

ДВУМЕРНО-ПЕРИОДИЧЕСКАЯ ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ВКЛЮЧЕНИЯ В МАТРИЦЕ

И. П. Ипатова, О. В. Прошина, В. А. Щукин

Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021, Санкт-Петербург, Россия

(Получена 15 июня 1993 г. Принята к печати 21 июня 1993 г.)

Найдена равновесная доменная структура сегнетоэлектрического включения, упруго взаимодействующего с параэлектрической матрицей, для случая фазового перехода из кубической в тетрагональную фазу. Это двумерно-периодическая структура доменов, имеющих форму протяженных вдоль направления [110] брусков прямоугольного сечения. Во включении присутствует четыре сорта сегнетоэлектрических доменов. Все доменные стенки являются незаряженными и представляют собой инвариантные плоскости без упругих напряжений. Рассчитаны периоды доменной структуры, определяемые конкуренцией энергии доменных стенок и энергии проникающих в матрицу электрических и упругих полей.

1. Введение

Пространственные неоднородности в образце существенно влияют на свойства фазовых переходов и характеристики доменных структур в низкосимметричной фазе. Достаточно распространенной является ситуация, когда фазовый переход происходит в ограниченной области образца (во включении), взаимодействующей с окружающей матрицей через поля упругих напряжений. Эта ситуация типична при исследовании зародышеобразования при фазовых переходах в сегнетоэлектрических (СЭ) [1] и магнитных [2] кристаллах, когда зародыш новой фазы можно рассматривать как включение в матрице при исследовании электронно-дырочных капель в полупроводниках [3].

При спинодальном распаде неустойчивых металлических сплавов [4, 5], когда фазовый переход осуществляется путем диффузии атомов на большие по сравнению с межатомными расстояния, такие структуры оказываются метастабильными с очень большими (практически бесконечными) временами жизни. Если фазовый переход не сопровождается диффузией, но происходит в неоднородной среде (при мартенситных фазовых превращениях в металлах [6, 7], переходах магнитного упорядочения в сплавах [8], при СЭ переходах в керамиках [9]), то фазовый переход во включении может соответствовать термодинамически равновесному состоянию системы. Так, сегнетоэлектрик с пространственными неоднородностями можно моделировать с помощью флуктуирующей в пространстве локальной температуры фазового перехода $T_0(r)$. Тогда при температурах, близких к среднему значению $\langle T_0 \rangle$, возникает ситуация, когда части образца выгодно перейти в СЭ состояние, а части остаться в параэлектрической (ПЭ) фазе. В работе [10] показано, что в некотором интервале температур вблизи $\langle T_0 \rangle$ образуется периодическая доменная структура, определяемая дальнедействующими полями, а пространственные флуктуации $T_0(r)$ не разрушают периодичность.

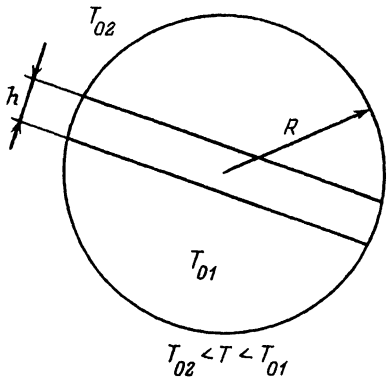


Рис. 1. Сегнетоэлектрическое включение в пространственно-неоднородной среде.

В случае СЭ перехода равновесная доменная структура включения обусловлена действующими электрическими полями и полями упругих напряжений, которые в силу электрострикции сопровождают СЭ фазовый переход. Роль упругих напряжений удобно проследить на простейшей модели, показанной на рис. 1. Пусть внутри сферы радиуса R локальная температура фазового перехода равняется T_{01} , вне сферы — T_{02} , а температура образца T такова, что $T_{02} < T < T_{01}$. Тогда фазовый переход выгоден внутри сферы. Если переход происходит во всем объеме сферы, то выигрыш в энергии за счет фазового перехода равен $(4\pi R^3/3) \alpha (T - T_{01})^2/B$ (здесь B — коэффициент при ангармоническом члене в разложении Ландау свободной энергии, $\alpha > 0$ — постоянная величина), а проигрыш в

упругой энергии, связанный с возникновением включения тетрагональной СЭ фазы в кубической ПЭ матрице, равен $(4\pi R^3/3) \lambda u_0^2$ (где λ — характерный модуль упругости, u_0 — характерная деформация).

Поскольку даже кубический кристалл является упругоанизотропным, то, как показано в [4] § 23, [5] § 11.3 Хачатуряном, упругая энергия сильно уменьшается, если включение имеет форму тонкой пластины с толщиной $h \ll R$, ориентированной определенным образом относительно кристаллографических осей. В таком случае проигрыш в упругой энергии составляет $(\pi R h^2) \lambda u_0^2$, а выигрыш в энергии за счет СЭ перехода равен $(\pi R^2 h) \alpha (T - T_{01})^2/B$. Отсюда следует, что при малой величине $|T - T_{01}|$ энергетически выгодным является только СЭ переход в тонкой пластине. Это принципиально отличается от случая сферического включения, рассмотренного в работе [9].

В настоящей работе изучаются оптимальная форма и ориентация включения СЭ фазы в ПЭ матрице и оптимальная доменная структура включения. Такая постановка задачи отличает ее от задачи о доменной структуре всего образца. В работе показано, что в сегнетоэлектриках возможна равновесная доменная структура, которая является двумерно-периодической системой протяженных параллельных брусков. Найдены оптимальные размеры доменов. Полученная двумерная доменная структура отличается от изучавшихся ранее одномерных структур упругих доменов пластинчатой формы, возникающих при мартенситных фазовых превращениях в металлах [6, 7], при распаде неустойчивых металлических сплавов [4, 5], неустойчивых полупроводниковых твердых растворов [11, 12]. Она отличается также и от иерархической структуры доменов различной толщины, возникающих в магнитно-упорядочивающихся сплавах [8].

2. Свободная энергия сегнетоэлектрика и уравнения равновесия

Для кристаллов со структурой перовскита, в которых происходит фазовый переход первого рода, близкий к переходу второго рода (например, в BaTiO_3), выражение для плотности свободной энергии вблизи температуры перехода T_0 имеет вид [13, 14]

$$f(P, u_{ij}, E) = f_0 - \frac{1}{2} \alpha \tau P^2 + \frac{1}{4} B_{ijkl} P_i P_j P_l P_m + \frac{1}{6} D_{ijklmpq} P_i P_j P_l P_m P_p P_q +$$

$$+ q_{ijkl} P_i P_j u_{lm} + \frac{1}{2} \lambda_{ijkl} u_{ij} u_{lm} + \frac{1}{2} \kappa_{ijkl} (\nabla_i P_j) (\nabla_l P_m) - P_i E_i - \frac{(4\pi \epsilon_0 \epsilon) E^2}{8\pi}. \quad (1)$$

Здесь $\alpha > 0$ — постоянная величина, B и D — ангармонические тензоры, $\tau = T_0 - T$, q_{ijkl} — тензор квадратичной электрострикции, λ_{ijkl} — тензор упругих модулей, u_{ij} — тензор деформации. Слагаемое $\frac{1}{2} \kappa_{ijkl} (\nabla_i P_j) (\nabla_l P_m)$ — плотность энергии, связанная с пространственной неоднородностью распределения поляризации. Два последних слагаемых дают вклад дальнедействующего электрического поля в плотность свободной энергии. Здесь ϵ — фоновая диэлектрическая проницаемость, не связанная с СЭ фазовым переходом.

Фактическое значение параметра порядка P_i определяется из условий равновесия.

а. Монодоменный образец. Уравнения равновесия для монодоменного образца в отсутствие механических напряжений и электрического поля (закороченный образец) имеют вид

$$\frac{\partial f}{\partial u_{ij}} = (\lambda_{ijkl} u_{lm} + q_{ijkl} P_l P_m) = 0, \quad (2)$$

$$\frac{\partial f}{\partial P_i} = (-\alpha \tau P_i + B_{ijkl} P_j P_l P_m + D_{ijklmnp} P_j P_l P_m P_n P_p + q_{ijkl} P_j u_{lm}) = 0. \quad (3)$$

Для рассматриваемого в работе случая перехода из кубической ПЭ в тетрагональную СЭ фазу уравнения (2) и (3) имеют 6-кратно вырожденное решение. Соответствующие значения вектора спонтанной поляризации $P_i^{(0)}$ и тензора равновесной структурной деформации $u_{ij}^{(0)}$ для шести сортов СЭ доменов приведены в таблице. Из данных таблицы видно, что домены с противоположно направленными векторами спонтанной поляризации $P_i^{(0)}(p)$ характеризуются одним и тем же тензором равновесной деформации $u_{ij}^{(0)}(p)$, т. е. два типа СЭ доменов, например 1 и 2, с точки зрения упругих свойств представляют собой один тип упругого домена I.

б. Полидоменный образец. В полидоменном образце в различных областях кристалла вектор поляризации P принимает различные значения (см. таблицу). При этом типична ситуация, когда характерная толщина доменных стенок гораздо меньше ширины самих доменов, а энергия доменных стенок составляет малую

Типы доменов при сегнетоэлектрическом фазовом переходе из кубической фазы в тетрагональную

Тип СЭ домена	1	2	3	4	5	6
$P_i^{(0)}$	$(P, 0, 0)$	$(-P, 0, 0)$	$(0, P, 0)$	$(0, -P, 0)$	$(0, 0, P)$	$(0, 0, -P)$
Ориентация	[100]		[010]		[001]	
Тип упругого домена	I		II		III	
$u_{ij}^{(0)}$	$\begin{pmatrix} u_2 & 0 & 0 \\ 0 & u_1 & 0 \\ 0 & 0 & u_1 \end{pmatrix}$		$\begin{pmatrix} u_1 & 0 & 0 \\ 0 & u_2 & 0 \\ 0 & 0 & u_1 \end{pmatrix}$		$\begin{pmatrix} u_1 & 0 & 0 \\ 0 & u_1 & 0 \\ 0 & 0 & u_2 \end{pmatrix}$	

долю полной энергии. Внутри домена типа p $P_i = P_i^{(0)}$, а плотность свободной энергии при наличии электрического поля имеет вид

$$f = f_0 + \frac{1}{2} \lambda_{ijlm} (u_{ij} - u_{ij}^{(0)}(p)) (u_{lm} - u_{lm}^{(0)}(p)) - P_i^{(0)}(p) E_i - \frac{(4\pi\epsilon_0\epsilon) E_i^2}{8\pi}. \quad (4)$$

Следует отметить, что для каждого типа домена величина плотности свободной энергии f принимает одно и то же значение f_0 .

Неоднородную полидоменную систему удобно описывать при помощи функций формы доменов типа p $\tilde{\theta}_p(\mathbf{r})$. Эти функции определяются таким образом, что $\tilde{\theta}_p(\mathbf{r}) = 1$, если радиус-вектор \mathbf{r} попадает в домен типа p , и $\tilde{\theta}_p(\mathbf{r}) = 0$ — в противном случае. Тогда выражение (4) можно обобщить следующим образом:

$$f(\mathbf{r}) = f_0 + \frac{1}{2} \lambda_{ijlm} \left(u_{ij}(\mathbf{r}) - \sum_{p=1}^{\nu} u_{ij}^{(0)}(p) \tilde{\theta}_p(\mathbf{r}) \right) \left(u_{lm}(\mathbf{r}) - \sum_{q=1}^{\nu} u_{lm}^{(0)}(q) \tilde{\theta}_q(\mathbf{r}) \right) - \frac{4\pi\epsilon_0}{8\pi} \epsilon_{ik} E_i(\mathbf{r}) E_k(\mathbf{r}) - E_i(\mathbf{r}) \sum_{p=1}^{\nu} P_i^{(0)}(p) \tilde{\theta}_p(\mathbf{r}). \quad (5)$$

Здесь индексы $p, q = 1, 2, \dots, \nu$ нумеруют тип доменов. В СЭ фазе в точке \mathbf{r} , находящейся внутри домена типа \tilde{q} , в каждой из сумм в (5) отлично от нуля только одно слагаемое, с $q = \tilde{q}$.

Входящий в (5) тензор деформации $u_{ij}(\mathbf{r})$ выражается через вектор упругих смещений, $u_{ij}(\mathbf{r}) = (1/2) (\partial u_i / \partial r_j + \partial u_j / \partial r_i)$, а поле $E_i(\mathbf{r})$ — через электростатический потенциал, $E_i(\mathbf{r}) = -\partial\varphi / \partial r_i$. При заданном распределении $\theta_p(\mathbf{r})$, т. е. при заданной доменной структуре, равновесные упругие и электрические поля определяются из условий минимума полной свободной энергии полидоменного кристалла $F = \int f(\mathbf{r}) d^3r$ по независимым переменным $u_i(\mathbf{r})$ и $\varphi(\mathbf{r})$. Соответствующие вариационные уравнения дают совокупность уравнений механического равновесия

$$\frac{\partial}{\partial r_j} \frac{\delta f}{\delta u_{ij}} = \frac{\partial}{\partial r_j} \sigma_{ij} = 0 \quad (6)$$

и уравнений электростатики

$$\text{div} [(4\pi\epsilon_0) \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}] = 0, \quad \text{rot } \mathbf{E} = 0. \quad (7)$$

Следует отметить, что в случае неоднородного поля упругих деформаций естественными термодинамическими переменными могут являться только независимые компоненты вектора упругих смещений $u_i(\mathbf{r})$. При этом термодинамическим потенциалом, минимум которого соответствует равновесному состоянию, является свободная энергия Гельмгольца F , зависящая от u_{ij} . Применение в [9] термодинамического потенциала, независимыми переменными которого является некоторая линейная комбинация тензоров σ_{ij} и u_{ij} , возможно для случая однородных деформаций и не допускает обобщения на случай неоднородно деформированного состояния.

В области применимости разложения (1) можно считать, что тензоры ϵ_{ij} и λ_{ijlm} одинаковы как для параэлектрической фазы, так и для всех доменов сегнетоэлектрической фазы. В этом случае система, описываемая свободной энергией (5), представляет собой среду с постоянными тензорами ϵ_{ij} и λ_{ijlm} .

Тогда функция формы доменов типа p $\bar{\theta}$ (r) представляет собой источник неоднородных деформаций и полей в этой среде.

Решая уравнения равновесия (6) и (7) с помощью преобразований Фурье, подставляя решение в уравнение (5), получаем свободную энергию, выраженную через фурье-образ θ (k) функции формы доменов каждого сорта $\bar{\theta}_p$ (r)

$$F = F_0 + \frac{1}{2} \sum_{p, q} \int \frac{d^3 k}{(2\pi)^3} B_{pq}(\mathbf{n}) \theta_p(\mathbf{k}) \theta_q^*(\mathbf{k}). \quad (8)$$

Здесь $\mathbf{n} = \mathbf{k}/k$,

$$B_{pq}(\mathbf{n}) = -n_i \sigma_{ij}^{(0)}(p) \Omega_{jl}(\mathbf{n}) \sigma_{ik}^{(0)}(q) n_k + \sigma_{ij}^{(0)}(p) u_{ij}^{(0)}(q) + \\ + 4\pi \frac{n_i P_i^{(0)}(p) P_j^{(0)}(q) n_j}{(4\pi\epsilon_0) n_s \epsilon_{st} n_t}, \quad (9)$$

где $\Omega_{jl}(\mathbf{n})$ — тензор, обратный тензору $\Omega_{jl}^{-1}(\mathbf{n}) = \lambda_{jkm} n_k n_m$. Первые два слагаемых здесь — упругая энергия, рассмотренная в [4, 5], $\sigma_{ij}^{(0)}(p) = \lambda_{ijlm} u_{lm}^{(0)}(p)$, третье слагаемое — энергия электростатического поля.

В работе рассматривается ситуация, когда крупномасштабное включение с характерным размером L разбивается на систему достаточно мелких доменов с периодом d , таким, что $d/L \ll 1$. В этом случае функцию формы $\theta_p(\mathbf{k})$ для домена сорта p можно разбить на два вклада — среднее по включению значение функции и отклонение от среднего значения

$$\theta_p(\mathbf{k}) = \frac{V_p}{V} \theta(\mathbf{k}) + \Delta\theta_p(\mathbf{k}), \quad (10)$$

где $\theta(\mathbf{k})$ — функция формы включения СЭ фазы как целого, V_p — объем домена типа p , V — объем всего включения.

Для подобной ситуации, как показано в [4] § 33, [5] § 11.2, полная свободная энергия полидоменной системы из (8) разбивается на два вклада

$$F = F_1 + F_2, \quad (11)$$

где энергия СЭ включения как целого F_1 равна

$$F_1 = \frac{1}{2} \int \frac{d^3 k}{(2\pi)^3} |\theta(\mathbf{k})|^2 \langle B(\mathbf{n}) \rangle \quad (12)$$

(здесь $\langle B(\mathbf{n}) \rangle = \sum_{p, q} (V_p/V) B_p(\mathbf{n}) (V_q/V)$), а энергия взаимодействия доменов внутри включения имеет вид

$$F_2 = \frac{1}{2} \sum_{p, q} \int \frac{d^3 k}{(2\pi)^3} B_{pq}(\mathbf{n}) \Delta\theta_p(\mathbf{k}) \Delta\theta_q^*(\mathbf{k}). \quad (13)$$

13. Форма и ориентация включения

Минимум энергии F_1 из (12) соответствует компенсации дальнедействующих электрических и упругих полей в матрице вдали от включения. Для компенсации электрических полей необходимо обращение в нуль полного дипольного момента

включения $\langle P_i^{(0)} \rangle$, равного $\langle P_i^{(0)} \rangle = \sum_{p=1}^{\nu} (V_p/V) P_i^{(0)}(p)$. Эта компенсация возникает, когда домены с противоположно направленными векторами спонтанной поляризации $P_i^{(0)}(p)$ занимают одинаковые объемы, т. е. $V_1 = V_2, V_3 = V_4, V_5 = V_6$. При выполнении этого условия в энергии F_1 остается только упругая составляющая. Величина энергии F_1 определяется средним значением деформации $\langle u_{ji}^{(0)} \rangle$, равным $\langle u_{ji}^{(0)} \rangle = \sum_{p=1}^{\nu} (V_p/V) u_{ji}^{(0)}(p)$.

Величина упругой энергии из (12) минимальна, если $\theta(k) \neq 0$, только для тех направлений $n = k/k = n_0$, для которых $\langle B(n) \rangle$ принимает минимальное значение $B_{\min} = \langle B(n_0) \rangle$. Эта ситуация соответствует включению в форме тонкой, бесконечно протяженной пластины, перпендикулярной вектору n_0 . Для реальной пластины конечной толщины h и конечных размеров L имеется малая поправка к энергии порядка h/L . В работах [4] § 33, [5] § 11.3 показано, что $B_{\min} = 0$, если средняя деформация $\langle u_{ji}^{(0)} \rangle$ не имеет компонент в плоскости пластины. Другими словами, должно выполняться условие

$$\langle u_{ji}^{(0)} \rangle = \frac{u}{2} (n_i^{(0)} l_j + n_j^{(0)} l_i), \quad (14)$$

где n_0 — единичный вектор нормали к плоскости пластинчатого включения, l — некоторый единичный вектор.

В таком случае сопряжение включения и матрицы вдоль этой плоскости не приводит к возникновению дальнедействующих упругих напряжений. Такую плоскость принято называть инвариантной. Примером является плоскость двойникования в кристаллах. Вектор нормали к плоскости пластины n_0 получается равным

$$n_0 = \left(\left(\frac{|u_1 + u_2|}{|u_1 + u_2| + |u_1|} \right)^{1/2}, 0, \left(\frac{|u_1|}{|u_1 + u_2| + |u_1|} \right)^{1/2} \right). \quad (15)$$

4. Доменная структура включения

Энергию взаимодействия доменов F_2 из (13) можно представить как сумму электрической и упругой составляющей:

$$F_2 = F_{\text{electr}} + F_{\text{elast}}. \quad (16)$$

Эта энергия всегда неотрицательна. Рассмотрим условия, при которых F_2 может принимать свое минимальное возможное значение $F_2 = 0$.

Мы считаем, что концентрация свободных носителей заряда мала и не может экранировать связанные заряды на границах доменов. В уравнении электростатики (7) удобно сделать замену $P = P_0 + \chi E$, где P_0 связана с СЭ переходом, а χE — фоновая поляризация. Тогда уравнение (7) перепишется в виде $\text{div} (4\pi \epsilon_0 \epsilon E(r)) = -4\pi \text{div} P_0(r)$, где $P_i^{(0)}(r) = \sum_p P_i^{(0)}(p) \theta_p(r)$ — вектор спонтанной поляризации, постоянный внутри одного домена и претерпевающий скачки на доменных границах. Скачок нормальной компоненты $\Delta P_n^{(0)}$ равен плотности связанных зарядов на доменной границе σ , т. е. $\Delta P_n^{(0)} = P_n^{(0)}(1) - P_n^{(0)}(2) = \sigma$. Если доменная структура такова, что нормальная компонента вектора спонтанной поляризации $P_n^{(0)}$ непрерывна на всех доменных границах (все доменные стенки не заряжены),

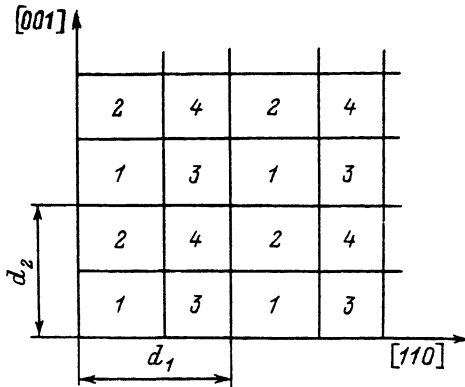


Рис. 2. Доменная структура включения [сечение плоскостью (110)]. Цифрами обозначен тип сегнетоэлектрических доменов.

то дальнедействующее электрическое поле E , а с ним и электрический вклад в энергию F_2 , равный F_{electr} из (16), обращаются в нуль.

Подстановка свободной энергии (5) в уравнения механического равновесия (6) дает уравнение для вектора упругих смещений в виде

$$\lambda_{ijlm} \frac{\partial^2 u_m}{\partial r_j \partial r_l} = \sum_p \sigma_{ij}^{(0)}(p) \frac{\partial}{\partial r_j} \theta_p(\mathbf{r}). \quad (17)$$

Из (17) следует, что источником упругих смещений является скачок величины $\sigma_{ij}^{(0)}(p)n_j$. Этот скачок равен нулю, если доменная граница является инвариантной плоскостью.

В [4] § 33 предложен тип структуры упругих доменов, в которой все доменные границы являются инвариантными плоскостями. В этом случае в системе присутствуют только два сорта доменов из трех возможных, например сорта I и II из табл. 1. Домены представляют собой плоскопараллельные чередующиеся слои, разделенные плоскостями типа (110).

В рассмотренной в настоящей работе системе СЭ доменов обращение в нуль полной энергии F_2 из (13) возможно, если: а) границы между упругими доменами

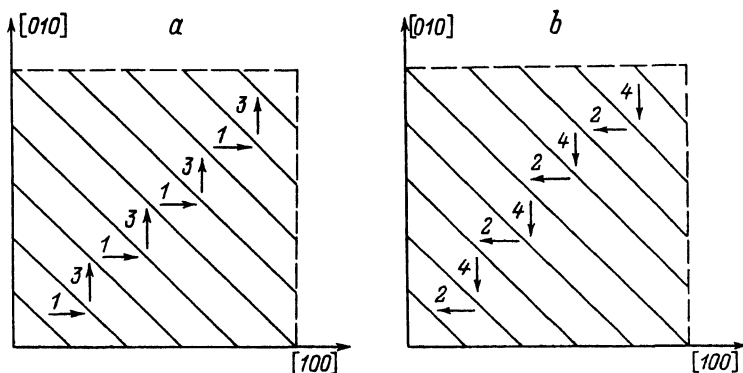


Рис. 3. Доменная структура включения [сечение плоскостью (001)]. Стрелками указано направление вектора спонтанной поляризации $P_i^{(0)}(p)$ в каждом домене: а — для слоя, содержащего домены сортов 1 и 3; б — для слоя, содержащего домены сортов 2 и 4.

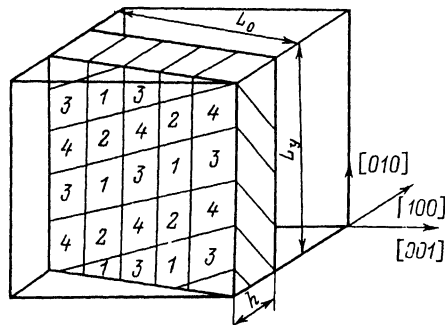


Рис. 4. Доменная структура сегнетоэлектрического включения в матрице.

представляют собой инвариантные плоскости, б) нормальная компонента вектора спонтанной поляризации непрерывна на всех доменных границах между СЭ доменами.

Возможная доменная структура, удовлетворяющая этим условиям, получается, если каждый из упругих доменов типов I и II доменной структуры разбивается на систему СЭ доменов с противоположно направленными векторами спонтанной поляризации. Такое разбиение можно осуществить плоскостями (001). В результате получается доменная структура, представляющая собой систему протяженных параллельных брусков прямоугольного сечения в плоскости (110). Сечение доменной структуры этой плоскостью изображено на рис. 2. Вид сверху для такой структуры для слоя, содержащего домены типа 1 и 3, изображен на рис. 3, а, а для слоя, содержащего домены 2 и 4, на рис. 3, б. Стрелками указано направление вектора спонтанной поляризации P_0 в каждом домене.

Из рис. 2 и 3 следует, что домены сорта 1 и 2, как и домены 3 и 4, разделены 180-градусными доменными стенками, а домены сорта 1 и 3, так же как 2 и 4, — 90-градусными. В рассмотренной доменной структуре нормальная компонента вектора P_0 непрерывна на всех доменных границах.

5. Оптимальный период доменной структуры

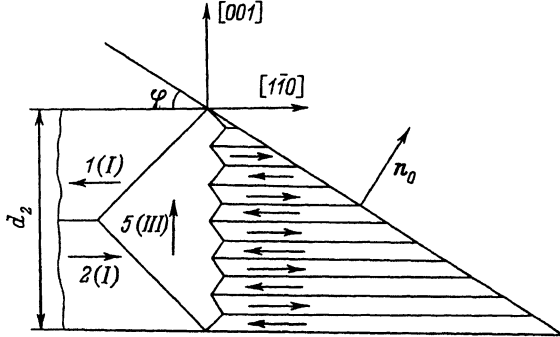
Энергия рассмотренной доменной структуры содержит помимо обращаемой в нуль объемной части F_2 также энергию доменных стенок ΔF_w и вклад

$$\Delta F_2 = \Delta F_{2 \text{ electr}} + \Delta F_{2 \text{ elast}}, \quad (18)$$

связанный с проникновением электрических и упругих полей в окружающую матрицу.

Аналогично случаю одномерной системы упругих доменов, рассмотренной в [15], можно показать, что минимальному значению F_2 соответствует строго периодическая структура доменов, причем элементарная ячейка размером $d_1 \times d_2$ содержит по одному домену каждого сорта 1—4 (рис. 2).

Чтобы определить периоды d_1 и d_2 , оценим энергию F_2 . Торцы упругих доменов сортов I и II, выходящие на границу включения, образуют периодическую систему полос с периодом d_1 . Соответственно упругие напряжения проникают в окружающую матрицу на глубину порядка d_1 . При этом объем слоя, в котором упругие напряжения отличны от нуля, имеет порядок $L_0 L_y d_1$, где L_0, L_y — характерные размеры включения, указанные на рис. 4. Сосредоточенная в этом слое упругая энергия имеет порядок $\lambda u_0^2 L_0 L_y d_1$, где λ — характерный модуль упругости, u_0 — характерная структурная деформация.



Ри. 5. Система замыкающих доменов на границе включения. Арабскими цифрами указан тип сегнетоэлектрических доменов, римскими — упругих.

Торцы СЭ доменов на границе включения представляют собой клетки с размерами $d_1 \times d_2$. Структура этих клеток имеет периоды d_1 и d_2 . Поэтому электрическое поле проникает в окружающую матрицу на глубину $\bar{d} = \max(d_1, d_2)$. Характерная величина электрической энергии имеет порядок $(P_0^2/4\pi\epsilon_0\epsilon) \times L_0L_y\bar{d}$. Величина энергии (18) тем меньше, чем меньше периоды доменной структуры d_1 и d_2 . В то же время уменьшение периодов d_1 и d_2 при заданных размерах включения означает увеличение числа доменных стенок и, следовательно, увеличение полной энергии всех доменных стенок

$$F^w = 2V \left(\frac{\gamma_{180}}{d_2} + \frac{\gamma_{90}}{d_1} \right). \quad (19)$$

Конкуренция энергий ΔF_2 из (18) и F^w из (19) определяет оптимальное значение периодов d_1 и d_2 . Результат зависит от соотношения между характерной величиной электрической и упругой энергией. Если ситуация такова, что

$$\frac{P_0^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \gg \lambda u_0^2, \quad (20)$$

то энергия проникающего электрического поля может быть уменьшена за счет возникновения системы замыкающих доменов на границе включения. Связанные заряды имеются только на торцах доменов 1 и 2. Рассмотрим сечение доменной структуры плоскостью $(1\bar{1}0)$, проходящей через домены типа 1 и 2. Тогда если на границе возникает система из n замыкающих доменов (рис. 5), то глубина проникновения электрического поля в окружающую матрицу будет равна $d_2/2n$. Соответственно уменьшается $\Delta F_2^{\text{electr}}$. Для расчета электрической энергии учтем, что на границе включения возникают связанные заряды с плотностью $\pm P_0 \sin \varphi$ и периодом $d_3 = d_2/n$. Электрическая энергия, связанная с этой плотностью зарядов, рассчитывается аналогично задаче 4 к § 17 из [16] и равна

$$W^{\text{electr}} = \frac{7\sqrt{2}\zeta(3)\sin^2\varphi \cdot P_0^2 d_2}{2\pi^2(4\pi\epsilon_0\epsilon)} \frac{1}{n} \frac{V}{h}, \quad (21)$$

где $\zeta(x)$ — дзета-функция Римана, $\zeta(3) = 1.202$.

Однако увеличение числа краевых доменов n приводит к возрастанию энергии всех доменных стенок между ними. Энергия этих доменных стенок, приходящихся на один период $d_1 \times d_2$, равна $W^w = \gamma_{180} d_1 d_2 \text{ctg} \varphi \cdot n$. Общее число элементарных

ячеек доменной структуры, приходящееся на обе плоскости включения, равно $2L_0L_y/\sqrt{2}d_1d_2$. Энергия всех доменных стенок между краевыми доменами во включении равна

$$W^w = \gamma_{180} \operatorname{ctg} \varphi \cdot n \frac{V\sqrt{2}}{h}. \quad (22)$$

Упругая энергия, обусловленная доменами сортов I и II, имеет порядок величины $\lambda u_0^2 V d_1 / h$. Поправка к этой энергии за счет замыкающих доменов III содержит дополнительную малость порядка d/h , связанную с малой долей объема, занимаемого всеми замыкающими доменами, по сравнению с объемом всего включения и оказывается пренебрежимо малой. Для вычисления F_2^{elast} достаточно считать, что включение содержит только плоскопараллельные пластинчатые домены I и II.

Упругая энергия определяется формулой (13), где в $B_{pq}(n)$ учитываются только первые два слагаемых из формулы (9). Поскольку во включении имеется два сорта упругих доменов, то справедливо соотношение $\Delta\theta_I(k) + \Delta\theta_{II}(k) = 0$, что позволяет преобразовать упругую энергию к виду

$$F_2^{\text{elast}} = \frac{1}{2} \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \left(-n_i \Delta\sigma_{ij}^{(0)} \Omega_{jl}(n) \Delta\sigma_{ik}^{(0)} n_k + \Delta\sigma_{ij}^{(0)}(p) \Delta u_{ij}^{(0)}(q) \right) |\Delta\theta(k)|^2. \quad (23)$$

Для включения, имеющего форму перпендикулярной вектору n_0 из (13) тонкой пластины с размерами L_0, L_y (рис. 4) и толщиной $h \ll L_0, L_y$, разбитого на домены с толщиной $d_1 \ll h$, вычисление интеграла из (23) дает упругую энергию F_2^{elast} в виде

$$F_2^{\text{elast}} = \frac{1}{8\pi^2} \cos \varphi \cdot J\alpha(w_0) \eta u_0^2 (c_{11} + 2c_{12}) d_1 \frac{V}{h}, \quad (24)$$

где u_0 — характерная деформация, c_{11}, c_{12} — упругие модули в обозначениях Фойгта, $\alpha(w_0) = 2 \sum_{m=1}^{\infty} \sin^2(\pi m w_0) / m^3$, здесь $w_0 = -u_2 / (u_1 - u_2)$; $J = |(n_x^{(0)} / \sqrt{2} n_z^{(0)}) - 1|^{-1}$; переменная η является безразмерной функцией упругих модулей кристалла, которая для BaTiO₃ равна $\eta = 2.13 \cdot 10^{-3}$.

Полная энергия доменной структуры включает в себя энергию проникающих в матрицу электрических полей (21) и упругих напряжений (24), энергию 90- и 180-градусных доменных стенок во всем объеме включения (19) и энергию 180-градусных стенок между краевыми доменами в приповерхностной области включения (22)

$$W^{\text{tot}} = W^{\text{electr}} + F_2^{\text{elast}} + W^w + F^w. \quad (25)$$

Минимум этой энергии по переменным d_1, d_2 и n определяет оптимальные периоды доменной структуры $d_1^{\text{opt}}, d_2^{\text{opt}}$ и оптимальное число краевых доменов n^{opt} , приходящихся на период d_2 ,

$$d_1^{\text{opt}} = \left(\frac{16\pi^2 \gamma_{90} h}{J\alpha(w) \eta \cos \varphi (c_{11} + 2c_{12}) u_0^2} \right)^{1/2}, \quad (26)$$

$$d_2^{\text{opt}} = \left(\frac{8\pi^2 (4\pi\epsilon_0\epsilon) h^2 \gamma_{180}}{7\zeta(3) \sin 2\varphi \cdot P_0^2} \right)^{1/3}, \quad (27)$$

$$n^{\text{opt}} = \left(\frac{7\zeta(3) \sin^4 \varphi P_0^2 h}{2\pi^2 (4\pi\epsilon_0\epsilon) \cos^2 \varphi \gamma_{180}} \right)^{1/3}. \quad (28)$$

Из неравенства (20) следует, что $d_1^{\text{opt}} \gg d_2^{\text{opt}}$. Если характерная упругая энергия много больше характерной электрической энергии, т. е. выполняется соотношение, обратное (20),

$$\frac{P_0^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon} \ll \lambda u_0^2, \quad (29)$$

то проигрыш в упругой энергии при возникновении замыкающих доменов оказывается больше, чем выигрыш в электрической энергии, и возникновение замыкающих доменов невыгодно. Энергия проникающего в матрицу электрического поля определяется формулой (21), в которую нужно подставить $n = 1$, а энергия проникающих в матрицу упругих напряжений по-прежнему описывается формулой (24). Период d_1^{opt} по-прежнему описывается формулой (26), а расчет периода d_2^{opt} дает

$$d_2^{\text{opt}} = \left(\frac{(4\pi\epsilon_0\epsilon) 2\sqrt{2} \pi^2 \gamma_{180} h}{7\zeta(3) \sin^2 \varphi \cdot P_0^2} \right)^{1/2}. \quad (30)$$

Из неравенства (29) следует, что $d_1 \ll d_2$.

6. Обсуждение результатов

В работе найдена равновесная доменная структура сегнетоэлектрического включения, упруго взаимодействующего с окружающей его параэлектрической матрицей. Такая ситуация характерна для кристаллов с крупномасштабными пространственными неоднородностями при температурах, близких к температуре фазового перехода T_0 . Показано, что равновесная доменная структура включения содержит четыре сорта сегнетоэлектрических доменов, имеющих форму брусьев прямоугольного сечения, вытянутых в направлении [110]. Найдены оптимальные периоды доменной структуры.

Выполним численные оценки для типичного сегнетоэлектрика со структурой перовскита BaTiO_3 . Подставляя численные значения постоянных материала ($c_{11} = 1.647 \cdot 10^{11}$ Дж/м³, $c_{12} = 0.772 \cdot 10^{11}$ Дж/м³, $u_0 = 0.953 \cdot 10^{-2}$, $P_0 = 0.2$ Кл/м², $\epsilon = 10$ [17]), для включения толщиной $h = 1$ мм получаем характерные значения периодов доменной структуры $d_1^{\text{opt}} = 140$, $d_2^{\text{opt}} = 15$ мкм и число краевых доменов $n^{\text{opt}} = 180$.

Двумерно-периодические доменные структуры наблюдались вблизи точки сегнетоэлектрического фазового перехода из кубической модификации в тетрагональную в BaTiO_3 [18], вблизи точки сегнетоэластического перехода из тетрагональной фазы в орторомбическую в Hg_2O_2 [19]. Более детальное описание конкретных доменных структур, наблюдавшихся экспериментально, является предметом отдельной публикации.

Авторы признательны Р. А. Сурису за полезные обсуждения работы.

- [1] А. В. Турик, А. И. Чернобабов, В. Ю. Тополов. ФТТ, 25, 2839 (1983).
- [2] В. Г. Барьяхтар, И. М. Витебский, Д. А. Яблонский. ФТТ, 23, 1448 (1981).
- [3] Б. М. Ашкинадзе, А. В. Субашиев, И. М. Фишман. Письма ЖЭТФ, 26, 3 (1977).
- [4] А. Г. Хачатурян. Теория фазовых превращений и структура твердых растворов, 384. М. (1974).
- [5] A. G. Khachatryan. Theory of structural transformations in solids, 574. N. Y. (1983).
- [6] A. L. Roitburd. Sol. St. Phys. Advances Research Applications, 33, 317 (1978).
- [7] А. Г. Хачатурян, Г. А. Шаталов. ФТТ, 11, 159 (1969).
- [8] Н. И. Власова, Г. С. Кандаурова, Л. Г. Оноприенко, Н. Н. Шеголева. УФН, 162, 161 (1992).
- [9] Э. М. Пикалев, В. И. Алешин. ФТТ, 31, 95 (1989).
- [10] А. Л. Корженевский. Изв. АН СССР, сер. физ., 48, 1069 (1984).
- [11] I. P. Ipatova, V. A. Shchukin, V. G. Malyshkin, A. Yu. Maslov, E. M. Anastassakis. Sol. St. Commun., 78, 19 (1991).
- [12] И. П. Ипатова, В. Г. Малышкин, А. Ю. Маслов, В. А. Шукин. ФТП, 27, 285 (1993).
- [13] Г. А. Смоленский, В. А. Боков, В. А. Исупов и др. Физика сегнетоэлектрических явлений, 396. Л. (1985).
- [14] Б. А. Струков, А. П. Леванюк. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах, 239. М. (1983).
- [15] Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред, 661. М. (1992).
- [16] A. G. Khachatryan. Phys. St. Sol., 35, 119 (1969).
- [17] Landolt—Börnstein. Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. New Series, III/16, 396. N. Y. (1981).
- [18] R. Le Bihan. Ferroelectrics, 97, 19 (1989).
- [19] Ч. Барта, А. А. Каплянский, Ю. Ф. Марков, В. Ю. Мировицкий. ФТТ, 24, 875 (1982).

Редактор Л. В. Шаронова
