

05;12

## Электрическая динамическая усталость в сегнетоэлектрических сложных оксидах

© В.Г. Гавриляченко, Н.В. Решетняк, Л.А. Резниченко,  
С.В. Гавриляченко, А.Ф. Семенчев, С.И. Дудкина

Ростовский государственный университет  
Научно-исследовательский институт физики

Поступило в Редакцию 23 июля 1997 г.

Приводятся данные об усталости сегнетоэлектрических материалов, вызванной циклической переполаризацией переменным полем. Предполагается, что электрическая усталость образцов обусловлена ростом концентрации дефектов кристаллической структуры.

Сегнетоэлектрические материалы находят широкое применение в устройствах электронной техники, работающих в экстремальных условиях, например в качестве холодных катодов в электровакуумных приборах. Информативным тестом на пригодность материала для работы в таких условиях является исследование кинетики электрической динамической усталости–деградации электрофизических свойств при циклической переполаризации переменным полем [1,2].

Для этих исследований нами были подготовлены образцы сегнетоэлектрических твердых растворов (ТР) различных структурных типов:

— ТР на основе цирконата титаната свинца, принадлежащие разным фрагментам фазовых диаграмм соответствующих систем (ромбоэдрические, тетрагональные, из области морфотропного фазового перехода (МО));

— ТР на основе ниобата натрия типа  $\text{NaNbO}_3\text{--ANbO}_3$ , где А — Li, K и  $\text{NaNbO}_3\text{--PbTiO}_3$ .

Все образцы были изготовлены методом горячего прессования. По петлям диэлектрического гистерезиса определялись относительные изменения остаточной поляризации  $P_r$  и коэрцитивного поля  $E_K$  в зависимости от числа циклов переключения  $N$ . В дополнение проводились диэлектрические, рентгеноструктурные и электронно-микроскопические исследования.

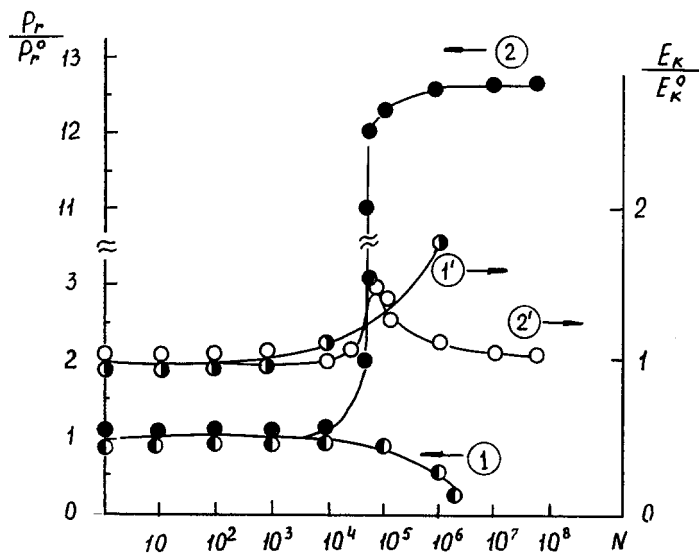
Анализ данных по числу образцов разных составов и структурных типов показал, что кинетика усталости заметно отличается в сегнетомягких и сегнетожестких составах. В сегнетомягких составах петля гистерезиса формируется в течение нескольких циклов, затем  $P_r$  уменьшается, а  $E_K$  растет.

На примере шестикомпонентной системы  $(\text{Pb}, \text{Sr})(\text{Ni}, \text{Zr})\text{O}_3 - \sum_{n=4} \text{PbV}'_{1-\alpha}\text{V}''_{\alpha}\text{O}_3$ , где  $V'$  — W, Nb,  $V''$  — Zn, Mg, Ni, Li, отличающейся сегнетомягкостью, мы установили, что составы из ромбической области обладают наибольшей стабильностью — в них 50%-ный спад  $P_r$  достигается при  $N \geq 2 \cdot 10^7$ . Для составов, принадлежащих МО, характерно увеличение  $P_r$  на (15–20)% при  $N \cong 10^5$ , а затем  $P_r$  совпадает до 50% от начального значения при  $N \leq 10^7$ . Темпы усталости составов из тетрагональной области самые большие: 50%-ный спад  $P_r$  достигается в них уже при  $N = 10^6$ .  $E_K$  во всех составах системы плавно растет по мере роста  $N$ , а диэлектрическая проницаемость  $\varepsilon$  падает примерно в 2–3 раза при изменении  $N$  от  $10^3$  до  $10^6$ . Подобные результаты были получены нами при исследовании сегнетомягких ТР на основе ниобата натрия, материалов ПКР-1, ПКР-7м и цирконата и титаната свинца, в котором свинец частично замещен лантаном 8/65/35, а также авторами работ [1,2].

В сегнетожестких составах отмечается длительная формовка петли гистерезиса (рост  $P_r$  и  $E_K$  вплоть до  $N = 10^5$ ).

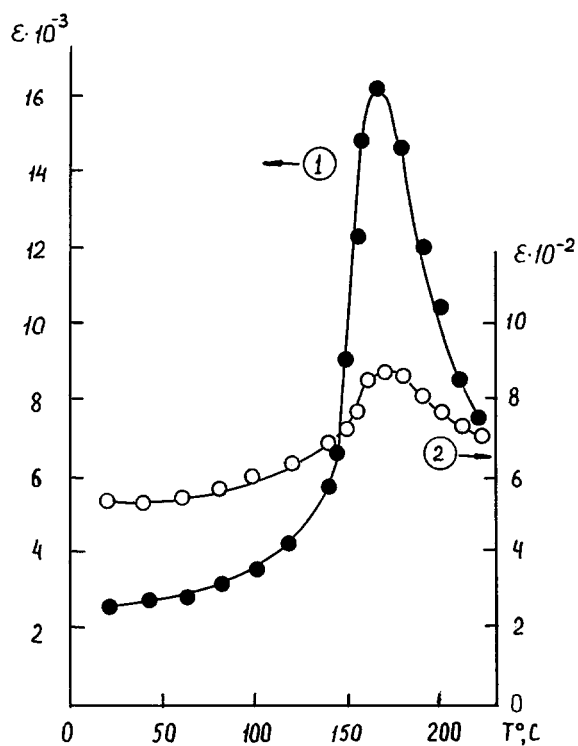
На рис. 1 для сравнения приведены относительные изменения  $P_r$  и  $E_K$  для тетрагональных составов из сегнетомягкой шестикомпонентной системы ( $P_r^0 = 0.21 \text{ C} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $E_K^0 = 6 \cdot 10^5 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ ) и сегнетожесткой четырехкомпонентной системы  $\text{Pb}(\text{Ni}, \text{Zr})\text{O}_3 - \sum_{n=2} \text{PbV}'_{1-\alpha}\text{V}''_{\alpha}\text{O}_3$ , где  $V'$  — W, Nb;  $V''$  — Mn ( $P_r^0 = 0.02 \text{ C} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $E_K^0 = 2.5 \cdot 10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ ). В последнем случае лавинообразный рост  $P_r$  отмечается после воздействия довольно большого числа циклов, а затем величина  $P_r$  не изменяется вплоть до значений  $N = 10^8$ . Интересно, что  $E_K$  возрастает при интенсивном росте  $P_r$ , а затем плавно спадает до  $E_K^0$ . Такие же зависимости характерны для сегнетожестких материалов ПКР-8 и ПКР-13. Они принципиально отличаются от данных по PZT-8 [2].

В чем же причина такого неожиданного различия в темпах электрической усталости сегнетомягких и сегнетожестких материалов? Ранее было установлено, что доменная структура кристаллитов сегнетомягких



**Рис. 1.** Относительные изменения остаточной поляризации  $P_r/P_r^0$  и коэрцитивного поля  $E_k/E_k^0$  в зависимости от числа циклов переключения  $N$  для тетрагональных составов: сегнетомягкого (1) и (1') и сегнетожесткого (2) и (2').

материалов ПКР-1, ПКР-7м и других состоит в основном только из  $180^\circ$ -ных доменов. После воздействия сильного постоянного или переменного электрического поля в кристаллитах заметно возрастает концентрация двойников [3]. Можно предположить, что при циклической переполаризации в керамических образцах развиваются неоднородные механические напряжения, приводящие к непрерывному двойникованию и раздвойникованию кристаллитов. Этот процесс генерирует дефекты в кристаллической структуре, которые, в свою очередь, служат стопорами для стенок двойников. В результате последние теряют способность к движению, сложная доменная структура кристаллитов замораживается, а  $P_r$  снижается. В дальнейшем развиваются микротрещины как в объеме кристаллитов, так и на границах между ними, что установлено при электронно-микроскопических исследованиях. Рентгеноструктурные исследования указывают на рост концентрации как линейных, так и точечных дефектов при росте  $N$ .



**Рис. 2.** Температурные зависимости диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  сегнетомягкого состава: 1 — исходное состояние, 2 — состояние после  $N = 10^6$  циклов переключения.

Дефектностью "уставших" образцов можно объяснить подавление и размытие в них фазового перехода (рис. 2).

Стабильность сегнетожестких составов при циклической переполяризации указывает на незначительное изменение дефектности кристаллов. Это подтверждается отсутствием размытия фазового перехода и рентгеноструктурными данными. Такой эффект может быть достигнут в том случае, если после формовки петли гистерезиса в кристаллитах идут только  $180^\circ$ -ные процессы.

Таким образом, электрическая усталость в сегнетоэлектрических сложных оксидах в основном обусловлена накоплением дефектов кристаллической структуры, а среди сегнетожестких составов типа ПКР-8, ПКР-13 есть перспективные для применений в экстремальных условиях.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант № 96-02-18513а.

### Список литературы

- [1] *Jang Q.Y., Subbarao T.C., Gross L.E.* // J. Appl. Phys. 1994. V. 75. N 11. P. 7433–7443.
- [2] *Ran W., Sun S., Fuierer P.* // J. Appl. Phys. 1993. V. 74. N 2. P. 1256–1264.
- [3] *Бородин В.Э., Эжнадюсянц Е.И., Пинская А.П.* Полупроводники-сегнетоэлектрики. В. 6. Ростов-на-Дону: МП "Книга", 1996. С. 125–126.