

РОСТ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОНИЦАЕМОСТИ СЕГНЕТОКЕРАМИКИ ЦТС В ПРОЦЕССЕ СВЕРХБЫСТРОГО ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ

© 2008 г. С. А. Садыков¹, Г. К. Сафаралиев¹, А. Ш. Агаларов¹, С. Н. Каллаев²

¹ Дагестанский государственный университет, Махачкала,

² Институт физики Дагестанского Научного Центра РАН, Махачкала

Поступила в редакцию: 5.11.07

Представлены результаты измерений реверсивной диэлектрической проницаемости ε^* и интегральных характеристик переключения поляризации сегнетокерамики ПКР-1 в сильном быстро нарастающем электрическом поле. Обсуждаются возможные механизмы доменного вклада в переполаризацию сегнетокерамики, определяющие найденные временные зависимости ε^* .

При изучении механизмов эволюции доменной структуры сегнетоэлектриков в импульсных электрических полях часто используется релаксационный метод, основанный на исследовании временных зависимостей действительной $\varepsilon'(t)$ и мнимой $\varepsilon''(t)$ составляющих реверсивной диэлектрической проницаемости ε^* . Реверсивные характеристики сегнетоэлектрика позволяют выявить подвижность тех или иных элементов доменной структуры и получить информацию о динамике ее изменения во внешних электрических полях.

Реверсивная диэлектрическая проницаемость, т.е. диэлектрическая проницаемость, измеренная в слабом переменном поле при наличии сильного смещающего поля, интенсивно исследовалась различными авторами [1]. Установлено, что одним из следствий смещения доменных стенок сегнетоэлектрика является значительный рост ε^* во время переполаризации. В частности, в [2] показано, что в процессе переключения поляризации кристаллов BaTiO_3 и ТГС в импульсном электрическом поле прямоугольной формы в течение переключающего импульса оба компонента ε^* достигают аномально высоких значений. Однако было обнаружено и определенные различия в их временных зависимостях. Было установлено, что $\Delta\varepsilon^*$ не является однозначной функцией плотности тока переключения j_p , причем если мнимая часть ε'' диэлектрической проницаемости изменяется с током переключения синхронно, то реальная часть ε' значительно отстает во времени от j_p и достигает своего максимального значения значительно позже.

Исследования реверсивных характеристик сегнетокерамики (СК) системы ЦТС в быстро нарастающем электрическом поле показали, что в процессе переполаризации зависимость $\varepsilon'(t)$ испытывает три максимума, а $\varepsilon''(t)$ два [3, 4]. Результаты этих исследований свидетельствуют, что перестройка доменной структуры в поликристаллических сегнетоэлектриках связана с более сложными микроскопическими процессами, чем в кристаллических сегнетоэлектриках.

Нами продолжены исследования реверсивных характеристик переключения поляризации СК ПКР-1 в быстро нарастающих сильных электрических полях. Состав ПКР-1 с относительно низкими значениями коэрцитивного поля E_c ($1.0 \text{ кВ} \cdot \text{мм}^{-1}$) и диэлектрической проницаемости ($\varepsilon_{33}^T = 700$) принадлежит к твердым трехкомпонентным растворам сложных окислов типа $\text{PbTiO}_3 - \text{PbZrO}_3 - \text{PbV}_{1/2}\text{B}_{1/2}\text{O}_3$, расположенным в ромбоэдрической фазе вблизи морфотропной области.

Измерения диэлектрических характеристик проведены осциллографическим методом на частотах низковольтного измерительного напряжения (0,3—1,5) МГц. По измерениям мгновенных значений амплитуд входного сигнала U_0 (5 В) и сигнала на образце в момент переключения U , а также разности фаз между ними φ , соответствующей диэлектрическим потерям, были рассчитаны эффективные кинетические параметры поляризационного процесса — действительная ε' и мнимая ε'' части реверсивной диэлектрической проницаемости. С этой целью сегнетокерамический образец был представлен как емкость C и сопротивление R в

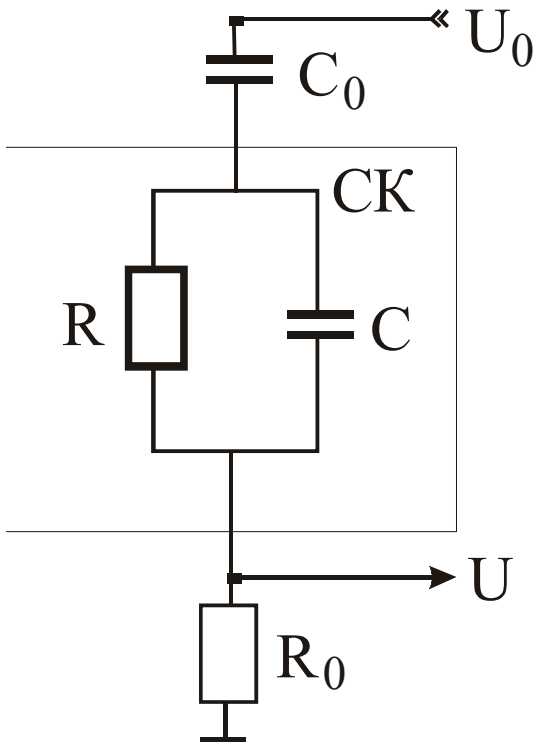


Рис. 1. Схема замещения образца СК.

параллельной схеме замещения (рис. 1). Анализ измерительной цепи методом проводимостей дал следующие расчетные формулы:

$$C = \left(\frac{R}{A} - 1 \right)^{1/2} (\omega R)^{-1}, \quad (1)$$

$$R = \left(A \operatorname{tg} \phi - \frac{1}{\omega C_0} \right)^2 A^{-1} + A, \quad (2)$$

где $A = (U_0 R_0 U^{-1}) (1 + \operatorname{tg}^2 \phi)^{-1/2}$; C_0 — разделительная емкость (1 нФ); R_0 — нагрузочное сопротивление (6,3 Ω); ω — круговая частота измерительного напряжения. Из выражения (1) для емкости C вычислялась ϵ' , а из выражения (2) для сопротивления R — эквивалентная параллельная проводимость $\sigma = \epsilon_0 \epsilon'' \omega$. Точность расчетов C и R контролировалась путем замены образца СК дискретными емкостью и сопротивлением с известными параметрами.

На рис. 2 представлены осциллограммы напряжения $V(t)$ и тока $j_n(t)$ переключения, соответствующие скорости нарастания поля $\dot{E} = 7 \text{ кВ} \cdot \text{мм}^{-1} \cdot \text{мкс}^{-1}$, а также осциллограмма выходного измерительного напряжения $U(t)$. Изменение амплитуды выходного сигнала является прямым следствием изменения

импеданса образца в процессе переполаризации. В момент завершения переключений доменных стенок и установления нового полярного состояния прекращается рост измерительного сигнала, несмотря на то, что поле в образце продолжает расти. По этому признаку время переключения поляризации t_n образца определялось как интервал времени с начала подачи высоковольтного импульса до момента прекращения изменения выходного низковольтного сигнала. На рис. 3 представлены временные зависимости действительной составляющей ϵ' диэлектрической проницаемости и эквивалентной параллельной проводимости σ СК, полученные для различных значений полного времени переключения t_n .

За время переключения ϵ' проходит через три максимума различной амплитуды, тогда как σ испытывает два размытых максимума. Первый, самый значительный по величине, максимум ϵ' приходится на передний фронт импульса напряжения и соответствует малым значениям диэлектрических потерь $\operatorname{tg} \delta$. Полученные экспериментальные зависимости $\epsilon'(t)$, $\sigma(t)$ и $\operatorname{tg} \delta$ отражают динамику доменной структуры в сильных импульсных электрических полях и свидетельствуют о сложном

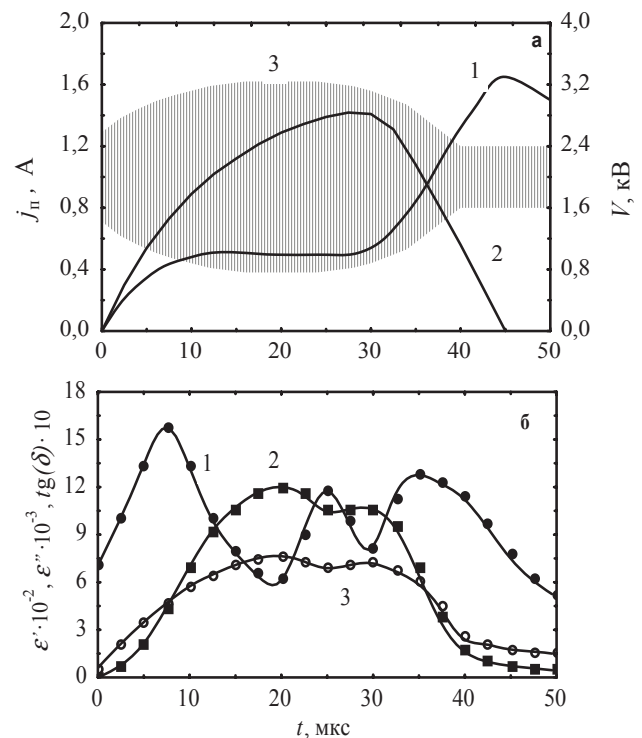


Рис. 2. а — осциллограммы напряжения $V(t)$ (1), тока переключения $j_n(t)$ (2) и высокочастотного (1 МГц) измерительного напряжения $U(t)$ (3) для СК ПКР-1; б — Временные зависимости роста $\epsilon'(t)$, $\epsilon''(t)$ и $\operatorname{tg} \delta(t)$ в процессе переключения поляризации СК ПКР-1. $t_n = 40 \text{ мкс}$.

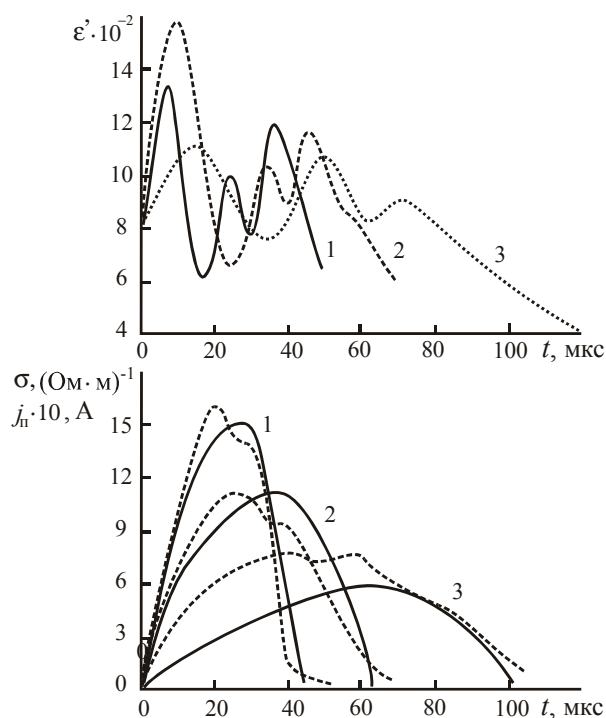


Рис. 3. Зависимости $\varepsilon'(t)$, $\sigma(t)$ (пунктирные кривые) и $j_n(t)$ для СК ПКР-1 в процессе переполаризации. t_n , мкс: 1 — 40, 2 — 60, 3 — 100.

характере релаксационных процессов в поликристаллических сегнетоэлектриках.

В [4] предполагается, что на фронте импульса напряжения до появления тока переключения имеет место дестабилизация 180° -ных доменных стенок и рост их подвижности без изменения исходной структуры. Зарождение и прямое прорастание 180° -ных игловидных доменов, ориентированных по полю, и увеличение подвижности доменных границ, участвующих в переключении, приводит к росту ε' . Одновременно появляются условия взаимного пьезоэлектрического зажатия доменов, приводящее к снижению ε' . При компенсации указанных процессов ε' достигает максимума. Максимальное значение ε' наблюдается в полях $E \approx E'_c$, где E'_c — динамическое коэрцитивное поле. С увеличением скорости нарастания поля в образце, т.е. с усилением интенсивности процесса переключения, наблюдается рост как абсолютной величины ε' , так и скорости ее изменения.

В зернах СК перестройка доменной структуры протекает параллельно и независимо. Различные этапы переключения перекрываются и дают суммарный вклад в динамические диэлектрические характеристики. Поэтому невозможно однозначно сопоставить наблюдаемые пики ε^* с конкретными

этапами известных механизмов переключения. Тем не менее, появление второго максимума ε' может быть связано с боковым движением расширяющихся 180° -ных доменов. Последующее монотонное убывание ε' может быть результатом одновременного проявления нескольких факторов. К числу наиболее вероятных причин снижения ε' следует отнести частичное уменьшение доли 180° -ных переключений и усиление эффекта доменного зажатия. Немаловажным является и влияние полей объемных и поверхностных зарядов экранирования на динамику доменной структуры.

Участие 90° -ной доменной структуры на завершающей стадии переключения приводит к появлению третьего максимума ε' . С уменьшением времени переключения t_n этот максимум ε' возрастает, и имеет тенденцию к насыщению. Таким образом, каждый максимум ε' ведет себя индивидуально.

Так как диэлектрические потери определяются главным образом движением доменных стенок, то изменение их подвижности в процессе переполаризации существенно сказывается на зависимости $\varepsilon''(t)$. Диэлектрическая вязкость возрастает при переходе от прямого прорастания к боковому движению 180° -ных и 90° -ных доменных стенок. Увеличение подвижности доменных стенок при освобождении от стопоров, обусловленных дефектностью структуры, сопровождается уменьшением потерь.

Таким образом, обнаруженные зависимости реверсивных характеристик $\varepsilon^*(t)$ свидетельствуют в пользу вклада 180° -ных и 90° -ных доменных стенок в диэлектрическую проницаемость сегнетоэлектрической керамики, роль которых различна в различных фазах процесса переключения. Оценка времени релаксации доменных стенок $\tau = \frac{\sigma}{\varepsilon_0 \omega^2 \varepsilon'}$ для СК ПКР-1 дает значение 0,3—0,45 мкс, что на порядок меньше, чем для кристаллов [5].

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 03-02-17762

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Физика сегнетоэлектрических явлений / Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, и др. Под ред. Г.А. Смоленского. Л.: Наука, 1985. С. 228.
2. Fouscova A., Janousek V. // J. Phys. Soc. Japan. 1965. V. 20. № 9. P. 1619.
3. Sadicov S.A., Agalarov A.Sh., Borodin V.Z. // Ferroelectrics. 1996. V. 86. P. 127.
4. Садыков С.А., Бородин В.З., Агаларов А.Ш. // ЖТФ. 2000. Т. 70. Вып. 6. С. 108.
5. Fatuzzo E. // J. Appl. Phys., 1962. V. 33. № 8. P. 2588.