01;05

Релаксационные поляризации в диэлектриках при распределении релаксаторов Диссадо-Хилла

© А.С. Богатин, А.В. Турик, Е.В. Андреев, Ю.А. Игнатова, С.А. Ковригина, В.Н. Богатина

Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону E-mail: asbbogatin@sfedu.ru

Поступило в Редакцию 9 августа 2011 г.

Исследовано разделение релаксационных поляризаций на сильные и слабые при распределении релаксаторов Диссадо-Хилла. Установлены границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями, зависящие от параметров распределения и отношения вкладов в диэлектрическую проницаемость вещества релаксационных и быстрых поляризаций. Область сильных релаксаций характеризуется наличием экстремумов в частотных зависимостях мнимых частей комплексной проводимости.

Принято считать, например [1], что наличие в диэлектрике сквозной электропроводности затрудняет исследование в таких диэлектриках релаксационной поляризации. В самом деле, считалось общепризнанным, что появление сквозной электропроводности уменьшает глубину экстремумов в частотных зависимостях $\varepsilon''(\omega)$ и tg $\delta(\omega)$, по которым возможно определение параметров релаксационной поляризации. Нами установлено [2], что такое влияние сквозной электропроводности на характеристики релаксационной поляризации не является единственно возможным. При определенных условиях увеличение сквозной электропроводности может привести не к уменьшению, а к увеличению экстремумов в tg $\delta(\omega)$. Релаксационные поляризации, характеризующиеся подобными частотными зависимостями tg δ , названы нами сильными [2]. Термин слабые закреплен за релаксационными поляризациями, в которых сквозная электропроводность уменьшает глубину экстремумов в tg $\delta(\omega)$. Для дебаевское релаксационной поляризации положение границы между сильными и слабыми релаксациями зависит исключительно от величины отношения $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$. Здесь $\Delta \varepsilon = \varepsilon_{st} - \varepsilon_{\infty}$, где ε_{st} , ε_{∞} —

58

соответственно низкочастотная и высокочастотная диэлектрические проницаемости. В дебаевском случае [2] релаксационные поляризации при $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty} > 8$ сильные, а при $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty} < 8$ слабые. Мы определили границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями для распределений релаксаторов Коула–Коула, Дэвидсона–Коула, Гавриляка–Негами, Фрелиха [3–6]. В этих случаях границы между релаксационными поляризациями зависят как от величины $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$, так и от параметров распределений.

Одним из широко используемых распределений релаксаторов является распределение Диссадо-Хилла [7]. Его успешно используют для интерпретации экспериментальных результатов дисперсии диэлектрической проницаемости в диэлектриках [8]. При распределении Диссадо-Хилла выражение для комплексной диэлектрической проницаемости имеет вид

$$\varepsilon^* = \varepsilon_{\infty} + \frac{\Delta \varepsilon \left(\Gamma(1-n+m)_2 F_1(1-n,1-m;2-n;\frac{1}{1+j\omega\tau}) \right)}{\Gamma(2-n)\Gamma(m)(1+j\omega\tau)^{1-n}}$$
(1)

$$(_2F_1(\ldots,\ldots;\ldots;\ldots) - Gaussian hyperheometric function).$$

Разделение в выражении (1) действительной ε' и мнимой ε'' частей комплексной диэлектрической проницаемости

$$\mathcal{L}\varepsilon\left(\Gamma(1-n+m)_{2}F_{1}(1-n,1-m;2-n;\frac{1}{1+(\omega\tau)^{2}})\right) \times \times \left(1+(\omega\tau)^{2}\right)^{(n-1)/2}\cos\left((n-1)\arctan(\omega\tau)\right), \quad (2)$$

$$\mathcal{E}'' = \frac{\Delta \varepsilon \left(\Gamma(1-n+m)_2 F_1(1-n, 1-m; 2-n; \frac{\omega \tau}{1+(\omega \tau)^2}) \right) \times}{\Gamma(2-n)\Gamma(m)}$$
(3)

позволяет исследовать диаграммы Коула-Коула для этого распределения, некоторые из которых приведены на рис. 1. При m = 1 и n = 0 распределение Диссадо-Хилла переходит в дебаевское. С уменьшением параметра распределения m центр распределения смещается в сторону более высоких частот, а с увеличением n — в сторону более низких частот. При этом увеличение n и снижение m увеличивают отступление поляризации от дебаевской. При распределении



Рис. 1. Диаграммы Коула-Коула для распределения Диссадо-Хилла: 1 - m = 1, n = 0; 2 - m = 0.7, n = 0; 3 - m = 0.4, n = 0; 4 - m = 0.2, n = 0; 5 - m = 1, n = 0.4; 6 - m = 1, n = 0.7.

релаксаторов Диссадо-Хилла так же, как и при ранее исследованных распределениях, возможно разделение релаксационной поляризации на сильную и слабую. На рис. 2 представлены графики, характеризующие частотные зависимости tg δ для слабой и сильной релаксационной поляризации. Увеличение удельной электропроводности вещества σ_{st} при слабой релаксации сглаживает экстремумы в зависимостях tg(ω), а при сильной увеличивает разность значений tg δ в максимумах и минимумах. С учетом сквозной электропроводности выражение для tg δ диэлектрика приобретает вид

$$tg \,\delta = \frac{\sigma_{st}/\varepsilon_0 \omega}{\varepsilon'} + \frac{\Delta \varepsilon \left(\Gamma(1-n+m)_2 F_1(1-n,1-m;2-n;\frac{\omega \tau}{1+(\omega \tau)^2}) \right) \left(1+(\omega \tau)^2 \right)^{(n-1)/2} \sin \left((n-1) \arctan(\omega \tau) \right)}{\Gamma(2-n)\Gamma(m)}}{\varepsilon'} = tg \,\delta_1 + tg \,\delta_2.$$
(4)

Первое слагаемое в выражении (4) описывает вклад в тангенс угла диэлектрических потерь диэлектрика сквозной электропроводности, а



Рис. 2. Частотные зависимости tg δ_A — слабая релаксационная поляризация $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty} = 8$; n = 0.3; m = 0.5 $(I - \sigma_{st} = 10^{-7} \text{ S/m}; 2 - \sigma_{st} = 2 \cdot 10^{-6} \text{ S/m}; 3 - \sigma_{st} = 5 \cdot 10^{-6} \text{ S/m})$; tg δ_B — сильная релаксационная поляризация $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty} = 1000$; n = 0.1; m = 0.2 $(I - \sigma_{st} = 10^{-6} \text{ S/m}; 2 - \sigma_{st} = 4 \cdot 10^{-6} \text{ S/m}; 3 - \sigma_{st} = 8 \cdot 10^{-6} \text{ S/m})$. На врезке зависимости разности значений tg δ в максимумах и минимумах от величины сквозной электропроводности; I — для слабой релаксационной поляризации, 2 — для сильной релаксационной поляризации. $\Delta \varepsilon = 1000$, $\tau = 10^{-3}$ s.

второе — собственно релаксационной поляризации. Соотношение между этими вкладами зависит от величины σ_{st} . При больших значениях σ_{st} , когда tg δ_1 становится существенно больше tg δ_2 , именно сквозная электропроводность определяет поведение tg $\delta(\omega)$. От поведения функции tg $\delta_1(\omega)$ зависит, является релаксационная поляризация в исследуемом диэлектрике сильной или слабой.



Рис. 3. Границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями (пунктирные кривые). Графики зависимостей σ_{st} , превышение которой приводит к исчезновению экстремумов в зависимостях tg $\delta(\omega)$, от параметра распределения *m* (сплошные линии).

Расчеты, проведенные нами, позволили в случае распределения Диссадо-Хилла определить границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями. Результаты этих расчетов приведены на рис. 3. Границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями представлены пунктирными линиями. Левее и выше этих кривых релаксационная поляризация является сильной, правее и ниже слабой. Для каждого значения *n* находится свое значение $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$, ниже которого поляризация может быть только слабой. С ростом *n* это минимальное значение $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$ увеличивается. С ростом *n* увеличивается и область значений т, при которых поляризация не может стать сильной. При n > 0.25 поляризация при любых значениях m и $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$ может быть только слабой. В областях слабой поляризации определены значения σ_{st} , превышение которых приводит к исчезновению экстремумов в $tg(\omega)$. Эти значения представлены на рис. 3 сплошными кривыми для параметра распределения n = 0.15. Числа около кривых — значения $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty}$. Вплоть до значений $\Delta \varepsilon / \varepsilon_{\infty} = 20$ поляризация при любых m

остается слабой. Дальнейшее увеличение $\Delta \varepsilon_{\infty}$ приводит к тому, что появляется, а при дальнейшем росте $\Delta \varepsilon/\varepsilon_{\infty}$ расширяется область значений *m*, при которых поляризация является сильной. С ростом *n* величина отношения $\Delta \varepsilon/\varepsilon_{\infty}$, до которого поляризация остается слабой, увеличивается. На описанных кривых числом 0 обозначения линия, показывающая σ_{st} , превышение которой приводит к исчезновению экстремумов в зависимостях $\varepsilon(\omega)$. Как и при других распределениях релаксаторов, при распределении Диссадо-Хилла экстремумы в $\varepsilon''(\omega)$ исчезают при существенно меньших значениях σ_{st} , чем в зависимостях tg $\delta(\omega)$.

При распределении Диссадо—Хилла в случае сильной релаксационной поляризации наблюдаются экстремумы в частотных зависимостях мнимых частей δ'' комплексной электропроводности. При слабой релаксационной поляризации экстремумы в этих зависимостях отсутствуют. Такое совпадение не случайно. В самом деле, из (4) выражение

$$\operatorname{tg} \delta_{1} = \frac{\sigma_{st}/\omega\varepsilon_{0}}{\varepsilon_{\infty} + F(\omega, \Delta\varepsilon, \tau)},\tag{5}$$

а

$$\sigma_{st} = \omega \varepsilon_0 \big(\varepsilon_\infty + F(\omega, \Delta \varepsilon, \tau) \big). \tag{6}$$

В выражениях (5) и (6) ε_0 — электрическая постоянная, τ время релаксации, $F(\omega, \Delta \varepsilon, \tau)$ — вклад релаксационного процесса в ε' . Явный вид функции $F(\omega, \Delta \varepsilon, \tau)$ зависит от распределения релаксаторов и параметров этого распределения. Выражения (5) и (6) с точностью до константы являются взаимно обратными. Экстремумы в этих двух выражениях совпадают по частоте. Разница лишь в том, что на местах максимумов в (4) в выражении (6) находятся минимумы, и наоборот: на местах минимумов в (4) в выражении (6) — максимумы. Таким образом, границы между сильными и слабыми релаксационными поляризациями проще искать, исследуя выражение (6), а не (5). Выражение (6) представляет собой произведение двух функций: $y = \omega$ и $\varepsilon' = (\varepsilon_{\infty} + F(\omega, \Delta \varepsilon, \tau))$. Наличие или отсутствие экстремумов в указанных зависимостях (5), (6), а следовательно то обстоятельство, что поляризация является сильной или слабой, зависит от соотношения ε_{∞} и $\Delta \varepsilon$ и их функциональной связи, определяемой используемым распределением релаксаторов.

Список литературы

- [1] Поплавко Ю.М., Переверзева Л.П., Раевский И.П. Физика активных диэлектриков. Ростов н/Д.: Изд-во ЮФУ, 2009. 480 с.
- [2] Богатин А.С., Лисица И.В., Богатина С.А. // Письма в ЖТФ. 2002. Т. 28.
 В. 18. С. 61–66.
- [3] Богатин А.С., Турик А.В., Ковригина С.А., Богатина В.Н., Андреев Е.В. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2010. Т. 74. С. 1115.
- [4] Богатин А.С., Турик А.В., Ковригина С.А., Богатина В.Н., Андреев Е.В. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2010. Т. 74. С. 1196.
- [5] Богатин А.С., Турик А.В., Ковригина С.А., Андреев Е.В. // Изв. РАН. Сер. Физ. 2010. Т. 74. С. 1266.
- [6] Bogatin A.S., Turik A.V., Kovrigina S.A., Bogatina V.N., Andreev E.V. // Ferroelectrics. 2011. V. 413. P. 266.
- [7] Yeung Y.Y., Shin F.G. // J. Materials Science. 1991. V. 26. P. 1781.
- [8] Dissado L.A., Hill R.M. // Nature. 1979. V. 279. P. 685.