

УДК 537.226.4

© 1992

ДОМЕННЫЙ МЕХАНИЗМ ВОЗНИКНОВЕНИЯ ХАОСА В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ ТГС

С. Н. Дрождин, Л. Н. Камышева

Исследованы хаотические колебания, возникающие в последовательном резонансном RLC -контуре при циклической переполаризации его сегнетоэлектрической емкости (образцы сегнетоэлектрических монокристаллов чистого и примесного триглицинсульфата). Предполагается, что хаотизация колебаний в контуре имеет доменное происхождение и обусловлена статистическими процессами зарождения и исчезновения антипараллельных доменов в исходных монодоменных областях кристалла под действием синусоидального электрического поля.

Исследования вынужденных хаотических колебаний в последовательном резонансном RLC -контуре [1–8], содержащем нелинейную сегнетоэлектрическую емкость (рис. 1), представляют значительный научный интерес, поскольку при этом появляется возможность связать механизм возникновения хаоса с физическими процессами, происходящими непосредственно в нелинейном элементе системы (в сегнетоэлектрическом кристалле) под действием вынуждающей силы (синусоидального электрического поля, переполаризующего кристалл), и одновременно более детально изучить сами эти процессы.

Поведение контура (рис. 1) описывается нелинейным дифференциальным уравнением Дуффинга в следующей форме [1, 2]:

$$\dot{P} + \frac{\omega_r}{Q} \dot{P} + \frac{d\alpha}{SL} P + \frac{d\beta}{SL} P^3 = \frac{U_0}{LS} \sin 2\pi\nu t, \quad (1)$$

где P — поляризация сегнетоэлектрического образца; ω_r — резонансная частота контура; Q — добротность контура; d и S — соответственно толщина и площадь образца; L — линейная индуктивность; ν и U_0 — частота и амплитуда электрического напряжения, приложенного к контуру; α и β — коэффициенты разложения термодинамического потенциала в ряд по четным степеням поляризации.

Уравнение (1) получается из уравнения движения для контура с использованием электрического уравнения состояния сегнетоэлектрика с фазовым переходом второго рода

$$E_{\text{вн}} = \frac{\partial \Phi}{\partial P} = \alpha P + \beta P^3 + \dots, \quad (2)$$

где $\Phi(P, \Theta)$ — термодинамический потенциал, зависящий от поляризации и температуры Θ ; $E_{\text{вн}}$ — напряженность электрического поля в кристалле; α (Θ) и $\beta = \text{const} > 0$ — термодинамические коэффициенты.

Формально уравнение (1) имеет не только периодические решения, но и решения в виде последовательности удвоений периода колебаний T , приводящей к режиму хаотических колебаний [9]. Однако уравнение (2), а значит, и уравнение (1) справедливы только для монодоменного кристалла. Их применение для описания рассматриваемой системы некорректно, поскольку в процессе переполаризации каждое мгновенное промежуточное состояние кристалла является полидоменным.

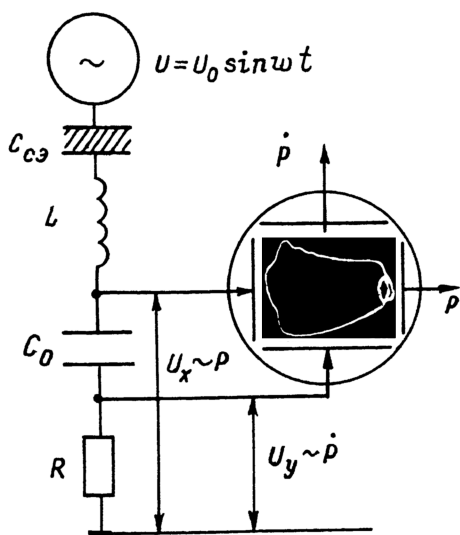


Рис. 1. Схема для наблюдения фазового портрета (зависимости \dot{P} (P)) последовательного резонансного контура, возбуждаемого синусоидальным напряжением.

$C_{сз}$ — емкость сегнетоэлектрического образца; L — линейная индуктивность (320 мГн); $C_0 \gg C_{сз}$ — линейная емкость (0.5 мкФ); R — омическое сопротивление (5—10 Ом); U_x — напряжение, подаваемое на вход X осциллографа и пропорциональное поляризации P образца; U_y — напряжение, подаваемое на вход Y осциллографа и пропорциональное скорости изменения поляризации \dot{P} .

В настоящей работе обсуждается вопрос о роли доменной структуры в возникновении хаоса на примере модельного сегнетоэлектрического кристалла триглицинсульфата (ТГС), переполаризационные свойства которого хорошо изучены как косвенными, так и прямыми методами.

В наших первых работах [6—8] было показано, что возникновение хаоса

происходит в переполаризующем поле с амплитудой E_0 , в 2—3 раза превосходящей напряженность коэрцитивного поля данного образца (рис. 2). По мере увеличения E_0 (при $\Theta = \text{const}$) однопериодное колебание сменяется каскадом удвоений периода колебаний (первое удвоение показано на рис. 2 штриховой линией), приводящим к хаосу. Хаос существует в ограниченном интервале амплитуд шириной ΔE_x (рис. 2, заштрихованная область). При увеличении

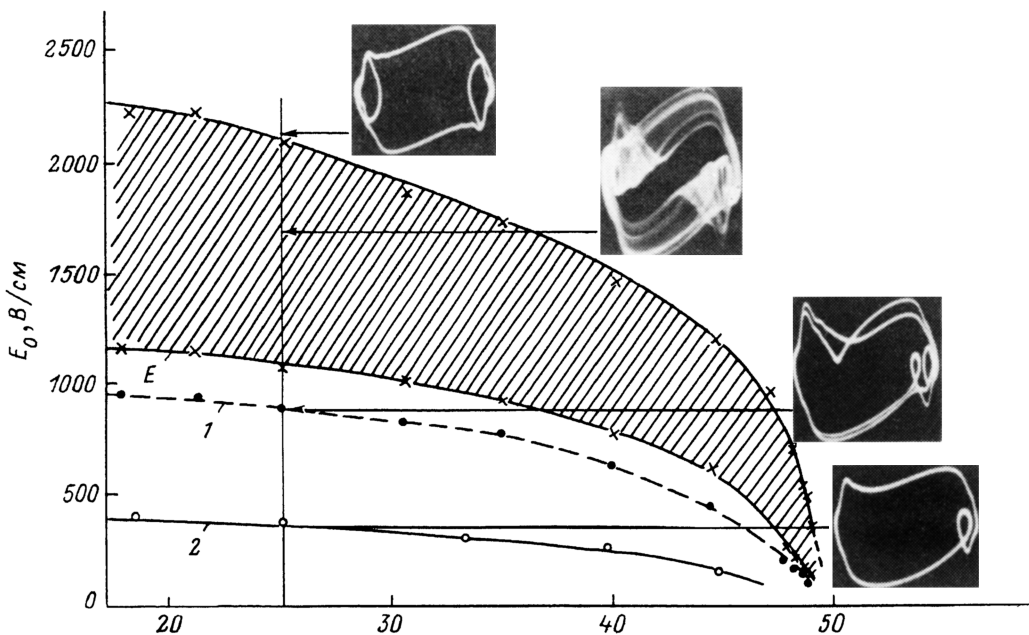


Рис. 2. Область существования хаоса (заштрихована) для кристалла номинально чистого ТГС в координатах «амплитуда поля—температура образца».

E_{x1} и E_{x2} — границы этой области. На фотографиях $a-z$ — вид фазового портрета контура для разных E_0 при $\Theta = 25^\circ\text{C}$ и $\nu = 2.5$ кГц. 1 — температурная зависимость начала каскада удвоений периода колебаний, 2 — температурная зависимость коэрцитивного поля образца на частоте 2.5 кГц.

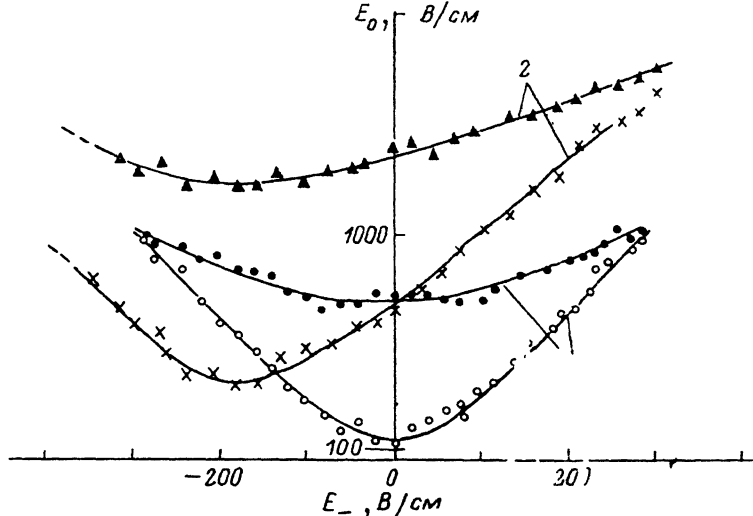


Рис. 3. Области существования хаоса в координатах (E_{01}, E_-) для кристаллов номинально чистого ТГС (1) и ТГС + Cr^{3+} (2).

$\Theta = 40^\circ\text{C}$, $\nu = 2.2$ кГц. Внутреннее поле кристалла ТГС + Cr^{3+} $E_{\text{вн}} \approx 170$ В/см.

температуры область хаотического поведения постепенно сужается; при этом понижаются как нижняя E_{x1} , так и верхняя E_{x2} границы этой области. Выше точки Кюри Θ_c хаос не наблюдается. Вид зависимости (рис. 2) одинаков как при нагревании, так и при охлаждении образца.

Поскольку существование хаотических колебаний в контуре (рис. 1) связывается нами с процессом переполяризации кристалла ТГС (т. е. с динамическими свойствами доменной структуры кристалла), то мы провели изучение влияния постоянного электрического поля E_- на область существования хаоса.

Как следует из рис. 3, приложение постоянного электрического поля уменьшает ширину области хаотического поведения ΔE_x . При этом для номинально чистого кристалла ТГС воздействие поля E_- противоположных направлений оказывается одинаковым, что выражается в симметричности зависимости $E_x(E_-)$ относительно оси ординат (рис. 3, кривые 1). Для примесного кристалла ТГС + Cr^{3+} эта зависимость несимметрична (рис. 3, кривые 2). Ее минимум приходится на значение E_- , которое хорошо совпадает со значением внутреннего поля $E_{\text{вн}}$ данного образца кристалла ТГС + Cr^{3+} , определенным по петле диэлектрического гистерезиса на той же частоте и при той же температуре.

Остановимся подробнее на вопросе о механизме возникновения хаоса в системе (рис. 1) с точки зрения процессов, происходящих в кристалле при переполяризации в синусоидальном электрическом поле.

В наших опытах основным критерием поведения системы был вид ее фазового портрета — зависимости $P(P)$, получаемой с помощью схемы (рис. 1). Очевидно, что наблюдаемая в опыте осциллограмма $\dot{P}(P)$ отражает поведение макроскопической поляризации сегнетоэлектрического кристалла в режиме вынужденных колебаний контура. С этой точки зрения существование хаоса как в координатах (E_0, Θ) , так и в координатах (E_0, E_-) означает, что в хаотическом режиме движение изображающей точки на фазовой плоскости (P, \dot{P}) носит нерегулярный, случайный характер в том смысле, что значения поляризации и скорости ее изменения не воспроизводятся от периода к периоду. Поскольку мгновенные значения обеих величин непосредственно зависят от мгновенного состояния доменной структуры, определяемого числом, положениями и скоро-

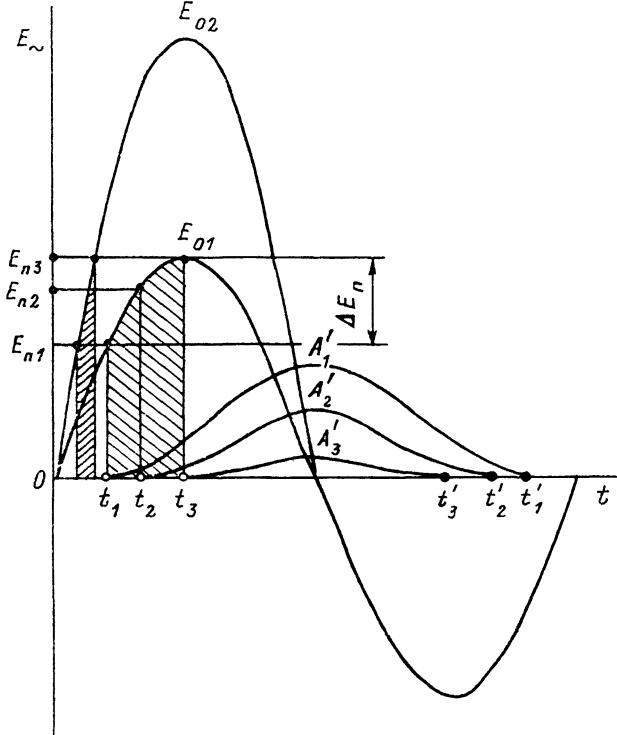


Рис. 4. Схематическое представление поведения зародышей доменов с пороговыми полями зарождения E_{ni} ($i = 1, 2, 3$) от моментов их зарождения t_i до моментов исчезновения t'_i в синусоидальном электрическом поле.

ΔE_n — ширина области пороговых полей зародышеобразования, A'_i — амплитуды боковых колебаний возникших доменов. Заштрихованные области — временные интервалы, соответствующие максимальной разности начальных фаз колебаний доменов в полях с амплитудами E_{01} и E_{02} .

стями доменных стенок, можно предположить, что указанное поведение P и P является отражением соответствующего поведения доменной структуры, а именно нерегулярного и периодически невоспроизводимого.

Общепринято считать [10], что процесс переполаризации кристалла состоит из четырех основных этапов: зародышеобразование (зарождение доменов противоположного знака), торцевое прорастание возникших зародышей доменов сквозь кристалл, боковое разрастание доменов, слияние соседних доменов.

В синусоидальном электрическом поле переполаризация кристалла с исходной полидоменной структурой осуществляется дополнительно за счет колебаний существующих доменных стенок около их начальных положений [11]. Используя эмпирическую зависимость амплитуды боковых колебаний этих стенок от частоты синусоидального поля [11]

$$A = B\nu^{-m}, \quad (3)$$

где B и m — постоянные ($m < 1$), а также представленные в этой работе экспериментальные зависимости $A(\nu)$, мы оценили порядок величины A при $E_0 = 100$ В/см и $\nu = 2.5$ кГц (наша рабочая частота), который оказался равным $10^{-2} - 10^{-3}$ мкм. Учитывая малость A , можно предположить, что в этих условиях боковые колебания исходных стенок не смогут вызвать хаос, проявляющийся в периодической невоспроизводимости P и P . Проводя перед каждым наблюдением

фазового портрета монодоменизации образца в поле $E_0 \sim 7E_c$ (т. е. убирая исходные доменные стенки), мы убедились, что в этом случае хаос возникает при тех же условиях, что и в полидоменном образце. Это означает, по-видимому, что боковые колебания исходных доменных стенок вообще не играют роли в возникновении хаоса.

Процесс зародышеобразования новых доменов в синусоидальном поле, как было показано в [12], начинается с некоторого порогового значения поля E_p . При $E_0 \sim E_p$ плотность возникающих зародышей невелика и составляет $\sim 10^2$ см⁻². При $E_0 \geq E_p$ начинается интенсивное зародышеобразование, при котором плотность зародышей возрастает на несколько порядков и при этом для них отмечается наличие широкого распределения по значениям пороговых полей [13], что подтверждает статистический характер процесса. Вследствие этого в переменном электрическом поле с фиксированной амплитудой разные домены зарождаются с некоторым фазовым сдвигом по отношению друг к другу, что схематически изображено на рис. 4.

Видно, что как появление, так и исчезновение зародышей доменов, имеющих разные пороговые поля зарождения, происходит в разные моменты времени. В течение промежутка времени $T' = t' - t$ от зарождения до исчезновения происходит сначала рост, а затем уменьшение домена. Во времени этот процесс будет представлять собой колебание с периодом T' , который, как видно из рис. 4, будет разным для разных доменов. Кроме того (рис. 4), эти колебания совершаются с разными амплитудами A' , поскольку длительность действия поля на домены, зародившиеся в разные моменты времени, различна.

На основании вышеизложенного доменную структуру кристалла, находящегося в переменном электрическом поле, можно рассматривать как систему независимых осцилляторов, число которых интенсивно увеличивается, когда амплитуда поля $E_0 \geq E_p$. Эти осцилляторы имеют разные начальные фазы, частоты и амплитуды, вследствие чего в их колебаниях будет отсутствовать синхронизм. Учитывая случайный характер появления зародышей доменов, можно предположить, что будет также отсутствовать строгая периодическая повторяемость в колебаниях отдельных осцилляторов. По этим причинам мгновенная макроскопическая поляризация кристалла, а также скорость ее изменения окажутся периодически невозпроизводимыми, вследствие чего колебания в рассматриваемой динамической системе примут хаотический характер.

Это предположение подтверждается тем, что значения амплитуды поля, при которых в номинально чистом ТГС начинается хаос, хорошо коррелируют со значениями пороговых полей интенсивного зародышеобразования, которые, по данным [13], при тех же ν и Θ , что и в наших опытах, так же как и E_{x1} , составляют примерно 2—3 E_c .

При дальнейшем росте амплитуды поля (при $\nu = \text{const}$ и $\Theta = \text{const}$) увеличиваются число зародышей и боковые размеры прорастающих доменов, а расстояния между стенками соседних доменов уменьшаются, что вызывает усиление взаимодействия между этими доменами. Взаимодействие между осцилляторами (доменами) вызывает синхронизацию их колебаний, что приводит к исчезновению хаоса. Этому способствует и то, что с ростом E_0 уменьшается разность начальных фаз осцилляторов, соответствующая различию моментов зарождения разных доменов (рис. 4).

При приближении к точке Кюри Θ_c возникновение хаоса происходит в меньших полях, поскольку при этом зарождение доменов, будучи термоактивированным процессом, облегчено. По этой же причине, а также из-за того, что с ростом температуры вследствие увеличения числа доменов и уменьшения расстояний между ними растет роль взаимодействия как фактора синхронизации колебаний, происходит одновременно понижение и верхней границы области хаотического поведения (рис. 2).

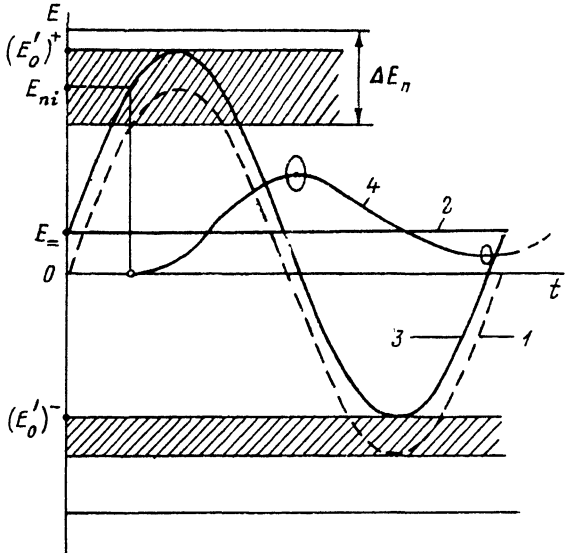


Рис. 5. Схематическое представление поведения зародышей доменов при одновременном действии на кристалл переменного и постоянного электрических полей.

1 — $E_-(t)$, 2 — $E_- + E_-(t)$, 3 — $E_-(t) - E_-$, 4 — временная зависимость поведения домена с пороговым полем зарождения E_{ni} в результирующем электрическом поле E_- . ΔE_n — ширина области пороговых полей зародышеобразования, $(E_0')^+$ и $(E_0')^-$ — амплитуды результирующего поля в соседних полупериодах. Заштрихованные области соответствуют интервалам пороговых полей зародышей, выключенных из процесса «зарождения-исчезновения» в заданном поле E_- .

С этих позиций объяснимо наблюдаемое на опыте влияние постоянного электрического поля на хаотическое поведение кристаллов ТГС (рис. 3).

При одновременном приложении к кристаллу полей E_+ и E_-

образец находится в переменном поле E_-' , у которого амплитуды $(E_0')^+$ и $(E_0')^-$ в соседних полупериодах неодинаковы (на рис. 5 $(E_0')^+$ больше, чем $(E_0')^-$).

В таком поле часть доменов, имеющих малые E_n , оказывается выключенной из процесса переполаризации, а точнее, из статистического этапа зарождения-исчезновения, с которым, как было показано выше, связана хаотизация колебаний. Действительно, часть доменов, зародившихся в первом полупериоде $(E_0')^+$, в дальнейшем не сможет исчезнуть. Их поведение с течением времени будет аналогично поведению исходных доменов полидоменного образца, т. е. сводится к колебаниям их стенок с малыми амплитудами около начальных положений. Кроме того, в полупериоде $(E_0')^-$ часть доменов не может зародиться, так как результирующее поле стало меньше их пороговых полей. Это приводит к тому, что под действием поля E_- хаос становится либо менее развитым, либо исчезает в зависимости от величины E_- при $E_0 = \text{const}$. Чтобы восстановить хаотический

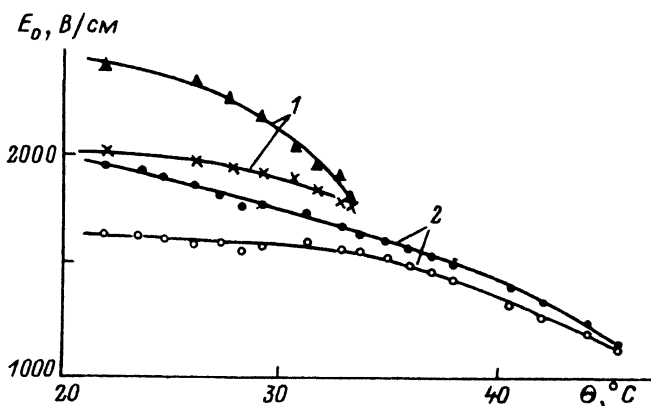


Рис. 6. Области существования хаоса для кристалла ТГС + L, α -аланин на частоте $\nu = 2.5$ кГц в координатах (E_0, Θ) .

1 — $E_- = 0$; 2 — к образцу приложено поле $E_- = 210$ В/см, которое частично компенсирует внутреннее поле образца $E_{вн} = 270$ В/см.

режим, нужно вновь вовлечь эти домены в указанный процесс, для чего при $E_+ = \text{const}$ надо увеличить E_0 . Это и проявляется в повышении нижней границы хаотической области при увеличении E_+ (рис. 3).

Влияние внутреннего поля $E_{\text{вн}}$ на хаотическое поведение кристаллов ТГС эквивалентно действию поля E_+ и особенно отчетливо проявляется для кристаллов ТГС с примесью L , α -аланина (ЛАТГС).

На рис. 6 показано температурное поведение хаотической области ΔE_x для образца ЛАТГС в двух случаях — без приложения к кристаллу постоянного поля и под действием поля E_+ , которое частично компенсирует поле $E_{\text{вн}}$. Существование в кристалле этого поля приводит к тому, что область хаоса оказывается «обрезанной» со стороны высоких температур, т. е. заканчивается задолго до Θ_c . Приложение к кристаллу поля E_+ , частично компенсирующего поле $E_{\text{вн}}$, расширяет температурный интервал хаотического поведения в сторону точки Кюри. Амплитудный интервал ΔE_x существования хаоса при этом смещается в сторону меньших значений E_0 , что согласуется с предложенным доменным механизмом возникновения хаоса.

Подводя итог изложенному, можно сделать следующие выводы.

1. При определенных условиях (амплитуда и частота переполаризующего поля, температура образца, величина внешнего постоянного электрического поля, наличие в кристалле внутреннего поля) переполаризация сегнетоэлектрических кристаллов ТГС осуществляется таким образом, что в последовательном резонансном RLC -контуре, содержащем этот кристалл, наблюдаются вынужденные хаотические колебания, имеющие, как показывает совокупность полученных результатов, доменное происхождение.

2. Можно предположить, что хаотизация колебаний в данной динамической системе при переполаризации сегнетоэлектрического ТГС синусоидальным электрическим полем обусловлена статистическим процессом зарождения—исчезновения антипараллельных доменов в исходных монодоменных областях кристалла. В хаотическом режиме эти домены ведут себя как система невзаимодействующих осцилляторов с разными начальными фазами, частотами и амплитудами, колебания которых несинхронизированы, а в колебаниях парциальных осцилляторов отсутствует строгая периодическая повторяемость.

Список литературы

- [1] Beige H., Albers J., Petersson J. // Jap. J. Appl. Phys. 1985. V. 24. Suppl. 24—2. P. 715—717.
- [2] Huang J. Y., Kim J. J. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. N 11. P. 8122—8124.
- [3] Diestelhorst M., Beige H. // Ferroelectrics. 1988. V. 81. P. 15—18.
- [4] Kim J. J., Huang J. Y. // Phys. Rev. B. 1988. V. 38. N 16. P. 11885—11887.
- [5] Beige H., Diestelhorst M., Forster R., Albers J., Müser H. // Ferroelectrics. 1990. V. 104. P. 355—360.
- [6] Дрождин С. Н., Камышева Л. Н., Дистельхорст М., Сердюк О. М., Косарева О. А. // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. № 14. С. 1—5.
- [7] Дрождин С. Н., Камышева Л. Н. // Кристаллография. 1991. Т. 36. № 4. С. 925—930.
- [8] Drozhdin S. N., Kamysheva L. N. // Abstr. 7th Europ. Meet. Ferroel. 1991. P. 16.
- [9] Ueda Y. // J. Stat. Phys. 1979. V. 20. P. 181—196.
- [10] Барфут Дж., Тейлор Дж. Полярные диэлектрики и их применения: Пер. с англ. М., 1981. 526 с.
- [11] Донцова Л. И., Булатова Л. Г., Шильников А. В., Тихомирова Н. А. // Физика диэлектриков и полупроводников: Сб. научн. трудов. Волгоград, 1986. С. 123—139.
- [12] Донцова Л. И., Тихомирова Н. А., Пикин С. А., Шувалов Л. А. // ДАН СССР. 1979. Т. 245. № 6. С. 1376—1379.
- [13] Тихомирова Н. А., Гинзберг А. В., Чумакова С. П., Шувалов Л. А., Донцова Л. И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 3055—3058.