

Моделирование токов поляризации сегнетокерамики, возникающих при одновременном приложении электрического поля и механических напряжений

Л.В. Жога¹, В.В. Коренева²

¹Волгоградский государственный технический университет

²Волгоградская государственная академия физической культуры

Аннотация: Исходя из модели движения доменных границ и реологической модели, получены уравнения зависимости поляризации от приложенной механической, электрической или одновременной электромеханической нагрузки. Показано, что нелинейность тока в сегнетокерамике обусловлена зависимостью коэффициентов модели от тока сквозной проводимости и тока, связанного с эмиссией зарядов из ловушек. Полученные коэффициенты позволяют переходить от поляризации (макроскопического параметра) к доменным границам (мезоскопическому масштабу). Параметры модели зависят от изменения доменной структуры, ее взаимодействия с дефектами, поэтому время релаксации тока в сегнетокерамике описаны изменением соответствующих времен для 180° - доменов и не 180° - доменов. Выбранная реологическая модель и подход с учетом механизмов движения доменных границ даст возможность описывать скорость изменения поляризации, используя поведение дефектов (дислокаций, доменных границ). Модель позволит с единой точки зрения описать экспериментальные закономерности поведения токов, при электромеханическом воздействии.

Ключевые слова: сегнетокерамика, компьютерное моделирование, реологическая модель, ток поляризации, плотность тока поляризации, доменная граница, 180° - домены, не 180° - домены, механическая нагрузка, электрическая нагрузка, время релаксации.

Введение. Сегнетоэлектрические материалы находят широкое применение во многих областях современной техники: гидроакустике, оптике, радио- и измерительной технике [1, 2]. Условия эксплуатации поликристаллических диэлектриков во внешних механических и электрических полях делают актуальным исследование свойств таких материалов и их устойчивости к экстремальным нагрузкам, которая зависит от процессов переполяризации и динамики доменной структуры.

Для исследования кинетики переключения поляризации в сегнетоэлектриках применяется метод анализа переходных токов, возникающих при приложении импульсов электрического поля и содержащих информацию о закономерностях эволюции доменной структуры

[3]. Для поликристаллических сегнетоэлектриков этот метод, по-видимому, является единственно возможным, поскольку возможности прямого наблюдения движения доменов крайне ограничены, но в связи с этим, актуальна задача моделирования свойств сегнетоэлектриков, вклада движения различных доменных границ (ДГ) в переходный ток при воздействии не столько одного электрического поля (ЭП) или механической нагрузки (МН), сколько при приложении этих нагрузок одновременно.

Методика моделирования. Уравнения зависимости поляризации от приложенной нагрузки можно получить исходя из модели движения доменных границ под действием электрического поля, описанной для сегнетоэлектриков [4]:

$$\eta_1 \dot{x}_1 + k_1 x_1 = 2P_s E \quad (1)$$

$$F \operatorname{sgn}(\dot{x}_2) + k_2 x_2 = 2P_s E, \quad (2)$$

где η и F – эффективные коэффициенты вязкого и сухого трения, соответственно, k_1 и k_2 – эффективные коэффициенты квазиупругой силы, x_1 , x_2 и \dot{x}_1 , \dot{x}_2 – средние смещения и скорости доменной границы, соответственно, P_s – спонтанная поляризация образца, E – напряженность электрического поля.

Уравнения определяют вклад в эффективную диэлектрическую проницаемость и эффективные диэлектрические потери релаксационного (1), осуществляемого за счет непрерывного изменения порядка, и гистерезисного (2) осуществляемого за счет скачкообразного изменения направления поляризации в «заметаемых» доменной границей элементарных ячейках сегнетоэлектрика, механизмов движения доменных границ. Однако в представленной модели не описывается влияние механической нагрузки.

Обозначив L, d – размеры доменной области и учитывая связь $Q = pS = pLd$ и уравнение (2) полученное в [4]:

Получаем уравнение изменения поляризации:

$$\frac{Fd}{2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt} \dot{p}_1 + \frac{kd}{2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt} p_1 = 2P_s E;$$
$$F\dot{p}_1 + kp_1 = \frac{4P_s^2 + 2P_s \left(\int j_{ck} dt + \int j_r dt \right)}{d} E \quad (3)$$

Задавая время релаксации, как $\tau_1 = \frac{F}{k}$ и коэффициент $\alpha_1 = \frac{4P_s^2 + 2P_s \left(\int j_{ck} dt + \int j_r dt \right)}{kd}$, уравнение (3) приобретает вид:

$$\tau_1 \dot{p}_1 + p_1 = \alpha_1 E$$

При приложении механической нагрузки к образцу происходит деформация зерен сегнетокерамики, при этом возникают дополнительные локальные механические напряжения в местах соприкосновения зерен. При прохождении таких мест 90° доменные границы испытывают дополнительное сопротивление, что приводит к локальным изменениям потенциального профиля [5].

Такие механизмы рассмотрены в рамках уравнения движения доменных границ [6]:

$$F \operatorname{sgn}(\dot{x}) + kx = \alpha_{11} u_s \sigma_{ijkl} + \alpha_{21} 2P_s E \quad (4)$$

где u_s и σ_{ij} – спонтанная деформация и механическое нагружение соответственно, коэффициент α_{11} определяется геометрией механического напряжения и спонтанной деформации, коэффициент α_{21} зависит от взаимной ориентации векторов напряженности электрического поля и вектора спонтанной поляризации [6].

Учитывая связь заряда и поляризации из (4), получаем уравнение изменения поляризации при приложении механической нагрузки:

$$\frac{Fd}{2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt} \dot{p}_2 + \frac{kd}{2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt} p_2 = \alpha_{11} u_s \sigma_{ijkl} + \alpha_{21} 2P_s E;$$
$$F\dot{p}_2 + kp_2 = \frac{\alpha_{11} u_s (2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt)}{d} \sigma_{ijkl} + \frac{\alpha_{21} (4P_s^2 + 2P_s (\int j_{ck} dt + \int j_r dt))}{d} E$$

Задавая время релаксации, как $\tau_2 = \frac{F}{k}$, коэффициент $\alpha_2 = \frac{\alpha_{21} (4P_s^2 + 2P_s (\int j_{ck} dt + \int j_r dt))}{kd}$ и коэффициент $\beta_2 = \frac{\alpha_{11} u_s (2P_s + \int j_{ck} dt + \int j_r dt)}{kd}$,

уравнение (4) приобретает вид:

$$\tau_2 \dot{p}_2 + p_2 = \alpha_2 E + \beta_2 \sigma$$

Вид тока в сегнетокерамике обусловлен зависимостью коэффициентов модели $\alpha_1, \alpha_2, \beta_2$ от плотности тока сквозной проводимости и плотности тока, связанного с эмиссией зарядов из ловушек. Полученные коэффициенты позволяют переходить от поляризации (макроскопического параметра) к ДГ (мезоскопическому масштабу).

Плотность тока при изменении поляризации сегнетокерамики (СК) можно описать системой уравнений:

$$\tau_1 \dot{p}_1 + p_1 = \alpha_1 E \quad (5)$$

$$\tau_2 \dot{p}_2 + p_2 = \alpha_2 E + \beta_2 \sigma \quad (6)$$

$$j = \dot{p}_1 + \dot{p}_2 \quad (7)$$

где параметры τ_1, τ_2 зависят от изменения доменной структуры и ее взаимодействия с дефектами [4], поэтому τ_1 будем обуславливать изменением соответствующих времен для 180° - доменов и τ_2 для не 180° - доменов; p_1 – поляризация, обусловленная наличием 180° – доменов и p_2 – поляризация, обусловленная наличием не 180° доменов; коэффициенты α_1, α_2 и β_2 определяются геометрией взаимного расположения векторов напряженностей электрического поля \vec{E} , компонентов тензора механических напряжений d_{ijkl} и направлений векторов спонтанной поляризации \vec{P}_s в 180°

доменах и не 180° доменах; j – плотность тока при изменении поляризации. В модели используются усредненные по всем кристаллитам величины. Компоненты вектора \vec{E} и тензора напряжений определяются прикладываемым воздействием к образцу.

Механические напряжения растяжения при нагружении образцов рассчитывали по формуле для изгиба круглых пластин с недеформируемой нейтральной плоскостью [5].

$$\sigma = \frac{3}{2} \cdot \frac{1+\nu}{\pi h^2} \left(\ln \frac{b}{a} + \frac{1-\nu}{1+\nu} \cdot \frac{b^2 - a^2}{2c^2} \right) P$$

где a – радиус нагружающего пуансона; b – радиус нижней опоры; c – радиус образца; ν – коэффициент Пуассона; h – толщина образца, P – приложенная сила.

Моделирование нелинейных зависимостей между электрическим полем и механическими напряжениями с одной стороны, и поляризацией и деформацией, с другой, относится к разделу реологических моделей.

В основе электромеханической аналогии для описания поляризационных эффектов в сегнетоэлектрических телах лежат соответствия: обобщенной координаты – электрическому заряду; обобщенной скорости – току; коэффициента упругой податливости – емкости; обобщенной силы – электродвижущей силе. При переходе к сплошным средам силы заменяются механическими напряжениями, перемещения – деформациями и т.д. В итоге можно прийти к соответствиям: $\sigma \leftrightarrow E$, $\varepsilon \leftrightarrow p$, где E – напряженность электрического поля; p – поляризация. Упругому элементу сопоставляется конденсатор, элементу вязкого трения – сопротивление, элементу сухого трения – двуполярный стабилитрон [7].

Реологические формулы для двуполярного стабилитрона и конденсатора можно представить следующим образом [7]:

$$E_e = \frac{1}{k} p_e; \quad E_0 = r \dot{p}_0$$

где индексами «e» и «0» отмечены индуцированные и неупругие составляющие соответственно, r , k – некоторые константы, физический смысл которых следует определить. Соединяя эти элементы последовательно, согласно уравнениям $E = E_e + E_0$ и $p = p_e = p_0$, получаем:

$$rk \dot{p} + p = kE$$

заменяя $rk = \tau$, а константу $k = \alpha$ получим окончательно:

$$\tau \dot{p} + p = \alpha E$$

Полученное уравнение должно учитывать поляризацию, обусловленную движением 180° и не 180° доменов. С другой стороны, зависимость поляризации в сегнетокерамике от внешнего электрического поля или механической нагрузки (в общем случае при одновременном их действии) влияет на вид плотности тока [8], при этом, наряду с током, обусловленным переполяризацией сегнетоэлектрических доменов, возникает «поток деформации», вызванный передеформацией сегнетоэластических доменов (упругих двойников) [8]. В связи с этим введено уравнение, учитывающее зависимость поляризации от внешней механической нагрузки. Причем в уравнении так же должно учитываться влияние внешнего электрического поля.

Физический смысл коэффициентов α_1 , α_2 и β_2 , ($\sigma = \sigma_1 + \sigma_2$ – механические напряжения (здесь σ_1 , σ_2 – решеточная и доменная составляющие механического напряжения соответственно)) позволяет использовать известные их зависимости от электрического поля и внешних механических напряжений как в интервале действия линейного пьезоэффекта, так в области внешних нагрузок, когда линейность перестает существовать.

Размерность коэффициентов, используемых в уравнениях (5-7) модели:

$$[k] = \left[\frac{p}{E_e} \right] = \frac{Kl^2}{m^2 \cdot H} = \frac{\Phi}{m};$$
$$[r] = \left[\frac{E_0}{\dot{p}} \right] = \frac{H \cdot m^2 \cdot c}{Kl^2} = \frac{m \cdot c}{\Phi} \text{ или } [r] = \left[\frac{E_0}{\dot{p}} \right] = \frac{\kappa_2 \cdot m^3}{A^2 \cdot c^3} = Om \cdot m;$$
$$[\tau] = [kr] = \frac{\Phi}{m} \cdot \frac{m \cdot c}{\Phi} = c.$$

Если время релаксации процесса $\tau = kr = \varepsilon_0 \rho$, то $\rho = r$ – удельное сопротивление материала. Коэффициент β_2 можно определить через связь $k\beta_1\sigma = \beta_2\sigma$, где $\beta_1 = \frac{1}{E_i} = \frac{m^2}{Kl}$. Тогда $\beta_2 = k\beta_1 = \varepsilon_0 g_{ij}$, где g_{ij} – пьезоэлектрический коэффициент напряжения.

Анализ изменения поляризации с помощью уравнений (5-7) не учитывает токи проводимости. Но, как показывает обзор литературы, реализовать такие условия в эксперименте практически невозможно. В модели (5-7) две составляющие поляризации: упругая и пластическая (необратимая), изменения поляризации после внешнего воздействия ЭП можно объяснить движением доменных и межфазных границ [9, 10]. После приложения механической нагрузки начинается процесс разрушения. Доменные границы являются препятствием разрушению (росту трещины) до тех пор, пока они закреплены на стопорах (заряженных дефектах). Если механизм движения гистерезисный, то при приложении критической нагрузки происходит срыв доменных границ с дефектов и трещина растет скачком. Релаксационное движение доменных границ с постоянным трением приводит к росту трещин за счет создания механических напряжений.

Вывод. Выбранная реологическая модель [7] и подход с учетом механизмов движения доменных границ [3, 4, 6] даст возможность с помощью уравнений (5-7) описывать скорость изменения поляризации, используя поведение дефектов (дислокаций, доменных границ). Модель позволит с единой точки зрения описать экспериментальные закономерности

поведения токов при электромеханическом воздействии и даст возможность провести анализ вкладов 180° и не 180° доменных стенок в токи в сегнетокерамике.

Литература

1. Фиговский О.Л. Нанотехнологии для новых материалов // Инженерный вестник Дона, 2012, №3. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n3y2012/1048.

2. Панич А.А., Мараховский М.А., Мотин Д.В. Кристаллические и керамические пьезоэлектрики // Инженерный вестник Дона, 2011, №1. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n1y2011/325.

3. Жога Л.В., Нестеров В.Н., Терех В.В., Габриэлян А.В. Исследование поведения токов поляризации методом компьютерного моделирования движения доменных стенок // Известия Волгоградского государственного технического университета. Серия «Электроника, измерительная техника, радиотехника и связь», вып. 7: межвуз. сб. науч. ст., 2013. № 3(106). Вып.7. С. 41-45.

4. Нестеров В.Н. Динамика доменных и межфазных границ в сегнетоэлектрических твердых растворах на основе цирконата - титаната свинца (компьютерный анализ): дис. канд. физ. – мат. наук. ВАСА. Волгоград, 1997. 263 с.

5. Бондаренко Е.И., Тополов В.Ю., Турик Л.В. Внутренние механические напряжения и электрический пробой поликристаллического титаната бария // ЖТФ. 1992. Т. 62. № 12. С. 155-158.

6. Нестеров В.Н., Кочергин И.В., Жога Л.В. Абсорбционный ток в нагруженной сегнетокерамике // Физика твердого тела. 2009. Т. 51, Вып. 7. С. 1439-1441.

7. Белоконь А.В., Скалиух А.С. Математическое моделирование необратимых процессов поляризации. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2010. 328 с.

8. Шур В.Я., Кожевников В.Л., Пелегов Д.В., Иванов Р.К. Формирование и движение фрактальных доменных стенок в сегнетоэлектриках // Вестник ВГТУ. Сер. Материаловедение. 2000. В. 1.8. С. 36-40.

9. Boddu V., Endres F., Steinmann P. Molecular dynamics study of ferroelectric domain nucleation and domain switching dynamics // Scientific Reports, 2017, 7:806 URL: nature.com/articles/s41598-017-01002-0.pdf.

10. Lee Dong Hyun, Lee Younghwan, Yang Kun, Park Ju Yong, Kim Se Hyun, Reddy Pothala Reddi Sekhar, Materano M., Mulaosmanovic H., Mikolajick T., Jones J. L., Schroeder U., Park Min Hyuk. Domains and domain dynamics in fluorite-structured ferroelectrics // Applied Physics Reviews, 2021, 8:021312 URL: aip.scitation.org/doi/10.1063/5.0047977.

References

1. Figovskij O.L. Inzhenernyj vestnik Dona, 2012, №3. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n3y2012/1048.

2. Panich A.A., Marahovskij M.A., Motin D.V. Inzhenernyj vestnik Dona, 2011, №1. URL: ivdon.ru/ru/magazine/archive/n1y2011/325.

3. Zhoga L.V., Nesterov V.N., Tereh V.V., Gabrijeljan A.V. Izvestija Volgogradskogo gosudarstvennogo tehničeskogo universiteta. Serija «Jelektronika, izmeritel'naja tehnika, radiotekhnika i svjaz'», vyp. 7: mezhvuz. sb. nauch. st., 2013. № 3(106). Vyp.7. pp. 41-45.

4. Nesterov V.N. Dinamika domennyh i mezhfaznyh granic v segnetoelektricheskikh tverdyh rastvorah na osnove cirkonata - titanata svinca (komp'juternyj analiz) [Dynamics of domain and interphase boundaries in ferroelectric solid solutions based on lead zirconate-titanate (computer analysis)]: dis. kand. fiz. - mat. nauk. VASA. Volgograd, 1997. 263 p.

5. Bondarenko E.I., Topolov V.Ju., Turik L.V. ZhTF. 1992. T. 62. № 12. pp. 155-158.



6. Nesterov V.N., Kochergin I.V., Zhoga L.V. Fizika tverdogo tela. 2009. T. 51, Вып. 7. pp. 1439-1441.
7. Belokon' A.V., Skaliuh A.S. Matematicheskoe modelirovanie neobratimyh processov poljarizacii [Mathematical modeling of irreversible polarization processes]. M.: FIZMATLIT, 2010. 328 p.
8. Shur V.Ja, Kozhevnikov V.L., Pelegov D.V., Ivanov R.K. Vestnik VGTU. Ser. Materialovedenie. 2000. V. 1.8. pp. 36-40.
9. Boddu V., Endres F., Steinmann P. Scientific Reports, 2017, 7:806. URL: [nature.com/articles/s41598-017-01002-0.pdf](https://www.nature.com/articles/s41598-017-01002-0.pdf).
10. Lee Dong Hyun, Lee Younghwan, Yang Kun, Park Ju Yong, Kim Se Hyun, Reddy Pothala Reddi Sekhar, Materano M., Mulaosmanovic H., Mikolajick T., Jones J. L., Schroeder U., Park Min Hyuk. Applied Physics Reviews, 2021, 8:021312 URL: aip.scitation.org/doi/10.1063/5.0047977.