

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ ГИСТЕРЕЗИСНЫХ КРИВЫХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ ОТ ЧАСТОТЫ И АМПЛИТУДЫ УПРАВЛЯЮЩЕГО ПОЛЯ

А.Ю.Захаров, М.И.Бичурин

### MODELING OF DEPENDENCE ON BOTH FREQUENCY AND AMPLITUDE OF CONTROLLING FIELD FOR CRYSTALLINE FERROELECTRICS HYSTERESIS LOOPS

A.Yu.Zakharov, M.I.Bichurin

*Институт электронных и информационных систем НовГУ,  
Anatoly.Zakharov@novsu.ru; Mirza.Bichurin@novsu.ru*

Предложено описание процессов переключения в кристаллических сегнетоэлектриках с помощью уравнений релаксационных процессов с учетом воздействия переменного внешнего электрического поля. Получены точные аналитические решения этих уравнений при произвольной зависимости времени релаксации как от мгновенного значения внешнего поля, так и от скорости изменения этого поля при произвольной зависимости внешнего поля от времени. Выполнено аналитическое исследование полученного решения и найдено начальное условие, при котором решение является периодической функцией времени. На основе полученного решения выполнено численное исследование связи между частотой синусоидального внешнего поля и формой гистерезисных кривых. Результаты расчетов находятся в качественном согласии с экспериментальными данными.

**Ключевые слова:** сегнетоэлектрики, процессы переключения, гистерезис, поляризация

Description of switching processes in crystalline ferroelectrics by means of relaxation type equations with account of variable external electric field influence is proposed. The exact analytical solutions of these equations at arbitrary dependence of relaxation function on electric field and its derivative are obtained. The condition for periodicity of the solutions with respect to time is found out. Numerical analysis of the hysteresis loops shapes for case of sinusoidal controlling field is carried out. The calculations results are in qualitative agreement with experimental data.

**Keywords:** ferroelectrics, switching processes, hysteresis, polarization

#### Введение

В работе [1] предложена релаксационная модель гистерезисных явлений в кристаллических сегнетоэлектриках. Эта модель основана на следующих допущениях.

— Вероятность переключения одиночного домена из метастабильных состояний в устойчивые зависит от напряженности управляющего поля и описывается произвольной заданной функцией  $\alpha(E)$ . Предполагалось, что эта функция стремится к нулю при малых значениях напряженности управляющего поля и монотонно возрастает при приближении к границе метастабильности.

— Процессы переключения доменов происходят независимо друг от друга.

— Известна связь  $p(E)$  между параметром порядка одиночного домена  $p$  и напряженностью внешнего электрического поля  $E$ , включая метастабильные состояния.

В рамках этой модели увеличение частоты управляющего поля приводит к уменьшению времени, за которое внешнее поле изменяется от нуля до границы метастабильности, на которой происходит практически полное переключение доменов из метастабильных состояний. Это означает, что большая часть доменов переключается в момент достижения

границы метастабильности. Таким образом, в случае, если вероятность переключения доменов зависит только от внешнего поля, то с увеличением частоты управляющего поля петли гистерезиса приближаются к прямоугольной форме [2].

Однако в эксперименте часто наблюдается и прямо противоположная тенденция: с увеличением частоты управляющего поля петли гистерезиса становятся более пологими [3,4]. Существует по меньшей мере два варианта объяснения этой закономерности.

— Допустить, что с увеличением напряженности управляющего поля вероятность переключения доменов  $\alpha(E)$  уменьшается. Такое объяснение представляется крайне маловероятным, поскольку вероятность переключения связана с преодолением энергетического барьера между состояниями доменов, а высота барьера с приближением к границе метастабильности стремится к нулю.

— Предположить, что вероятность переключения доменов зависит не только от напряженности управляющего поля, но и от скорости изменения напряженности поля (эффект «встряхивания»). Другими словами, быстро изменяющееся управляющее поле способствует «расшатыванию» доменов и/или препятствует «закреплению» доменов в новых состояниях после их переключения.

Цель данной работы состоит в разработке модели процессов переключения в кристаллических сегнетоэлектриках с учетом зависимости вероятности переключения доменов  $\alpha$  не только от величины управляющего поля  $E(t)$ , но и от скорости изменения внешнего поля  $\frac{dE(t)}{dt}$ . В рамках этой модели исследованы возможные формы гистерезисных кривых в зависимости от характеристик переменного управляющего поля.

**Модель**

Положим, что вероятность переключения домена в единицу времени от внешнего поля описывается некоторой функцией  $\alpha(E(t), E'(t))$ , четной по обоим аргументам и состоящей из двух слагаемых, одно из которых зависит только от  $E(t)$ , а второе — только от  $E'(t)$ :

$$\alpha(E(t), E'(t)) = \alpha_1(E(t)) + \alpha_2(E'(t)). \quad (1)$$

Каждая из этих функций равна нулю при нулевом значении аргумента и монотонно возрастает с увеличением абсолютного значения своего аргумента.

Выберем одно из двух возможных направлений поляризации диполей в качестве положительно. Тогда при  $-E^{(0)} < E(t) < E^{(0)}$  ( $E^{(0)}$  — граница метастабильности) часть доменов находится в метастабильных состояниях и участвует в процессах переключения.

Тогда процессы релаксации описываются следующими уравнениями

$$\begin{cases} \frac{dN_1(t)}{dt} = \alpha(E(t), E'(t))[-\theta(-E(t))N_1(t) + \theta(E(t))N_2(t)]; \\ N_1(t) + N_2(t) = \text{const} = N, \end{cases} \quad (2)$$

где  $N_1(t)$  и  $N_2(t)$  — число положительно и отрицательно ориентированных доменов соответственно,  $\theta(x)$  — ступенчатая функция Хевисайда

$$\theta(x) = \begin{cases} 1, & x > 0; \\ 0,5, & x = 0; \\ 0, & x < 0. \end{cases} \quad (3)$$

Исключая в системе (2) функцию  $N_2(t)$ , найдем уравнение относительно доли положительно ориентированных доменов  $n_1(t) = \frac{N_1(t)}{N}$ :

$$\frac{dn_1(t)}{dt} + \alpha(E(t), E'(t))n_1(t) = \alpha(E(t), E'(t))\theta(E(t)). \quad (4)$$

Решение этого уравнения с начальным условием  $n_1(t)|_{t=0} = n_1^{(0)}$  имеет вид

$$n_1(t) = e^{-F(t)} \left[ n_1^{(0)} + \int_0^t dt_1 \theta(E(t_1)) \alpha(E(t_1), E'(t_1)) e^{F(t_1)} \right], \quad (5)$$

где

$$F(t) = \int_0^t \alpha(E(t_1), E'(t_1)) dt_1 \quad (6)$$

неубывающая функция времени.

Функция  $n_2(t)$  выражается через  $n_1(t)$ :

$$n_2(t) = 1 - n_1(t). \quad (7)$$

Будем предполагать, что управляющее внешнее поле  $E(t)$  является периодической функцией с периодом  $T$ . Положим также, что на первой половине периода  $[0; T/2]$  функция  $E(t)$  положительна, а на второй  $[T/2; T]$  — отрицательна. К примеру, для синусоидального управляющего поля

$$E(t) = a \sin(\omega t) \quad (8)$$

функция  $E(t)$  положительна на промежутке от 0 до  $\pi/\omega$  и отрицательна на промежутке от  $T/2 = \pi/\omega$  до  $T = 2\pi/\omega$ .

Не ограничивая рассмотрение простейшим случаем синусоидального управляющего поля, найдем решение уравнения (4) для случая поля, произвольного на промежутках  $[0; T/2]$

$$n_1(t) = 1 - (1 - n_1^{(0)}) e^{-F(t)}, \quad 0 \leq t \leq \frac{T}{2} \quad (9)$$

и  $[\frac{T}{2}; T]$

$$n_1(t) = \left[ e^{F(\frac{T}{2})} - (1 - n_1^{(0)}) \right] e^{-F(t)}, \quad \frac{T}{2} \leq t \leq T. \quad (10)$$

Условие сшивания решений в точке  $\frac{T}{2}$ , разделяющей участки положительности и отрицательности управляющего поля  $E(t)$ , здесь уже учтено.

Объединяя соотношения (9) и (10), получим

$$\begin{aligned} n_1(t) = & \theta\left(\frac{T}{2} - t\right) \left\{ 1 - (1 - n_1^{(0)}) e^{-F(t)} \right\} + \\ & + \theta\left(t - \frac{T}{2}\right) \left\{ \left[ e^{F(\frac{T}{2})} - (1 - n_1^{(0)}) \right] e^{-F(t)} \right\}, \end{aligned} \quad (11)$$

где  $\theta(x)$  — «ступенька» Хевисайда (3).

При произвольном начальном условии  $n_1^{(0)}$  это решение, вообще говоря, не будет периодической функцией времени и асимптотически приближается к периодической функции при достаточно больших временах. Во избежание необходимости исследования асимптотики решения при больших значениях времени следует подобрать начальное условие  $n_1^{(0)}$  таким образом, чтобы по истечении периода внешнего поля значение функции  $n_1(T)$  совпало с начальным значением этой функции  $n_1^{(0)}$ . Только в этом случае решением уравнения (4) будет являться периодическая функция с периодом  $T$ . Из этого условия следует

$$n_1^{(0)} = \frac{e^{F(\frac{T}{2})} - 1}{e^{F(T)} - 1}. \quad (12)$$

Таким образом, в пределах периода  $[0; T]$  управляющего внешнего поля периодическое решение уравнения (4) имеет вид (11) с начальным условием (12) и функцией  $F(t)$ , определяемой соотношением (6).

**Динамика процессов переключения для гармонического управляющего поля**

Положим, что слагаемые  $\alpha_i(x)$  в (1) могут быть аппроксимированы многочленами с коэффициентами  $C_k, D_k$ :

$$\begin{cases} \alpha_1(E(t)) = \sum_{n=1}^{M_1} C_n \left(\frac{E(t)}{E_0}\right)^{2n}, \\ \alpha_2(E'(t)) = \sum_{m=1}^{M_2} D_m \left(\frac{E'(t)}{E_0}\right)^{2m}, \end{cases} \quad (13)$$

где  $E_0$  — граница метастабильности сегнетоэлектрика.

Подстановка выражения (8) для управляющего поля в (1) и (6) приводит к интегралам, которые вычисляются в элементарных функциях

$$F_1(n,t) = \int_0^t \sin^{2n}(\omega t) dt = \frac{(2n)!}{[2^n n!]^2} t + \frac{(-1)^n}{2^{2n} \omega} \sum_{k=0}^{n-1} (-1)^k C_{2n}^k \frac{\sin[2(n-k)\omega t]}{n-k}, \quad (14)$$

$$F_2(m,t) = \int_0^t \cos^{2m}(\omega t) dt = \frac{(2m)!}{[2^m m!]^2} t + \frac{1}{2^{2m} \omega} \sum_{k=0}^{m-1} C_{2m}^k \frac{\sin[2(m-k)\omega t]}{m-k}, \quad (15)$$

где  $C_{2n}^k = \frac{(2n)!}{k!(2n-k)!}$  — биномиальные коэффициенты.

В результате выражение (6) для  $F(t)$  представляет собой сумму линейного и осциллирующего во времени членов:

$$F(t) = F_L(t) + F_O(t), \quad (16)$$

где

$$F_L(t) = \sum_{n=1}^{M_1} \left[ C_n \left(\frac{a}{2}\right)^{2n} \frac{(2n)!}{(n!)^2} \right] t + \sum_{m=1}^{M_2} \left[ D_m \left(\frac{a\omega}{2}\right)^{2m} \frac{(2m)!}{(m!)^2} \right] t, \quad (17)$$

и

$$F_O(t) = \sum_{n=1}^{M_1} \left\{ C_n \left(\frac{a}{2}\right)^{2n} \left[ \frac{(-1)^n}{\omega} \sum_{k=0}^{n-1} (-1)^k C_{2n}^k \frac{\sin[2(n-k)\omega t]}{n-k} \right] \right\} + \sum_{m=1}^{M_2} \left\{ D_m \left(\frac{a\omega}{2}\right)^{2m} \left[ \frac{1}{\omega} \sum_{k=0}^{m-1} C_{2m}^k \frac{\sin[2(m-k)\omega t]}{m-k} \right] \right\}. \quad (18)$$

Заметим, что

$$F_O(0) = F_O\left(\frac{T}{2}\right) = F_O(T) = 0. \quad (19)$$

Поэтому в указанных точках значения функции  $F(t)$  совпадают со значениями гораздо более «простой» функции  $F_L(t)$ . Начальное условие для функции  $n_1(t)$  найдем из соотношения (12):

$$n_1^{(0)} = \left[ \exp \left\{ \frac{\pi}{\omega} \left[ \sum_{n=1}^{M_1} \left( C_n \left(\frac{a}{2}\right)^{2n} \frac{(2n)!}{(n!)^2} \right) + \sum_{m=1}^{M_2} \left( D_m \left(\frac{a\omega}{2}\right)^{2m} \frac{(2m)!}{(m!)^2} \right) \right] \right\} + 1 \right]^{-1}. \quad (20)$$

Перейдем к анализу возможных форм гистерезисных кривых в рамках исследуемой модели.

**Гистерезисные кривые в переменных «поляризация — напряженность управляющего электрического поля»**

Гистерезисные кривые в переменных «ориентации доменов  $n_1(t)$  — напряженность управляющего поля  $E(t)$ » задаются в параметрической форме

$$\begin{cases} E = E(t); \\ n_1 = n_1(t), \end{cases} \quad (21)$$

где функции  $E(t)$  и  $n_1(t)$  определяются уравнениями (8) и (11) соответственно с начальным условием (20). При заданных значениях параметров  $C_n, D_m$  (а также  $M_1, M_2$ ), характеризующих свойства сегнетоэлектрика, форма гистерезисных кривых « $n_1 - E$ » зависит только от амплитуды и частоты управляющего внешнего поля.

Вычисление поляризации сегнетоэлектрика  $P(t)$  при известном значении  $n_1(t)$  выполняется по формуле

$$P(t) = n_1(t) p_+(E(t)) + (1 - n_1(t)) p_-(E(t)), \quad (22)$$

где  $p_{\pm}(E)$  — две однозначные функции, связывающие значение дипольного момента домена с напряженностью внешнего поля, включая метастабильные состояния [1]. Явный вид этих функций зависит от модели, используемой для описания сегнетоэлектрика. В данной работе использовано уравнение состояния сегнетоэлектрика с бесконечным радиусом взаимодействия [5], которое для реальных сегнетоэлектриков совпадает с приближением эффективного поля

$$E = \frac{\tau}{2} \ln \left[ \frac{1+p}{1-p} \right] - p \quad (23)$$

(здесь  $\tau, p, E$  — безразмерные температура, параметр порядка и напряженность внешнего поля соответственно). Функции  $p_{\pm}(E)$  — две ветви решений этого уравнения относительно  $p$ .

Для установления общих закономерностей достаточно ограничиться рассмотрением модели с минимальным количеством параметров в соотношениях (13). По-существу, важно отследить влияние соотношений между вкладками  $\alpha_1(E(t))$  и  $\alpha_2(E'(t))$  в вероятности переключения доменов (1) на форму гистерезисных кривых при различных частотах управляющего внешнего поля. Выберем два простейших случая, когда в каждой из правых частей соотношений (13) отличны от нуля только по одному члену:

1.  $C_1$  и  $D_1$  (в этом случае вероятность переключения домена является квадратичной функцией от внешнего поля и скорости его изменения). Результаты численных расчетов гистерезисных кривых при  $C_1 = 4,5$  и  $D_1 = 1,0$  приведены на рис.1.

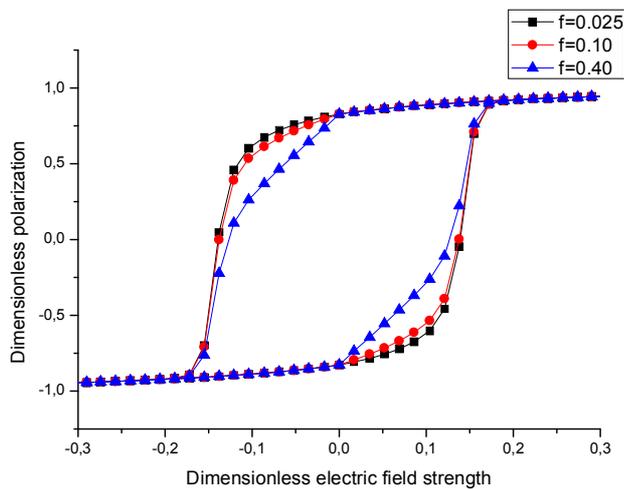


Рис.1. Качественный вид зависимости гистерезисных кривых сегнетоэлектрика от частоты управляющего поля при  $C_1 = 4,5$  и  $D_1 = 1,0$

2.  $C_2$  и  $D_2$  (в этом случае вероятность переключения домена содержит слагаемые, пропорциональные четвертой степени от внешнего поля и скорости его изменения). Результаты численных расчетов гистерезисных кривых при  $C_2 = 4,5$  и  $D_2 = 1,0$  приведены на рис.2.

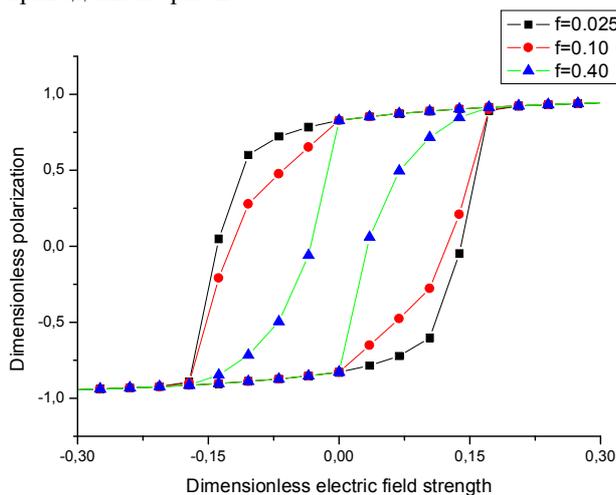


Рис.2. Качественный вид зависимости гистерезисных кривых сегнетоэлектрика от частоты управляющего поля при  $C_2 = 4,5$  и  $D_2 = 1,0$

### Выводы и заключение

Основные результаты данной работы заключаются в следующем.

1. Построена феноменологическая модель процессов переключения доменов в сегнетоэлектриках с учетом зависимости вероятности переключения как от мгновенного значения управляющего поля  $E(t)$ , так и от скорости изменения поля  $E'(t)$ .

2. Если без учета вклада  $E'(t)$  увеличение частоты управляющего поля *всегда* приближает гистере-

зисную кривую к прямоугольной форме, то учет этого вклада при подходящих значениях параметров приводит к возможности управления формой гистерезисных кривых сегнетоэлектрика и в том, и в другом направлениях.

3. Показано, что вероятность переключения доменов в рамках релаксационной модели должна включать вклады как управляющего поля, так и скорости изменения этого поля, поскольку в эксперименте наблюдаются *оба типа* зависимости формы гистерезисных кривых от частоты управляющего поля.

4. Результаты численных расчетов находятся в качественном согласии с известными экспериментальными данными.

5. Вариация параметров модели приводит к весьма существенному изменению формы гистерезисных петель на метастабильных участках кривых и почти не изменяет форму петель на остальных участках гистерезисных петель.

*Работа выполнена при финансовой поддержке со стороны Минобрнауки РФ в рамках базовой части.*

1. Захаров А.Ю., Бичурин М.И., Yan Y., Priya S. Гистерезисные кривые кристаллических сегнетоэлектриков в переменном внешнем поле. Релаксационная модель // ЖТФ. 2014. Т.84. №08. С.54-58.
2. Zakharov A.Yu., Bichurin M.I., Yan Yongke, Priya S. Modeling the Hysteretic Behavior of Textured and Random Ferroelectric Ceramics // Solid State Phenomena. 2013. Vol.202. P.127-141.
3. Yan Y., Cho K.-H., Priya S. Templated Grain Growth of <001>-Textured  $0.675\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.325\text{PbTiO}_3$  Piezoelectric Ceramics for Magnetic Field Sensors // J. Am. Ceram. Soc. 2011. Vol.94. №6. P.1784-1793.
4. Yan Y., Wang Yu.U., Priya S. Electromechanical Behavior of [001]-textured  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$  ceramics // Appl. Phys. Lett. 2012. Vol.100. №19. P.192905-1-192905-4.
5. Zakharov A.Yu., Bichurin M.I., Evstigneeva N.V. Exactly solvable model of uniaxial ferroelectrics // arXiv:1105.0930v1 [cond-mat.mtrl-sci] 4 May 2011. 5 p.

### References

1. A.Iu. Zakharov, M.I.Bichurin, Y. Yan, S. Priya. Gisterezisnye krivye kristallicheskih segnetoelektrikov v peremennom vneshnem pole. Relaksatsionnaya model' [Hysteresis loops of crystalline ferroelectrics in variable external electric field. Relaxation model]. Zhurnal tekhnicheskoi fiziki – Technical Physics, 2014, vol. 84, no.08, pp. 54–58.
2. Zakharov A.Yu., Bichurin M.I., Yan Yongke, Priya S. Modeling the Hysteretic Behavior of Textured and Random Ferroelectric Ceramics. Solid State Phenomena, 2013, vol. 202, pp. 127–141.
3. Yan Y., Cho K.-H., Priya S. Templated Grain Growth of <001>-Textured  $0.675\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.325\text{PbTiO}_3$  Piezoelectric Ceramics for Magnetic Field Sensors. Journal of the American Ceramic Society, 2011, vol. 94, no. 6, pp. 1784–1793.
4. Yan Y., Wang Yu.U., Priya S. Electromechanical Behavior of [001]-textured  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$  ceramics. Applied Physics Letters, 2012, vol. 100, no. 19, pp. 192905-1–192905-4.
5. Zakharov A.Yu., Bichurin M.I., Evstigneeva N.V. Exactly solvable model of uniaxial ferroelectrics. arXiv:1105.0930v1 [cond-mat.mtrl-sci] 4 May 2011, 5 p.