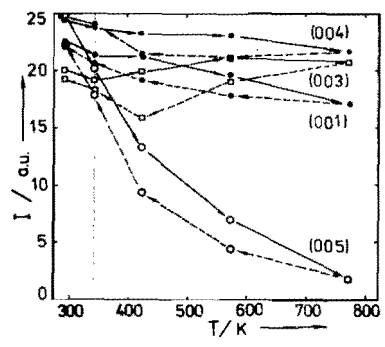


Рис. 7. Зависимость от температуры интегральной интенсивности некоторых  $(o o l)$  -пиков.

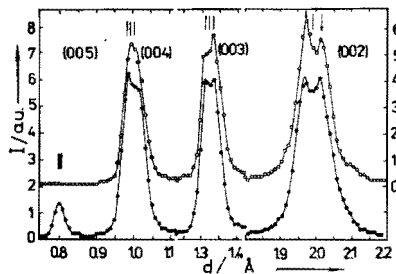


Рис. 8. Расщепление  $(00\ell)$ -пиков в TOF-спектре, измеренных при комнатной температуре ( $\bullet$ ) и  $T = 773$  К ( $\circ$ ). Положения боковых компонент определялись по пику (002), центральной компоненты — по пику (001).

Дополнительные подтверждения возникают при рассмотрении температурной зависимости параметров решетки. Вблизи  $T_c$  и при  $T = 500$  К наблюдаются аномалии, особенно заметные для параметра  $c$ , — температурный гистерезис и уменьшение его величины с ростом температуры. Однако точные измерения параметров решетки затруднены из-за расщепления пиков на компоненты (рис. 8).

### 3.3. Изменения структуры в ходе старения и под влиянием электрического поля

Если после температурной деполяризации кристалл в течение нескольких дней находится при комнатной температуре, то его дифракционная картина существенно изменяется. Пример такого изменения приведен на рис. 9, из которого видно, что после старения из основных

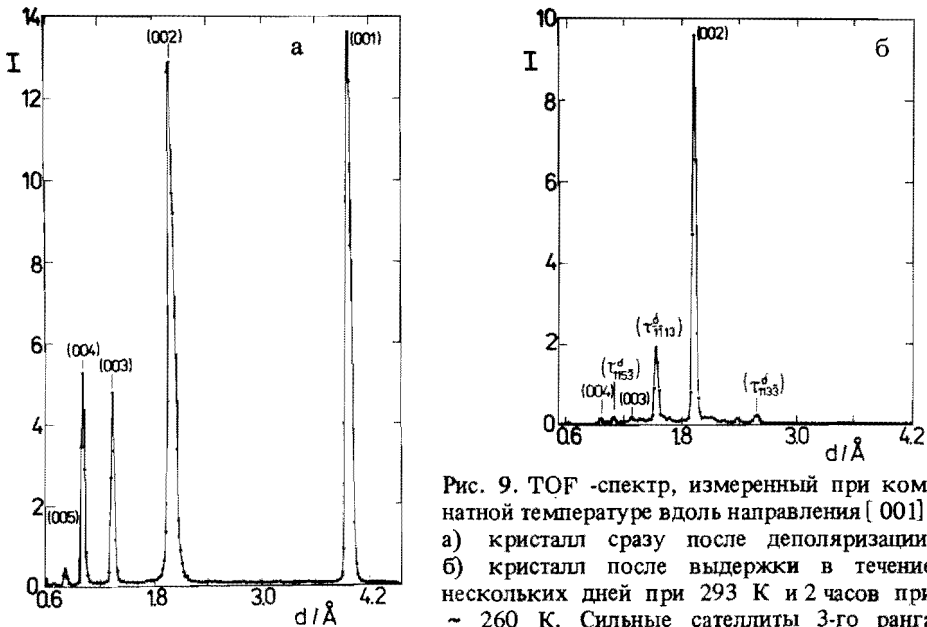
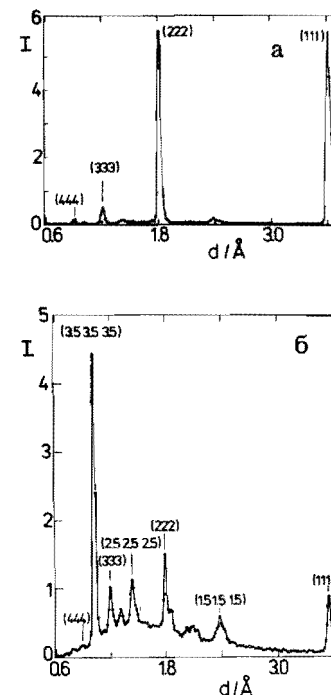


Рис. 9. TOF-спектр, измеренный при комнатной температуре вдоль направления  $[001]$ : а) кристалл сразу после деполяризации, б) кристалл после выдержки в течение нескольких дней при 293 К и 2 часов при  $\sim 260$  К. Сильные сателлиты 3-го ранга

расположены вблизи центральной линии сектора и видны в спектре вследствие интегрирования по конечному интервалу углов рассеяния. Примечательно исчезновение линии (001) в процессе старения.

Рис. 10. То же, что на рис. 9, для направления  $[111]$ : а) после температурной деполяризации, б) после кратковременной поляризации электрическим полем (3 кВ/см).



рефлексов интенсивным остался только пик (002). Интересно отметить, что в этом состоянии в плоскостях  $(h h \ell + \frac{1}{2})$  появляются сателлиты 3-го ранга  $(h h \ell 3)$ .

Поляризация кристалла в течение короткого времени (нескольких минут) полем  $E = 3$  кВ/см изменяет интенсивности пиков и вызывает появление новых основных, сверхструктурных и сателлитных пиков. Основные брэгговские пики в этом случае индцируются при значениях параметров  $a = 1,223 \pm 0,005$  нм,  $c = 0,386 \pm 0,002$  нм, но появление сверхструктурных пиков указывает, что ячейку надо удвоить по всем трем параметрам. Пики по направлениям  $[111]$  и  $[110]$ , отвечающие  $(h/2 k/2 \ell/2)$ -сверхструктуре, хорошо видны на TOF-спектрах (рис. 10 и 11). На TAS-спектрах наблюдались признаки  $(h/2 0 0)$ -пиков по направлению  $[100]$ , но вдоль  $c$ -оси сверхструктурные  $(0 0 \ell/2)$ -пики отсутствовали.

Трехмерное представление одного из TOF-спектров, содержащего сателлиты сверхструктурных рефлексов, приведено на рис. 12, из кото-

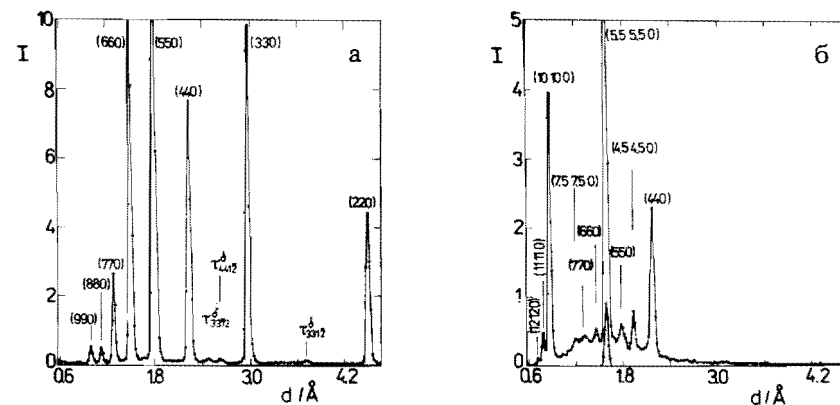


Рис. 11. То же, что на рис. 9, для направления  $[110]$ : а) после температурной деполяризации, б) после кратковременной поляризации (3 кВ/см) и выдержки (5 дней) при комнатной температуре.

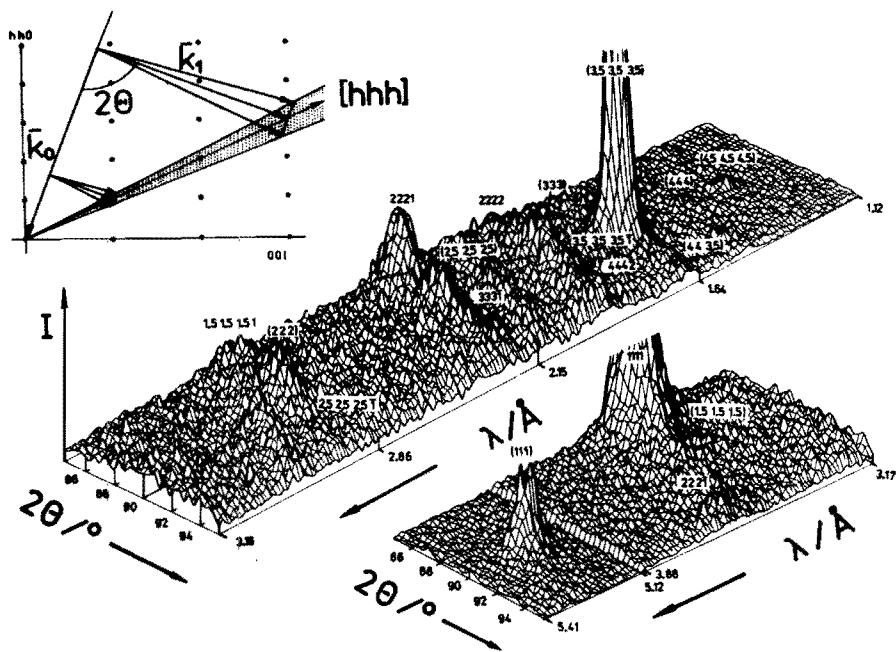


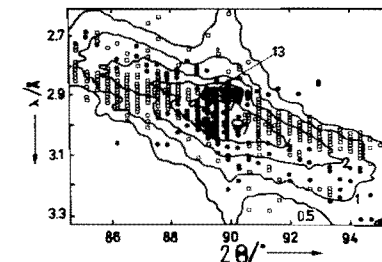
Рис. 12. Участок TOF-спектра, измеренный при комнатной температуре после приложения к кристаллу электрического поля 3 кВ/см. Вставка на рисунке иллюстрирует [111]-сектор, в котором велось измерение. Индексами в скобках обозначены пики соизмеримой фазы, индексами без скобок – спутники  $\begin{matrix} \delta \\ h h \ell m \end{matrix}$ .

рого видно, что в этом состоянии кристалла спутники четного и нечетного рангов уже не разделяются по разным сечениям обратной решетки. Появление спутников сверхструктурных рефлексов наблюдалось и на ТАС-спектрах вдоль  $\vec{Q} = (2\pi/a)(\xi \xi 0,5)$  при  $0 \leq \xi \leq 3,0$ , измеренных как с полем 3 кВ/см, так и после его снятия.

Влияние величины электрического поля на период несоизмеримой модуляции структуры вплоть до  $E = 3$  кВ/см оказалось слабым. Изменение параметра модуляции  $\Delta\delta/\Delta E = -0,01$  см/кВ было оценено по нескольким спутникам, но ошибка этой величины имеет такой же порядок.

Помимо вышеуказанных изменений дифракционных спектров электрическое поле вызывает быстрые релаксационные перестройки структуры. Области диффузного рассеяния вокруг узлов  $(00\ell)$ , особенно очень протяженная область вокруг  $(002)$ -пика, резко уменьшаются в размерах под действием поля. На рис. 13 показано, что это уменьшение сопровождается возрастанием интенсивности обеих компонент расщепленного  $(002)$ -пика. Выключение поля приводит к частичному

Рис. 13. Изменения интенсивности диффузного рассеяния в узле  $(002)$ , происходящие при наложении и снятии электрического поля. Сплошными линиями показаны контуры равной интенсивности, измеренные на кристалле после старения. При наложении поля ( $E \approx 3$  кВ/см) диффузное рассеяние уменьшается ( $\square$ ) вдаль и возрастает ( $\bullet$ ) вблизи брэгговского пика (плотность значков  $\square$  и  $\bullet$  качественно характеризует изменения). После снятия поля происходит частичное восстановление исходной картины.



восстановлению полос диффузного рассеяния. Другими заметными эффектами воздействия электрического поля являются увеличение интенсивности сверхструктурных пиков и изменение интенсивности отдельных брэгговских пиков с увеличением напряженности поля (возрастание  $(112)$ - и уменьшение  $(005)$ -пиков).

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ

Проведенные эксперименты показали, что соединение SBN-70 является весьма сложным "кристаллом". В нем присутствуют как соизмеримая сверхструктура, так и несоизмеримая модуляция, причем они проявляются по-разному в зависимости от предыстории образца и внешних условий.

Наши результаты по несоизмеримой модуляции хорошо согласуются с рентгеновскими данными<sup>5/</sup>: измеренные параметры модуляции совпадают в пределах ошибок, нет зависимости  $\delta$  от температуры и электрического поля. Сверхструктура типа  $(h/3 k/3 \ell/2)$ , обнаруженная в работе<sup>3/</sup>, скорее всего соответствует спутникам 1-го ранга, расположенным в точках  $(0,305 h, 0,305 k, \ell/2)$ . Постоянство  $\delta$  в интервале между комнатной температурой и 773 К свидетельствует о том, что несоизмеримая модуляция не связана с образованием сегнетоэлектрической фазы. Это подтверждает предположение<sup>5/</sup>, что она вызвана коллективным искажением кислородных октаэдров, причем возникновение поляризации из-за сдвига ниобия относительно кислородного каркаса происходит независимо от этого искажения. Существование спутников высших рангов указывает на модуляцию типа смещения, период модуляции составляет 0,763 нм.

Результаты, относящиеся к зависимости состояния SBN-70 от предыстории и внешних условий, по-видимому, имеют общий характер и хорошо согласуются с особенностями размытых фазовых переходов в неупорядоченных сегнетоэлектриках релаксационного типа, обсуждаемыми в работе<sup>8/</sup>, а именно: при температурах вблизи и ниже  $T_c$  в

кристалле образуются небольшие по размерам области полярной фазы. Это состояние сохраняется вплоть до  $T_t$  — температуры возникновения стабильных полярных свойств. В интервале от  $T_c$  до  $T_t$  увеличение объема областей полярной фазы с появлением дальнего порядка может быть индуцировано внешним электрическим полем. Сильное упругое диффузное рассеяние при  $T < T_c$  связано с наличием областей измененной структуры, вытянутых вдоль  $c$ -оси кристалла ( $\geq 6$  нм, по оценке<sup>/2/</sup>). Под воздействием электрического поля структурная перестройка, проявляющаяся в перекачке интенсивности из областей диффузного рассеяния в соседние брэгговские пики полярной фазы. Изменения интенсивности дифракционных пиков, особенно рост (112)-пика и сверхструктурных пиков, также указывают на увеличение объема, занятого новой фазой, с ростом напряженности электрического поля.

В восстановлении интенсивности диффузного рассеяния, которое наблюдается при снятии электрического поля в интервале  $T_t < T < T_c$ , проявляется нестабильность полярной фазы при этих температурах. Этот процесс является первой стадией переполаризации кристалла в поле противоположного знака<sup>/8/</sup>. Похожие изменения интенсивности диффузного рассеяния в зависимости от величины электрического поля наблюдались на кристалле SBN-70 и ранее<sup>/9/</sup>. Пока переключение поляризации кристаллов SBN не изучалось, но следует отметить, что методика времени пролета на импульсном источнике нейтронов обладает уникальными возможностями для постановки экспериментов такого рода.

Измеренное уменьшение параметров решетки  $a$  и  $c$  при фазовом переходе согласуется с сокращением ячейки вдоль  $a$ , но противоречит удлинению ее вдоль  $c$ , которые определены dilatометрически. Образование двухфазного состояния, возможно, объясняет это противоречие. Следует отметить, что величины параметров  $a$  и  $c$ , данные в<sup>/1/</sup>, попадают как раз в середину интервала между измеренными нами величинами для двух фаз SBN-70.

Для полярной фазы, вероятно, следует ввести новую решетку с осями по направлениям  $[110]$ ,  $[\bar{1}10]$  и  $[001]$  старой решетки. Величины новых параметров будут в этом случае  $\sqrt{2}a$  и  $2c$ . Именно такой выбор базиса используется для некоторых структур типа вольфрамовой бронзы<sup>/1/</sup>.

В наших экспериментальных результатах есть указания на еще один фазовый переход в SBN-70, существование которого предполагалось уже в<sup>/1/</sup>. Сегнетоэластическая природа этого перехода, как предполагается в<sup>/6/</sup>, могла бы объяснить расщепление дифракционных пиков. Однако неожиданное число компонент  $(00l)$ -пиков и сохранение расщепления при температурах много выше  $T_c$  противоречат такому предположению. Имеющиеся данные не позволяют, кроме того, определить, есть ли связь между этим новым фазовым переходом и постепенным исчезновением несоизмеримой модуляции при повышении температуры.

Авторы благодарны И.Бому и Р.Шальге за предоставление кристалла SBN, В.Л.Аксенову и К.Парлинскому за полезные обсуждения.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Jamieson P.B., Abrahams S.C., Bernstein J.L. — J. Chem. Phys., 1968, 48, p.5048.
2. Ревкевич Г.П. и др. — Кристаллография, 1979, 24, с.1079.
3. Ревкевич Г.П. и др. — Кристаллография, 1980, 23, с.1069.
4. Schneck J., Denoyer F. — Phys. Rev., 1981, B. 23, p.383.
5. Schneck J. et al. — Ferroelectrics, 1981, 36, p.327.
6. Arndt K., Tran Van Dung. KTB, Martin-Luther-Universität, 2(016), 41, Halle-Wittenberg, 1985.
7. Frank I.M., Pacher P. — Physica, 1983, 120B, p.37.
8. Schmidt G. KTB, Martin-Luther-Universität. 55(06), 83 (1979/2); 2(016), 24, Halle-Wittenberg, 1985; Schmidt G. et al. — phys. stat. sol. (a), 1981, 63, p.501.
9. Prokert F., Schalge R. — phys. stat. sol. (b), 1978, 87, p.179.

Рукопись поступила в издательский отдел  
27 января 1987 года.



## НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

Д9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
Д3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.
Д11-83-511	Труды совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
Д7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р. 55 к.
Д2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.
Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
Д2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р. 30 к.
Д1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р. 50 к.
Д17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. /2 тома/	7 р. 75 к.
Д10,11-84-818	Труды V Международного совещания по проблемам математического моделирования, программированию и математическим методам решения физических задач. Дубна, 1983	3 р. 50 к.
	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984 /2 тома/	13 р. 50 к.
Д4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра, Алушта, 1985.	3 р. 75 к.
Д11-85-791	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985.	4 р.
Д13-85-793	Труды XП Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна, 1985.	4 р. 80 к.
Д3,4,17-86-747	Труды У Международной школы по нейтронной физике. Алушта, 1986.	4 р. 50 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:  
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79  
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

Балагуров А.М., Прокерт Ф., Савенко Б.Н.

P14-87-38

Размытый фазовый переход  
и несоизмеримая модуляция структуры в кристалле  $Sr_{0.7}Ba_{0.3}Nb_2O_6$

В кристалле  $Sr_{0.7}Ba_{0.3}Nb_2O_6$  (структура типа тетрагональной вольфрамовой бронзы) на нейтронном дифрактометре по времени пролета и трехосном спектрометре нейтронов исследованы несоизмеримая модуляция структуры и явления, сопровождающие фазовый переход в сегнетоэлектрическое состояние. Измерения проведены при комнатной и повышенных температурах вплоть до 773 К. При  $T_{комн.}$  исследовано влияние приложенного к кристаллу электрического поля на его структуру. Размытый фазовый переход, происходящий в области  $T_c \approx 350$  К, наблюдается вначале только по возникновению полос диффузного рассеяния, сопровождающих пики  $(00\ell)$  и идущих перпендикулярно оси  $c^*$ . Постепенное формирование полярной фазы, происходящее при выдержке кристалла или под воздействием электрического поля, приводит к изменению параметров решетки кристалла и появлению сверхструктурных пиков  $(h/2 k/2 \ell/2)$ -типа. Существенное изменение интенсивности брэгговских пиков между 500 и 773 К указывает на существование еще одного фазового перехода.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод О.С.Виноградовой

Balagurov A.M., Prokert F., Savenko B.N.

P14-87-38

Phase Transition Effects and the Incommensurate Modulated  
Single Crystal of  $Sr_{0.7}Ba_{0.3}Nb_2O_6$

On the mixed crystal of tetragonal tungsten bronze type structure  $Sr_{0.7}Ba_{0.3}Nb_2O_6$  the incommensurate (IC) modulated structure and phase transition (PT) phenomena were investigated at room temperature (RT) and at four steps up to 773 K using the neutron time-of-flight diffractometry and at RT the triple-axis technique, too. At RT the influence of an electric poling field on the structure has been measured. At cooling below  $T_c$  a change of structure is indicated at first only by diffuse elastic scattering of streaks, widely extended perpendicularly to the  $c$  axis around  $(00\ell)$  reflections. The PT into the polar phase, which is influenced by aging and favoured by an electric poling field, becomes visible due to a change of the lattice parameters and the appearance of a  $(h/2 k/2 \ell/2)$  superstructure. The existence of another PT is indicated by a strong change of intensity of distinct Bragg reflections between 500 K and 773 K. A clear connection was not found between this PT and a reflection splitting in the spectra.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987