

На правах рукописи



БАТУРИН Иван Сергеевич

**ОСОБЕННОСТИ КИНЕТИКИ ДОМЕННОЙ СТРУКТУРЫ
ПРИ ЦИКЛИЧЕСКОМ ПЕРЕКЛЮЧЕНИИ ПОЛЯРИЗАЦИИ
В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКАХ**

01.04.07. – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2006

Работа выполнена на кафедре компьютерной физики и в отделе оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ физики и прикладной математики Уральского государственного университета им. А.М. Горького.

Научный руководитель – доктор физико-математических наук,
профессор Шур Владимир Яковлевич

Официальные оппоненты – доктор физико-математических наук
Корженевский Александр Леонидович

доктор физико-математических наук
Важенин Владимир Александрович

Ведущая организация – Московский государственный
институт радиотехники, электроники
и автоматики (технический университет)

Защита состоится 5 июня 2006 г. в 15 часов на заседании диссертационного совета Д 212.286.01 по защите диссертаций на соискание ученой степени доктора физико-математических наук в Уральском государственном университете им. А.М. Горького (620083, г. Екатеринбург, К-83, пр. Ленина 51, комн. 248).

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке Уральского государственного университета им. А.М. Горького.

Автореферат разослан 5 мая 2006 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 212.286.01,
доктор физико-математических наук,
старший научный сотрудник



Н.В. Кудреватых

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Существование спонтанной поляризации, направление которой можно изменять при воздействии внешнего электрического поля, является отличительным свойством сегнетоэлектриков. Процесс переключения поляризации происходит за счет образования и роста индуцированных полей доменов и может быть рассмотрен как пример фазового превращения при фазовом переходе первого рода. Исследование эволюции доменной структуры представляет интерес для изучения общих закономерностей кинетики фазовых превращений.

В сегнетоэлектриках (в отличие от ферромагнетиков) при формировании доменной структуры принципиальную роль играют процессы экранирования деполяризующего поля, создаваемого связанными зарядами. При переключении поляризации медленные процессы объемного экранирования приводят к различным эффектам памяти, обусловленным формированием неоднородного макроскопического внутреннего поля (поля смещения). Исследование влияния процессов экранирования на кинетику доменов представляет важную фундаментальную проблему физики сегнетоэлектриков.

Интерес к исследованию особенностей кинетики доменной структуры при циклическом переключении значительно возрос за последние годы, главным образом, благодаря созданию элементов энергонезависимой памяти на основе сегнетоэлектрических тонких пленок. Препградой на пути к их широкому применению является эффект усталости – уменьшение переключаемого заряда при многократном переключении. Опубликовано множество работ, посвященных решению этой проблемы, однако до их пор нет единого мнения относительно природы эффекта усталости.

Таким образом, выявление общих закономерностей кинетики доменной структуры сегнетоэлектриков при циклическом переключении актуально как с практической, так и с фундаментальной точек зрения.

Целью работы являлось развитие подхода, позволяющего с единой точки зрения объяснить различные эффекты, возникающие при циклическом переключении сегнетоэлектриков и его экспериментальное подтверждение. Для реализации поставленной цели были сформулированы следующие основные задачи:

1. Провести компьютерное моделирование кинетики доменной структуры при циклическом переключении с учетом запаздывания объемного экранирования для: (1) одномерного движения одиночной плоской доменной стенки и (2) двумерной кинетики доменной структуры.
2. Экспериментально исследовать особенности циклического движения одиночной плоской доменной стенки при многократном переключении в монокристаллах молибдата гадолия, как номинально однородных, так и с искусственными неполярными включениями (центрами пиннинга).

3. Разработать метод анализа тока переключения, позволяющий определить параметры функции распределения внутреннего поля смещения и их изменение в процессе циклического переключения.
4. Экспериментально исследовать влияние циклического переключения на форму тока переключения в объемной керамике и тонких пленках ЦТС.
5. Экспериментально исследовать изменение пространственного распределения локальных сегнетоэлектрических и пьезоэлектрических характеристик в процессе усталости в объемной ЦТС керамике.
6. Провести последовательное сопоставление полученных экспериментальных данных с результатами компьютерного моделирования для подтверждения эффективности применения предложенного подхода к анализу кинетики доменной структуры при циклическом переключении.

Объекты исследования. Для экспериментального исследования циклического переключения были выбраны монокристаллы молибдата гадолиния, тонкие пленки и объемная керамика цирконата-титаната свинца.

Использование монокристаллов несобственного сегнетоэлектрика-сегнетоэластика молибдата гадолиния $Gd_2(MoO_4)_3$ (ГМО) позволило исследовать простейший вариант циклического переключения за счет поступательного перемещения одиночной плоской доменной стенки. Кристаллы ГМО с центрами пининга (искусственными неполярными включениями), использованы для изучения кинетики локального внутреннего поля смещения.

Для исследования циклического переключения в поликристаллических сегнетоэлектриках использовались высококачественные образцы объемной керамики и тонких пленок цирконата-титаната свинца $Pb(Zr,Ti)O_3$ (ЦТС), являющегося самым популярным сегнетоэлектриком, применяющимся в пьезотехнике и микроэлектронике.

Научная новизна работы заключается в следующем:

- Впервые показано, что изменение кинетики доменной структуры при циклическом переключении является самосогласованным процессом, обусловленным изменением пространственного распределения внутреннего поля смещения.
- Методами компьютерного моделирования и экспериментами в монокристаллах молибдата гадолиния показано, что циклическое движение одиночной плоской доменной стенки приводит к существенному увеличению амплитуды движения (эффект формовки) и качественному изменению формы тока переключения, что обусловлено самосогласованным неоднородным уменьшением внутреннего поля смещения.
- Впервые установлено, что эффекты формовки и усталости при циклическом переключении являются стадиями единого процесса, связанного с запаздыванием объемного экранирования остаточного деполяри-

зующего поля. Выявлено изменение геометрии доменной структуры при смене стадий.

- Впервые процесс усталости рассмотрен как результат роста кинетически замороженных доменов при самосогласованном изменении пространственного распределения внутреннего поля смещения.
- Измерениями локальных петель деформации и малосигнального пьезокоэффициента подтверждено, что в результате длительного циклического переключения формируется пространственно неоднородное внутреннее поле смещения, играющее ключевую роль в образовании замороженных доменов.
- Разработан оригинальный метод математического анализа тока переключения, позволяющий определять параметры функции распределения внутреннего поля смещения.

Научная ценность работы определяется тем, что предложенный подход, основанный на учете самосогласованного изменения внутреннего поля смещения за счет запаздывания объемного экранирования, позволяет с единой точки зрения объяснить широкий круг явлений, характерных для циклического переключения поляризации в сегнетоэлектриках.

Практическая значимость работы определяется возможностью использования полученных результатов для улучшения основных рабочих характеристик устройств памяти на тонких сегнетоэлектрических пленках. Объяснение эффектов формовки и усталости в рамках единого подхода открывает возможности для ускоренного тестирования сегнетоэлектрических элементов памяти на устойчивость к циклическому переключению.

Основные положения и результаты, выносимые на защиту:

1. Предложенный подход к объяснению особенностей кинетики доменной структуры при циклическом переключении, основанный на ключевой роли запаздывания объемного экранирования остаточного деполяризующего поля, приводящего к самосогласованному изменению пространственного распределения внутреннего поля смещения.
2. Закономерности изменения пространственного распределения внутреннего поля смещения при учете объемного экранирования остаточного деполяризующего поля в процессе циклического переключения, выявленные методами компьютерного моделирования.
3. Самосогласованный характер уменьшения внутреннего поля смещения, приводящий к увеличению амплитуды смещения одиночной плоской доменной стенки и изменению формы тока переключения при циклическом переключении, выявленный методами компьютерного моделирования и экспериментально в монокристаллах молибдата гадолия.

4. Совпадение экспериментально измеренных энергий активации для эффектов формовки и старения в монокристаллах молибдата гадолия.
5. Утверждение о том, что эффекты формовки и усталости являются стадиями единого процесса, и переход от формовки к усталости сопровождается качественным изменением геометрии доменной структуры.
6. Метод анализа тока переключения, позволяющий количественно характеризовать пространственное распределение внутреннего поля смещения, и демонстрация того, что форма тока при квазистатическом переключении является наиболее чувствительной характеристикой при исследовании эффектов циклического переключения.
7. Экспериментальное подтверждение возникновения пространственно неоднородного внутреннего поля смещения в результате длительного циклического переключения, полученное при измерении локальных сегнетоэлектрических и пьезоэлектрических свойств керамики.

Апробация работы. Основные результаты диссертации были представлены на 34 Всероссийских и Международных конференциях, в том числе на 12th, 13th, 15th, 16th, 17th Int. Symp. on Integrated Ferroelectrics (2000, Aachen, Germany; 2001, 2003, Colorado Springs, USA; 2004, Gyeongju, Korea; 2005, Shanghai, China), 6th, 7th, 8th Int. Symp. on Ferroic Domains and Micro- to Nanostructures (2000, Nanjing, China; 2002, Giens, France; 2004, Tsukuba, Japan), 12th IEEE Int. Symp. on the Application of Ferroelectrics (2000, Honolulu, Hawaii), MRS Meetings (2000, 2001, 2002, Boston, USA), 10th, 11th Int. Meetings on Ferroelectricity (2001, Madrid, Spain; 2005, Foz do Iguacu-Puerto Iguazu, Brazil-Argentina), школе-семинаре Актуальные проблемы неорганического материаловедения (2001, Дубна), 3^{em} Всероссийском семинаре и 5^{ой} Международной конференции Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении (2000, 2005, Воронеж), SPIE's 8th Int. Symp. on Smart Structures and Materials (2001, Newport Beach, USA), 1st Int. Meeting on Ferroelectric Random Access Memories (2001, Gotemba, Japan), Int. Joint Conf. on the Applications of Ferroelectrics (2002, Nara, Japan), 6th European Conf. on Applications of Polar Dielectrics (2002, Aveiro, Portugal), 16^{ой} и 17^{ой} Всероссийских конференциях по физике сегнетоэлектриков (2002, Тверь; 2005, Пенза), 7th Russia/CIS/Baltic/Japan Symp. on Ferroelectricity (2002, St.-Petersburg), семинаре Процессы переключения в сегнетоэлектриках и сегнетоэластиках (2002, Тверь), Scanning Probe Microscopy Int. Workshops (2003, 2004, Nizhny Novgorod), Nanophysics and Nanoelectronics International Symp. (2005, Nizhny Novgorod), Ferroelectric Thin-Films 2002 and Second Open French-Ukrainian Meeting on Ferroelectricity (2002, Dinard, France), 4th Int. Seminar on Ferroelastic Physics (2003, Voronezh), 10th European Meeting on Ferroelectricity (2003, Cambridge, UK), Int. Conf. on Electroceramics and Their Applications (2004, Cherbourg, France), Int. Symp. "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics" (2005, Ekaterinburg, Russia).

Публикации и личный вклад автора. Основные результаты исследований были опубликованы в 82 печатных работах, из них 15 статей в реферируемых печатных изданиях. Диссертационная работа была выполнена на кафедре компьютерной физики и в лаборатории сегнетоэлектриков отдела оптоэлектроники и полупроводниковой техники НИИ ФПМ Уральского государственного университета им. А.М. Горького в рамках исследований, проводимых при поддержке грантов РФФИ (01-02-17443, 03-02-06096, 03-03-29, 04-02-16770, и 04-02-96009-р2004урал), РФФИ-ННИО (гр.04-02-04007, 05-02-19468), Министерства образования и науки РФ (А04-2.9-242, А 03-2.9-32, УР.06.01.028, УР.06.01.031 программы «Университеты России», 48859, 49130 программы «Развитие научного потенциала высшей школы»), ИНТАС (гр.03-51-6562), CRDF BRNE (гр. ЕК-005-ХI), а также стипендий фонда "Династия", Президента РФ и Губернатора Свердловской области.

Представленные в работе результаты исследований циклического переключения тонких сегнетоэлектрических пленок представлены Советом РАН по физике сегнетоэлектриков и диэлектриков для включения в список важнейших достижений РАН в 2002 г. Стеновые доклады по теме работы были признаны лучшими на: 6th Int. Symp. on Ferroic Domains and Micro- to Nanostructures, 2000, Nanjing, China; 3^{em} Всероссийском семинаре "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении", 2000, Воронеж; 4th Int. Seminar on Ferroelastic Physics, Voronezh, 2003.

Все основные результаты работы были получены лично автором. Выбор направления исследований, обсуждение результатов и формулировка задач проводились совместно с научным руководителем профессором В.Я. Шуром и Е.Л. Румянцевым. Экспериментальные измерения проводились совместно с Д.К. Кузнецовым, Е.И. Шишкиным, Е.В. Николаевой, Т. Utchig и Z. Young (Технический университет г. Дармштадта, Германия).

Все расчеты выполнены автором самостоятельно. Автором работы написано все оригинальное программное обеспечение для моделирования и автоматизации эксперимента, за исключением написанной Е.И. Шишкиным программы по моделированию циклического движения плоской доменной стенки. Соавторы публикаций D. Lupascu (Технический университет г. Дармштадта, Германия), R. Waser, T Schneller (Рейн-Вестфальский технический университет, г. Аахен, Германия) предоставили для исследований образцы объемной керамики и тонких пленок цирконата-титаната свинца. В.П. Куминов подготовил образцы молибдата гадолия с одиночной плоской доменной стенки. Оборудование для проведения экспериментов по переключению объемной керамики было предоставлено профессором D. Lupascu.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, 6 глав, заключения, и списка цитируемой литературы. Общий объем работы составляет 188 страниц, включая 85 рисунков, 1 таблицу и библиографию из 195 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы основные цели и задачи работы, определен объект исследований, показана научная новизна и практическая значимость полученных результатов. Кратко изложены основные научные положения, выносимые на защиту. Приведены сведения об апробации работы, личном вкладе автора, структуре и объеме диссертации.

Первая глава является обзорной. В ней рассмотрены основные модельные представления о кинетике доменной структуры сегнетоэлектриков при приложении внешнего электрического поля. Представлен обзор основных методов исследования процесса переключения поляризации: способы визуализации доменной структуры, и измерения локальных и интегральных характеристик. Рассмотрены эффекты экранирования деполяризующего поля. Особое внимание уделено обзору работ, посвященных исследованиям кинетики внутреннего поля смещения, и ее влиянию на процесс переключения. Приводится обзор экспериментальных результатов исследования циклического переключения в различных сегнетоэлектриках. Рассмотрены основные физические свойства исследуемых материалов.

Принято считать, что переключение поляризации происходит за счет термоактивационного зародышеобразования, движущей силой которого является макроскопическое электрическое поле, усредненное по объему зародыша [1]. Это поле содержит вклады от внешнего приложенного поля и внутреннего поля, образующегося при медленном объемном экранировании остаточного деполяризующего поля. Причиной существования остаточного деполяризующего поля является неполное внешнее экранирование, вызванное наличием диэлектрического слоя на поверхности сегнетоэлектрик-электрод [2]. Внутреннее поле смещения стабилизирует существующую доменную структуру и является причиной эффектов старения (aging) и импринта (imprint), проявляющихся в сдвиге или расщеплении петли гистерезиса [3].

Основным методом исследования сегнетоэлектрических свойств является измерение петли диэлектрического гистерезиса (полевой зависимости переключаемого заряда) в медленно меняющемся поле. Анализ формы петель гистерезиса, базируется на подходе Прейзаха, предложенном для ферромагнетиков [4], и впервые использованном для описания сегнетоэлектриков А.В. Туриком [5]. Знание двумерной функции распределения Прейзаха (по коэрцитивному и внутреннему полю) позволяет рассчитывать как полные, так и частные петли гистерезиса. Экспериментальные методы определения этой функции основаны на измерении и математическом анализе серии частных петель, что затрудняет использование этих методов при изучении эффектов циклического переключения. Не уделяется должного внимания анализу тока переключения в растущем поле, который позволяет характеризовать пространственную неоднородность переключения по результатам однократного измерения.

Работы по исследованию циклического переключения в основном носят прикладной характер и посвящены эффекту *усталости* (fatigue) – уменьшению переключаемого заряда) в объемной керамике [6] и тонких пленках [7]. Они посвящены разработке новых и усовершенствованию уже известных методов изготовления структур с тонкими сегнетоэлектрическими пленками для улучшения их устойчивости к эффекту усталости. Показано, что эффект усталости приводит к изменению доменной структуры (появлению "замороженных" доменов) [8,9], однако кинетика доменной структуры в процессе циклического переключения практически не изучена.

Предложено несколько феноменологических моделей для объяснения эффекта усталости: (1) пининг доменных стенок в объеме или подавление зародышеобразования вблизи поверхности сегнетоэлектрик-электрод [10], (2) увеличение толщины диэлектрического слоя [11], (3) образование микротрещин и разрушение электродов [12]. В качестве микроскопических механизмов пининга доменных стенок и подавления зародышеобразования рассматриваются: перераспределение заряженных дефектов (например, вакансий кислорода) [13], миграция свободных носителей заряда [14] и инжекция носителей через диэлектрический зазор [7]. Все эти механизмы имеют электрическую природу и относятся к механизмам внутреннего экранирования. Следует отметить, что в данной работе не рассматривались модели (2) и (3), имеющие необратимый характер.

Для обратимого эффекта усталости характерны менее исследованные эффекты: *восстановление* (rejuvenation) исходных характеристик при увеличении амплитуды внешнего поля [15,16] и *формовки* (wake-up) [17] – увеличения переключаемого заряда в начале циклического переключения.

Вторая глава является методической. Приведено описание экспериментальных установок, использованных при исследовании процессов циклического переключения в монокристаллах, объемной керамике и тонких пленках. Подробно описаны методики эксперимента, а также характеристики исследуемых образцов и способы их получения.

Циклическое смещение одиночной плоской доменной стенки (ПДС) исследовано в образцах несобственного сегнетоэлектрика-сегнетоэластика молибдата гадолия $Gd_2(MoO_4)_3$ (ГМО) с искусственно созданной ПДС, движение которой ограничивалось с помощью специальной конфигурации прозрачных оксидных электродов. Исследовались как номинально однородные кристаллы, так и образцы с искусственными объемными дефектами (неполярными включениями), играющими роль центров пининга ПДС. Для исследования использовались прямая визуализация доменной структуры в поляризационном оптическом микроскопе с последующим анализом последовательных изображений и одновременное измерение тока переключения.

Циклическое переключение исследовалось также в объемной керамике цирконата-титаната свинца (ЦТС) коммерческого состава $Pb_{0.99}[Zr_{0.45}Ti_{0.47}(Ni_{0.33}Sb_{0.67})_{0.08}]O_3$ (PI Ceramics GmbH, Германия) с электрода-

ми из отожженной Ag пасты. Исследованные образцы имели коэрцитивное поле около 1 кВ/мм. Циклическое переключение проводилось в переменном электрическом поле на частоте 50 Гц. Для одновременного измерения переключаемого заряда (поляризации) $P(E)$ и пьезоэлектрической деформации $S(E)$ к образцу прикладывались импульсы поля треугольной формы длительностью 25 с до и после циклического переключения. Измерения пространственного распределения малосигнального пьезоэлектрического коэффициента d_{33} проводилось в квазистатическом режиме при приложении к образцу суперпозиции постоянного поля (от 0 до ± 2 кВ/мм) и малого переменного поля (1 В/мм, 1 кГц). Использование синхронного детектора позволило выделить переменную составляющую смещения и измерять петли гистерезиса малосигнального пьезоэлектрического коэффициента $d_{33}(E)$. Локализация измерений составляла 0.1 – 0.5 мм. Установка была полностью автоматизирована с использованием программы, разработанной в среде LabVIEW.

Тонкие пленки ЦТС состава $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$, $x = 0.2 - 0.45$, использованные для исследования циклического переключения были изготовлены методами золь-гель с Pt электродами (Institute of Materials in Electrical Engineering, RWTH Aachen, г. Аахен, Германия) и химического осаждения из газовой фазы с Pt и Ir электродами (Texas Instruments, США). Площадь верхних электродов составляла от $2 \cdot 10^{-3}$ до 1 мм^2 . Циклическое переключение производилось в импульсах напряжения прямоугольной формы (3 – 15 В, $10 - 10^6$ Гц). Для измерения тока переключения $j(t)$ до и после циклического переключения в импульсах напряжения треугольной формы (3 – 15 В, 1 – 100 Гц) использовалась "схема виртуальной земли". Реверсивная диэлектрическая проницаемость измерялась с помощью суперпозиции переменного напряжения и измерительного импульса с регистрацией амплитуды и фазы диэлектрического отклика на частоте модуляции с помощью синхронного детектора.

В третьей главе представлены результаты экспериментальных исследований и компьютерного моделирования циклического смещения одиночной плоской доменной стенки в монокристаллах ГМО.

Проведено компьютерное моделирование смещения одиночной ПДС с учетом запаздывания объемного экранирования. На основании имеющихся экспериментальных данных [18], использовалась линейная зависимость скорости движения ПДС в ГМО от локального электрического поля E_{loc} :

$$v = \mu(E_{loc} - E_{th}), \text{ при } E_{loc} > E_{th}, \quad (1)$$

$$E_{loc} = E_{ex} + E_b, \quad (2)$$

где E_{ex} – внешнее приложенное поле, E_b – внутреннее поле смещения, образующееся в результате объемного экранирования, а E_{th} – пороговое поле, μ – подвижность стенки. Зависимость E_b от времени определялась релаксационным уравнением с характерным временем τ

$$dE_b / dt = -[E_b - (-E_{rd})] / \tau, \quad (3)$$

где E_{rd} – остаточное деполяризующее поле.

Начальное распределение задавалось в виде $E_b = \pm E_{b0}$, где знак определяется направлением спонтанной поляризации. Для учета неполного экранирования величина E_{b0} выбиралась в диапазоне от E_{rd} (полное экранирование начального состояния) до 0 (отсутствие объемного экранирования).

Изменение пространственного распределения внутреннего поля при циклическом движении стенки (рис. 1а) стремится скомпенсировать среднее за цикл локальное значение E_{rd} . При полном экранировании начального состояния наблюдается эффект формовки – увеличение переключаемого заряда Q_s (амплитуды смещения стенки) (рис. 1б) за счет уменьшения E_b , сопровождаемый изменением формы тока переключения (рис. 1в). С увеличением количества циклов два пика в токе переключения, соответствующие движению стенки в областях с разным знаком внутреннего поля (по разные стороны от начального положения стенки), размываются и сближаются. Расстояние между двумя пиками тока соответствует скачку поля смещения ΔE_b в окрестности начального положения, величина которого уменьшается при циклическом движении стенки (рис. 1б). Зависимости Q_s и ΔE_b от N хорошо аппроксимируются выражениями вида

$$Q_s(N) = Q_s(0) + \Delta Q_s \exp(-N/N_w), \quad \Delta E_b(N) = \Delta E_b(0) \exp(-N/N_w), \quad (4)$$

где N_w – характерное количество циклов, описывающее скорость процесса формовки. Показано, что N_w прямо пропорционально τ .

В результате многократного переключения при $N \gg N_w$ устанавливается равновесное распределение $E_b(x)$ и насыщение Q_s . Следует отметить, что установившиеся значение переключаемого заряда, форма тока переключения и пространственное распределение E_b не зависят от начального распределения, что демонстрирует самосогласованный характер модели.

При движении ПДС ток переключения $j(t)$ прямо пропорционален скорости движения стенки, определяемой выражениями (1) и (2), что позволяет рассчитать $E_b(x)$ из $j(t)$, используя следующую систему уравнений:

$$\begin{cases} E_b[x(t)] = \frac{j(t)}{2P_s w \mu} + E_{th} - E_{ex}(t) \\ \Delta x(t) = \frac{1}{2P_s w} \int_0^t j(t') dt' \end{cases}, \quad (5)$$

где w – длина стенки (ширина образца), P_s – спонтанная поляризация, $\Delta x(t)$ – смещение стенки из начального положения к моменту времени t .

Для проверки выводов модели было проведено экспериментальное исследование эффекта формовки при циклическом смещении ПДС в номинально однородных монокристаллах ГМО.

Показано, что существенное увеличение переключаемого заряда (рис. 2а) сопровождается расширением и сближением двух пиков тока переключения (рис. 2б), что соответствует результатам компьютерного моделирования (рис. 1в). В использованных экспериментальных условиях не удавалось достичь полного слияния пиков и насыщения Q_s .

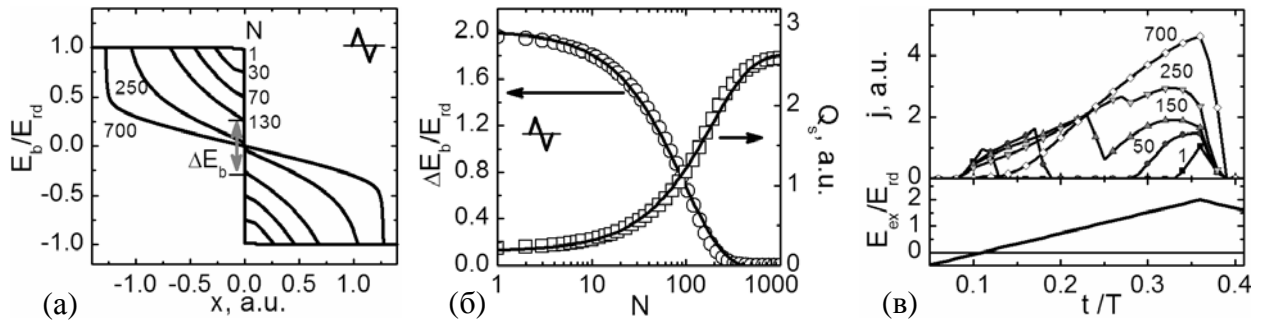


Рисунок 1. Циклическое смещение ПДС (а) эволюция $E_b(x)$ для полного начального экранирования; (б) изменение Q_s и ΔE_b вблизи начального положения стенки, аппроксимированные выражениями (4); (в) изменение формы тока переключения. Результаты компьютерного моделирования.

Экспериментально наблюдаемая зависимость Q_s и ΔE_b от количества циклов описывается выражениями

$$\begin{aligned} Q_s(N) &= Q_s(0) + \Delta Q_{s1} \exp(-N/N_{w1}) + \Delta Q_{s2} \exp(-N/N_{w2}), \\ \Delta E_b(N) &= \Delta E_b(0) + \Delta E_{b1} \exp(-N/N_{w1}) + \Delta E_{b2} \exp(-N/N_{w2}), \end{aligned} \quad (6)$$

с $N_{w1} = 30$, $N_{w2} = 1500$ (рис. 2а и рис. 3а). Такое поведение может быть получено при моделировании при учете конкуренции двух различных механизмов экранирования.

С помощью системы уравнений (5) из измерений тока определено изменение $E_b(x)$ в процессе циклического движения доменной стенки (рис. 3б), которое соответствует результатам, полученным с помощью компьютерного моделирования (рис. 1а).

Исследовано скачкообразное движение ПДС в образцах ГМО с искусственными объемными неполярными включениями, играющими роль центров пиннинга. Показано, что величина внешнего поля $E_{rel,b}$, которое соответствует началу движения стенки к исходному положению после остановки на дефекте (поле старта) определяется локальной величиной E_b и уменьшается при длительном циклическом переключении (рис. 4а).

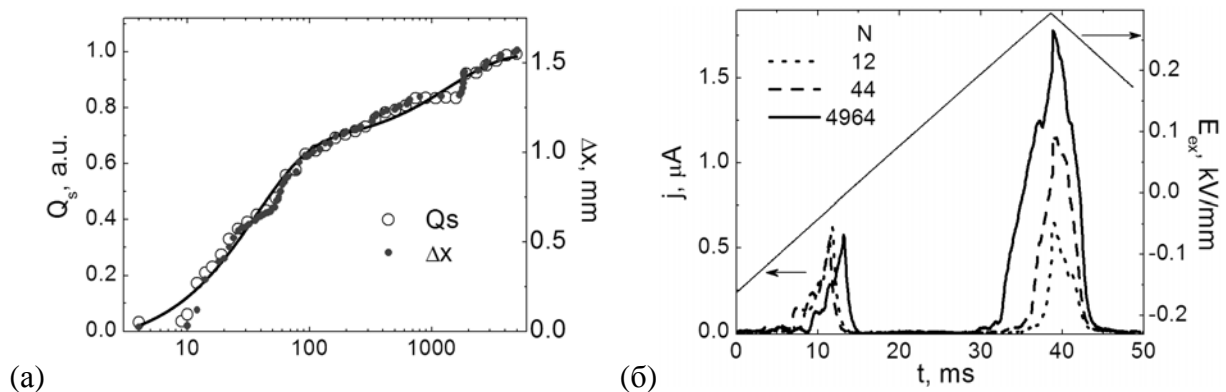


Рисунок 2. Эффект формовки при циклическом смещении ПДС под действием импульсов поля треугольной формы в ГМО: (а) увеличение Q_s и максимального смещения стенки Δx ; (б) эволюция формы тока переключения.

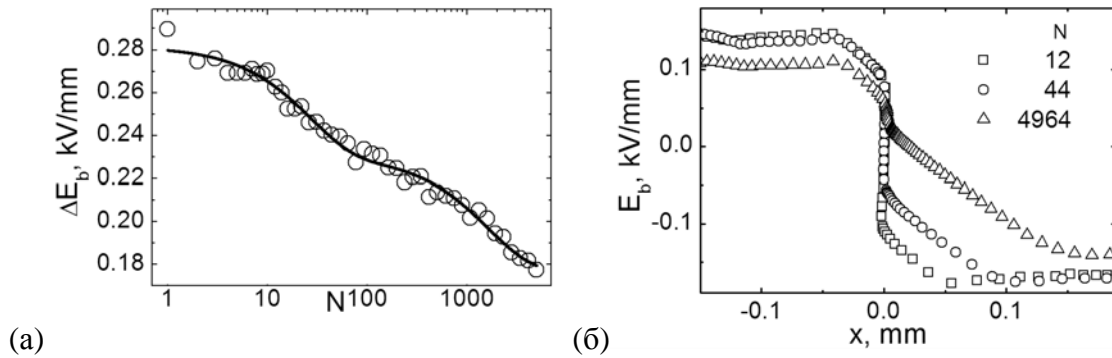


Рисунок 3. Эффект формовки при циклическом смещении ПДС под действием импульсов поля треугольной формы в ГМО: (а) уменьшение ΔE_b ; (б) эволюция пространственного распределения E_b , рассчитанного с помощью выражения (5).

Выдерживание образца в состоянии покоя ("старение") приводит к обратному эффекту – увеличению поля старта (рис. 4б). Известно, что причиной старения является объемное экранирование, которое стабилизирует статическую доменную структуру [3,19]. Исследования формовки и старения при различных температурах позволили показать, что для обоих эффектов справедлив активационный закон изменения поля старта с одинаковой энергией активации обоих процессов 0.70 ± 0.05 эВ, что свидетельствует об их общей природе.

Четвертая глава посвящена обобщению модели циклического переключения, предложенной в главе 3 на случай кинетики доменной структуры в тонкой пластине одноосного сегнетоэлектрика, вырезанной перпендикулярно полярной оси при условии пренебрежения временем сквозного прорастания. В этой двумерной модели образование и рост доменов при переключении под действием биполярных импульсов внешнего поля прямоугольной формы рассмотрены как результат 1D и 2D зародышеобразования. Вероятность зародышеобразования определяется локальным значением пространственно неоднородного и изменяющегося при циклическом переключении макроскопического электрического поля. Рассматривается экспериментальная ситуация, при которой длительности импульса поля много меньше постоянной времени объемного экранирования.

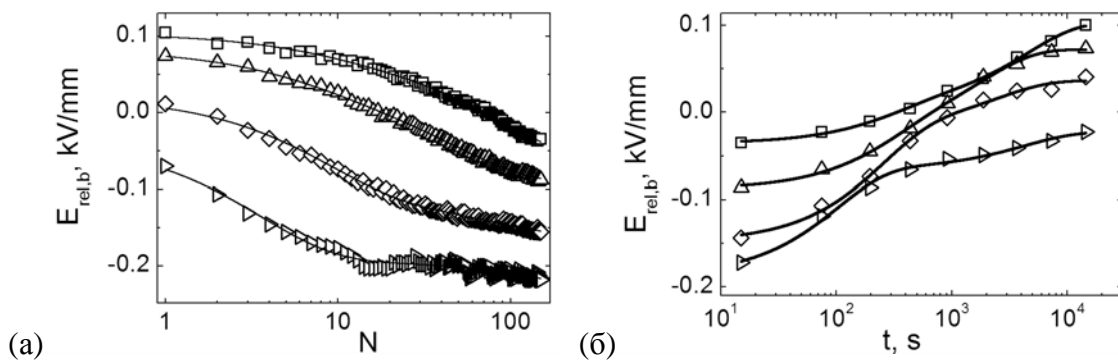


Рисунок 4. Изменение поля старта ПДС с дефекта при обратном переключении в ГМО: (а) формовка; (б) старение. Аппроксимация экспоненциальной зависимостью вида (4). Температура: \square – 28°C , \triangle – 36°C , \diamond – 44°C , \triangleright – 54°C .

В этом случае экранирование стремится скомпенсировать среднее за цикл значение остаточного деполяризующего поля, определяемого кинетикой доменной структуры. В результате изменяется пространственное распределение E_b , определяющее кинетику доменной структуры в следующем цикле переключения. Для исследования самосогласованной эволюции кинетики доменной структуры, обусловленной существованием такой обратной связи, использовались методы компьютерного моделирования, позволяющие рассчитывать распределение поля смещения после каждого цикла.

Рассматривались два варианта начального состояния: (1) монодоменное (отсутствие объемного экранирования) и (2) полностью экранированное полидоменное. Рассмотрение первого идеализированного варианта показало, что циклическое переключение приводит к формированию неоднородного E_b , причем функция распределения $f(E_b)$ размывается (рис. 5а) с увеличением N . Полуширина функции распределения E_b увеличивается, а ее амплитуда уменьшается, в то время как переключаемый заряд еще остается постоянным. При достижении порогового значения σ_{Eb} , определяемого амплитудой внешнего поля, в областях с достаточно большими значениями внутреннего поля возникают неперекрывающиеся (“кинетически замороженные”) домены (рис. 6б), что приводит к уменьшению переключаемого заряда – эффекту усталости (рис. 5б).

При исследовании эффекта усталости, независимо от того, какая форма импульсов используется для циклического переключения, сегнетоэлектрические характеристики определяются по измерениям петли гистерезиса, когда внешнее поле меняется достаточно медленно и переключение можно считать квазистатическим. Форма измеренного при этом тока переключения определяется пространственной неоднородностью процесса переключения и в частности, функцией распределения E_b и является наиболее информативной и чувствительной к эффектам циклического переключения, поскольку изменение полуширины тока пропорционально изменению σ_{Eb} , а изменение его максимального значения – амплитуде функции распределения f_c .

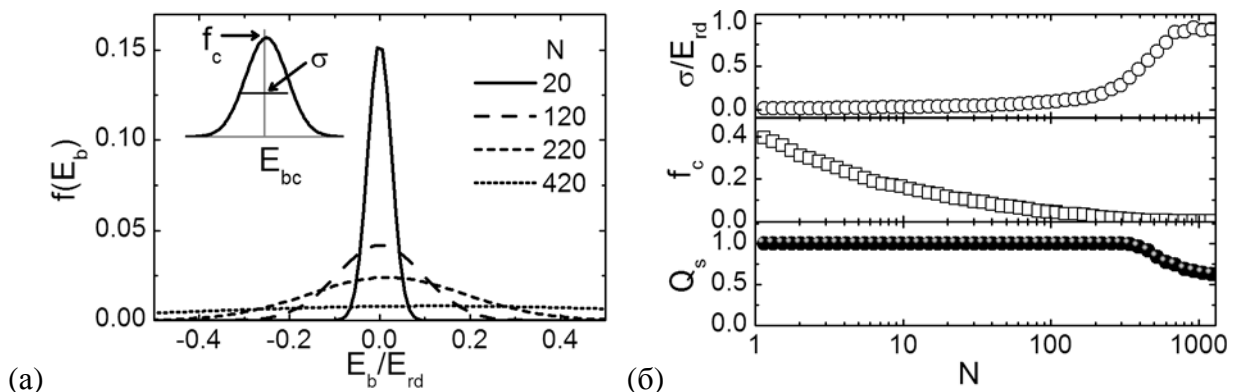


Рисунок 5. Циклическое переключение из монодоменного начального состояния: (а) эволюция функции распределения внутреннего поля смещения; (б) зависимость от количества циклов переключения полуширины σ_{Eb} , амплитуды функции распределения внутреннего поля f_c и переключаемого заряда Q_s . Результаты компьютерного моделирования.

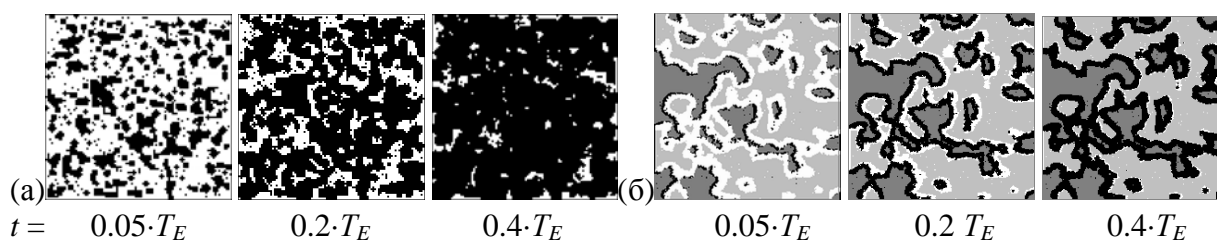


Рисунок 6. Последовательности мгновенных доменных конфигураций: (а) в течение одного полупериода поля на первом цикле; (б) после длительного циклического переключения. T_E – период изменения внешнего поля. Черные и белые области – переключаемые домены разного знака, серые области – замороженные домены разного знака. Результаты компьютерного моделирования.

Длительное циклическое переключение приводит к качественному изменению кинетики доменной структуры от двумерной за счет образования и роста новых доменов (nucleation & growth) (рис. 6а) к переключению в узких областях, разделяющих замороженные домены разного знака, в основном за счет одномерного роста (growth only) (рис. 6б). Важно отметить, что такой эффект усталости является обратимым и при увеличении амплитуды или длительности импульсов поля, замороженные домены могут быть переключены.

При моделировании циклического переключения из полидоменного полностью экранированного состояния удалось обнаружить немонотонное изменение величины переключаемого заряда (рис. 7а). В этом случае можно выделить две стадии: формовки, на которой происходит увеличение переключаемого заряда, и усталости.

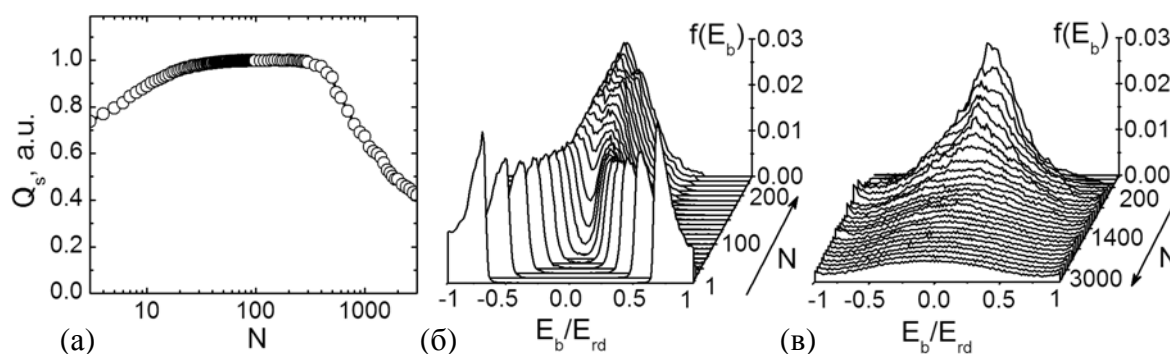


Рисунок 7. Циклическое переключение из полидоменного полностью экранированного начального состояния: (а) изменение Q_s ; (б,в) эволюция $f(E_b)$: на стадии (б) формовки и (в) усталости. Результаты компьютерного моделирования.

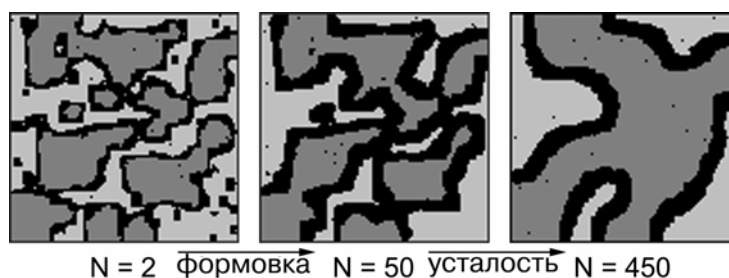


Рисунок 8. Эволюция формы замороженных доменов при циклическом переключении из полидоменного исходного состояния. Результаты моделирования.

Начальное распределение E_b представляет собой два узких пика с $E_b/E_{b0} = \pm 1$, соответствующие замороженным доменам разного знака. Стадия формовки сопровождается качественным изменением функции распределения E_b : два начальных пика, соответствующие E_b разного знака сближаются и, постепенно размываясь, сливаются в один пик (рис. 7б). На стадии усталости центральный пик функции распределения E_b расширяется и уменьшается по амплитуде аналогично рассмотренному выше переключению из монодоменного начального состояния (рис. 7в).

На стадии формовки наблюдается увеличение амплитуды движения стенок, а переход к стадии усталости характеризуется существенным изменением геометрии переключаемых и непереключаемых областей (рис. 8), которое проявляется в образовании связной переключаемой области и дальнейшем упрощении ее формы на стадии усталости. Таким образом, эффекты формовки и усталости являются стадиями единого процесса.

В пятой главе приведены результаты экспериментальных исследований циклического переключения объемной сегнетоэлектрической керамики ЦТС с помощью интегральных и локальных методов.

При измерении петель гистерезиса $P(E)$ наблюдался эффект усталости – уменьшение остаточной поляризации P_r (переключаемого заряда) при циклическом переключении (рис. 9а,в). Измерение тока переключения $j(E)$ (рис. 9б) показало, что наблюдается уменьшение амплитуды и рост полуширины тока, причем параметры тока значительно более чувствительны к циклическому переключению, чем величина остаточной поляризации (рис. 9в). Такое поведение согласуется с результатами компьютерного моделирования (глава 4).

Для объяснения наблюдаемого поведения следует учесть, что использование медленно растущего поля позволяет рассматривать переключение как квазистатическое. В этом случае при каждом значении внешнего поля переключается только часть образца, удовлетворяющая условию:

$$E_{ex} = E_{th} - E_b, \quad (7)$$

где E_{th} – локальное пороговое поле.

Экспериментально изменяемая форма тока переключения определяется пространственной неоднородностью распределения не только E_b , но и пороговых полей E_{th} . В предположении, что неоднородность E_{th} является характеристикой образца и не изменяется при циклическом переключении, увеличение полуширины тока переключения соответствует увеличению дисперсии E_b , что соответствует результатам компьютерного моделирования (рис. 5а,б).

Очевидно, что проведенные классические экспериментальные исследования не позволяют непосредственно измерить неоднородность пространственного распределения E_b . и определить относительные объемы, занимаемые замороженными доменами различного знака. Для определения этих параметров проводились локальные измерения механической деформации S образца во внешнем электрическом поле и эффективного малосигнального пьезоэлектрического коэффициента d_{33} .

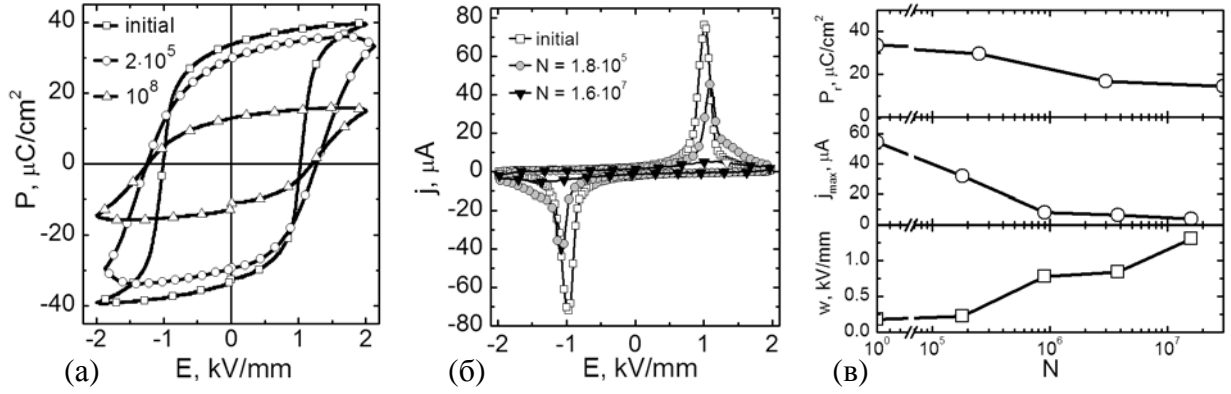


Рисунок 9. Эволюция петель гистерезиса (а) поляризации и (б) тока переключения при длительном циклическом переключении объемной ЦТС керамики; (в) зависимость параметров петли гистерезиса и тока переключения от N .

$$S(E) = Q[P(E) + P_{sh}]^2 \quad (8)$$

$$d_{33}(E) = 2Q\epsilon\epsilon_0[P(E) + P_{sh}] = 2Q\epsilon\epsilon_0P(E) + d_{of}, \quad (9)$$

где Q – коэффициент электрострикции, ϵ – диэлектрическая проницаемость, а P_{sh} – поляризация, усредненная по объему замороженных доменов.

Форма петель гистерезиса $S(E)$ и $d_{33}(E)$ существенно изменяется при циклическом переключении (рис. 10). Асимметричная форма $S(E)$ (рис. 10а) свидетельствует о том, что существует тенденция к преимущественному росту замороженных доменов одного знака при длительном циклическом переключении. Одновременные измерения $P(E)$ и $S(E)$ использовались для определения относительных объемов замороженных доменов с противоположным направлением поляризации. Аналогичные результаты были получены и при измерении малосигнального пьезокоэффициента $d_{33}(E)$, однако в этом случае все необходимые параметры были получены при измерении одной величины (рис. 10б).

Степень пространственной локализации при проведенных измерениях $S(E)$ и $d_{33}(E)$ (0.5 – 0.1 мм), определяемая площадью контакта наконечника датчика перемещения с поверхностью образца, значительно выше, чем при измерении $P(E)$ (10 мм). Поэтому пьезоэлектрические измерения позволили охарактеризовать пространственную неоднородность образцов, возникающую после длительного циклического переключения (рис. 11а,б). Проведение серии локальных измерений показало, что значительно увеличиваются дисперсии E_b и d_{of} (рис. 12а). Построенная зависимость измеренных локальных значений d_{of} от E_b после различного количества циклов переключения свидетельствует об их коррелированном изменении (рис. 12б). Полученное совпадение знака замороженных доменов и знака поля смещения является прямым экспериментальным свидетельством справедливости предложенного подхода к объяснению эффекта усталости.

Отжиг образцов после длительного циклического переключения при температуре около 400°C (выше T_c) приводит к практически полному восстановлению исходных характеристик (рис. 13). Исчезновение асимметрии гистерезиса деформации и уменьшение полуширины тока переключения свиде-

тельствует о восстановлении исходного пространственного распределения E_b в результате экранирования статической доменной структуры, образующейся при фазовом переходе. Этот эффект является дополнительным свидетельством применимости предложенного подхода. Небольшое отличие формы исходных и отожженных петель объясняется вкладом необратимых механизмов усталости, например образования микротрещин [6].

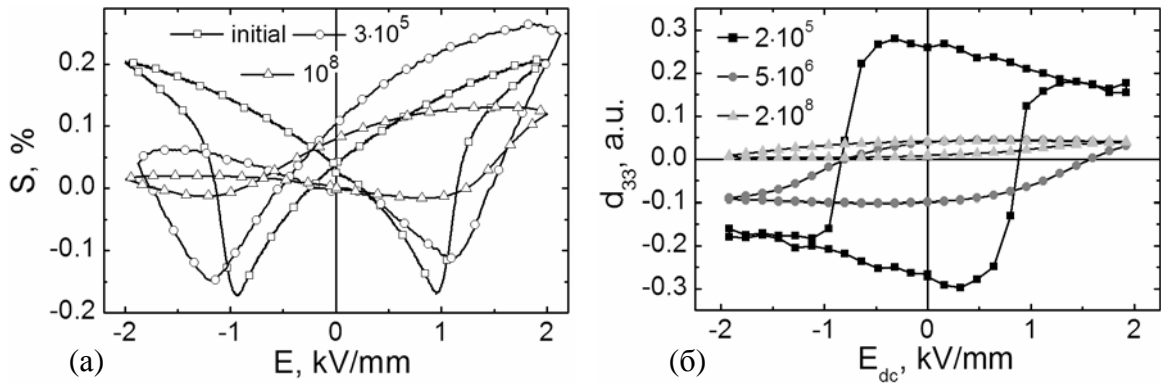


Рисунок 10. Эволюция петель (а) механической деформации и (б) пьезоэлектрического коэффициента при циклическом переключении в объемной ЦТС керамике.

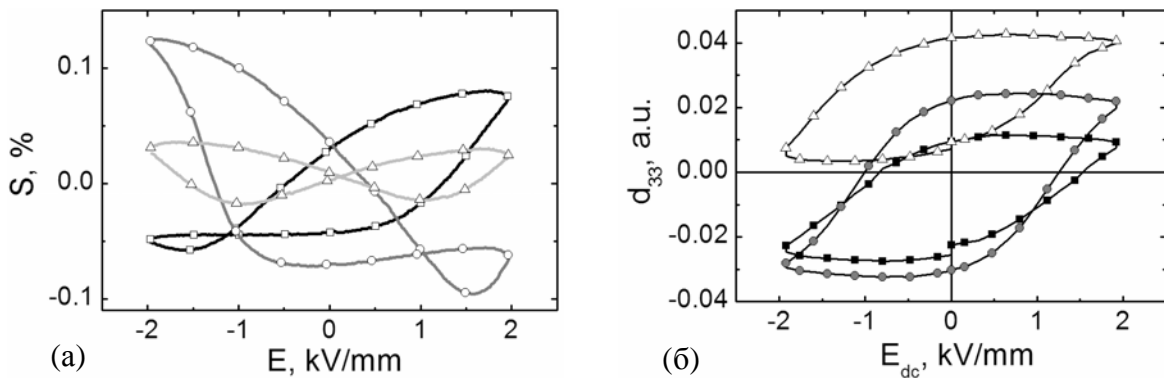


Рисунок 11. Пространственная неоднородность петель гистерезиса (а) механической деформации и (б) малосигнального пьезоэлектрического коэффициента в объемной ЦТС керамике. Измерения в разных точках образца после 10^7 циклов.

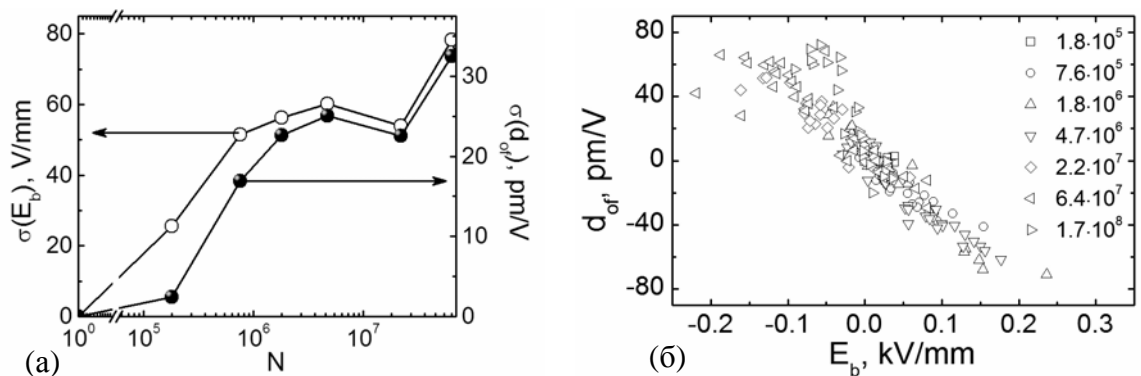


Рисунок 12. (а) Изменение дисперсии E_b , и d_{of} при циклическом переключении; (б) зависимость измеренных локальных значений d_{of} от E_b после различного количества циклов переключения в объемной ЦТС керамике.

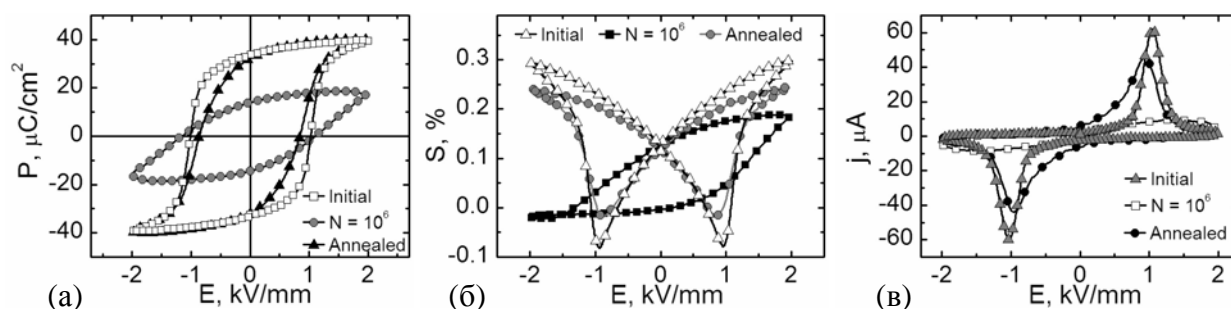


Рисунок 13. Восстановление свойств образца после отжига. Петли гистерезиса (а) поляризации, (б) деформации, (в) тока переключения: исходные, после 10^6 циклов переключения и последующего отжига. Объемная керамика ЦТС.

Следует отметить, что увеличение амплитуды переключающего поля после длительного циклического переключения приводит к частичному восстановлению исходных характеристик. Показано, что при переключении во внешнем электрическом поле с увеличенной в полтора раза амплитудой наблюдается существенное уменьшение асимметрии, увеличение остаточной поляризации и амплитуды деформации.

Шестая глава посвящена исследованию циклического переключения в тонких сегнетоэлектрических пленках ЦТС. Очевидно, что эти исследования представляют наибольший практический интерес. Показано, что кроме эффекта усталости при циклическом переключении в тонких сегнетоэлектрических пленках наблюдается предшествующий ему эффект формовки – увеличение остаточной поляризации (рис. 14б), сопровождающийся значительным увеличением максимального значения тока переключения (рис. 14б), что соответствует модельному случаю полидоменного полностью экранированного начального состояния. В согласии с результатами компьютерного моделирования (глава 4, рис. 7) на стадии формовки происходит слияние двух пиков в токе переключения (рис. 15а), соответствующих переключению в областях с разным знаком E_b . По аналогии с циклическим переключением в объемной керамике ЦТС стадия усталости сопровождается уменьшением максимального значения тока переключения (рис. 14в) и увеличением его полуширины w (рис. 15в), характеризующей дисперсию E_b . Показано, что зависимость w от N успешно аппроксимируется (рис. 15б) степенной зависимостью вида:

$$w = w(0) + A \cdot N^{1/2}, \quad (10)$$

где A – константа.

Физический смысл выбранной зависимости объясняется сходством эволюции пространственного распределения E_b и процессов диффузии. Полученная оценка дисперсии E_b позволяет, основываясь на формализме Прейзаха, рассчитать изменение переключаемого заряда при циклическом переключении:

$$Q_s[w(N)] = Q_A \cdot \operatorname{erf}\left(\frac{E_m - E_{c0}}{\sqrt{2}w(N)}\right) + Q_0, \quad (11)$$

где Q_A , Q_0 – константы, E_m – амплитуда поля, E_{c0} – коэрцитивное поле.

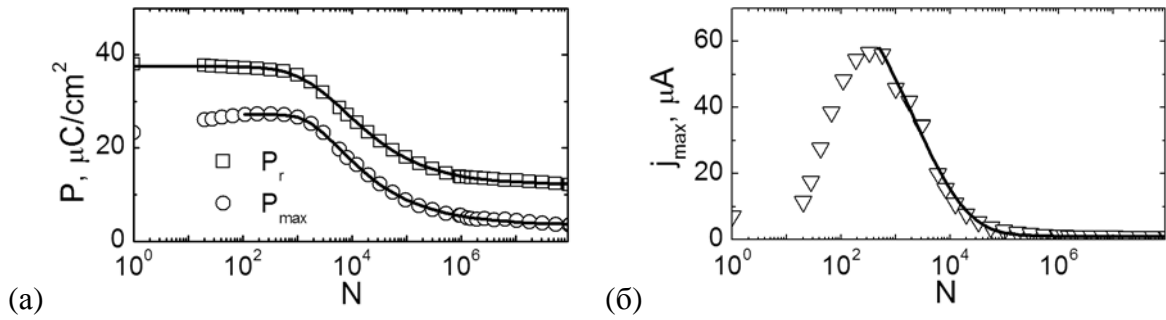


Рисунок 14. Зависимость (а) переключаемой поляризации и (б) максимального значения тока переключения от количества циклов переключения в золь-гель тонких пленках ЦТС. Аппроксимация выражениями (11) и (12) соответственно.

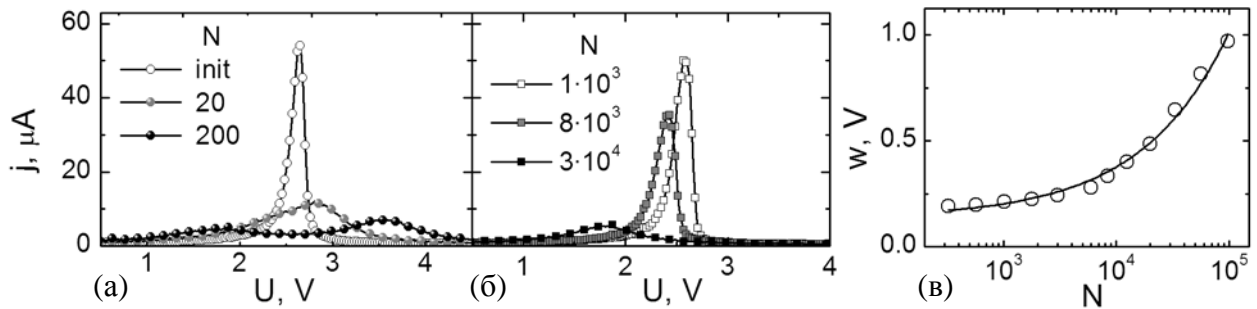


Рисунок 15. Эволюция тока переключения при тестировании в процессе циклического переключения: (а) стадия формовки, (б) стадия усталости; (в) увеличение полуширины тока переключения на стадии усталости.

Экспериментальные зависимости остаточной поляризации P_r успешно аппроксимированы предложенной зависимостью (рис. 14а). Максимальное значение тока переключения j_{\max} пропорционально амплитуде функции распределения E_b и, следовательно, зависимость $j_{\max}(N)$ может быть описана следующим выражением:

$$j_{\max} [w(N)] = j_A / w(N) + j_0, \quad (12)$$

где j_A и j_0 – константы.

С использованием (11) и (12) была получена связь между j_{\max} и Q_s , которая может быть использована для ускоренного тестирования устойчивости сегнетоэлектрических тонких пленок к циклическому переключению, что является актуальной практической задачей.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ РАБОТЫ

Проведенное детальное исследование кинетики доменной структуры в сегнетоэлектрических монокристаллах, объемной керамике и тонких пленках при циклическом переключении поляризации позволяет сделать следующие основные выводы.

1. Объяснение всех полученных результатов проведено в рамках единой кинетической модели, рассматривающей кинетику доменной структуры как результат зародышеобразования, вероятность которого определяется локальным значением электрического поля, изменяющегося при циклическом переключении. Особое внимание уделено эффекту

- запаздывания объемного экранирования, приводящему к самосогласованному формированию неоднородного внутреннего поля смещения.
2. Методами компьютерного моделирования выявлены закономерности изменения пространственного распределения внутреннего поля смещения при учете объемного экранирования остаточного деполяризующего поля в процессе циклического переключения.
 3. Экспериментально (в монокристалле молибдата гадолиния) и методами компьютерного моделирования исследовано циклическое переключение поляризации за счет смещения одиночной плоской доменной стенки. Показано, что увеличение амплитуды смещения стенки (эффект формовки) и изменение формы тока переключения обусловлены самосогласованным уменьшением внутреннего поля смещения. Выявлена связь формы тока с пространственным распределением внутреннего поля смещения.
 4. Справедливость предложенной модели подтверждена совпадением экспериментально измеренных энергий активации для эффектов формовки и старения (закрепления статической доменной структуры).
 5. При исследовании переключения за счет двумерного роста доменов методами компьютерного моделирования дополнительно выявлен эффект усталости, вызванный размытием функции распределения внутреннего поля и образованием кинетически "замороженных" доменов. Установлено, что переход от стадии формовки к стадии усталости сопровождается качественным изменением геометрии доменной структуры.
 6. Разработанный метод анализа формы тока переключения в объемной керамике и тонких пленках позволил показать, что эффекты формовки и усталости обусловлены изменениями функции распределения внутреннего поля смещения, соответствующими результатам компьютерного моделирования.
 7. Экспериментальное измерение локальных петель деформации и малосигнального пьезоэлектрического отклика в объемной сегнетоэлектрической керамике подтвердило, что эффект усталости вызван формированием пространственно неоднородного внутреннего поля смещения.

ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Shur V.Ya. Correlated nucleation and self-organized kinetics of ferroelectric domains // Nucleation theory and applications / Ed. by J.W.P. Schmelzer. - Weinheim: WILEY-VCH, 2005. - Ch. 6. - P. 178-214.
2. Фридкин, В.М. Сегнетоэлектрики-полупроводники. - М.: Наука, 1976. - 408 с..
3. Grossmann M., Lohse O., Bolten D., Boettger U., Schneller T., Waser R. The interface screening model as origin of imprint in $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ thin films. I. Dopant, illumination, and bias dependence // J. Appl. Phys. - 2002. - V.92, N.5. - P. 2680-2687.

- 4 Preisach P. Uber die magnetische Nachwirkung // Zeitschrift fur Physik. - 1935. - V.94, N.5. - P. 277-302.
- 5 Турик А. К теории поляризации и гистерезиса сегнетоэлектриков // ФТТ. - 1963. - Т.5, N.4. - С. 1213-1215.
- 6 Lupascu D. C. Fatigue in ferroelectric ceramics and related issues. - Berlin: Springer, 2004. - 225 p.
- 7 Tagantsev A.K., Stolichnov I., Colla E.L., Setter N. Polarization fatigue in ferroelectric films: Basic experimental findings, phenomenological scenarios, and microscopic features // J. Appl. Phys. - 2001. - V.90, N.3. - P. 1387-1402.
- 8 Colla E.L., Hong S., Taylor D.V., Tagantsev A.K., Setter N., Kwangsoo N. Direct observation of region by region suppression of the switchable polarization (fatigue) in Pb(Zr,Ti)O₃ thin film capacitors with Pt electrodes // Appl. Phys. Lett. - 1998. - V.72, N.21. - P. 2763-2765.
- 9 Colla E.L., Stolichnov I., Bradely P.E., Setter N. Direct observation of inversely polarized frozen nanodomains in fatigued ferroelectric memory capacitors // Appl. Phys. Lett. - 2003. - V.82, N.10. - P. 1604-1606.
- 10 Colla E.L., Taylor D.V., Tagantsev A.K., Setter N. Discrimination between bulk and interface scenarios for the suppression of the switchable polarization (fatigue) in Pb(Zr,Ti)O₃ thin films capacitors with Pt electrodes // Appl. Phys. Lett. - 1998. - V.72, N.19. - P. 2478-2480.
- 11 Bratkovsky A.M., Levanyuk A.P. Abrupt appearance of the domain pattern and fatigue of thin ferroelectric films // Phys. Rev. Lett. - 2000. - V.84, N.14. - P. 3177-3180.
- 12 Kim S.J., Jiang Q. Microcracking and electric fatigue of polycrystalline ferroelectric ceramics // Smart Mater. & Structures. - 1996. - V.5, N.3. - C. 321-326.
- 13 Dawber M., Scott J.F. Fatigue and oxygen vacancy ordering in thin-film and bulk single crystal ferroelectrics // Integrated Ferroelectrics. - 2001. - V.32, N.1-4. - P. 951-958.
- 14 Warren W.L., Tuttle B.A., Dimos D. Ferroelectric Fatigue in Perovskite Oxides // Appl. Phys. Lett. - 1995. - V.67, N.10. - P. 1426-1428.
- 15 Schloss L.F., McIntyre P.C. Polarization recovery of fatigued Pb(Zr,Ti)O₃ thin films: Switching current studies // J. Appl. Phys. - 2003. - V.93. - P. 1743-1747.
- 16 Pawlaczyk C.Z., Tagantsev A.K., Brooks K., Reaney I.M., Klissurska R., Setter N. Fatigue, Rejuvenation and Self-Restoring in Ferroelectric Thin-Films // Integrated Ferroelectrics. - 1995. - V.8, N.3-4. - P. 293-316.
- 17 Pan W.Y., Sun S., Fuierer P. Effects of Ferroelectric Switching on the Dielectric and Ferroelectric Properties in Lead-Zirconate-Titanate Ceramics and Their Modeling // J. Appl. Phys. - 1993. - V.74, N.2. - P. 1256-1264.
- 19 Flippen R.B. Domain wall dynamics in ferroelectric/ferroelastic molybdate // J. Appl. Phys. - 1975. - V.46, N.3. - C. 1068-1071.
- 20 Robels U., Arlt G. Domain wall clamping in ferroelectrics by orientation of defects // J. Appl. Phys. - 1993. - V.73, N.7. - P. 3454-3460.

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Shur V., Nikolaeva E., Shishkin E., Baturin I., Bolten D., Lohse O., Waser R. Fatigue in PZT thin films // Ferroelectric Thin Films IX. Symposium (Materials Research Society Meeting Proceedings). – 2001. – V. 655. – P. CC10.8.1-6.

2. Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I., Baturin I.S. Kinetic approach to fatigue phenomenon in ferroelectrics // *Journal of Applied Physics*. – 2001. – V. 90, N. 12. – P. 6312–6315.
3. Shur V.Y., Rumyantsev E.L., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I., Baturin I.S., Ozgul M., Randall C.A. Kinetics of fatigue effect // *Integrated Ferroelectrics*. – 2001. – V. 33. – P. 117–132.
4. Shur V., Rumyantsev E., Nikolaeva E., Shishkin E., Baturin I., Shur A., Lupascu D., Randall C., Ozgul M. Fatigue effect in bulk ferroelectrics // *SPIE Proc. on Smart Structures and Materials: Active Materials Structure and Mechanics*. – 2002. – V. 4699. – P. 40–50.
5. Шур В.Я., Румянцев Е.Л., Николаева Е.В., Шишкин Е.И., Батурин И.С. Кинетический подход к объяснению эффекта усталости в сегнетоэлектриках // *Физика Твёрдого Тела*. – 2002. – Т. 44, № 11. – С. 2049–2054.
6. Shur V.Y., Baturin I.S., Shishkin E.I., Belousova M.V. New approach to analysis of the switching current data, recorded during conventional hysteresis measurements // *Integrated Ferroelectrics*. – 2003. – V. 53. – P. 379–390.
7. Shur V.Y., Baturin I.S., Shishkin E.I., Belousova M.V. New approach to analysis of the switching current data in ferroelectric thin films // *Ferroelectrics*. – 2003. – V. 291. – P. 27–35.
8. Menou N., Castagnos A.M., Muller C., Johnson J., Wouters D.J., Baturin I.S., Shur V.Y. Failure analysis of FeCAPs. Electrical behaviour under synchrotron X-ray irradiation // *Integrated Ferroelectrics*. – 2004. – V. 61. – P. 89–95.
9. Baturin I., Menou N., Shur V., Muller C., Kuznetsov D., Hodeau J., Sternberg A. Influence of irradiation on the switching behavior in PZT thin films // *Materials Science and Engineering B*. – 2005. – V. 120. – P. 141–145.
10. Menou N., Muller C., Baturin I.S., Shur V.Y., Hodeau J.L. Polarization fatigue in $\text{PbZr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55}\text{O}_3$ -based capacitors studied from high resolution synchrotron X-ray diffraction // *Journal of Applied Physics*. – 2005. – V. 97, N. 6. – P. 064108.
11. Menou N., Muller C., Baturin I.S., Kuznetsov D.K., Shur V.Y., Hodeau J.L., Schneller T. In situ synchrotron X-ray diffraction study of electrical field induced fatigue in $\text{Pt/PbZr}_{0.45}\text{Ti}_{0.55}\text{O}_3/\text{Pt}$ ferroelectric capacitors // *Journal of Physics–Condensed Matter*. – 2005. – V. 17, N. 48. – P. 7681–7688.
12. Shur V.Y., Nikolaeva E.V., Shishkin E.I., Baturin I.S., Shur A.G., Utschig T., Schlegel T., Lupascu D.C. Deaging in $\text{Gd}_2(\text{MoO}_4)_3$ by cyclic motion of a single planar domain wall // *Journal of Applied Physics*. – 2005. – V. 98, N. 7. – P. 074106.
13. Zhang Y., Baturin I.S., Aulbach E., Lupascu D.C., Kholkin A.L., Shur V.Y., Rodel J. Evolution of bias field and offset piezoelectric coefficient in bulk lead zirconate titanate with fatigue // *Applied Physics Letters*. – 2005. – V. 86, N. 1. – P. 012910.
14. Zhang Y., Lupascu D.C., Aulbach E., Baturin I., Bell A., Rodel R. Heterogeneity of fatigue in bulk lead zirconate titanate // *Acta Materialia*. – 2005. – V. 53, N. 8. – P. 2203–2213.
15. Кузнецов Д.К., Батурин И.С., Шур В.Я., Мену Н., Муллер С., Шнеллер Т., Стернберг А. Кинетика переключения поляризации в облученных тонких пленках PZT // *ФТТ*. – 2006. – Т. 48, № 6. – С. 1104–1106.

Подписано в печать 03.05.06 г. Формат 60x84/16.
Бумага для множительных аппаратов. Усл. печ. л. 1,0. Тираж 100 экз.

Отпечатано на принтере
в лаборатории сегнетоэлектриков НИИ ФПМ УрГУ
Екатеринбург, пр. Ленина 51.