УДК 537.9

DOI: 10. 21779/2542-0321-2025-40-1-31–36

В. Н. Нечаев, А. В. Шуба

Применение марковских цепей для моделирования процессов переключения поляризации в сегнетоэлектриках

Военный учебно-научный центр Военно-воздушных сил «Военно-воздушная академия имени профессора Н. Е. Жуковского и Ю. А. Гагарина»; Россия, 394064, г. Воронеж, ул. Старых Большевиков, 54а; wladnic@mail.ru, shandvit@rambler.ru

Аннотация. В статье предложена феноменологическая модель переключения поляризации в сегнетоэлектриках с полосовой доменной структурой с применением теории марковских случайных процессов. Установлено, что геометрические характеристики петли гистерезиса существенно зависят от соотношения объемов кристалла, занимаемого дефектами разного типа, а также от амплитуды и частоты внешнего электрического поля. Показано, что с ростом амплитуды и частоты внешнего поля площадь петель гистерезиса увеличивается. Данная модель может быть уточнена для случая 90º доменных структур сегнетоэлектриков и обобщена на случай ферромагнетиков, сегнетоэластиков, или температурного гистерезиса фазового перехода первого рода.

Ключевые слова: гистерезисные явления, полидоменный сегнетоэлектрик, марковский случайный процесс.

Наиболее востребованным в технических приложениях свойством сегнетоэлектрических материалов является их способность к переключению под действием внешнего электрического поля [1]. Экспериментальное исследование процессов переполяризации сегнетоэлектриков связано с изучением особенностей (формы, ширины, высоты) петель гистерезиса. Для их объяснения предложено большое количество как математических моделей [2–9], учитывающих физику конкретного явления, так и абстрактных теоретических, принимающих во внимание только общие закономерности, присущие любым гистерезисным явлениям. Например, в модели Стонера – Вольфарта [3], разработанной для поликристаллических ферромагнетиков, предполагается, что причиной гистерезиса при перемагничивании в каждом отдельном зерне является нелинейность энергии магнитной анизотропии. Поликристалличность материала учитывается путем введения функции распределения осей легкого намагничивания в зернах. Модель проста, физична, но расчетные значения параметров гистерезисной петли оказываются существенно выше наблюдаемых, поэтому связывать гистерезис со случайным распределением осей легкого намагничивания не совсем корректно. В модели Джилса – Атертона [4] перемагничивание осуществляется путем движения доменных границ в поле случайных стопоров, распределение которых по объему ферромагнетика, как и взаимодействие с границами доменов, неизвестно, что существенно усложняет расчеты, а согласие с экспериментом достигается подбором этих параметров. В модели Прейзаха [5] ферроик состоит из частиц с различными петлями гистерезиса, и выбор функции распределения по их размерам описывает реальную гистерезисную петлю, что требует отдельного физического обоснования. Другой метод, имеющий тот же недостаток и по-

лучивший распространение позднее, основан на известных в механике сплошной среды способах работы с неравновесными деформациями и поляризацией, где либо подбирается специальным образом определяющий функционал, либо в определяющие уравнения неинтегрального типа вводятся дополнительные независимые «термодинамические координаты» – внутренние переменные состояния [9]. Другими словами, в последнем случае предполагается, что термодинамическое состояние каждого элементарного объема описывается наблюдаемыми или внешними переменными – такими, как деформация, диэлектрическое смещение, температура, – и скрытыми или внутренними переменными.

Приведенные недостатки уже имеющихся моделей указывают на необходимость построения новых, физически обоснованных математических моделей гистерезисных явлений, содержащих минимальное количество подгоночных параметров, в рамках которых можно было бы интерпретировать экспериментальные данные.

Как известно, процесс переполяризации с микроскопической точки зрения состоит из нескольких этапов, различающихся для монодоменных и полидоменных образцов. Переключение последних в случае одноосных сегнетоэлектриков осуществляется путем термоактивационного движения доменных границ. Тогда приложение к сегнетоэлектрику внешнего электрического поля параллельно полярной оси сначала смещает слабо закрепленные (точечными дефектами) 180° доменные границы, приводя к увеличению доменов с энергетически выгодной ориентацией вектора поляризации $\vec{P}$. Энергия взаимодействия W_1 точечных дефектов с доменными границами составляет обычно несколько сотых долей электрон-вольта. Дальнейшее увеличение напряженности E поля приводит к отрыву доменных границ от более сильных стопоров (скоплений точечных дефектов, дислокаций, границ зерен) [10]. Энергия взаимодействия W_2 границы с этим типом стопоров равна десятой доле электрон-вольта и выше. Наконец, в материале, как показывает эксперимент, могут существовать «упрямые» домены, которые переключаются при очень сильных полях. Их существование связывают с закреплением доменных границ на макроскопических дефектах, и их энергия связи W_3 в этом случае может быть более 1 эВ. В случае монодоменного образца процесс переключения начинается с образования критического зародыша обратного домена [11–12]. В зависимости от типа зарождения (гомогенное или гетерогенное) энергия критического зародыша W_4 может составлять несколько эВ.

Предположим, что случайный процесс переключения в исследуемой 180° доменной структуре является марковским, и используем феноменологическую модель, графическое изображение которой представлено на рис. 1.

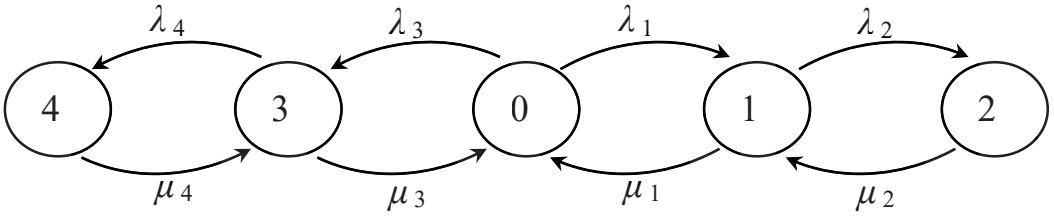


Рис. 1. Граф процесса переключения сегнетоэлектрика

На рис 1 состоянию «0» отвечает исходная конфигурация; «1» – частичное переключение образца (преодоление слабых стопоров); «2» – частичное переключение образца (преодоление сильных стопоров); «3» и «4» соответствуют состояниям «1» и «2» с противоположным направлением внешнего поля. Состояния, отвечающие отрыву

границ «упрямых» доменов, в данной модели не рассматриваются в связи со сравнительно малой вероятностью таких процессов. Графическая модель на 0 описывается системой уравнений Колмогорова:

$$\begin{cases} \frac{dp_0}{dt} = -(\lambda_1 + \lambda_3) p_0 + \mu_1 p_1 + \mu_3 p_3, \\ \frac{dp_1}{dt} = -(\lambda_2 + \mu_1) p_1 + \lambda_1 p_0 + \mu_2 p_2, \\ \frac{dp_2}{dt} = -\mu_2 p_2 + \lambda_2 p_1, \\ \frac{dp_3}{dt} = -(\lambda_4 + \mu_3) p_3 + \lambda_3 p_0 + \mu_4 p_4, \\ \frac{dp_4}{dt} = -\mu_4 p_4 + \lambda_4 p_3, \end{cases} \quad (1)$$

где $p_i(t)$ – вероятности нахождения системы соответственно в состояниях i = 0, 1, 2, 3, 4; а интенсивности переходов λ_i, μ_i между ними имеют вид:

$$\lambda_{1,2} = \mu_{3,4} = \omega_0 \exp\left(-\frac{W_{1,2} - EP_s}{k_B T}\right); \quad \mu_{1,2} = \lambda_{3,4} = \omega_0 \exp\left(-\frac{W_{1,2} + EP_s}{k_B T}\right). \quad (2)$$

В выражениях (2) ω_0 – это число попыток отрыва доменных границ от стопоров в единицу времени; P_s – спонтанная поляризация образца; k_B – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура. Система дифференциальных уравнений (1) линейно зависима и одно из уравнений можно заменить условием нормировки вероятностей

$$p_0 + p_1 + p_2 + p_3 + p_4 = 1.$$

Система (1) решалась численно методом Рунге – Кутты с параметрами модельного сегнетоэлектрика триглицинсульфата (ТГС): P_s = 3. 97 μC/cm^2, $\omega_0 \approx 10$ s^{-1} при комнатной температуре. При приложении переменного внешнего поля

$$E(t) = E_m \sin \omega t \quad (3)$$

частотой ω и амплитудой E_m вдоль полярной оси на 180° доменные границы начинает действовать термодинамическая сила $-2P_sE$, стремящаяся сместить их в более энергетически выгодное положение. В результате система начинает совершать случайные блуждания между состояниями, показанными на рис. 1. Поляризация в этом процессе вычисляется по формуле

$$P = P_s\left(p_1(t)\delta + p_2(t)(1-\delta) - p_3(t)\delta - p_4(t)(1-\delta)\right), \quad (4)$$

где δ – доля объема кристалла, в которой движение доменных границ контролируется слабыми стопорами, например, точечными дефектами. Эта величина является экспериментальным параметром, зависящим от степени совершенства кристалла и может существенно изменяться при переходе от образца к образцу. При этом предполагается, что переполяризация в оставшейся части материала контролируется более сильными стопорами, такими, как скопления точечных дефектов, дислокации и т. д. Петли гистерезиса, полученные с помощью формулы (4) с учетом найденных из системы (1) вероятностей, представлены на рис. 2–4. Динамика установления равновесия при переполяризации кристалла показана на 0, откуда можно заключить, что в предлагаемой нами модели равновесие в системе достигается уже за 5 циклов переключения.

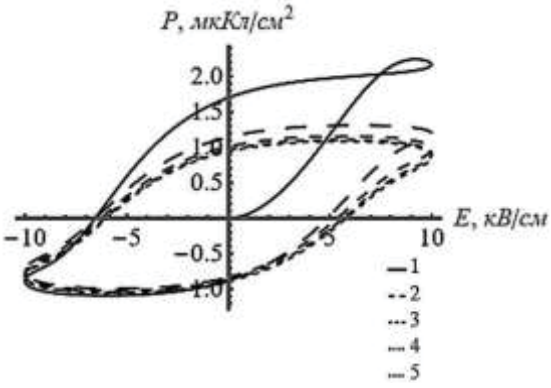


Рис. 2. Динамика установления равновесия при переключении кристалла ТГС внешним электрическим полем частотой ω = 1 Гц (цифры соответствуют номеру цикла переключения), δ = 0.6

Равновесные петли гистерезиса в зависимости от параметров δ, E_m, ω приведены на рис. 3–5.

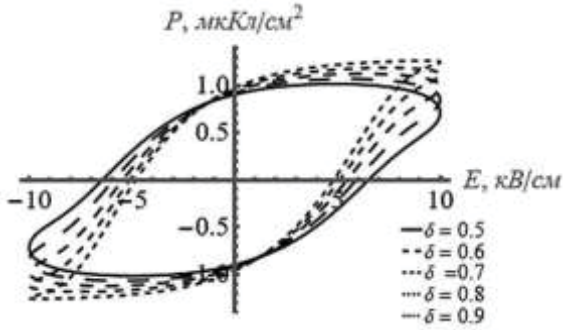


Рис. 3. Петли гистерезиса при разных значениях параметра δ, характеризующего степень дефектности кристалла, ω = 1 Гц

С ростом доли (1–δ) объема материала петля гистерезиса приобретает более прямоугольную форму, что может свидетельствовать о росте коэрцитивной силы E_C (0). Естественно ожидать, что с ростом амплитуды E_m внешнего поля петли гистерезиса раскрываются сильнее и становятся более вытянутыми вдоль оси абсцисс (рис. 4).

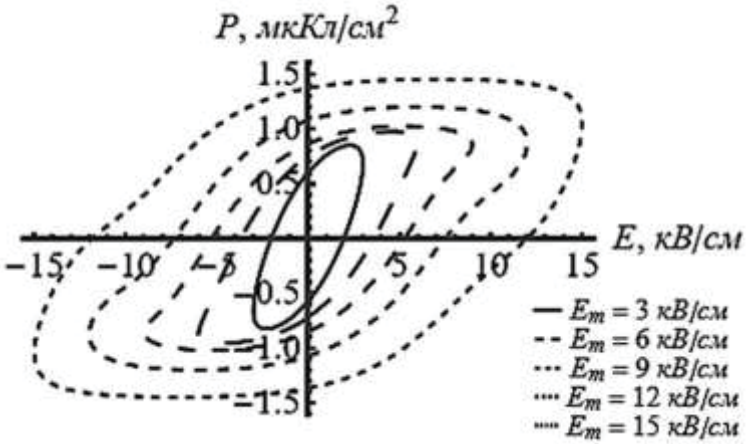


Рис. 4. Петли гистерезиса для разной амплитуды E_m внешнего поля частотой ω = 1 Гц, δ = 0.6

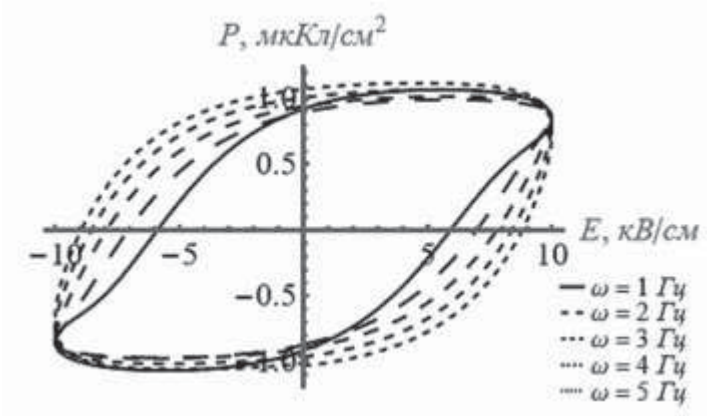


Рис. 5. Петли гистерезиса для разной частоты ω внешнего поля, $\delta = 0.6$

С увеличением частоты ω внешнего поля неравновесность системы повышается и площадь петель гистерезиса на малых частотах увеличивается (рис. 5).

Выводы

Сформулирована феноменологическая модель диэлектрического гистерезиса на примере переключения 180° доменных структур сегнетоэлектриков, основанная на теории марковских случайных процессов. Модель легко уточняется на случай электрического и механического переключения 90° доменных структур сегнетоэлектриков, а также может быть обобщена на случай ферромагнетиков или сегнетоэластиков, температурного гистерезиса фазового перехода первого рода, дислокационного гистерезиса. Разработанная математическая модель может оказать помощь в определении структуры исследуемого материала путем варьирования в модели энергией взаимодействия доменных границ с различного рода дефектами при сравнении рассчитанных и экспериментальных петель гистерезиса. Изменение входных параметров внешнего электрического поля дает возможность спрогнозировать работу переключающихся сегнетоэлектрических устройств.

Литература

1. Mikolajick, T. The Past, the Present, and the Future of Ferroelectric Memories / T. Mikolajick, U. Schroeder, S. Slesazeck // IEEE Transactions on Electron Devices. 2020. Vol. 67, no. 4. – Pp. 1434–1443.

2. Tagantsev, A. K. Domains in ferroic crys-tals and thin films / A. K. Tagantsev, L. E. Cross, J. Fousek. – New-York, Dordrecht, Heidelberg, London: Springer, 2010. – 813 p.

3. Stoner, E. C. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys / E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth // Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A: Mathematical and Physical Sciences. 1948. Vol. 240, no. 826. – Pp. 599–642.

4. Jiles, D. C. Theory of ferromagnetic hysteresis / D. C. Jiles, D. L. Atherton // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 1986. Vol. 61. – Pp. 48–60.

5. Preisach, F. Über die magnetische Nachwrikung / F. Preisach // Zeitschrift für Physik. 1935. B. 94. – Pp. 277–302.

6. Stolichnov, I. Crossover between nucleation-controlled kinetics and domain wall motion kinetics of polarization reversal in ferroelectric films / I. Stolichnov, A. Tagantsev, N. Setter, J. S. Cross, and M. Tsukada // Applied Physics Letters. 2003. Vol. 83, no. 16. – Pp. 3362–3364.

7. Tagantsev, A. K. Non-Kolmogorov-Avrami switching kinetics in ferroelectric thin films / A. K. Tagantsev, I. Stolichnov, N. Setter, J. S. Cross, and M. Tsukada // Physical Review B. 2002. Vol. 66. Art. no. 214109.

8. Feng, Yang. A model for the polarization hysteresis loops of the perovskite-type ferroelectric thin films / Yang Feng, M. H. Tang, Y. C. Zhou, and X. C. Zheng // Applied Physics Letters. 2007. Vol. 91, no. 14. – Art. no. 142902.

9. Coleman, B. D. Thermodynamics with internal state variables / B. D. Coleman, M. E. Gurtin // The Journal of Chemical Physics. 1967. Vol. 47, no. 2. – Pp. 597–613.

10. Li, L. Real-time studies of ferroelectric domain switching: A review / L. Li, L. Xie, and X. Pan // Reports on Progress in Physics. 2019. Vol. 82, no. 12. – Art. no. 126502.

11. Nechaev, V. N. About switching of polari-zation in a thin ferroelectric film / V. N. Nechaev and A. V. Shuba // International Journal of Modern Physics B. 2023. Vol. 37, no. 28. – Art. no. 2350241.

12. Genenko, Y. A. Stochastic multistep polarization switch-ing in ferroelectrics / Y. A. Genenko, R. Khachaturyan, J. Schultheiß, A. Ossipov, J. E. Daniels, and J. Koruza // Physical Review B. 2018. Vol. 97. – Art. no. 144101.

Поступила в редакцию 30 декабря 2024 г.
Принята 27 января 2024 г.

UDC 537.9

DOI: 10.21779/2542-0321-2025-40-1-31–36

The Markov Chains Application to the Model Polarization Switching Processes in Ferroelectrics

V. N. Nechaev, A. V. Shuba

Military Educational and Scientific Centre of the Air Force N. E. Zhukovsky and Y. A. Gagarin Air Force Academy; Russia, 394064, Voronezh, Starykh Bolshevikov st., 54a; wladnic@mail.ru, shandvit@rambler.ru

Abstract. The phenomenological model of polarization switching in ferroelectrics with a stripe domain structure is proposed using the theory of Markov random processes. It has been established that the geometric characteristics of the hysteresis loop depend on the ratio of the crystal volumes occupied by the defects of different types, as well as on the amplitude and frequency of the external electric field. It has been shown that with an increase in the amplitude and frequency of the external field, the area of the hysteresis loops increases. This model can be refined for the case of 90° domain structures of ferroelectrics and generalized to the case of ferromagnets, ferroelastics, or the temperature hysteresis of the first order phase transition.

Keywords: hysteresis phenomena, multidomain ferroelectric, Markov random process.

Received 30 December, 2024
Accepted 27 January, 2024