

# М а т е м а т и к а . П р и к л а д н а я м а т е м а т и к а .

## М е х а н и к а

УДК 519.6:51-73:004.942

А.В. Павельчук, Н.Л. Габрелян, А.Г. Масловская

### МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПРОЦЕССА ЗАРЯДКИ ДИЭЛЕКТРИКОВ, ХАРАКТЕРИЗУЮЩЕГОСЯ ЭФФЕКТОМ ЗАПАЗДЫВАНИЯ

*В работе предложена математическая постановка задачи моделирования эволюционного процесса электронно-индуцированной зарядки полярных диэлектриков с эффектом запаздывания. Прикладная задача включает модифицированное представление нелинейного уравнения типа «реакция-диффузия», модельное распределение потерь энергии электронов в облученной мишени и совокупность соотношений, описывающих координатные зависимости вектора напряженности и компоненты вектора поляризации, стимулируемых электронным облучением. Высказано предположение о построении вычислительной схемы реализации модели на основе сеточного метода расщепления.*

*Ключевые слова: электронное облучение, зарядка диэлектриков, детерминированная модель, уравнение «реакция – диффузия», уравнение с частными производными параболического типа с запаздыванием, вычислительная схема, конечно-разностный метод расщепления.*

### MATHEMATICAL MODEL OF DIELECTRIC CHARGING PROCESS CHARACTERIZED BY HYSTERESIS PHENOMENON

*A mathematical statement of the simulation problem was proposed to describe evolutionary process of electron-induced charging in polar dielectrics with hysteresis phenomenon. The applied problem consists of modified representation of nonlinear “reaction-diffusion” type equation, model distribution of electron energy loses in irradiated target and set of the equations specifying coordinate dependences of an electric field-vector as well as polarization vector component stimulated by electron irradiation. There was formulated a hypothesis of computational scheme construction to realize the model using the grid splitting method.*

*Key words: electron irradiation, dielectric charging, deterministic model, reaction-diffusion equation, parabolic partial derivative equation with hysteresis, computational scheme, finite-difference splitting method.*

#### Введение

В настоящее время реакционно-диффузионные системы имеют широкий спектр приложений для модельного представления процессов и явлений в гидродинамике, биологии, химии, физике, теории массо- и теплопереноса и других областях. Среди многочисленных моделей можно указать от-

дельный класс систем, формализуемых с помощью уравнений с частными производными в присутствии эффекта запаздывания или наследственности [1-3]. Уравнения такого типа также носят название функционально-дифференциальных уравнений [1]. При решении прикладных задач физический смысл запаздывания часто связывают с конечной скоростью распространения возмущений или инерционной природой самой системы, которая формирует отклик на внешнее воздействие не мгновенно, а с некоторым временным лагом. Исследованиям подобных систем посвящен значительный круг работ как зарубежных, так и отечественных авторов [1-8]. Следует заметить, что только для достаточно ограниченного класса задач в постановке уравнений с частными производными параболического типа с эффектом запаздывания можно построить аналитические решения [5]. Многочисленные исследования посвящены анализу свойств решений – устойчивости, асимптотичности, периодичности, осцилляции и пр. Вместе с тем для изучения объекта на основе постановки и проведения вычислительного эксперимента требуется построить гибкую и эффективную вычислительную схему. В связи с этим широкое распространение на практике получили численные методы, в том числе конечно-разностные [6-8].

Серия предшествующих работ [9-13] была посвящена развитию подходов к построению и реализации математических моделей стационарного и эволюционного процессов зарядки полярных диэлектрических материалов в неравновесных условиях электронного облучения. Специфика формулируемых задач соответствует теоретическому описанию процессов взаимодействия электронного зонда с сегнетоэлектрическими материалами, которые подлежат анализу и модификации с помощью методов растровой электронной микроскопии. В этом случае в качестве одного из аспектов полевого воздействия на полярный материал рассматривается эффект зарядки инжектированными в образец электронами. Подобное воздействие, в частности, используется для создания контролируемых доменных структур субмикронного размера [14]. Авторская модификация модели динамической зарядки была введена в рассмотрение с учетом собственной радиационно-стимулированной проводимости образца и на основе предварительной симуляции транспорта электронов методом Монте-Карло [9, 12]. В математической постановке модель описывается как начально-граничная задача для системы уравнений с частными производными, причем базовое соотношение представляет собой нелинейное реакционно-диффузионное уравнение. В указанных работах сконструированы различные варианты вычислительных схем, предназначенные для программной реализации модели и базирующиеся на использовании конечно-разностных схем расщепления (явной схемы расщепления, метода дробных шагов Яненко [15], метода переменных направлений [16]). Принимая во внимание физические законы и механизмы, определяющие диффузионный характер модели процесса зарядки, можно предположить, что эффект запаздывания реакции системы на внешнее воздействие может быть учтен в соответствующем соотношении математической постановки задачи. Поэтому данная работа направлена на разработку физико-математической модели эволюционных процессов зарядки полярных диэлектриков, описываемых уравнениями типа «реакция – диффузия» с учетом эффекта запаздывания по времени.

#### **Концептуальная постановка задачи моделирования зарядки диэлектриков**

Построение обобщенной модели процесса электронно-индуцированной зарядки диэлектриков включает несколько этапов и требует системы детерминированных уравнений математической физики, схемы аппроксимации источника неравновесных носителей заряда (расчета транспорта в облученной мишени) и совокупности соотношений для вычисления характеристик процесса зарядки.

Рассмотрим систему, включающую уравнение непрерывности, или уравнение сохранения заряда, и уравнение Пуассона. Дополним систему выражением, определяющим связь между потенциалом и напряженностью поля:

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = G - \operatorname{div} \mathbf{j}, \\ \Delta \varphi = -\frac{\rho}{\varepsilon \varepsilon_0}, \\ \mathbf{E} = -\operatorname{grad} \varphi, \end{cases} \quad (1)$$

где  $\rho$  – объемная плотность заряда, Кл/м<sup>3</sup>;  $\mathbf{j}$  – плотность тока, А/м<sup>2</sup>;  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость материала;  $\varepsilon_0$  – электрическая постоянная, Ф/м;  $G$  – генерационное слагаемое, отвечающее за действие объемного источника в объекте, Кл/(м<sup>3</sup>·с);  $\varphi$  – потенциал, В;  $\mathbf{E}$  – напряженность поля, В/м.

В классическом локально-равновесном модельном представлении предполагается, что пучок электронов, проникая на некоторую глубину в образец, создает отрицательный объемный заряд, вследствие чего возникает диффузионный ток. Указанная зависимость вводится в рассмотрение в предположении, что система реагирует на воздействие в тот же момент времени:

$$\mathbf{j}^{diff} = -D \cdot \operatorname{grad} \rho, \quad (2)$$

где  $D = \bar{v} \cdot \bar{l}$  – коэффициент диффузии электронов, м<sup>2</sup>/с;  $\bar{l}$  – средняя длина свободного пробега, м;  $\bar{v}$  – средняя тепловая скорость, м/с.

Рассмотрим оценку коэффициента диффузии  $D$  в зависимости от параметров модели. Для этого используем данные, характеризующие дрейфовый поток. По второму закону Ньютона:

$$m_e \frac{dv}{dt} = -eE, \quad (3)$$

$m_e$  – масса электрона, кг;  $e$  – заряд электрона, К.

Скорость движения электрона в конце свободного пробега (при начальной скорости  $v_0 = 0$ ), до остановки при столкновении электрона с каким-либо атомом, равна:  $v_t = \frac{\bar{e}E}{m_e} t$ . Усредняя последнее

равенство, получим среднюю тепловую скорость электрона на пути его свободного пробега от начала движения до остановки при столкновении с атомом:

$$\bar{v} = \frac{\bar{e}E}{m_e} \bar{t} = \frac{\bar{e}E}{m_e} \tau, \quad (4)$$

где  $\tau$  – среднее время свободного пробега электрона между столкновениями с атомами.

Для  $\tau$  из последнего следует:  $\tau = \frac{m_e \bar{v}}{eE}$ . Средняя длина свободного пробега электрона может быть вычислена с помощью формулы пути при равноускоренном движении:

$$\bar{l} = \bar{v} \tau = \frac{m_e \bar{v}^2}{eE} = \frac{kT}{eE}. \quad (5)$$

В последнем выражении использована формула кинетической энергии теплового движения для одной степени свободы:

$$\frac{m_e \bar{v}^2}{2} = \frac{kT}{2},$$

где  $k$  – константа Больцмана, Дж/К;  $T$  – температура, К.

Таким образом, для коэффициента диффузии  $D$  с помощью (5) получим:

$$D = \bar{v} \cdot \bar{l} = \bar{v} \frac{kT}{eE} = \mu_n E \frac{kT}{eE} = \mu_n \frac{kT}{e}. \quad (6)$$

$\mu_n = \frac{v^{dr}}{E} = \frac{e\bar{l}}{m_e \bar{v}}$  – дрейфовая подвижность электронов, м<sup>2</sup>/(В·с).

Если облучение поддерживается достаточно длительное время, то электроны, участвующие в диффузионном токе, создают объемные заряды, поле которых противодействует диффузии:

$$\mathbf{j}^{dr} = \sigma \mathbf{E}, \quad (7)$$

где  $\sigma = \mu_n \cdot \rho$  – электрическая проводимость, См/м.

Таким образом, полный ток представляется суммой диффузионного и дрейфового токов:

$$\mathbf{j} = \mathbf{j}^{dif} + \mathbf{j}^{dr}. \quad (8)$$

Вычислим слагаемые, определяющие дивергенцию плотности тока. Для дрейфового тока будем иметь:

$$\operatorname{div} \mathbf{j}^{dr} = \sigma \operatorname{div} \mathbf{E} + (\mathbf{E}, \operatorname{grad} \sigma)$$

при  $\sigma \operatorname{div} \mathbf{E} = \frac{\sigma \rho}{\varepsilon \varepsilon_0} = \frac{\mu_n \rho^2}{\varepsilon \varepsilon_0}$  и  $(\mathbf{E}, \operatorname{grad} \sigma) = (\mathbf{E}, \operatorname{grad}(\mu_n \rho)) = \mu_n (\mathbf{E}, \operatorname{grad} \rho)$ .

Диффузионная компонента для равновесного случая представлена выражением:

$$\operatorname{div} \mathbf{j}^{dif} = -D \operatorname{div}(\operatorname{grad} \rho) = -D \Delta \rho. \quad (9)$$

### Математическая постановка задачи моделирования электронно-индуцированной зарядки диэлектриков с запаздыванием

*Моделирование полевых эффектов инжектированных зарядов.* Для перехода к математической постановке задачи в координатном представлении введем в рассмотрение пространственную конфигурацию образца и источника зарядов. Для уменьшения

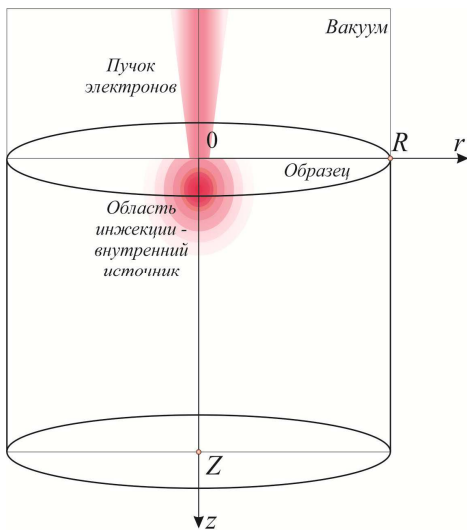


Рис. 1. Схематическое представление геометрии образца и внутреннего источника.

числа независимых координат допустим, что задача обладает цилиндрической симметрией. Геометрическая схема модельного объекта и источника показаны на рис. 1. В координатном представлении можно записать:

$$(\mathbf{E}, \operatorname{grad} \rho) = \left( E_r \frac{\partial \rho}{\partial r} + E_z \frac{\partial \rho}{\partial z} \right),$$

$$\Delta \rho = \left( \frac{\partial^2 \rho}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \rho}{\partial r} + \frac{\partial^2 \rho}{\partial z^2} \right).$$

Модифицируем представление (2) с учетом временного запаздывания:

$$\mathbf{j}^{dif}(r, z, t + \tau_j) = -D \cdot \operatorname{grad} \rho(r, z, t + \tau_\rho), \quad (10)$$

где  $\tau_j$  и  $\tau_\rho$  – лаги диффузионного тока и градиента плотности зарядов.

Учитывая, что  $\tau = \tau_j - \tau_\rho > 0$ , выражение (10) будет означать, что система реагирует на изменение градиента плотности инжектированных зарядов изменением диффузионного тока не мгновенно, а с некоторым временным лагом  $\tau$ . Далее потребуем, чтобы время запаздывания  $\tau$  было учтено в (9) и при преобразовании уравнения непрерывности системы (1) с учетом суперпозиции вкладов диффузионного и дрейфового токов (8).

В данном случае можно провести некоторую аналогию с математическим моделированием процесса теплопроводности, характеризуемого запаздыванием по времени и представляющего собой диффузионный по природе процесс. В литературе описана так называемая модель двухфазного запаздывания (DPL – «dual-phase-lagging» model) для формализации закона Фурье и модификации

классического уравнения теплопроводности [17-20]. Это также приводит авторов к математической модели в виде начально-граничной задачи для функционально-дифференциального уравнения параболического типа.

Таким образом, математическая постановка задачи моделирования процесса зарядки диэлектриков с учетом запаздывания описывается совокупностью соотношений:

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial \rho(r, z, t)}{\partial t} &= G(r, z) - \frac{\mu_n}{\epsilon \epsilon_0} \cdot \rho(r, z, t)^2 - \mu_n \left( E_r \frac{\partial \rho(r, z, t)}{\partial r} + E_z \frac{\partial \rho(r, z, t)}{\partial z} \right) + \\ &+ D \left( \frac{\partial^2 \rho(r, z, t - \tau)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \rho(r, z, t - \tau)}{\partial r} + \frac{\partial^2 \rho(r, z, t - \tau)}{\partial z^2} \right), \\ \frac{\partial^2 \varphi(r, z, t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \varphi(r, z, t)}{\partial r} + \frac{\partial^2 \varphi(r, z, t)}{\partial z^2} &= - \frac{\rho(r, z, t)}{\epsilon \epsilon_0}, \\ \mathbf{E}(r, z, t) &= -\text{grad} \varphi(r, z, t), \end{aligned} \right. \quad (11)$$

где  $0 \leq r \leq R$ ,  $0 \leq z \leq Z$  – геометрические размеры объекта,  $\tau < t \leq T$  – период действия источника, с начальным условием:

$$\rho(r, z, t) = \rho^0(r, z, t) \text{ при } 0 \leq t \leq \tau, 0 \leq r \leq R, 0 \leq z \leq Z \quad (12)$$

и соответствующими физическому смыслу задачи граничными условиями:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial r} \Big|_{r=0} &= 0, \quad \frac{\partial \rho}{\partial z} \Big|_{z=0} = 0, \quad \rho \Big|_{z=Z} = 0, \quad \rho \Big|_{r=R} = 0, \quad \frac{\partial \varphi}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0, \\ \frac{\partial \varphi}{\partial z} \Big|_{z=0} &= 0, \quad \varphi \Big|_{z=Z} = 0, \quad \varphi \Big|_{r=R} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

при  $t \geq 0$ .

Можно заметить, что размеры градиентной зоны много меньше характерных размеров объекта, поэтому при реализации модели в целях сокращения вычислительных затрат размеры расчетной области, определяемые  $R$  и  $Z$ , целесообразно актуализировать для локальной зоны динамического изменения характеристик с учетом выполнимости граничных условий.

*Спецификация внутреннего источника.* Для определения геометрии внутреннего источника и введения аналитической аппроксимации функциональной зависимости распределения потерь энергии в облученном материале требуется предварительная симуляция транспорта электронов. Для моделирования распределения электронных траекторий может быть эффективно применен метод статистических испытаний или Монте-Карло [9, 11]. В вычислительной схеме положим, что электрон с энергией старта падает перпендикулярно плоскости поверхности образца в некоторую точку под определенным углом. Позиция электрона в точке задается с использованием значений углов рассеяния: азимутальным углом и углом отклонения. Значения углов и вид взаимодействия (упругое и неупругое) определяются с помощью генератора случайных чисел. Длина свободного пробега на каждом шаге рассчитывается с использованием модельного сечения рассеяния Мотта. Расчет изменения энергии при неупругом рассеянии электронов проводился на основе модифицированного закона Бете для многокомпонентных материалов. Изменение траектории и потерь энергии для каждого электрона рассчитывается до тех пор, пока величина энергии не уменьшится до некоторого порогового значения. Согласно концепции метода Монте-Карло для достижения статистической достоверности требуется моделирование для достаточно большого числа историй электронов (1000-10000). Моделирование транспорта электронов позволяет задать начальное распределение плотности зарядов в образце  $\rho^0(r, z, t)$  при решении задачи о моделировании релаксационных процессов или функцию, опреде-

ляющую генерационное слагаемое  $G(r, z)$ , для задачи моделирования динамики зарядки диэлектрика.

*Расчет координатных зависимостей вектора напряженности и индуцируемой электронным зондом компоненты вектора поляризации.* В отличие от потенциала  $\varphi$  напряженность электрического поля  $\mathbf{E}$  является векторной функцией, которая в каждой точке пространства характеризуется величиной поля и направлением. Связь между напряженностью и потенциалом  $\mathbf{E} = -\text{grad } \varphi$  и применение соответствующей функции для вычисления градиента позволяют определить компоненты  $(E_r, E_z)$  и значение модуля вектора напряженности  $|\mathbf{E}| = \sqrt{(E_r)^2 + (E_z)^2}$ . Степень поляризации диэлектрика, индуцируемая инъекцией электронного пучка, характеризуется вектором поляризации  $\mathbf{P}$ , для вычисления которого можно воспользоваться связью между вектором напряженности и вектором поляризации:  $\mathbf{P} = (\varepsilon - 1)\varepsilon_0\mathbf{E}$  [20].

*Комментарий к вопросу о конструировании вычислительной схемы реализации модели.* Реализация детерминированной модели в постановке начально-граничной задачи для системы уравнений с частными производными, включая реакционно-диффузионное функционально-дифференциальное уравнение, потенциально может быть проведена на основе конечно-разностного метода переменных направлений [16]. Ранее алгоритм на основе указанного метода был построен для предшествующей локально-равновесной модели. Подобная вычислительная схема является абсолютно устойчивой для двумерной по пространственным координатам задачи и имеет второй порядок аппроксимации по времени и координатам  $r$  и  $z$ . Следует заметить, что в работах [6] и [7] авторами приводятся результаты конструирования вычислительных схем на основе конечно-разностного метода переменных направлений для отдельных классов функционально-дифференциальных уравнений параболического типа. Тем не менее вопрос построения, анализа и программной реализации вычислительной схемы для сформулированной постановки задачи (11)-(13) требует дальнейшего рассмотрения.

### Заключение

Таким образом, в работе предложена обобщенная физико-математическая модель процесса электронно-стимулированной зарядки полярных диэлектриков с учетом эффекта запаздывания по времени. Математическая постановка задачи содержит систему детерминированных уравнений с частными производными (включая нелинейное функционально-дифференциальное уравнение параболического типа), результат аппроксимации функции источника на основе расчета транспорта электронов методом Монте-Карло и совокупность соотношений, описывающих координатные зависимости вектора напряженности и индуцируемой электронным зондом компоненты вектора поляризации. Реализация модели требует конструирования гибридной вычислительной схемы, сочетающей сеточное решение задачи математической физики и стохастическое моделирование электронных траекторий в облученном материале при заданных модельных параметрах, отвечающих условиям эксперимента.

- 
1. Wu, J. Theory and applications of partial functional differential equations – N.Y.: Springer, 1996. – 368 p.
  2. Kolmanovskii, V.B., Myshkis, A.D. Introduction to the theory and Applications of Functional Differential Equations – Kluwer: Dordrecht, 1999. – 648 p.
  3. Kyrychko, Y.N., Hogan, S.J. On the use of delay equations in engineering applications // Journal of vibration and control. – 2010. – V. 16 (7-8). – P. 943-960.
  4. Wu J., Zou, X. Travelling wave fronts of reaction-diffusion systems with delay // Journal of dynamics and differential equations. – 2001. – V. 13. – P. 651-687.

5. Polyaniin, A.D., Zhurov, A.I. Exact solutions of linear and nonlinear differential-difference heat and diffusion equations with finite relaxation time // *International Journal of Non-Linear Mechanics*. – 2013. – V. 54. – P. 115-126.
6. Jin, C.R. The numerical methods for solving some delay differential equations // *Ph.D. Paper of Harbin institute of technology*. – 2006. – P. 37-59.
7. Лекомцев, А.В. Численные алгоритмы решения некоторых классов эволюционных уравнений с запаздыванием: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Екатеринбург, 2010. – 24 с.
8. Лекомцев, А.В., Пименов, В.Г. Сходимость метода переменных направлений численного решения уравнения теплопроводности с запаздыванием // *Труды ИММ УрО РАН*. – 2010. – Т. 16, № 1. – С. 102-118.
9. Maslovskaya, A.G., Sivunov, A.V. Simulation of electron injection and charging processes in ferroelectrics modified with the SEM-techniques // *Solid State Phenomena*. – 2014. – V. 213. – P. 119-124.
10. Сивунов, А.В., Масловская, А.Г. Численное моделирование процессов зарядки при диагностике сегнетоэлектриков методами растровой электронной микроскопии // *Компьютерные исследования и моделирование*. – 2014. – Т. 6, № 1. – С. 107-119.
11. Pavelchuk, A., Barabash, T., Maslovskaya, A.G. Electron injection and polarization reversal processes in ferroelectrics analyzed with SEM: modelling of electron beam-stimulated effects // In: *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 2016. – V. 110. – 012080 (6).
12. Maslovskaya, A.G., Barabash, T., Veselova, E. Polarization switching response and domain structure dynamics induced in ferroelectrics by incident electron beams // *Solid State Phenomena*. – 2016. – V. 247. – P. 131-137.
13. Павельчук, А.В., Масловская, А.Г. Конструирование разностной схемы для задачи расчета характеристик полевых эффектов в облученных электронными пучками диэлектриках // *Материалы 7-й научно-практ. Интернет-конференции «Междисциплинарные исследования в области математического моделирования и информатики»*, 2016 / отв. ред. Ю.С. Нагорнов. – Ульяновск: ЗЕБРА, 2016. – С. 147-150.
14. He, J., Tang, S.H., Qin, Y.Q., Dong, P., Zhang, H.Z., Kang, C.H., Sun, W.X., Shen, Z.X. Two-dimensional structures of ferroelectric domain inversion in LiNbO<sub>3</sub> by direct electron beam lithography // *J. Appl. Phys.*. – 2003. – V. 93. – P. 9943-9946.
15. Яненко, Н.Н. Метод дробных шагов решения многомерных задач математической физики – Новосибирск: Наука, 1967. – 197 с.
16. Формалев, В.Ф., Ревизников, Д.Л. Численные методы – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2004. – 400 с.
17. Reyes, E., Rodrigues, F., Martin, J.A. Analytic-numerical solutions of diffusion mathematical models with delays // *Computers and Mathematics with Applications*. – 2008. – V. 56. – P. 743-753.
18. Garcia, P., Castro, M.A., Martin, J.A., Sirvent, A. Numerical solutions of diffusion mathematical models with delay // *Mathematical and Computer Modelling*. – 2009. – V. 50. – P. 860-868.
19. Hong, B.-S., Chou, C.-Y. Realization of thermal inertia in frequency domain // *Entropy*. 2014. – V. 16. – P. 1101-1121.
20. Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд / под ред. К.М. Рабе, Ч.Г. Анна, Ж.-М. Трискона; пер. с англ. – М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2011. – 440 с.