

УДК 537.226.4

© 1990

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ С ДОМЕННЫМИ СТЕНКАМИ В ВОДОРОДСОДЕРЖАЩИХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКАХ

Л. Н. Камышева, О. М. Сердюк, С. Н. Дрождин, О. А. Зайцева

Приводятся оценки энергии взаимодействия точечных дефектов с доменными стенками на основе экспериментальных зависимостей эффективной диэлектрической проницаемости и второй гармоники тока переполаризации от амплитуды переменного электрического поля для ряда кристаллов группы KN_2PO_4 и триглицинсульфата. Показано, что энергия взаимодействия стремится к нулю при приближении к температуре фазового перехода, а ее абсолютные значения находятся в пределах 10^{-3} — 10^{-1} эВ.

Для изучения процессов переполаризации в сегнетоэлектрических кристаллах используют метод петель диэлектрического гистерезиса, методу Мерца и эффект Баркгаузена [1], реже применяют методы эффективной диэлектрической проницаемости $\epsilon_{\text{эф}}$ (ϵ , измеренная в сильном переменном электрическом поле E_-) и гармонического анализа тока переполаризации в синусоидальном поле E_- [2, 3].

В ряде случаев использование двух последних методик позволяет понять особенности процессов переключения, обусловленные наличием в сегнетоэлектрических кристаллах точечных дефектов естественного или искусственного происхождения [4-6], и оценить некоторые микропараметры кристаллов.

В настоящей работе сделана попытка оценить энергию взаимодействия точечных дефектов с доменными стенками $U_{\text{вз}}$ на основе зависимостей $\epsilon_{\text{эф}}(E_-)$ и $U_2(E_-)$ (U_2 — амплитуда второй гармоники напряжения, снимаемого с сопротивления, включенного последовательно с образцом).

В качестве объектов исследования использовались номинально чистые кристаллы KN_2PO_4 (KDP), CsH_2PO_4 (CDP), CsH_2AsO_4 (CDA), а также кристалл триглицинсульфат (TTC) — номинально чистый и дефектный.

Образцы полярных срезов исследованных кристаллов, как правило, толщиной ~ 1 мм имели электроды, нанесенные испарением серебра в вакууме. Методы исследования зависимостей $\epsilon_{\text{эф}}(E_-)$ и $U_2(E_-)$ описаны в работах [2, 4, 6].

Расчет энергии взаимодействия точечных дефектов с доменными стенками был проведен с использованием модели [7], которая была предложена для объяснения механических потерь в сегнетоэлектриках.

Согласно модели [7], механические потери обусловлены процессом лавинообразного отрыва доменных стенок от закрепляющих их точечных дефектов. Основные положения модели и расчетные формулы могут быть использованы при анализе зависимостей $\epsilon_{\text{эф}}(E_-)$ и $U_2(E_-)$, поскольку эти зависимости обусловлены тем же механизмом, что и механические (или диэлектрические) потери, — взаимодействием в процессе переполаризации точечных дефектов со стенками.

Согласно [7], величина $U_{гз}$ определяется из выражения, связывающего $\epsilon_{эф}$ (или U_2) с амплитудным значением поля E_{\sim}

$$\epsilon_{эф} = \text{const} \exp(-g^2/E_{\sim}^2).$$

Здесь $g = U_{гз}/P_s d^2 \delta$, где P_s — спонтанная поляризация кристалла; d — расстояние между дефектами, от которых отрывается доменная стенка под действием переполяризующего поля; δ — толщина доменной стенки.

Значения параметров $d \sim 10^{-5}$ см и $\delta \sim 10^{-7}$ см взяты из работ [8, 9], они не варьировались при переходе от кристалла к кристаллу.

Как видно из рис. 1, точки зависимостей $\ln \epsilon_{эф}$ от $1/E_{\sim}^2$ (как и $\ln U_2$ от $1/E_{\sim}^2$) хорошо ложатся на прямую, что является доказательством возможности применения модели [7] к нашим исследованиям и что позволяет рассчитать сначала коэффициент g , а затем и $U_{гз}$.

Энергия взаимодействия дефекта с доменной стенкой определяется силой, с которой дефект (стопор) закрепляет доменную стенку. Естественно

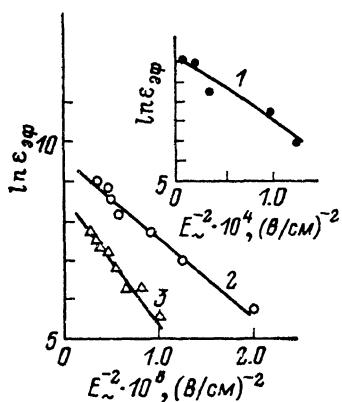


Рис. 1. Зависимость $\ln \epsilon_{эф}$ от $1/E_{\sim}^2$ для кристаллов ТГС: чистого (1) легированного хромом (2), L, α -аланином (3). $T \approx 23.0$ °C, $f = 50$ Гц.

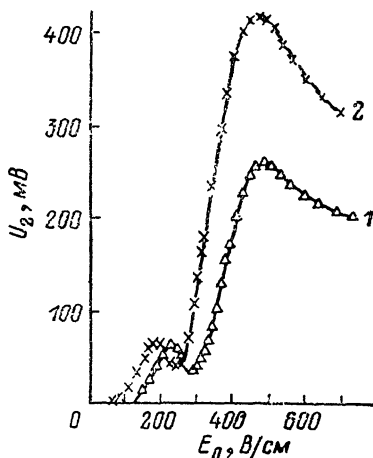


Рис. 2. Зависимости U_2 от E_{\sim} для кристалла ТГС: с хромом (1), подвергнутого рентгеновскому облучению (2). $T \approx 20$ °C, $f = 500$ Гц.

предположить, что в кристалле существует некоторое распределение по энергиям взаимодействия. Если бы такого распределения не было, то значения $\epsilon_{эф}$ (или U_2) по достижению определенной величины поля E_{\sim} возрастали бы скачком до максимальной величины. Опыт показывает, что это не так (рис. 2—4). Поэтому экспериментально определяемой является величина $U_{гз}$, отвечающая максимуму функции распределения.

Вопрос о том, в какой области переменных электрических полей (слабых или сильных) справедлива модель [7], не решается однозначно; это зависит от температуры опыта, наличия в кристалле дефектов и пр. Если обратиться к рис. 2, то видно, что амплитудная зависимость напряжения второй гармоники имеет два максимума: первый в области слабых электрических полей, существование которого обусловлено неоднородным распределением дефектов в кристалле [6, 10], а второй соответствует максимальной переполяризации образца. Расчет энергии взаимодействия может быть проведен на восходящем участке как первого, так и второго максимума, т. е. в тех полях, где U_2 (или $\epsilon_{эф}$) является величиной амплитудно-зависимой, что свидетельствует о возникновении процесса отрыва доменных стенок от дефектов. Значения энергии взаимодействия, рассчитанные в области слабых и сильных электрических полей, отличаются примерно в 1.5 раза. Увеличение энергии $U_{гз}$, полученное в сильных электрических

полях, говорит о том, что в этих электрических полях в процесс переполаризации включаются доменные стенки, закрепленные «сильными» стопами.

Основные результаты и их обсуждение

Метод эффективной диэлектрической проницаемости. На рис. 3 представлены зависимости $\epsilon_{эф}$ (E_{-}) для ряда кристаллов группы KDP. Здесь не приведена аналогичная зависимость

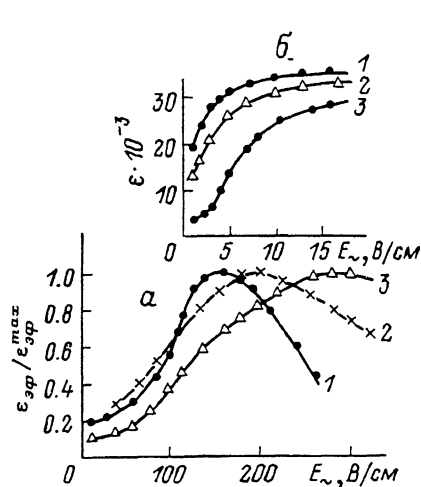


Рис. 3. Зависимости $\epsilon_{эф}$ от E_{-} : а — для кристаллов KDP (1), KDP (2), CDA (3), $f=1$ кГц; б — для кристалла KDP.

а: 1 — $\Delta T_c=7.5$, 2 — 6.6, 3 — 5.0; б: 1 — 6.6, 2 — 14.5, 3 — 24.8 К.

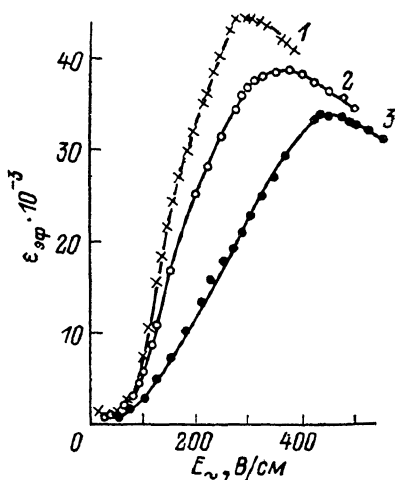


Рис. 4. Зависимости $\epsilon_{эф}$ от E_{-} для кристалла TGS с примесью хрома, снятые при $f=60$ (1), 120 (2), 240 Гц (3). $T \approx 20$ °С.

для кристалла CDP (наиболее «мягкого» из всех кристаллов этой группы [11]), так как максимум этой кривой приходится на область полей ~ 10 В/см при том же удалении от точки Кюри.

Из значений энергии взаимодействия (см. таблицу) следует, что самой подвижной доменной структурой обладает кристалл CDP, другие кристаллы располагаются за ним в той последовательности, которая была указана в [11].

По мере удаления от точки Кюри в сторону низких температур наблюдается возрастание энергии взаимодействия (рис. 3, б), эта закономерность прослеживается для всех кристаллов. Например, для кристалла KDP $U_{вз}$ возрастает от $0.48 \cdot 10^{-3}$ эВ при $\Delta T_c=25$ К.

Зависимости $\epsilon_{эф}(E_{-})$ были получены и для кристалла TGS — номинально чистого, легированного хромом (рис. 4), L, α -аланином и облученного рентгеновскими квантами. Если содержание примеси в кристалле невелико, то $U_{вз}$ имеет значение сотых долей эВ (рис. 5); внутреннее поле $E_{вн}$ в этом случае равно ~ 50 В/см. С увеличением концентрации дефектов (примесных или радиационных) $U_{вз}$ возрастает до десятых долей эВ. В этом случае внутреннее поле может быть равно сотням В/см.

Метод гармонического анализа. Появление четных гармоник в спектре тока переполаризации сегнетоэлектриков является признаком униполярности кристалла, существования поля $E_{вн}$ [6]. Выше

Кристалл	ΔT_c , К	$U_{вз} \cdot 10^3$, эВ
CDP	7.5	0.10
KDP	6.6	0.48
CDA	5.0	15.90

при $\Delta T_c=6.6$ К до $1.28 \cdot 10^{-3}$ эВ при

было сказано, что если дефекты в объеме кристалла распределены неравномерно и образец не подвергался температурному или полемому отжигам, то в зависимости четных и нечетных гармоник (кроме первой) может наблюдаться несколько максимумов, свидетельствующих, что процесс переполаризации осуществляется в больших областях образца кристалла, которым отвечают свои значения коэрцитивных полей [6, 10].

На рис. 5 представлены температурные зависимости $U_{вз}$ для образца кристалла с хромом; хорошо видно, что абсолютные значения $U_{вз}$, рассчитанные из зависимостей $\epsilon_{эф}(E_-)$ и $U_2(E_-)$, практически совпадают.

Стремление энергии взаимодействия к нулю при приближении к температуре фазового перехода T_c понятно, так как при $T \rightarrow T_c$ толщина доменной стенки возрастает (теоретически стремится к бесконечности [12]),

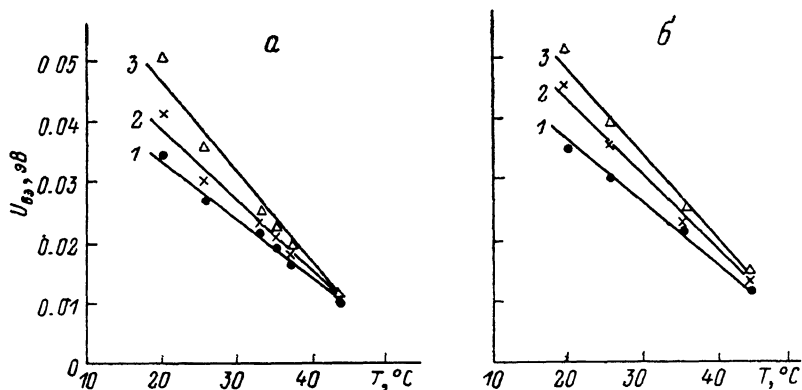


Рис. 5. Температурная зависимость энергии взаимодействия $U_{вз}$ при нескольких частотах электрического поля (1 — 60, 2 — 240, 3 — 500 Гц), полученная из зависимостей $U_2(E_-)$ (а) и $\epsilon_{эф}(E_-)$ (б) на одном и том же образце кристалла ТГС с хромом.

одновременно увеличивается и интенсивность теплового движения ионов кристаллической решетки кристалла и дефектов. Этот экспериментальный результат, полученный в настоящей работе, находится в соответствии с теоретическими оценками [13].

Что касается полученной нами зависимости энергии взаимодействия от частоты электрического поля, то можно предположить, что величиной, определяемой из зависимостей $\epsilon_{эф}(E_-)$, $U_2(E_-)$, является эффективная энергия взаимодействия (назовем ее так) $U_{вз}^* = U_{вз} + U_0$, где U_0 — величина энергий, пропорциональная внешнему воздействию, например полемому, оказываемому на кристалл в процессе снятия экспериментальных кривых [14].

Сама величина U_0 в свою очередь может быть функцией других параметров, например частоты электрического поля, т. е. времени его действия (что может явиться задачей отдельного изучения).

Несмотря на некоторую неопределенность оценки $U_{вз}$, указанную выше, экспериментальные методы ее определения имеют право на существование, поскольку дают возможность сравнивать эту величину для разных кристаллов, особенно при одних и тех же условиях эксперимента.

Авторы благодарят С. А. Гриднева за обсуждение результатов работы.

Список литературы

- [1] Рудяк В. М. Процессы переключения в нелинейных кристаллах. М., 1986. 248 с.
- [2] Камышева Л. Н., Годованная О. А., Миловидова С. Д., Коваленко А. Н. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1975. Т. 39. № 4. С. 857—860.
- [3] Карпов А. И., Поплавко Ю. М. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1984. Т. 48. № 6. С. 1193—1196.
- [4] Камышева Л. Н., Годованная О. А., Миловидова С. Д., Коваленко А. Н. // Кристаллография. 1974. Т. 19. № 4. С. 824—827.

- [5] Камышева Л. Н., Дрождин С. Н., Сердюк О. М. // Деп. в ВИНТИ. 1988. № 3042-В 88. 42 с.
- [6] Drozhdin S. N., Kamysheva L. N., Liberman Z. A. // Phys. St. Sol. (a). 1986. V. 94. P. K69—K73.
- [7] Гриднев С. А., Даринский Б. М., Постников В. С. // Механизмы релаксационных явлений в твердых телах. М., 1972. С. 206—211.
- [8] Сидоркин А. С., Даринский Б. М., Панкова Т. Н. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1984. Т. 48. № 6. С. 1135—1142.
- [9] Леванюк А. П., Осипов В. В., Сигов А. С., Соблявин А. А. // ЖЭТФ. 1979. Т. 76. № 3. С. 345—368.
- [10] Карпов А. И. // Тез. докл. XII Всес. конф. по физике сегнетоэлектриков. Ростов н/Д, 1989. Т. 3. С. 8.
- [11] Гриднев С. А., Камышева Л. Н., Сидоркин А. С. Сегнетоэлектрические кристаллы группы KN_2PO_4 . Воронеж, 1981. 116 с.
- [12] Струков Б. А., Леванюк А. П. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах. М., 1983. 239 с.
- [13] Нечаев В. Н. // Автореф. канд. дис. Воронеж, 1980.
- [14] Камышева Л. Н., Сердюк О. М., Зайцева О. А. // Тез. докл. XII Всес. конф. по физике сегнетоэлектриков. Ростов н/Д, 1989. Т. 3. С. 7.

Воронежский государственный университет
им. Ленинского комсомола

Поступило в Редакцию
20 июля 1989 г.
В окончательной редакции
26 октября 1989 г.