

О роли механических эффектов в процессе динамической усталости монокристаллов PbTiO_3

© А.Ф. Семенчев, В.Г. Гавриляченко, Е.М. Кузнецова*, Е.Н. Склярова

Ростовский государственный университет,
344090 Ростов-на-Дону, Россия

* Ростовский государственный педагогический университет,
344082 Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: esmit@mail.ru

С помощью поляризационного микроскопа и применения техники избирательного травления выявлены детали проявления механических эффектов (двойникования и микроастрескивания) на разных стадиях динамической усталости кристаллов PbTiO_3 .

PACS: 61.72.Ff, 62.20.Mk

Динамическая усталость (ДУ), проявляющаяся в разной степени практически у всех сегнетоэлектриков при их многократной переполяризации, существенно ограничивает их применение в устройствах, основанных на эффекте переключения поляризации (например, в энергонезависимых ячейках памяти, сдвиговых регистрах и т.п.) [1,2]. Для объяснения этого явления предложено много разнообразных механизмов [2–4], но, как правило, эти механизмы относятся к частным случаям проявления ДУ в тех или иных сегнетоэлектрических материалах. Вместе с тем общепризнано, что ДУ — результат сложного взаимодействия электрических, механических и электрохимических процессов [5].

Предыдущие наши исследования ДУ монокристаллов PbTiO_3 показали, что в них находят проявление механизмы, обусловленные как объемно-зарядовыми, так и механическими эффектами [6,7]. В настоящей работе уделено внимание проявлениям механических эффектов, ответственных за ДУ этих кристаллов.

1. Образцы и методика эксперимента

В качестве объектов исследования были выбраны пластинчатые кристаллы PbTiO_3 без видимых дефектов как с произвольной исходной 180° доменной структурой, так и монодоменные (*c*-доменные). 180° доменная структура выявлялась методом избирательного травления в 10% смеси кислот HF и HCl, взятых в соотношении 1:3. При этом изучался рельеф травления не только на развитых (001) гранях, но и на поперечных срезах (100) кристаллов. Переполяризация кристаллов осуществлялась напряжением треугольной и синусоидальной формы в интервале частот f от 0.5 до 80 Hz с одновременной регистрацией петель диэлектрического гистерезиса, по которым определялась величина переключающейся поляризации P_r . Определялись $P_r(0)$ и $P_r(N)$ — величины поляризации, зарегистрированные в начальный момент времени и через N циклов переключения соответственно. В качестве электродов использовался насыщенный водный раствор LiCl.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Анализ зависимостей $P_r(N)/P_r(0)$, полученных при переполяризации кристаллов на частоте $f = 50$ Hz, показал, что в наименьшей степени ДУ проявляется у тонких ($h < 40 \mu\text{m}$), первоначально монодоменных кристаллов, переключающихся за счет прямого прорастания большого числа 180° доменов (кристаллы группы А [8]). У монодоменных кристаллов, переключающихся посредством бокового разрастания немногочисленных 180° доменов (кристаллы группы В [8]), темпы усталости выше по сравнению с кристаллами группы А. На рис. 1 приведены характерные для кристаллов группы В зависимости $P_r(N)/P_r(0)$ от N , полученные при различных частотах переполяризации. Видно, что с ростом f темпы усталости увеличиваются.

В наибольшей степени ДУ проявляется у кристаллов, содержащих в исходном состоянии встречные 180° домены. В таких кристаллах величина $P_r(0)$ меньше величины спонтанной поляризации монодоменных кристаллов $P_s = 0.8 \text{ C} \cdot \text{m}^{-2}$ [8]. Это указывает на то, что с

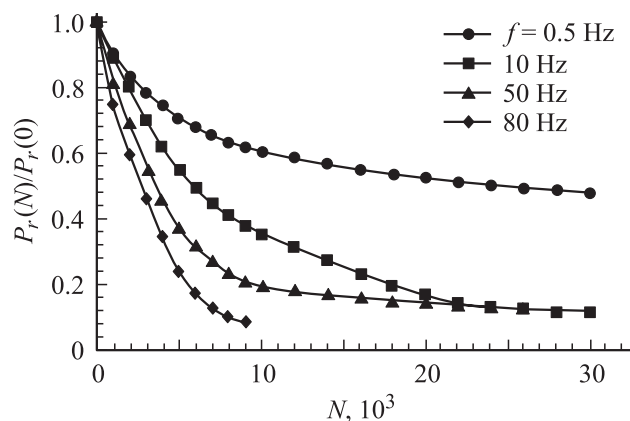


Рис. 1. Зависимости $P_r(N)/P_r(0)$ от N для кристалла группы В ($h = 120 \mu\text{m}$) при различных частотах переполяризации.

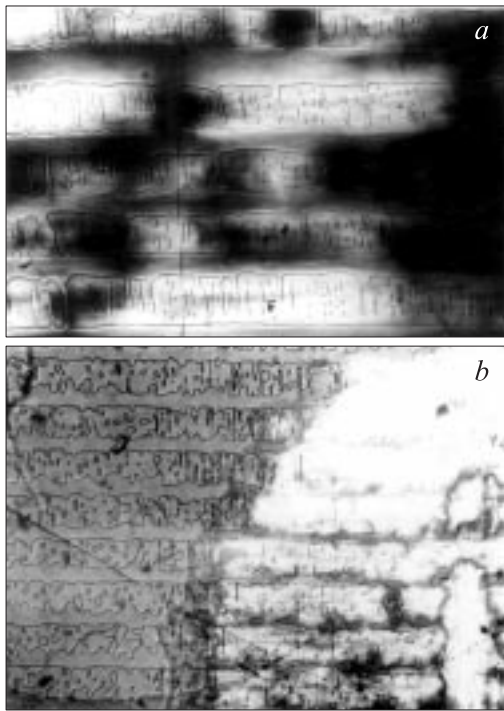


Рис. 2. Микрофотографии в поляризованном свете участка кристалла после циклической реполяризации. *a* — начальная стадия ДУ, *b* — после $N = 10^4$ циклов (масштаб 1:200).



Рис. 3. Микрофотографии рельефа травления на поперечном срезе кристалла с микродвойниками (масштаб 1:800).

самого начала в процесс реполяризации вовлечен не весь объем кристалла между электродами.

Исследование кристаллов в поляризованном свете на разных стадиях усталости показало, что сначала по периметру электрода, а затем и во всем межэлектродном пространстве образуются мелкие клиновидные *a*-домены. В наименьшей степени этот эффект проявляется у тонких ($h < 50 \mu\text{m}$), первоначально монодоменных кристаллов группы А, а в наибольшей — у кристаллов со встречными доменами. У последних *a*-домены начинают появляться уже на ранних стадиях ДУ, далее этот процесс происходит во всей области между электродами (рис. 2). В кристаллах выделяются просветленные участки, которые коррелируют с фигурами травления,

отображающими слоистую структуру встречных доменов. С увеличением толщины кристаллов проявление этого эффекта усиливается. Исследование поперечных срезов кристаллов позволило установить, что просветление обусловлено присутствием мелких *a*-доменных клиньев, локализуемых преимущественно у застabilизированных 180° доменных стенок и в областях, заблокированных встречными доменами. Микрофотографии рельефа травления на поперечных срезах кристалла (рис. 3) дают представление о размерах и локализации клиновидных *a*-доменов (тонкие светлые полосы, ориентированные под углом 45° к направлению P_s). Их толщина составляет менее $1 \mu\text{m}$.

Наряду с образованием *a*-доменов в процессе ДУ в кристаллах появляются микротрещины, преимущественно у границ электрода. Как правило, их магистральные направления ориентированы по $[100]$ и $[010]$, но плоскостями скола не являются какие-либо плоскости кристалла с рациональными индексами, по крайней мере в масштабах, допускаемых разрешением оптического микроскопа. На рис. 4, *a* приведена микрофотография протравленного поперечного среза участка кристалла в окрестности границы электрода. В верхней левой части микрофотографии виден след скола, от которого вертикально вниз распространилась трещина. Вокруг нее локализована группа взаимно пересекающихся клиновидных *a*-доменов. Правее наблюдается мелкая ячеистая структура, которая, как нам представляется, образована переплетением микротрещин. Ниже видны протяженные трещины, появление которых часто можно

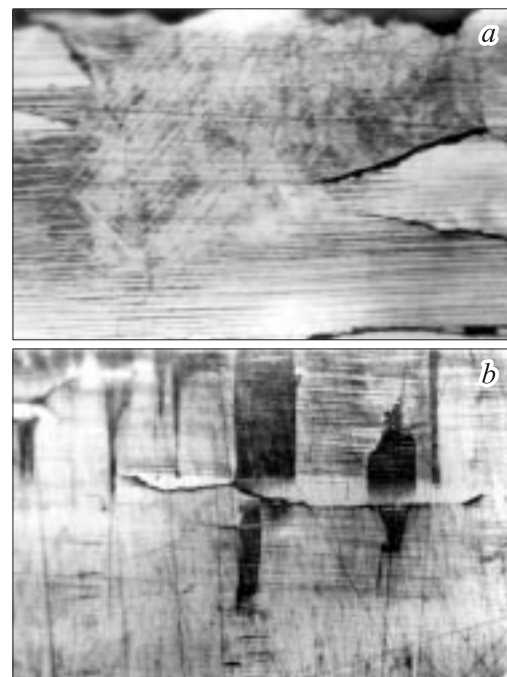


Рис. 4. Микрофотографии рельефа травления на поперечном срезе кристалла. *a* — у границы электрода, *b* — в объеме кристалла (масштаб 1:1000).

было обнаружить у боковых или торцевых границ стабилизированных 180° доменов (рис. 4, *b*). С увеличением N появляются новые микротрещины, которые разрастаются, ветвятся, сливаются друг с другом, что приводит к разрушению кристалла.

Полученные данные подтверждают высказанное нами ранее предположение о том, что рассмотренные механические эффекты являются следствием пьезоэлектрической реакции кристалла на воздействие переключающего поля [6,7]. В процессе переключения поляризации зародившиеся и разрастающиеся 180° домены испытывают пьезодеформацию, противоположную по знаку пьезодеформации еще не переключившейся части объема кристалла. Механические напряжения, возникающие из-за несогласованности деформаций у границ электрода и стабилизированных 180° доменных стенок, вызывают появление микродвойников (*a*-доменов). Микрорастрескивание, очевидно, является следствием другого механизма разрядки внутренних напряжений, связанных с неоднородной пьезодеформацией, а именно за счет генерации и размножения дислокаций. При наличии в кристалле стопоров, препятствующих скольжению дислокаций, их скопление может приводить к концентрации напряжений, достаточных по величине для зарождения и развития микротрещины по одному из рассмотренных в [9,10] механизмов. Очевидно также, что двойникование и микрорастрескивание являются взаимосвязанными процессами. Изменяя характер распределения переключающего поля по толщине кристалла, микродвойники и микротрещины препятствуют процессу переполаризации, что и приводит к ДУ.

Список литературы

- [1] J.F. Scott. *Ferroelectrics* **236**, 247 (2000).
- [2] Дж. Барфут, Дм. Тейлор. Полярные диэлектрики и их применение. Мир, М. (1981). 526 с.
- [3] З. Суровьяк, А.Е. Панич, В.П. Дудкевич. Тонкие сегнетоэлектрические пленки. Изд-во РГПУ, Ростов н/Д (1994). 192 с.
- [4] В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, И.С. Батулин. *ФТТ* **44**, 11, 2049 (2002).
- [5] I. Nuffer, D.C. Lupascu, A. Glazounov, H.-J. Klube, J. Rodel. *J. European Ceram. Soc.* **22**, 2133 (2002).
- [6] А.Ф. Семенчев, В.Г. Гавриляченко, З.П. Гаврилова. Междунар. симп. ОДРО-2001. Статьи и тезисы. Сочи–Лазаревское (2001). Ч. 1. С. 306.
- [7] З.П. Гаврилова, В.Г. Гавриляченко, А.Ф. Семенчев. Междунар. симп. ОДРО-2002. Статьи и тезисы. Сочи–Лазаревское (2002). Ч. 1. С. 58.
- [8] А.Ф. Семенчев, В.Г. Гавриляченко, Е.Г. Фесенко. *ФТТ* **23**, 10, 2929 (1981).
- [9] В.М. Финкель. Физика разрушения. Металлургия, М. (1970). 376 с.
- [10] В.М. Финкель, В.А. Федоров, А.П. Королев. Разрушение кристаллов при механическом двойниковании. Изд-во РГУ, Ростов н/Д (1990). 176 с.