

06,11

## Влияние гидростатического давления на кинетику упорядочения сегнетоэлектриков при фазовых переходах второго рода

© О.Ю. Мазур, Л.И. Стефанович, В.М. Юрченко

Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина НАН Украины,  
Донецк, Украина

E-mail: listef25911@rambler.ru

(Поступила в Редакцию 16 января 2015 г.

В окончательной редакции 3 февраля 2015 г.)

Рассмотрено влияние гидростатического давления на кинетику формирования электрических доменов в сегнетоэлектриках, испытывающих фазовые переходы второго рода. На примере сегнетоэлектрических кристаллов триглицинсульфата, испытывающих фазовый переход типа порядок–беспорядок, показано, что давление повышает температуру упорядочения, тем самым ускоряя процесс упорядочения. Установлено, что, повышая величину гидростатического давления, наложенного на образец после закалки, можно вместо полидоменного типа упорядочения получать монодоменный образец. Путем численного интегрирования получены эволюционные кривые для среднего значения параметра порядка и его дисперсии. Эти кривые свидетельствуют, что при некоторых специально подобранных давлениях возможно появление квазистационарных полидоменных структур несимметричного вида. Установлено, что кинетика формирования электрических доменов в сегнетоэлектриках существенно зависит от стартовых условий релаксации, которые обусловлены технологической предисторией закалки.

### 1. Введение

Сегнетоэлектрики относятся к таким системам, которые по мере приближения к точке фазового перехода существенным образом изменяют свои свойства под влиянием внешних воздействий — электрических полей, однородных и неоднородных механических напряжений и т.д. Следовательно, используя подобные воздействия, можно эффективно изменять доменную структуру сегнетоэлектрика, что является актуальным для практических приложений. При этом важно научиться управлять доменной структурой сегнетоэлектрика еще на стадии ее формирования, т.е. в процессе релаксации неравновесной системы к состоянию термодинамического равновесия.

Следует сказать, что изучению влияния механических напряжений на физические свойства сегнетоэлектриков различных типов уделяется довольно большое внимание уже на протяжении многих лет. Так еще в 60-е годы прошлого столетия в работе [1] экспериментально наблюдался сдвиг температур фазовых переходов первого и второго рода под влиянием одноосного давления в кристаллах титаната бария. Известны также эксперименты на кристаллах триглицинсульфата (ТГС) [2,3], которые посвящены изучению влияния одноосного давления на петлю гистерезиса и барические коэффициенты температуры. Так, например, в работе [2] было установлено, что при наложении давлений в диапазоне величин 1.0–1.4 GPa сдвиг точки Кюри подчиняется линейному закону с коэффициентом  $dT_c/dp = 26 \text{ K/GPa}$ . В дальнейшем появились сведения об экспериментах [4] по воздействию двумерного давления на сдвиг температуры Кюри в титанате бария. Что же касается влия-

ния гидростатического давления на фазовые переходы первого и второго рода в сегнетоэлектриках, то они представлены еще более широким спектром работ. Так, к примеру, в работе [5] сдвиг температур Кюри и Нееля в широком диапазоне давлений изучался экспериментально в кристаллах нитрита натрия. Влияние гидростатического давления на диэлектрическую постоянную и на барические зависимости трех температур фазовых переходов исследовалось авторами [6] в кристаллах  $\text{K}_2\text{SeO}_4$ . Воздействие электрического поля в комбинации с гидростатическим давлением на диэлектрические свойства и фазовый переход в цирконате свинца ( $\text{PbZrO}_3$ ) экспериментально исследовалось в работе [7]. В частности, в работе [8], посвященной исследованию влияния гидростатического давления на переход сегнетоэлектрик — параэлектрик в титанате свинца ( $\text{PbTiO}_3$ ), обнаружено понижение температуры фазового перехода с коэффициентом  $dT_c/dp = -65 \text{ K/GPa}$ . Что касается кристаллов ТГС, то влияние гидростатического давления на структуру, диэлектрические и электронные свойства подобных кристаллов изучалось как экспериментально [9,10], так и теоретически [11]. Однако подобные эксперименты позволяют определить лишь величину и знак барического коэффициента сегнетоэлектрических кристаллов, не давая при этом общей картины эволюции доменной структуры образца под воздействием давления. Как видим, одноосное и гидростатическое давление в этих работах использовались только для изучения статических свойств сегнетоэлектриков таких, например, как сдвиг температуры Кюри, не затрагивая при этом вопросы, связанные с кинетикой процесса упорядочения.

Нашей задачей будет проследить пути установления равновесных состояний и проанализировать, как гидростатическое давление, налагаемое на сегнетоэлектрик после закалки, сказывается на всем процессе эволюции системы, т. е. позволяет управлять характером доменной структуры сегнетоэлектрика еще на стадии ее формирования.

## 2. Постановка задачи

Как известно, большинство сегнетоэлектриков в отношении поляризации являются многоосными кристаллами, поэтому процесс разбиения на домены в них оказывается не таким простым, как в случае одноосного кристалла. Поэтому ради простоты рассмотрения можно ограничиться изучением  $180^\circ$  доменной структуры, которая присуща, например, кристаллам триглицинульфата ( $T_c = 322$  К). К тому же это один из немногих известных сегнетоэлектриков, обладающих фазовым переходом второго рода типа порядок–беспорядок. Сегнетоэлектрики с подобной структурой легко поддаются модельным расчетам с последующей экспериментальной проверкой. Поэтому в дальнейшем речь будет идти именно о сегнетоэлектриках со  $180^\circ$  доменами.

Для того, чтобы охарактеризовать количественно изменения в системе, происходящие при прохождении через критическую температуру  $T_c$  фазового перехода порядок–беспорядок, в рамках феноменологического подхода вводят одну или более величин (называемых параметрами порядка). В случае сегнетоэлектрического фазового перехода в качестве параметра дальнего порядка может выступать проекция вектора спонтанной поляризации на определенное кристаллографическое направление, например,  $P_z$ .

На ранних стадиях упорядочения, когда релаксация ближнего порядка в основном уже произошла, в низкосимметричной фазе случайным образом в различных местах образца появляются области с поляризацией обоих знаков  $\pm P_z$  (называемые обычно  $180^\circ$  сегнетоэлектрическими доменами). Пространственный размер таких доменов, как правило, оказывается много большим, чем параметр решетки. Если закалка системы происходит в отсутствие внешнего поля, то, несмотря на наличие сегнетоэлектрических доменов, средняя поляризация образца отсутствует. Здесь же мы рассмотрим ситуацию, когда в процессе закалки на сегнетоэлектрик налагается слабое однородное квазистационарное электрическое поле, которое запускает механизм зарождения микрообластей, ориентированных по полю. По окончании закалки внешнее электрическое поле выключается и неравновесная система релаксирует к состоянию термодинамического равновесия в условиях наложенного гидростатического давления.

При рассмотрении кинетики однородного и неоднородного упорядочения сегнетоэлектриков ранее предполагалось, что энергии взаимодействия атомов являются

постоянными величинами [12]. Это предположение, однако, оправдано только в том случае, если считать, что параметр решетки не зависит от состава и степени порядка в расположении атомов, а также в отсутствие каких-либо механических воздействий на сегнетоэлектрический кристалл.

Если же в процессе релаксации сегнетоэлектрика к термодинамическому равновесию мы подвергнем его всестороннему гидростатическому давлению  $p$ , то возникает вопрос о его влиянии на кинетику формирования доменной структуры сегнетоэлектрика.

## 3. Общее описание модели

Как известно, с изменением давления меняется объем  $V$  кристалла и расстояния  $r$  между его атомами. Полагаем, что изменение межатомных расстояний подчиняется линейному закону [13]

$$r = r_0 \left( 1 - \frac{1}{3} \kappa p \right) = r_0 - \beta p, \quad (1)$$

где  $r_0$  — расстояние между соседними атомами в отсутствии давления, т. е. при  $p = 0$ ;  $\kappa = -(1/V)(\partial V/\partial p)$  — сжимаемость, а  $\beta = (1/3)\kappa r_0 > 0$ , причем  $\beta p \ll r_0$ . В соответствии с этим, можно записать энергию упорядочения в виде ряда по степеням давления

$$w = \varepsilon_{am} \left( 1 - \frac{\sigma\beta}{\varepsilon_{am}} p - \frac{\gamma\beta^2}{\varepsilon_{am}} p^2 \right), \quad (2)$$

где  $\varepsilon_{am}$  — энергия атомного взаимодействия. Для кристаллов ТГС порядок ее величины составляет  $10^{-2}$  эВ.

Учитывая, что энергия упорядочения положительна [13], легко записать выражение для температуры упорядочения при некотором давлении  $p$

$$T_c = T_c^{(0)} \left( 1 - \frac{\sigma\beta}{\varepsilon_{am}} p - \frac{\gamma\beta^2}{\varepsilon_{am}} p^2 \right). \quad (3)$$

Поскольку квадратичные по давлению слагаемые ( $\sim p^2$ ) в (3) гораздо меньше членов пропорциональных  $p$ , то ими можно пренебречь. Тогда энергия упорядочения принимает вид  $w \approx \varepsilon_{am} - \sigma\beta p$ . Большое давление разрушает упорядочение, а потому рассмотрение кинетики процесса мы будем проводить при малых значениях данного параметра, когда выполняется неравенство  $p \ll |\sigma|/|\gamma|\beta$ . В таком приближении формулу (3) удобно представить в виде

$$T_c(p) = T_c^{(0)} \left( 1 - \frac{p}{p'} \right), \quad (4)$$

где  $p' = (\varepsilon_{am}/\sigma\beta)$  — некоторое характерное внутреннее давление кристалла.

Из выражения (4) видно, что температура упорядочения оказывается зависящей от величины гидростатического давления  $p$ . Причем характер этой зависимости

определяется знаком  $\sigma$ : если  $\sigma > 0$ , то давление понижает температуру упорядочения, и наоборот ее повышает, если  $\sigma < 0$ . Учитывая, что в настоящей работе рассматриваются сегнетоэлектрические кристаллы ТГС, температура упорядочения которых повышается с ростом давления [14] ( $\gamma = dT_c/dp > 0$ ), и соответственно  $\sigma < 0$ , формула (4) приобретает вид

$$T_c(p) = T_c^{(0)} \left( 1 + \frac{p}{|p'|} \right). \quad (5)$$

Поскольку наложение гидростатического давления не изменяет симметрию системы, описание процесса упорядочения можно осуществить посредством функционала Гинзбурга–Ландау

$$\Phi = \int \left[ \varphi(P_z) + \frac{1}{2} \delta(\nabla P_z)^2 - P_z E_z \right] dV, \quad (6)$$

где  $\varphi(P_z)$  — плотность термодинамического потенциала в однородно упорядоченных областях при  $p \neq 0$ ;  $\delta(\nabla P_z)^2$  — первый не исчезающий член разложения  $\varphi$ , который описывает вклад доменных границ в свободную энергию. Внешнее электрическое поле  $\mathbf{E}$  полагается однородным, а поляризация  $\mathbf{P}$  может иметь любую пространственную неоднородность.

Поскольку в рассматриваемом сегнетоэлектрике имеет место фазовый переход второго рода, описание его вблизи температуры упорядочения  $T_c(p)$  можно осуществить с помощью феноменологической модели

$$\varphi(\pi) = T_c^{(0)} \left[ -\frac{\alpha(p)}{2} \pi^2 + \frac{1}{4} \pi^4 \right], \quad (7)$$

где  $\alpha(p) \equiv (T_c(p) - T)/T_c^{(0)}$  — параметр закалки, описывающий близость температуры  $T$ , до которой охлажден образец, к температуре упорядочения  $T_c(p)$ . Здесь и в дальнейшем для температуры мы используем энергетические единицы, полагая постоянную Больцмана  $k_B = 1$ . В изотермических условиях динамику системы с учетом наложенного гидростатического давления можно описать, используя релаксационное уравнение Ландау–Халатникова [15]

$$\frac{\partial \pi}{\partial t} = -\gamma \frac{\delta \Phi}{\delta \pi}, \quad (8)$$

где  $\pi = P_z/T_c$  — безразмерный параметр порядка,  $\gamma = (t_i T_c)^{-1}$  — кинетический коэффициент, причем здесь величина  $t_i$  выступает в качестве характерного времени, за которое система испытывает элементарную перестройку. Выбрав в качестве характерной единицы времени время элементарного акта перестройки системы, а в качестве характерного пространственного масштаба — радиус взаимодействия атомов, с учетом (6) и (7) уравнение (8) может быть переписано следующим

образом

$$\frac{\partial \pi}{\partial \tau} = \Delta \pi + \alpha(p) \pi - \pi^3 - \varepsilon, \quad (9)$$

где  $\Delta$  — оператор Лапласа, а  $\varepsilon = E_z/T_c$  — внешнее электрическое поле в безразмерных единицах. В рассматриваемой модели предполагается, что электрическое поле налагается в процессе закалки, а затем после окончания закалки выключается. Поэтому на стадии релаксации системы после закалки из уравнения (9) можно исключить последний член в его правой части. Возникшая на стадии закалки остаточная поляризация системы эволюционирует в изотермических условиях лишь под воздействием гидростатического давления.

Для конструктивного описания кинетики упорядочения системы, подвергшейся быстрой закалке, необходимо знать детальное пространственное распределение параметра порядка  $\pi(\mathbf{r}, \tau)$  по всему макроскопическому образцу. Ввиду случайного пространственного распределения параметра порядка по образцу, основное внимание в дальнейшем мы уделяем поиску среднего значения параметра порядка  $\langle \pi(\mathbf{r}, \tau) \rangle \equiv \bar{\pi}(\tau)$  и двухточечной корреляционной функции

$$\langle \xi(\mathbf{r}, \tau), \xi(\mathbf{r}', \tau) \rangle \equiv K(\mathbf{s}, \tau), \quad \text{где } \mathbf{s} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'. \quad (10)$$

Процедура вывода уравнений для данных функций была осуществлена одним из авторов в работе [12]. Ввиду универсальности предложенного вывода, его результаты без особых изменений могут быть перенесены на случай, когда  $p \neq 0$ . Проводя процедуру расщепления корреляторов четвертого порядка на корреляторы второго порядка, которая, безусловно, является приближенной, можно получить систему уравнений для функций  $\bar{\pi}(\tau)$  и  $K(\mathbf{s}, \tau)$

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2} [\alpha(p)\bar{\pi} - 3K(0, \tau)\bar{\pi} - \bar{\pi}^3] \\ \frac{\partial K(\mathbf{s}, \tau)}{\partial \tau} = \Delta K(\mathbf{s}, \tau) + [\alpha(p) - K(0, \tau) - 3\bar{\pi}^2] K(\mathbf{s}, \tau). \end{cases} \quad (11)$$

Данная система содержит два параметра, которые позволяют на практике управлять процессом упорядочения — это температура закалки и давление, которые содержатся в одной функции  $\alpha(p)$ . Хотя система (11) не поддается аналитическому решению, с помощью Фурье-преобразования она может быть приведена к более простой системе дифференциальных уравнений

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2} [\alpha(p) - 3D(\tau) - \bar{\pi}^2] \bar{\pi} \\ \frac{\partial D(\tau)}{\partial \tau} = [\alpha_{eff}(p, \tau) - D(\tau) - 3\bar{\pi}^2] D(\tau), \end{cases} \quad (12)$$

где  $D = D(\tau) = K(0, \tau)$  — дисперсия параметра порядка  $\pi(\tau)$ . Особого внимания заслуживает функция  $\alpha_{eff}(p, \tau)$ , которую можно выразить так

$$\alpha_{eff}(p, \tau) = \alpha(p) - 1/r_c^2(\tau), \quad (13)$$

где  $r_c(\tau)$  корреляционный радиус системы, который определяется соотношением

$$r_c(\tau) = \sqrt{r_c^2(0) + \frac{2}{3} \tau}. \quad (14)$$

Очевидно, что выражение (14) полностью определяет характер эволюции со временем корреляционного радиуса системы. В данном случае мы отождествляем его со средним пространственным размером домена. Зависимость (14) иллюстрирует то, что на больших временах рост доменов подчиняется диффузионному закону. Таким образом, система уравнений (12) позволяет исследовать влияние давления на кинетику упорядочения сегнетоэлектрического кристалла. Второе уравнение этой системы позволяет оценить время формирования доменной структуры

$$\tau \approx [\alpha(p)]^{-1} = \left(1 + \frac{p}{|p'|} - \frac{T}{T_c^{(0)}}\right)^{-1}. \quad (15)$$

Как видим, при фиксированной температуре увеличение гидростатического давления ускоряет процесс упорядочения сегнетоэлектрика.

#### 4. Анализ кинетики упорядочения на всех стадиях процесса релаксации

Если ориентироваться на практическое применение модели, становится очевидным, что наибольший интерес представляет рассмотрение системы уравнений (12) вблизи температуры упорядочения и для случая, когда начальная корреляционная длина мала, т.е. выполняется неравенство  $r_c^2(0) \ll 1/\alpha(p) \ll d^2$ , где  $d$  — размер образца. Тогда на больших временах систему уравнений (12) можно переписать следующим образом:

$$\begin{cases} \frac{d\bar{\pi}}{d\tau} = \frac{1}{2} [\alpha(p) - 3D(\tau) - \bar{\pi}^2] \bar{\pi} \\ \frac{\partial D(\tau)}{\partial \tau} = [\alpha(p) - D(\tau) - 3\bar{\pi}^2] D(\tau), \end{cases} \quad \begin{cases} \bar{\pi}(0) = \bar{\pi}_0 \\ D(0) = D_0. \end{cases} \quad (16)$$

Здесь  $\bar{\pi}_0$  — средняя поляризация образца, возникшая в результате действия электрического поля  $\epsilon$ , наложенного на сегнетоэлектрик на стадии закалки, а  $D_0$  — начальная дисперсия поляризации образца.

Решение системы (16) с представленными начальными условиями позволяет получить информацию о завершающих стадиях процесса упорядочения. Но даже такая упрощенная система уравнений не может быть решена аналитически. Для проведения качественного анализа необходимо перейти к асимптотической системе уравнений на больших временах, т.е. при  $\tau \rightarrow \infty$

$$\begin{cases} \bar{\pi}^3 + 3D\bar{\pi} - \alpha(p)\bar{\pi} = 0 \\ [\alpha(p) - D - 3\bar{\pi}^2]D = 0 \end{cases} \quad (17)$$

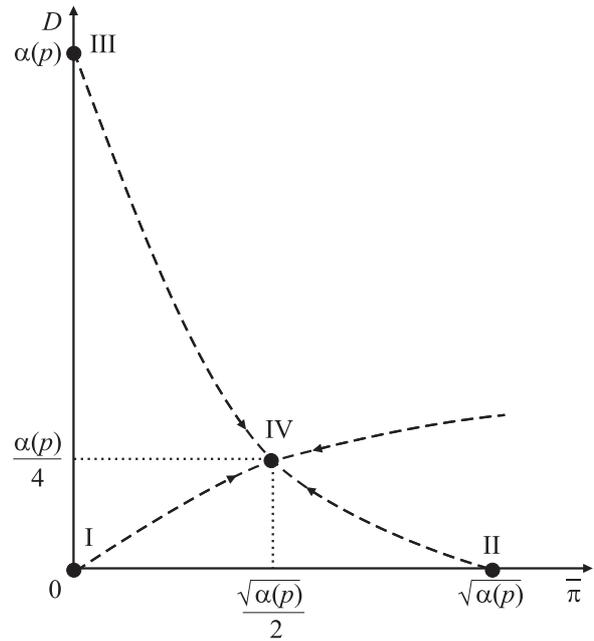


Рис. 1. Качественный фазовый портрет системы в переменных  $(\bar{\pi}, D)$  с указанием особых точек и сепаратрис. Штриховые кривые — сепаратрисы. Римскими цифрами отмечены особые точки системы.

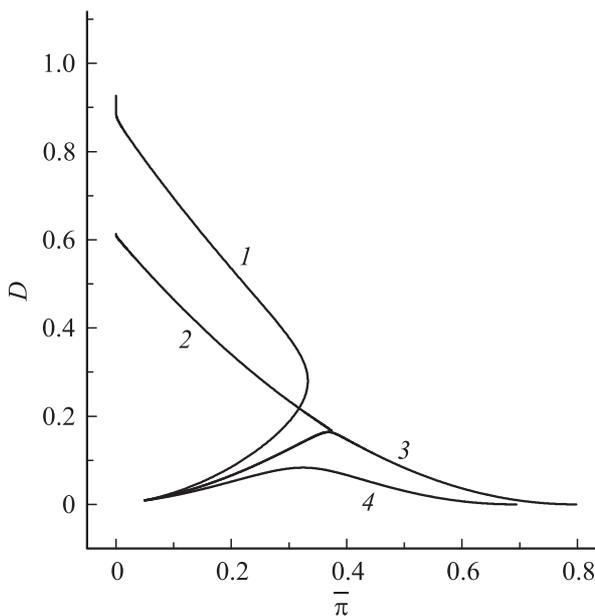
Используя концепцию фазового портрета, найдем решения этой системы, т.е. координаты особых точек  $(\bar{\pi}, D)$ , описывающих стационарные состояния, к которым может эволюционировать доменная структура сегнетоэлектрика. Ввиду нелинейности исходной системы уравнений (12), выбор системой конечного равновесного состояния существенно зависит от начальных условий  $(\bar{\pi}_0, D_0)$ , с которых стартует процесс релаксации системы после ее закалки.

При температуре выше температуры упорядочения ( $T > T_c$ ), когда  $\alpha(p) < 0$ , имеется лишь одна особая точка с координатами  $(\bar{\pi} = 0; D = 0)$ , которая является устойчивым узлом. В этом случае при любых начальных условиях система переходит в неупорядоченное состояние. В случае же, когда  $T < T_c$ , возникает целая система особых точек, среди которых физический смысл имеют лишь те, которые расположены в верхней полуплоскости фазового портрета. Ввиду того, что гидростатическое давление не нарушает симметрию системы, эволюцию доменной структуры можно проследить в первом квадранте фазового портрета (рис. 1).

Первая особая точка (I) имеет координаты  $(\bar{\pi} = 0; D = 0)$  и является в этом случае неустойчивым узлом.

Вторая особая точка (II) с координатами  $(\bar{\pi} = \sqrt{\alpha(p)}; D = 0)$  является устойчивым узлом и соответствует однодоменному типу упорядочения.

Третья точка (III)  $(\bar{\pi} = 0; D = \alpha(p))$  отвечает неоднородному полидоменному состоянию, в котором объемная доля областей с поляризацией одного знака равна



**Рис. 2.** Фазовый портрет системы, описывающий динамику формирования доменной структуры сегнетоэлектрика (ТЭС). Начальная средняя поляризация  $\bar{p}_0 = 0.05$ , начальная дисперсия  $D_0 = 0.009$ , параметр закалки  $\alpha = 0.05$ , начальный средний размер неоднородностей поляризации есть величина порядка удвоенного радиуса взаимодействия. Фазовые траектории 1–4 отвечают значениям давлений 0, 0.1205, 0.1206, 0.18 GPa соответственно.

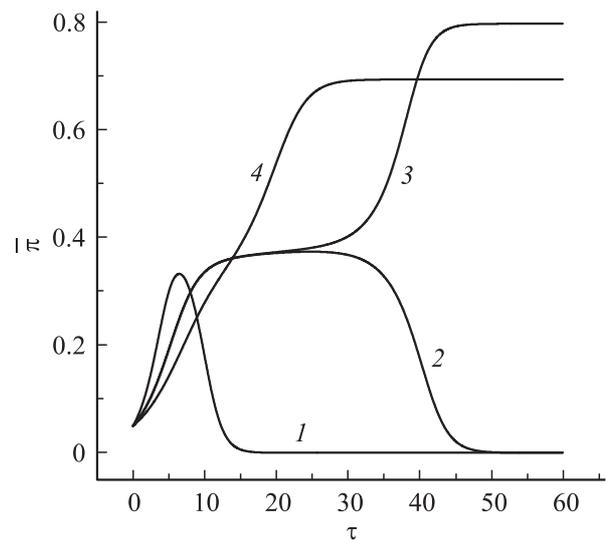
объему доменов с противоположным знаком поляризации, о чем свидетельствует равенство нулю среднего параметра порядка. Это устойчивый узел, в котором полидоменная структура стабильна и сохраняется достаточно долго.

Четвертая особая точка (IV) ( $\bar{p} = \sqrt{\alpha(p)}/2$ ;  $D = \alpha(p)/4$ ) является седловой и располагается на пересечении сепаратрис, разделяющих фазовый портрет на два сектора. Она также соответствует возможности реализации полидоменной структуры. В какую именно „зону притяжения“ попадает фазовая траектория — в нижний сектор, „ведущий“ к однодоменному состоянию, или в верхний, соответствующий формированию устойчивого полидоменного состояния, зависит от начального состояния системы, температуры закалки и величины гидростатического давления.

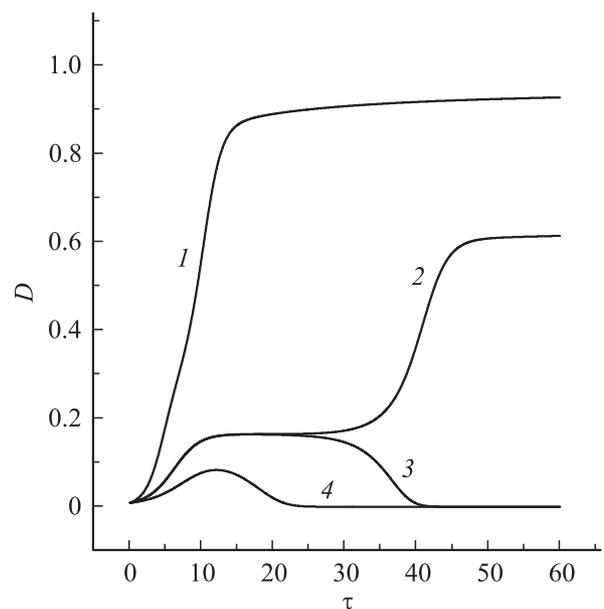
Помимо температуры закалки и давления, численное решение системы (16), позволяющее исследовать кинетику упорядочения сегнетоэлектрического кристалла на всех стадиях, требует задания начальных условий, а именно: среднего значения поляризации  $\bar{p}_0$ , начальной дисперсии  $D_0$  и начального корреляционного радиуса  $r_c(0)$ . Эти величины выбираются, исходя из физических соображений.

Используя понятие фазового портрета, путем численного эксперимента удалось найти параметрические зависимости дисперсии  $D$  от средней поляризации  $\bar{p}$

образца, т.е. фазовые траектории системы (рис. 2). Чтобы проследить за эволюцией сегнетоэлектрика как в отсутствие давления, так и под воздействием гидростатического давления различной величины, были построены эволюционные кривые системы. Оказалось, что, варьируя лишь величину гидростатического давления, можно существенно влиять не только на кине-



**Рис. 3.** Эволюция средней поляризации сегнетоэлектрика со временем при тех же значениях параметров, что и на рис. 2. Кривые 1–4 отвечают значениям давлений 0, 0.1205, 0.1206, 0.18 GPa соответственно. Время измеряется в безразмерных единицах.



**Рис. 4.** Эволюция дисперсии поляризации сегнетоэлектрика со временем при тех же значениях параметров, что и на рис. 2. Кривые 1–4 отвечают значениям давлений 0, 0.1205, 0.1206, 0.18 GPa соответственно. Время измеряется в безразмерных единицах.

тику упорядочения, но и на конечный результат этой эволюции.

Для кристаллов ТГС простой анализ показывает, что в случае положительного барического коэффициента ( $\gamma > 0$ ), когда давление повышает температуру упорядочения, рост давления способствует формированию монодоменного состояния в точке II вместо образования полидоменных структур, отвечающих точкам III и IV (рис. 1).

Характер эволюционных кривых как на фазовом портрете (рис. 2), так и на рис. 3, 4 показывает, что формирование однодоменного и полидоменных состояний происходит немонотонно. По мере приближения к особой точке IV неравновесная система как бы „зависает“ в промежуточном полидоменном состоянии особого типа с преобладанием объемной доли доменов одного знака. От направления вектора напряженности электрического поля, наложенного на систему в процессе закалки, зависит, какой тип доменов будет превалировать в этом полидоменном состоянии (IV). Ситуация с наложением поля, противоположного по направлению выбранной кристаллографической оси, будет отображаться в левом квадранте. Кинетическое торможение процесса упорядочения вблизи точки IV наглядно проявляется на эволюционных кривых 2 и 3 (рис. 3, 4) в виде промежуточных ступенек или плато. Данные эволюционные кривые позволяют также оценить время жизни этого кинетически заторможенного („виртуального“) полидоменного состояния.

В отсутствие давления наблюдается прямой переход в устойчивое полидоменное состояние в особой точке III (рис. 1). При больших значениях гидростатического давления система стремится сформировать термодинамически устойчивое монодоменное состояние, минуя промежуточную „виртуальную“ фазу (кривые 4 на рис. 3, 4).

## 5. Заключение

В настоящей работе на примере сегнетоэлектрических кристаллов ТГС рассмотрено влияние термических и барических воздействий на кинетику формирования  $180^\circ$  доменной структуры в сегнетоэлектрических кристаллах, испытывающих фазовые переходы второго рода. Отказ от предположения, что энергии взаимодействия атомов являются постоянными величинами, позволил объяснить влияние гидростатического давления на температуру фазового перехода порядок–беспорядок. На основе феноменологического релаксационного уравнения Ландау–Халатникова подробно проанализировано влияние глубины закалки, а также величины приложенного после закалки гидростатического давления на последующую эволюцию системы к термодинамическому равновесию. Ввиду того, что непосредственно после закалки распределение спонтанной поляризации в образце является пространственно-неоднородным и

имеет случайный характер, для описания релаксации образца к состоянию термодинамического равновесия целесообразно использовать статистический подход. На основе вышеуказанного подхода была выведена система нелинейных дифференциальных уравнений для средней поляризации и дисперсии. Асимптотический анализ вышеуказанной системы на больших временах позволил описать поведение системы на поздних стадиях процесса упорядочения. Это дало возможность отыскать стационарные и квазистационарные состояния сегнетоэлектрика в виде особых точек на фазовом портрете системы, описывающих как однодоменные состояния с поляризацией по полю и против поля, так и полидоменные состояния двух различных видов. Оказалось, что положение особых точек существенно зависит как от глубины закалки системы, так и от величины приложенного к образцу гидростатического давления.

Чтобы описать кинетику формирования доменной структуры сегнетоэлектрика на всех ее этапах был проведен численный анализ системы нелинейных дифференциальных уравнений для средней поляризации и дисперсии поляризации, который показал возможность формирования промежуточных неравновесных полидоменных состояний. Таким образом, оказывается, что при некоторых температурах закалки и значениях гидростатического давления в сегнетоэлектриках могут формироваться промежуточные неравновесные полидоменные состояния. Характерной особенностью последних является асимметрия объемной доли доменов с поляризацией по полю и против поля, тогда как в термодинамически стабильных полидоменных состояниях эти доли оказываются равными.

Кроме того, наши теоретические исследования показывают, что процесс формирования электрических доменов в сегнетоэлектрических кристаллах зависит не только от глубины закалки образца и величины наложенного на него гидростатического давления, но также существенным образом зависит от стартовых условий релаксации, в частности, от величины начальной дисперсии поляризации образца, которая связана с технологической предысторией процесса закалки. От того, насколько развиты неоднородности параметра порядка после закалки кристалла зависит, в каком состоянии окажется система. Будет ли это термодинамически стабильное однодоменное состояние, если эти неоднородности малы, или полидоменное — если велики. Гидростатическое же давление, налагаемое на образец после закалки, позволяет подавить даже сильно развитые в результате закалки пространственные неоднородности поляризации и сформировать монодоменное состояние.

Представляется, что результаты наших теоретических исследований могут быть использованы на практике для управления формированием доменной структуры сегнетоэлектрика, испытывающего фазовый переход второго рода типа порядок–беспорядок, путем комбинации приложенного к образцу внешнего электрического поля, а также термических и барических воздействий.

## Список литературы

- [1] Е.В. Синяков, С.А. Флерова, О.А. Кубышкин. Изв. АН СССР. Сер. физ. 1768 (1967).
- [2] M. Koralewski, B. Noheda, G. Lifante, J.A. Gonzalo. Solid State Commun. **85**, 783 (1993).
- [3] M. Koralewski, J. Stankowska, T. Iglesias, J.A. Gonzalo. J. Phys.: Cond. Matter. **8**, 4079 (1996).
- [4] M. Hayashi. J. Phys. Soc. Jpn. **24**, 1561 (1973).
- [5] K. Gesi, K. Ozawa, Y. Takagi. J. Phys. Soc. Jpn. **20**, 1773 (1965).
- [6] S. Kudo, J. Ikeda. J. Phys. Soc. Jpn. **50**, 733 (1981).
- [7] J. Handerek, M. Pisarski, Z. Ujma. J. Phys. C **14**, 2007 (1981).
- [8] С.Г. Джабаров, Д.П. Козленко, С.Е. Кичанов, А.В. Белушкин, Б.Н. Савенко, Р.З. Мехтиева, К. Лате. ФТТ **53**, 2185 (2011).
- [9] J. Stankowski, A. Galelzewski, S. Waplak, U. Gruszczynska, H. Gierszal. Ferroelectrics **6**, 209 (1973).
- [10] Y. Kobayashi, S. Sawada, H. Furuta, S. Endo, K. Deguchi. J. Phys.: Cond. Matter **14**, 11 139 (2002).
- [11] B. Andriyevsky, W. Ciepluch-Trojanek, A. Patryn. Cond. Matter Phys. **10**, 33 (2007).
- [12] Л.И. Стефанович. Физика низких температур. **24**, 856 (1998).
- [13] Л.И. Стефанович. Металлофизика и новейшие технологии **21**, 33 (1999).
- [14] И.С. Желудев. Основы сегнетоэлектричества. Атомиздат, М. (1973). 472 с.
- [15] Л.Д. Ландау, И.М. Халатников. ДАН СССР **96**, 469 (1954).