

Фрактальные закономерности амплитудно-частотных характеристик переполаризации дейтерированного триглицинсульфата в инфранизкочастотных полях

Впервые выполнен анализ диэлектрических спектров $\varepsilon^*(V)$, рассчитанных по петлям поляризации в полях различной амплитуды. Выявлены четыре вида диэлектрических спектров, сменяющих друг друга по мере увеличения амплитуды поля. На примере дейтерированного триглицинсульфата изучены амплитудные зависимости диэлектрических проницаемости и потерь, выявлена самоафинность амплитудно-частотных характеристик, дана их теоретическая интерпретация на основе фрактально-синергетической концепции.

The analysis of the dielectric spectra $\varepsilon^*(V)$ calculated upon polarization loops in the fields of various amplitude was carried out for the first time. The four types of dielectric spectra alternating with the amplitude of the field increasing were revealed. On the example of deuterated triglycine sulfate the amplitude dependences of dielectric permeability and losses were studied, the self-affinity of the amplitude-frequency characteristics was revealed and their theoretical interpretation based on fractal-synergetic conception was given.

Настоящая работа связана с двумя направлениями исследования механизмов поляризации сегнетоэлектриков, развивавшимися под руководством А.В. Шильникова: изучением эволюции петель поляризации в зависимости от амплитуды поля E_0 и анализом частотно-амплитудных зависимостей действительной и мнимой составляющих комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon''$, измеряемых непосредственно. Два независимых метода исследования традиционно дополняли друг друга и по настоящее время определяют основное направление научной работы коллектива кафедры физики ВолгГАСУ. В то же время определенные достижения в развитии методов анализа диэлектрических спектров и некоторые новации в их фрактально-синергетической трактовке позволяют исследовать процессы переполаризации в новом ракурсе.

Цель настоящей работы состоит в применении методов диэлектрической спектроскопии к анализу данных о переполаризации. Впервые по амплитудно-частотным зависимостям эффективных диэлектрических проницаемостей, рассчитанным по петлям поляризации, анализируется характер диэлектрических спектров. При этом новые данные, полученные в настоящей работе на примере дейтерированного триглицинсульфата, вписываются в концептуальную идею [1] о существовании четырех интервалов электрического поля (ультраслабые, слабые, средние и сильные поля), в которых диэлектрический отклик сегнетоэлектриков существенно отличается.

Интерес к изучению закономерностей переполаризации кристаллов группы триглицинсульфата имеет давнюю историю (например¹, [2—14]). Данные кристаллы выделяются из других высокой податливостью доменных границ (ДГ), что выдвинуло их в ряд перспективных материалов для

¹ Мы приводим ссылки лишь на некоторые работы, непосредственно связанные с темой исследования.

современных технологий, где реализуется идея управления свойствами сегнетоэлектрических материалов путем полевых воздействий на доменную структуру. Доменные механизмы поляризации определяют и особенности диэлектрического отклика [15—27]. Пониманию механизмов поляризации в кристаллах группы TGS в значительной степени способствовала визуализация доменных структур и исследование характера движения доменных границ с помощью нематических жидких кристаллов (НЖК) [5, 6, 12, 20]. Из особенностей диэлектрического отклика особый интерес исследователей вызвала обнаруженная в области низких (НЧ) и инфранизких (ИНЧ) частот линейная дисперсия ϵ^* [23—26], которая, как оказалось, имеет характер универсального низкочастотного отклика [28].

В последние годы выявлена фрактальность полидоменных сегнетоэлектриков, в том числе кристаллов группы триглицинсульфата, и дано описание диэлектрического отклика на основе фрактальных и синергетических представлений [29—32], ставших парадигмой современного материаловедения. В этой связи актуальным является анализ закономерностей переполаризации сегнетоэлектриков одновременно с диэлектрическими спектрами в рамках фрактально-синергетической концепции, что и выполнено в настоящей работе.

Исследования петель поляризации выполнены на кристалле дейтерированного триглицинсульфата DTGS, выращенного в полярной фазе. Образец DTGS представлял собой пластину Y-среза толщиной 5,8 мм с напыленными серебряными электродами. Измерения ПП выполнены модифицированным методом Сойера — Тауера [14] в синусоидальных электрических полях в интервале частот ν от 0,1 до 90 Гц и амплитуд E_0 от 10 до 500 В·см⁻¹ при температуре $(25 \pm 0,1)^\circ\text{C}$. Эффективные диэлектрические проницаемость и потери рассчитывались по формулам $\epsilon' = P_0 / \epsilon_0 E_0$, $\epsilon'' = \epsilon' \text{tg}\delta$, где $\text{tg}\delta = S / \pi E_0 P_0$; E_0 — амплитуда измерительного поля; P_0 — соответствующее значение поляризации; S — площадь петли поляризации; ϵ_0 — диэлектрическая постоянная. Все приводимые данные получены при температуре $T = 25^\circ\text{C}$. В идентичных условиях выполнялось наблюдение процесса переполаризации оптическим методом и исследовались зависимости скорости движения доменных границ от амплитуды поля (см. также [13, 14]).

Амплитудно-частотные параметры поляризации. Петли поляризации (ПП) кристалла DTGS в ультраслабых и слабых полях симметричны, имеют форму эллипсов, сменяемых овалами (рис. 1, а). В средних полях вблизи коэрцитивного поля E_c , где переполаризация имеет наиболее интенсивный характер, возникает ярко выраженная асимметрия (рис. 1, б, в). В сильных полях $E_0 \gg E_c$ (рис. 1, г) наступает насыщение.

Петли на рис. 1, а и г подобны наблюдаемым в TGS [4]. Но асимметрия петель DTGS (рис. 1, б и в), выражающая униполярность кристалла, многократно превосходит небольшое различие между двумя направлениями поляризации, характерное для TGS.

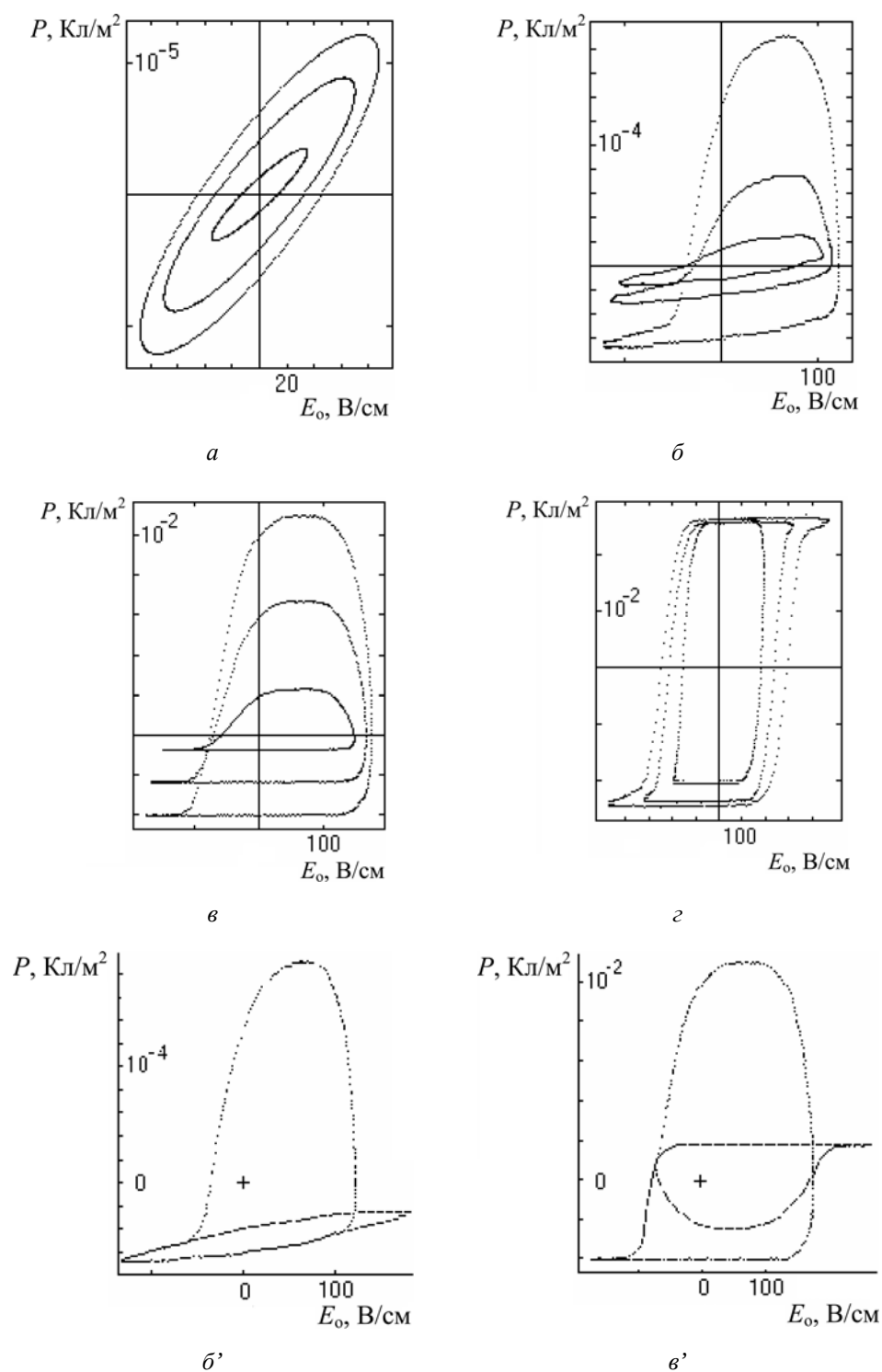


Рис. 1. Частные циклы и петли поляризации кристалла ДТГС в зависимости от амплитуды поля на частоте $\nu = 5$ Гц. По оси абсцисс — амплитуда поля E_0 в В/см, по оси ординат — поляризация P в Кл/м²

Рассчитанные по петлям поляризации эффективные значения комплексной диэлектрической проницаемости ϵ^* представлены на рис. 2, 3. В слабых полях величины ϵ' и ϵ'' (рис. 2, а, б) изменяются очень мало, в средних полях наблюдается интенсивный рост ϵ' и ϵ'' до максимальных значений в полях $E_0 = E_c$ и последующий спад в сильных полях. В полях 90...160 В/см зависимости $\epsilon'(E_0)$ и $\epsilon''(E_0)$ DTGS близки к активационным: $\epsilon' = \epsilon'_\infty \exp[-\alpha_\epsilon/E_0]$ и $\epsilon'' = \epsilon''_\infty \exp[-\alpha_\epsilon/E_0]$, где α_ϵ' и α_ϵ'' — соответствующие поля активации, причем, $\alpha_\epsilon' \approx \alpha_\epsilon''$, что отмечалось в [13, 14]. В настоящей работе нами получено точное описание зависимостей $\epsilon'(E_0)$ и $\epsilon''(E_0)$ во всем исследованном интервале полей, что требует уточнения и существующих представлений о механизмах переполяризации.

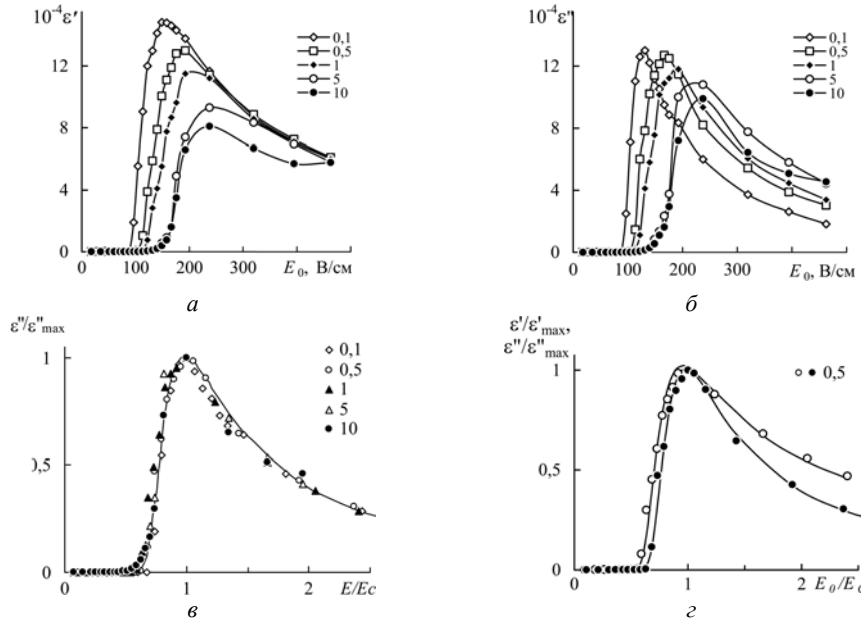


Рис. 2. Амплитудные зависимости действительной ϵ' (а) и мнимой ϵ'' (б) составляющих комплексной диэлектрической проницаемости кристалла DTGS для различных частот измерительного поля. Нормированные данные (в, г) выявляют самоафинность процесса поляризации (точки — эксперимент, линия — модельный расчет). Частоты указаны в Гц

1. Отметим, что изменение формы петель поляризации, характера диэлектрических спектров и амплитудных зависимостей характеристик переключения происходит не медленным эволюционным, а быстрым бифуркационным образом.

В *ультраслабых* полях ($17 < E_0 < 71$ В/см) наблюдается дисперсия ϵ^* (рис. 3, а) Коула — Коула

$$\epsilon^* = \epsilon_{\infty\alpha} + \Delta\epsilon \left[1 + (i\omega\tau_\alpha)^{1-\alpha} \right]^{-1}, \quad (1)$$

обусловленная упругими релаксационными колебаниями доменных границ (ДГ) вблизи положений равновесия, причем ϵ' и ϵ'' не зависят или очень слабо зависят от амплитуды поля [1].

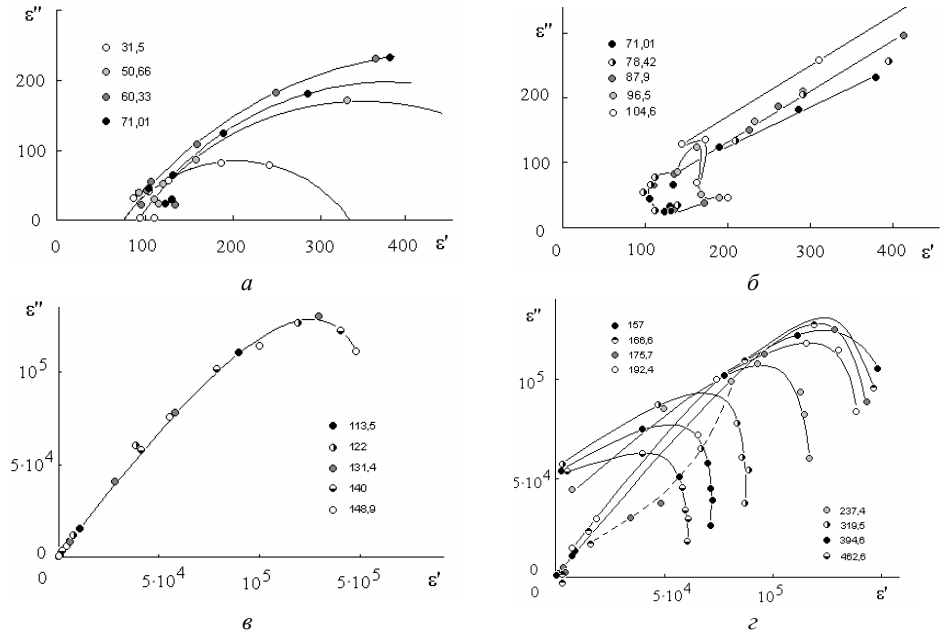


Рис. 3. Эволюция диэлектрических спектров ДТГС в зависимости от амплитуды поля в диапазоне от 31,5 до 462,6 В/см: *а* — коуловская дисперсия с аномалией на высоких частотах; *б* — линейная дисперсия с бифуркационным изменением высокочастотной аномалии; *в* — дисперсия типа Дэвидсона-Коула с низкочастотной аномалией; *г* — бифуркация к нелинейному спектру. Штриховая линия показывает положение точек в момент бифуркации. Частоты в Гц указаны около точек

В слабых полях $71 < E_0 < 105$ В/см появляются зависимости $\varepsilon'(E_0)$ и $\varepsilon''(E_0)$, а характер дисперсии ε^* меняется на линейный (рис. 3, б)

$$\varepsilon^* = \varepsilon_{\infty\beta} \left[1 + (i\omega\tau_\beta)^{-\beta} \right], \quad (2)$$

что указывает на исчезновение действовавших на доменные границы возвращающих сил и неупругий необратимый характер движения ДГ [23—26].

В средних полях $113 < E_0 < 147$ В/см вид диэлектрического спектра опять меняется (рис. 3, в), он принимает вид «скошенной» дуги Дэвидсона — Коула

$$\varepsilon^* = \varepsilon_{\infty\beta} + \Delta\varepsilon(1 + i\omega\tau_0)^{-\xi}. \quad (3)$$

В формулах (1)—(3) величины $\Delta\varepsilon$ и $\varepsilon_{\infty\alpha,\beta}$ представляют собой амплитуды и высокочастотные пределы соответствующих областей дисперсии. Общая особенность типов дисперсии ε^* , описываемых уравнениями (1)—(3), состоит в наличии членов с дробно-степенными зависимостями от частоты, определяемыми параметрами α , β и ξ ($0 < \alpha, \beta, \xi < 1$), характеризующих распределения времен релаксации τ_α и τ_β , типичные для фрактальных систем.

Появлению дисперсии ε^* (3) соответствует сильнейшее искажение петель поляризации (рис. 1, б, в) и увеличение ε' и ε'' на три порядка (ср. рис. 3, б и в). Причиной указанных аномалий, как показывают наблюдения, является образование рядов доменов и заполнения пространства этими рядами в направлении [201] (рис. 4, а, б). Амплитудные зависимости ε' и ε'' в этой облас-

ти близки к активационным, а энергии активации — к пороговым полям появления зародышей доменов и формирования рядов [12]. Таким же образом торцевое прорастание доменов с образованием регулярных рядов обеспечивает переполаризацию TGS [5]. Вклад указанного механизма в поляризацию DTGS в средних полях существенно превышает вклад бокового движения ДГ.

Происхождение сильных искажений ПП в средних полях (рис. 1, б, в) пояснено на рис. 1, б', б'' и в', в''. Асимметрия петель ярко выражена, когда действующее поле сравнимо по величине с внутренним полем домена-матрицы (области, поляризованной почти до насыщения). В одном полупериоде, когда переменное внешнее поле совпадает с внутренним полем матрицы, происходит ее «дополяризация» за счет внутренних доменов и зародышей на внешней границе. Этот вклад связан с упругими нелинейными колебаниями около положений равновесия (релеевская петля на рис. 1, б') или переполаризацией внутренних доменов в матрице (насыщенная петля на рис. 1, в'). В другом полупериоде, когда внешнее поле компенсирует внутреннее или несколько превышает его, начинается переполаризация домена-матрицы за счет торцевого прорастания зародышей доменов. Данной ситуации соответствует часть овалообразной петли в верхней полуплоскости рис. 1, б и в, типичной для неупругого релаксационного движения [33].

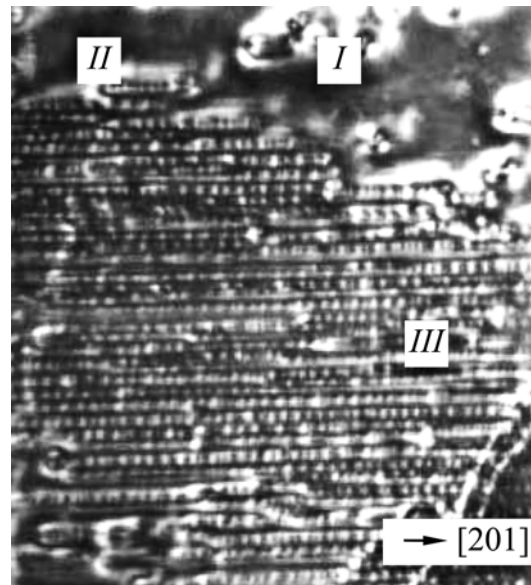
2. В высокочастотной области приведенных на рис. 3, а, б спектров имеются отклонения от уравнений (1)—(2), вызванные упомянутыми выше упругими нелинейными колебаниями ДГ. С увеличением амплитуды поля высокочастотная аномалия претерпевает бифуркационное изменение.

В сильных полях (157...463 В/см) высокочастотная аномалия усиливается и становится доминирующим типом дисперсии (рис. 3, в). При этом наблюдаются выпадения некоторых точек дисперсионной кривой (рис. 3, в). Они кажутся случайными, однако, это предвестники очередной бифуркации. Бифуркации отвечает определенная закономерность: точки переходят на линию, соответствующую меньшим потерям (штриховая линия на комплексной области рис. 3, в). В соответствии с принципом Пригожина это означает уменьшение скорости производства энтропии в процессе самоорганизации. На данном этапе самоорганизация происходит путем коалесценции доменов (рис. 4, в), сопровождающейся уменьшением удельной поверхности доменных границ [31, 34, 35]. Коалесценция начинается при достижении некоторого «порога протекания». Схлопывание границ имеет характер гистерезисного движения, что и наблюдается в высокочастотной части нелинейного спектра (рис. 3, в).

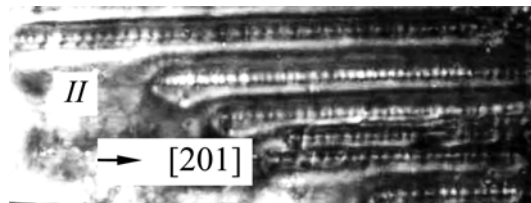
В низкочастотной части спектра рис. 3, в потери ε'' уменьшаются при $\varepsilon' = \text{const}$, то есть возникает явление, подобное отрицательной проводимости, что обусловлено, по нашему предположению, делокализацией зарядов, существовавших вблизи доменных границ до их исчезновения.

3. Существенно, что в каждом из диапазонов исследуемых полей спектры ε^* самоподобны или самоафинны. Это обусловлено подобием или афинностью областей переполаризации (рис. 4, а, б) и выражает фрактальность системы. Основными характеристиками фрактальности системы являются параметры диэлектрических спектров (1)—(3) α , β и ξ . При постоянстве параметра отклик системы монофрактален, процессы поляризации имеют автомодельный характер. Переходы от одного типа диэлектрического спектра к

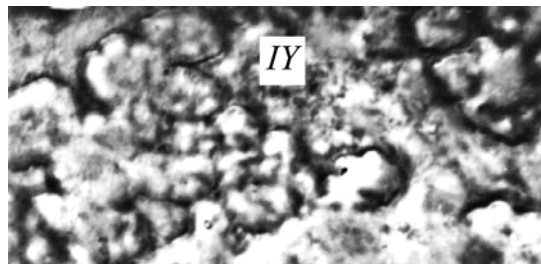
другому имеют характер бифуркаций, критические параметры которых зависят от амплитуды и частоты поля. Фактически эти внешние воздействия изменяют соотношение сил, действующих на доменные границы. В случаях коуловской и линейной дисперсии ϵ^* на формирование и движение фронтов поляризации влияет аномальная диффузия дефектов, а в случае дисперсии Дэвидсона — Коула диффузия экранирующих спонтанную поляризацию зарядов изменяет взаимодействие ДГ с внешним полем [32].



a



б



в

Рис. 4. Визуализация доменной структуры DTGS в момент переполаризации: *I* — образование зародышей доменов (*a*); *II* — рядов зародышей доменов (*a, б*); *III* — массового образования рядов; *IV* — стадия коалесценции доменов (*в*)

4. Поразительно, что при всем разнообразии типов дисперсии ε^* в исследованном диапазоне полей самоафинный характер имеют также амплитудные зависимости ε' и ε'' . Это иллюстрирует рис. 3, в, где представлены зависимости нормированных значений $\varepsilon'/\varepsilon'_{\max}$ и $\varepsilon''/\varepsilon''_{\max}$ от нормированной амплитуды поля $E_n = E_0/E_c$ (где $\varepsilon'_{\max}$ и $\varepsilon''_{\max}$ — максимальные значения диэлектрической проницаемости и потерь при $E = E_c$; E_c — коэрцитивное поле). Для всех исследованных частот и амплитуд измерительного поля все данные (за исключением выпадающих точек на рис. 3, в) располагаются вблизи одной линии, описываемой соотношениями [32]

$$\varepsilon'_n = b_1 E_n^{-\gamma_1} \exp\left[-(\alpha_n/E_n)^{g_1}\right], \quad (4a)$$

$$\varepsilon''_n = b_2 E_n^{-\gamma_2} \exp\left[-(\alpha_n/E_n)^{g_2}\right], \quad (4б)$$

где b , γ и g — параметры, зависящие от частоты; α_n — нормированное поле активации, равное $0,80 \pm 0,02$ для ε'_n и ε''_n в исследованном диапазоне частот и полей. В исследованном диапазоне частот γ меняется: γ_1 — от 0,5 до 1,2 и γ_2 — от 0,8 до 2,0, увеличиваясь с понижением частоты. Расчетные кривые, полученные с учетом зависимости параметров от частоты (рис. 3, з), идеально соответствуют экспериментальным данным. Даже если указанные параметры фиксировать, разброс относительно теоретической кривой невелик (рис. 3, в).

Заметим, что при $\gamma = g - 1$ соотношения (4) соответствуют закону Вейбулла $w(x, b, \gamma, \theta) = \gamma b^{-1} [(x - \theta)/b]^{\gamma-1} \exp\left[-[(x - \theta)/b]^\gamma\right]$, где $b > 0$ — масштабный параметр; $\gamma > 0$ — параметр формы; $\theta < x$ — локальный параметр распределения (например, поле, время, температура начала процесса). Выполнимость закона Вейбулла выявлена в [30, 32] для времен релаксации в области кроссовера от дробно-степенной зависимости к экспоненциальной (или растянутой экспоненте, как в (4)), отмечено его соответствие функции распределения Кольрауша и существование аналогий в температурном, временном и полевом отклике. Предполагалось, что функция распределения представляет собой вероятность протекания последовательности процессов $w_{12} = w_1 w_2$, один из которых связан с активационным процессом, а второй — с последующим кооперативным процессом. Приводимые в настоящей работе данные подтверждают это предположение. Активационный процесс образования зародыша является «слабым звеном», с которого начинается торцевое прорастание домена. Выход торца домена на поверхность является точкой очередной бифуркации, связанной с образованием рядов доменов.

Механизмы переполаризации. 1. Основные закономерности наблюдаемых амплитудно-частотных характеристик можно объяснить на основании уравнений релаксационного движения ДГ [32, 34]

$$\left(1 - \zeta \varphi^2 + \tau \alpha^{1-\alpha} \frac{d^{1-\alpha}}{dt^{1-\alpha}}\right)^{1/\xi} \varphi = \frac{2 P_s}{D k} E, \quad (5)$$

$$d^\beta \varphi / dt^\beta = 4 P_s \eta E (1/4 - \varphi^2), \quad (6)$$

где φ — степень поляризации полидоменного сегнетоэлектрика; P_s — спонтанная поляризация; D — средняя ширина доменов; $\tau = \eta/k$ — время релаксации; k — средний коэффициент упругости; η — коэффициент вязкого трения.

Уравнение (5) описывает боковое движение ДГ при их неизменной удельной площади поверхности. Оно получено с учетом симметрии термодинамического потенциала [32, 34], где приняты во внимание нечетные степени в разложении степени поляризации. Правая часть (5) представляет собой эффективную нормированную на $\bar{k}$ силу, действующую на единицу площади поверхности фронта переполаризации со стороны переменного поля $E = E_0 \exp(i\omega t)$, $\omega = 2\pi\nu$. Левая часть имеет смысл нормированных таким же образом сумм сил упругости и трения. При равных объемных долях доменов, ориентированных по полю и против поля, $\varphi = 0$. Среднему боковому смещению 180-градусных ДГ на расстояние x соответствует $\varphi = x/\bar{D}$.

Уравнение (6) моделирует процесс переполаризации за счет зарождения доменов, их роста с последующей стадией коалесценции, то есть с учетом изменения удельной поверхности ДГ (концентрация зародышей считается постоянной, определяемой, например, концентрацией дефектов). Таким образом, уравнения (5) и (6) отражают две доминантные особенности переполаризации. Производные порядков $1-\alpha$ и β (меньших единицы) феноменологически описывают фрактальность в процессах диссипации энергии.

2. В частном случае $\xi = 1$, $\zeta = 0$, $\alpha = \text{const} \leq 0$ уравнение (5) описывает упругие релаксационные колебания доменных границ вблизи положений равновесия, эллиптические петли поляризации, спектры ε^* Коула — Коула (1), их самоподобие и независимость от амплитуды поля в ультраслабых полях.

С ростом амплитуды поля начинает сказываться нелинейность возвращающей силы (в уравнении (5) $\zeta \neq 0$). Наличие нечетных гармоник искажает коуловский спектр и приводит к появлению высокочастотной аномалии области дисперсии [34], подобной наблюдаемой на рис. 3, а, б. Соответственно на петлях поляризации (рис. 1, б'') «прорисовываются» двугрубли типа петель Релея. Однако уравнение (5) дает близкую к кубической зависимость поляризации от амплитуды поля, тогда как теория Релея и соответствующая модель Прейзаха [36] — квадратичную зависимость. Разумеется, в уравнении (5) нелинейный член можно выбрать пропорциональным φ^2 , что естественно приведет к закону Релея. Однако это означало бы наличие в разложении термодинамического потенциала [34] члена, пропорционального кубу поляризации, и выражало отсутствие симметрии относительно направления поляризации. Этому условию соответствует уравнение (6), описывающее переполаризацию униполярной области (домена) за счет прораствания зародышей противоположной поляризации, что, естественно, дает зависимость $P(E)$, близкую к квадратичной. В сегнетоэлектриках имеют место обе ситуации, на что указывают, например, данные [37]. Изменение характера нелинейности зависимости $P(E)$ является независимым способом установления механизма поляризации.

3. Заметим, что при уменьшении коэффициента $\bar{k}$ до нуля упругое движение ДГ сменяет неупругое, уравнение которого следует из (5) при $\zeta = 0$, $\xi = 1$, если изменить нормировку и ввести обозначение $1-\alpha = \beta$. Это уравнение релаксационного неупругого движения ДГ

$$\tau_\beta^\beta \frac{d^\beta \varphi}{dt^\beta} = \frac{2 P_s}{\bar{D} \eta} E \quad (7)$$

приводит к линейной дисперсии ε^* (2) [23, 24] с линейной или степенной зависимостью скорости движения ДГ от амплитуды поля.

При $\alpha = 0$, $\zeta = 0$, $\xi = \text{const} \leq 1$ из (5) следует уравнение Дэвидсона — Коула (3). Для этого вида дисперсии функция распределения является частным случаем закона Вейбулла — гамма-функцией. Таким образом, наблюдаемые типы дисперсии воспроизводятся на основе уравнений для различных видов движения доменных границ, включая боковое и торцевое направление движения.

4. Появление дисперсии Дэвидсона — Коула (3) в средних полях и дальнейшая эволюция диэлектрического спектра в сильных полях указывает на отличие действующего на границы поля от внешнего поля, наличие сопутствующих процессов экранирования [32, 38] и делокализацию зарядов в момент коалесценции ДГ. Мы полагаем, что экранирующие спонтанную поляризацию P_S заряды на непараллельных P_S доменных границах ответственны за формирование фрактальной доменной структуры в области коэрцитивного поля и оказывают существенное влияние на процесс поляризации путем образования, движения и реполяризации поляронов.

Действительно, собственные и примесные заряды, взаимодействуя с колебаниями решетки, могут образовать поляронные состояния [39]. Как показывают теоретические расчеты [40], вероятность образования устойчивых поляронных состояний вблизи заряженных дефектов возрастает в дейтерированных кристаллах. Однако расчеты [40, 41] выполнены для неполярной фазы, а в настоящей работе представление о поляронных состояниях применяется для полярной фазы и предполагается, что поляроны образуются на непараллельных P_S доменных границах и на вершинах торцевых доменов, где поле особенно велико и условия для образования поляронов особенно благоприятны.

Следуя идеям вибронной теории [42], мы предполагаем, что электрон-протон-фононное взаимодействие является физическим механизмом процесса активации. Предполагается, что под действием поля происходит переход электрона на более высокий уровень поверхностных состояний, существующих вблизи ДГ. Вследствие этого появляется дополнительный дипольный момент ячейки, возрастает поляризация решетки и, соответственно, реактивное поле в области домена, увеличивающее локальное поле. В результате возникает известный в теории диэлектриков эффект самовоздействия диполя через поляризацию решетки. Так как рассматриваемая ячейка находится на доменной границе, то кроме образования состояния поляронного типа имеется вероятность туннелирования протона на узел соседней антиполярной ячейки. Переход протона переориентирует дипольный момент ячейки, что приводит к существенному вкладу в поляризацию (зародыш домена вырастет на одну ячейку). В этом случае совместный переход электрона и переориентация водородной связи дают значительный выигрыш в энергии.

В то же время изменение деформации ячейки является источником упругих волн.

Продольные волны вызывают переходы электронов в направлении спонтанной поляризации и лавинообразное нарастание актов реполяризации (последовательное переключение диполей, создающих движение торца доме-

на). Поперечная волна вызывает рождение и разрастание зародыша типа Миллера — Вайнраха и, соответственно, боковое движение ДГ. Переходы электронов между узлами могут быть активированы тепловым движением и электрическим полем. Следуя данной модели, можно качественно объяснить происхождение амплитудных зависимостей (4), появление и исчезновение активационной зависимости ϵ' и ϵ'' от амплитуды поля.

Дело в том, что согласно теории полярона малого радиуса вероятность w перехода электрона на соседний узел зависит от параметра адиабатичности

$$a \equiv J^2 \left(\hbar \omega \sqrt{U^\# K_B T} \right)^{-1} \quad (\text{соотношения энергии электрон-фононной связи } J,$$

энергии барьера $U^\#$ и энергии теплового движения). При $a \gg 1$ вероятность зависит от температуры $w_1 = \nu \exp(-U^\# / K_B T)$ экспоненциально, а при

$$a \ll 1 \quad w_2 = \sqrt{\pi} J^2 \left(2 \hbar \sqrt{U^\# K_B T} \right)^{-1} \exp(-U^\# / K_B T) \quad \text{появляется предэкспоненциальный множитель с показателем степени } 0,5.$$

В иных условиях показатель предэкспоненциального множителя может возрасти до 1,5. Учитывая отмеченную температурно-полевою аналогию в активационных процессах и соответствие показателей с наблюдаемыми значениями γ для (4), можно полагать, переход от активационного механизма поляризации в средних полях [12] к гиперболическому закону с дробной степенью (4) может быть обусловлен образованием поляроно-подобных состояний на доменных границах, а вариация показателей связана с фрактальностью доменной структуры.

Наблюдаемый в низкочастотной части спектра рис. 3, ε вклад отрицательной проводимости обусловлен, по нашему предположению, нейтрализацией поляронных состояний, существовавших вблизи доменных границ до их исчезновения.

Выводы. На примере дейтерированного триглицинсульфата исследована эволюция диэлектрических спектров в широком диапазоне амплитуд переменного поля. Выявлено различие диэлектрических спектров, формы петель поляризации и амплитудных зависимостей диэлектрической проницаемости в ультраслабых, слабых, средних и сильных полях. Изменения отмеченных свойств при переходах от одного диапазона полей к другому имеют характер бифуркаций, обусловленных сменой доминирующего механизма поляризации в процессе самоорганизации доменной структуры.

Отмечена выполнимость принципа наименьшего производства энтропии Пригожина.

1. Показано, что спектры эффективных значений диэлектрической проницаемости и потерь, рассчитанных по петлям поляризации, в ультра слабых и слабых полях имеют такой же характер, что и спектры начальной диэлектрической проницаемости, измеренные мостовым методом. Это существенно расширяет возможности используемых методик в качестве дополняющих друг друга.

В ультраслабых полях имеет место дисперсия Коула — Коула, в слабых полях — линейный спектр ϵ^* , в средних полях дисперсия Дэвидсона — Коула или Вильямса — Ваттса с бифуркационным переходом в сильных полях к

комбинации двух линейных спектров ϵ^* , один из которых соответствует отрицательному вкладу в проводимость. Соответственно упругое релаксационное движение ДГ сменяется неупругим, затем боковое движение ДГ сменяет торцевое прораствание зародышей доменов, и начинают сказываться процессы экранирования, и, наконец, возникает коалесценция с гистерезисным механизмом схлопывания фронта поляризации и делокализацией зарядов в местах исчезающих доменных границ. Уменьшение поверхностной энергии при коалесценции ДГ приводит к отрицательным вкладам в проводимость.

Каждый из наблюдаемых типов спектров свидетельствует о фрактальных механизмах развития процессов поляризации во времени и при изменении амплитуды электрического поля.

2. Выявлено самоподобие и самоафинность спектров ϵ^* и амплитудных зависимостей ϵ' и ϵ'' , дано описание их нормированных значений в областях средних и сильных полей на основе универсальной функции вида статистического закона Вейбулла, объединяющей разнородные экспериментальные наблюдения, например [2—12, 14, 34—38, 43, 44], в общей фрактально-синергетической картине взаимодействия и эволюции электронной и фононной подсистем сегнетоэлектрика. Предложена модель процесса активации, учитывающая электрон-протон-фононное взаимодействие

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Шильников А.В. Роль доменных и фазовых границ в процессах низко- и инфранизко-частотной поляризации и переполяризации модельных сегнетоэлектриков : дис. ...д-ра физ.-мат. наук. Саласпилс, 1988.
2. Pulvari C.F. Polarization reversal in triglycine fluoberrylate and triglycine sulfate single crystals / C.F. Pulvari, W. Kuebler // J. Appl. Phys. 1958. V. 29. № 12. P. 1742—1746.
3. Попов Э.С. К вопросу о переполяризации сегнетоэлектриков в слабых переменных полях / Э.С. Попов, С.Л. Рапопорт // Физика диэлектриков и полупроводников. Волгоград, 1970. С. 45—54.
4. Шильников А.В. К вопросу о переполяризации кристаллов триглицинсульфата в переменных полях низкой частоты // Физика диэлектриков и полупроводников : сб. Волгоград, 1970. Вып. 29. С. 95—106.
5. Донцова Л.И. Исследование динамики доменной структуры ТГС в синусоидальных электрических полях / Л.И. Донцова, Н.А. Тихомирова, Л.А. Шувалов // Физика диэлектриков и полупроводников : сб. Волгоград, 1978. С. 92—106.
6. Донцова Л.И. Закономерности динамики доменов в процессе переполяризации кристаллов ТГС / Л.И. Донцова, Л.Г. Булатова, Э.С. Попов и др. // Кристаллография. 1982. Т. 27. № 2. С. 305.
7. Рудяк В.М. Процессы переключения в нелинейных кристаллах. М. : Наука, 1986. 248 с.
8. Цедрик М.С. Физические свойства кристаллов семейства триглицинсульфата. Минск : Наука и техника, 1986. 216 с.
9. Импульсная переполяризация в дефектных кристаллах ТГС / Л.Н. Камышева, С.А. Косарева, С.Н. Дрождин, О.М. Голицына // Кристаллография. 1995. Т. 40. № 1. С. 93—96.
10. Температурные изменения порогового поля диэлектрических потерь триглицинсульфата / С.А. Гриднев, В.Н. Нечаев, В.М. Попов, Л.А. Шувалов // Физика твердого тела. 1985. Т. 27. № 1. С. 3—7.
11. Kamysheva L.N. The influence of defects on the process of polarization relaxation in TGS crystals / L.N. Kamysheva, S.N. Drozhdin, O.M. Serdyuk // Phys. Stat. Sol. (a). 1986. V. 97. P. K29—K34.
12. О роли изотопических и радиационных дефектов в процессах переполяризации триглицинсульфата / Л.И. Донцова, Н.М. Галиярова, А.П. Поздняков и др. // Вестник ВолгГАСА. Сер. Естест. науки. 1999. Вып. 1(2). С. 48—56.

13. About mechanisms of repolarization of DTGS crystals under the ac-fields of low and infralow frequencies / A.V. Shil'nikov, V.N. Nesterov, A.P. Pozdnyakov et al // *Ferroelectrics*. 1999. V. 222. P. 317.
14. О закономерностях переполяризации кристаллов ДТГС в синусоидальных электрических полях / А.В. Шильников, Н.М. Галиярова, А.П. Поздняков и др. // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2003. Т. 67. № 8. С. 1113—1116.
15. Fousek J. The Contribution of Domain Wall Oscillations to the Small-Signal Permittivity of Triglycine Sulfate / J. Fousek, V. Janousek // *Phys. Stat. Sol.* 1966. V.13. P.195—206.
16. Giletta F. Relaxation dielectrique dans les cristaux de sulfate de glycogole multidomains / F. Giletta, P. Lauginie, L. Taurel // *C.R. Acad. Sci.* 1970. V. 270 B. №. 1. P. B94—B96.
17. Giletta F. Dielectric Relaxation in Multi-Domain TGS Single Crystals // *Phys. State Sol.* (a). 1972. V. 12. P. 143—151.
18. Петров В.М. Релаксация доменных стенок в триглицинсульфате / В.М. Петров, О.И. Коган // *Кристаллография*. 1970. Т. 15. № 5. С.1018—1021.
19. Шильников А.В. Некоторые диэлектрические свойства полидоменных монокристаллов сегнетовой соли, триглицинсульфата и дигидрофосфата калия : дис. ...канд. физ.-мат. наук. Воронеж, 1972.
20. О некоторых особенностях доменного вклада в диэлектрические свойства монокристаллов ТГС на низких и инфранизких частотах / А.В. Шильников, Э.С. Попов, Л.А. Шувалов и др. // *Физика диэлектриков и полупроводников : сб. / ВПИ. Волгоград, 1978. С. 7—18.*
21. Kamysheva L.N. Dielectric relaxation in ferroelectric TGS / L.N. Kamysheva, A.S. Sidorkin, S.D. Milovidova // *Phys. Stat. Sol.* (a). 1984. V. 84. P. K115—K120.
22. Диэлектрические свойства монокристаллов дейтерированного триглицинсульфата (DTGS) в ультраслабых низко- и инфранизкочастотных полях / А.В. Шильников, Л.А. Шувалов, А.П. Поздняков, А.В. Сопит // *Физика твердого тела*. 1999. Т. 41. Вып. 6. С. 1073—1075.
23. Галиярова Н.М. Медленная релаксация поляризации и особенности низкочастотного диэлектрического спектра триглицинсульфата в области фазового перехода // *Физика твердого тела*. 1989. Т. 31. № 11. С. 248—252.
24. Galiyarova N.M. Infralow frequency dispersion of dielectric permittivity due to irreversible domain wall motion near phase transition point in TGS // *Ferroelectrics*. 1990. V. 111. P. 171—179.
25. Простейшая классификация механизмов движения доменных стенок в низко- и инфранизкочастотных электрических полях / А.В. Шильников, Н.М. Галиярова, С.В. Горин и др. // *Изв. АН СССР. Сер. физич.* 1991. Т. 55. № 3. С. 578—582.
26. Особенности амплитудной эволюции параметров спектров низко- и инфранизкочастотной релаксационной дисперсии диэлектрической проницаемости в кристаллах ТГС / А.В. Шильников, Н.М. Галиярова, Д.Г. Васильев и др. // *Изв. РАН. Сер. физ.* 1996. Т. 60. № 9. С. 197—201.
27. Критическое замедление низкочастотной релаксации в дейтерированном триглицинсульфате / Н.М. Галиярова, В.А. Федорихин, Л.И. Донцова, А.В. Шильников // *Изв. РАН. Сер. физич.* 1996. Т. 60. № 10. С. 142—149.
28. Jonscher A.K. *Dielectric Relaxation in Solids*. London : Chelsea Dielectric Press, 1983. 380 p.
29. Олемской А.И. Использование концепции фрактала в физике конденсированной среды / А.И. Олемской, А.Я. Флат // *УФН*. 1993. Т. 165. № 12. С. 1—50.
30. Galiyarova N. Fractality and Dielectric Spectra of Ferroic Materials / N. Galiyarova, S. Gorin, L. Dontsova // *Materials Research Innovations*. 1999. V. 3. № 1. P. 30—41.
31. Галиярова Н.М. Фрактальные свойства и диэлектрический гистерезис пьезокерамики ЦТСНВ-1 / Н.М. Галиярова, А.Б. Бей // *Изв. РАН. Сер. физич.* 2003. Т. 67. № 8. С. 1178—1181.
32. Галиярова Н.М. Модели фрактального диэлектрического отклика сегнетоэлектриков с доменными и фазовыми границами // *Изв. РАН. Сер. физич.* 2004. Т. 68. № 7. С. 985—993.
33. Попов Э.С. Об униполярности частных циклов и электрическом последствии кристаллов триглицинсульфата // *Физика диэлектриков и полупроводников*. Волгоград, 1970. С. 89—95.
34. Галиярова Н.М. Диэлектрические спектры при неоднозначной доменной динамике неравновесных сегнетоэлектрических состояний // *Сегнетоэлектрики и пьезоэлектрики : сб. Тверь : ТГУ, 1995. С. 58—79.*
35. Кукушкин С.А. Термодинамика и кинетика начальных стадий переключения в сегнетоэлектриках / С.А. Кукушкин, А.В. Осипов // *Физика твердого тела*. 2001. Т. 43. Вып. 1. С. 80—87.

36. Preisach F. Über die magnetische Nachwirkung // Zs. Phys. 1935. V. 94. № 5. S. 277—302.
37. Кудашев А.С. Исследование особенностей диэлектрических и поляризационных свойств сегнетоэлектрических пленок ЦТС и ТБС : автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. Волгоград, 2004. 20 с.
38. Галиярова Н.М. Низкочастотные диэлектрические спектры сегнетоэлектриков при взаимосвязи движения доменных границ с другими релаксационными параметрами // Изв. РАН. Сер. физич. 1997. Т. 61. № 2. С. 386—394.
39. Appel Дж. Поляроны / Дж. Appel, Ю.А. Фирсов. М., 1975.
40. Белоненко М.В. Локализованные состояния заряженной частицы в сегнетоэлектрическом кристалле / М.В. Белоненко, В. Немеш // Укр. физ. журн. 1999. Т. 44. № 7. С. 871—874.
41. Belonenko M.B. Localized polaron Type States in ferroelectrics-ferroelastics / M.B. Belonenko, E.N. Demushkina // Ferroelectrics. 2005. V. 316. P. 139—146.
42. Межзонная модель сегнетоэлектрика : межвуз. сб. науч. тр. Л., 1987. 156 с.
43. О двух видах релаксации поляризации полидоменных сегнетоэлектриков в электрическом поле / В.В. Гладкий, В.А. Кириков, Е.С. Иванова, С.В. Нехлюдов // Физика твердого тела. 1999. Т. 41. № 3. С. 499—504.
44. Иванов В.В. Диэлектрическая релаксация в кристаллах ТГС и ДТГС при изменении внешнего электрического поля и температуры / В.В. Иванов, М.В. Колышева, Е.А. Клевцова, В.В. Макаров // Материаловедение. 2001. № 7. С. 6—9.