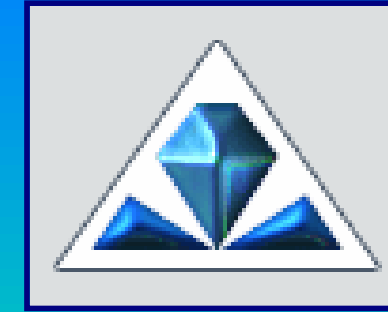




Условия докритического роста сегнетоэлектрических доменов

А.Ю. Белов

1. Введение

Выяснение механизма докритического роста сегнетоэлектрических доменов относится к актуальным дискуссионным вопросам физики сегнетоэлектриков. Важность этого явления связана со сложностью термофлуктуационного зарождения доменов критического размера при обычных значениях электрического поля (парадокс Ландауэра). Согласно [1], данный «парадокс» экспериментально наблюдался в поликристаллических пленках твердых растворов $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$, имеющих (при толщине около 250 nm) специфическую структуру, для которой характерна колончатая форма зерен. Петли гистерезиса в таких пленках демонстрируют необычную частотную зависимость коэрцитивного поля E_c : $1/E_c^2 \sim \ln(\nu/\nu_0)$ [2], особенностью которой является зависимость предельной частоты ν_0 (см. Рис.1) от размера верхнего электрода R : $\nu_0 = \nu_0(R)$. Такие размерные эффекты обусловлены сильной неоднородностью электрического поля у края электрода [3], что является необходимым условием реализации режима докритического роста зародышей переполаризации, и, таким образом, могут быть использованы для оценки вклада докритических процессов в переключение поляризации.

2. Закон $1/E_c^2$ – термоактивационное зародышеобразование

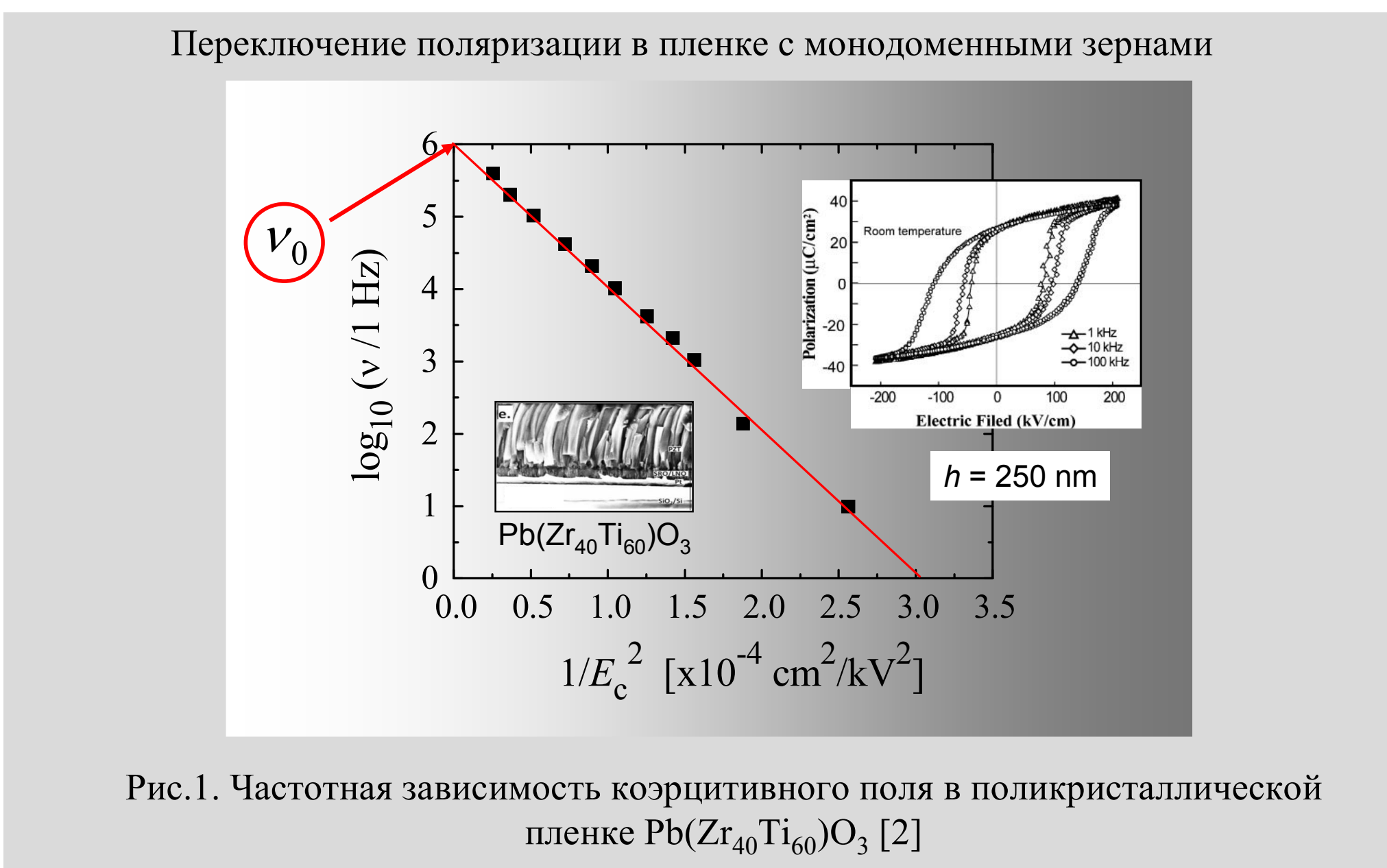


Рис.1. Частотная зависимость коэрцитивного поля в поликристаллической пленке $\text{Pb}(\text{Zr}_{40}\text{Ti}_{60})\text{O}_3$ [2]

3. Энергия активации для зародышей переполаризации

- В поликристаллических пленках с монокристаллическими зернами процесс переключения поляризации контролируется термоактивационным зарождением зародышей переполаризации [1].
- Энергия активации может быть определена из экспериментальных данных по частотной зависимости коэрцитивного поля $E_c(\nu)$

$$\Delta G(E_c) = kT(\ln \nu_0 - \ln \nu(E_c))$$

$\nu(E_c)$ – функция, обратная к $E_c(\nu)$

- Экспериментальные значения энергии активации в низкочастотной области. При $\nu(E_c) = 9.3 \text{ Hz} \rightarrow E_c(\nu) = 62.5 \text{ kV/cm}$

$$\Delta G(E_c) = 10 kT$$

- «Парадокс» Ландауэра: при $E_c = 0.5 \text{ kV/cm} \rightarrow \Delta G(E_c) = 10^5 kT$
- Предельная частота переключения поляризации $\nu_0 \approx 10^6 \text{ Hz}$

4. Размерные эффекты

- Предельная частота не является только свойством пленки и ее микроструктуры. Она также зависит от геометрии электродов (Рис.2)

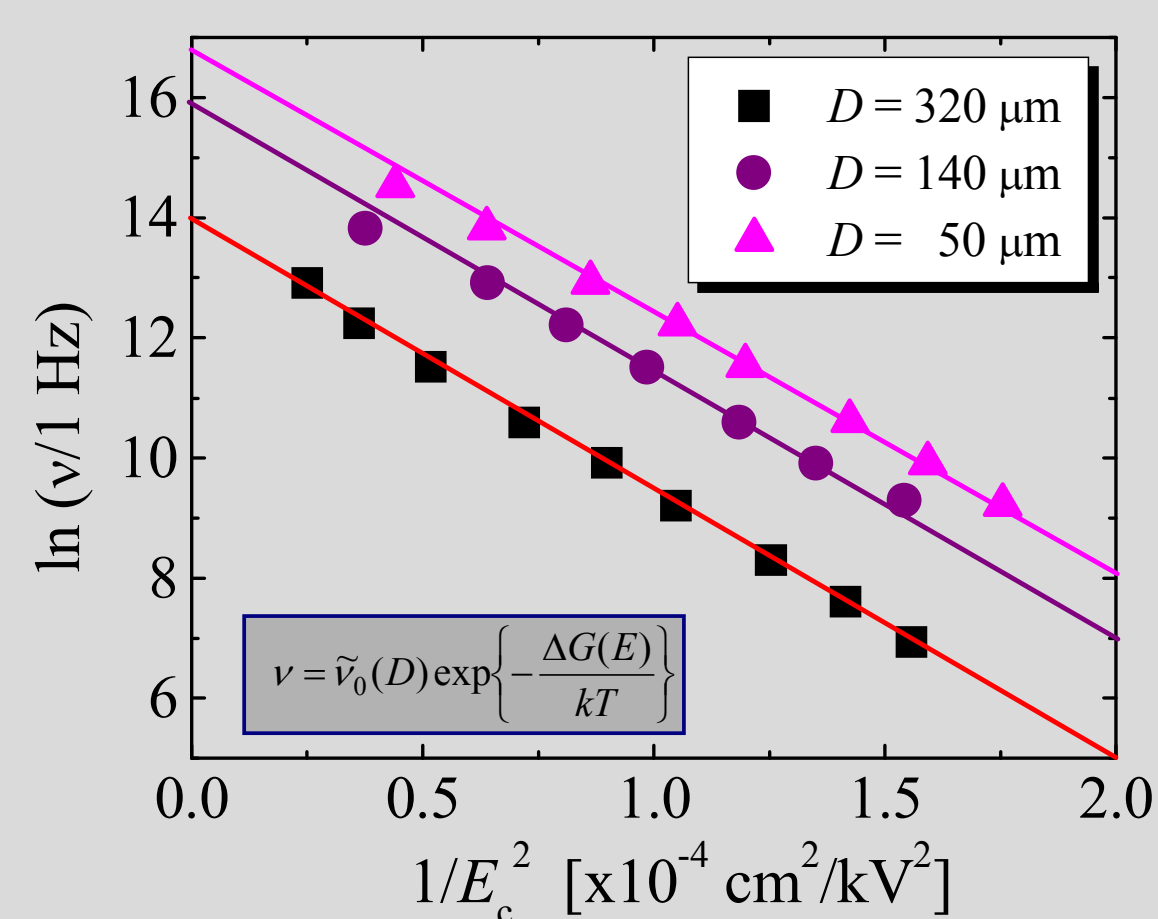
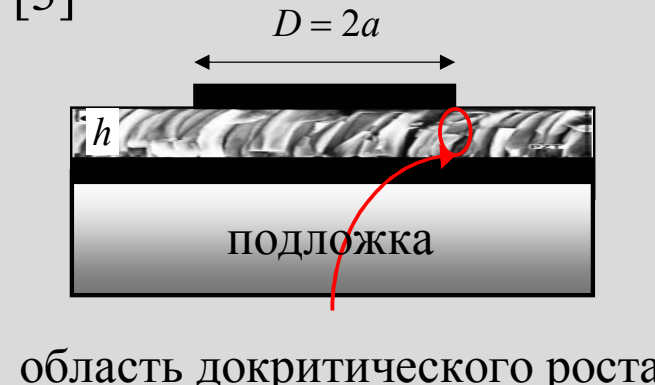


Рис.2. Зависимость предельной частоты от диаметра D верхнего электрода в поликристаллической пленке $\text{Pb}(\text{Zr}_{40}\text{Ti}_{60})\text{O}_3$ [4]

5. Теория размерных эффектов

- Зависимость предельной частоты $\nu_0(D)$ обусловлена вкладом процессов докритического роста зародышей переполаризации у краев электродов [3]



область докритического роста

- Скорость переключения поляризации с учетом вклада процессов докритического роста

$$\dot{P} = 4P^s \nu_0 \exp\left\{-\frac{\Delta G(E)}{kT}\right\} + \dot{P}^a$$

- Решение основного уравнения для скорости переключения поляризации в случае биполярных импульсов электрического поля E [3]

$$\dot{P} = 2P^s f(D) \delta(t) + 4P^s \nu_0 \exp\left\{-\frac{\Delta G(E)}{kT}\right\}$$

приводит к перенормировке предельной частоты:

$$\tilde{\nu}_0(D) = \frac{\nu_0}{1 - f(D)}$$

- Изменение предельной частоты определяется объемной долей материала $f(D) < 1$, в которой основной вклад в переключение поляризации дают процессы докритического роста зародышей

6. Энергия активации (теория)

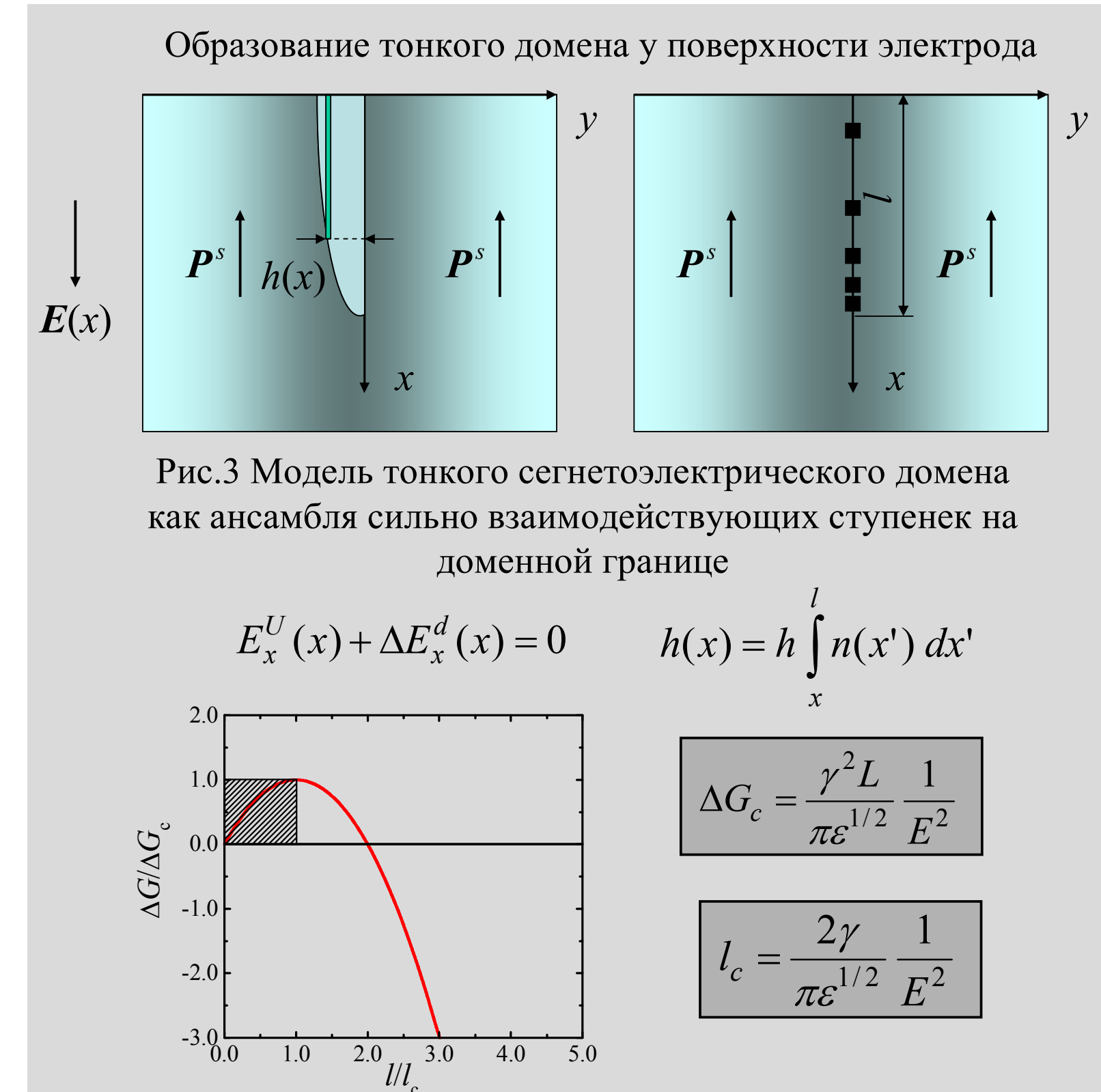


Рис.3 Модель тонкого сегнетоэлектрического домена как ансамбля сильно взаимодействующих ступенек на доменной границе

Рис.4. В однородном электрическом поле (вдали от края электрода) равновесный домен является неустойчивым

Энергия активации зародыша переполаризации зависит от размера L поверхностного источника

7. Механизм докритического роста зародышей переполаризации

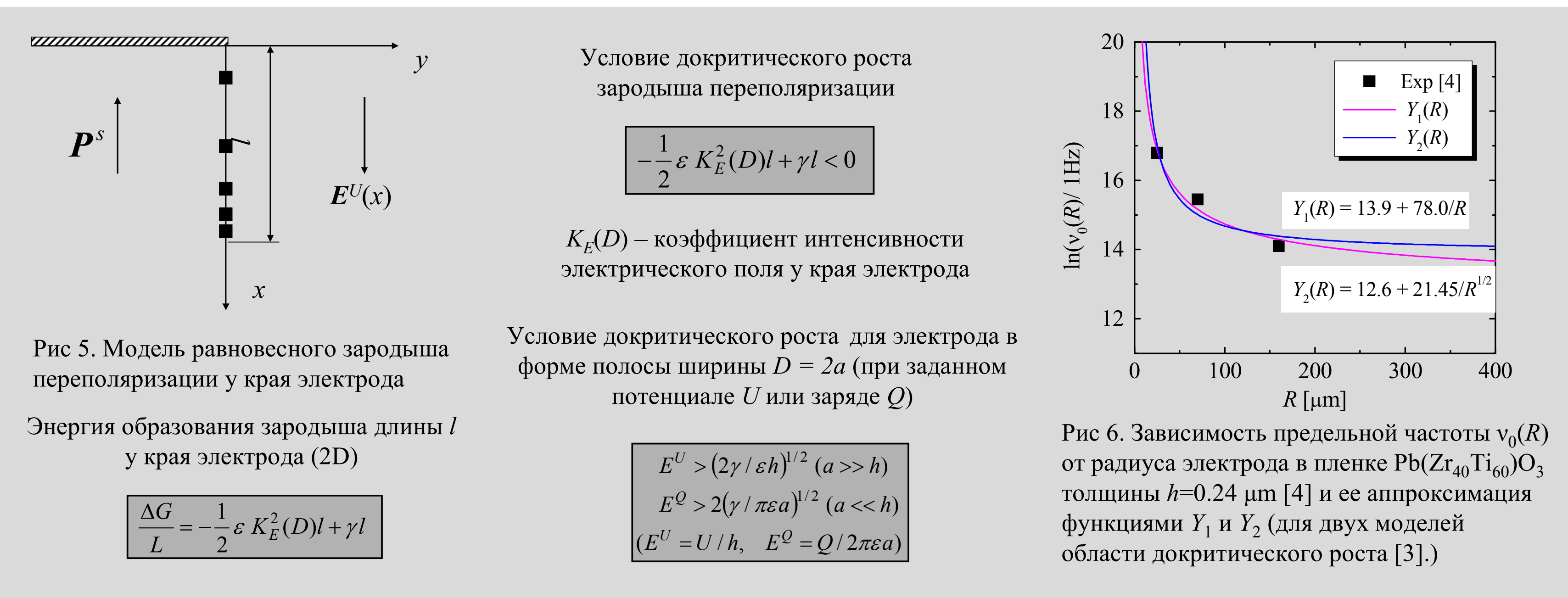


Рис 5. Модель равновесного зародыша переполаризации у края электрода

Энергия образования зародыша длины l у края электрода (2D)

$$\frac{\Delta G}{L} = -\frac{1}{2} \epsilon K_E^2(D) l + \gamma l$$

Условие докритического роста зародыша переполаризации

$$-\frac{1}{2} \epsilon K_E^2(D) l + \gamma l < 0$$

$K_E(D)$ – коэффициент интенсивности электрического поля у края электрода

Условие докритического роста для электрода в форме полосы ширины $D = 2a$ (при заданном потенциале U или заряде Q)

$$E^U > (2\gamma / \epsilon h)^{1/2} \quad (a \gg h)$$
$$E^Q > 2(\gamma / \pi \epsilon a)^{1/2} \quad (a \ll h)$$
$$(E^U = U / h, \quad E^Q = Q / 2\pi \epsilon a)$$

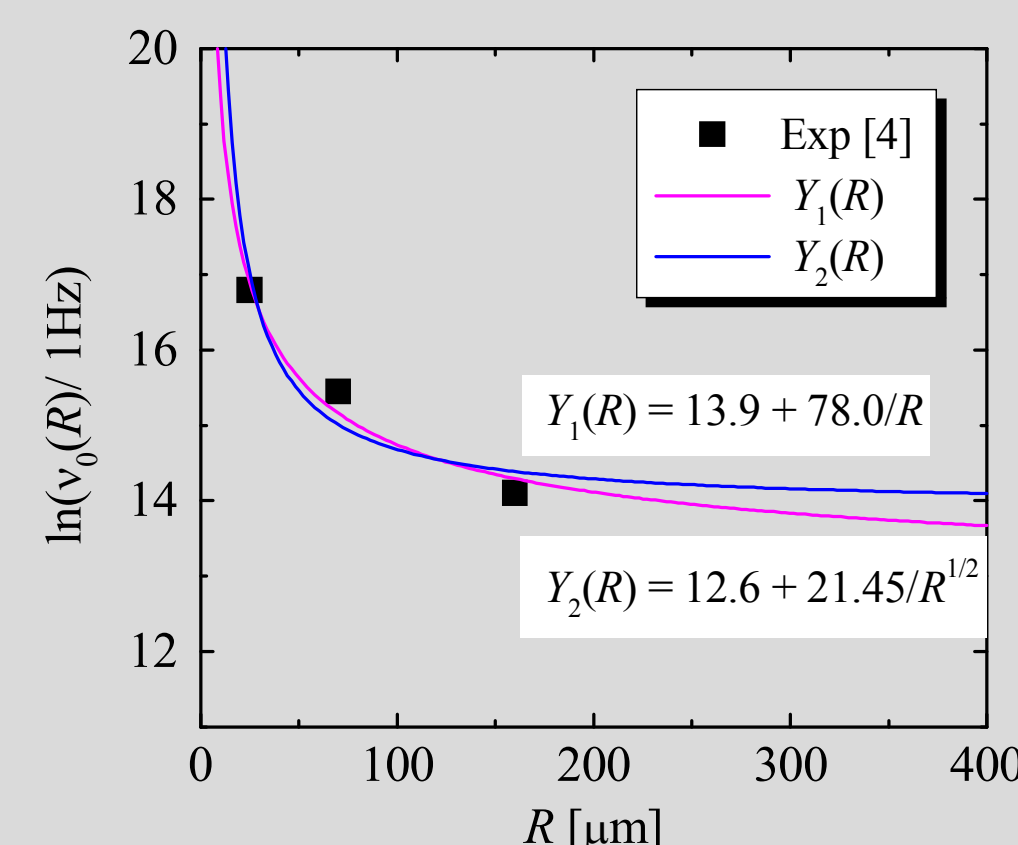


Рис 6. Зависимость предельной частоты $\nu_0(R)$ от радиуса электрода в пленке $\text{Pb}(\text{Zr}_{40}\text{Ti}_{60})\text{O}_3$ толщины $h=0.24 \text{ }\mu\text{m}$ [4] и ее аппроксимация функциями Y_1 и Y_2 (для двух моделей области докритического роста [3].)

8. Результаты и выводы

Предложенный механизм устойчивого докритического роста зародышей переполаризации в поликристаллических пленках позволяет прояснить природу размерных эффектов, проиллюстрированных на Рис.2. В его основе лежит существование физической величины E_g (геометрического коэрцитивного поля), определяющей возможность докритического роста зародышей. Например, для двумерного электрода в форме тонкой полосы ширины a , она определяется выражением $E_g = 2(\gamma / \pi \epsilon a)^{1/2}$, где γ – поверхностная энергия доменной стенки. При выполнении условия $E < E_g$ (E – однородное поле вдали от края электрода) подрастание зародышей до критического размера невозможно.

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН.

9. Литература

- А.Ю. Белов, Закон " $1/E^2$ " — решение нерешенной задачи физики сегнетоэлектриков // Письма в ЖЭТФ, т. 108, вып. 4, с. 225-229, 2018.
- X. Du, I. W. Chen, Frequency Spectra of Fatigue of PZT and other Ferroelectric Thin Films // Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol. 493, p. 311-316, 1998.
- A.Yu. Belov, Fast polarization reversal in polycrystalline ferroelectric thin films: the origin of size effects // Ferroelectrics, Vol. 544, Issue 1, p. 27-32, 2019.
- S.M. Nam, Y.B. Kil, S. Wada, T. Tsurumi, High frequency measurements of P-E hysteresis curves of PZT thin films // Ferroelectrics, Vol. 259, Issue 1, p. 43-48, 2001.

