

## ОСОБЕННОСТИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ В НАНОРАЗМЕРНЫХ ПОРОШКАХ $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$

И.С. Головина<sup>1</sup>, В.П. Брыкса<sup>1</sup>, В.В. Стрельчук<sup>1</sup>,  
В.Е. Родионов<sup>1</sup>, В.В. Литвиненко<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт физики полупроводников имени В.Е. Лашкарева НАН Украины

<sup>2</sup>Институт электрофизики и радиационных технологий НАН Украины

Поступила в редакцию 04.10.2012

Впервые получены и исследованы Рамановские спектры нанопорошков твердого раствора  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ . Материал синтезирован по новой технологии. Температурные зависимости интенсивности, ширины и частоты мод  $\text{B}_1(\text{TO}_2)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_1)$ ,  $\text{B}_1(\text{TO}_3)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_3)$  и  $\text{B}_2(\text{TO}_3)$  тщательно проанализированы. Зарегистрировано существенное сужение температурного интервала, охватывающего все фазовые переходы, до  $100^\circ$ , от  $-130^\circ\text{C}$  до  $-30^\circ\text{C}$ , по сравнению с областью в  $500^\circ$ , от  $0^\circ\text{C}$  до  $475^\circ\text{C}$ , зарегистрированной в нанопорошках  $\text{KNbO}_3$ . Установлено, что температуры каждого из фазовых переходов сдвигаются различным образом, а именно: низкотемпературный переход осуществляется на  $20^\circ$  ниже, средний – на  $15^\circ$  выше, а сегнетоэлектрический переход происходит на  $20^\circ$  ниже температур соответствующих переходов в моно-кристаллах  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ .

**Ключевые слова:** фазовые переходы, Рамановская спектроскопия, наноразмерные порошки, танталат-ниобат калия.

Вперше отримані і досліджені Раманівські спектри нанопорошків твердого розчину  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ . Матеріал синтезовано по новій технології. Температурні залежності інтенсивності, ширини і частоти мод  $\text{B}_1(\text{TO}_2)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_1)$ ,  $\text{B}_1(\text{TO}_3)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_3)$  і  $\text{B}_2(\text{TO}_3)$  ретельно проаналізовані. Зареєстровано суттєве звуження температурного інтервалу, який охоплює всі фазові переходи, до  $100^\circ$ , від  $-130^\circ\text{C}$  до  $-30^\circ\text{C}$ , порівняно із областю  $500^\circ$ , від  $0^\circ\text{C}$  до  $475^\circ\text{C}$ , зареєстрованій у нанопорошках  $\text{KNbO}_3$ . Встановлено, що температури кожного із фазових переходів зсуваються по-різному, а саме: низькотемпературний перехід відбувається на  $20^\circ$  нижче, середній – на  $15^\circ$  вище, а сегнетоелектричний перехід происходит на  $20^\circ$  нижче температур відповідних переходів у монокристалах  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ .

**Ключові слова:** фазові переходи, Раманівська спектроскопія, нанорозмірні порошки, танталат-ніобат калію.

Raman spectra of the nanopowder solid solution  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$  were obtained and investigated for the first time. The compound was synthesized by a new technology. Temperature dependences of the in-tensity, width and frequency of the  $\text{B}_1(\text{TO}_2)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_1)$ ,  $\text{B}_1(\text{TO}_3)$ ,  $\text{A}_1(\text{TO}_3)$  and  $\text{B}_2(\text{TO}_3)$  modes are thoroughly analyzed. A significant narrowing of the temperature interval, including three phase transitions, is registered. The interval amounts  $100^\circ$ , from about  $-130^\circ\text{C}$  to  $-30^\circ\text{C}$ . In nanopowders  $\text{KNbO}_3$  the interval is almost  $500^\circ$ , from  $0^\circ\text{C}$  to  $475^\circ\text{C}$ . It was found that the temperatures of each of the phase transitions are shifted in different way, in particular: a low-temperature transition at  $20^\circ$  lower, the middle transition at  $10^\circ$  higher, and a ferroelectric phase transition occurs at  $10^\circ$  lower than the corresponding transitions in macrocrystals  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ .

**Keywords:** phase transitions, Raman spectroscopy, nanosized powders, potassium tantalate-niobate.

### ВВЕДЕНИЕ

Твердые растворы  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  (КТН) обладают большими квадратичным и линейным электро-оптическими коэффициентами, высокой диэлектрической проницаемостью, существенными пьезо- и пироэлектрическими характеристиками и поэтому являются востребованными оптическими материалами. В частности, они эффективны для таких при-

менений как модуляторы света, оптические волноводы, умножители частоты, высокоскоростные электрооптические сканеры и т.д. [1 – 6]. Также соединения КТН представляются альтернативными для замены свинец-содержащих материалов, которые в настоящее время используются в большинстве ультразвуковых приложений. Однако синтез монокристаллов КТН больших размеров трудно-

реализуем, что является сдерживающим фактором для их масштабных применений. В связи с этим развиваются новые технологии получения соединений КТН, такие как пленочные, а также микро- и нанокристаллические. И если первые две технологии уже имеют определенные наработки [7, 8] и даже сделаны первые попытки применений тонких пленок КТН [9], то наноразмерные порошки твердых растворов КТН были получены совсем недавно и только одной группой китайских исследователей. Описание синтеза этих образцов и структурные данные представлены в работах [10 – 12]. Однако свойства этих материалов еще не изучены. Таким образом, разработка новой технологии синтеза и изучение свойств нанопорошков твердых растворов КТН является в настоящее время актуальной задачей. Недавно нами были исследованы нанопорошки чистых соединений  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{KNbO}_3$ , синтезированные по технологии, разработанной группой А.А. Андрийко [13 – 17].

В настоящей работе по аналогичной технологии впервые синтезировано смешанное соединение  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ . Установлено, что полученные порошки имеют размеры меньше 100 нм и относятся, таким образом, к нанокристаллическим объектам. В первую очередь перед нами была поставлена задача установления температур фазовых переходов в синтезированных порошках. Это связано с тем, что размерные эффекты в пленках КТН проявляются, прежде всего, в смещении температур фазовых переходов. Особенно существенно знание температуры сегнетоэлектрического фазового перехода (т.е. температуры Кюри,  $T_c$ ), поскольку именно вблизи этого перехода данные материалы являются эффективными для практических применений. Для решения поставленной задачи был выбран метод комбинационного рассеяния света. Данный метод является наиболее подходящим при изучении порошковых объектов, поскольку, с одной стороны, он не требует получения высокоплотной керамики, в отличие от диэлектрической спектроскопии, а с другой, является довольно информативным. Нами проведено детальное исследование температурной зависимости спектров Рамановского

рассеяния на образцах  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ . Проведен анализ полученных данных. Установлены температуры фазовых переходов.

## МАТЕРИАЛ И ЭКСПЕРИМЕНТ

Как показано нами в предыдущих работах [13, 17], методика синтеза  $\text{KTaO}_3$  и  $\text{KNbO}_3$  путем окисления металлического тантала/ниобия в расплаве нитрата калия с добавлением гидроксида калия, позволяет получать наноразмерные порошки. В настоящей работе по аналогичной методике был проведен синтез порошков твердых растворов  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  при концентрации ниобия  $x = 0.3$ . Массы исходных компонентов:  $m_{\text{Ta}} = 0.82$  г,  $m_{\text{Nb}} = 0.18$  г,  $m_{\text{KOH}} = 0.44$  г,  $m_{\text{KNO}_3} = 6.53$  г. Навески этих компонентов синтеза смешивали и измельчали. Затем смесь помещалась в печь и плавилась при 600 °С в течении 1.5 часов. Полученный расплав размывался, декантировался, осадок высушивался на открытом воздухе при температуре 100 °С.

Состав продукта исследовали методом рентгенофазового анализа на дифрактометре ДРОН-3М в  $\text{Cu}_{\text{Ka}}$  излучении. Полученные результаты подтвердили образование соединения  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$  и отсутствие примесных фаз.

Размеры кристаллитов оценивались из дифрактограммы по формуле Дебая-Шеррера:

$$d = \frac{0,9\lambda}{B \cos \Theta}, \quad (1)$$

где  $\lambda = 0,1542$  нм – длина волны рентгеновского излучения,  $B$  – полуширина дифракционного максимума в радианах,  $\Theta$  – угол, который соответствует положению дифракционной линии на рентгенограмме. Расчеты показали, что средний размер кристаллитов составляет 70 – 90 нм.

Измерения спектров комбинационного рассеяния проводились на Рамановском спектрометре Jobin-Yvon/Horiba T64000, оснащенный конфокальным микроскопом (объектив  $\times 50$ ,  $NA = 0.60$ ) и детектором CCD. В качестве источника возбуждения Рамановских спектров использовался  $\text{Ag}^+/\text{K}_g^+$  лазер с длиной волны 514.5 нм и подаваемой мощностью, не превышающей 3 мВт. Температурные зависимости спектров получены с помощью термо-

электрической ячейки Linkam TMS 94. Температура изменялась от  $-190\text{ }^{\circ}\text{C}$  до  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  с интервалом  $5\text{ }^{\circ}\text{C}$  и скоростью  $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{мин}$ . Точность стабилизации температуры составляла  $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Как было установлено Триевассером [18], в макрокристаллах  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  (при  $x > 0.2$ ) происходит следующая последовательность фазовых переходов (при понижении температуры): Кубическая (К)  $\rightarrow$  Тетрагональная (Т)  $\rightarrow$  Орторомбическая (О)  $\rightarrow$  Ромбоэдрическая (Р), где К-фаза является параэлектрической, а Т-, О- и Р-фазы являются сегнетоэлектрическими. На рис. 1 представлены полученные нами Рамановские спектры, характерные для разных структурных состояний нанропоршка  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ . В низкотемпературной ромбоэдрической фазе наблюдаются поперечные и продольные фононные моды  $V_1(\text{TO}_2)$ ,  $A_1(\text{TO}_1)$ ,  $V_1(\text{TO}_3)$ ,  $A_1(\text{TO}_3)$ ,  $V_2(\text{TO}_3)$  и  $A_1(\text{LO}_3)$ . Аналогичные, но более узкие линии фононного спектра наблюдались на кристаллах твердых растворов КТН в работе [19]. Для дальнейшего исследования нами выбраны поперечные оптические (ТО) моды фононного спектра, поскольку именно они чувствительны к перестройке структуры при фазовых переходах в КТН. На рис. 1 буквами А и В обозначены моды  $V_1(\text{TO}_2)$  и  $A_1(\text{TO}_1)$ , соот-

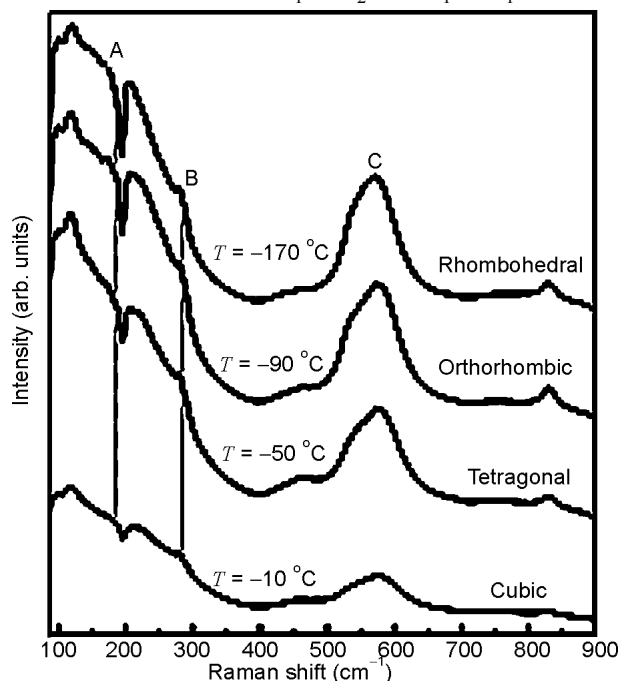


Рис. 1. Спектры Рамановского рассеяния нанропоршка  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ , полученные при разных температурах.

ответственно, а буквой С обозначена широкая ветвь, содержащая перекрывающиеся линии мод  $V_1(\text{TO}_3)$ ,  $A_1(\text{TO}_3)$  и  $V_2(\text{TO}_3)$  (рис. 2).

Известно, что при структурных фазовых переходах происходит конденсация фононных мод, участвующих в перестройке структуры, причем при переходе из пара- в сегнетоэлектрическую фазу под “конденсацией мягкой моды” обычно понимается конденсация самой низкочастотной поперечной оптической моды фононного спектра [20]. В исследуемом объекте наблюдение за сегнетоэлектрическим фазовым переходом проводится по моде  $V_1(\text{TO}_2)$ , обозначенной нами буквой А. Два структурных перехода определяются по конденсации мод  $A_1(\text{TO}_1)$  и  $V_1(\text{TO}_3)$ . Как видно из рис. 1, линии этих трех мод уширяются одновременно с изменением частоты при повышении температуры. Однако, в отличие от линий А и В, за изменением ширины и частоты моды  $V_1(\text{TO}_3)$  проследить довольно трудно из-за перекрытия этой моды с линиями мод  $A_1(\text{TO}_3)$  и  $V_2(\text{TO}_3)$ . Поэтому перед анализом температурной зависимости спектра нами было проведено разложение широкой ветви (обозначенной буквой С на рис. 1) экспериментального спектра на три одиночные лоренциана, соответствующие модам  $V_1(\text{TO}_3)$ ,  $A_1(\text{TO}_3)$  и  $V_2(\text{TO}_3)$  (рис. 2).

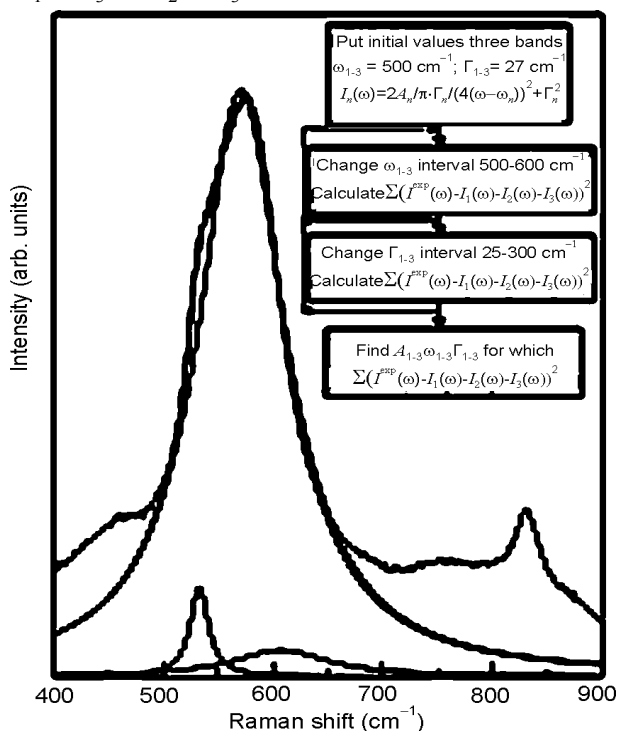


Рис. 2. Разложение широкой ветви экспериментального спектра в области  $450 - 750\text{ cm}^{-1}$  на три одиночные лоренциана.

На вставке рис. 2 показан алгоритм разложения сложного экспериментального контура. На первом этапе разложения устанавливается интервал ожидаемых значений ширины ( $\Gamma_n$ ) и частоты ( $\omega_n$ ) искомым фононным мод. Затем табулированием  $\Gamma_n$  и  $\omega_n$  внутри выбранного интервала вычисляются стандартные отклонения значений смоделированной суммы контуров от экспериментальных значений. На последнем этапе алгоритма среди всех протабулированных значений  $\Gamma_n$  и  $\omega_n$  находится такое разложение сложного контура, для которого стандартное отклонение является минимальным. Этим определяется точность и однозначность разложения. Описанная процедура проводилась для каждой экспериментальной температуры. Таким образом, были получены температурные зависимости интенсивности, ширины и частоты каждого одиночного лоренциана, соответствующие модам  $B_1(TO_3)$ ,  $A_1(TO_3)$  и  $B_2(TO_3)$ . Поскольку выше  $30^\circ\text{C}$  никаких существенных аномалий не наблюдалось, эти зависимости представлены на рис. 3 в интервале температур от  $-200$  до  $30^\circ\text{C}$ . Проанализируем полученные зависимости. В первую очередь отметим, что конденсация моды  $B_1(TO_3)$  приводит к полному ее исчезновению (ее интегральная интенсивность становится нулевой) при температуре около  $-50^\circ\text{C}$ . Выше этой температуры данная мода становится ненаблюдаемой. Однако интегральная интенсивность уменьшается с повышением температуры немонотонно. В области примерно  $-67^\circ\text{C}$  можно видеть небольшой максимум, а затем плавное уменьшение интенсивности вплоть до полного исчезновения линии. Ширина этой моды практически не меняется при низких температурах, однако при  $-100^\circ\text{C}$  начинает увеличиваться вплоть до исчезновения линии при  $-50^\circ\text{C}$ , однако в области  $-67^\circ\text{C}$  также отмечается небольшой перегиб. Частота моды  $B_1(TO_3)$  практически не меняется во всем интервале температур от  $-200$  до  $30^\circ\text{C}$ , проявляя монотонное уменьшение, т.е. можно констатировать устойчивую конденсацию данной моды. Мода  $A_1(TO_3)$  наблюдается во всем интервале температур от  $-200$  до  $30^\circ\text{C}$ , однако в трех областях имеются заметные пе-

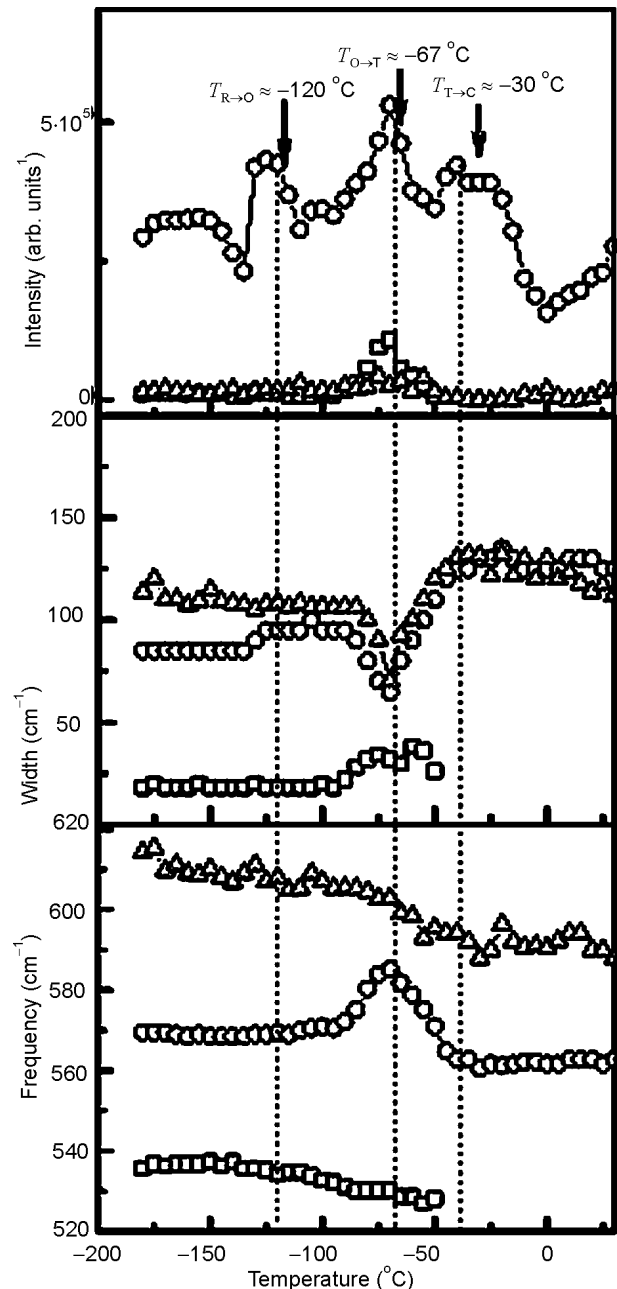


Рис. 3. Температурные зависимости интегральной интенсивности, ширины и частоты поперечных оптических мод  $B_1(TO_3)$  (квадраты),  $A_1(TO_3)$  (кружочки) и  $B_2(TO_3)$  (треугольники).

регибы в температурной зависимости интенсивности. Примерные середины этих областей соответствуют температурам  $-120$ ,  $-67$  и  $-30^\circ\text{C}$ . Ширина линии существенно не меняется от  $-200$  до  $-135^\circ\text{C}$ . При дальнейшем повышении температуры наблюдается сначала увеличение ширины в области от  $-130$  до  $-120^\circ\text{C}$ , затем перегиб в сторону уменьшения в области от  $-87$  до  $-67^\circ\text{C}$  и еще один перегиб снова в сторону увеличения ширины в области от  $-67$  до  $-30^\circ\text{C}$ . Выше  $-30^\circ\text{C}$

ширина практически не меняется. Частота линии испытывает два перегиба. В области от  $-100$  до  $-67$  °С наблюдается увеличение частоты, после чего в области от  $-67$  до  $-30$  °С происходит довольно сильное уменьшение. Выше  $-30$  °С частота практически не меняется. Мода  $V_2(TO_3)$  также наблюдается во всем исследуемом температурном интервале, однако ее интегральная интенсивность существенно не меняется, за исключением незначительного перегиба в области  $-67$  °С. Ширина данной моды также испытывает перегибы в двух областях: в сторону резкого уменьшения в области от  $-87$  до  $-67$  °С, а затем в сторону увеличения в области от  $-67$  до  $-30$  °С, аналогично поведению ширины моды  $A_1(TO_3)$ . Вероятно, данная мода слабо связана с низкотемпературным структурным переходом  $P \rightarrow T$  и является чувствительной к фазовым переходам  $O \rightarrow T$  и  $T \rightarrow K$ .

Теперь рассмотрим температурное поведение моды  $V_1(TO_2)$ , т.е. линии А на рис. 1. Зависимость интегральной интенсивности этой линии от температуры представлена на рис. 4. При низких температурах наблюдается практически монотонное уменьшение интенсивности. Затем, примерно с  $-130$  °С, наблюдается увеличение интенсивности, а выше  $-70$  °С – снова уменьшение, и, наконец, выше  $-30$  °С интенсивность становится практически нулевой. Таким образом, можно отметить, что данная мода чувствительна ко всем трем переходам, поскольку в области температур, охватывающей все переходы, т.е. от  $-130$  °С

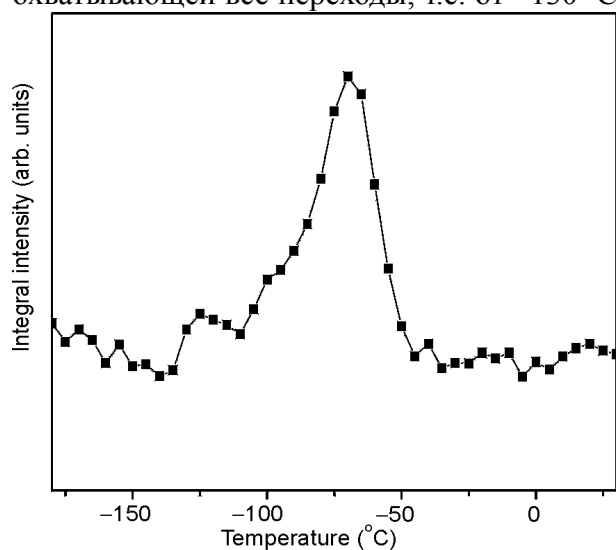


Рис. 4. Температурная зависимость интегральной интенсивности моды  $V_1(TO_2)$ .

до  $-30$  °С, наблюдается немонотонное изменение интенсивности. При этом очевидно, что температура  $T_c = -30$  °С соответствует сегнетоэлектрическому фазовому переходу. Нужно заметить, что в изучаемых спектрах твердого раствора  $KTa_{0.7}Nb_{0.3}O_3$  не наблюдается явное размытие фазовых переходов. Широкий температурный интервал фазовых переходов, охватывающий от  $60^\circ$  до  $100^\circ$ , наблюдался в спектрах нанопорошков  $KNbO_3$ , исследуемых нами ранее [17]. Мы полагаем, что такая ширина (продолжительность) фазового перехода свидетельствует о большом разбросе частиц нанопорошка по размерам. Другими словами, этот интервал отражает влияние размера частицы на температуру Кюри, так что имеется целый набор температур Кюри, каждая из которых относится к частицам определенного размера. Эффект размытия фазового перехода из-за разброса частиц по размерам был отмечен также в работе [21] при исследовании микропорошков  $KNbO_3$ . Авторы объясняют это тем, что разные монодомены вблизи поверхности меняют свою ориентацию при разной температуре. Возвращаясь к исследуемым в данной работе спектрам смешанного соединения  $KTa_{0.7}Nb_{0.3}O_3$ , мы видим, что температурная область, охватывающая все три фазовые переходы, составляет около  $100^\circ$ , примерно от  $-130$  °С до  $-30$  °С. В  $KNbO_3$  эта область простиралась почти на  $500^\circ$ : средняя температура нижнего перехода составляла  $0$  °С, а верхнего  $475$  °С. Такое сильное сужение температурной области фазовых переходов, конечно, не позволяет увидеть в спектрах эффект размытия каждого перехода. Поэтому здесь мы не можем с определенностью говорить о степени разброса частиц порошка по размерам. В температурной зависимости частоты моды  $V_1(TO_2)$  можно отметить ее незначительное монотонное уменьшение. Однако при температурах выше  $-120$  °С проследить за изменением частоты практически невозможно из-за перекрытия этой линии с другими линиями спектра.

Наконец, относительно поведения моды  $A_1(TO_1)$ , т.е. линии В на рис. 1, можно сказать следующее. Интегральная интенсивность этой линии довольно быстро уменьшается при повышении температуры и выше

–120 °C данная мода становится ненаблюдаемой. Нужно отметить, что ширина этой линии, даже в низкотемпературной области, существенно больше ширины аналогичной моды, наблюдаемой нами в нанопорошке  $\text{KNbO}_3$ , что связано, скорее всего, с разупорядочением структуры в твердом растворе.

## ВЫВОДЫ

Проведенный анализ температурного поведения поперечных оптических мод фонового спектра нанопорошков  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$  позволяет сделать следующее заключение. Характерные перегибы в температурных зависимостях спектроскопических параметров свидетельствуют о трех структурных перестройках в исследуемых порошках. Эти перестройки охватывают небольшой интервал температур, около 100° примерно от –130 °C до –30 °C. Середины этих интервалов соответствуют температурам –120, –67 и –30 °C. Температуры соответствующих структурных переходов в макрокристаллах  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$  составляют –100 °C, –80 °C и –20 °C. Следовательно, температуры каждого из фазовых переходов сдвигаются различным образом, а именно: низкотемпературный переход осуществляется на 20° ниже, средний – приблизительно на 15° выше, а сегнетоэлектрический фазовый переход происходит на 10° ниже по сравнению с температурами соответствующих переходов в макрокристаллах  $\text{KTa}_{0.7}\text{Nb}_{0.3}\text{O}_3$ .

## ЛИТЕРАТУРА

1. Cohen M.G., Gordon E.I. Electro-optic [ $\text{KTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$  (KTN)] gratings for light beam modulation and deflection//Appl. Phys. Lett. – 1964. – Vol. 5. – P. 181-182.
2. Chen F.S., Geusic J.E., Kurtz S.K., Skinner J.G., Wemple S. H. Light Modulation and Beam Deflection with Potassium Tantalate-Niobate Crystals//J. Appl. Phys.– 1966. Vol. 37.– P. 388-398.
3. John A. van Raalte, Electro-Optic Effect in Ferroelectric KTN//J. Opt. Soc. Am. – 1967. – Vol. 57. – P. 671-672.
4. Fox A.J. Nonlinear longitudinal KTN modulator //Appl. Opt. – 1975. – Vol. 14. – P. 343-352.
5. Yilmaz S., Venkatesan T., Gerhard-Multhaupt R. Pulsed laser deposition of stoichiometric potas-

- sium-tantalate niobate films from segmented evaporation targets//Appl. Phys. Lett. – 1991. – Vol. 58. – P. 2479-2484.
6. Wang X.P., Wang J.Y., Zhang H.J., Yu Y.G., Wu J., Gao W.L., Boughton R.I. Thermal properties of cubic  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  crystals//Journal of Applied Physics. – 2008. – Vol. 103. – P. 033513.
7. Bartasyte A., Kreisel J., Peng W., Guilloux-Viry M. Temperature-dependent Raman scattering of  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  thin films//Appl. Phys. Lett. – 2010. – Vol. 96. – P. 262903.
8. Specht E.D., Christen H.-M., Norton D.P., Boatner L.A. X-Ray Diffraction Measurement of the Effect of Layer Thickness on the Ferroelectric Transition in Epitaxial  $\text{KTaO}_3/\text{KNbO}_3$  Multilayers//Phys. Rev. Lett. – 1998. – Vol. 80. – P. 4317-4320.
9. Korsah K., Kisner R., Boatner L., Christen H., Paris D. Preliminary investigation of KTN as a surface acoustic wave infrared/thermal detector //Sens. Actu. A.– 2005.– Vol. 119. – P. 358-364.
10. Zheng K.Y., Wei N., Yang F.X., Zhang D.M., Qi Y.J.  $\text{KTa}_{0.4}\text{Nb}_{0.6}\text{O}_3$  nanoparticles synthesized through solvothermal method//Front. Phys. China. – 2007. – Vol. 2. – P. 436-439.
11. Hu Y.M., Gu H.S., Hu Z., Di W., Yuan Y., You J., Cao W., Wang Y., Chan H.L.W. Controllable Hydrothermal Synthesis of  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  Nanostructures with Various Morphologies and Their Growth Mechanisms//Cryst. Grow. Design. – 2008. – Vol. 8. – P. 832-837.
12. Hu Y.M., Gu H.S., Zhou D., Wang Z., Chan H.L.W., Wang Y. Orientation-Control Synthesis of  $\text{KTa}_{0.25}\text{Nb}_{0.75}\text{O}_3$  Nanorods//J. Am. Ceram. Soc. – 2010. – Vol. 93. – P. 609-613.
13. Андрійко О.О., Коваленко І.В., Черненко, Л.В. Хайнаков С.А., Головіна І.С., Гейфман І.Н., Лисін В.І. Синтез нанокристалічного метатанталату калію в середовищі розплавлених нітратів//Наукові вісті НТТУ “КПІ”. – 2008. – № 1 (57). – С. 117-122.
14. Golovina I.S., Kolesnik S.P., Geifman I.N., Andriiko A.A. Dielectric Properties and Electron Paramagnetic Resonance Of Nanocrystalline Potassium Tantalate//Ferroelectrics. – 2011. – Vol. 416:1. – P. 133-138.
15. Golovina I.S., Kolesnik S.P., Bryksa V., Strelchuk V., Yanchuk I.B., Geifman I.N., Khainakov S.A., Svechnikov S.V., Morozovska A.N. Defect driven ferroelectricity and magnetism in nanocrystalline  $\text{KTaO}_3$ //Physica B: Condens. Matter. – 2012. – Vol. 407. – P. 614-623.

16. Головіна І.С., Гейфман І.Н., Прокопів М.М. Особливості діелектричних і магнітно-резонансних характеристик нанокристалічного танталату калію//УФЖ. – 2012. – Т. 57, № 1. – С. 63-70.
17. Golovina I.S., Bryksa V.P., Strelchuk V.V., Zolotovskiy A.A., Geifman I.N., Andriiko A.A. Size effects in the temperatures of phase transitions in  $\text{KNbO}_3$  nanopowder//Journal of Advanced Dielectrics (submitted).
18. Triebwasser S. Study of Ferroelectric Transitions of Solid-Solution Single Crystals of  $\text{KNbO}_3$ - $\text{KTaO}_3$ //Phys. Rev. – 1959. – Vol. 114. – P. 63-70.
19. Kugel G.E., Mesli H., Fontana M.D., Rytz D. Experimental and theoretical study of the Raman spectrum in  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  solid solutions//Phys. Rev. B. – 1988. – Vol. 37. – P. 5619-5628.
20. Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. – М.: Мир, 1981. – 736 с.
21. Baier-Saip A., Ramos-Moor E., Cabrera A.L. Raman study of phase transitions in  $\text{KNbO}_3$ //Solid State Communications. – 2005. – Vol. 135. – P. 367-372.
8. Specht E.D., Christen H.-M., Norton D.P., Boatner L.A. X-Ray Diffraction Measurement of the Effect of Layer Thickness on the Ferroelectric Transition in Epitaxial  $\text{KTaO}_3/\text{KNbO}_3$  Multilayers//Phys. Rev. Lett. – 1998. – Vol. 80. – P. 4317-4320.
9. Korsah K., Kisner R., Boatner L., Christen H., Paris D. Preliminary investigation of KTN as a surface acoustic wave infrared/thermal detector //Sens. Actu. A.– 2005.– Vol. 119. – P. 358-364.
10. Zheng K.Y., Wei N., Yang F.X., Zhang D.M., Qi Y.J.  $\text{KTa}_{0.4}\text{Nb}_{0.6}\text{O}_3$  nanoparticles synthesized through solvothermal method//Front. Phys. China. – 2007. – Vol. 2. – P. 436-439.
11. Hu Y.M., Gu H.S., Hu Z., Di W., Yuan Y., You J., Cao W., Wang Y., Chan H.L.W. Controllable Hydrothermal Synthesis of  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  Nanostructures with Various Morphologies and Their Growth Mechanisms//Cryst. Grow. Design. – 2008. – Vol. 8. – P. 832-837.
12. Hu Y.M., Gu H.S., Zhou D., Wang Z., Chan H.L.W., Wang Y. Orientation-Control Synthesis of  $\text{KTa}_{0.25}\text{Nb}_{0.75}\text{O}_3$  Nanorods//J. Am. Ceram. Soc. – 2010. – Vol. 93. – P. 609-613.
13. Andriiko O.O., Kovalenko I.V., Chernenko, L.V. Hajnakov S.A., Golovina I.S., Geifman I.N., Lisin V.I. Sintez nanokristalichnogo metatantalatu kaliyu v seredovischi rozplavljenih nitrativ//Naukovi visti NTTU “KPI”. – 2008. – № 1 (57). – S. 117-122.
14. Golovina I.S., Kolesnik S.P., Geifman I.N., Andriiko A.A. Dielectric Properties and Electron Paramagnetic Resonance Of Nanocrystalline Potassium Tantalate//Ferroelectrics. – 2011. – Vol. 416:1. – P. 133-138.
15. Golovina I.S., Kolesnik S.P., Bryksa V., Strelchuk V., Yanchuk I.B., Geifman I.N., Khainakov S.A., Svechnikov S.V., Morozovska A.N. Defect driven ferroelectricity and magnetism in nanocrystalline  $\text{KTaO}_3$ //Physica B: Condens. Matter. – 2012. – Vol. 407. – P. 614-623.
16. Golovina I.S., Geifman I.N., Prokopiv M.M. Osoblivosti dielektrichnih i magnitno-rezonansnih karakteristik nanokristalichnogo tantalatu kaliyu //UFZh. – 2012. – Т. 57, № 1. – С. 63-70.
17. Golovina I.S., Bryksa V.P., Strelchuk V.V., Zolotovskiy A.A., Geifman I.N., Andriiko A.A. Size effects in the temperatures of phase transitions in  $\text{KNbO}_3$  nanopowder//Journal of Advanced Dielectrics (submitted).
18. Triebwasser S. Study of Ferroelectric Transitions of Solid-Solution Single Crystals of  $\text{KNbO}_3$ - $\text{KTaO}_3$ //Phys. Rev. – 1959. – Vol. 114. – P. 63-70.

## LITERATURA

1. Cohen M.G., Gordon E.I. Electro-optic [ $\text{KTa}_x\text{Nb}_{1-x}\text{O}_3$ (KTN)] gratings for light beam modulation and deflection//Appl. Phys. Lett. – 1964. – Vol. 5. – P. 181-182.
2. Chen F.S., Geusic J.E., Kurtz S.K., Skinner J.G., Wemple S. H. Light Modulation and Beam Deflection with Potassium Tantalate-Niobate Crystals//J. Appl. Phys.–1966.– Vol. 37.– P. 388-398.
3. John A. van Raalte, Electro-Optic Effect in Ferroelectric KTN//J. Opt. Soc. Am. – 1967. – Vol. 57. – P. 671-672.
4. Fox A.J. Nonlinear longitudinal KTN modulator//Appl. Opt. – 1975. – Vol. 14. – P. 343-352.
5. Yilmaz S., Venkatesan T., Gerhard-Multhaupt R. Pulsed laser deposition of stoichiometric potassium-tantalate niobate films from segmented evaporation targets//Appl. Phys. Lett. – 1991. – Vol. 58. – P. 2479-2484.
6. Wang X.P., Wang J.Y., Zhang H.J., Yu Y.G., Wu J., Gao W.L., Boughton R.I. Thermal properties of cubic  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  crystals//Journal of Applied Physics. – 2008. – Vol. 103. – P. 033513.
7. Bartaszyte A., Kreisel J., Peng W., Guilloux-Viry M. Temperature-dependent Raman scattering of  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  thin films//Appl. Phys. Lett. – 2010. – Vol. 96. – P. 262903.

19. Kugel G.E., Mesli H., Fontana M.D., Rytz D. Experimental and theoretical study of the Raman spectrum in  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  solid solutions//Phys. Rev. B. – 1988. – Vol. 37. – P. 5619-5628.
20. Lajns M., Glass A. Segnetoelektriki i rodstvennye im materialy. – M.: Mir, 1981. – 736 s.
21. Baier-Saip A., Ramos-Moor E., Cabrera A.L. Raman study of phase transitions in  $\text{KNbO}_3$ //Solid State Communications. – 2005. – Vol. 135. – P. 367-372.