

УДК 537.226.4

©1995

## КИНЕТИКА ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКАХ КОНЕЧНЫХ РАЗМЕРОВ

*В.Я.Шур, Е.Л.Румянцев, С.Д.Макаров*

Научно-исследовательский институт физики и прикладной математики при Уральском государственном университете, Екатеринбург  
(Поступила в Редакцию 12 октября 1994 г.)

Предложено новое описание кинетики переключения поляризации с учетом геометрических превращений на границах, позволяющее извлекать детальную информацию о кинетике доменов из формы импульсов тока переключения. Достоверность описания количественно подтверждена результатами математического моделирования и прямыми экспериментами в модельных сегнетоэлектриках. Данный подход представляется универсальным и может быть использован для описания кинетики различных фазовых превращений в ограниченных системах.

Регистрация переходного тока при воздействии прямоугольных импульсов поля является наиболее популярным и практически единственным возможным для тонких пленок методом экспериментального изучения переключения поляризации в сегнетоэлектриках [1]. При традиционной обработке такие измерения позволяют получать только полевые и температурные зависимости одного интегрального параметра — времени переключения [2]. В действительности же форма импульса тока переключения несомненно содержит информацию о кинетике доменной структуры: появлении, росте и коалесценции доменов [3]. Можно предположить, что при адекватном теоретическом описании кинетики процесса даже из интегральных измерений могут быть получены параметры, достаточно полно характеризующие основные этапы эволюции доменной структуры.

### 1. Классический подход

При теоретическом описании процесса переключения [4] используют результаты статистической теории, разработанной Колмогоровым [5] и независимо Аврами (теории К-А) для описания кристаллизации металлов в неограниченной среде. Наиболее последовательно эта теория была применена при анализе кинетики переключения и формы переходного тока в сегнетоэлектриках в работе Ишибаши и Такаги [6]. В последнее время был предпринят ряд попыток модернизировать теорию К-А для описания переключения в реальных конечных системах

[7]. Отмечалось, что эффекты, связанные с ограниченными размерами образцов, особенно существенны в поликристаллических пленках и керамике, в которых перестройка доменной структуры происходит параллельно и независимо в множестве отдельных зерен, размеры которых весьма малы. С другой стороны, усреднение по достаточно большому числу независимых экспериментальных реализаций облегчает применение статистического описания.

Во всех случаях ограничивались рассмотрением только двух основных вариантов статистической модели. По классификации Колмогорова [5], это  $\alpha$ -модель, в которой число доменов непрерывно увеличивается (интенсивность зарождения новых доменов  $\alpha$  обычно считают постоянной), и  $\beta$ -модель, в которой все участвующие в переключении домены образуются мгновенно в самом начале переключения с плотностью  $\beta$  на единицу объема. В обоих случаях скорость движения доменных стенок  $v$  считалась постоянной. Тогда основная формула, описывающая изменение доли объема непереключенных доменов, имеет вид для  $\alpha$ -модели

$$q(t) = \exp\left[-c\alpha v^n t^{n+1}/(n+1)\right], \quad (1)$$

для  $\beta$ -модели

$$q(t) = \exp(-c\beta v^n t^n), \quad (2)$$

где  $n$  — размерность кинетического процесса, зависящая от типа доменной структуры ( $n = 1$  для  $1D$ -роста пластинчатых доменов,  $n = 2$  для  $2D$ -роста цилиндрических изолированных доменов и  $n = 3$  для  $3D$ -роста доменов в объеме образца),  $c$  — константа формы [5].

При использовании этих выражений для описания формы импульсов тока переключения получаются дробные значения размерности процесса и не удается удовлетворительно аппроксимировать спадающую часть импульсов [8]. Это неудивительно, поскольку не учтены геометрические катастрофы в момент прикосновения растущего домена к краю образца, т.е. скачкообразное изменение константы формы. Этот эффект особенно значителен при росте клиновидных и линзообразных доменов (сильной анизотропии скорости движения доменных границ), что типично для тонких сегнетоэлектрических пленок [9].

## 2. Переключение в конечном объеме

Рассмотрим переключение поляризации в тонкой квадратной пластине площадью  $S = l^2$ , ориентированной перпендикулярно полярной оси. При этом задача может быть рассмотрена как двумерная (для сквозных доменов). Учитывая, что при любом эксперименте имеется конечный интервал времени между последовательными измерениями  $\Delta t$ , дискретизируем задачу и будем при любой величине анизотропии скорости бокового движения доменных стенок  $A = v_x/v_y$  рассматривать эффективное изотропное движение в дискретной матрице размером  $L_x \times L_y$ , где  $L_x = 1/(v_x \Delta t)$  и  $L_y = 1/(v_y \Delta t)$ .

Пусть имеет место переключение по  $\beta$ -модели с постоянным количеством мгновенно возникших доменов  $N_0$  и сильной анизотропией  $A \gg 1$  ( $L_x \ll L_y$ ). Выберем одномерную полосу длиной  $L_y$ - $i$ -ю строку), расположенную на расстоянии  $\Delta i = |L - i|$  от середины матрицы (рис. 1).

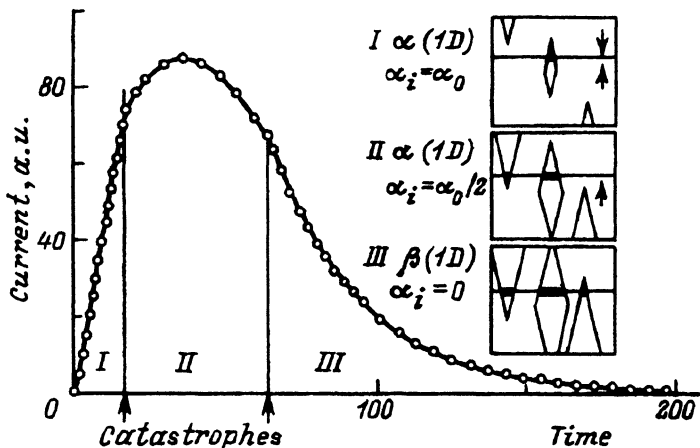


Рис. 1. Геометрические катастрофы при  $\beta(1D)$ -процессе (переключении в строке двумерной матрицы).

Точки — результаты математического моделирования ( $L_x = 60$ ,  $L_y = 3000$ ,  $i = 20$ ,  $N_0 = 100$ , количество реализаций — 1000), линия — аппроксимация по формуле (1) с учетом (3).

Переключение в такой области отвечает всем критериям применимости теории К-А [5]. Видно (рис. 1), что это  $\alpha(1D)$ -процесс, поскольку количество доменов в полоске увеличивается, когда домены, возникшие в других областях, дорастают до нее. Конечные размеры матрицы в направлении  $x$  приводят к тому, что интенсивность зарождения новых доменов в полоске изменяется в процессе переключения. В начале переключения имеем  $\alpha_i(t) = \alpha_0 = N_0/(2AL^3) = \beta_0/L$ , где  $2L = L_x$ , а затем происходят два скачкообразных катастрофических изменения

$$\alpha_i(t) = \begin{cases} \alpha_0, & 0 < t < L - \Delta i, \\ \alpha_0/2, & L - \Delta i < t < L + \Delta i, \\ 0, & L + \Delta i < t. \end{cases} \quad (3)$$

В результате первой катастрофы начальное значение  $\alpha$  уменьшается вдвое, а при второй — меняется тип модели; другими словами, имеет место геометрический фазовый переход  $\alpha(1D) \rightarrow \beta(1D)$ .

Для проверки адекватности предложенного описания производилось математическое моделирование переключения в двумерной матрице по  $\beta$ -модели со случайным исходным положением доменов, растущих в форме ромбов. Для каждого момента времени усреднялись изменения доли возникающих доменов по большому числу независимых реализаций. Видно (рис. 1), что полученное при моделировании изменение переключенной площади в определенной строке матрицы (аналог тока переключения в выделенной одномерной части двумерного образца) с высокой точностью аппроксимируется формулой (1) с  $n = 2$  и двумя катастрофами в точном соответствии с (3).

Для доли площади непереключенных доменов во всей матрице имеем

$$q(t) = 2 \prod_{i=1}^L q_i(t) = \prod_{i=1}^L \exp[-c\alpha_i(t)v^n t^n] = 2 \exp[-\sum_{i=1}^L c\alpha_i(t)v^n t^n]. \quad (4)$$

Таким образом,  $\beta(2D)$ -процесс представляет собой сумму локальных  $\alpha(1D)$ -процессов. В этом случае получаем подобную (2) формулу, в которой эффективная плотность доменов на единицу площади  $\beta(t)$  линейно уменьшается в процессе переключения

$$\beta(t) = 2 \sum_{i=1}^L \alpha_i / L = \beta_0(1 - t/t_c), \quad (5)$$

где  $t_c = 2L$ .

Полученная зависимость показывает, что при переключении в ограниченном объеме при сильной анизотропии бокового движения доменных стенок имеют место две существенные особенности: 1) эффективное уменьшение количества доменов, участвующих в двумерном переключении, и 2) катастрофическое изменение размерности в момент времени  $t_c$  (другими словами, переход)  $\beta(2D) \rightarrow \beta(1D)$ . Влияние отмеченных особенностей уменьшается с увеличением приведенных размеров образца, и в пределе при  $L \rightarrow \infty$  справедлива обычная формула К-А для  $\beta$ -модели.

Выражение, аналогичное (5), может быть использовано для аппроксимации формы тока переключения и в общем случае: при произвольной величине анизотропии (с ограничениями по  $x$  и  $y$ ). Для  $\alpha$ -модели имеем

$$i(t) = \left( 2P_s l^2 n t^n / t_{0\alpha}^{n+1} \right) \left\{ 1 - [1 + 1/(n+1)]t/t_m \right\} \times \exp \left[ -(t/t_{0\alpha})^{n+1} (1 - t/t_m) \right], \quad (6)$$

для  $\beta$ -модели

$$i(t) = \left( 2P_s l^2 n t^{n-1} / t_{0\beta}^n \right) \left[ 1 - (1 + 1/n)t/t_m \right] \times \exp \left[ -(t/t_{0\beta})^n (1 - t/t_m) \right], \quad (7)$$

где  $t_{0\alpha} = [c\alpha v^{n+1}/(n+1)]^{-1/(n+1)}$ ,  $t_{0\beta} = (c\beta v^n)^{-1/n}$ ,  $P_s$  — спонтанная поляризация,  $t_m$  — функция анизотропии, константы формы и интенсивности зародышеобразования.

### 3. Экспериментальные результаты

Результаты компьютерных экспериментов (математического моделирования  $\alpha$ - и  $\beta$ -процессов) хорошо аппроксимируются выражениями (6) и (7) с целочисленными значениями размерностей моделей, что видно из рис. 2. Важно обратить внимание на удачное описание спада импульсов тока переключения, что принципиально невозможно в рамках К-А подхода.

Математическая обработка импульсов тока переключения, измеренных в тонких поликристаллических пленках титаната свинца, легированного лантаном (ТСЛ), и тонких монокристаллах германата свинца (ГС), позволила выявить качественные изменения кинетики роста в ходе эволюции доменной структуры (рис. 3). Причем наличие  $\beta(3D) \rightarrow \beta(2D)$ -и  $\beta(2D) \rightarrow \beta(1D)$ -переходов при переключении в ГС было подтверждено непосредственным оптическим наблюдением кинетики доменов [3]. При этом удастся определить основные кинетические параметры: размерность  $n$ , анизотропию  $A$  и постоянные времени  $t_0$ .

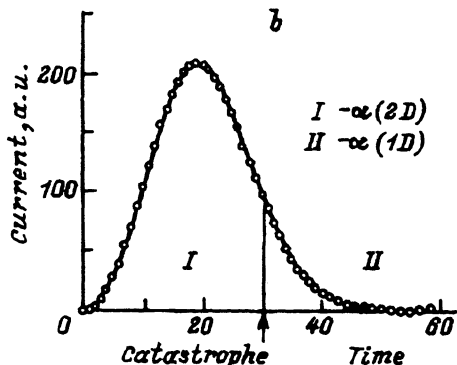
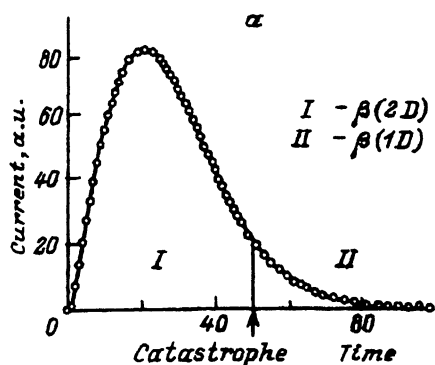


Рис. 2. Математическое моделирование кинетики доменной структуры при переключении поляризации.

*a* — анизотропный рост в  $\alpha$ -модели, *b* — изотропный рост в  $\beta$ -модели.

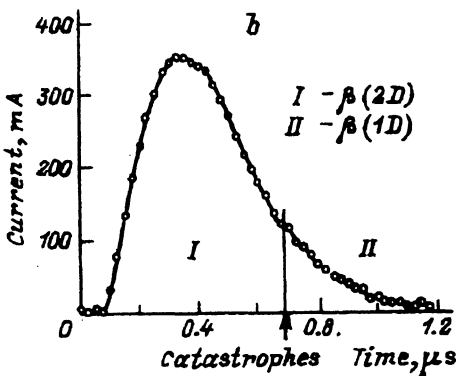
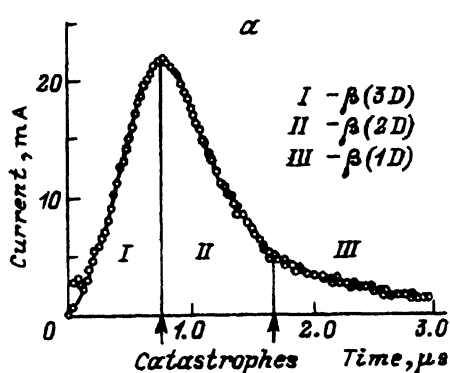


Рис. 3. Импульсы тока переключения в монокристалле ГС(*a*) и тонкой пленке ТСЛ (*b*).

Линии — аппроксимация по формуле (7).

$t_m$  и  $t_c$ . Это в свою очередь позволяет описать кинетику доменной структуры в терминах количества доменов, возникающих в единице объема ( $\alpha$  и  $\beta$ ), и скоростей их роста ( $v_x$  и  $v_y$ ).

Проведенные оценки показывают, что влияние геометрических превращений на границах существенно практически для всех реальных образцов, поскольку даже в крупных монокристаллических пластинах при сравнительно малом количестве доменов вклад краевых эффектов весьма значителен.

Таким образом, предложенное математическое описание позволяет извлекать из интегральных экспериментальных характеристик качественно новую информацию, принципиально важную для понимания кинетики доменной структуры. Кроме того, следует отметить, что разработанный подход универсален и может быть использован при изучении кинетики любых фазовых превращений в ограниченных системах.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 93-02-2451).

### Список литературы

- [1] Shur V.Ya., Rumyantsev E.L. *Ferroelectrics* **151**, 171 (1994).
- [2] Fatuzzo E., Merz W.J. *Ferroelectricity*. Amsterdam (1967). P. 287.
- [3] Шур В.Я., Груверман А.Л., Пономарев Н.Ю., Румянцев Е.Л., Тонкачева Н.А. *Письма в ЖЭТФ* **53**, 591 (1991).
- [4] Fatuzzo E. *Phys. Rev.* **127**, 1999 (1962); Wieder H.H. *J. Appl. Phys.* **31**, 180 (1960).
- [5] Колмогоров А.Н. *Изв. АН СССР. Сер. мат.*, **3**, 355 (1937); Avrami M.J. *Chem. Phys.* **7**, 1103 (1939).
- [6] Ishibashi Y., Takagi Y.J. *Phys. Soc. Jap.* **31**, 506 (1971).
- [7] Duiker H.M., Beale P.D. *Phys. Rev. B* **41**, 490 (1990); Ishibashi Y., Orihara H.J. *Phys. Soc. Jap.* **61**, 1919 (1992); **61**, 4650 (1992).
- [8] Dimmler K., Parris M., Butler D., Eaton S., Pouligny B., Scott J.F., Ishibashi Y. *J. Appl. Phys.* **61**, 5467 (1985); Scott J.F., Kammerdiner L., Parris M., Traynor S., Ottenbacher V., Shewabkeh A., Oliver W.F. *J. Appl. Phys.* **64**, 787 (1988).
- [9] Klee M., Mackens U., De Veirman A. *Ferroelectrics* **140**, 211 (1993).