

Формирование регулярных доменных структур в сегнетоэлектриках при переключении поляризации в сильнонеравновесных условиях

Л.И. Стефанович, О.Ю. Мазур

Институт физики горных процессов НАН Украины, ул. Симферопольская, 2а, 49005 Днепро, Украина

(Получено 14.03.2017; в отредактированной форме – 26.04.2017; опубликовано online 28.04.2017)

На примере кристаллов танталата лития (LiTaO_3), испытывающих сегнетоэлектрический фазовый переход второго рода типа порядок-беспорядок, в рамках модели Гинзбурга-Ландау рассмотрена кинетика формирования регулярных доменных структур (РДС) под влиянием высокочастотного электрического поля. Ввиду нелинейности полученных уравнений был проведен численный анализ, который показал, что возможно формирование монодоменного и полидоменного состояний упорядочения, а также промежуточных ассиметричных «виртуальных» полидоменных структур. Путем численных расчетов установлено, что существует некоторая пороговая частота электрического поля, выше которой система эволюционирует к полидоменному типу упорядочения. Показано, что при высоких частотах формируется симметричная термодинамически стабильная РДС.

Ключевые слова: Сегнетоэлектрик, Параметр порядка, Электрическое поле, Высокочастотное поле, Регулярная доменная структура, Монодоменная структура, Полидоменная структура, Эволюционные кривые.

DOI: 10.21272/jnep.9(2).02032

PACS numbers: 64.60.Cn, 64.70.Kb

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы активно развивается микро- и нанодоменная инженерия, основной задачей которой является создание в сегнетоэлектриках стабильных регулярных доменных структур (РДС) для улучшения нелинейнооптических, электрооптических и акустических характеристик, например, для изготовления эффективных преобразователей частоты когерентного излучения. Особое место среди доменных структур занимают РДС с субмикронными и нанометровыми периодами. РДС обычно получают приложением электрического поля с помощью системы полосовых электродов, полученных фотолитографией [1]. Однако рост доменов за пределы электродов не позволяет использовать этот метод для создания прецизионных доменных структур с периодом менее $2 \mu\text{m}$ [2-4]. Традиционные методы создания регулярных РДС, среди которых, несомненно, лидирует приложение внешнего электрического поля, не позволяют создавать прецизионные субмикронные ДС. В последние годы показано, что при сильнонеравновесных условиях переключения, обусловленных неэффективным экранированием деполярирующих полей, возникает самоорганизованная ДС, состоящая из нанодоменных лучей [5]. Наибольшие успехи в этом направлении достигнуты в монокристаллах ниобата лития LiNbO_3 (LN) и танталата лития LiTaO_3 (LT), обладающих большими значениями электрооптических и нелинейнооптических коэффициентов. Однако в настоящее время создание устройств на основе LN и LT с РДС с малыми периодами сталкивается с рядом проблем, таких как неконтролируемое слияние доменов и самопроизвольное частичное обратное переключение. Также существует ряд технологических проблем, связанных с необходимостью изготовления регулярных высококачественных электродных структур.

Кроме того, минимально достижимый период РДС около 4 мкм, а для создания фотонных кри-

сталлов нужны субмикронные периоды. Эти причины стимулируют поиск альтернативных методов создания РДС.

В качестве модельных объектов для экспериментального получения РДС используют одноосные сегнетоэлектрики LN и LT [6, 7]. Эти кристаллы являются наиболее широко используемыми нелинейнооптическими материалами. Они обладают сравнительно простой доменной структурой (ДС), которая может быть визуализирована с высоким пространственным разрешением различными методами [8].

Как было показано авторами [9], одним из наиболее простых и эффективных способов реализации сильнонеравновесных условий в сегнетоэлектриках является быстрая закалка системы из высокотемпературной (параэлектрической) в низкотемпературную (сегнетоэлектрическую) фазу.

С другой стороны, возникает вопрос, как будут влиять периодические полевые воздействия на кинетику формирования доменной структуры. Так, например, в работе [10] было установлено, что внешнее периодическое воздействие существенно влияет на кинетику фрагментации металлов при интенсивной пластической деформации, а именно, его частота и амплитуда существенно изменяют характер поведения системы.

В связи с этим, в качестве альтернативного метода формирования стабильных субмикронных и нанодоменных РДС предлагается использовать явление переключения поляризации путем воздействия на кристалл сегнетоэлектрика на стадии его релаксации к полному термодинамическому равновесию высокочастотным монохроматическим электрическим полем специального вида. Теоретическое рассмотрение проведено на примере формирования микронных РДС в кристаллах LT.

2. ОПИСАНИЕ ОБЪЕКТА И МЕТОДОВ ИССЛЕДОВАНИЯ

Как известно, при быстром охлаждении сегнето-электрический кристалл переходит из высокотемпературной области, отвечающей параэлектрической фазе, в низкотемпературную область, в которой параэлектрическая фаза становится термодинамически неустойчивой. Вследствие чего система стремится эволюционировать к термодинамически стабильному состоянию, что, как правило, происходит через формирование пространственных областей, содержащих сегнетофазу. Это объясняется тем, что на ранних стадиях упорядочения, когда релаксация ближнего порядка уже произошла, в разных местах образца появляются области с отличной от нуля поляризацией (называемые 180° сегнетоэлектрическими доменами), которые, вообще говоря, распределены в пространстве случайным образом. В такой ситуации система оказывается чрезвычайно чувствительной к влиянию даже слабых внешних воздействий. Поэтому характер упорядочения кристалла определяется не только предысторией образца, но и внешними воздействиями, которые накладываются на него непосредственно после закалки. Следовательно, появляется возможность уже на стадии релаксации системы к термодинамическому равновесию задавать условия для реализации необходимой на практике доменной структуры сегнетоэлектрика.

Ранее нами изучалось влияние внешних воздействий таких, как квазистационарное электрическое поле, гидростатическое давление и температура закалки, на кинетику формирования сегнетоэлектрической доменной структуры, испытывающей фазовые переходы первого и второго рода типа порядок-беспорядок [9]. Была показана возможность использования этих управляющих параметров для формирования устойчивых однородных и неоднородных доменных структур. Данная работа посвящена исследованию путей формирования термодинамически стабильных РДС при воздействии на сегнетоэлектрик высокочастотным монохроматическим электрическим полем ещё на стадии релаксации системы к термодинамическому равновесию.

В качестве объекта наших исследований был выбран кристалл ЛТ. Это один из немногих одноосных сегнетоэлектриков, испытывающих единственный структурный фазовый переход второго рода типа порядок-беспорядок из параэлектрической в сегнетоэлектрическую фазу [11]. Кристаллы ЛТ обладают довольно простой доменной структурой. И как в случае других одноосных сегнетоэлектриков, в его сегнетофазе существует «спонтанный» линейный электрооптический эффект, приводящий к изменению показателя преломления света, распространяющегося вдоль полярной оси, при приложении внешнего электрического поля. Благодаря этому свойству данный кристалл легко поддается модельным расчетам с последующей экспериментальной проверкой с помощью методов оптической микроскопии.

Рассмотрим ситуацию, когда закалка образца происходит в отсутствие внешнего поля. А на стадии последующей релаксации на образец накладывается высокочастотное электромагнитное поле, электрическая составляющая которого имеет вид плоскополяризованной стоячей волны, с вектором поляризации, коллинеарным направлению полярной оси

монокристалла

$$E_z(x, t) = 2E_{mz} \cos(kx) \sin(\Omega t), \quad (1)$$

где $|2E_{mz} \cos(ikx)|$ – пространственно-неоднородная амплитуда электрического поля, k – волновой вектор, Ω – частота внешнего электрического поля (в рад/с), x – направление распространения бегущих волн поля, формирующих стоячую волну.

Исследуем, как будет изменяться характер эволюции дальнего порядка в данном диапазоне частот, и проследим, каким образом может протекать эволюция неравновесной системы.

Проанализируем, при каких значениях частот электрического поля, формируется стабильная полидоменная РДС, и оценим ее характерный период. Определим диапазон частот электрического поля, при котором возможно формирование в кристалле сегнетоэлектрика РДС микронного пространственного масштаба. Учитывая, что $\lambda = 2\pi c/n\Omega$, где λ — длина волны (период доменной структуры), c — скорость света в вакууме, n – показатель преломления кристалла ЛТ. Таким образом, для получения РДС микронного периода $\sim 10^{-3} \cdot 10^{-6}$ м образец на стадии релаксации к термодинамическому равновесию необходимо подвергнуть воздействию электрическим полем в диапазоне частот $\Delta\Omega/2\pi = \Delta f = 4.8 \cdot 10^{10} \cdot 4.8 \cdot 10^{13}$ Гц.

Для количественного описания изменений, происходящих в сегнетоэлектрике при прохождении через точку T_C фазового перехода второго рода типа порядок-беспорядок, вводится одна или несколько величин, называемых параметрами порядка π_i . В случае одноосного сегнетоэлектрика, каковым является ЛТ, в качестве данной величины может быть выбрана проекция вектора спонтанной поляризации на направление полярной оси кристалла $\pi_i \equiv \pm P_z$. Как и в предшествующих наших работах [9], для описания процесса перехода кристаллов ЛТ из неравновесного состояния в состояние полного термодинамического равновесия будем использовать неравновесный термодинамический потенциал системы в виде функционала Гинзбурга-Ландау. Для собственного одноосного сегнетоэлектрика, свободно от механических напряжений, во внешнем электрическом поле можем записать

$$\begin{aligned} \Phi\{P, \nabla P\} = & \Phi_0(T) + \\ & + \int \left[\frac{1}{2} a(T_C - T) P_z^2(x, t) + \frac{1}{4} B P_z^4(x, t) + \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} G (\nabla P_z(x, t))^2 - P_z E_z(x, t) \right] dV \end{aligned} \quad (2)$$

где $P_z(x, t)$, $E_z(x, t)$ – компоненты векторов поляризации \mathbf{P} и электрического поля \mathbf{E} вдоль полярной оси кристалла z , а $\Phi_0(T)$ – часть термодинамического потенциала, не зависящая от параметра порядка сегнетоэлектрика. Поскольку характерный масштаб энергии в данной задаче порядка температуры Кюри T_C , константы, входящие в функционал (2), можно оценить, как $B \sim T_C$, $G \sim T_C r_0^2$, где r_0 – радиус взаимодействия, который, как правило, составляет по-

рядка нескольких постоянных решетки. Здесь и всюду в дальнейшем температура измеряется в энергетических единицах, т. е. постоянная Больцмана $k_B = 1$. В начальный момент времени, т.е. после закалки, пространственная неоднородность поляризации образца P может иметь случайный характер.

Следуя нашим работам, динамику данной системы будем описывать с помощью релаксационного уравнения Ландау-Халатникова для несохраняющегося параметра порядка (поляризации)

$$\frac{\partial P_z}{\partial t} = -\gamma \frac{\delta \Phi}{\delta \pi}. \quad (3)$$

Здесь $\pi = P_z/P_0$ – безразмерный параметр порядка (P_0 – некоторая характерная поляризация кристалла); $\gamma = (t^*T_C)^{-1}$ – кинетический коэффициент, где t^* – характерное время элементарного акта перестройки системы (обмена местами атомов), которое определяется выражением $t^* = \exp(Q_a/kT)/\Omega_D$, (Q_a – энергия активации, Ω_D – температура Дебая). Поскольку в сегнетоэлектриках, испытывающих фазовый переход типа порядок-беспорядок частота налагаемого внешнего электрического поля не превышает частоты собственных колебаний атомов, то высшие производные по времени в левой части динамического уравнения (3) можно не учитывать,

Измеряя время в единицах t_i , а пространственный масштаб – в единицах r_0 , уравнение (3) с учетом (2) можно записать в безразмерном виде

$$\frac{\partial \pi}{\partial \tau} = \Delta \pi + \alpha \pi - \pi^3 + \varepsilon(x, \tau), \quad (4)$$

где Δ — лапласиан, $\alpha(T) = (T_C - T)/T_C$ – безразмерный параметр закалки, описывающий степень переохлаждения системы по отношению к температуре упорядочения, $\varepsilon(x, \tau) = E_z(x, \tau)/T_C = \varepsilon_m \cos(kx) \sin(\omega \tau)$ – внешнее электрическое поле в безразмерных единицах, где ε_m – безразмерная амплитуда электрического поля. Для описания кинетики упорядочивающейся системы, которая подверглась быстрому охлаждению, можно ограничиться определением средних величин ввиду случайного пространственного распределения параметра порядка. Процедура определения среднего значения параметра порядка $\langle \pi(r, \tau) \rangle \equiv \bar{\pi}(\tau)$ и двухточечной корреляционной функции $K(s, \tau)$, где $s = r' - r$, которую мы применяли ранее [9], достаточно универсальна, поэтому может быть использована и для случая, когда система подвержена внешнему воздействию, с пространственно-периодическим распределением электрического поля. Естественно ожидать, что в данном случае пространственное распределение поляризации в образце (в особенности, на заключительной стадии релаксации) будет определяться индуцирующим электрическим полем и иметь регулярный характер. Следовательно, для описания кинетики упорядочивающейся системы, которая подверглась быстрому охлаждению, можно ограничиться рассмотрением средних по образцу значений параметра порядка. Процедура определения среднего значения параметра порядка $\langle \pi(x, \tau) \rangle \equiv \bar{\pi}(\tau)$ и двухточечной корреляционной функции $K(x, \tau)$, где $s = x' - x$ которую мы

применяли ранее, универсальна и может быть использована для случая, когда система подвержена высокочастотному воздействию. Данный подход позволяет получить следующую систему уравнений для функций $\bar{\pi}(\tau)$ и $K(x, \tau)$

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2}(\alpha\bar{\pi} - 3K(0, \tau)\bar{\pi} - \bar{\pi}^3 + \varepsilon(\tau)) \\ \frac{\partial K(s, \tau)}{\partial \tau} = \Delta K(s, \tau) + (\alpha - K(0, \tau) - 3\bar{\pi}^2)K(s, \tau) \end{cases}. \quad (5)$$

Кроме электрического поля, данная система содержит параметр закалки α , варьирование величины которого также влияет на формирование РДС, наряду с высокочастотным полевым воздействием. Ввиду нелинейного характера системы (5) она не может быть решена аналитически, но может быть сведена к системе обыкновенных дифференциальных уравнений с помощью Фурье-преобразования по пространственной переменной s

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2}((\alpha - 3D(\tau) - \bar{\pi}^2)\bar{\pi} + \varepsilon(\tau)) \\ \frac{dD(\tau)}{d\tau} = (\alpha_{eff}(\tau) - D(\tau) - 3\bar{\pi}^2)D(\tau) \end{cases}, \quad (6)$$

где $D = D(\tau) = K(0, \tau)$ — дисперсия поляризации. В работе [9] показано, что коэффициент $\alpha_{eff}(\tau)$ определяется средним размером начальных неоднородностей параметра порядка $r_c(0)$.

С точки зрения практического применения исследование системы (6) представляет наибольший интерес вблизи температуры перехода, когда выполняется неравенство $r_c^2(0) \ll 1/\alpha \ll d^2$, где d - размер образца. В этом случае при $\tau \rightarrow \infty$ величина $\alpha_{eff}(\tau)$ стремится постоянно значению ($\alpha = const$), т. е. система (6) приобретает вид

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2}((\alpha - 3D(\tau) - \bar{\pi}^2)\bar{\pi} + \varepsilon(\tau)) \\ \frac{dD(\tau)}{d\tau} = (\alpha - D(\tau) - 3\bar{\pi}^2)D(\tau) \end{cases}, \quad (7)$$

Но даже упрощенная система (7) не может быть решена аналитически. Поэтому для получения информации о завершающих стадиях процесса упорядочения исследуем асимптотическую систему (7), при условии ($d\bar{\pi}/d\tau \rightarrow 0$, $dD/d\tau \rightarrow 0$, $\varepsilon \rightarrow 0$), используя концепцию фазового портрета [9]. Малый размер сформировавшихся в процессе закалки зародышей обуславливает возможность протекания эволюции закаленных областей на стадии релаксации по разным сценариям, в зависимости от налагаемых на неравновесную систему внешних воздействий. Для получения в сегнетоэлектрике РДС будем рассматривать ситуацию, когда закалка кристалла производится в отсутствие внешнего поля, а на стадии последующей релаксации он подвергается высокочастотному электрическому воздействию, пространственное распределение индуцирующего поля и определяет характер конечной ДС.

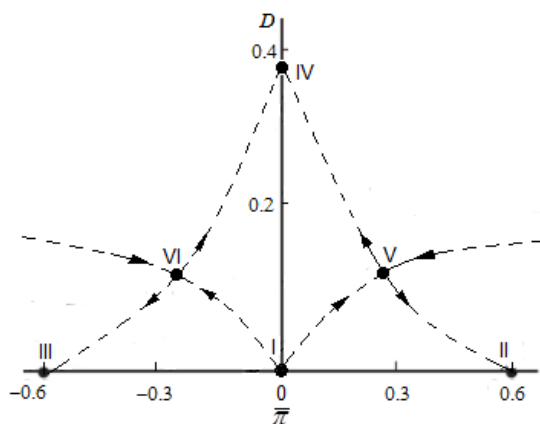


Рис. 1 – Фазовый портрет системы в переменных $(\bar{\pi}, D)$ с указанием особых точек и сепаратрис. Штриховые кривые – сепаратрисы. Особые точки обозначены римскими цифрами

Для кристаллов ЛТ в области температур, превышающих температуру Кюри $T > T_c$, имеется только одна особая точка (устойчивый узел) с координатами $(\bar{\pi} = 0, D = 0)$ (рис. 1). Она характеризует неупорядоченное состояние системы, которое не представляет особого интереса. Но при резком охлаждении сегнетоэлектрика до температур ниже температуры Кюри $T < T_c$ парафаза становится термодинамически неравновесной, т.е. особо восприимчивой как к вариации начальных параметров закалки, так и к любым внешним воздействиям. Решение асимптотической системы (7) позволяет получить фазовый портрет с шестью особыми точками, которые расположены в верхней полуплоскости.

Детальный анализ аналогичного фазового портрета при температурах ниже температуры Кюри $T < T_c$ был проведен нами в [9] в случае наложении внешнего квазистационарного поля. Показано, что система может эволюционировать к трем устойчивым доменным состояниям, отвечающим точкам II, III и IV (рис. 1). Поскольку в данной работе предполагается выключение внешнего электрического поля на больших временах ($\varepsilon \rightarrow 0$ при $\tau \rightarrow \infty$), то особые точки системы от внешнего электрического поля никак не зависят. В данной ситуации особая точка I с координатами $(\bar{\pi} = 0, D = 0)$ является неустойчивым узлом и характеризует начальное неупорядоченное состояние системы (рис. 1). Особые точки II с координатами $(\bar{\pi} = \sqrt{\alpha}, D = 0)$ и III с координатами $(\bar{\pi} = -\sqrt{\alpha}, D = 0)$ являются устойчивыми узлами и отвечают монодоменным состояниям упорядочения с поляризацией вдоль и против поля соответственно (рис. 1). Наша задача направлена на поиск условий, позволяющих получать РДС, поэтому особый интерес вызывает рассмотрение точки IV с координатами $(\bar{\pi} = 0, D = a)$. Она отвечает развитой и термодинамически стабильной доменной структуре. Ранее нами было показано, что реализация данной структуры путем варьирования начальных условий происходит гораздо легче для сегнетоэлектриков, испытывающих фазовые переходы второго рода [9], что подтверждает целесообразность выбора кристалла танталата лития для проведения модельных расчетов.

Особые точки V с координатами $(\bar{\pi} = \sqrt{\alpha}/2, D = a/4)$

и VI с координатами $(\bar{\pi} = -\sqrt{\alpha}/2, D = a/4)$ отвечают особым полидоменным состояниям, которые характеризуются асимметрией объемной доли доменов с вектором поляризации вдоль и против поля. В каком именно квадранте фазового портрета будет развиваться эволюция неравновесной системы определяется, вообще говоря, случайными факторами. Так, если на этапе ранней релаксации поляризация внешнего поля будет направлена вдоль поляриной оси кристалла, то система будет эволюционировать через точку V к точке II, в обратном случае – через точку VI к точке III. Данные состояния являются «виртуальными» полидоменными фазами, в которых система пребывает короткое время, а затем переходит в одно из устойчивых состояний. Время пребывания системы в квазистационарной фазе определяется тем, насколько точно подобраны начальные условия относительно особой точки I. С точки зрения практического применения данные состояния особого интереса не представляют.

При описании динамики системы и поиске условий для формирования РДС, важно удостовериться, что после установления стационарного состояния структура будет стабильной и устойчивой к влиянию внешних воздействий. Поэтому при последующих численных расчетах следует предусмотреть выключение внешнего электрического поля ($\varepsilon \rightarrow 0$) тем или иным способом.

3. ОПИСАНИЕ И АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Чтобы описать эволюцию доменной структуры в кристаллах ЛТ на всех временах необходимо решать полную систему эволюционных уравнений (6). Для численных расчетов мы воспользовались программным пакетом MatLab и методом Рунге-Кутты для решения систем дифференциальных уравнений. Численный анализ проводился для случая, когда образец испытывает закалку в отсутствие внешнего поля, т.е. средняя начальная поляризация образца полагалась равной нулю, т.е. $\bar{\pi}_0 = 0$. И только после быстрой закалки в область температур ниже T_c , когда релаксация ближнего порядка уже произошла, на систему налагается высокочастотное электрическое поле в виде стоячей волны (1). Исследуем, каков будет характер эволюции доменной структуры, и в каком диапазоне частот реализуются периодические доменные структуры, отвечающие точке IV на фазовом портрете (рис. 1).

Как оказалось, варьируя лишь частоту электрического поля, можно существенно влиять не только на кинетику упорядочения, но и на конечный результат эволюции неравновесной системы.

На рис. 2 видно, что сегнетоэлектрик может переходить как в монодоменные состояния (кривые 1, 2), так и в устойчивое полидоменное состояние (кривые 3, 4).

Причем в случае кривых 1 и 4 наблюдается переход к термодинамическому равновесию непосредственно, тогда как кривые 2 и 3 описывают процесс упорядочения системы, проходящий через промежуточные («виртуальные») полидоменные состояния. Это явно прослеживается на эволюционных кривых для средней поляризации (рис. 3) в виде своеобразных

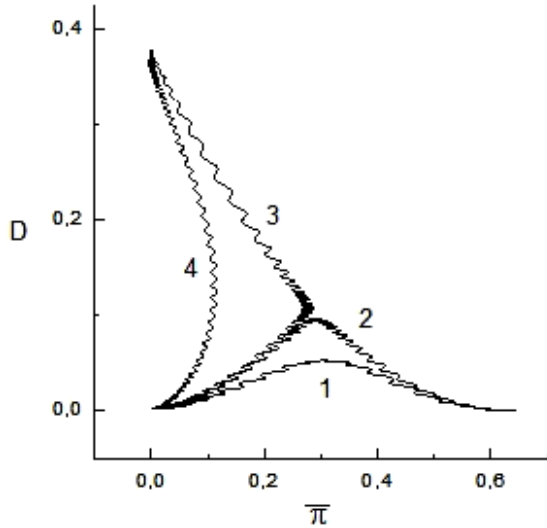


Рис. 2 – Фазовые траектории системы при значениях параметров $\alpha = 0.04$, $r_c(0) = 2$, $\bar{\pi}_0 = 0$, $D_0 = 0.002$, $\varepsilon_m = 0.05$. Кривые 1-4 отвечают значениям частот электрического поля ω (в безразмерных единицах), равным {4; 5; 5.1; 10} соответственно

«плато» (кривые 2, 3). Аналогичная картина наблюдается и на эволюционных кривых для дисперсии $D = D(\tau)$, которые мы здесь не приводим.

На рис. 2 представлена ситуация, когда неравновесная система эволюционирует в первом квадранте фазового портрета (рис. 1).

Во втором квадранте фазового портрета (рис. 1) эволюция системы будет протекать аналогично.

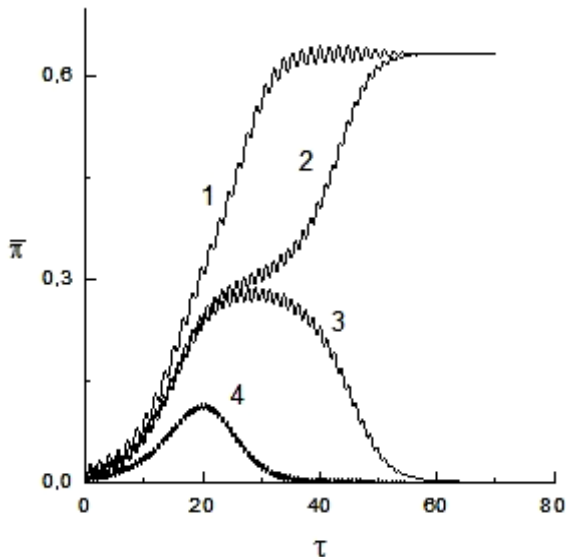


Рис. 3 – Эволюционные кривые для средней поляризации $\bar{\pi}(\tau)$ при тех же значениях параметров α , ε и ω и начальных условиях после закалки системы, что и на рис. 2, τ – безразмерное время

Фазовый портрет, полученный численными методами (рис. 2), позволяет детально рассмотреть процесс упорядочения сегнетоэлектрического образца.

При не слишком больших частотах внешнего электрического поля удастся проследить процесс эволюции системы на уровне осцилляций, что хорошо видно на эволюционном графике для средней

поляризации (рис. 3). Чтобы убедиться, что конечные доменные структуры являются термодинамически стабильными, необходимо предусмотреть сравнительно «резкое» выключение внешнего (индуцирующего) электрического поля тем или иным способом. На рис. 3 видно, что при плавном выключении электрического поля, происходит постепенное исчезновение временных осцилляций средней поляризации, что говорит о термодинамической стабильности как монодоменного, так и полидоменного состояний упорядочения. При численных расчётах выключение внешнего электрического поля задавалось функцией

$$\varepsilon(\tau) = \varepsilon_m (1 - \tanh \beta(\tau - \tau_f)), \quad (8)$$

где τ_f – момент выключения электрического поля (при расчетах мы использовали значение $\tau_f = 50$). Скорость выключения поля в (8) определяется коэффициентом β , который мы полагали равным 0.2.

Численный анализ проводился для системы уравнений (6) в безразмерных переменных. Однако, используя физические характеристики, относящиеся к кристаллам ЛТ, можно легко найти размерные частоты, при которых реализуется термодинамически стабильная РДС. Зная температуру сегнетоэлектрического фазового перехода ($T_c = 933$ К), температуру Дебая ($T_D = 452$ К) и энергию активации ($Q_a = 0.55$ eV) для кристалла ЛТ [11, 12], можно определить диапазоны частот для установления монодоменного и полидоменного упорядочения. Поскольку для кристалла ЛТ частота Дебая Ω_D равна $5.91 \cdot 10^{13} \text{ c}^{-1}$. Тогда характерное время t^* для него оказывается равным $1.52 \cdot 10^{-11} \text{ c}$. Учитывая, что $\Omega = \omega/t^*$, нетрудно определить значения частот f (в Гц), при которых кристалл ЛТ релаксирует к монодоменному или полидоменному типу упорядочения.

Таким образом, кривые 1-4 отвечают значениям частот $f = \{4.2 \cdot 10^{11}; 5.2 \cdot 10^{11}; 5.3 \cdot 10^{11}; 1.1 \cdot 10^{12}\}$ Гц соответственно. В диапазоне частот $\Delta f = 5.2 \cdot 10^{11} - 5.3 \cdot 10^{11}$ Гц система испытывает переход через «виртуальную» полидоменную фазу, и вероятность ее эволюции к моно- или полидоменной структуре определяется точностью подбора других условий закалки. Однако, можно заметить, что при частотах $f < 5.2 \cdot 10^{11}$ Гц реализуется термодинамически устойчивое монодоменное состояние. Как показал численный анализ, развитая термодинамически стабильная полидоменная РДС реализуется только при частотах, превышающих $5.3 \cdot 10^{11}$ Гц и характерный период вышеуказанной структуры оказывается порядка нескольких десятков или сотен микрометров. Используя же более высокие частоты внешнего электрического поля, можно получить термодинамически устойчивые РДС не только микронного пространственного масштаба, но и с периодом в нанометровом диапазоне, которые имеют важное практическое значение.

4. ВЫВОДЫ

В данной работе на примере кристаллов ЛТ, испытывающих фазовый переход второго рода типа порядок-беспорядок, рассмотрена кинетика упорядочения доменной структуры под влиянием электрического поля специального вида (1).

В отличие от работ [9], где система релаксирует в условиях слабого квазистационарного электрического поля, здесь образец подвергается высокочастотному монохроматическому излучению.

Показано, что варьируя частоту электрического поля, можно получать не только монодоменный тип упорядочения, но и развитые устойчивые полидоменные РДС.

Качественный анализ системы нелинейных эволюционных уравнений для средней поляризации и дисперсии позволил установить наличие стационарных особых точек (устойчивых узлов II, III, IV), к которым будет эволюционировать доменная структура сегнетоэлектрика, а также двух седловых точек V и VI. В связи с этим оказывается, что в процессе релаксации в термодинамически устойчивые состояния система может пребывать какое-то время в короткоживущей («виртуальной») фазе, отвечающей полидоменному типу упорядочения с выраженной асимметрией доменов разных знаков (точки V, VI).

Численный анализ системы полных эволюционных уравнений (6) позволил проследить процесс

формирования как монодоменных, так и полидоменных состояний сегнетоэлектриков на всех его этапах.

При избранном нами типе поляризации внешнего электрического поля ожидается, что индуцированная РДС будет иметь периодический (полосовой) характер в направлении распространения поля, т.е. вдоль оси x .

Было установлено, что формирование полидоменных структур носит пороговый характер, т.е. это происходит при частотах, превышающих некоторую критическую величину (для кристаллов ЛТ это $5.3 \cdot 10^{11}$ Гц), когда реализуется полидоменное состояние упорядочения (РДС), имеющее практически нулевую среднюю поляризацию. Воздействуя на кристалл ЛТ высокочастотным электрическим полем с частотой, близкой к $5.3 \cdot 10^{11}$ Гц, можно получать РДС размером в десятки или сотни микрометров.

При более высоких частотах внешнего электрического поля появляется возможность сформировать в образцах ЛТ наномасштабные РДС, что расширяет возможности применения этого материала для создания устройств акустоэлектроники и нелинейной оптики.

The Formation of Regular Domain Structures in Ferroelectrics under Switching Polarization in High-nonequilibrium Conditions

L.I. Stefanovich, O.Yu. Mazur

Institute of Physics for Mining Processes of the NAS of Ukraine, 2a, Simferopolska St., 49005 Dnipro, Ukraine

The kinetics of the formation and growth of regular domain structure (RDS) in a high-frequency electric field has been considered in the framework of the phenomenological Ginzburg-Landau model using the example of lithium tantalite (LiTaO_3) crystals that undergo a second-order ferroelectric phase transition of the order-disorder type. The numerical analysis was made due to the nonlinearity of resulting equation, and showed the opportunity of the formation of monodomain and polydomain ordering conditions and intermediate asymmetrical «virtual» polydomain structures. It was established by numerical calculations that there is some threshold frequency of the electric field, above which the system evolve to the polydomain type of ordering. It has been shown that the symmetrical thermodynamically stable RDS forms under high frequencies.

Keywords: Ferroelectric, Order parameter, Electric field, High-frequency field, Regular domain structure, Monodomain structure, Polydomain structure, Evolution curves.

Формування регулярних доменних структур у сегнетоелектриках при перемиканні поляризації у сильнонерівноважних умовах

Л.І. Стефанович, О.Ю. Мазур

Інститут фізики гірничих процесів НАН України, вул. Сімферопольська, 2а, 49005 Дніпро, Україна

На прикладі кристалів танталата літію (LiTaO_3), що зазнає сегнетоелектричний фазовий перехід другого роду типу порядок-непорядок, в рамках моделі Гінзбурга-Ландау розглянуто кінетика формування регулярних доменних структур (РДС) під впливом високочастотного електричного поля. Зважаючи на нелінійність отриманих рівнянь був проведений чисельний аналіз, який показав, що можливе формування монодоменного і полідоменного станів впорядкування, а також проміжних асиметричних «виртуальних» полідоменних структур. Шляхом чисельних розрахунків встановлено, що існує деяка порогова частота електричного поля, вище за яку система еволюціонує до полідоменного типу впорядкування. Показано, що при високих частотах формується симетрична термодинамічно стабільна РДС.

Ключові слова: Сегнетоелектрик, Параметр порядку, Електричне поле, Високочастотне поле, Регулярна доменна структура, Монодоменна структура, Полідоменна структура, Еволюційні криві.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 435 (1993).
2. V.Ya. Shur, E.L. Romyantsev, E.V. Nikolayeva, E.I. Shishkin, R.G. Batchko, M.M. Fejer, R.L. Byer, *Ferroelectrics* **236**, 129 (2001).
3. T. Sugita, K. Mizuuchi, Y. Kitaoka, K. Yamamoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, 1751 (2001).
4. A.C. Busacca, C.L. Sones, V. Apostopoulos, R.W. Eason, S. Mailis, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4946 (2002).
5. V.Ya. Shur, *Ferroelectrics* **373**, 1 (2008).
6. V.Ya. Shur, *Ferroelectrics* **340**, 3 (2006).
7. V.Ya. Shur, *Ferroelectrics* **399**, 97 (2010).
8. J. Wittborn, C. Canalias, K.V. Rao, R. Clemens, H. Karlson, F. Laurell, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1622 (2002).
9. O.U. Mazur, L.I. Stefanovich, V.M. Yurchenko, *Phys. Solid State* **57** No 3, 576 (2015).
10. A.V. Khomenko, D.S. Troshchenko, D.V. Boyko, M.V. Zaharov, *J. Nano- Electron. Phys.* **7** No 1, 01039 (2015).
11. H. Anwar, A. Pugachev, S. Kojima, *Phys. Solid State* **48** No 6, 1050 (2006).
12. J. Liu, M.N. Banis, X. Li, A. Lushington, M. Cai, R. Li, T.-K. Sham, X. Sun, *J. Phys. Chem.* **117**, 20260 (2013).