

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ
РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

Амурский государственный университет

Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская

ФРАКТАЛЬНЫЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ
И МОДЕЛЬНЫЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЯ
ПРОЦЕССОВ ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ
ПОЛЯРИЗАЦИИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ
ПРИ ДИАГНОСТИКЕ
МЕТОДАМИ РАСТРОВОЙ
ЭЛЕКТРОННОЙ МИКРОСКОПИИ

Монография

Благовещенск
Издательство АмГУ
2016

УДК 537.226.4:537.226.8:004.942

ББК 22.379

Б 24

*Рекомендовано
ученым советом университета*

Рецензенты:

О.В. Малышкина, д-р физ.-мат. наук, профессор кафедры прикладной физики Тверского гос. университета;

Ю.Я. Гафнер, д-р физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой общей и экспериментальной физики Хакасского гос. университета им. Н.Ф. Катанова.

Барабаш Т.К., Масловская А.Г.

Б24 Фрактальные закономерности и модельные представления процессов переключения поляризации сегнетоэлектриков при диагностике методами растровой электронной микроскопии – Благовещенск: Изд-во АмГУ, 2016. – 148 с.

В монографии представлены результаты развития многоаспектного подхода к изучению самоподобной динамики сегнетоэлектрических доменных структур при исследовании методами растровой электронной микроскопии. Представлены оценки скейлинговых характеристик геометрии статических и динамических доменных конфигураций. Проведена диагностика фрактальных размерностей временных зависимостей токов переключения поляризации, индуцированных электронным зондом. Разработана модель, позволяющая описать процесс формирования отклика сегнетоэлектриков в режиме токов электронно-стимулированной поляризации, с учетом фрактального характера динамики доменной структуры. Установлены закономерности изменения формы кривой импульса тока переключения в режиме инъекции при вариации параметров моделирования, соответствующих различным условиям экспериментального наблюдения.

Монография предназначена для специалистов, работающих в области сегнетоэлектричества, она может быть полезна исследователям, использующим фрактальные методы для анализа и моделирования сложных физических систем.

Работа выполнена в рамках проекта «Исследование электрических и тепловых процессов в неоднородных диэлектрических структурах» по государственному заданию МОН РФ высшим учебным заведениям, код проекта: 1158.

ББК 22.379

ISBN 978-5-93493-271-9

© Барабаш Т.К., Масловская А.Г., 2016

© Амурский государственный университет, 2016

ВВЕДЕНИЕ

Одним из приоритетных направлений в физике конденсированного состояния является задача исследования и модификации свойств различных функциональных диэлектрических материалов с привлечением возможностей растровой электронной микроскопии (РЭМ). Распространение аналитических методик РЭМ на сегнетоэлектрические материалы обусловлено способностью электронного зонда взаимодействовать с электрическими полями образцов, что делает РЭМ весьма привлекательным инструментом для анализа геометрического и потенциального рельефа, изучения и модификации электрических свойств полярных диэлектриков, а также открывает принципиальные возможности применения все более разнообразных режимов формирования видеосигнала.

Актуальные области практического применения сегнетоэлектриков в качестве активных элементов электронных схем основаны на способности таких материалов менять направление поляризации в неравновесных внешних условиях. Поэтому исследование эффектов в сегнетоэлектрических кристаллах, возникающих в условиях электронного облучения и влияющих на кинетику доменной структуры и переключение поляризации, представляет интерес как с точки зрения фундаментальной науки, так и с точки зрения практических приложений.

В настоящее время известен широкий ряд работ, посвященных использованию экспериментальных режимов РЭМ для визуализации доменных структур, анализа и модификации основных свойств сегнетоэлектрических материалов. Первые результаты были получены G.Y. Robinson и R.M. White, R. LeBihan и M. Maussion, Y. Uchicawa и S. Ikeda, Г.В. Спиваком с соавторами, А.С. Олейником, в работах которых была показана возможность выявления доменных структур широкого ряда сегнетоэлектрических материалов за счет потенциального рельефа, существующего на поверхности кристаллов. Неослабевающий интерес исследователей обусловил дальнейшее развитие этой тематики в более поздних работах N. Nakatani, L. Szczesniak, В.З. Бородина и А.А. Согра,

В.В. Аристова и Л.С. Коханчик, J. He, D.V. Li и многих других, посвященных разработке нестандартных аналитических методик РЭМ, позволяющих не только визуализировать потенциальный контраст, но и наблюдать динамику доменной структуры, а также контролировать индуцированные электронным зондом процессы переключения поляризации.

Для модельного представления одной из основных интегральных характеристик – тока переключения поляризации в сегнетоэлектриках – на практике применяют концепции статистической теории кристаллизации Колмогорова – Авраами, модификации которой были развиты в работах E. Fatuzzo, Y. Ishibashi, Y. Takagi, H. Orihara, В.Я. Шура, J.F. Scott. Переключение поляризации типичных сегнетоэлектриков является результатом образования самоподобных структур; геометрия доменных конфигураций и динамические характеристики сегнетоэлектрических кристаллов обнаруживают фрактальное поведение в процессе переключения поляризации. Фрактальность подобных процессов связывают с наличием эффектов памяти системы, со свойствами анизотропии реальных кристаллов, со сложными механизмами динамики доменных границ и перестройкой доменной структуры. Для описания геометрических характеристик доменных конфигураций и закономерностей динамики доменных границ, определяющих процессы переключения поляризации в сегнетоэлектриках, в качестве теоретического базиса оказываются применимы концепции фрактальной теории. Отдельные аспекты использования фрактального подхода для описания сложного скейлинга сегнетоэлектрических доменных структур, а также для моделирования тока переключения поляризации представлены в работах современных авторов: Т. Ozaki и К. Fujii, Д.В. Пелегова, В. Tadic, Y-R. Jeng, Н.М. Галияровой, С.А. Садыкова и др. Однако задачи исследования фрактальных закономерностей геометрических конфигураций доменных структур, наблюдаемых при исследовании с помощью методик РЭМ, а также динамики доменных границ и процессов переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов, стимулированных электронным зондом, обуславливают специфику исследуемой предметной области и формируют широкий круг вопросов, которые на сегодняшний день остаются открытыми и требуют отдельного изучения.

В монографии представлены результаты развития подхода к описанию процессов формирования тока переключения поляризации в сегнетоэлектрических кристаллах при воздействии электронного зонда РЭМ, с учетом фрактальной природы строения и динамики доменной структуры.

Первая глава содержит аналитический обзор известных результатов исследований процессов динамики доменной структуры и переключения поляризации в сегнетоэлектриках под действием электронного зонда РЭМ, а также теоретических подходов к формализации этих явлений.

В главах 2-4 монографии представлены результаты исследований авторов, посвященных развитию теоретического подхода к анализу кинетики переключения поляризации сегнетоэлектриков при диагностике методами РЭМ, состоящем в многоступенчатом процессе оценки фрактальных характеристик геометрии доменных структур и отклика сегнетоэлектрика на воздействие электронного зонда, а также в учете самоподобного характера динамики доменов при моделировании тока переключения поляризации.

1. СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ МАТЕРИАЛЫ И ИСПОЛЬЗОВАНИЕ АНАЛИТИЧЕСКИХ МЕТОДОВ РАСТРОВОЙ ЭЛЕКТРОННОЙ МИКРОСКОПИИ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ИХ СВОЙСТВ

Одной из важнейших и актуальных задач современной физики конденсированных сред является задача изучения формирования и комплексного исследования физических свойств полярных диэлектриков. Развитие физики полярных диэлектриков как самостоятельной и утвердившейся научной дисциплины обусловлено как фундаментальными, так и прикладными научными интересами многих исследователей. При этом следует отметить, что сегнетоэлектрики как подкласс полярных материалов относятся к числу самых перспективных в плане практических приложений объектов исследования. Это обусловлено тем, что сегнетоэлектрические материалы обладают рядом уникальных свойств, таких как значительная диэлектрическая проницаемость, наличие пьезоэлектрического, электрокалорического эффектов, нелинейные электрооптические характеристики и др.

На сегодняшний день сегнетоэлектрики нашли широкое применение во многих областях современной техники – радиотехнике, акустике, оптоэлектронике, пиро- и пьезотехнике – в качестве запоминающих динамических и статических устройств вычислительной техники, сенсоров акустических и тепловых волн (в том числе пироприемников), пьезоэлементов, модуляторов лазерного излучения, активных элементов в СВЧ-устройствах и пр.

Создание современных технических устройств на основе сегнетоэлектриков и их применение в неравновесных внешних условиях предъявляют жесткие требования к используемым материалам. Часто в фундаментальных работах исследуются, а в практическом применении используются эффекты, стимулированные внешними воздействиями в сегнетоэлектрических материалах. Поэтому особенно актуальными направлениями в данной научной области являются процессы формирования отклика сегнетоэлектрических материалов на внешние воздействия различной природы.

Изучению сегнетоэлектриков и применению полярных материалов посвящено достаточно большое количество работ. Фундаментальные основы сег-

нетоэлектрических явлений (классификация, основные свойства, методы исследования и области приложений полярных материалов) представлены в базовых обзорах [1-8]. Перспективы создания сегнетоэлектрических материалов с прогнозируемыми физическими свойствами, а также возможности использования сегнетоэлектриков, модифицированных внешними воздействиями (в том числе с помощью методов растровой электронной микроскопии), стимулируют развитие различных научных направлений в области сегнетоэлектричества в рамках более поздних и современных исследований [9-160].

1.1. Фундаментальные концепции физики полярных диэлектриков

1.1.1. Определение и характерные свойства сегнетоэлектриков

Диэлектриками, как известно, называются вещества, которые не способны проводить электрический ток. Состояние диэлектрика задается величиной \mathbf{P} , называемой поляризацией вещества и равной суммарному дипольному моменту единицы объема [1]:

$$\mathbf{P} = \frac{\sum \mathbf{p}_i}{\Delta V}, \quad (1.1)$$

где $\sum_{\Delta V} \mathbf{p}_i$ – сумма электрических моментов атомов и молекул, заключенных в физически малом элементе диэлектрика ΔV ; \mathbf{p}_i – электрический момент i -атома (молекулы).

У изотропных диэлектриков поляризация связана с напряженностью внешнего электрического поля следующим образом:

$$\mathbf{P} = \chi \varepsilon_0 \mathbf{E}, \quad (1.2)$$

где ε_0 – электрическая постоянная; \mathbf{E} – напряженность внешнего электрического поля; χ – диэлектрическая восприимчивость.

Величиной, которую характеризуют сторонние заряды диэлектрика, является электрическое смещение \mathbf{D} [1]:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E}, \quad (1.3)$$

где ε – диэлектрическая проницаемость, связанная с диэлектрической восприимчивостью соотношением $\varepsilon = 1 + \chi$.

Полярное состояние может быть реализовано в диэлектрических материалах в кристаллической форме всех 32 точечных групп симметрии. У ряда материалов, принадлежащих 20 из 32 кристаллографических групп, поляризация может быть инициирована приложением механического напряжения типа «растяжение-сжатие» или «сдвиг», такие кристаллы являются пьезоэлектриками.

Для кристаллов 10 из 20 пьезоэлектрических точечных групп симметрии дипольный момент элементарной ячейки может быть отличен от нуля при отсутствии внешних воздействий; диэлектрики этой группы называют полярными. Обычно дипольный момент полярного кристалла компенсируется электрическими зарядами, которые во время роста кристалла оседают на его гранях, и он не проявляется. Однако дипольный момент зависит от температуры, поэтому при нагревании или охлаждении такого полярного кристалла поверхностная или объемная проводимость может оказаться недостаточной для того, чтобы компенсировать изменение дипольного момента соответствующим перемещением зарядов. В таком случае кристалл становится электрическим диполем, поэтому полярные кристаллы называются пироэлектриками [2]. Традиционно пироэлектрические материалы разделяют на два класса. К первой группе принадлежат линейные пироэлектрики, поляризация которых линейно зависит от поля и ее направление не может быть изменено внешним воздействием. Сегнетоэлектрики являются второй подгруппой пироэлектриков и характеризуются наличием в определенном интервале температур спонтанной, т.е. возникающей без специальных внешних воздействий поляризацией, которая может быть переориентирована приложенным внешним электрическим полем. Эта возможность возникает вследствие того, что полярная структура сегнетоэлектрика представляет собой слегка искаженную неполярную структуру.

Спонтанная поляризация P_s в кристалле возникает по определенному кристаллографическому направлению параэлектрической фазы. Это направление обычно называют осью спонтанной поляризации или сегнетоэлектрической осью. У одноосных сегнетоэлектриков одна ось спонтанной поляризации, сов-

падающая с единичным направлением. У многоосных сегнетоэлектриков несколько осей спонтанной поляризации, и в параэлектрической фазе они являются кристаллографически эквивалентными. Обычно число возможных направлений спонтанной поляризации P_S равно удвоенному числу сегнетоэлектрических осей. Но когда спонтанная поляризация возникает вдоль полярного направления, возможных ее направлений столько же, сколько сегнетоэлектрических осей [3].

При приложении к сегнетоэлектрическому кристаллу с симметричной доменной структурой в направлении сегнетоэлектрической оси постоянного электрического поля напряженностью E в кристалле возникает не нулевая поляризация. С увеличением поля E зависимость $P(E)$ сначала носит линейный характер (при слабых полях), а затем становится нелинейной. Наиболее крутому участку кривой $P(E)$ соответствует интенсивная перестройка доменной структуры. Когда поляризация становится равной спонтанной P_S , ее рост практически прекращается и является результатом процессов ионного и электронного смещения, при этом кристалл становится однодоменным. Значение P_S может быть получено экстраполяцией зависимости $P(E)$ к значению $E = 0$. При обращении поля E в нуль вещество сохраняет остаточную поляризацию P_r . Под действием противоположно направленного поля, равного коэрцитивной силе E_c , поляризация становится равной нулю. Кривая деполяризации, полученная при уменьшении напряженности внешнего электрического поля E , приложенного к сегнетоэлектрику, не будет совпадать с кривой поляризации. Это обусловлено тем, что уменьшение поляризации P будет отставать от уменьшения напряженности E . Кривая, выражающая зависимость поляризации от напряженности внешнего поля $P(E)$, называется диэлектрическим гистерезисом (рис. 1.1) [4].

Интегральную информацию о процессах реполяризации на различных частотах дают динамические петли гистерезиса. Для наблюдения петель диэлектрического гистерезиса на экране осциллографа обычно пользуются схемой Сойера – Тауэра [5]. Величины P_S , P_r , E_c , E_s , являются важными качественными

и количественными характеристиками процесса переключения сегнетоэлектрика.

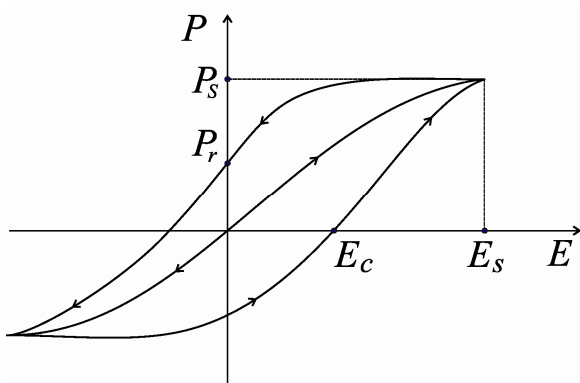


Рис. 1.1. Общий вид гистерезисной зависимости поляризации P от поля E .

При некоторых взаимодействиях, а также в зависимости от дефектности и условий роста кристалла симметричность петли гистерезиса может быть нарушена [6].

Сегнетоэлектрик при повышении температуры испытывает фазовый переход, сопровождающийся изменением симметрии кристаллической решетки и исчезновением спонтанной поляризации.

Температуру, при которой имеет место переход из сегнетоэлектрической в несегнетоэлектрическую параэлектрическую фазу, называют температурой Кюри T_C , независимо от рода перехода. Фазовый переход может быть инициирован внешними воздействиями на кристалл: приложением электрического поля и/или механических напряжений. Нелинейный характер зависимости поляризации сегнетоэлектриков от температуры T , механических напряжений σ и электрического поля E может быть обусловлен ярко выраженной восприимчивостью сегнетоэлектрика к внешним воздействиям в окрестности точки Кюри.

Деление сегнетоэлектриков на различные виды зависит от того, какой классификационный признак положен в основу такой классификации. Известной классификацией является, например, деление сегнетоэлектриков по типу химической связи на ионные и дипольные сегнетоэлектрики. Первая группа представляет ионные кристаллы (например, титанат бария (BaTiO_3), титанат свинца (PbTiO_3), ниобат калия (KNbO_3), барий-натриевый ниобат ($\text{BaNaNb}_5\text{O}_{15}$) и др.), вторая – сегнетоэлектрики, относящиеся к группе дипольных кристаллов, в том числе с водородными связями (сегнетова соль ($\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6$) $\cdot 4\text{H}_2\text{O}$, триглицинсульфат ($\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH}$) $_3\text{H}_2\text{SO}_4$, дигидрофосфат калия (KH_2PO_4) и др.).

Ионные сегнетоэлектрики и фазовые переходы в них имеют тип смещения, так как данные кристаллы не имеют готовых дипольных моментов в парафазе и спонтанная поляризация появляется в результате ангармонических колебаний ионов. У дипольных сегнетоэлектриков иной механизм возникновения спонтанной поляризации, основанный на упорядочении существующих дипольных моментов. Такого рода фазовый переход и сами сегнетоэлектрики называются сегнетоэлектриками типа порядок – беспорядок.

Существуют и другие способы классификации сегнетоэлектриков: по характеру фазового перехода (I и II рода), по числу осей спонтанной поляризации (одноосный или многоосный), по кристаллофизическим признакам в парафазе (классификация Шувалова), по кристаллохимическим признакам и др. [6].

1.1.2. Домены и их переключение

В поликристаллах и в монокристаллах сегнетоэлектриков при отсутствии внешних полевых воздействий макроскопическая спонтанная поляризация не наблюдается. Этот факт обусловлен тем, что спонтанно поляризованное состояние реализуется в сегнетоэлектриках в виде доменной структуры. Сегнетоэлектрический кристалл состоит из доменов – областей спонтанной поляризации. Спонтанные поляризации всех элементарных ячеек одного домена направлены одинаково, в то же время поляризации, соответствующие доменам, ориентированы в различных направлениях, поэтому суммарная величина макроскопической поляризации монокристалла остается равной нулю.

Как отмечают многие авторы [3, 7], разбиение кристалла на домены представляет собой энергетически выгодный процесс. Наличие доменной структуры в сегнетоэлектриках обусловлено «энергетическим фактором» – минимизируемая энергия представляется суммой энергии деполяризующего поля и энергии, которой обладают доменные границы. В полидоменном кристалле существенно уменьшается электрическая энергия за счет возникновения «энергетического компромисса» между уменьшением энергии деполяризующего поля из-за разбиения объема образца на все более мелкие домены и увеличением энергии сис-

темы в таком процессе при увеличении числа доменных границ [8]. Схематическое изображение доменной структуры со 180°-доменными стенками показано на рис. 1.2.

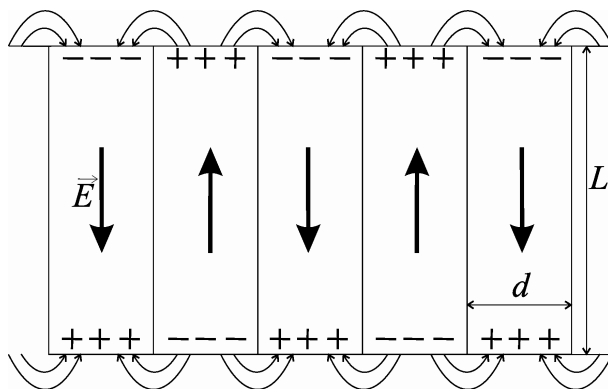


Рис. 1.2. Схема разбиения кристалла на домены (L – размер кристалла вдоль полярной оси, d – среднее значение ширины доменов).

Минимум функции, определяемой суммой вклада энергии дельполяризующих полей и энергии доменных границ, будет соответствовать некоторой равновесной ширине домена [7].

Общие закономерности поведения доменной структуры и динамики доменных границ в целом определяют процессы поляризации и переключения поляризации сегнетоэлектрических материалов, в том числе и явление диэлектрического гистерезиса. В настоящее время известно достаточно большое число результатов экспериментальных и теоретических исследований динамики доменной структуры и процессов переключения поляризации. Экспериментальные методики, как правило, сосредоточены либо на прямом наблюдении кинетики доменных границ с помощью аналитических возможностей микроскопической техники, либо на исследовании изменения электрических характеристик образцов, подверженных внешним воздействиям. При этом процессы перестройки доменной структуры могут определяться как характеристиками самого кристалла (присутствие дефектов, структура и геометрия доменов и пр.), так и условиями экспериментального наблюдения (наличие электродов, характеристики электродов и состояние поверхности образца) [9-10].

Первыми работами, проведенными в данном направлении, можно считать исследования Mitsui и Furuichi, Merz и Жирнова [8]. Mitsui и Furuichi наблюдали наряду с непрерывным и скачкообразный рост доменов в кристаллах сегнетовой соли и KDP. Механизм переключения поляризации, ассоциированный со скачкообразным характером перестройки доменной структуры, назван гистере-

зисным и представляет собой некий аналог сухого трения. При этом появление зародышей новой фазы вблизи доменных границ осуществляется при условии достижения электрическим полем некоторого порогового значения. При теоретических расчетах толщины и энергии доменных стенок в сегнетоэлектрических материалах кристалл часто рассматривается как континуальный объект. На основе феноменологического подхода были проведены расчеты энергии и толщины доменной стенки для ряда сегнетоэлектрических материалов. Жирновым было установлено, что толщина доменной стенки имеет размер порядка одной постоянной решетки [11]. Полученные в рамках феноменологической теории выводы относительно энергии и толщины доменных стенок в предположении непрерывной среды оказываются затруднительными в применении в случае, когда толщина стенки сопоставима с несколькими постоянными решетки.

Особое направление представляют исследования характеристик доменных стенок на основе микроскопической теории. Так, известны работы Kinase и Takahashi, в которых была сформулирована микроскопическая теория для 180°-доменной стенки BaTiO₃ [3]. Принимая во внимание энергию дипольного взаимодействия, Kanzig и Sommerhalder предложили соотношение для энергии доменной стенки [3].

Для описания скорости движения доменной стенки многие исследователи предлагают использовать экспоненциальную зависимость скорости v от приложенного поля E [3], [14-16]:

$$v = v_{\infty} \exp\left(-\frac{\delta}{E}\right), \quad (1.4)$$

где v_{∞} – максимальная скорость движения стенки (в приближении бесконечного поля); E – внешнее поле; δ – поле активации.

Для визуального наблюдения доменной структуры сегнетоэлектрических кристаллов исследователями активно применяется широкий спектр методов. Одним из распространенных способов является использование поляризационного микроскопа, он описан, например, в [1]: «При введении кристалла между

скрещенными поляроидами падающий на кристалл линейно-поляризованный свет в общем случае разлагается на два луча, которые при прохождении через кристалл приобретают разность фаз, в результате чего система «просветляется».

Также для визуализации статических доменных конфигураций используют метод химического травления. В результате на поверхности кристалла образуется некий геометрический рельеф, выявляющий исходную доменную структуру, который можно наблюдать в микроскопе. В качестве травителей традиционно применяются вода, этиловый спирт, кислоты [1, 3, 17]. Кроме того, для визуализации доменной структуры используются: метод осаждения заряженных порошков [18-19]; метод пирозлектрического сканирования кристалла в микрообластях и измерения распределения поверхностной деформации сегнетоэлектрика, обусловленной электрическим пьезоэлектрическим эффектом; метод нематических жидких кристаллов [20]; регистрация токов локальной переполаризации подвижным иглообразным электродом [21]; метод экзоэлектронной эмиссии; метод «росы» – осаждение на поверхности кристалла заряженных замерзших водяных капелек [1].

Непрямое наблюдение доменов кристалла ТГС можно провести путем нанесения на поверхность образцов электролюминесцентного слоя, который «поджигался» в переключающихся образцах при приложении к образцу электрического поля. Похожим является метод, использующий эффект изменения коэффициента отражения пленки золота, нанесенной на поверхность сегнетоэлектрика [1].

В последнее время для исследования доменной структуры широкое распространение получили зондовые методы [22-26]. Каждый из этих методов имеет свои особенности. Так, например, метод РЭМ позволяет получить распределение поверхностного потенциала, тем самым – прямое изображение доменной структуры с высоким разрешением, причем качество изображения практически не зависит от топографии поверхности. Наблюдение доменной структуры в просвечивающем электронном микроскопе предполагает исполь-

зование очень тонких образцов [25]. Метод атомно-силовой микроскопии (АСМ), напротив, зависит от топографии поверхности и, помимо получения изображений доменов, позволяет исследовать морфологию поверхности сегнетоэлектрических кристаллов [23, 24, 27]. Примечательно стремление исследователей скомбинировать аналитические возможности зондовых приборов для еще более многоаспектного анализа сегнетоэлектриков, – как, например, в [26] метод РЭМ соединен с методом АСМ в единую гибридную систему.

В полидоменном сегнетоэлектрическом образце в условиях внешнего полевого воздействия происходит изменение ориентации вектора спонтанной поляризации, сопровождающееся перестройкой доменной структуры. Переключение поляризации реализуется как за счет кинетики доменных границ, так и посредством зарождения и прорастания доменов новой фазы, ориентированных в направлении приложенного поля.

В описании процесса переключения поляризации, как правило, выделяют три взаимосвязанных этапа. На первой стадии процесса образуются зародыши новых доменов с направлением поляризации \mathbf{P} , ориентированной противоположно направлению спонтанной поляризации \mathbf{P}_S . Следующий этап включает сквозное прорастание антипараллельных доменов. Заключительная стадия предполагает расширение объемов новых доменов за счет бокового движения доменных границ.

Основными интегральными характеристиками динамики изменения полярного состояния кристалла являются ток $I(t)$ и плотность тока переключения поляризации $i(t)$. Величина скорости изменения поляризации меняется со временем и определяется как спецификой протекания поляризационных процессов в кристалле, так и условиями внешнего полевого воздействия. По окончании процесса переключения сегнетоэлектрика скорость изменения поляризации принимает нулевое значение, которое может быть изменено при условии приложения внешнего воздействия в обратном направлении. Стандартная схема регистрации тока переключения поляризации предполагает измерение падения напряжения на последовательно включенным с кристаллом омическом сопро-

тивлении. Величина переключаемого заряда определяется площадью под кривой импульса тока переключения поляризации. Применение процедуры интегрирования к импульсу тока переключения позволяет оценить величину спонтанной поляризации кристалла:

$$\int_0^{\tau} I(t) dt = 2P_S \cdot S, \quad (1.5)$$

где $I(t)$ – ток переключения; S – площадь грани кристалла.

Результаты экспериментальных исследований процесса переключения поляризации для монокристаллов BaTiO_3 представлены в ранней работе Merz [28]. Предложенный Merz метод наблюдения тока реполяризации при переключении в импульсных полях и в настоящее время является актуальным для кристаллов с малой проводимостью. Одной из первых работ, посвященных исследованию полного цикла переключения поляризации сегнетоэлектрика, является работа Miller [29], в которой применены жидкие электроды, а процесс переключения в кристалле титаната бария инициирован механическим воздействием на поверхность образца.

Процесс переключения поляризации в сегнетоэлектрических материалах сопровождается скачкообразным изменением поляризации, или эффектом Баркгаузена [6]. Многие авторы связывают появление данного эффекта со стохастическими процессами зарождения, роста и слияния доменов новой фазы. Форма и характерные размеры скачков Баркгаузена описывают специфику состояния доменной структуры в текущий такт времени. При этом исследование импульсов Баркгаузена представляют чувствительную методику исследования кинетики доменных границ.

1.1.3. Основные положения термодинамической теории сегнетоэлектричества

Термодинамической теорией, позволяющей количественно описать поведение материала в окрестности фазового перехода первого и второго рода, является теории структурных фазовых переходов Ландау. На основе теории Ландау Гинзбург и Девоншир развили феноменологическую термодинамическую

теорию сегнетоэлектричества [4]. Данная теория описывает структурные фазовые переходы, ассоциированные с изменением порядка расположения атомов или с изменением кристаллографической сингонии образца.

Согласно концепциям термодинамической теории, состояние равновесной сегнетоэлектрической системы может быть задано фиксированным набором величин: поляризация (\mathbf{P}), электрическое поле (\mathbf{E}), температура (T), механические деформации (η) и напряжение (σ). Как правило, поляризация и деформация вводятся в рассмотрение как внутренние параметры, электрическое поле и механическое напряжение – как внешние. Основной тезис термодинамической теории сегнетоэлектриков формулируется в виде: при заданных внешних параметрах свободная энергия сегнетоэлектрика F может быть представлена как функция десяти переменных (шесть компонент тензора деформаций, три компоненты поляризации и одна скалярная величина – температура). Вторым фундаментальным аспектом является априорное требование – величины зависимых переменных соответствуют минимуму свободной энергии F для равновесного состояния системы.

В окрестности температуры Кюри функция F раскладывается в степенной ряд, параметры которого могут быть рассчитаны с использованием экспериментальных данных или на основе первопринципного моделирования. Условия centrosymmetry неполярной фазы позволяют уменьшить число членов ряда. В частном случае, когда приложенные механические напряжения отсутствуют, индукция направлена вдоль одной из кристаллографических осей, для одноосного сегнетоэлектрика свободную энергию можно разложить по степеням единственной компоненты поляризации [30]:

$$F_P = \frac{1}{2} aP^2 + \frac{1}{4} bP^4 + \frac{1}{6} cP^6 - EP, \quad (1.6)$$

где a , b и c – коэффициенты.

Равновесной конфигурации будет соответствовать минимум плотности свободной энергии F_P : $\frac{\partial F_P}{\partial P} = 0$. Выражение (1.6) позволяет определить зависимость электрического поля E от поляризации P :

$$E = aP + bP^3 + cP^4. \quad (1.7)$$

Линейную диэлектрическую восприимчивость выше точки перехода можно определить, дифференцируя выражение (1.7) по P и принимая $P = 0$:

$$\chi = \frac{P}{E} = \frac{1}{a}. \quad (1.8)$$

Согласно теории Ландау – Девошира, предполагается, что в окрестности температуры Кюри T_C коэффициент a зависит от температуры

$$a = a_0(T - T_0), \quad (1.9)$$

в то время как другие коэффициенты в разложении термодинамического потенциала от температуры не зависят. Температура T_0 , при которой a изменяет знак, не всегда совпадает с температурой Кюри. Для большинства сегнетоэлектриков будет справедлив закон Кюри – Вейса (для χ) при $T > T_0$:

$$\frac{1}{\chi} = a_0(T - T_0). \quad (1.10)$$

Выражение для плотности свободной энергии, с учетом линейной температурной зависимости коэффициента a , имеет вид:

$$F_P = \frac{1}{2}a_0(T - T_0)P^2 + \frac{1}{4}bP^4 + \frac{1}{6}cP^6 - EP, \quad (1.11)$$

где коэффициенты a_0 и c положительны для всех известных сегнетоэлектриков.

Зависимость свободной энергии от поляризации в параэлектрической ($T \gg T_0$) и сегнетоэлектрической ($T \ll T_0$) фазах показана на рис. 1.3.

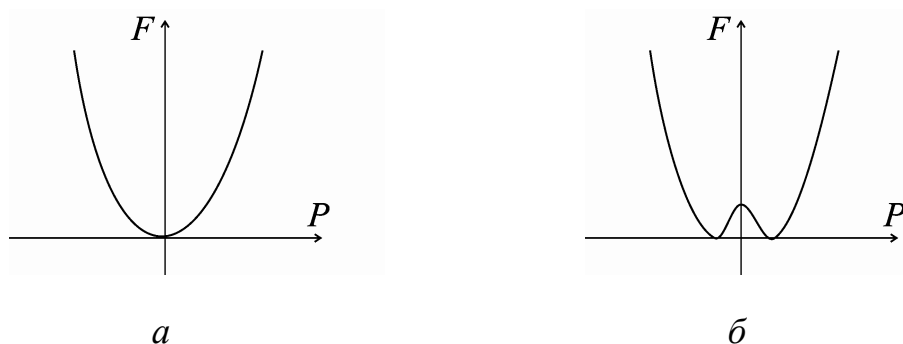


Рис. 1.3. Общий вид зависимости свободной энергии от поляризации для параэлектрического (а) и сегнетоэлектрического (б) состояния.

Изменение свободной энергии между этими конфигурациями, зависит от знака коэффициента b . При $T = T_0$, если $b > 0$, происходит переход второго рода, а если $b < 0$ – фазовый переход первого рода [31].

Роль термодинамической теории Ландау – Гинзбурга – Девоншира в исследовании сегнетоэлектриков трудно переоценить. Она служит теоретическим базисом, позволяющим с точки зрения различных приближений описывать диэлектрические, пьезоэлектрические, пьезоэлектрические, электрокалорические и другие свойства сегнетоэлектрических материалов и во многих случаях дает удовлетворительное согласование с результатами экспериментов. Так, например, в работе [32] использованы концепции этой теории в совокупности с методом Монте-Карло, которые позволяют рассчитать модель доменных конфигураций и оценить некоторые макроскопические характеристики.

1.2. Доменная структура и переключения поляризации

в сегнетоэлектриках: теоретические аспекты и моделирование

1.2.1. Базовые модельные представления динамики доменных границ и основных характеристик процесса переключения поляризации

В ранних исследованиях, проведенных Miller и Weinreich [3], представлена модель, которая позволила объяснить экспериментально наблюдаемые закономерности перестройки доменной структуры. Скачкообразное или непрерывное движение доменной границы является энергетически невыгодным вследствие того, что энергия, которую надо затратить на перемещение границы на расстояние порядка одной постоянной решетки, сравнима с энергией самой стенки. Исследование поведения модели позволило сделать фундаментальный вывод относительно характера перестройки доменной структуры в процессе переключения поляризации: боковое движение доменных границ осуществляется за счет образования и прорастания зародышей доменов противоположной фазы, имеющих треугольную форму и примыкающих к доменной границе (рис. 1.4). В основу многих модельных представлений движения доменных границ положено следующее предположение: в равновесном состоянии доменные границы

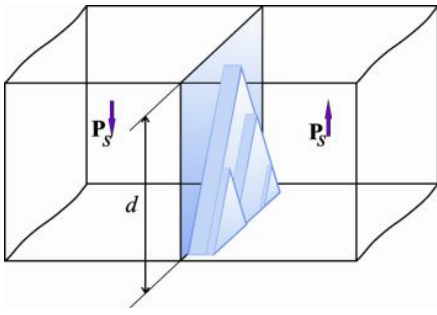


Рис. 1.4. Геометрическая схема бокового роста доменов в сегнетоэлектрике.

закреплены на дефектах, совершая тепловые флуктуации относительно этого положения. При достижении приложенных полей пороговых значений неравновесные условия инициируют процессы перестройки доменных структур.

В ряде работ [20, 33-40] были развиты основы феноменологической теории применительно к описанию динамики доменных границ в предположении действия на последние термодинамических сил

различной природы. Кроме того, применение микроскопического подхода к моделированию кинетики доменных и межфазных границ часто предполагает введение в постановку задачи моделирования феноменологических сил вязкости различной природы [33, 35, 36, 38] или инерции [37]. В серии работ отечественных и зарубежных авторов был использован подход, предложенный Kittel и Galt [41] для ферромагнетиков. Так, для описания динамики доменных и межфазных границ Шильниковым [33] было введено уравнение релаксационного обратимого движения доменных границ:

$$\eta x' + kx = 2P_S \cdot E, \quad (1.12)$$

где x – боковое смещение доменной границы; P_S – спонтанная поляризация; $2P_S \cdot E$ – приложенная сила; на единицу площади доменной границы действует упругая сила $-kx$ и сила вязкого трения $-\eta x'$.

Позже Поповым [35] в этой модели были учтены релаксационный и гистерезисный механизмы движения доменных границ. В работах Нестерова [36, 42] приведены результаты экспериментальных исследований и данные компьютерного моделирования динамики доменных и межфазных границ, наблюдаемых в сегнетокерамиках на основе цирконата-титаната свинца. Автором использовано уравнение (1.12), в котором был учтен в аналитическом виде член, отражающий силу сухого трения, действующую на доменную границу. Высказано предположение о характере и механизмах движения доменных границ в низкочастотных и инфранизкочастотных синусоидальных полях различных ам-

плитуд. Проведена оценка влияния динамики доменной границы на общие диэлектрические свойства исследуемых образцов в диапазоне температур, включающем точку Кюри.

В исследованиях, представленных в [38], проведено имитационное моделирование смещения доменных границ для сегнетоэлектрической керамики, обладающей так называемой паркетной доменной структурой. Авторы предположили, что в равновесном состоянии образец характеризуется наличием только 90° доменных стенок, в процессе переключения поляризации под действием приложенного поля происходит зарождение и прорастание 180° доменов, при этом число зародышей новой фазы и их размеры зависят от величины приложенного поля. Критическим параметром введенной модели служит понятие критического размера зародыша новой фазы.

Результаты построения модели и исследования на ее основе закономерностей поведения доменных границ в окрестности фазового перехода представлены в работе Parlunski [43]. Автор ввел в рассмотрение модельное представление одной ячейки, которая обладает потенциальной энергией.

В цикле работ Донцовой [20] было установлено, что в равновесных условиях (в отсутствии приложенного электрического поля) к смещению доменных границ способны приводить силы поверхностного натяжения. Как было показано в работе [11], зависимость поверхностной энергии доменной стенки от температуры приводит к появлению термодинамических сил, действующих на эту границу в условиях внешнего температурного воздействия. При достижении температуры Кюри T_C поверхностная энергия границы принимает нулевое значение. Модель движения доменной границы в поле градиента температуры, построенная на вариационных принципах и реализованная на основе статистического метода Монте-Карло и метода локальных вариаций, представлена в работе [39-40].

Фундаментальные положения термодинамической теории сегнетоэлектричества положены в основу ряда математических моделей динамики доменных границ в сегнетоэлектриках [44-47], а также расчета петель гистерезиса [48], диэлектрических характеристик и пироэлектрического отклика [49]. Мо-

дель кинетики переключения сегнетоэлектриков со 180° доменами представлена в работах Кукушкина и Осипова [46-47]. С использованием термодинамического подхода и кинетических уравнений для фазовых переходов авторами была построена система уравнений, описывающая процессы переключения с учетом изменения поляризации; введено выражение, описывающее изменение поляризации со временем; предложены методики расчета набора констант, описывающих эволюцию тока переключения для сегнетоэлектриков.

Используя следствия термодинамической теории сегнетоэлектриков, Menzel и соавторами [45] ввели в рассмотрение две модели (первая из них использует выражение для относительного объема переключения, зависящего от параметра времени, вторая представляет «реориентационную-трансформационную» модель, в которой тензор ориентации определяется параметром времени), предназначенные для описания процесса переключения применительно к сегнетоэластике. Известны также описанные в литературе результаты расчета макроскопических характеристик для сегнетоэлектрических кристаллов с перовскитной структурой (на примере титаната бария) на основе микромеханических расчетов [50].

Развитие имитационного подхода для моделирования фазового перехода в сегнетокерамике представлено в [51]. Автор использовал концепции теории перколяции для описания рассматриваемых явлений.

В последние годы в качестве теоретического базиса для модельного описания токов переключения поляризации в сегнетоэлектриках используют статистическую теорию кристаллизации Колмогорова – Авраами. Первоначально основные концепции данной теории были сформулированы для описания фазовых переходов в бесконечном объеме в предположении, что размеры зародышей новой фазы малы по сравнению с основным объемом образца, а количество таких зародышей достаточно велико и характеризуется случайным распределением в пространстве и времени [52-55]. Основные положения данной теории находили неоднократное применение для описания процессов роста кристаллов и явлений кристаллизации в металлических и аморфных системах. Одними из первых теорию Колмогорова – Авраами для процесса переключения по-

ляризации в сегнетоэлектриках применили Fatuzzo, Ishibashi и Takagi [56-61]. В рамках описания процесса переключения поляризации сегнетоэлектриков с использованием теории Колмогорова – Аврами практически всеми авторами используется выражение для тока переключения поляризации в следующем общем виде:

$$I(t) = 2P_S \cdot S \cdot \frac{V(t)}{dt}, \quad (1.13)$$

где P_S – спонтанная поляризация; S – площадь электрода образца.

Таким образом, ток переключения поляризации определяется изменением с течением времени отношения переключенного объема V_{sw} к полному объему сегнетоэлектрического образца: $V(t) = \frac{V_{sw}(t)}{V}$.

Модели (1.13) применяются как для описания процесса переключения поляризации объемных кристаллов [56-59, 62], так и тонких пленок [64, 68]. Следует отметить, что классическая модель Колмогорова – Аврами не всегда приводит к теоретическому обоснованию наблюдаемых явлений и удовлетворительному описанию динамики доменов. В связи с этим на практике получили развитие многочисленные модификации модели, которые позволили адаптировать общую концепцию данной теории для конкретных объектов. Так, в работе [14] методом пьезосканирующей микроскопии исследованы процессы перестройки доменной структуры в пленках PZT на уровне наномасштабных размеров. Показано, что процесс переключения начинается в строго predeterminedной позиции и в целом не подчиняется классической теории Колмогорова. Авторами предложены собственные выражения, аппроксимирующие зависимость $V(t)$ и скорость движения доменной границы.

В классической модели, введенной [56-57], предполагалось, что зависимость $V(t)$ может быть аппроксимирована следующим выражением:

$$V(t) = 1 - \exp\left[-\left(\frac{t}{t_0}\right)^n\right], \quad (1.14)$$

где n – размерность доменного роста; t_0 – характерное время переключения.

Выражение (1.14) применялось для описания токов переключения для ограниченного объема и целых значений показателя доменного роста n : значение $n=3$ соответствовало случаю трехмерного роста доменов, $n=2$ – для $2D$ -роста цилиндрических изолированных доменов и, соответственно, $n=1$ – для одномерного роста. Во многих случаях использование теории, развитой в работах [56-57], давало удовлетворительное согласование с данными эксперимента при варьировании не только параметра t_0 , но и использовании дробных значений параметра n . К такому же результату пришел и автор работ [62-63]. Кроме того, данная теория недостаточно хорошо позволяла описывать спадающую часть тока, особенно для сегнетоэлектриков-сегнетоэластиков, и при переключении поляризации в тонких пленках.

Шуром, Румянцевым и Макаровым [64-67] предложена модификация модели Колмогорова-Аврами, согласно которой в исходную модель в выражение $V(t)$ введена поправка $(1-t/t_m)$ с постоянной t_m , учитывающей взаимодействие растущих доменов с границами образца. В цикле работ Шура и коллег [66-67] представлены результаты экспериментальных исследований и теоретического описания кинетики доменных структур и токов переключения широкого ряда сегнетоэлектриков. Для исследования последовательных стадий эволюции доменных структур использовались методы сканирующей зондовой микроскопии, визуализация химическим травлением и последующим исследованием рельефа с помощью оптического и сканирующего электронного микроскопа и др.

В работах Николаевой [67] проведено исследование и рассмотрены закономерности перестройки доменной структуры одноосных сегнетоэлектриков в условиях приложенного внешнего поля с учетом влияния внешнего и объемного экранирования. Автором введен в рассмотрение скачкообразный механизм движения доменной границы, установлены условия осуществления подобного движения при взаимодействии с дефектами, а также введен критерий, при котором локальное поле достигает значения порогового.

Модель Колмогорова – Аврами применялась для описания токов переключения поляризации и в ряде работ других авторов. Так, например, в [16]

проведены исследования процесса переполаризации тонких пленок NaNO_2 в пульсирующих полях; высказано предположение, что процесс перестройки доменной структуры определяется механизмом зародышеобразования. Для описания тока переключения авторы использовали соотношение (1.13), а также степенную зависимость переключенного объема кристалла от времени:

$$V(t) = 1 - \exp\left(-\left(\frac{t}{t_0}\right)^n\right) \text{ при } t < t_s, t_0 = \left(\frac{n}{RCv^{n-1}}\right)^{1/n}, \quad (1.15)$$

$$V(t) = 1 - q(t_s) \exp(-RL^{n-1}(t - t_s)) \text{ при } t \geq t_s,$$

где R – скорость зародышеобразования; v – скорость движения доменной стенки; n – размерность, которая может принимать нецелочисленные значения; C – константа формы доменов; L – размер зерен; t_s – время переключения; $q(t_s)$ – доля непереключенного объема в момент времени t_s .

В работе Kumar [68] исследован процесс перестройки доменной структуры в пленках KNO_3 . Установлено, что процесс переключения в пленках осуществляется за счет роста доменов иглообразной формы, теоретическая форма кривой тока переключения построена с использованием подхода Колмогорова – Аврами в модификации Ishibashi и Takagi:

$$I(t) = \left(\frac{2P_S \cdot S \cdot n}{t_0}\right) \left(\frac{t}{t_0}\right) \exp\left(-\left(\frac{t}{t_0}\right)^n\right), \quad (1.16)$$

где P_S – спонтанная поляризация; n – размерность доменного роста; S – площадь электрода образца; t_0 – характерное время переключения.

В концепции данной модели предполагается, что скорость зародышеобразования остается постоянной в процессе переключения.

В модификации модели Колмогорова – Аврами, описанной в работе [69], предложено использовать выражение (1.4), представленное в форме:

$$\frac{1}{t_0} = \frac{1}{t_\infty} \exp\left(-\frac{\delta}{E}\right), \quad (1.17)$$

где t_∞ – время переключения, соответствующее бесконечно большому приложенному полю.

Подстановка (1.17) в (1.14) позволила авторам ввести в рассмотрение так называемую составную модель Колмогорова – Аврами – Ишибаши, которая предполагает, что процесс переключения в тонких пленках представляет результат вклада процессов доменного роста с различными размерностями:

$$V(t) = \sum_{n=1}^3 A_n \left[1 - \exp \left(- \left(\frac{t}{t_\infty} \right)^n \cdot \exp \left(- \frac{n\delta}{E} \right) \right) \right], \quad (1.18)$$

где $A_n \leq 1$ – коэффициент вклада от каждой размерности доменного роста ($n=1,2,3$).

1.2.2. Применение теории фракталов для описания геометрии, динамики доменных границ и переключения поляризации в сегнетоэлектриках

В настоящее время известно, что многие диссипативные твердотельные структуры, самоорганизующиеся в открытых системах, являются фрактальными. Под фрактальностью в широком смысле понимают свойство объектов быть подобными самим себе. Термин «фрактал» был впервые введен в 1975 г. Мандельбротом, обобщившим и систематизировавшим представления целой плеяды ученых о так называемых странных объектах, или математических монстрах. Понятие «фрактал» сформулировано в книге Mandelbrot «The Fractal Geometry of Nature»: «Фракталом называется структура, состоящая из частей, которые в каком-то смысле подобны целому» [70]. Именно начиная с 70-х гг. прошлого века теория фракталов выделилась в отдельную дисциплину, развитие которой продолжается и в настоящий период [71-74]. Теория фракталов служит одним из основных математических инструментариев, активно применяемым в синергетике для описания геометрических свойств сложных объектов, к которым неприменимы методы классической евклидовой геометрии, а также для анализа нерегулярного поведения динамических систем и процессов. Центральным понятием в теории фракталов и мультифракталов является понятие фрактальной размерности. Очевиден факт широкого использования методов фрактального анализа и в физике конденсированного состояния [75].

Как было отмечено, перестройка доменной структуры в процессе переключения поляризации происходит посредством появления определенного числа зародышей доменов новой фазы и их сквозного и/или бокового прорастания. В соответствии с концепцией, сформулированной Miller и Weinreich, кинетика доменных границ реализуется за счет «пристеночного зародышеобразования» и возможного в дальнейшем образования зародышей на уже существующих ступеньках новой фазы, как это показано на рис. 1.4. Данный процесс отделяет два различных полярных состояния сегнетоэлектрика и, что самое важное, определяет процесс переключения поляризации. Таким образом, доменные конфигурации типичных сегнетоэлектрических материалов, являясь результатом процесса образования самоподобных структур, также обнаруживают фрактальные геометрические свойства.

Несмотря на то, что теория фракталов является сравнительно молодым и новым направлением, в настоящее время существует определенный круг работ, посвященных выявлению и анализу фрактальных свойств сегнетоэлектрических материалов и их характеристик.

В ряде работ Ozaki [76-78] проведены исследования фрактальных свойств кристаллов KH_2PO_4 (KDP), CsH_2PO_4 (CDP), $(\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH})_3\text{H}_2\text{SO}_4$ (ТГС). В [76-77] автор утверждает, что периодическая 180° доменная структура кристалла KDP, наблюдаемая с помощью поляризационного и растрового электронного микроскопов, характеризуется так называемой предфрактальной структурой, строение которой во многом определяется, как и было показано выше, энергетическим оптимумом между значением деполяризующих полей и энергией доменных стенок. Аналогия между множеством Кантора и фрактальной моделью структуры кристалла KDP позволяет оценить фрактальную размерность последнего (одномерный профиль), которая оказалась равной $D=0.756$. В [78] автор исследует РЭМ-изображения доменных структур кристаллов CDP и ТГС. Полосчатая структура антипараллельных доменов этих кристаллов позволила автору вновь провести аналогию со строением множества Кантора и ввести в рассмотрение соответствующую фрактальную размерность.

Несколько позже появились работы отечественных авторов, связанные с исследованием фрактальных особенностей геометрии доменных конфигураций. Природа фрактальных образований на поверхности сегнетоэлектрических кристаллов с размытым фазовым переходом рассмотрена на качественном уровне в работах [79-80]. Свойство фрактальности кристаллов цинкониобата свинца (PZN), магний-ниобата свинца (PMN), скандо-танталата свинца (PST), скандо-ниобата свинца (PSN), обнаруженных при изучении малоуглового рассеяния света, автор [80] связал со спиральным характером прорастания доменов.

В ряде работ Шура и Пелегова [81] изложены концепции использования фрактальной теории для описания кинетики фазовых переходов. Объектами исследования выбраны пленки и керамика PZT. Авторами предложено характеризовать кинетику фазовых переходов с использованием теории фракталов, при этом характеристикой рассматриваемых процессов является зависимость фрактальной размерности от времени. Исследовано влияние ограниченного диапазона скейлинга на значение фрактальной размерности. Предложенный метод апробирован для анализа результатов измерения углового рассеяния света на примере релаксорной керамики PZT.

В работе Шура и соавторов [82] показано формирование самоподобных поверхностных нанодоменных структур в ниобате лития под действием лазерного облучения, а также описаны механизмы формирования основных элементов таких структур с использованием построенных имитационных моделей и на основе фрактального анализа изображения «box-counting» методом.

В диссертации и цикле работ Галияровой [83-86] показано, что сегнетоэлектрики могут быть охарактеризованы как самоподобные объекты с фрактальной доменной структурой, формирование и эволюция которой происходят в ходе самоорганизации термодинамической системы в условиях согласованного протекания всех процессов (при взаимодействии границ с дефектами, экранирующими зарядами, полярно-подобными состояниями). А также выявлена высокая чувствительность динамической дробной размерности и других фрактальных параметров к изменению свойств доменных и межфазных границ и

механизмов поляризации, в частности к смене упругого движения границ на пластическое, доменной природы релаксации – на кластерную. Проведены оценки фрактальных характеристик сегнетоэлектриков для диэлектрических откликов сегнетоэлектриков на примере сегнетовой соли, дигидрофосфата цезия (CDP), триглицинсульфата (ТГС), титаната бария (BaTiO_3) и молибдата гадолиния (GMO).

В работе [87] автор описал результаты изучения тонких пленок цирконата-титаната свинца $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ с помощью АСМ. Исследованию подлежали такие свойства поверхности как шероховатость, микроструктура и фрактальные характеристики. Размерность, оцененная с помощью методик фрактального анализа, оказалась принадлежащей интервалу (2.10 – 2.50). Было также установлено, что в результате отжига фрактальная размерность структур увеличивается.

Солодуха в своей диссертации [88] описывает явления электропереноса и диэлектрического отклика неоднородных полярных материалов в слабых и сильных электрических полях в рамках «единого подхода, основанного на фрактальных свойствах диссипативных открытых систем, в которых реализуются пространственные и временные самоподобные структуры».

Двумерная компьютерная модель эффекта усталости, наблюдаемого в сегнетоэлектрических тонких пленках, описана в работе [89]. В работе представлена модифицированная модель диффузной ограниченной агрегации с учетом изменения приложенного поля. Автором было установлено, что в начальных стадиях процесса эффект усталости проявляется незначительно, однако на заключительных стадиях скорость его существенно увеличивается. Кроме того, и усталостная прочность, и средняя величина фрактальной размерности модели увеличиваются при возрастании внешней нагрузки на образец.

Самоподобные структуры наноразмерного масштаба в сегнетоэлектрических тонких пленках наблюдались в работе [90]. Теоретическим базисом для построения модели послужили расчеты из первых принципов для структуры типа перовскита.

Фрактальная динамика доменов была исследована и в современной работе [91], в которой рассмотрена фрактальная модификация термодинамической модели, получено численное решение, позволяющее оценить скорость доменного роста и фрактальную размерность динамики доменной структуры. Оценка мультифрактальных параметров использована при исследовании микроструктуры сегнетоэлектрических керамик $\text{NaNbO}_3\text{-Ca}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ и $\text{NaNbO}_3\text{-Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ в работе [92]. Авторские результаты расчета фрактальных и мультифрактальных характеристик РЭМ-изображений статических и динамических доменных конфигураций типичных сегнетоэлектриков представлены во второй главе монографии и освещены в работах [93-95].

Следует заметить, что не только геометрическое строение доменов, но и динамические характеристики сегнетоэлектриков позволяют диагностировать фрактальные свойства. Так, в работе [67] использован метод Херста для оценки фрактальных параметров шумов Баркгаузена в стехиометрическом танталате лития. Метод Фурье был применен для оценки фрактального характера импульсов токов переключения для модельных кривых [96]. Исследованию фрактальных и мультифрактальных свойств динамического отклика сегнетоэлектриков – импульсов тока переключения поляризации на основе методов анализа временных рядов – посвящена третья глава монографии и работы [97-105] автора.

Кроме того, важным направлением в исследовании фрактальных свойств перестройки доменных конфигураций и генерации отклика сегнетоэлектриков на внешние воздействия является использование методологии теории фракталов для построения математических моделей формирования тока переключения поляризации в сегнетоэлектриках.

Приведенные выше модификации модели Колмогорова – Авраами используют упрощенные представления о динамике доменной структуры и не учитывают такие важные факторы как стохастические изменения диэлектрических свойств, внутренняя экранировка, эффекты анизотропии и запаздывания взаимодействий, особенности энергетического спектра системы и пр. В результате,

как отмечают в своей работе Мейланов и Садыков [106], «согласие с экспериментом достигается лишь при дробных значениях размерности кинетического процесса и не удастся удовлетворительно аппроксимировать спадающую часть импульса тока». В работе [106] предложен альтернативный подход к описанию тока переключения поляризации в сегнетоэлектриках, основанный на применении концепций дробного дифференциального исчисления. Теория дробного дифференцирования применяется для описания процессов и явлений, обладающих фрактальными характеристиками. Для указания на тот факт, что рассматриваемый процесс обладает особым свойством – памятью, используют дробную производную по времени. Концептуальная постановка задачи моделирования тока переключения поляризации сегнетоэлектриков [106-107] строится на следующей гипотезе: механизмы перестройки доменных структур сегнетоэлектриков обладают фрактальными свойствами, а сам процесс переключения – памятью. Математическая постановка задачи описания тока переключения поляризации в этом случае строится на основе модификации подхода (1.13) с использованием производной по времени дробного порядка. Развитие данной модели с учетом степенной зависимости параметра роста представлено в четвертой главе монографии и в работах [108-109] автора.

1.3. Применение методик растровой электронной микроскопии для исследования и модификации свойств сегнетоэлектрических материалов

1.3.1. Методика и назначение растровой электронной микроскопии

Растровый электронный микроскоп (РЭМ) является аналитическим прибором, который нашел широкое применение в самых разнообразных областях научной и практической деятельности для изучения структуры материалов и топографии поверхности. По степени распространения и использования в научных и прикладных исследованиях РЭМ превзошел просвечивающие электронные микроскопы и становится не менее популярным, чем световые микроскопы. Активный интерес к применению методов РЭМ обусловлен достаточной

простотой изготовления образцов, высокой степенью автоматизации количественного анализа и обработки результатов измерений, а также возможности получить большой объем информации с учетом вариации методик зондирования и способов генерации отклика [12].

В приборе анализируемый объект облучается пучком электронов, обладающих определенной энергией. Электронный луч может быть остро сфокусированным либо развернутым в растр, может находиться в фиксированной позиции либо перемещаться по поверхности образца.

В схеме работы РЭМ можно выделить следующие основные блоки: электронно-оптический, предназначенный для формирования электронного пучка и обеспечения возможности сканирования поверхности объекта, и блок, формирующий изображение. Микроскоп обладает также автоматизированной вакуумной системой и устройствами точной механики: шлюзы, держатели образцов и пр. [13]. Отличительной характеристикой РЭМ является возможность использовать практически любой регистрируемый отклик образца на воздействие электронного зонда для получения информации в точке, анализа и визуализации изображения (рис. 1.5).

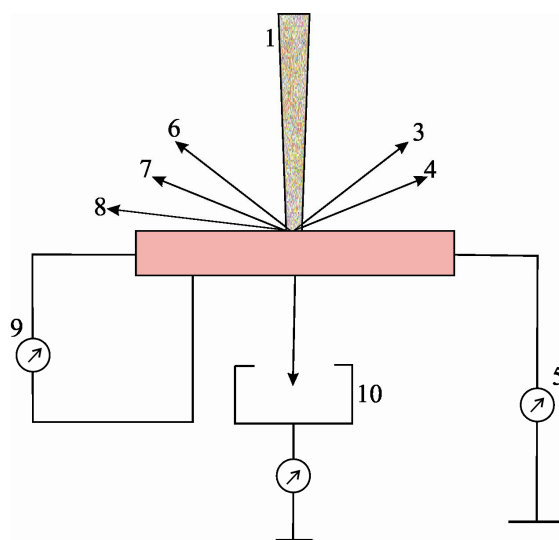


Рис. 1.5. Эффекты, возникающие при взаимодействии пучка электронов с веществом (1 – электронный пучок; 2 – образец; 3 – отраженные электроны; 4 – вторичные электроны; 5 – ток поглощенных электронов; 6 – катодолуминесценция; 7 – рентгеновское излучение; 8 – оже-электроны; 9 – наведенный ток; 10 – прошедшие электроны) [13].

При взаимодействии электронного пучка с исследуемым объектом возникают многочисленные явления, основополагающими среди которых являются генерации: вторичных (4) и отраженных (3) электронов, характеристического рентгеновского излучения (7), оже-электронов (8) и фотонов различных энергий (рис. 1.5). Данные эффекты стимулируются воздействием электронного пучка на образец и генерируются внутри образца. Регистрация откликов образ-

ца на множественное воздействие электронного зонда и позволяет измерять многие его характеристики (состав, топография поверхности, кристаллографическая ориентация и пр.) [13]. В методиках РЭМ один из важнейших эффектов – явление вторичной электронной эмиссии, которое обусловлено разницей в топографии поверхности при развертке электронного пучка в растр по поверхности образца. Численную характеристику такого явления дает коэффициент вторичной электронной эмиссии, характеризующий баланс между падающими и покидающими образец электронами. К общему числу электронов, покинувших поверхность вещества, относят: отраженные (упруго, квазиупруго и неупруго), первичные электроны, электроны решетки, получившие добавочную энергию в результате взаимодействия с первичными электронами и способные выйти в вакуум [12].

Уникальные аналитические возможности РЭМ регистрировать специфические отклики на воздействие электронного пучка позволяют всесторонне исследовать материалы, которые обладают высокой чувствительностью по отношению к внешним воздействиям. При этом одним из ключевых вопросов является исследование изменений образцов, которые потенциально могут быть инициированы воздействием электронного луча РЭМ.

1.3.2. Использование аналитических возможностей

растровой электронной микроскопии для изучения полярных материалов

Актуальные направления РЭМ связаны не только с визуализацией топографии поверхности, но и также с исследованием потенциального рельефа полярных материалов. Возможность наблюдения распределения электрических и магнитных полей в РЭМ обусловлена прежде всего их воздействием на траектории вторичных электронов. В связи с чем, начиная с середины прошлого века, аналитические возможности РЭМ применяются для визуализации доменной структуры, исследования и модификации электрических свойств сегнетоэлектриков [110-138].

Первая работа, посвященная исследованию доменной структуры сегнетоэлектрика с помощью методик РЭМ, была выполнена Robinson и White [110].

Авторы визуализировали доменную структуру BaTiO_3 посредством наблюдения геометрического рельефа, полученного при травлении поверхности образца. Немного позднее Спиваком и Антоншиным были опубликованы результаты визуализации доменных структур ряда сегнетоэлектриков (ТГС, титаната бария, дигидрофосфата калия и др.) в РЭМ без использования технологии химического травления [111-112]. Области различной полярности визуализировались в черно-белом контрасте. Этими же авторами была показана возможность наблюдения доменов за счет фазового перехода, а также при комнатной температуре.

В работе Nakatani [113] исследовалась доменная структура кристалла ТГС с применением методик РЭМ. Позже этим же автором был опубликован обзор [22], в котором он обобщил результаты многоаспектного исследования ТГС с помощью широкого ряда зондовых методов. Применительно к методике РЭМ использован метод нанесения проводящего островкового покрытия с целью предотвращения зарядки образцов электронным лучом. Автор отмечал, что при отклонении значения ускоряющего напряжения от кроссоверной точки происходит необратимое изменение доменной структуры ТГС.

Цикл работ Le Bihan, Boudjema и Maussion также посвящен развитию методик РЭМ для исследования потенциального контраста в сегнетоэлектриках [114-117]. Авторы наблюдали доменную структуру титаната бария (чистого и допированного железом и кобальтом), ТГС, гексагидрата гуанидиния-сульфата алюминия ($\text{C}(\text{NH}_2)_3\text{Al}(\text{SO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, GASH), KDP. Доменная структура визуализировалась как за счет топографии после химического травления, так и с использованием потенциального контраста в режиме вторичной электронной эмиссии. Наиболее существенным вкладом в рассматриваемую область можно считать исследование возможностей использования вторично-эмиссионного режима. Авторами показана общая зависимость коэффициента вторичной электронной эмиссии от ускоряющих напряжений $\delta(U)$, наличие двух точек кроссовера U_1 и U_2 и, соответственно, диапазонов значений, при которых происходит положительная ($U \in (U_1, U_2)$) и отрицательная зарядка поверхности ($U > U_2$). Применение низких значений ускоряющих напряжений (5 кВ), при которых ко-

эффицент вторичной электронной эмиссии близок к единице, позволил авторам избежать зарядки поверхности электронным зондом. Авторами предложено объяснение механизма взаимодействия пучка с сегнетоэлектриком в данном режиме; исследованы особенности визуализации доменов в условиях температурного нагрева; также было показано, что после первичного сканирования участка образца изображение внутренней части доменов пропадает, при этом визуализируется только контраст границ доменов. Такая специфика контраста объясняется более высокой проводимостью доменных границ и, как следствие, их меньшей зарядкой. К анализу зависимости $\delta(U)$ и выбору на ее основе оптимальных режимов сканирования сегнетоэлектриков обращались впоследствии многие исследователи.

В работах Uchicawa и Ikeda [118-119] приводятся данные о методических аспектах наблюдения доменных структур сегнетоэлектриков за счет вариации потенциала поверхности. Авторы вводят в рассмотрение механизмы формирования и регистрации отклика в режиме вторичной электронной эмиссии, отмечают приоритетные параметры, подлежащие варьированию при исследовании сегнетоэлектриков в РЭМ. Также было отмечено, что оптимальные условия визуализации доменных структур соответствуют интервалу изменения энергии ускоряющего напряжения 1-5 кэВ.

В числе работ, посвященных данной тематике, можно отметить также работу Schilling [120], в которой методом РЭМ исследован полимерный сегнетоэлектрик поливинилиденфторид (PVD), а также статью Szczesniak [121-122], посвященную исследованию перестройки доменной структуры GASH (гексагидрата гуанидиния-сульфата алюминия ($C(NH_2)_3Al(SO_4)_2 \cdot 6H_2O$, GASH)) под действием пучка электронов. В работе Gruner [123] для визуализации доменной структуры ряда сегнетокерамик использовано ионное травление, автор заключает также, что особенности контраста определяются углом наклона поверхности образца по отношению к лучу.

Анализ причин формирования контраста сегнетоэлектрических доменов в РЭМ был продолжен и в работах Олейника и Бокова [124], ими были исследованы сегнетоэлектрики $BaTiO_3$ и $YMnO_3$ и выдвинуто предположение, что ха-

рактр контраста определяется как перечисленными выше параметрами, так и спецификой взаимодействия пучка электронов с внутренними полями в кристалле.

В рассмотренных выше режимах (или модах) доменная структура наблюдалась на поверхности образца, без использования проводящих покрытий. Применение же металлических электродов приводило к тому, что потенциальный контраст, существующий на поверхности образца, оказывался заэкранированным и наблюдение доменной структуры не представлялось возможным. В целом можно заметить, что специфика формирования контраста доменов в РЭМ определяется такими параметрами и факторами как энергия пучка электронов, ток зонда, угол наклона поверхности образца по отношению к оси зонда, время сканирования, увеличение, состояние поверхности и условия выращивания образца.

Таким образом, помимо проблематики прямого наблюдения доменов в РЭМ, перед многими исследователями возникли задачи исследования основных законов и механизмов взаимодействия зонда с сегнетоэлектриками, обусловленными высокой чувствительностью полярных материалов по отношению к внешним воздействиям. Изучению подлежали закономерности динамики доменных границ и перестройки доменной структуры, изменение локальных полей, эффект зарядки доменных границ и пр. Так, в более поздней работе [125] при исследовании кристаллов KTiOPO_4 было отмечено, что воздействие зонда приводит к нагреву кристалла, а контраст доменных границ формируется в том числе и за счет обратного пьезоэлектрического эффекта.

В ряде работ было замечено, что взаимодействие электронного луча с локальными полями сегнетоэлектриков можно использовать для исследования доменной структуры и ее модификации. Различные аспекты множественного воздействия электронного зонда на образец (электрического, ионизационного, теплового и др.) были использованы исследователями для создания нестандартных методик визуализации доменных структур и модификации электрических свойств образцов.

В работах Аристова и Коханчик [126-129] эффект зарядки сегнетоэлектрических образцов ниобата лития, германата свинца, титаната бария электронным зондом был применен для визуализации потенциального контраста. В модифицированной методике электронного контакта, предложенной Бородиным и Согром [130], наблюдалось переключение поляризации в сегнетоэлектриках в условиях использования луча РЭМ в качестве верхнего электрода и приложения к нижнему электроду смещающего напряжения.

Контраст доменной структуры в пироэлектрическом режиме РЭМ был впервые исследован экспериментально и теоретически Hadni и Latham. Авторы показали возможность регистрации пироэлектрического тока, индуцированного тепловым воздействием электронного зонда [131-132]. В [133] предложена модель формирования пироэлектрического отклика на локальное воздействие пучка электронов и рассмотрены основные особенности формирования контраста доменных структур в этом режиме.

В цикле работ Согра и соавторов [134-137] представлены исследования возможностей применения нестандартных методов РЭМ для анализа и модификации сегнетоэлектрических образцов. Методика потенциального электронного контакта основана на использовании электронного зонда РЭМ одновременно как для создания потенциального электронного контакта, так и для визуализации доменной структуры в процессе переключения поляризации. Этот метод был использован также для исследования кристаллов NaNO_2 в работе Иванцова [138]. Методика токов электронно-стимулированной поляризации, предложенная в [134-135], позволяет визуализировать доменную структуру и одновременно регистрировать ток переключения поляризации образца. В [137] предложено теоретическое обоснование данной методики и проведено моделирование формирования импульсов тока переключения. Развитию теоретических основ и построению модифицированной математической модели процесса динамики доменной структуры и формирования токов переключения поляризации сегнетоэлектриков в режиме токов электронно-стимулированной поляризации с учетом имитационно-фрактального подхода посвящена четвертая глава монографии и работы [139-146] автора.

Следует заметить, что важным и активно развиваемым в последние годы направлением является исследование условий создания и модификаций доменной структуры сегнетоэлектриков с использованием методик РЭМ [147-152]. Данное направление представляется перспективным и актуальным в связи с практическими задачами создания и последующей стабилизации доменных структур микро-, субмикро- и наноразмерных масштабов. В работе Не [147] была сформулирована и реализована идея использования электронного зонда РЭМ для применения методики управляемого переключения поляризации с целью создания периодических доменных структур в кристалле ниобата лития. Данная методика основана на эффекте, который до этого был неоднократно проанализирован целым рядом независимых исследователей, – локального переключения поляризации 180° доменов, ориентированных в направлении «хвост-к-лучу». При этом для наблюдения потенциального контраста часто используют метод травления, а доменную структуру визуализируют с использованием поляризационного микроскопа.

1.3.3. Эффекты последствия электронного облучения на сегнетоэлектрические материалы

Как уже было отмечено, взаимодействие электронного зонда с диэлектрической мишенью носит сложный и корпоративный характер. Среди важнейших эффектов, которые производит пучок электронов на образец сегнетоэлектрика можно выделить инжекцию электронов в образец, нагрев образца электронным зондом, зарядку непроводящих поверхностей, радиационно-стимулированные эффекты и др.

Для оценки глубины проникновения электронного пучка в образец можно воспользоваться известным соотношением из рентгеновского микроанализа:

$$R = 0.064 \frac{E_0^{1.7}}{\rho}, \quad (1.19)$$

где E_0 – энергия падающего пучка, кэВ; ρ – плотность образца, г/см³.

Альтернативным подходом для анализа геометрии области взаимодействия пучка с мишенью, а также оценки функции распределения потерь энергии

электронов в веществе является использование метода Монте-Карло для имитационного моделирования протекающих процессов [153]. Характеристики инжекционного воздействия в основном определяются химическим составом объекта, стартовой энергией пучка, наличием и толщиной металлического электрода на поверхности. Подобное моделирование является особенно важным в оценках полевого воздействия электронного зонда [152].

Расчет тепловой нагрузки на типичные сегнетоэлектрики при сканировании в РЭМ [137, 152] показал, что перегрев не превышает нескольких градусов Кельвина и образцы можно считать термически устойчивыми. Тем не менее возникающие градиенты температуры во многих образцах способны инициировать пироэлектрический эффект и оказать влияние на регистрируемый отклик исследуемых объектов. Данное свойство сегнетоэлектриков было положено в основу наблюдения контраста в режиме пирозонда [131-133].

Сопутствующим эффектом исследования сегнетоэлектриков в РЭМ является и явление зарядки поверхности электронным зондом [154-156]. Во многих случаях зарядка образцов считалась негативным эффектом, способным исказить потенциальную картину на поверхности образца. Знак заряда определяется зависимостью $\delta(U)$: если $\delta > 1$, то на поверхности накапливается положительный заряд, в противном случае – отрицательный заряд. Для борьбы с зарядкой в эксперименте использовались также определенные значения ускоряющих напряжений, соответствующие точкам кроссовера, как было показано выше [114-117]. Для сведения к минимуму эффекта зарядки использовались островковые металлические электроды [113, 119]. Тот же эффект зарядки положен в основу ряда методик [130, 147, 148, 151], позволяющих переключать домены под действием пучка электронов, формировать новые структуры и регистрировать процесс переключения образца.

Учитывая, что воздействие электронного пучка на образец носит ионизационный характер, для соответствующих оценок можно ввести в рассмотрение величину поглощенной дозы облучения за время t [137]:

$$D = \frac{j \cdot t}{k \cdot E_0^{n-1}}, \text{ рад}, \quad (1.20)$$

где $j = I/S$ – плотность тока зонда, мкА/см²; $k = 10 \div 15$ – коэффициент пропорциональности; $n = 1.3 \div 1.7$ – показатель степени.

Из (1.20) видно, что при увеличении ускоряющих напряжений доза и соответствующие радиационные повреждения будут также расти. Многие авторы при изложении экспериментальных данных ограничиваются указанием экспозиционных доз облучения, которым ставят в соответствие поверхностную плотность инжектированных зарядов [151]. В целом верхние оценки [137] указывают на то, что поглощенная доза может составить величины порядка нескольких Мрад, что является существенным и в ряде материалов может привести к радиационным повреждениям. В обзоре Пешикова по радиационным эффектам в сегнетоэлектриках [157] приводятся сведения об эквивалентности электронного и γ -излучения, потому что «основной радиационный эффект от γ -излучения создается вторичными комптон- и фотоэлектронами». Исследования радиационных дефектов в облученных кристаллах с водородными связями (сегнетовой соли, ТГС, ДТГС, KDP [15], [20], [158-159]) выявили деградацию и изменение основных диэлектрических характеристик даже при небольших значениях дозы облучения – порядка 1 Мрад. Наблюдается сдвиг максимумов зависимости диэлектрической проницаемости от температуры $\epsilon(T)$ в сторону низких температур, уменьшение абсолютного значения ϵ и тангенса диэлектрических потерь $\text{tg } \delta$, возрастание значения E_c , снижение температуры Кюри T_C . В облученных кристаллах число доменных стенок существенно не изменяется, но резко уменьшается их подвижность, а, следовательно, и вклад в ϵ и $\text{tg } \delta$. При облучении дозой большей 3 Мрад кристаллы с водородными связями необратимо фиксируются в той модификации (ромбической или моноклинной), в которой он был облучен. Петли диэлектрического гистерезиса облученных образцов характеризуются искажением формы в виде перетяжки или одностороннего смещения относительно оси E .

В исследованиях [160] методом регистрации импульсов Баркгаузена изучены процессы переполяризации кристаллов ТГС и ДТГС, облученных сильно-

точным пучком электронов. Автором было показано, что с увеличением дозы облучения общее число импульсов сначала растет, а потом снижается, что связано с образованием точечных заряженных дефектов, которые являются центрами зародышеобразования.

Подводя совокупный итог многих работ [110-138, 147-160], стоит также заметить, что исследование сегнетоэлектриков в РЭМ приводит к разрушению формы доменов, генерации зародышей новой фазы, перемещению границ доменов, появлению электронно-стимулированного потенциала на границах доменов и пр. Поэтому особенно актуальными являются задачи исследования специфики и механизмов взаимодействия электронных пучков с анализируемыми объектами при реализации тех или иных мод сканирования.

1.4. Основные результаты и выводы

В первой главе представлены литературные данные по базовым положениям теории сегнетоэлектричества, теоретическим подходам к построению и способам реализации моделей кинетики переключения поляризации и формирования отклика сегнетоэлектрических материалов на внешние воздействия. Проведен анализ работ, посвященных использованию фрактальной теории для исследования свойств самоподобия сегнетоэлектрических материалов. Приводятся сведения относительно возможности применения методик РЭМ для исследования и модификации свойств сегнетоэлектрических материалов.

В целом показано, что различным теоретическим и экспериментальным аспектам изучения сегнетоэлектриков посвящен достаточно широкий круг работ, тем не менее ряд вопросов остается далеким от полного разрешения. В частности, задачи визуализации доменных конфигураций с помощью методик РЭМ и разработки новых режимов для наблюдения электронно-стимулированных процессов переключения поляризации в сегнетоэлектриках приводят к необходимости развития теоретического базиса, предназначенного для анализа и моделирования наблюдаемых эффектов. Общая концепция исследований может быть сформулирована как развитие многоаспектного подхода к исследованию фрак-

тальной динамики сегнетоэлектрических доменных структур с помощью методов РЭМ. При этом решение поставленных задач требует последовательной реализации следующих этапов исследования:

1) оценка скейлинговых характеристик геометрии статических и динамических доменных конфигураций;

2) диагностика фрактальных размерностей временных зависимостей токов переключения поляризации;

3) моделирование процесса формирования поляризационного отклика сегнетоэлектриков на воздействие электронного зонда.

2. ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ САМОПОДОБИЯ РЭМ-ИЗОБРАЖЕНИЙ ДОМЕННЫХ СТРУКТУР ТИПИЧНЫХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ

2.1. Постановка задачи анализа скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных конфигураций сегнетоэлектриков

Проведенный литературный обзор показал, что рядом авторов были констатированы фрактальные геометрические свойства, присущие сегнетоэлектрическим доменным структурам, формирование которых представляет результат процессов самоорганизации физической системы. При этом очень важным достижением стало то, что исследователи не ограничились простым установлением визуально наблюдаемого факта самоподобия сегнетоэлектрических доменных структур. Они посчитали необходимым привлечь теоретический базис, который послужил бы основой для получения количественных характеристик самоподобия сегнетоэлектрических систем.

Установить подобную особенность строения оказалось возможным с использованием концепций теории фракталов, которая представляет одно из направлений математической формализации широкого класса объектов, обладающих сложной и нерегулярной структурой. Однако в настоящее время не введено единого представления о комплексном подходе в решении такого рода научных задач: различные исследователи используют разнообразные методы для оценки фрактальных характеристик растровых изображений самоподобных физических структур, не приводя при этом аргументации в пользу выбора того или иного метода для анализа. Использование методов фрактального и мультифрактального анализа для исследования скейлинговых характеристик растровых изображений доменных структур сегнетоэлектриков требует установления четкого соответствия между категориями сформулированных задач (определением фрактальности самой доменной структуры, изрезанности и шероховатости доменных границ и пр.) и набором методик и средств, которые применимы в том или ином случае.

Кроме того, самостоятельный интерес для фрактального анализа представляют и сами исследуемые объекты – изображения доменных структур, по-

лученные методом РЭМ, поскольку они обладают рядом особенностей. Во-первых, РЭМ-изображение есть результат формирования отклика кристалла на воздействие пучка электронов и для ряда нестандартных методик требуется правильно интерпретировать наблюдаемый светлый и темный контраст доменов и доменных границ (с учетом повторного сканирования, регистрации токов с нижнего или верхнего электродов, варьирования параметров зондирования, приводящих к появлению индуцированного заряда на границах и пр.) для корректного применения методов фрактального анализа. Во-вторых, некоторые «активные» методики РЭМ-зондирования полярных материалов (методика потенциального электронного контакта, метод регистрации токов электронно-стимулированной поляризации, метод регистрации доменной структуры в режиме пирозонда и др.) изначально основаны на принципе регистрации тех эффектов, которые дополнительно возбуждает в образце сам электронный зонд, и в этом случае результат исследования сложной геометрии – это оценка модифицированного электронным облучением состояния доменной структуры. В-третьих, возможности визуализации доменной структуры сегнетоэлектриков в последовательных стадиях переключения поляризации, индуцированной электронным облучением, позволяют проводить анализ динамики фрактальной размерности, а значит, и изменения характеристик неоднородности самой структуры.

Таким образом, определенный научный интерес представляет исследование скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектрических кристаллов на основе методов теории фракталов и мультифракталов. Решение данной научной задачи можно разбить на несколько этапов:

- 1) систематизация фрактальных методов и анализ их возможностей применительно к расчету скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков;

- 2) разработка на основе адаптированных для решения конкретных задач алгоритмов и специализированного программного обеспечения для поддержки проводимого исследования;

- 3) расчет фрактальных характеристик статических РЭМ-изображений доменных структур и геометрических конфигураций доменных границ типичных сегнетоэлектриков;

4) исследование эволюции фрактальной размерности изображений доменных структур сегнетоэлектриков в последовательных стадиях переключения поляризации, наблюдаемых в режимах динамического контраста РЭМ;

5) общее заключение о фрактальных закономерностях исследуемых объектов на основе обсуждения полученных результатов.

В данном направлении исследований в качестве исходного объекта для анализа необходимо рассматривать РЭМ-изображение доменной структуры сегнетоэлектрика, заданное в битовом формате. Для проведения анализа использованы данные ряда авторов [114-117, 119-120, 125, 128-130, 134, 137], работы которых посвящены специфическим экспериментальным методам визуализации и модификации доменных структур сегнетоэлектриков.

Результаты исследований фрактальных и мультифрактальных характеристик растровых изображений доменных конфигураций типичных сегнетоэлектриков, наблюдаемых в режимах статического и динамического контраста в РЭМ, представленные в рамках данной главы, изложены в работах [93-95] автора.

2.2. Исследование фрактальных закономерностей РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков

На сегодняшний день известно достаточно большое количество методов, применяемых для фрактального анализа изображений [70-74]. Ключевым вопросом при этом является выбор адекватной методики, определяемый спецификой рассматриваемой предметной области: природой исследуемого объекта и диапазоном масштабов, при которых анализируемый объект можно считать самоподобным или самоафинным [71, 161].

2.2.1. Разработка алгоритмического и программного обеспечения для проведения исследований

Центральным понятием теории фракталов является понятие фрактальной размерности объекта [70]. Именно введение этого понятия позволило дать ко-

личественную оценку степени неоднородности и нерегулярности самоорганизованных структур. Одним из подходов, используемых для измерения фрактальной размерности, является измерение в реальном пространстве на основе определения фрактальной размерности по Хаусдорфу – Безиковичу или его следствий [72]. Методы этой группы объединяют под общим названием «методы фрактальной параметризации», «фрактографические методы» или «методы покрытий». Известны различные варианты реализации этих методов, но большинство из них основаны на соотношении «число частиц N – мера»:

$$N \sim \left(\frac{\delta}{\delta_0} \right)^D. \quad (2.1)$$

Выражение (2.1) дает способ вычисления фрактальной размерности D физического объекта.

Соотношение (2.1) показывает, что для определения значения D можно варьировать одну из двух величин – δ или δ_0 . Алгоритм метода покрытия квадратными кластерами («box counting»-метод) основан на варьировании размеров частиц покрывающего множества. Суть его состоит в том, что черно-белое изображение разбивается на 2^{2n} частей – кластеров, после чего для каждого разбиения подсчитывается число квадратов, которые содержат в себе хотя бы одну точку объекта – N (масса фрактала). Затем в двойном логарифмическом масштабе строят зависимость числа квадратов

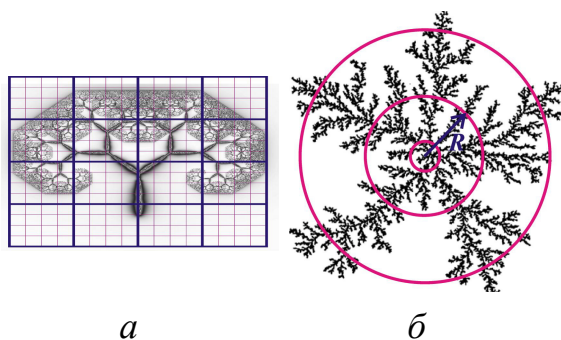


Рис. 2.1. Пример разбиения фрактала «Дерево Леви» квадратными кластерами – *а* и фрактала типа «Дендрит» concentрическими кругами – *б*.

штабе строят зависимость числа квадратов N , покрывающих кластер, от их размера δ_0 : $\log_a N \sim -D \cdot \log_a \delta_0$. Далее методом наименьших квадратов проводится линейная аппроксимация данной зависимости, тангенс угла наклона полученной прямой дает значение фрактальной размерности: $D = -k$. На рис. 2.1 *а* показан пример схемы подобного разбиения.

В методе покрытия концентрическими кругами определяют центр изображения и из центра проводят концентрические круги с увеличивающимся радиусом δ . Затем считают число точек (пикселей, или «мономеров»), принадлежащих анализируемому кластеру и находящихся внутри каждой окружности. После чего зависимость радиуса окружностей R от количества черных пикселей N строится в двойном логарифмическом масштабе и методом наименьших квадратов проводится линейная аппроксимация зависимости $\log_a N \sim D \cdot \log_a \delta$. Тангенс угла наклона прямой дает величину фрактальной размерности. Рис. 2.1 б демонстрирует схему разбиения этого варианта метода.

В результате сравнительного анализа можно выявить ряд достоинств и недостатков анализируемых методов. Выбор метода чаще всего определяется видом изображения: если фрактал заполняет всю расчетную область квадратных кластеров, то рациональным представляется использование метода покрытий квадратами. Если же объект представляет собой центрально-симметричный фрактальный кластер, то оптимально использование метода покрытий концентрическими кругами.

Для проведения анализа был реализован классический «box counting»-метод. Этот алгоритм можно также применять и для расчета фрактальной размерности линии. Отличие заключается в реализации последнего шага – в способе определения фрактальной размерности через угловой коэффициент k аппроксимирующей функции. Метод расчета фрактальной размерности границы основан на связи длины линии L и масштаба измерения δ :

$$L(\delta) = C \cdot \delta^{(1-D)}, \quad (2.2)$$

где C – константа.

Таким образом, для фрактальной размерности линии: $D = 1 - k$. Формализуем алгоритм метода покрытий квадратными кластерами с использованием блок-схемы, показанной на рис. 2.2.

Для применения подобных алгоритмов в практике фрактального анализа двумерных структур была выполнена программная реализация в среде ППП Matlab.



Рис. 2.2. Блок-схема реализации метода покрытий.

Разработанное приложение является авторским и зарегистрировано как объект интеллектуальной собственности [95]. В качестве входных данных для анализа использовалось бинаризованное изображение доменной структуры сегнетоэлектрика, с предварительной обработкой в графическом редакторе. Суть обработки заключалась в преобразовании исходного изображения в черно-белый формат таким образом, чтобы анализируемые объекты (домены противоположной полярности, доменные границы) однозначно идентифицировались. Во всех программах растровое изображение доменной структуры представлялось в матричном виде (матрица, состоящая из 0 и 1). Работа программы верифицировалась на искусственно сгенерированных абстрактных математических фракталах («Ковер Серпинского», «Дендрит») с априорно известной фрактальной размерностью. Это позволило проводить вычисления с точностью до 0.01.

Следует заметить, что отличительная черта методов этой группы – возможность их применения только для оценки степени заполненности пространства элементами фрактального изображения.

Анализируя изображения доменов на микрофотографиях, можно сделать вывод, что многие доменные структуры с точки зрения геометрии представляют собой кластерные объекты. Для анализа растровых изображений доменных структур сегнетоэлектриков необходимо рассмотреть способы рас-

чета фрактальной размерности для кластеров и их границ. Для оценки фрактальной размерности двумерных структур, на изображении которых можно выделить кластеры – «фрактальные острова», можно воспользоваться соотношением, связывающим периметр P и площадь S кластера [71]:

$$P = C \cdot \delta^{1-D} \cdot S^{D/2}. \quad (2.3)$$

Если принять за единицу эталон длины δ (для растрового изображения – это один пиксель), то связь периметра и площади дает соотношение:

$$\log_a P = (D/2) \log_a S. \quad (2.4)$$

Аппроксимация зависимости $\log_a P(\log_a S)$ для каждого кластера методом наименьших квадратов позволяет оценить фрактальную размерность. При изменении эталона длины изменяется площадь и длина границ кластеров. При устремлении эталона к нулю получается некое предельное отношение периметра к площади, из которого и выражается фрактальный коэффициент изрезанности границ кластеров. Данный подход оценки фрактальной размерности доменных структур сегнетоэлектриков был использован и в работах [83-86]. На рис. 2.3 представлена блок-схема алгоритма этого метода. Данный метод также был реализован программно.

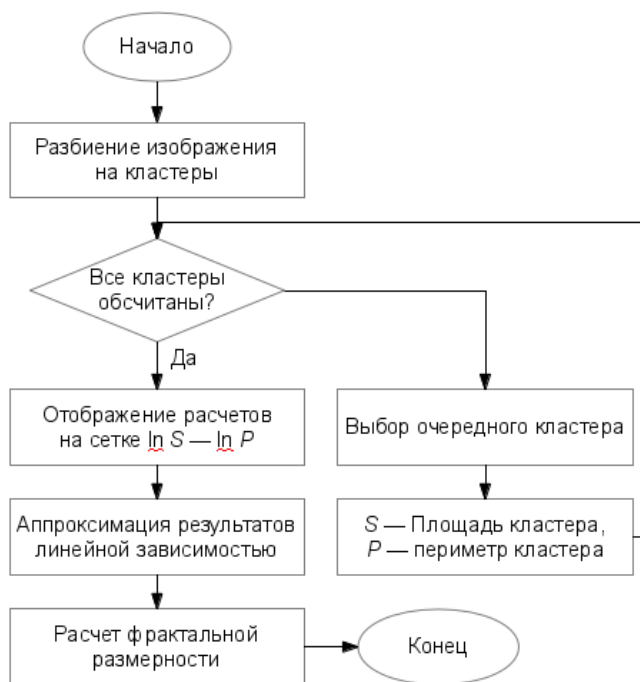


Рис. 2.3. Блок-схема алгоритма метода «Острова среза».

Ключевым вопросом в реализации данного метода является операция разбиения исходного изображения на кластеры. Сложность РЭМ-изображений сегнетоэлектрических доменных структур приводит к необходимости решения подзадачи адекватной маркировки кластеров – доменов (рис. 2.4).

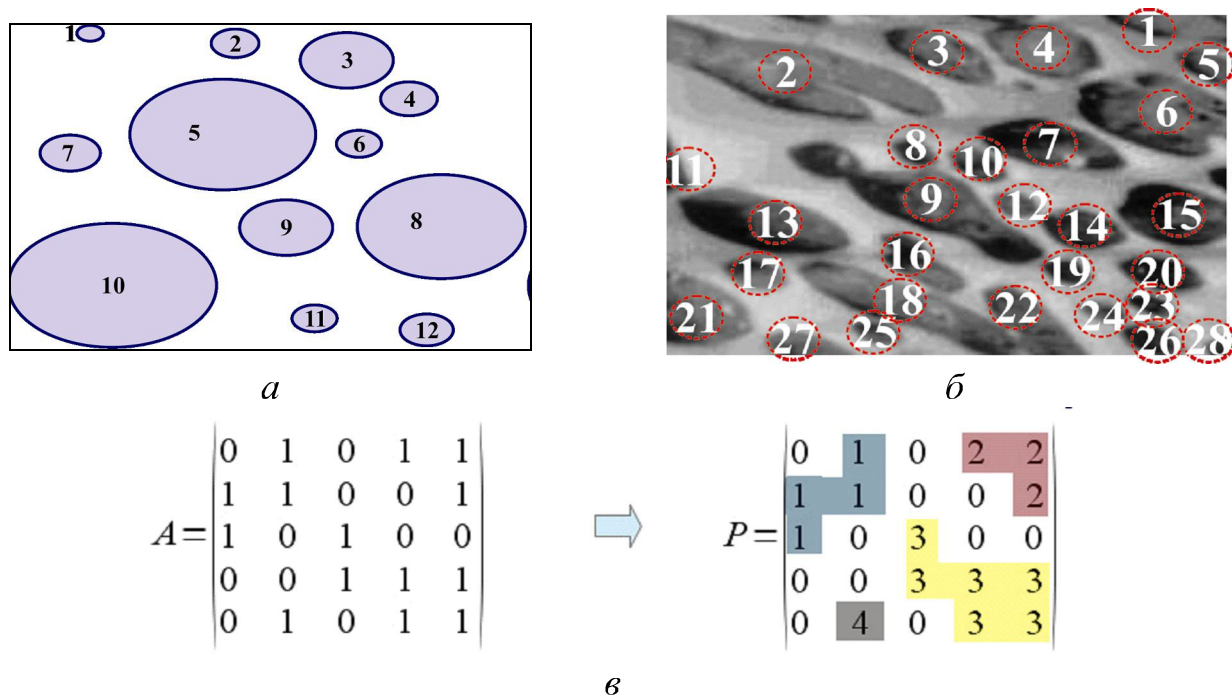


Рис. 2.4. Пример схемы маркировки: *а* – кластеров на модельном изображении; *б* – доменов на РЭМ-изображении доменной структуры кристалла ТГС [137]; *в* – для матричного представления изображения.

За основу алгоритма маркировки кластеров принят алгоритм Хошена – Копельмана [162], используемый для практического решения задач теории перколяции. Основная сложность этого алгоритма заключается в однозначной идентификации кластеров на изображении.

Данный алгоритм, изначально разработанный для решения задачи нахождения перекидывающегося перколяционного кластера, подразумевает кластеризацию изображения за один проход, однако на практике алгоритм не всегда может однозначно определить кластеры (как, например, для геометрии доменных конфигураций) в связи с их сложным строением, и ему требуются повторные проходы.

Более того, есть вероятность, что в ряде случаев алгоритм может обозначить два далеко отстоящих друг от друга кластера одним именем, чем вне-

сет неточность в его дальнейшую работу. Таким образом, недостатком применения алгоритма Хошена – Копельмана является некорректная маркировка «островов» на изображениях сложных кластерных объектов. Рис. 2.5 *а* демонстрирует неадекватность маркировки сложного кластера алгоритмом Хошена – Копельмана.

Для оптимизации вычислительных затрат предложен авторский модифицированный алгоритм, сочетающий маркировку кластеров перколяционным алгоритмом Хошена – Копельмана и подсчет размерности согласно соотношению (2.4). Особенностью модификации является введение рекурсивного блока, исключающего неоднозначность маркировки кластера (рисунок 2.5 *б*).

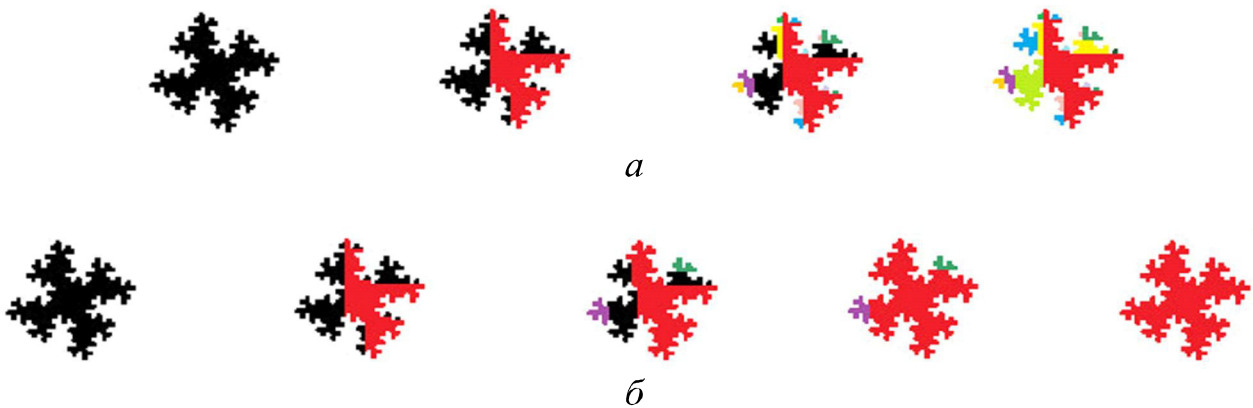


Рис. 2.5. Схема работы алгоритмов маркировки кластеров:
а – Хошена – Копельмана, *б* – авторского алгоритма.

Предложенная модификация алгоритма маркировки кластеров отличается следующими деталями: 1) нулевые строки и столбцы приписываются к исходному массиву со всех четырех сторон, а не с двух; 2) массив для хранения кластерных меток отсутствует за ненадобностью; 3) в случае, когда «сосед сверху» и «сосед слева» – ненулевые, текущему элементу присваивается минимальное из двух значений и запускается рекурсивная обработка массива, в которую передаются индексы Текущего элемента. На рис. 2.6 представлена блок-схема реализации модифицированного алгоритма.

Программная реализация данного алгоритма выполнена также в ППП Matlab. Для проверки адекватности работы алгоритмов программа была протестирована на модельном изображении – системе эллипсов, для которого фрак-

тальная размерность совпадает с топологической размерностью линии и равна единице. Реализация алгоритма позволяет вести расчет с достаточно высокой точностью – порядка 10^{-3} .

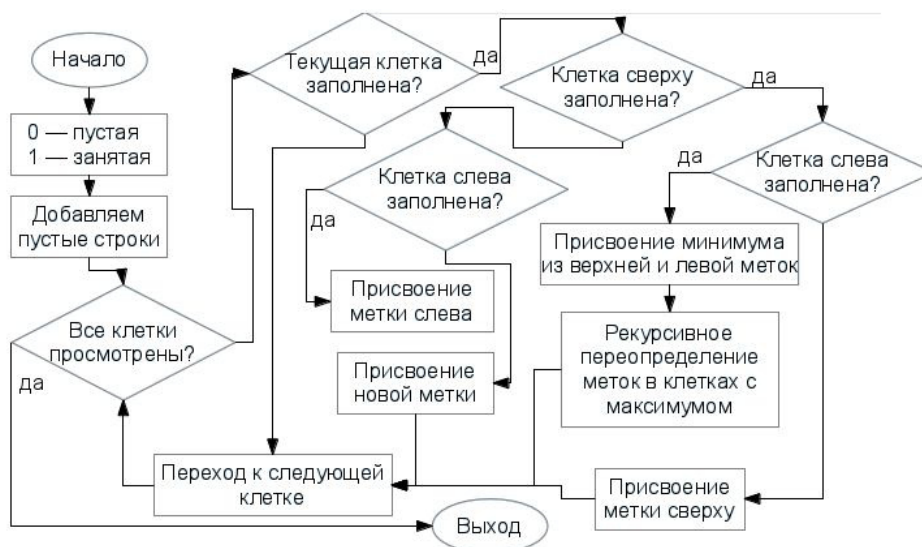


Рис. 2.6. Блок-схема модифицированного алгоритма разбиения на кластеры.

Особенностью метода «Островов среза» является возможность определения фрактальной размерности замкнутых линий – «островов», которые в нашем случае представляют границы доменов. Следует также заметить, что набор рассмотренных методов не является исчерпывающим: в литературе широко представлены как экспериментальные методы определения фрактальной размерности (визуальная идентификация природных фракталов, метод малоуглового рассеяния), так и иные фрактографические методы (метод Фурье-анализа, метод вертикальных сечений, метод преобразования подобия и пр.).

2.2.2. Использование фрактального формализма для анализа

РЭМ-изображений доменных структур в режимах

статического контраста

Предваряя детальный анализ фрактальных геометрических свойств РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков и исходя из обзора, проведенного в 1 главе монографии, обобщим несколько особенностей, касающихся специфики формирования контраста доменов в РЭМ в зависимости от используемого метода, а также приведем модели формирования контраста. Подобное

объяснение необходимо для понимания законов визуализации отдельных элементов РЭМ-изображений – выявления доменов и доменных границ.

Еще в ранней работе Li Bihan [115] было отмечено, что для стандартного вторично-эмиссионного режима визуализации при первом сканировании домены наблюдались в виде темных и светлых областей. Для предотвращения зарядки в этом случае используют низкие ускоряющие напряжения $U < U_2$. Использование детектора Эверхарда – Торнли позволяло регистрировать потенциальный контраст – светлые области соответствовали отрицательным доменам (с направлением спонтанной поляризации «головой вниз» по отношению к лучу), а темные области – положительным доменам с направлением P_s «головой вверх» (рис. 2.7).

После первого кадра сканирования в таком режиме происходило экранирование поверхностного заряда и наблюдались лишь доменные границы в виде светлых линий. Остаточный контраст на границах объяснялся неполным экранированием за счет их повышенной проводимости. В работе [115] также показано, что тональность доменных границ инвертируется при увеличении ускоряющего напряжения выше U_2 .

В работах [133-134] приведена аргументация формирования контраста доменных границ. В целом можно сформулировать следующие выводы. Во-первых, контраст доменных границ, наблюдаемый в РЭМ, не является остаточным после экранирования контраста поверхности доменов, поскольку величина и знак контраста зависят от ускоряющего напряжения, и, во-вторых, контраст не экранируется зондом с плотностью тока, превышающей плотность заряда спонтанной поляризации за один кадр.

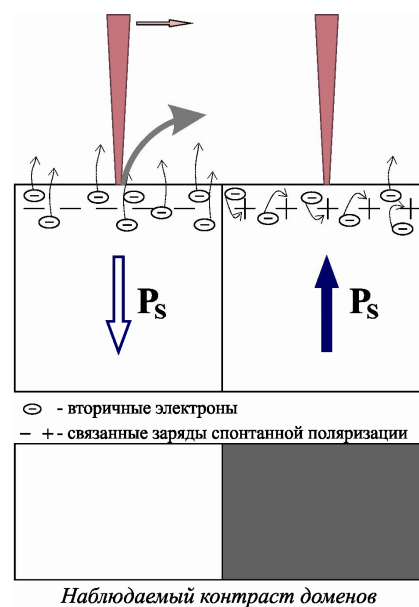


Рис. 2.7. Схема формирования контраста 180° доменов в режиме вторичной электронной эмиссии.

Кроме того, «жесткое» воздействие на образец повышенной плотностью заряда стимулирует, а не ослабляет контраст. При ускоряющих напряжениях, меньших критической точки U_2 , коэффициент вторичной электронной эмиссии $\delta > 1$. Положительная зарядка поверхности лучом на доменной границе вызывает микросмещение доменной границы так, что отрицательный домен увеличивается. На границе появляется нескомпенсированный заряд отрицательного знака, увеличивающий эмиссию электронов, поэтому граница выглядит светлой (рис. 2.8 *а*). При переходе через критическую точку U_2 знак зарядки изменяется на отрицательный и, как следствие, изменяется контраст доменных границ.

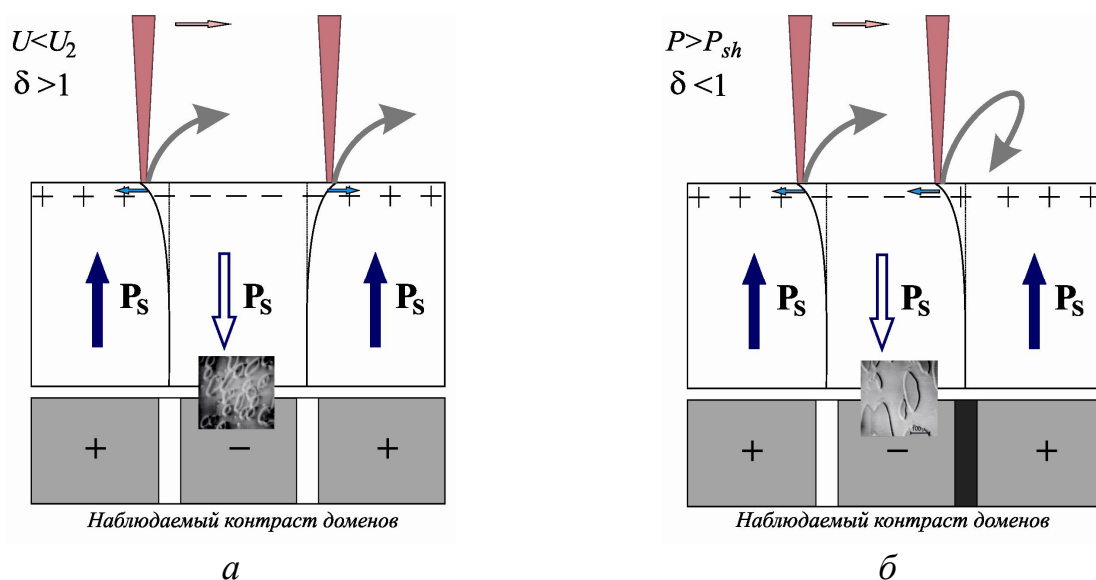


Рис. 2.8. Модельное представление формирования контраста 180° доменных границ в РЭМ: *а* – зарядовый контраст при $U < U_2$; *б* – тепловой эффект при мощности зонда W больше критического значения (для кристалла ТГС (на вставке [136]), $W=25$ мкВт).

Микросмещение границы может быть обратимым (колебательным). Тогда граница наблюдается сколь угодно долго без изменения доменной структуры, а может носить дрейфовый характер, вызывая медленное изменение доменной структуры. Второй случай наблюдается преимущественно при ускоряющих напряжениях выше критической точки U_2 . Этот тип контраста индуцирован зарядовыми эффектами воздействия электронного зонда на образец сегнетоэлектрика.

При увеличении мощности зонда на колебательное движение границы начинает оказывать влияние энергетическое (тепловое) воздействие зонда. Так

как поверхностная энергия доменной границы уменьшается с ростом температуры, то граница должна испытывать силу смещения по направлению градиента температуры, т.е. к зонду (рис. 2.8 б). При этом на переходе с положительного домена на отрицательный на поверхности должен появиться отрицательный заряд (граница имеет светлый контраст), а при обратном переходе – положительный (граница выявляется в виде темной полосы). Таким образом, возникает эффект «косого освещения» доменной границы, который наблюдался экспериментально в кристаллах ТГС и ВаTiO₃ [136], обладающих невысокой температурой Кюри и, следовательно, значительной зависимостью поверхностной энергии доменной стенки от температуры. Также данный эффект можно связать с вкладом пироотклика кристалла в регистрируемый видеосигнал [133].

Рассмотрим типы контрастов, формирующиеся в стандартном режиме вторичных электронов. Анализу будут подлежать РЭМ-изображения доменных структур, визуализируемых в режимах потенциального электронного контакта и токов электронно-стимулированной поляризации. В первом случае [130] доменная структура наблюдается на открытой поверхности образца за счет стабилизации потенциала поверхности (варьирования потенциала подложки относительно колонны). Второй режим предполагает регистрацию доменной структуры образца с нанесенными на грань металлическими электродами за счет использования токов переключения поляризации, стимулированных электронным зондом при повышенных ускоряющих напряжениях [135, 152].

В соответствии с вышеизложенным, можно заключить, что перед процедурой фрактального анализа скейлинговых характеристик необходимо провести предварительную обработку РЭМ-изображения доменной структуры. С этой целью был использован редактор растровой графики. Поэтому далее условимся считать, что фрагменты изображения, подлежащие анализу, – домены определенной полярности и доменные границы независимо от способа отображения в методиках РЭМ будут представлены «занятыми ячейками» – черными пикселями и в матричном представлении будут отображены в виде единиц. Соответственно, остальная часть изображения будет представлена белыми пикселями,

незанятыми областями и будет отображаться нулями в матрице изображения. Так, например, для фотографии, представленной на вставке к рис. 2.8 б, при проведении анализа границы доменов, независимо от эффекта «косого освещения», будут отображаться замкнутыми (или разомкнутыми) черными линиями. Применение же метода «Островов среза» потребует заливки черным цветом внутренней части домена, границы которого подлежат анализу, вне зависимости даже от того, что анализируемый домен «отрицателен» и вектор \mathbf{P}_S направлен «головой вниз». Также будем использовать общепринятые обозначения: положительные домены – с направлением \mathbf{P}_S «головой вверх» и отрицательные – «головой вниз» (для кристаллов со 180° -доменной структурой). Для кристаллов с более сложной геометрией доменов (ориентированных под различными углами \mathbf{P}_S) будем анализировать фрактальную размерность визуализируемой полярной структуры.

На первом этапе проведем анализ скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур типичных сегнетоэлектрических кристаллов,

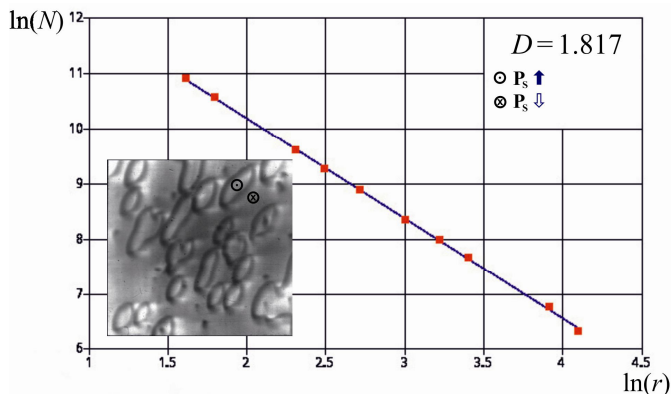


Рис. 2.9. Результат расчета фрактальной размерности РЭМ-изображения доменной структуры кристалла ТГС (на вставке, [130]) методом покрытий.

полученных различными авторами, базовым методом – за счет регистрации сигнала вторичной электронной эмиссии. На рис. 2.9 представлен пример расчета фрактальной размерности изображения методом покрытий квадратными кластерами, проведенный для РЭМ-изображения доменной структуры кристалла триглицинсульфата (на вставке) [130]. Контраст наблюдался авторами при значительных токах зонда (10^{-8} – 10^{-6} А) и при низких ускоряющих напряжениях (0.3-1 кВ – светлый контраст границ доменов, при ≥ 2 кВ – темный); домены выявлялись в виде классической линзообразной структуры с доменами, вытянутыми перпендикулярно полярному направлению s . Полученное дробное зна-

чительных токах зонда (10^{-8} – 10^{-6} А) и при низких ускоряющих напряжениях (0.3-1 кВ – светлый контраст границ доменов, при ≥ 2 кВ – темный); домены выявлялись в виде классической линзообразной структуры с доменами, вытянутыми перпендикулярно полярному направлению s . Полученное дробное зна-

чение размерности $D \approx 1.82$ (для положительных доменов – областей, ограниченных темными границами) характеризует степень самоподобия исследуемой структуры.

Если искусственно инвертировать преобразованную цветовую палитру изображения, то можно с помощью этого же метода оценить фрактальную размерность отрицательных доменов (областей с направлением Ps «головой вниз»). Расчет дает значение $D \approx 1.74$.

Расчет значений фрактальной размерности методом покрытий для широкого ряда сегнетоэлектриков, доменные структуры которых визуализировались классическим вторично-эмиссионным методом в РЭМ [114-120], [125], [128-130], показал, что размерность лежит в диапазоне от 1.6 до 1.9, в целом это свидетельствует о фрактальности изображений. Результаты расчета включают оценки, которые были построены по нескольким изображениям: для сегнетовой соли – $D=1.72-1.88$, для ТГС – $D=1.71-1.92$, для титаната бария (BaTiO_3) – $D=1.60-1.77$, для титаната висмута ($\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$) – $D=1.84-1.89$, для титаната свинца (PbTiO_3) – $D=1.64-1.78$, для нитрита натрия (NaNO_2) – $D=1.86-1.95$, сегнетоэлектрической керамики PZT $D=1.52-1.56$.

Однако классический метод покрытий квадратными кластерами дает только количественную характеристику степени заполнения фракталом пространства и не позволяет описать форму структур, составляющих изображение. Усматривая, что РЭМ-изображения многих доменных структур дают возможность выделить замкнутые (или разомкнутые) линии, ограничивающие кластеры – «острова» – домены, можно применять метод оценки размерности на основе соотношения площадь-периметр (2.3). Такой подход, как было отмечено, был использован в работе [83]. В нашем случае для проведения анализа использован авторский перколяционно-фрактальный алгоритм, позволяющий автоматизировать процесс маркировки кластеров. Данный алгоритм дает возможность оценить фрактальную размерность линии – доменной границы, вследствие чего можно сделать заключение относительно степени изрезанности и шероховатости границ доменов.

В монокристаллах титаната висмута из 7 типов доменной структуры в плоскости /001/ в РЭМ [130], [163] наблюдались два типа: границы, разделяющие 90° a -компоненты спонтанной поляризации, и границы, разделяющие антипараллельные 180° c -компоненты (рис. 2.10). Домены визуализировались авторами классическим вторично-эмиссионным методом и с использованием методики потенциального контакта.

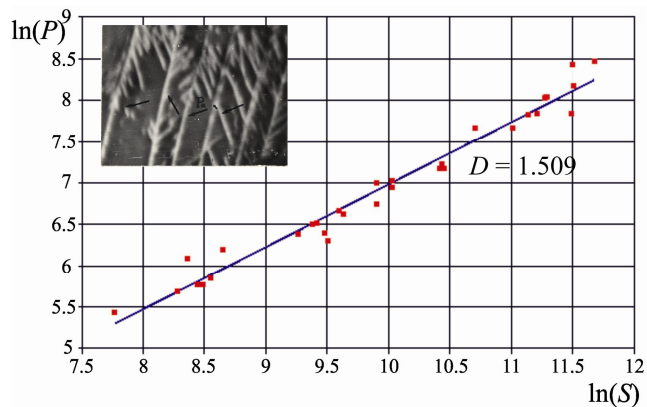


Рис. 2.10. Результат фрактального анализа доменной структуры титаната висмута (на вставке – изображение с использованием метода потенциального электронного контакта [130]) методом «Островов среза».

Доменная граница выявляется в виде светлой линии при $U=0.4$ кВ. 90° стенки не обладают собственным контрастом и визуализируются за счет наличия на них большого числа зародышей с 180° границами. Поскольку отличия в тональности различных доменов не наблюдалось, то анализу подлежала визуализируемая структура. Оценка фрактальной размерности по различным исходным микрофотографиям методом покрытий варьировалась, как было отмечено, в диапазоне $D=1.840-1.895$.

Фрактальная размерность доменных границ, установленная методом «Островов среза», оказалась довольно значительной, она распределена в интервале $D=1.509-1.780$. Пример результатов расчета размерности линии, ограничивающей кластеры – a - и c -домены, представлен на рис. 2.10.

В титанате бария рядом авторов [117, 130] как методом вторичной электронной эмиссии [115, 119], так и с использованием потенциального контакта [130], наблюдалась структура, характерная для c - и a -доменов, причем выявлялись не только границы, но и поверхность c -доменов разного знака по различной тональности. Поэтому, с точки зрения фрактального анализа, также исследовался контраст доменов различного типа. Проведенный анализ методом по-

крытий, как было отмечено выше, дает результат для различных микрофотографий $D=1.601-1.768$. Доменные же границы имеют размерности (по данным метода «Островов среза»), лежащие в интервале – $D=1.210-1.254$.

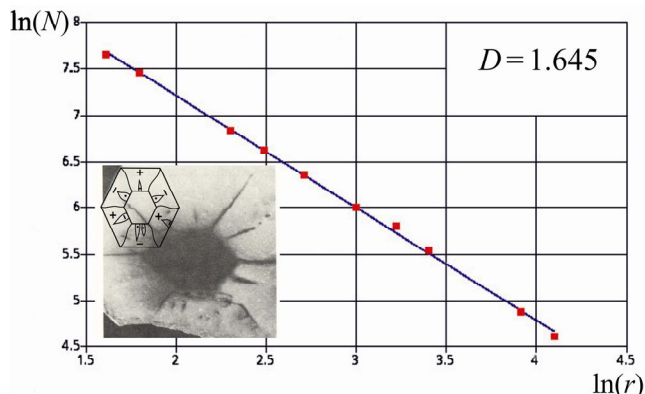


Рис. 2.11. Оценка фрактальной размерности доменной границы в кристалле GASH ([115]) методом покрытий.

Визуальный эмпирический анализ РЭМ-контраста доменной структуры кристалла GASH (гексагидрат гуанидиния-сульфата алюминия $C(NH_2)_3Al(SO_4)_2 \cdot 6H_2O$), визуализируемый в режиме вторичной электронной эмиссии (в плоскости, перпендикулярной полярной оси) в работе [115], приводит к необходимости оценки фрактальной размерности доменной границы одиночного

кластера. Расчет был проведен методом покрытий по соотношению (2.2), который дает $D=1.645$ (рис. 2.11).

На рис. 2.12 показан результат расчета фрактальной размерности границ положительных (а) и отрицательных (б) доменов кристалла ТГС, визуализируемых в режиме токов электронно-стимулированной поляризации [137]. Для оценки использован метод «Островов среза» на основе соотношения (2.3). Степень несовершенства границ положительных доменов $D = 1.201$ можно оценить как несколько меньшее по сравнению с тем же показателем для степени изрезанности границ отрицательных доменов $D = 1.287$.

На рис. 2.13 представлены изображения доменной структуры сегнетоэлектрического кристалла ТГС, полученные в процессе нагрева до T_C (а) и в результате глубокого отжига при $T \gg T_C$ (б). Исходная структура модифицируется и характеризуется выстраиванием доменов в вытянутые цепочки. Сначала доменная структура напоминает структуру, характерную для процесса полимеризации гелей – образование «вязких пальцев». Вытягивание доменов в цепоч-

ки при отжиге приводит к сглаживанию границ ($D = 1.110$ – для положительных доменов, $D = 1.149$ – для отрицательных). Результат представлен на рис. 2.13. Для структуры, образующейся в результате глубокого отжига (рис. 2.13 б), оценка фрактальной размерности границ положительных доменов дает значение $D = 1.193$ (отрицательных – $D = 1.168$).

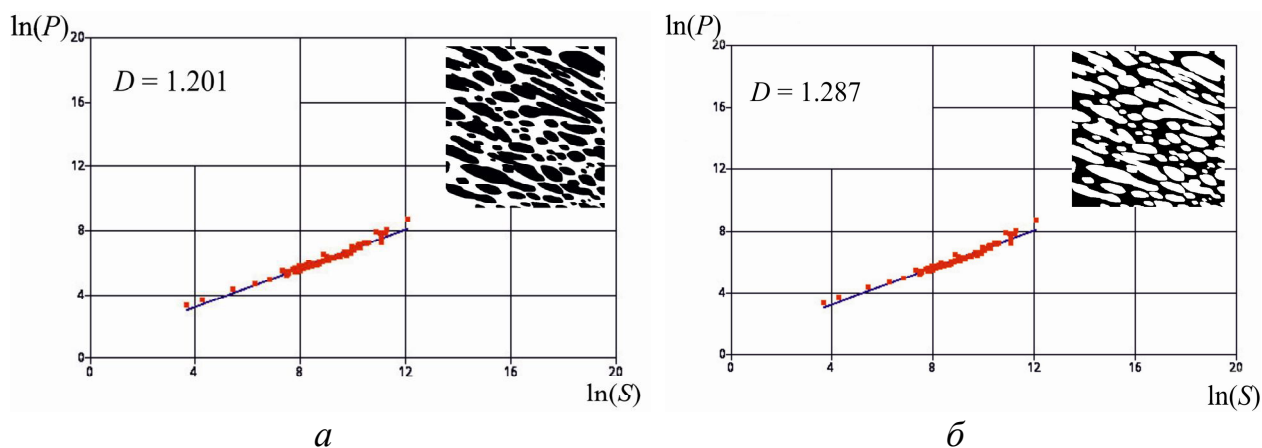


Рис. 2.12. Результат фрактального анализа для кристалла ТГС [137] фрактографическим методом «Островов среза»: *а* – для положительных доменов, *б* – для отрицательных.

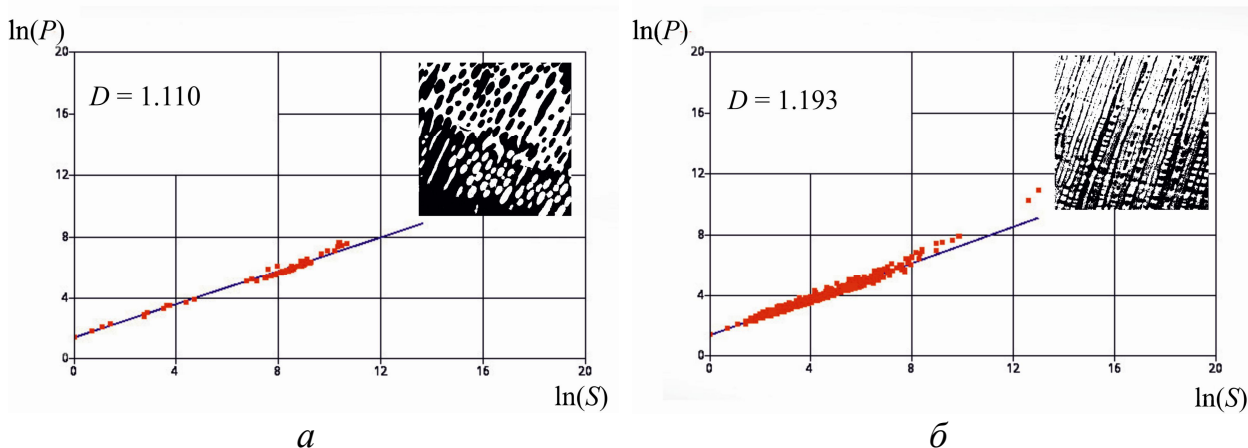


Рис. 2.13. Результат фрактального анализа для кристалла ТГС (положительные домены) [137] фрактографическим методом «Островов среза»: *а* – при прогреве до T_C , *б* – при глубоком отжиге $T \gg T_C$.

Несмотря на визуальную деформацию структуры, фрактальная размерность такого изображения, рассчитанная методом покрытий, мало отличается от фрактальной размерности изображения доменной структуры кристалла, находящегося при температуре ниже температуры Кюри $T \ll T_C$ ($D=1.817$) и рав-

на $D = 1.825$. Визуальное усложнение структуры кристалла в процессе отжига (рисунок 2.13 б) привело, тем не менее, к снижению значения фрактальной размерности до уровня $D = 1.743$.

Граница раздела доменов противоположной полярности также является фрактальной. Применение метода покрытий для расчета фрактальной размерности линии (границы раздела областей противоположной полярности) по соотношению (2.2) приводит к результату, показанному на рис. 2.14, – фрактальная размерность $D = 1.624$.

Можно сделать вывод, что фрактальная граница раздела фаз имеет не только вид, но и размерность «вязких пальцев». Данный вывод находит количественное и качественное согласование с результатом, полученным в работе [83].

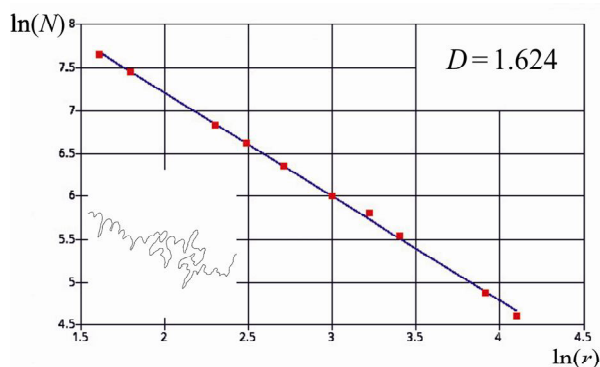


Рис. 2.14. Оценка фрактальной размерности границы раздела фаз, полученная методом покрытий, для изображения доменной границы ТГС при $T \approx T_C$ (для микрофотографии, показанной на рис. 2.13 а).

Таким образом, в результате термической нагрузки степень изрезанности и неоднородности доменных границ уменьшается, при старении кристалла восстанавливается классическая линзообразная структура с соответствующей фрактальной размерностью. Следует также отметить, что в режиме вторичных электронов, эмитированных с поверхности доменов противоположной полярности, регистрируется потенциальный контраст образца. В ряде активных режимов зондирования, в частности в режиме токов электронно-стимулированной поляризации, видеосигнал, снимаемый с образца, и, как следствие, наблюдаемый контраст отражают поляризационные процессы, происходящие в сегнетоэлектрическом кристалле. Поэтому неоднородности на изображении будут соответствовать неоднородностям распределения поляризации, которые можно связать с накоплением инжектированного заряда, распределением дефектов, а также со стохастическим процессом появления зародышей (эффектом Баркгау-

зена). Фрактальный анализ является чувствительной методикой исследования степени несовершенств доменных границ и может быть использован для количественной характеристики наблюдаемых модификаций в изображении доменных структур.

Проведем фрактальный анализ для изображений границы линзообразного домена ТГС, полученного в режиме токов электронно-стимулированной поляризации [137], при токе зонда $I=10^{-9}$ А, значении ускоряющих напряжений 3-5 кэВ, при различном времени облучения. На рис. 2.15 приведены соответствующие микрофотографии и значения фрактальных размерностей, которые были рассчитаны методом «островов среза» D (для оценки степени шероховатости и изрезанности границы).

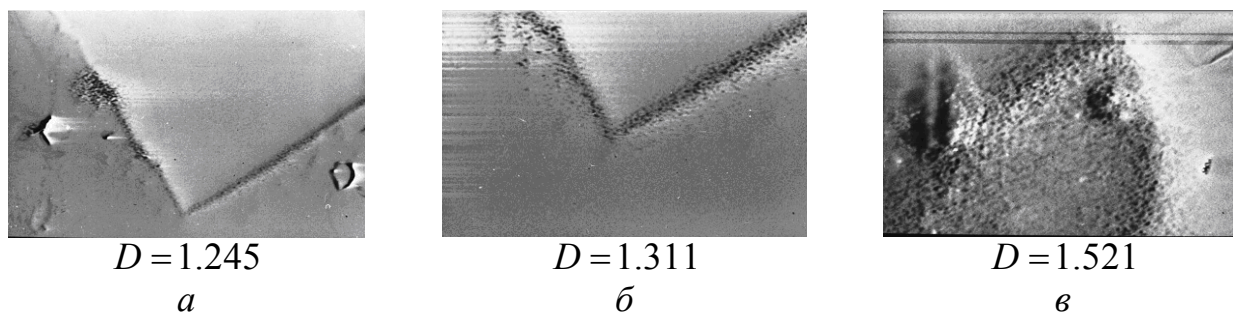


Рис. 2.15. Визуализация доменных границ ТГС в режиме токов электронно-стимулированной поляризации по данным работы [137] и соответствующие значения фрактальной размерности: *а* – граница линзообразного домена; *б* – эрозия изображения при длительном облучении; *в* – фрагмент домена после 5 мин. облучения.

Нетрудно заметить, что увеличение фрактальной размерности характеризует усложнение геометрии доменов – эрозию ее формы, которая вызвана воздействием электронного облучения на образец.

2.2.3. Оценка фрактальных характеристик растровых изображений доменных структур сегнетоэлектриков в режиме динамического контраста

Возможности, которые предоставляют методы визуализации динамического контраста, вызывают интерес к исследованию эволюции фрактальной размерности в последовательных стадиях динамики доменной структуры, индуцированной электронным зондом в РЭМ.

Проведем анализ для экспериментальных данных, полученных при использовании метода потенциального электронного контакта [130]. На рис. 2.16 показаны последовательные стадии визуализации динамики изменения доменной структуры титаната бария BaTiO_3 (при условии, что на образец подано отрицательное напряжение). Результат анализа методом покрытий характеризует последовательное усложнение доменной структуры с распределением фрактальной размерности в следующем диапазоне: $D = [1.608, 1.613, 1.729, 1.734]$. При этом степень изрезанности и шероховатости доменных границ меняется незначительно: $D^* = [1.261, 1.263, 1.269, 1.277]$.

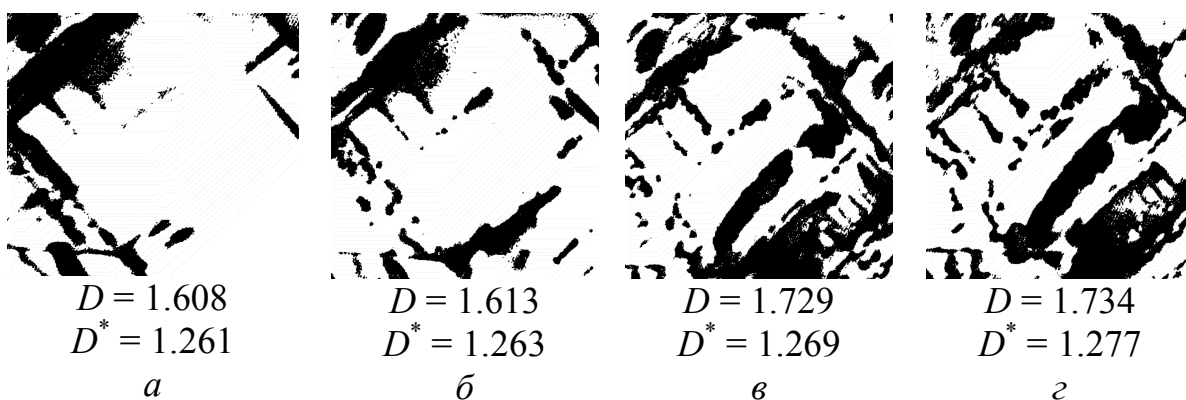


Рис. 2.16. Изменение значений фрактальной размерности растровых изображений доменной структуры BaTiO_3 в процессе ее динамики.

Исследование в этом же режиме кристаллов титана висмута при приложении поля, направленного перпендикулярно плоскости образца [130], позволило авторам заключить, что воздействие электронного зонда индуцирует перемещение стенок, разделяющих антипараллельные c -компоненты спонтанной поляризации. Разрастание доменов с параллельной полю c -компонентой путем расширения клиньев, образующихся на 90° доменной стенке, сопровождается увеличением фрактальной размерности, вычисленной методом покрытий, от $D = 1.784$ до $D = 1.807$. Фрактальность же самих доменных границ, анализируемая с помощью зависимости (2.3), остается в узком интервале $D \in (1.61, 1.66)$.

Характерной чертой процесса переключения поляризации кристалла ТГС является воспроизводимость процесса от цикла к циклу. Для анализа скейлинговых характеристик РЭМ-контраста доменов ТГС в процессе динамики до-

менной структуры, наблюдаемой в режиме потенциального контакта, мы использовали экспериментальный материал, полученный в работе Согра [136], а именно – записанный видеофайл с визуализацией полного цикла переключения поляризации в кристалле ТГС. Для получения данных, пригодных для фрактального анализа, была осуществлена оцифровка изображений с интервалом 1 с. Каждое из изображений было обработано графически в соответствии с описанными выше принципами.

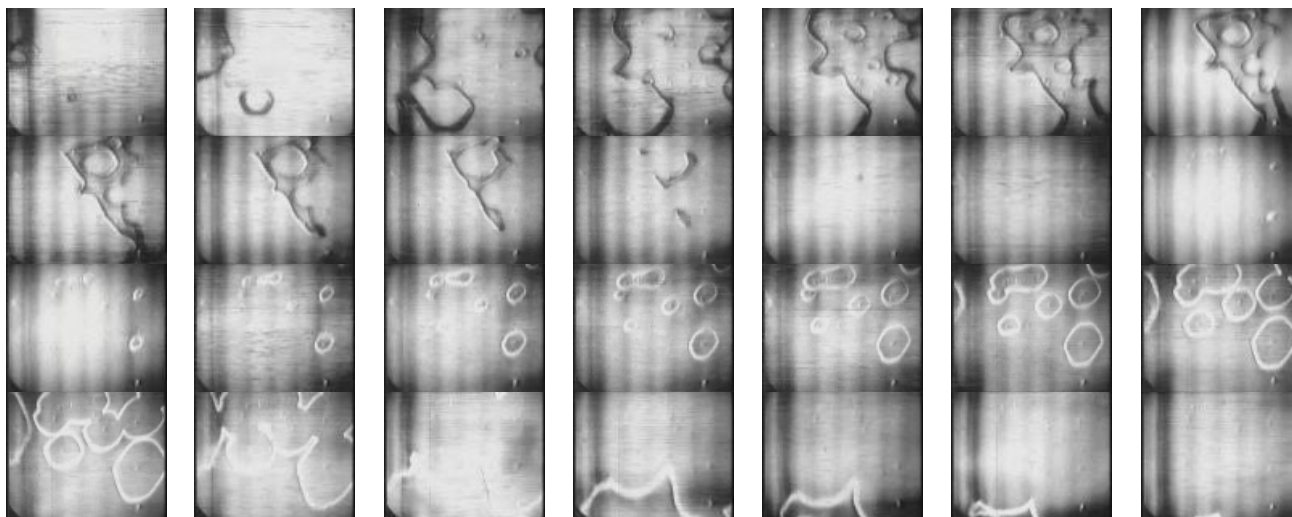


Рис. 2.17. РЭМ-изображения доменной структуры кристалла ТГС в полном цикле переключения поляризации в режиме потенциального электронного контакта по данным [136].

Фрактальный анализ геометрии доменных границ как при росте положительных, так и при прорастании отрицательных доменов, проведенный методом «Островов среза», давал изменение размерности в интервале $D \in (1.012, 1.214)$. Минимальное значение соответствовало начальному этапу зарождения зародышей новой фазы с практически регулярными границами. Максимальное значение соответствовало критическому состоянию: площадь переключенной области была равна площади непереключенной области.

Визуально наблюдаемым закономерностям динамики доменной структуры можно поставить в соответствие закономерности изменения фрактальной размерности. Для анализа результатов расчета фрактальной размерности изображений, проведенной методом покрытий, построим зависимость фрактальной размерности изображений от времени, которая может быть приемлемо аппрок-

симирована квадратичной функцией (рис. 2.18 *а*). Если рассмотреть временную зависимость фрактальной размерности для роста положительных и отрицательных доменов на одном графике, можно сделать вывод, что усложнение доменной структуры для роста как положительных, так и отрицательных доменов происходит практически одинаково (рис. 2.18 *б*). Этот факт позволяет заключить, что не только статические и квазистатические доменные конфигурации характеризуются фрактальным строением, но и динамика доменов, индуцированная электронным зондом, представляет процесс самоорганизации.

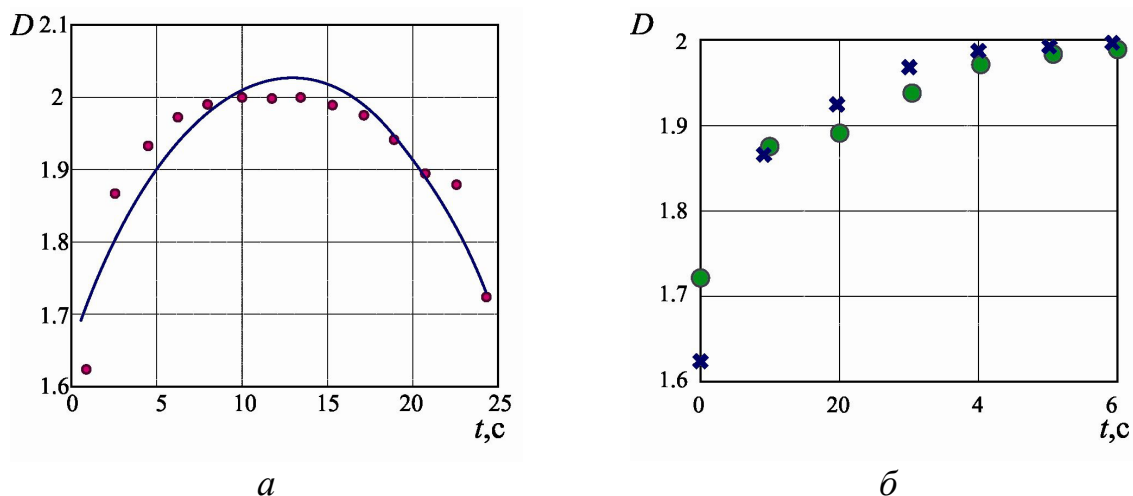


Рис. 2.18. Временная зависимость фрактальной размерности, вычисленная методом покрытий, – *а* и динамика изменения фрактальной размерности для \circ – положительных и \times – отрицательных доменов – *б*.

Также методом фрактального анализа можно исследовать особенности геометрии внутренней структуры доменов кристалла ТГС, наблюдаемых в процессе переключения поляризации в режиме электронно-стимулированной переполаризации в РЭМ [135] (рис. 2.19).



Рис. 2.19. Результаты фрактального анализа (метод «Островов среза») геометрии внутренней части доменов в ТГС, наблюдаемых в процессе переключения поляризации (эксперимент по данным [135]).

В процессе переключения поляризации наблюдается «эрозия» доменов, зародыши новых доменов прорастают цепочками вдоль направления, перпендикулярного полярной оси c . Такая структура несколько напоминает структуру отожженного при температуре выше температуры Кюри кристалла (рис. 2.13 б). Методом РЭМ визуализируется неоднородность поверхностного заряда, отображающего неоднородность процессов переключения поляризации, а степень такой неоднородности может быть установлена с использованием фрактального формализма. В процессе переключения поляризации наблюдается усложнение структуры границ доменов с увеличением значения фрактальной размерности с $D=1.112$ до $D=1.236$.

2.3. Мультифрактальные свойства РЭМ-изображений сегнетоэлектрических доменных структур

2.3.1. Реализация системы фрактального и мультифрактального анализа растровых изображений в виде программного приложения

Рассмотренные алгоритмы фрактальной параметризации характеризуются особенностью, которая в ряде случаев ограничивает их применение. Данная особенность заключается в том, что фрактальные алгоритмы адекватно применимы только к однородным самоподобным структурам. Если элементы фрактальной структуры несколько раз пересекают одну и ту же клетку, то это никак не повлияет на результат работы алгоритма, поскольку ведется учет хотя бы одной точки структуры, попавшей в кластер, причем «вес» таких точек не подсчитывается. Вследствие этого данные методы будут давать существенные погрешности при анализе широкого класса реальных объектов. Однако для описания большинства природных объектов недостаточно введения всего одной величины – фрактальной размерности, а необходим набор таких размерностей. Подобные структуры называются мультифрактальными [71]. Набор фрактальных размерностей, характеризующих не только фрактальные, но и статистические свойства, носит название спектра размерностей.

Дисперсия фрактальных размерностей, наблюдаемая при анализе РЭМ-изображений доменных структур, позволяет высказать гипотезу о мультифракт-

тальности подобных объектов. В работе [83] высказано суждение о присутствии мультифрактальных свойств, но автор не применяет специальных методов для анализа, ограничиваясь статистическим анализом. В работе [92] мультифрактальный формализм использован для описания микроструктуры керамик $\text{NaNbO}_3\text{-Ca}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ и $\text{NaNbO}_3\text{-Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$.

Теория мультифракталов в настоящее время широко используется для исследования объектов различной природы. Особое развитие на практике получили методы, основанные на определении мультифрактала, – методы фрактальной параметризации [164-167]. Также актуальными, на наш взгляд, представляются возможности использования вейвлет-преобразования для расчета спектральных характеристик [168-171].

Класс алгоритмов методов мультифрактального анализа изображений строится на определении мультифрактала и спектра размерностей Реньи [71]. Как и в случае фрактального анализа, исходное изображение разбивается на кластеры с последующим уменьшением величины кластера, но подсчитывается не количество кластеров, содержащих в себе точки самоподобной структуры, а их удельный вес.

Рассмотрим методику мультифрактальной параметризации структуры [71-72]. На первом этапе данного метода осуществляется разбиение бинарного изображения на кластеры (l – варьируемый размер кластера). Формируем матрицу C , каждый элемент которой равен числу закрашенных клеток кластера, считая, что изображение, состоящее из $N \times N$ точек, имеет в (i,j) кластере ($i, j = \overline{1, k}, k = N/l$) определенное количество точек. Тогда удельный вес кластера

$$P_{i,j} = \frac{C_{i,j}}{\sum_{i,j} C_{i,j}}, \quad (2.5)$$

где $\sum_{i,j} C_{i,j}$ – общее число единиц в матрице кластеров. Построим меру

$$M_d(q, l) = \sum_{i,j=\overline{1,k}} P_{i,j}^q \cdot l^d = N(q, l) \cdot l^d \xrightarrow{l \rightarrow 0} \begin{cases} 0, d > \tau(q), \\ \infty, d < \tau(q), \end{cases} \quad (2.6)$$

где l – размер ячейки, q – порядок момента.

Изменение по степенному закону вероятности P_{ij} в зависимости от l определяется последовательностью показателей $\tau(q)$, характеризующих меру. Тогда взвешенное число клеток $N(q, l)$ можно записать в виде

$$N(q, l) = \sum_{i,j=1,k} P_{i,j}^q \propto l^{-\tau(q)}, \quad (2.7)$$

а показатель массы определяется выражением

$$\tau(q) = -\lim_{l \rightarrow 0} \left(\frac{\ln N(q, l)}{\ln l} \right). \quad (2.8)$$

Таким образом, далее по формулам (2.7) и (2.8) при варьировании параметра деформации q проводится расчет взвешенного числа клеток $N(q, l)$ и скейлинговой экспоненты $\tau(q)$. Рассчитать показатель $D(q)$ можно воспользовавшись понятием спектра обобщенных фрактальных размерностей Реньи:

$$D(q) = \frac{\tau(q)}{q-1}. \quad (2.9)$$

Для нахождения спектра размерностей Реньи $D(q)$ можно воспользоваться методом «максимумов модулей вейвлет-преобразования», демонстрирующим свою эффективность в мультифрактальном анализе [168, 170, 172]. Суть метода состоит в том, что сигнал (в нашем случае строка из изображения) раскладывается по базису, представляющему собой солитоноподобную функцию – вейвлет. Для непрерывного вейвлет-преобразования мультифрактальной функции $g(x)$ используется следующая формула:

$$W(a, b) = \frac{1}{\sqrt{a}} \int_{-\infty}^{\infty} g(x) \psi \left(\frac{x-b}{a} \right) dx, \quad (2.10)$$

где a – параметр масштаба; b – пространственная координата; ψ – вейвлет.

В результате вейвлет-преобразования можно получить матрицу коэффициентов вейвлет-преобразования, а далее дать геометрическую интерпретацию скелетону и определить линии локальных экстремумов – локальных максимумов модулей вейвлет-преобразования. Далее проводится анализ полученного спектра, для этой цели необходимо рассчитать значения частичных функций:

$$Z(q, a) = \sum_{l \in L(a)} |W(a, x_l(a))|^q, \quad (2.11)$$

где $L(a)$ – множество всех линий l – локальных максимумов модулей вейвлет-коэффициентов $W(a, x)$, существующих на масштабе a ; q – множество параметров деформации.

Преобразования Лежандра позволяют оценить и другие спектральные характеристики анализируемого множества:

$$\alpha = d\tau / dq, \quad (2.12)$$

$$f(\alpha) = \alpha \cdot q(\alpha) - \tau(q(\alpha)). \quad (2.13)$$

Используя приведенную методику, можно исследовать изображения различных структур на наличие самоподобия и мультифрактальных закономерностей при помощи вейвлет-анализа. Однако при использовании данного метода необходимо в каждом отдельном случае оптимально выбрать вейвлет-функцию для преобразования, чтобы получить меньшую погрешность.

Подобная методика применяется и в работе [169] для анализа изображений, полученных методом сканирующей туннельной микроскопии для исследования влияния механического растяжения на мультифрактальные характеристики аморфного сплава $Fe_{77}Ni_1Si_9B_{13}$. В ходе работы авторам удается установить, что при небольших нагрузках происходит разглаживание поверхности, аналогичное разглаживанию смятого листа бумаги при его растяжении. При дальнейшем увеличении нагрузки возникает тенденция образования на поверхности фрактальной структуры.

Для реализации алгоритмов мультифрактального анализа разработан проблемно-ориентированный комплекс программ [95]. Программное приложение объединяет четыре модуля, реализующих методы: метод покрытий для фрактального анализа изображений и кривых, метод кластеризации и методы мультифрактального анализа. Структура программного приложения представлена на рис. 2.20.

Реализация модулей программ проведена в ППП Matlab. Программное приложение включает графический интерфейс пользователя, позволяющий выбрать метод исследований и запустить одну из четырех программ для работы с

выбранным методом. Каждый модуль реализован в виде набора функций, дающих возможность инициализировать данные, функционально исполнить алгоритм, вывести результат расчета в графическую область и сохранить его в файлы данных.



Рис. 2.20. Структура программного приложения.

Верификация работы модулей проведена на тест-объектах – абстрактных математических фракталах, для которых фрактальные размерности известны, а мультифрактальный спектр узок. Это позволило заключить, что вычисления производились с погрешностью не более 0.01.

2.3.2. Анализ скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков методами мультифрактальной параметризации

На рис. 2.21 представлены результаты расчета мультифрактальных характеристик методом покрытий (2.5)-(2.9) для РЭМ-изображения доменной структуры кристалла ТГС, регистрируемой в режиме токов электронно-стимулированной поляризации (анализу подлежат «положительные» домены).

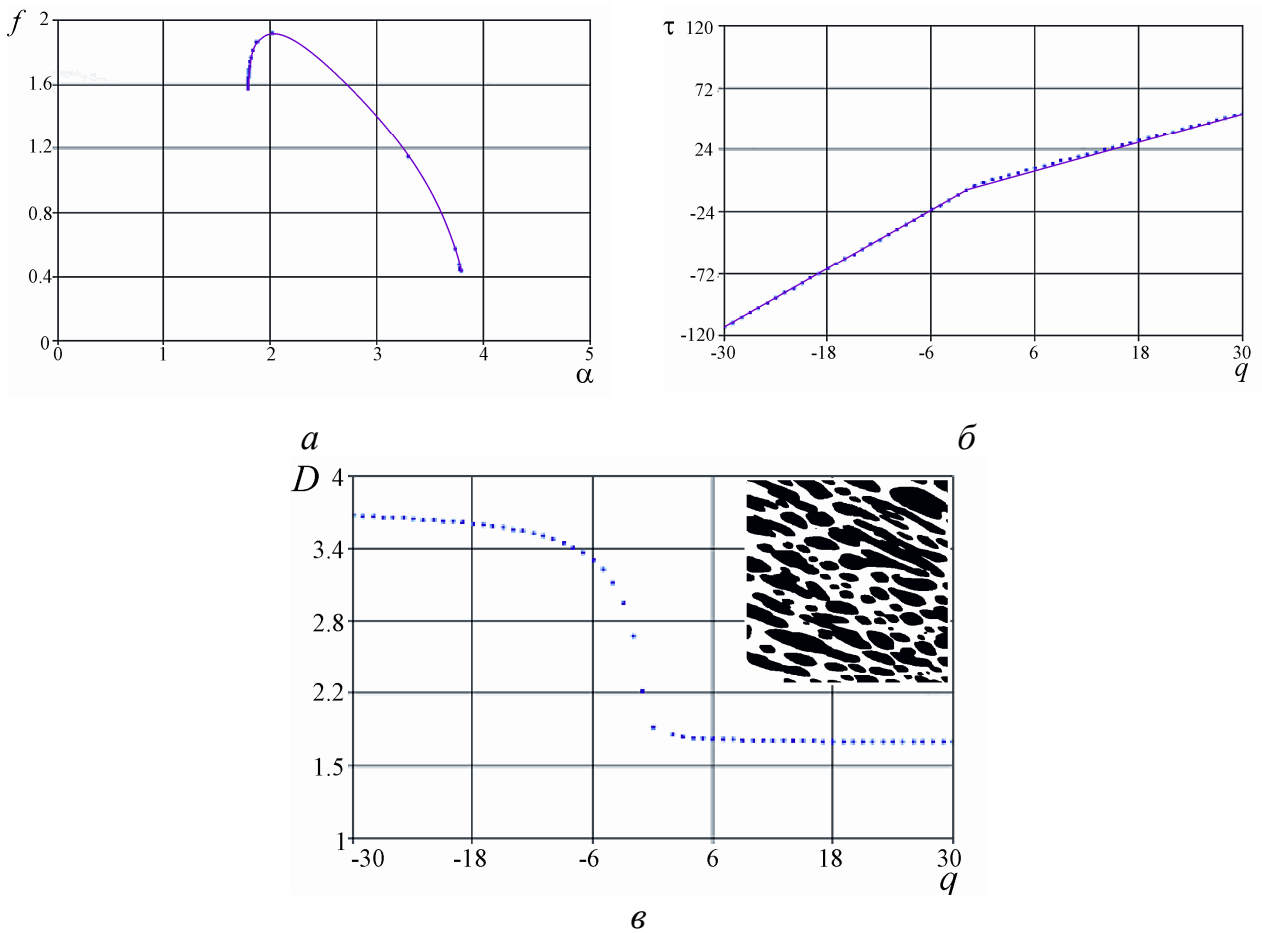


Рис. 2.21. Результат расчета мультифрактальных характеристик растрового изображения доменной структуры кристалла ТГС (на вставке): мультифрактальный спектр размерностей $f(\alpha)$ – а; скейлинговая экспонента $\tau(q)$ – б; спектр размерностей Реньи $D(q)$ – в.

Проведем исследование этого же изображения при помощи вейвлет-преобразования. Для этого выберем одну строку (центральную) из анализируемого изображения и проведем анализ на основе метода максимумов модулей коэффициентов вейвлет-преобразования (2.10) – (2.11). Анализируемый профиль представлен на рис. 2.22.

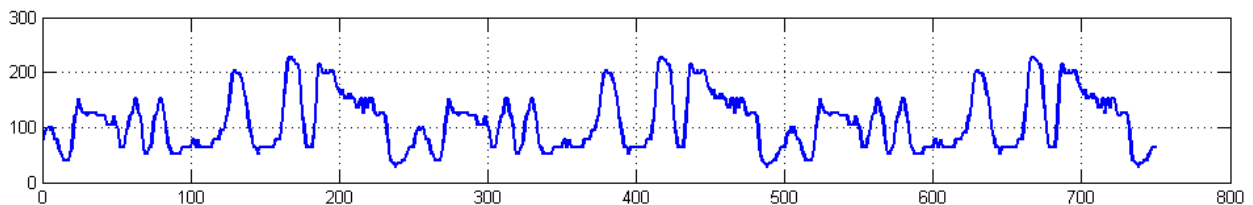


Рис. 2.22. Строка изображения, приведенного на рис. 2.21.

В качестве материнского вейвлета был выбран Mhat-вейвлет ($m=2$). Вейвлет-преобразование проведено с использованием встроенной функции Matlab `cwt()`. Для вызова этой функции необходимо задать анализируемый сигнал,

диапазон изменения масштабов, тип используемого материнского вейвлета и инициализировать настройки вывода графической информации. На рис. 2.23 показана построенная поверхность коэффициентов вейвлет-преобразования $W(a,b)$.

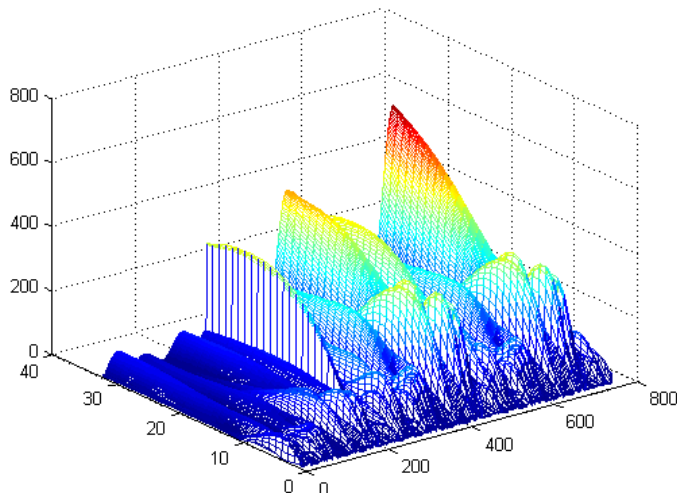


Рис. 2.23. Поверхность коэффициентов вейвлет-преобразования $W(a,b)$.

Рис. 2.24 демонстрирует проекцию рассчитанных коэффициентов на координатную плоскость Oab .

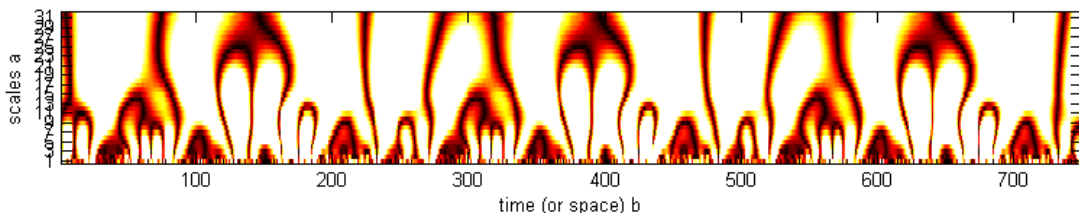


Рис. 2.24. Проекция коэффициентов вейвлет-преобразования $W(a,b)$ на плоскость Oab .

На рис. 2.25 представлены полученный скелетон или линии локальных экстремумов.

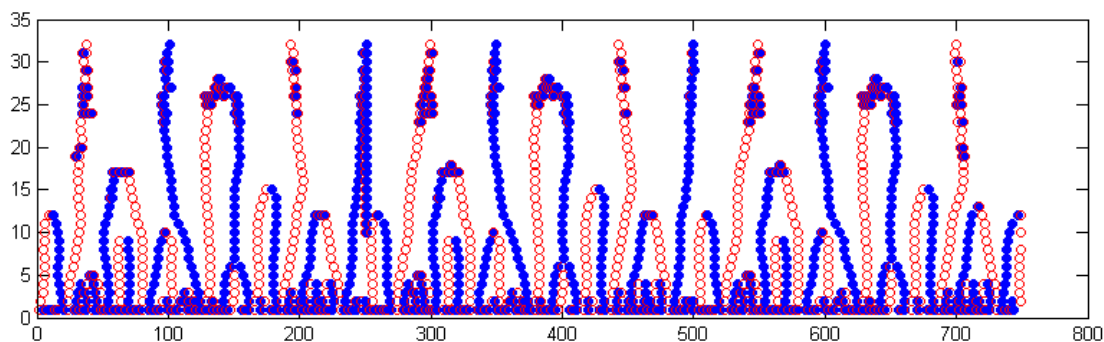


Рис. 2.25. Линии локальных экстремумов вейвлет-преобразования: светлые кружки соответствуют точкам максимумов, темные – минимумов.

Картина вейвлет-коэффициентов хорошо демонстрирует иерархическую структуру строки изображения. Каждое дробление масштаба отмечено появлением в распределении коэффициентов характерных «вилочек» – раздвоением локальных максимумов. Каскадное дробление экстремумов подтверждает и структура скелетона экстремумов. Скелетон выявляет не только иерархическую структуру анализируемого множества, но и способ построения фрактальной меры, на которой оно сформировано. Отмеченные особенности обусловлены тем, что исследуемые изображения обладают свойствами самоподобия. Самоподобие проявляется, в частности, в увеличении числа линий скелетона, происходящем при уменьшении, а также в наличии определенной квазипериодичности в положении линий скелетона, относящихся к каждому масштабу a .

Следует отметить, что применение метода вейвлет-преобразований позволяет получить спектральные характеристики $D(q)$, $\tau(q)$, $f(\alpha)$, аналогичные представленным на рис. 2.21. Графическое представление скейлиновой экспоненты $\tau(q)$ показано на рис. 2.21 б. Полученная зависимость является нелинейной, что характерно для мультифрактальных структур. Анализ спектра размерностей Реньи $D(q)$ позволяет определить набор размерностей, образующих исследуемое множество точек, а также оценить ширину фрактального спектра ($\Delta\alpha \approx 1.8$). Представленное на рис. 2.21 изображение доменной структуры кристалла ТГС имеет самоподобное строение с распределением фрактальной размерности в диапазоне 1.7 – 3.7. Значение $D(q_0) \approx 1.86$ при $q=0$ соответствует фрактальной размерности, вычисленной по программе анализа изображений, использующего метод покрытий. Результат расчета мультифрактальных параметров для той же структуры, но для отрицательных доменов приводит к практически аналогичному результату – спектр размерности принадлежит такому же диапазону, что и в предыдущем случае.

Проведенный фрактальный и мультифрактальный анализ показал, что для описания геометрии доменных конфигураций сегнетоэлектриков недостаточно применения только фрактальных алгоритмов – как, например, алгоритма метода покрытий квадратными кластерами, – доменная структура характеризуется

сложным скейлингом, для анализа которого необходимо задействовать широкий арсенал вычислительного инструментария фрактального и мультифрактального анализа.

2.5. Основные результаты и выводы

Таким образом, полученные во второй главе «Исследование свойств самоподобия РЭМ-изображений доменных структур типичных сегнетоэлектриков» результаты можно обобщить в виде следующих выводов.

1. На основе проведенного обзора и априорного анализа особенностей строения визуализируемых РЭМ-изображений доменных структур типичных сегнетоэлектриков систематизирован набор методик фрактального и мультифрактального анализа, привлекаемых в качестве теоретического базиса для исследования скейлинговых характеристик доменных структур сегнетоэлектриков.

Метод покрытий позволяет сделать «стартовые» вычисления «пробного» вычислительного эксперимента – установить факт фрактальности изображения и выполнить предварительную оценку степени неоднородности структуры и степени «несовершенства» одиночных доменных границ.

Фрактографический метод «Островов среза» позволяет установить фрактальность доменной структуры как кластерной структуры с учетом идентификации форм отдельных доменов – «островов». Метод позволяет рассчитать фрактальную размерность, характеризующую уровень изрезанности и шероховатости доменной границы.

Методы мультифрактальной параметризации (метод покрытий и метод вейвлет-преобразований) определяют набор спектральных характеристик, дающих информацию о дисперсии фрактальных размерностей.

С учетом сложности и неоднородности строения анализируемых доменных структур, предложен авторский «перколяционно-фрактальный» алгоритм расчета размерности растровых изображений границ кластерных объектов. Разработанная модификация основана на использовании классического соотноше-

ния «площадь – периметр» для фрактальных границ, процессе маркировки кластеров с помощью перколяционного алгоритма Хошена – Копельмана и включает рекурсивную процедуру, исключаящую некорректную маркировку кластеров при повторном просмотре.

Алгоритмы фрактального и мультифрактального анализа реализованы в виде приложения, объединяющего в один комплекс набор программных модулей, предназначенных для фрактального анализа изображений, заданных в растровом формате. Контроль точности проводимых измерений гарантирован проведением строгой процедуры верификации работы алгоритмов и программ на примере тест-объектов – искусственно сгенерированных фракталов с априорно заданной размерностью.

2. Установлено, что анализ геометрических свойств изображений доменных структур сегнетоэлектриков, визуализируемых с помощью методик РЭМ, обладает рядом специфических особенностей в силу того, что картина потенциального контраста в РЭМ есть результат взаимодействия пучка электронов с исследуемым образцом. На основе систематизации данных по методическим основам экспериментального зондирования сегнетоэлектриков в РЭМ представлены модели механизмов формирования контраста доменов и доменных границ. При этом тональность доменов и доменных границ во многом определяется особенностями используемого режима. Показано, что особого внимания заслуживают так называемые активные режимы сканирования, в которых электронный зонд сначала инициирует специфические эффекты в облучаемом образце и впоследствии их регистрирует. Таким образом, одним из приоритетных факторов в проведении фрактального анализа будет вопрос правильной интерпретации растрового изображения анализируемых элементов доменной структуры и корректного представления входных данных.

3. Установлено, что РЭМ-изображения статических доменных конфигураций сегнетоэлектриков характеризуются сложным скейлингом. Фрактальная размерность, дающая оценку степени неоднородности структуры, представлена для типичных сегнетоэлектриков интервалом от 1.60 до 1.90. Изрезанность и

шероховатость доменных границ характеризуется фрактальной размерностью от почти регулярных форм, для которых $D = 1.05$, до сильно изогнутых, с ярко выраженными фрактальными свойствами, для которых $D = 1.66$. Показано, что для режима токов электронно-стимулированной поляризации эффект эрозии доменной границы в кристалле ТГС, индуцированной электронным облучением, характеризуется значительным увеличением фрактальной размерности – с $D=1.245$ до $D=1.521$.

В режимах динамического контраста было отмечено, что усложнение структуры в процессе ее динамики характеризуется увеличением значения фрактальной размерности изображения и незначительным увеличением фрактальной размерности границ. Подобного рода анализ, проведенный для поэтапных изображений полного цикла переключения поляризации ТГС в режиме потенциального электронного контакта, позволяет сделать вывод, что усложнение доменной структуры для бокового роста как положительных, так и отрицательных доменов происходит одинаково: фрактальная размерность изображения изменяется в пределах $1.63 < D < 1.99$, границ доменов – $1.012 < D < 1.214$. Процесс переключения поляризации в кристалле ТГС, наблюдаемый в режиме токов электронно-стимулированной поляризации, осуществляется сквозным прорастанием доменов сквозь кристалл, и подобная «эрозия» внутренней структуры доменов характеризуется усложнением ее геометрии и ростом значения фрактальной размерности со значения $D=1.112$ до $D=1.236$.

Дополнительно проведенный мультифрактальный анализ для типичной доменной структуры кристалла ТГС позволил рассчитать спектральные характеристики, дающие информацию о дисперсии фрактальных размерностей.

4. Неоднородная геометрия доменных конфигураций типичных сегнетоэлектриков может быть специфицирована численно на основе концепций фрактального формализма: 1) с помощью методов расчета фрактальной размерности двумерных растровых изображений – для количественной характеристики степени заполнения плоскости; 2) на основе мультифрактального анализа (методы покрытий и вейвлет-анализа) – для расчета распределения размерностей в

сложных многокластерных доменных структурах; 3) с использованием метода расчета размерностей фрактальных границ – для оценки степени изрезанности и неоднородности доменной границы.

Таким образом, методы фрактального и мультифрактального анализа являются чувствительной методикой исследования степени несовершенств доменных структур и доменных границ и могут быть использованы для количественной характеристики наблюдаемых модификаций при исследовании сегнетоэлектриков в РЭМ, в частности, связанных с накоплением инжектированного заряда, распределением дефектов, а также со стохастическим процессом появления зародышей (эффектом Баркгаузена).

Модель формирования контраста доменов и доменных границ в том или ином режиме РЭМ, информация о конфигурации доменной структуры и численная спецификация геометрических особенностей доменных конфигураций, проведенная на основе методов фрактального и мультифрактального анализа, в совокупности представляют фазовую диаграмму состояния сегнетоэлектрика, диагностируемого с помощью методов РЭМ.

В целом, полученные результаты, состоящие в оценке и анализе скейлинговых характеристик геометрии статических и динамических доменных конфигураций, служат основой для построения фрактальной модели процесса переключения поляризации, индуцированного электронным зондом, и являются важным этапом в концепции настоящего исследования, состоящего в развитии многоаспектного подхода к исследованию фрактальных закономерностей и фрактальной динамики сегнетоэлектрических доменных структур при исследовании методами РЭМ.

3. ФРАКТАЛЬНЫЕ И МУЛЬТИФРАКТАЛЬНЫЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ ДИНАМИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ ПОД ДЕЙСТВИЕМ ЭЛЕКТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

3.1. Постановка задачи фрактального анализа индуцированного электронным зондом тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов

Как было показано в 1 и 2 главах, ряд результатов теоретических и экспериментальных исследований процессов движения доменных границ, перестройки доменных конфигураций, а также кинетики переключения поляризации в сегнетоэлектриках демонстрирует, что доменные структуры характеризуются фрактальными свойствами. Количественные характеристики свойств самоорганизации сложных физических систем нашли математическое описание в концепции фрактальной теории. Понятие фрактала является геометрическим и характеризует самоподобный объект, описываемый нецелочисленной размерностью. Однако не только геометрические формы объектов могут иметь фрактальное строение, временные характеристики процессов и явлений, протекающих в средах с самоподобной структурой, также обнаруживают фрактальное поведение.

По результатам исследований ряда авторов [67, 83, 88, 96, 106, 173], динамические характеристики сегнетоэлектриков также характеризуются фрактальными закономерностями, что связывают со стохастичностью процесса зародышеобразования, с нелинейной перестройкой и динамикой доменной структуры, обусловленной боковым и/или сквозным прорастанием доменов в процессе переключения поляризации, с наличием дефектной структуры (и взаимодействием доменных стенок с дефектами – пиннингом) и присутствием эффектов памяти, проявляющихся, в частности, в повторяемости центров зародышеобразования при циклическом переключении поляризации.

Во второй главе было отмечено, что визуализация изображения доменной структуры сегнетоэлектрических кристаллов возможна при использовании не только потенциального рельефа образцов (в режиме вторичных электронов),

но и нестандартных методик, основанных на регистрации специфических откликов образцов. В частности, режимы токов электронно-стимулированной поляризации позволяют одновременно выявлять РЭМ-контраст доменов и наблюдать процесс переключения поляризации. Изображение доменной структуры формируется за счет регистрации тока переполаризации кристалла, стимулированного электронным зондом. Таким образом, видеосигнал, снятый с образца, представляется временной зависимостью и отражает интенсивность поляризационных процессов, происходящих в необлученной части кристалла.

Для исследования скейлинговых характеристик процесса переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов в режиме электронно-стимулированной поляризации в данной главе использованы фрактальные и мультифрактальные методы анализа временных рядов [170-172, 174]. Основной динамической характеристикой процесса переключения поляризации, которая будет подлежать исследованию, является временная зависимость импульсов токов переключения поляризации. Оценки будут проводиться на примере сегнетоэлектрического кристалла ТГС, исследование которого методом регистрации токов электронно-стимулированной поляризации приведено в работах [134, 136].

Для проведения фрактального анализа в работе выбраны метод Херста и метод Фурье, для мультифрактального анализа – метод мультифрактального флуктуационного анализа и метод вейвлет-преобразований. Данная глава объединяет результаты исследования скейлинговых характеристик токов переключения поляризации сегнетоэлектриков, регистрируемых в режиме инъекции электронного пучка, на основе применения фрактальных и мультифрактальных методов анализа временных рядов. Результаты, приведенные в настоящей главе, представлены в работах [97-105] автора.

3.2. Оценка фрактальных параметров тока переключения поляризации сегнетоэлектриков в инъекционном режиме

Для того чтобы приступить к исследованию импульсов токов переключения, представленных временными рядами, введем в рассмотрение методологический аппарат для анализа. В практике фрактальной теории временных рядов

представлен широкий диапазон аналитических методик: метод покрытий, метод Херста и его модификации, метод Колмогорова, метод Ричардсона, метод Корчака, метод Фурье и др. [175]. В рамках настоящей работы использованы методы Херста (или R/S -анализа) и Фурье [71].

Рассмотрим основные концепции метода R/S -анализа. Данный метод является методом анализа долговременной памяти, фрактальной статистической структуры и наличия циклов. Основной количественной характеристикой фракталов является размерность D , введенная Хаусдорфом еще в 1919 г. для компактного множества в произвольном метрическом пространстве [73]. Оказалось, что многие природные явления хорошо описываются этим законом нормированного размаха или методом Херста. Такие последовательности характеризуются показателем Херста H [71]. Херст вывел уравнение для этих нелинейных процессов, задаваемое корреляционным соотношением:

$$C = 2^{(2H-1)} - 1, \quad (3.1)$$

где C – мера корреляции.

Значение фрактальной размерности исходного ряда данных вычисляется по формуле:

$$D = 2 - H, \quad (3.2)$$

где D – фрактальная размерность кривой; H – показатель Херста.

R/S -анализ является процессом, который требует переработки большого количества данных. Определим алгоритмическую последовательность шагов метода R/S -анализа [71]. Будем считать, что исходный временной ряд задан зависимостью $y(t)$.

1. Дан временной ряд $y(t)$ длиной M . Необходимо преобразовать его во временной ряд длиной $M-1$, используя логарифмические отношения:

$$N_i = \log\left(\frac{y_{i+1}}{y_i}\right), \quad i = 1, 2, 3, \dots, (M-1). \quad (3.3)$$

2. Затем необходимо разделить этот период времени на A смежных подпериодов длины n , так что $A \cdot n = |N|$, где $|N|$ – размерность преобразованного ряда. Каждый подпериод помечен I_a , с учетом того, что $a = 1, 2, 3, \dots, A$. Каждый

элемент в I_a помечен N_k , при этом $k = 1, 2, 3, \dots, n$. Для каждого I_a длины n среднее значение определяется как:

$$e_a = \left(\frac{1}{n}\right) \cdot \sum_{k=1}^n N_k, \quad (3.4)$$

где e_a – среднее значение N_k , содержащегося в подпериоде I_a длины n .

3. Временной ряд накопленных отклонений $X_{k,a}$ от среднего значения для каждого подпериода I_a определяется как:

$$X_{k,a} = \sum_{k=1}^n (N_{k,a} - e_a), \quad k = 1, 2, 3, \dots, n. \quad (3.5)$$

4. Диапазон определяется как максимальное значение, за вычетом минимального значения $X_{k,a}$ в пределах каждого подпериода I_a :

$$R_{I_a} = \max(X_{k,a}) - \min(X_{k,a}), \quad \text{где } 1 \leq k \leq n. \quad (3.6)$$

5. Выборочное стандартное отклонение, рассчитываемое для каждого подпериода I_a :

$$S_{I_a} = \left(\left(\frac{1}{n} \right) \cdot \sum_{j=1}^n (N_{j,a} - e_a^2) \right)^{0.5}. \quad (3.7)$$

6. Каждый диапазон R_{I_a} теперь нормализуется путем деления на соответствующий S_{I_a} . Поэтому повторно нормированный размах в течение каждого I_a

подпериода равен $\left(\frac{R_{I_a}}{S_{I_a}} \right)$. На втором шаге были получены смежные подпериоды

длины n . Следовательно, среднее значение R/S для длины n определяется как:

$$\left(\frac{R}{S} \right)_n = \left(\frac{1}{A} \right) \cdot \sum_{a=1}^A \frac{R_{I_a}}{S_{I_a}}. \quad (3.8)$$

7. Длина n увеличивается до следующего более высокого значения, а $(M-1)/n$ является целочисленным значением. Здесь используются значения n , включающие начальные и конечные точки временного ряда, и шаги 1–6 повторяются до $n = (M-1)/2$.

Показатель Херста H может быть найден посредством аппроксимации методом наименьших квадратов зависимости $\ln\left(\frac{R}{S}\right)$ от $\ln(n)$ и установлением ее углового коэффициента:

$$\ln\left(\frac{R}{S}\right) = C + H \cdot \ln(n). \quad (3.9)$$

Известны три различных динамики при разных показателях Херста:

1) $0.5 < H < 1.0$ В данном случае мы имеем персистентные, или трендоустойчивые ряды. Если ряд возрастает (убывает) в предыдущий период, то вероятно, что он будет сохранять эту тенденцию какое-то время в будущем. Трендоустойчивость поведения увеличивается при приближении H к единице. Персистентные временные ряды широко представлены многими естественными процессами;

2) при $H = 0.5$ никакой выраженной тенденции процесса не выявлено, и нет оснований считать, что она появится в будущем. В данном случае показатель Херста указывает на случайный ряд. События случайны и не коррелированы. Правая часть уравнения обращается в нуль. Настоящее не влияет на будущее. В курсах статистики говорится о том, что природа следует нормальному распределению. Открытие Херста это положение опровергает. Показатель H , как правило, бывает больше 0.5, а вероятностные распределения не являются нормальными. Чем ближе H к 0.5, тем более зашумлен ряд и тем менее выражен его тренд;

3) $0 \leq H < 0.5$ Данный диапазон соответствует антиперсистентным рядам. Такой тип системы часто называют «возвратом к среднему». Если система демонстрирует рост в предыдущий период, то, скорее всего, в следующем периоде начнется спад. И наоборот: если шло снижение, то вероятен близкий подъем. Чем ближе его значение к нулю, тем ближе C в уравнении к -0.5 , или отрицательной корреляции. Такой ряд более изменчив.

Дополнительно в качестве альтернативного варианта (а также для дальнейшего перехода к методу вейвлет-анализа) рассмотрим метод оценки фрак-

тальной размерности, относящийся к группе методов, основанных на преобразованиях. В указанном случае идеологическую основу метода составляет Фурье-преобразование. Процедура разложения в ряд Фурье дает на выходе значения амплитуды c и фазы φ для некоторого фиксированного ряда частот f , по которому происходит разложение анализируемого ряда $y(t)$. Разложение имеет вид:

$$y(t) = \sum_{f=f_{\min}}^{f_{\max}} c(f) \cdot \sin(2\pi \cdot f \cdot t + \varphi(f)). \quad (3.10)$$

Анализ частотного спектра мощности $c^2(f)$ позволяет получить величину фрактальной размерности D для исследуемой кривой с использованием соотношения $c^2(f) \propto f^\beta$. Линейная аппроксимация зависимости $c^2(f)$, представленной в двойном логарифмическом масштабе, дает угловой коэффициент β , связанный с фрактальной размерностью выражением:

$$D = \frac{4 + \beta}{2}. \quad (3.11)$$

Для рассмотренных методов предложено программное приложение, разработанное в ППП Matlab. Приложение позволяет проводить фрактальный анализ динамических данных, заданных временным рядом, методами: нормированного размаха, результатом которого являются значения показателя Херста и фрактальной размерности, и методом Фурье, который дает значение фрактальной размерности.

Для проверки адекватности результатов программной реализации рассмотренных методов проводилось тестирование работы на теоретических сигналах: временном ряде, моделирующем броуновское движение, и ряде, сгенерированном функцией Вейерштрасса:

$$x(t) = \sqrt{2} \cdot \sigma \cdot \frac{\left[1 - b^{2D-4}\right]^{\frac{1}{2}} \cdot \sum_{n=0}^N b^{(D-2) \cdot n} \cos(2\pi \cdot s \cdot b^n t + \psi_n)}{\left[1 - b^{(2D-4)(N+1)}\right]}, \quad (3.12)$$

где σ – стандартное отклонение; b, s – параметры пространственно-частотного масштабирования; D – фрактальная или мультифрактальная размерность; $N+1$ –

количество гармоник; ψ – фаза, распределенная случайным образом на интервале $[0, 2\pi]$; t – время.

При тестировании методов на искусственно сгенерированных фрактальных временных рядах было установлено, что метод Херста позволяет оценить фрактальную размерность с точностью до 0.005, в то время как метод Фурье является менее точным и его ошибка довольно существенна – 0.05.

Следует отметить, что указанные методы применялись и другими авторами для исследований фрактальных свойств токов переключения поляризации и их шумовых компонент – импульсов Баркгаузена. Импульсы Баркгаузена связаны со сложной природой процесса зарождения, роста и слияния множества зародышей новой фазы, наблюдаемых в процессе переключения поляризации, и, как следствие, выражаются в отклонении интегральной характеристики – временной зависимости токов реполяризации от монотонной зависимости в связи со скачкообразным характером перестройки доменной структуры.

Так, в работе [67] был оценен показатель Херста при анализе шумов Баркгаузена в стехиометрическом танталате лития LiTaO_3 , а в работе [173] спектральный анализ, проведенный с использованием метода Фурье, позволил установить характер шумов Баркгаузена при движении доменной границы в сегнетоэлектрике-сегнетоэластике молибдата гадолия $\text{Gd}_2(\text{MoO}_4)_3$. В работе [96] метод Фурье был применен для установления факта фрактальности поведения шумов для обобщенной модельной зависимости токов переключения поляризации, полученной с использованием термодинамического подхода и модели Изинга.

На рис. 3.1 представлен график временной зависимости тока переключения поляризации сегнетоэлектрического кристалла ТГС в инжекционном режиме по данным работы [137]. Расчет фрактальной размерности D был проведен при помощи разработанного программного приложения.

На рис. 3.2 представлена зависимость максимального размаха R/S от длины подпериода n , построенная в двойном логарифмическом масштабе для временного ряда, определенного первой токовой зависимостью, представленной на рис. 3.1.

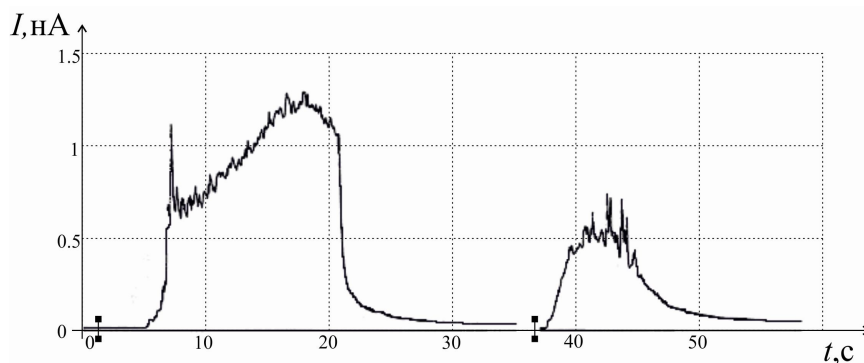


Рис. 3.1. Временная зависимость тока переключения поляризации кристалла ТГС в инжекционном режиме по данным [137] (сигнал нижнего электрода, ток зонда $I=0.55$ нА, ускоряющие напряжения $U=15$ кВ, метки соответствуют моментам времени – включения и выключения электронного зонда).

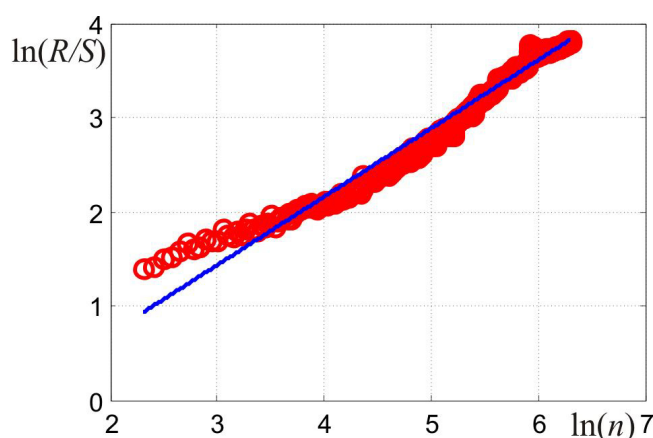


Рис. 3.2. Аппроксимация зависимости максимального размаха R/S от длины подпериода n , построенного в двойном логарифмическом масштабе, методом наименьших квадратов для временного ряда – импульса тока переключения поляризации (рис. 3.1).

Линейная аппроксимация данной зависимости методом наименьших квадратов позволяет определить угловой коэффициент, который дает показатель Херста H , и фрактальную размерность D .

Проведенный расчет для временной зависимости тока переключения поляризации кристалла ТГС в инжекционном режиме дал следующие результаты: показатель Херста – $H=0.73$, тогда, соответственно, фрактальная размерность –

$D= 1.27$, мера корреляции $C= 0.38$.

Далее таким же методом были обработаны еще пять токовых кривых, зарегистрированных для различных образцов кристаллов ТГС, при различных значениях ускоряющих напряжений (15 кВ, 25 кВ), при регистрации сигнала верхнего электрода, а также при повторном включении зонда (вторая кривая импульса переключения на рис. 3.1). Примечательным оказалось то, что значение показателя Херста варьировалось в незначительном пределе $H=0.71-0.73$, что свидетельствует об устойчивости данного метода по отношению к исследова-

нию показателей фрактальной динамики анализируемой токовой зависимости. Показатель Херста H во всех случаях принадлежит диапазону: $0.5 < H < 1.0$, что свидетельствует о фрактальности рассматриваемого процесса.

Результат оценки фрактальной размерности тока переключения поляризации сегнетоэлектрического кристалла ТГС в инжекционном режиме, приведенного на рис. 3.1, методом Фурье дает величину $D = 1.25$. Подобное расхождение в оценках фрактальной размерности одного и того же ряда объясняется низкой точностью метода Фурье, позволяющего осуществлять только качественный анализ.

На рис. 3.3 представлена линейная аппроксимация зависимости частотного спектра мощности, представленная в двойном логарифмическом масштабе.

Полученные результаты подтверждают, что самоорганизованное движение доменных границ носит персистентный характер, характеризующийся эффектами долговременной памяти. Процесс переключения поляризации сегнетоэлектрика в режиме инжекции имеет не случайный характер, в процессе формирования последующих состояний системы учитываются предыдущие состояния.

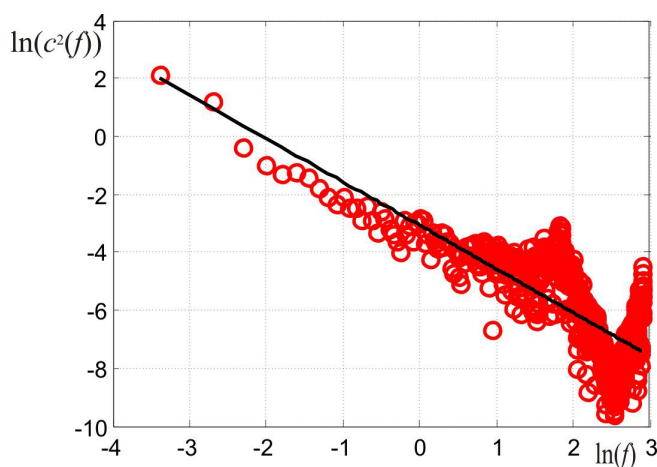


Рис. 3.3. Аппроксимация зависимости частотного спектра мощности, представленная в двойном логарифмическом масштабе, методом наименьших квадратов для анализируемой токовой кривой, приведенной на рис. 3.1.

3.3. Исследование мультифрактальных характеристик

процесса переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов под действием инжектированных зарядов

Технический анализ разбитого на участки временного ряда, соответствующего импульсу тока переключения поляризации в кристалле ТГС, дает различные значения фрактальной размерности для каждого анализируемого пе-

риода. Начальный период ($t \in [0,8]$ с), связанный с накоплением стартового заряда, характеризуется показателем Херста $H=0.95$, следующему за ним периоду ($t \in [8,20]$ с), обусловленному интенсивными поляризационными процессами, происходящими в кристалле, соответствует $H=0.54$, наконец, период, включающий завершение поляризационных процессов ($t > 20$ с), определяется $H=0.80$. Проведенный технический анализ различных временных интервалов обнаруживает, что ток переключения поляризации не является монофрактальной временной зависимостью. Такой результат обусловлен смешанной природой временного ряда и позволяет высказать предположение о мультифрактальном характере рассматриваемых процессов. Мультифрактальные временные ряды обладают не только геометрическими, но и статистическими свойствами, и для их идентификации требуется ввести в рассмотрение спектр фрактальных размерностей.

Для анализа мультифрактальных характеристик были применены метод мультифрактального флуктуационного анализа [176-177] и метод вейвлет-анализа временных рядов [170, 172], которые позволяют получить набор спектральных характеристик, дающих статистические фрактальные свойства исследуемых токовых зависимостей процесса переключения поляризации.

Алгоритм метода мультифрактального флуктуационного анализа предусматривает преобразование исходного временного ряда, определяемого временной зависимостью тока переполаризации $I(t)$, в ряд $x(i) = \ln(I(t_{i+1})/I(t_i))$, где $i = \overline{1, N}$, с последующим определением флуктуационного профиля по формуле: $y(i) = \sum_{k=1}^i |x(k) - \bar{x}|$, отсчитанный от средней величины \bar{x} . Эта процедура может быть ассоциирована с выделением шумовой компоненты тока переключения поляризации, связанного с процессом неоднородной перестройки доменной структуры.

Далее разделяем полученные значения $y(i)$ по непересекающимся сегментам длины s , число которых равно целому значению $N_s = [N/s]$. В результате полное число сегментов, обладающих длиной s , составит $2N_s$.

Затем методом наименьших квадратов определяются локальный тренд $y_v(i)$ на каждом из сегментов $2N_s$ в прямом и обратном направлениях. После этого определяем дисперсию

$$F^2(v, s) = \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s \{y|v-1|s+i - y_v(i)\}^2 \quad (3.13)$$

для сегментов $v=1, \dots, N$, следующих в прямом направлении, и соответствующее значение

$$F^2(v, s) = \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s \{y|N-(v-N_s)s+i - y_v(i)\}^2 \quad (3.14)$$

– для обратной последовательности $v=N_s+1, \dots, 2N_s$.

На следующем этапе рассматриваем деформированную дисперсию

$$F_q(s) = \left\{ \frac{1}{2N_s} \sum_{v=1}^{2N_s} [F^2(v, s)]^{q/2} \right\}^{1/q}. \quad (3.15)$$

Поскольку при $q=0$ равенство (3.15) содержит неопределенность, то используют предельный переход:

$$F_q(s) = \exp \left(\lim_{q \rightarrow 0} \frac{2N_s \cdot \frac{1}{2N_s} \cdot \frac{1}{2} \sum_{v=1}^{2N_s} F^2(v, s)^{q/2} \ln \sum_{v=1}^{2N_s} F^2(v, s)}{\sum_{v=1}^{2N_s} F^2(v, s)^{q/2}} \right).$$

Откуда получаем значение деформированной дисперсии при $q=0$

$$F_0(s) = \exp \left\{ \frac{1}{4N_s} \sum_{v=1}^{2N_s} \ln [F^2(v, s)] \right\}. \quad (3.16)$$

Изменяя временную шкалу s при фиксированном показателе q , находим зависимость $F_s(s)$, представляя ее в двойных логарифмических координатах. Данный временной ряд представляет собой самоподобное множество, проявляющее дальнедействующие корреляции, поэтому выполняется следующая зависимость:

$$F_q(s) \propto s^{h(q)}, \quad (3.17)$$

где $h(q)$ – обобщенный показатель Херста.

Проведение указанной процедуры предполагает исключение, с одной стороны, больших сегментов ($s > N/4$), а с другой, – малых ($s < 10$).

Для временных рядов, которые отвечают монофрактальному множеству, флуктуационная функция $F^2(v, s)$ одинакова для всех сегментов v , и обобщенный показатель Херста $h(q) = H$ не зависит от параметра деформации q .

Далее осуществлялся переход от показателя Херста $h(q)$ к основным характеристикам мультифракталов – массовому показателю $\tau(q)$ и спектральной функции $f(\alpha)$, с использованием преобразования Лежандра:

$$\begin{aligned} \tau(q) &= qh(q) - 1, \\ f(\alpha) &= \alpha q(\alpha) - \tau(q(\alpha)). \end{aligned} \tag{3.18}$$

Здесь значение $q(\alpha)$ определяется условием $\tau'(q) = \alpha$, где штрих означает дифференцирование по аргументу. При $q \gg 1$ зависимость $\tau(q)$ имеет линейно возрастающий вид с криволинейным участком вблизи $q = 0$, который обеспечивает замедление роста массового показателя τ с увеличением параметра деформации q .

Методы вейвлет-анализа дают возможность получить некоторые характеристики временных зависимостей, которые не дают другие методы фрактального анализа. Вейвлет-преобразования позволяют описывать частотно-временные свойства, играя роль «математического микроскопа» [170], что отличает их от преобразований Фурье, которые отражают только частотные характеристики исследуемого сигнала. Этот факт обуславливает популярность методов анализа различных процессов на основе вейвлет-преобразования. Вейвлет может быть сконструирован, например, на основе производных функции Гаусса. При изучении локальных сингулярностей функции обычно рассматривают $m = 1$ (вейвлет «Мексиканская шляпа») или $m = 2$ (вейвлет Морле).

Характерным признаком базиса вейвлет-преобразования является его самоподобие. Все вейвлеты данного семейства имеют то же число осцилляций, что и базисный вейвлет, поскольку получены из него посредством сдвигов и масштабных преобразований, это позволяет с успехом применять вейвлет-преобразование для анализа фрактальных сигналов.

При использовании вейвлет-преобразования для оценки свойств сложного скейлинга в конденсированных средах с самоорганизованными структурами можно воспользоваться методом максимумов модулей коэффициентов вейвлет-преобразования (ММВП), предложенный в 1990-х гг. Мьюзи, Бакри и Арнеодо. Алгоритм этого метода осуществляется в два основных этапа [168].

На первой стадии происходит вейвлет-преобразование исходного сигнала $x(t)$ по формуле

$$W(a, b) = \frac{1}{a} \int_{-\infty}^{\infty} \psi\left(\frac{t-b}{a}\right) x(t) dt, \quad (3.19)$$

где a представляет собой параметр масштаба; b – момент времени; ψ – вейвлет.

Выбор базисной функции определяется тем, какую информацию необходимо извлечь из $x(t)$. Необходимым условием является то, что выбранный вейвлет должен быть не менее гладким, чем сам анализируемый сигнал. Результаты преобразования представляются в виде двумерного массива амплитуд вейвлет-преобразования – значений коэффициентов $W(a, b)$.

Второй этап метода заключается в построении частичных функций $Z(q, a)$, позволяющих получить надежные оценки характеристик вычисляемого процесса. Расчет значений $Z(q, a)$ наиболее удобно проводить по формуле:

$$Z(q, a) = \sum_{l \in L(a)} \left(\sup_{a' \leq a} |W(a', t_l(a'))| \right)^q, \quad (3.20)$$

где $L(a)$ – множество всех линий – l – локальных максимумов модулей вейвлет-коэффициентов, существующих на масштабе a . То есть формула показывает, что выбирается максимальное значение модуля вдоль каждой линии на масштабах меньше заданного a .

Используя зависимость $W(q, a) \propto a^{\tau(q)}$, можно определить скейлинговую экспоненту $\tau(q)$. Вариация параметра деформации q при построении частичных функций позволяет получить линейную зависимость $\tau(q)$ для монофрактальных объектов ($H = d\tau/dq = const$) и нелинейную зависимость $\tau(q) = q\alpha - f(\alpha)$ с большим числом гельдеровских экспонент $H = d\tau/dq \neq const$ в случае мульт-

тифракталов. Взаимосвязь между основными величинами, рассматриваемыми в рамках алгоритма, определяется преобразованием Лежандра (3.18).

Частичные функции $Z(q, a)$ при $q < 0$ характеризуют особенности скейлинга для малых флуктуаций, а при $q > 0$ – для больших флуктуаций. Величину $E(a, b) = |W(a, b)|^2$ называют плотностью спектра энергии, определяющую спектральную характеристику не только для заданного масштаба, но и для параметра сдвига b . По этой причине ее называют локальным спектром энергии. Величину $E_w(a) = \int_{-\infty}^{\infty} |W(a, b)|^2 db$ именуют глобальным спектром энергии. Глобальный спектр энергии называют также скалограммой (scalogram), или дисперсией вейвлет-преобразования. Для дискретного пространства вводится оценка локального спектра энергии: $S(a_i, b_j) = |W_A(a_i, b_j)|^2$. Важной характеристикой шумов являются спектральные зависимости. Спектральные плотности мощности очень часто подчиняются степенным законам с постоянным показателем β :

$$S(f) \propto C f^{-\beta}, \quad (3.21)$$

где f – частота; β – некоторый показатель «спада» функции S .

В рамках данного исследования разработано программное приложение, интегрирующее возможности программных модулей, предназначенных для проведения фрактального анализа методами Херста и Фурье, а также отдельных программных блоков, реализующих метод мультифрактального флуктуационного анализа и метод максимумов модулей коэффициентов вейвлет-преобразования для анализа нестационарных сигналов. Комплекс реализован в ППП Matlab [104]. Верификация результатов работы программного приложения была проведена на тест-примере анализа модельного сигнала, построенного на основе функции Вейерштрасса, допускающего мультифрактальное представление (3.12).

При помощи данного приложения был проведен анализ временной зависимости тока переключения поляризации в инжекционном режиме, представленной на рис. 3.1. Результаты, полученные методом мультифрактального флуктуационного анализа и методом максимумов модулей коэффициентов

вейвлет-преобразования, имели хорошее качественное и количественное согласование. Поэтому представим совокупный результат анализа.

В качестве материнского вейвлета для обработки сигнала был использован один из наиболее подходящих – вейвлет «Мексиканская шляпа» (mhat). Результатом реализации вейвлет-преобразования является двумерный массив амплитуд вейвлет-преобразования – значений коэффициентов $W(a,b)$ (рис. 3.4).

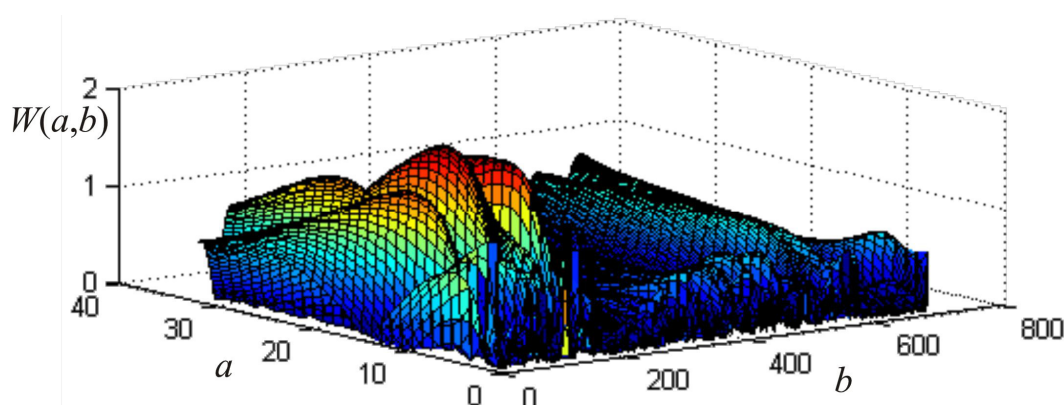


Рис. 3.4. Поверхность коэффициентов вейвлет-преобразования.

Картина вейвлет-коэффициентов (рис. 3.5) наглядно показывает иерархическую структуру флуктуаций сигнала. Появление в распределении коэффициентов характерных «вилочек» (раздвоение локальных максимумов) демонстрирует дробление масштаба. Такая особенность обусловлена тем, что исследуемый сигнал обладает свойствами самоподобия.

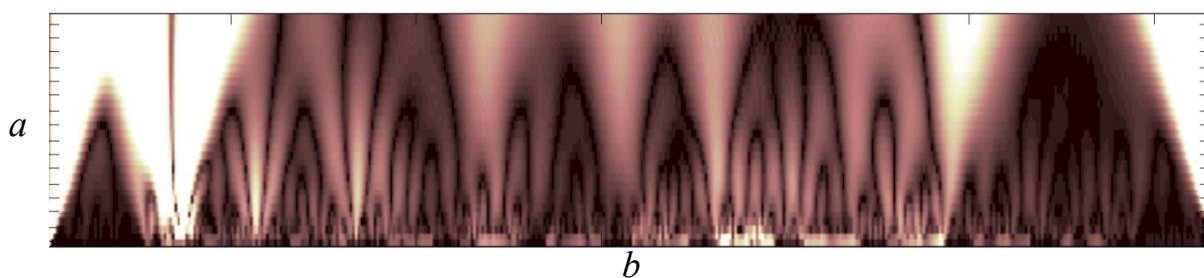


Рис. 3.5. Картина коэффициентов вейвлет-преобразования $W(a,b)$.

Зависимость скейлинговой экспоненты τ от параметра деформации q приведена на рис. 3.6 а. Система (3.18) позволяет рассчитать спектральные характеристики исследуемого процесса. На рис. 3.6 б показана зависимость $f(\alpha)$, дающая информацию о мультифрактальных свойствах анализируемого временного ряда.

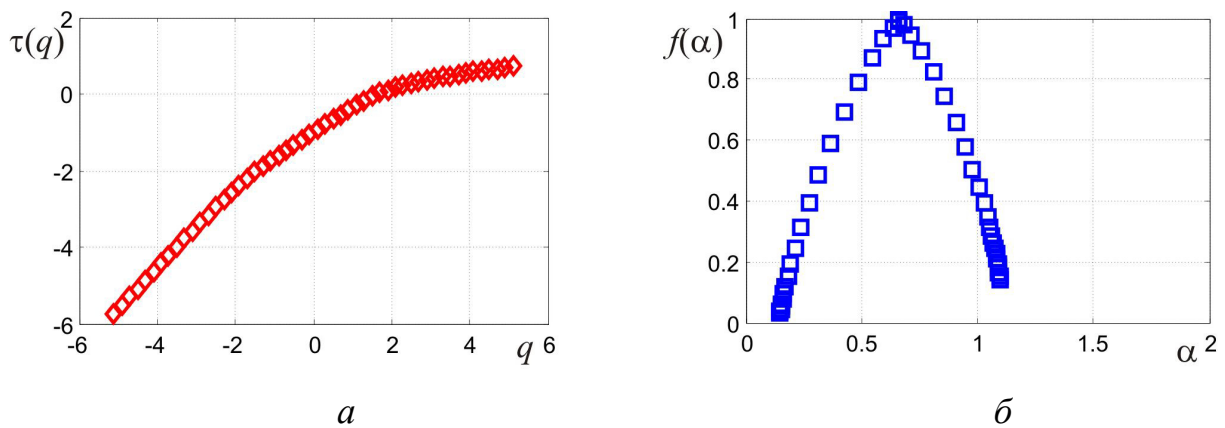


Рис. 3.6. Мультифрактальные характеристики анализируемого сигнала: скейлинговая экспонента $\tau(q)$ – а; спектр фрактальных размерностей $f(\alpha)$ – б для импульса тока переключения поляризации в ТГС.

Спектральная функция $f(\alpha)$ определяет набор монофракталов с размерностями α , которые формируют исследуемое множество. При этом ширина спектра $f(\alpha)$ будет тем больше, чем сильнее выражены мультифрактальные свойства (так, монофрактал характеризуется единственным значением α). Анализ формы спектра $f(\alpha)$ позволяет численно оценить диапазон изменения фрактальной размерности и свидетельствует о том, что носителем меры является значение, соответствующее максимуму кривой: $f = 1$. Абсцисса максимума соответствует хаусдорфовой размерности $D = 1.24$, это значение хорошо согласуется с величиной, полученной на основе R/S -анализа.

Ширина спектра $f(\alpha)$ определяет набор размерностей фрактальных размерностей, формирующих исходный ряд. Так как монофрактал имеет узкий спектр фрактальных размерностей, а мультифрактал характеризуется уширением данного спектра, то множество $I(t)$ является мультифракталом с шириной спектра $\Delta\alpha \approx 1$. Таким образом, вариация значений фрактальной размерности в диапазоне $0.9 \leq D \leq 1.9$ подтверждает предположение о природе мультифрактальности процесса переключения поляризации в инжекционном режиме. Анализ полученных результатов свидетельствует в пользу предположения о проявлении свойств самоорганизованного движения доменных границ в процессе переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов.

Оценивая значения величин параметра Херста, полученного методами фрактального и мультифрактального анализа временной зависимости тока пе-

реключения поляризации кристалла ТГС в инжекционном режиме, и фрактального параметра α , используемого в модельном представлении тех же экспериментальных данных, можно указать на соответствие этих величин. На основании данного соответствия можно предположить, что для получения в процессе моделирования результатов, наилучшим образом согласующихся с экспериментальными данными, в качестве фрактального параметра модели α можно использовать параметр Херста, заранее определенный одним из методов фрактального анализа.

3.4. Основные результаты и выводы

Таким образом, в третьей главе рассмотрены подходы, позволяющие проводить теоретический анализ токов переключения поляризации сегнетоэлектриков как динамического отклика неоднородной физической системы в рамках фрактального формализма. На основе широкого ряда методов проведены исследования скейлинговых характеристик временных зависимостей импульсов токов переключения поляризации в сегнетоэлектрических кристаллах ТГС, наблюдаемых в режиме электронно-стимулированной поляризации в РЭМ. Анализ полученных результатов свидетельствует в пользу предположения о проявлении свойств самоорганизованного движения доменных границ в процессе переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов.

1. Для исследования фрактальных свойств тока переключения применены метод нормированного размаха (*R/S*-анализ) и метод Фурье. Импульсы тока переключения поляризации, отражающие процессы перестройки доменной структуры под действием электронного облучения, характеризуются персистентным поведением: в процессе формирования последующих состояний системы учитываются предыдущие состояния. Данный факт можно связать с присутствием эффектов долговременной памяти в сегнетоэлектрических материалах.

2. Разработано программное приложение для поддержки проводимых исследований. Программный комплекс объединяет отдельные модули, реализующие методы фрактального (метод *R/S*-анализа и метод Фурье) и мульти-

фрактального (метод мультифрактального флуктуационного анализа и метод максимумов модулей коэффициентов вейвлет-преобразования) анализа. Для проверки адекватности результатов программной реализации рассмотренных методов проводилось тестирование работы на теоретических сигналах: временном ряде, моделирующем броуновское движение, и ряде, сгенерированном функцией Вейерштрасса.

3. Проведенный фрактальный анализ разбитой на участки временной зависимости тока переключения показал, что фрактальная размерность на различных участках оказывается различной. Такой результат обусловлен смешанной природой тока переключения, которая количественно может быть охарактеризована с использованием мультифрактального анализа.

Применение мультифрактального анализа позволило более детально исследовать фрактальные свойства токов переключения. Картина вейвлет-коэффициентов наглядно показывает иерархическую структуру флуктуаций сигнала, такая особенность обусловлена тем, что исследуемый сигнал обладает свойствами самоподобия. Рассчитанный спектр фрактальных размерностей дает вариацию значений фрактальной размерности в диапазоне от 0.9 до 1.9, что подтверждает предположение о мультифрактальной природе процесса переключения поляризации в инжекционном режиме. Абсцисса максимума спектральной кривой соответствует параметру Херста фрактального процесса.

4. Установленные фрактальные закономерности могут быть учтены при построении математических моделей токов переключения поляризации в режиме инжекции пучка электронов на этапе учета характерной величины размерности кинетического процесса.

4. РАЗВИТИЕ ТЕОРЕТИЧЕСКИХ ПОДХОДОВ К ОПИСАНИЮ ПРОЦЕССА ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ В НЕРАВНОВЕСНЫХ УСЛОВИЯХ ЭЛЕКТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

Установленные фрактальные закономерности РЭМ-изображений сегнетоэлектрических доменных структур, фрактальная динамика полного цикла переключения поляризации, наблюдаемая в РЭМ, а также результаты оценки фрактальных характеристик тока переключения поляризации, индуцированного электронным зондом, представленные в второй и третьей главах, дают основания предполагать, что математические модели, описывающие формирование тока переключения поляризации в инжекционном режиме, должны учитывать фрактальные характеристики рассматриваемых процессов.

Как было отмечено в первой главе, для теоретического описания формирования токов переключения поляризации используют широкий арсенал методологических подходов. В рамках данной работы за основу выбраны фрактальная модификация модели Колмогорова – Аврамы, предложенная авторами работы [106], а также детерминированная математическая модель, описывающая формирование тока переключения поляризации в режиме инжекции электронного пучка, представленная в работе [152].

Основная цель настоящей главы – развитие теоретических основ и построение модифицированной математической модели процесса динамики доменной структуры и формирования токов переключения поляризации сегнетоэлектриков в режиме тока электронно-стимулированной поляризации, с использованием концепций дробно-дифференциального исчисления для описания фрактальной динамики доменных границ. Результаты этих исследований описаны в работах [139-146] автора.

4.1. Численная модификация фрактальной модели Колмогорова – Аврамы формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектриков

В настоящее время известно большое количество теоретических и экспериментальных данных, касающихся процессов переполаризации и динамики

доменов. Экспериментальные данные включают как электрические изменения объемных кристаллов, так и результаты прямых микроскопических наблюдений доменов при переключении. На процессы переключения оказывают влияние многие факторы, – например, тип электродов, состояние поверхности, наличие дефектов, геометрия доменов и т.д. В настоящее время распространены два основных подхода к описанию кинетики переключения. Оба основаны на теории фазовых переходов первого рода, в результате которых в объеме сегнетоэлектрика происходит зарождение и рост новых антипараллельных доменов либо процесс роста существующих доменов, антипараллельных приложенному полю. При этом рост доменов может происходить вдоль полярного направления либо путем бокового движения 180° стенок.

При анализе кинетики токов переполяризации сегнетоэлектриков широкое применение нашли модели аппроксимационного типа, модели, которые развивают кинетическую теорию фазовых переходов, и модели, основанные на статистической теории кристаллизации Колмогорова – Авраами. В концепции рассматриваемого подхода ток переключения определяется $V(t)$ – долей переключенного объема к полному объему сегнетоэлектрического кристалла [57]:

$$I(t) = 2P_S \cdot S \cdot \frac{dV(t)}{dt}, \quad (4.1)$$

где P_S – спонтанная поляризация образца, Кл/м²; S – площадь электрода образца, м².

Как было показано в обзорной первой главе, формализация тока переключения с помощью выражения (4.1) имеет ряд ограничений, поскольку не учитываются свойства анизотропии реальных кристаллов, взаимодействие стенок с дефектами при движении последних под действием приложенного поля, стохастичность и сложность процессов динамики доменов и др. В первой главе было отмечено, что процессы зародышеобразования и динамики сегнетоэлектрических доменных структур характеризуются самоподобным поведением и ярко выраженными фрактальными свойствами как геометрических конфигураций доменов, так и динамики доменной структуры.

В работе [106] предложен альтернативный подход к описанию тока переключения поляризации в сегнетоэлектриках, основанный на применении концепций дробного дифференциального исчисления. Теория дробного дифференцирования применяется для описания процессов и явлений, обладающих фрактальными характеристиками [178-181]. Для указания на то, что рассматриваемый процесс обладает особым свойством – памятью, используют дробную производную по времени. Концептуальная постановка задачи моделирования тока переключения поляризации сегнетоэлектриков [106] базируется на гипотезе, согласно которой предполагается, что механизмы перестройки доменных структур сегнетоэлектриков обладают фрактальными свойствами, а сам процесс переключения – памятью. Математическая постановка задачи описания тока переключения поляризации в этом случае строится на основе модификации подхода (4.1), с использованием производной по времени дробного порядка, и имеет следующий вид [106]:

$$\bar{I}(\xi) = \frac{2P_S \cdot S}{t_0} \frac{d^\alpha}{d\xi^\alpha} V(\xi), \quad (4.2)$$

где $\xi = t/t_0$ – безразмерное время; t_0 – время переключения, с; α – динамическая фрактальная размерность ($\alpha \in (0,1]$, при этом $\alpha = 1$ соответствует отсутствию эффектов памяти); $2P_S \cdot S \cdot V(\xi)$ – заряд переключения, Кл.

С целью построения аналитического решения модельной задачи в ряде случаев принимают к рассмотрению следующую аппроксимацию для $V(\xi)$:

$$V(\xi) = 1 - \exp(-\xi). \quad (4.3)$$

Из (4.2), с учетом (4.3), авторами работы [106] получено следующее представление:

$$I(\xi) = \frac{1}{\Gamma(2-\alpha)} \cdot \xi^{1-\alpha} \cdot \exp(-\xi) \cdot M(1-\alpha, 2-\alpha, \xi), \quad (4.4)$$

где $I(\xi) = \frac{\bar{I}(\xi) \cdot t_0}{2P_S \cdot S}$ – ток переключения, выраженный в безразмерном виде; $\Gamma(\alpha)$

– гамма-функция Эйлера; $M(a; b; z)$ – вырожденная гипергеометрическая функция Куммера.

Функция Куммера в аналитическом виде может быть выражена как:

$$M(a_1, b_1, z) = 1 + \frac{az}{b} + \frac{(a)_2 z^2}{(b)_2 2!} + \dots + \frac{(a)_n z^n}{(b)_n n!} + \dots,$$

где $(a)_n = a(a+1)(a+2)\dots(a+n-1)$, $(a)_0 = 1$, $(b)_n = b(b+1)(b+2)\dots(b+n-1)$, $(b)_0 = 1$.

Однако широко используемая в практике формализации процесса переключения сегнетоэлектриков зависимость $V(\xi)$ вида (4.3) часто не отвечает особенностям экспериментальных данных. Для математического моделирования токов переключения поляризации типичных сегнетоэлектриков различными авторами были предложены модификации выражения $V(\xi)$ в теории Колмогорова – Аврами. В частности, используется выражение вида:

$$V(\xi) = 1 - \exp(-\xi^n), \quad (4.5)$$

где параметр n определяет параметр (размерность) доменного роста.

Параметр α характеризует форму функциональной зависимости тока переключения от времени и является важным характеристическим параметром, определяющим степень быстроты реакции системы на внешнее воздействие. При этом α зависит как от собственных свойств системы, так и от способа воздействия на нее, причем этот параметр преимущественно отражает величину интенсивности взаимодействия доменов в электрическом поле.

Таким образом, аналитическое представление (4.4) может быть построено для ограниченного класса задач. В общем же случае (например, при использовании зависимости (4.5)) применение аналитического подхода к вычислению дробной производной будет затруднено.

Для построения обобщенной фрактальной модели тока переключения поляризации сегнетоэлектриков введем в рассмотрение новый подход, основанный на построении численной схемы решения задачи с использованием конечно-разностной аппроксимации дробной производной по времени.

Рассмотрим идею построения явной конечно-разностной схемы численной аппроксимации дробной производной. Формула Грюнвальда – Летникова

для производной дробного порядка для задачи (4.5) на сетке $\omega = \{\xi_i = \xi_0 + ih, i = \overline{0, N}\}$ может быть записана в следующей форме [180]:

$$\frac{d^\alpha V(\xi)}{d\xi^\alpha} = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \cdot \frac{1}{h^\alpha} \cdot \sum_{i=0}^k \frac{\Gamma(i-\alpha)}{\Gamma(i+1)} V(\xi - ih), \quad (4.6)$$

где h – шаг по времени.

Тогда последовательная конечно-разностная аппроксимация производной для i -го узла $V(\xi_i) \approx V_i$ может быть получена следующим образом:

$$\begin{aligned} \frac{d^\alpha V(\xi_0)}{d\xi^\alpha} &= \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \cdot \frac{1}{h^\alpha} \cdot \frac{\Gamma(-\alpha)}{\Gamma(1)} V_0, \quad j=0; \\ \frac{d^\alpha V(\xi_1)}{d\xi^\alpha} &= \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \cdot \frac{1}{h^\alpha} \cdot \left(\frac{\Gamma(1-\alpha)}{\Gamma(2)} V_0 + \frac{\Gamma(-\alpha)}{\Gamma(1)} V_1 \right), \quad j=1; \\ &\dots \\ \frac{d^\alpha V(\xi_i)}{d\xi^\alpha} &= \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \cdot \frac{1}{h^\alpha} \cdot \sum_{j=1}^i \frac{\Gamma(j-1-\alpha)}{\Gamma(j)} V(\xi_i - (j-1) \cdot h), \quad j=i; \quad i = \overline{0, N}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Таким образом, предложенная модификация математической модели формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектрического кристалла включает: выражение для тока переключения модели Колмогорова –Аврами,

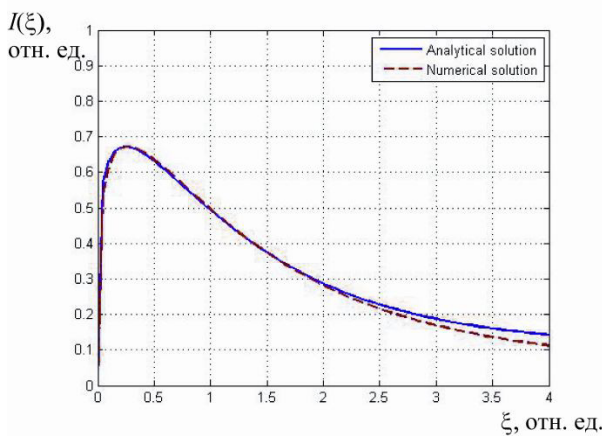


Рис. 4.1. Сравнение аналитического и численного представлений тока переключения $I(\xi)$ (при значениях модельных параметров: $S = 1$ отн. ед., $2P_s = 1$ отн. ед., $t_0 = 1$ отн. ед., $\alpha = 0.8$, $n=1$).

представленного в форме (4.2), аппроксимирующую зависимость вида (4.5) и схему численного вычисления производной дробного порядка (4.7).

С целью верификации введенной схемы моделирования проведем сопоставление аналитического (4.4) и численного (с использованием зависимости (4.5) при $n=1$ и схемы (4.7)) представлений тока переключения $I(\xi)$. На рис. 4.1 приведены соответствующие зависимости.

Совпадение аналитического и численного представлений при $n=1$ свидетельствует об адекватности численного подхода к моделированию тока переключения. Следует отметить, что применение последнего позволяет строить решения в более широком классе прикладных задач с использованием выражения (4.5), аппроксимирующего временную зависимость поляризационного заряда $V(\xi)$, принимая во внимание размерность доменного роста n .

Для анализа поведения модели была проведена серия вычислительных экспериментов, с учетом варьирования значений параметров моделирования. Результаты модельных расчетов приведены на рис. 4.2.

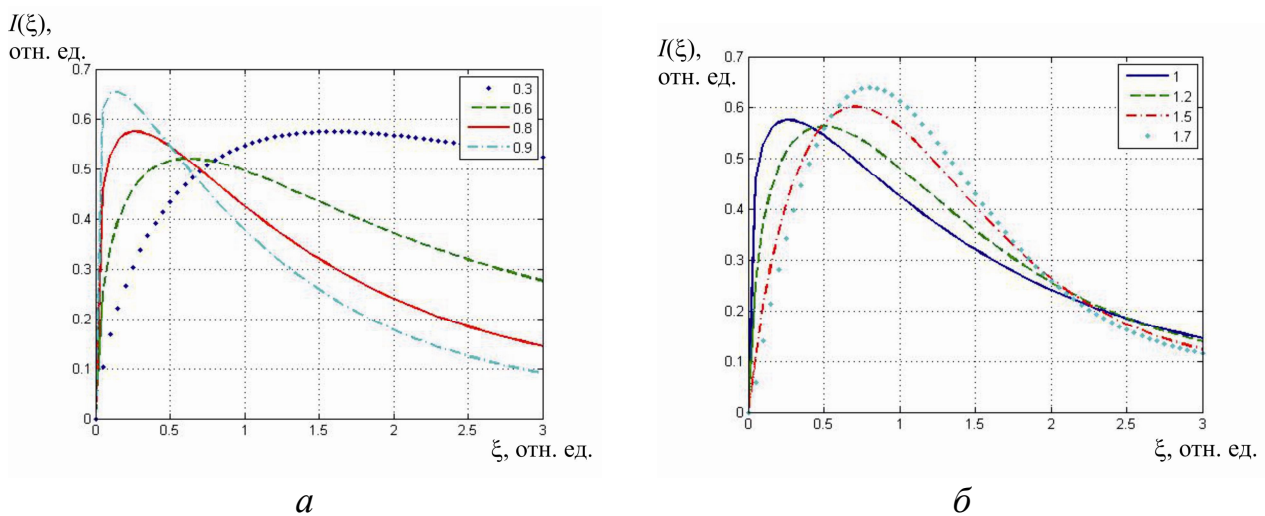


Рис. 4.2. Зависимость тока переключения $I(\xi)$ от времени (в отн. ед.): a – при значениях порядка дробной производной $\alpha=0.3; 0.6; 0.8$ и 0.9 и размерности доменного роста $n=1$; b – $\alpha = 0.8$ и $n = 1; 1.2; 1.5; 1.7$.

На рис. 4.2 a представлен вид временной зависимости тока при фиксированном значении $n=1$ в выражении (4.5) для $V(\xi)$, вычисленный согласно фрактальной модели при значении порядка производной α , соответственно равного: $0.3; 0.6; 0.8$ и 0.9 . На рис. 4.2 b изображен вид кривой тока при различных значениях параметра роста $n = 1; 1.2; 1.5; 1.7$ и при фиксированном значении фрактального параметра $\alpha = 0.8$.

Покажем, что построенная численная аппроксимация модели (4.3) с учетом зависимости для $Q(\xi)$ (4.4) хорошо согласуется с данными эксперимента, описанными, например, в работе [16]. Для этого в одной системе координат построим соответствующую зависимость тока переключения для сегнетоэлектри-

ческого кристалла нитрита натрия (NaNO_2) от времени и его модельное представление на основе численной аппроксимации дробной производной согласно (4.7).

На рис. 4.3 представлен график экспериментальной зависимости (точечный массив), построенный по данным [16], и модельное представление тока переключения для модифицированной модели Колмогорова – Авраами (4.2), (4.5), (4.7). Модельная и экспериментальная кривые обнаруживают приемлемое согласование при следующих значениях параметров модели: $\alpha = 0.9$ и $n = 1.3$.

Таким образом, представлены результаты математического моделирования формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов. Предложена модификация базовой модели Колмогорова – Авраами с использованием фрактального подхода и численной аппроксимации дробной производной по времени.

Такой подход позволяет моделировать процесс переключения с учетом нецелого значения показателя степени доменного роста. Показано согласование численного представления тока переключения с аналитической аппроксимацией, полученной с помощью гипергеометрической функции Куммера. Общая схема (4.7) отражает идейный смысл использования дробной производной для моделирования физических систем с памятью: расчет тока в каждый последующий момент времени учитывает все предыдущие состояния.

В качестве недостатка численной схемы можно отметить ресурсоемкость выполняемых вычислительных процессов. Проведено сопоставление результатов моделирования с экспериментальными данными тока переключения поляризации кристалла нитрита натрия. Постановка и реализация компьютерного

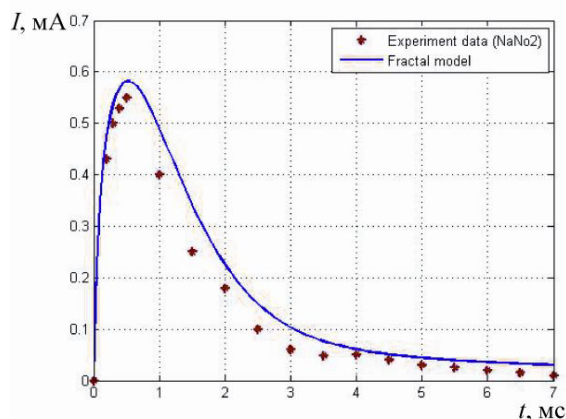


Рис. 4.3. Экспериментальные данные тока переключения NaNO_2 [16] (точечный массив) и модельная зависимость (сплошная кривая) при значениях параметров: $\alpha = 0.9$; $P_S = 10.9 \cdot 10^{-3}$ Кл/м²; $t_0 = 1.27 \cdot 10^{-3}$ с; $n = 1.3$).

эксперимента позволяют установить значения параметров, определяющих законы фрактальной динамики доменной структуры.

4.2. Теоретическое описание процесса переключения поляризации сегнетоэлектриков в режиме электронно-стимулированной поляризации

Введенный в рассмотрение в п. 4.1 подход характеризуется рядом недостатков применительно к решению задачи моделирования токов переключения поляризации, индуцированных электронным облучением. Во-первых, он не приводит к удовлетворительному согласованию с формой регистрируемых токовых кривых. Во-вторых, данный метод в силу введения эмпирических зависимостей вида (4.3) относится к группе методов, которые используют аппроксимацию токовых кривых, и в нашем случае не будет учитывать специфику динамики доменной структуры, индуцированной электронным зондом. В-третьих, модель не учитывает параметры экспериментальных режимов исследования сегнетоэлектриков в РЭМ. Поэтому на следующем этапе была рассмотрена и модифицирована, с учетом особенностей формирования поляризационного отклика и фрактального подхода, детерминированная математическая модель, описывающая формирование тока переключения поляризации в режиме инжекции электронного пучка, описанная в работе [133].

Рассмотрим процесс переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов в режиме инжекции электронного пучка. В [137] представлена методика одновременного наблюдения доменной структуры и регистрации процесса переключения поляризации сегнетоэлектрического кристалла ТГС при повышенных ускоряющих напряжениях, в [152] предложена математическая модель, позволяющая на качественном уровне описать наблюдаемые явления.

Основной особенностью режима токов электронно-стимулированной поляризации является использование тока переключения поляризации, индуцируемого электронным зондом, в качестве видеосигнала, формирующего контраст исследуемой доменной структуры. Данный режим, как уже упоминалось, относится к активным методикам зондирования, при использовании которых электронный зонд не только регистрирует потенциальный рельеф, но и создает

причины наблюдаемого контраста. Приоритетным в данном аспекте является задача теоретического описания механизмов формирования регистрируемого видеосигнала. Режим токов электронно-стимулированной поляризации наилучшим образом реализуется в монокристаллах ТГС [134], достаточно «податливых» по отношению к внешним воздействиям электронного луча.

Методика инжекционного режима базируется на следующих положениях [137]. Рассмотрим процесс инжекции электронного пучка в плоский диэлектрический образец, покрытый металлическими электродами. Образец облучается неподвижным расфокусированным электронным зондом. Схема распределения зарядов приведена на рис. 4.4.

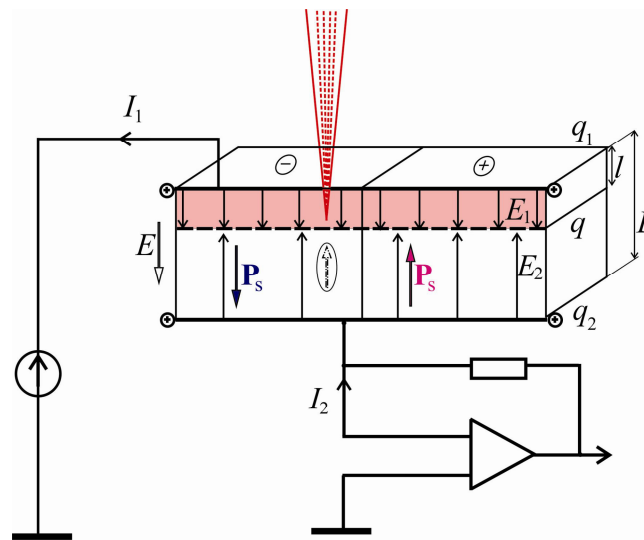


Рис. 4.4. Схема переключения поляризации в кристалле сегнетоэлектрика под действием инжектированных зарядов (q – накапливаемый заряд в облученном слое; q_1, q_2 – наведенные в электродах заряды; I_1, I_2 – токи во внешних цепях; E_1, E_2 – поля в приповерхностном слое и основном объеме образца; \mathbf{P}_s – вектор спонтанной поляризации; L – толщина кристалла; l – толщина слоя инжекции).

В подповерхностный слой проникает ток инжекции I_i , равный току зонда I_p , за вычетом вторичноэмиссионного I_{se} и поглощенного в верхнем электроде I_a токов:

$$I_i = I_p - I_{se} - I_a. \quad (4.8)$$

Поскольку вторичноэмиссионный ток вычитается из тока зонда и не принимает участия в дальнейшем распределении в образце, в рассмотрение можно ввести эффективный ток зонда, попадающий в образец:

$$I_{eff} = I_p - I_{se}. \quad (4.9)$$

Часть этого тока $I_l = I_{l_1} - I_{l_2}$ через сопротивления утечки верхней и нижней частей образца уходит на электроды, оставшаяся часть будет накапливаться в инжекционном слое за счет тока накопления I_s :

$$I_s = \frac{dq}{dt} = I_i - I_l. \quad (4.10)$$

Применение высоких ускоряющих напряжений (>10 кВ) и инжекция электронного пучка под поверхность сегнетоэлектрического кристалла вызывают накопление заряда в облученном слое образца. Глубина слоя инжекции, как было показано в первой главе, может быть оценена численно с помощью прямого моделирования транспорта электронов в облученной мишени методом Монте-Карло. При этом глубина проникновения электронного пучка l в образец не зависит от размера пятна на поверхности кристалла. Для выполнения моделирования требуется задать диаметр зонда, энергию старта электронов E_0 , определяемую значениями ускоряющих напряжений U , и элементный состав исследуемого объекта. Накопление зарядов на верхнем q_1 и нижнем q_2 электродах вызывает появление между слоем и электродами электрических полей E_1 и E_2 . Используя условие короткого замыкания, можно записать:

$$E_1 l = E_2 (L - l). \quad (4.11)$$

В случае, если размер области облучения превышает значение толщины образца, для оценки полей можно воспользоваться выражением для поля заряженной плоскости. Поля в облученной E_1 и необлученной E_2 слоях кристалла будут создаваться как инжектированным в глубь кристалла зарядом q , так и наведенными на верхнем q_1 и нижнем q_2 электродах зарядами (рис. 4.5).

Тогда поля в соответствующих слоях кристалла могут быть выражены в виде:

$$E_1 = \frac{1}{2\epsilon\epsilon_0} (\sigma_1 - \sigma_2 + \sigma), \quad (4.12)$$

$$E_2 = \frac{1}{2\epsilon\epsilon_0} (-\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma), \quad (4.13)$$

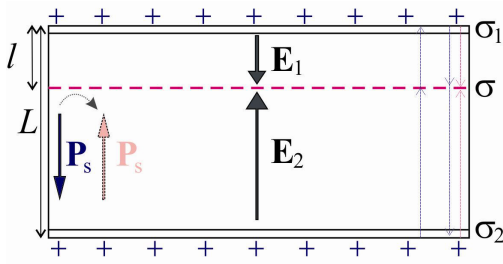


Рис. 4.5. Схема распределения зарядов и полей в образце (σ – поверхностная плотность инжектированных зарядов; σ_1, σ_2 – поверхностная плотность индуцируемых зарядов на верхнем и нижнем электродах; E_1, E_2 – поля в облученной и необлученной частях кристалла).

где E_1 – модуль напряженности поля облученного слоя, В/м; E_2 – модуль напряженности поля в необлученной части, В/м; ε – диэлектрическая проницаемость образца, 1; ε_0 – электрическая постоянная, Кл/(В·м); $\sigma, \sigma_1, \sigma_2$ – значения поверхностной плотности зарядов, Кл/м².

Преобразуя (4.12) и (4.13), с учетом требования выполнения закона сохранения заряда $\sigma = \sigma_1 + \sigma_2$ и выражения (4.11), получим:

$$E_1 = \frac{\sigma}{\varepsilon\varepsilon_0} \frac{L-l}{L}, \quad (4.14)$$

$$E_2 = \frac{\sigma}{\varepsilon\varepsilon_0} \frac{l}{L}, \quad (4.15)$$

где l – глубина проникновения заряда, м; L – толщина кристалла, м.

Аккумулированные в инжекционном слое заряды способны инициировать процесс переключения поляризации необлученной части образца. Поскольку объем необлученной части много больше объема облученного слоя, заметный вклад в поляризационный ток будет давать только переполяризация необлученной части кристалла. Поле E_2 способно вызвать переключение поляризации образца основного объема. Начало импульса тока переключения поляризации соответствует моменту, когда поле E_2 достигает значения коэрцитивного. Поле E_2 способно инициировать переключение поляризации доменов, ориентированных «хвост-к-лучу», и, напротив, стабилизировать доменную структуру с ориентацией вектора \mathbf{P}_s «голова-к-лучу» (как показано на рис. 4.5). В экспериментальной методике [134] поляризационный ток регистрировался усилителем, подключенным либо к верхнему, либо к нижнему электроду. Низкое входное сопротивление создавало режим короткого замыкания на землю любого электрода. При переключении поляризации образца во внешних цепях верхнего и нижнего электродов регистрируются одинаковые токи переключе-

ния поляризации основного объема образца (с точностью до знака и константы, равной эффективному току зонда).

Таким образом, требуется ввести в рассмотрение математическую модель, отвечающую основным законам и механизмам процесса переключения сегнетоэлектриков в инжекционном режиме и позволяющую воспроизводить и исследовать закономерности формирования импульсов тока переключения поляризации.

4.3. Фрактальная модель индуцированного электронным зондом процесса переключения сегнетоэлектриков

Выражение для тока переключения (4.1), рассмотренное ранее, определяется долей переключаемого объема и в моделях различных размерностей преобразуется к одной из следующих форм:

$$I(t) = \frac{2P_S}{L} \cdot \frac{dV}{dt} = \frac{2P_S}{L} \cdot d \cdot \frac{dS}{dt} = \frac{2P_S}{L} \cdot S \cdot \frac{dx}{dt}, \quad (4.16)$$

где dx/dt – скорость движения стенки, м/с; L – толщина кристалла, м; d – линейный размер грани кристалла, м; V – объем кристалла, м³.

Для описания скорости движения доменной стенки воспользуемся выражением зависимости скорости движения границы v от поля E , которая рассматривается рядом авторов и находит подтверждение экспериментальными результатами [20]:

$$v = v_\infty \exp\left(-\frac{\delta}{E}\right), \quad (4.17)$$

где v_∞ – максимальная скорость движения стенки при $E \rightarrow \infty$, м/с; δ – поле активации, В/м.

Поскольку в режиме инжекции электронного зонда процесс переключения осуществляется под действием поля необлученной части кристалла, имеет смысл рассматривать в (4.17) выражение для поля E_2 . Будем считать, что на расстоянии l накапливается заряд с поверхностной плотностью σ' , а процесс переключения реализуется за счет движения вниз заряженной стенки, определяемой координатой $x(t)$, с поверхностной плотностью σ'' (как показано на рис. 4.6).

После определения полей, согласно (4.14) и (4.15), наведенные на электродах заряды со значениями поверхностной плотности σ_1 и σ_2 далее не рассматриваются (их влияние уже учтено при расчете результирующего поля). Моделирование будем проводить по отношению к кристаллам с 180° доменными границами.

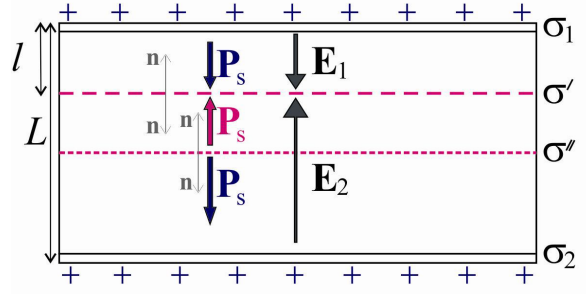


Рис. 4.6. Схема инициализации значений поверхностной плотности зарядов.

Поле E_2 в этом случае можно задать комбинацией соответствующих компонент:

$$E_2 = E' + E'' = \frac{\sigma' l}{\epsilon \epsilon_0 L} + \frac{\sigma'' x(t)}{\epsilon \epsilon_0 L}. \quad (4.18)$$

Учитывая выражение для расчета компонент значений поверхностной плотности связанных зарядов $\hat{\sigma} = P_n$, где P_n – проекция \mathbf{P}_S на внешнюю нормаль \mathbf{n} (рис. 4.6), выражение (4.18) преобразуем к виду:

$$E_2 = \frac{[jt - 2P_S]l}{\epsilon \epsilon_0 L} + \frac{2P_S x(t)}{\epsilon \epsilon_0 L}. \quad (4.19)$$

В терминах рассматриваемой модели выражение (4.17), описывающее скорость движения доменной стенки, преобразуется к следующему виду:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp\left[-\frac{\delta \epsilon \epsilon_0 L}{l(jt - 2P_S) + 2P_S x(t)}\right], \quad l \leq x \leq L, \quad (4.20)$$

где $\tau_1 = \frac{L}{v_\infty}$ – характерное время пробега толщины кристалла доменной стенкой со скоростью v_∞ .

Таким образом, движение доменной границы в поле E_2 будет описываться дифференциальным уравнением (4.20). Для выделения единственного решения требуется инициализация начального условия: примем $x(t_0) = l$. Математическая модель описывает систему с обратной связью: движение границы с меняющейся координатой $x(t)$ вызывает изменение поля E_2 , которое, в свою очередь, вновь влияет на величину $x(t)$. Следует также заметить, что для уравнения

(4.20) общего вида $\frac{dx}{dt} = f(t, x)$ при $x \geq l$, $t > 0$ функции $f(t, x)$, $\frac{df(t, x)}{dx}$ всегда

будут непрерывными. Согласно теореме существования и единственности, решение начальной задачи для (4.20) будет существовать в некоторой ограниченной области и будет единственным.

Модель (4.20), описывающую динамику доменной границы, преобразуем к эквивалентному виду, выделив характерные параметры, имеющие размерность времени: $\tau_2 = \frac{\delta \epsilon \epsilon_0 L}{jl}$ – характерный параметр – «время» накопления заряда, создающего поле $E_2 = \delta$ при данной плотности тока j ; $\tau_3 = \frac{2P_S}{j}$ – характерный параметр – «время», в течение которого ток с плотностью j инициирует появление зарядов с поверхностной плотностью $\sigma = 2P_S$. Тогда сформулированная задача преобразуется к виду:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp \left[- \frac{\tau_2}{t - \tau_3 + \tau_3 \frac{x(t)}{l}} \right], \quad l \leq x \leq L, \quad x(t_0) = l. \quad (4.21)$$

Как один из наиболее распространенных механизмов осуществления доменного роста, как правило, рассматривают боковое прорастание зародышей в

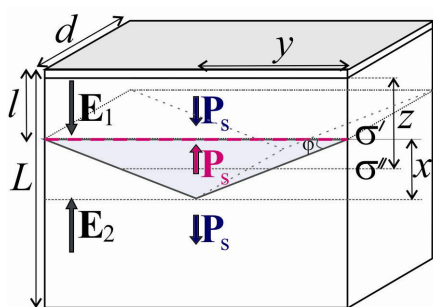


Рис. 4.7. Геометрическая схема 3D-модели процесса переключения поляризации ($z = x/2 + l$ – позиция середины высоты клина).

области противоположной полярности. Однако результаты экспериментальных исследований процесса переключения поляризации в режиме токов электронно-стимулированной поляризации на примере кристалла ТГС позволяют наблюдать «эрозию» доменов [137], в целом это свидетельствует, что доменный рост осуществляется сквозным прорастанием доменов. В нашей модели введем в рассмотрение механизм клинообразного роста доменов (рис. 4.7).

Расширение области переключения осуществляется путем роста клиньев с фиксированной шириной основания $2u$ и меняющимся углом наклона доменной границы ϕ . При расчете полей будем счи-

тать, что поляризационный заряд сосредоточен на уровне середины клина и задается координатой $z(t)$. Процесс переключения поляризации заканчивается при переходе серединой клина $z(t)$ границы L . Введение этого механизма обуславливает спадание сигнала при завершении процесса переключения поляризации. Геометрическая схема роста показана на рис. 4.8.

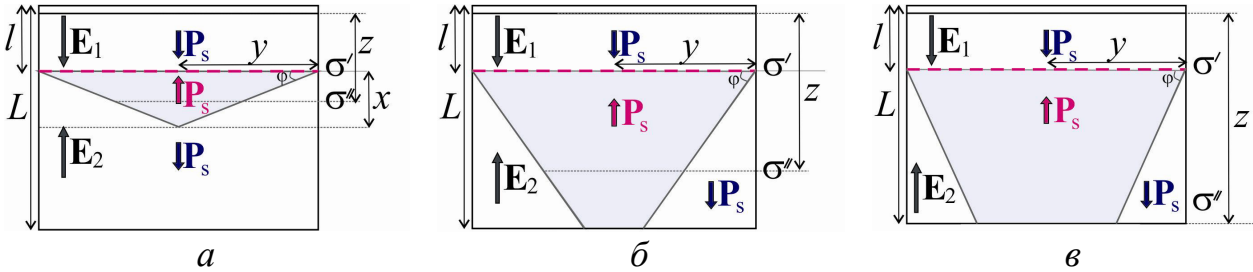


Рис. 4.8. Схема прорастания доменов клинообразной формы.

Для определения тока переключения поляризации воспользуемся вторым выражением в цепочке равенств (4.16):

$$I(t) = \frac{2P_s \cdot d}{L} \cdot \frac{dS}{dt} = \frac{2P_s \cdot d}{L} \cdot \frac{dS}{dx} \cdot \frac{dx}{dt}, \quad (4.22)$$

для которого: $S = y \cdot x$ при $0 \leq x \leq L-l$ и $S = y \cdot \left(2L - \frac{L^2}{x}\right)$ при

$L-l \leq x \leq 2(L-l)$. В общем случае характер завершения поляризации и, как следствие, механизм, обеспечивающий спадание тока до нулевого уровня, зависят от способа движения доменной границы. При боковом движении границ ток спадает при слиянии доменных стенок. При прорастании клинообразных доменов особенностью является существование остаточных клиньев – частей неполяризованного объема. Для обеспечения спадания поляризационного тока к нулевому уровню при прорастании домена введем механизм переключения поляризации остаточных клиньев, тогда при $L-l \leq x \leq 2(L-l)$ площадь области переключения определится как:

$$S = y \cdot \left(2L - \frac{L^2}{x}\right) + \frac{y \cdot i \cdot L^2}{N \cdot x},$$

где $y \cdot \frac{i \cdot L}{N \cdot x}$ – линейный размер основания области непереключенного объема;

N – число дискретных интервалов, на которые разбивается основание, $i = \overline{0, N}$.

Далее уравнение для движения доменной границы (в позиции середины клина):

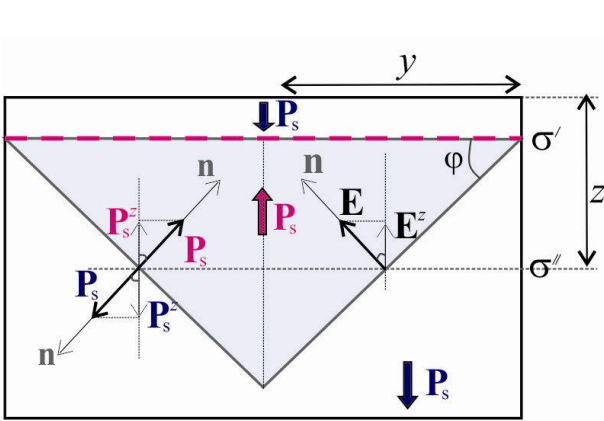


Рис. 4.9. К расчету поля переключения при клинообразном росте доменов.

$$\frac{dz}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp \left[-\frac{\tau_2}{t - \tau_3 + \tau_3 \frac{z(t)}{l}} \right], \quad (4.23)$$

$$l \leq z \leq L, z(t_0) = l.$$

Примем во внимание, что искривление доменной границы, обусловленное клинообразным ее движением в процессе переключения, должно быть учтено в выражении (4.18) для E'' и σ'' (рис. 4.9):

$$E'' = \frac{\sigma'' x(t)}{\epsilon \epsilon_0 L} \cos \varphi, \quad \sigma'' = 2P_s \cos \varphi. \quad (4.24)$$

После ряда преобразований, с учетом (4.24), а также того, что $\frac{dz}{dt} = \frac{1}{2} \frac{dx}{dt}$ (и введением нормирующей поправки в выражение для тока переключения), получим, что модель представляется в виде задачи Коши для обыкновенного дифференциального уравнения:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp \left[-\frac{\tau_2}{t - \tau_3 + \frac{\tau_3}{l} \left(\frac{x}{2} + l \right) \cos^2 \varphi} \right], \quad x(t_0) = 0, \quad \cos^2 \varphi = \frac{y^2}{x^2 + y^2}, \quad (4.25)$$

а также кусочно-заданной функции, определяющей поляризационный ток:

$$I(t) = \begin{cases} \frac{2P_s \cdot d}{L} \cdot 2y \cdot \frac{dx}{dt}, & 0 \leq x \leq L - l, \\ \frac{2P_s \cdot d}{L} \cdot 2y \cdot \frac{L^2}{x^2} \cdot \left[1 - \frac{i}{N} \right] \cdot \frac{dx}{dt}, & L - l \leq x \leq 2(L - l). \end{cases} \quad (4.26)$$

Детерминированная модель в постановке (4.25) – (4.26) останется справедливой, если процесс переключения будет осуществляться путем прорастания n клиньев с одинаковой скоростью и шириной основания $2y/n$. Ток переключения также определится (4.26), только в этом случае он будет представ-

лять собой суперпозицию вкладов, которые дают отдельные области переключения.

Однако модель, описываемая соотношением (4.25), характеризуется существенным недостатком: расчет полей зеркально отраженных зарядов E_1 и E_2 проведен в предположении влияния искривления стенки (обусловленного клинообразным характером ее движения). Представим авторскую модификацию данной модели, которая основана на учете влияния искривления профиля границы только для поля, формируемого в области $z-l$ (в области движущегося клина). Выражение (4.11) трансформируется к виду:

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2\varepsilon\varepsilon_0} [(\sigma_1 - \sigma_2 + \sigma')l + \sigma''l + \sigma'' \cos^2 \varphi(z-l)] = \\ & = \frac{1}{2\varepsilon\varepsilon_0} [(\sigma_2 - \sigma_1 + \sigma')(L-l) + \sigma''(L-z)], \end{aligned} \quad (4.27)$$

где $\sigma' = jt - 2P_S$, $\sigma'' = 2P_S$, $E_2 = \frac{1}{2\varepsilon\varepsilon_0} [\sigma_2 - \sigma_1 + \sigma' + \sigma'']$.

Из (4.27) можно выразить:

$$(\sigma_1 - \sigma_2)(l + L - l) = \sigma'(-l + L - l) + \sigma''(-l - (z-l)\cos^2 \varphi + L - z).$$

Тогда после ряда преобразований и с учетом $z = \frac{x}{2} + l$ получим:

$$\begin{aligned} E_2 &= \frac{1}{2\varepsilon\varepsilon_0 L} \left[\sigma' \cdot 2l + \sigma'' \left(2l + \frac{x}{2} (1 + \cos^2 \varphi) \right) \right] = \\ &= \frac{(jt - 2P_S)l}{\varepsilon\varepsilon_0 L} + \frac{2P_S l}{\varepsilon\varepsilon_0 L} + \frac{2P_S}{2\varepsilon\varepsilon_0 L} \cdot \frac{x}{2} (1 + \cos^2 \varphi). \end{aligned}$$

Или окончательно:

$$E_2 = \frac{jtl}{\varepsilon\varepsilon_0 L} + \frac{P_S}{\varepsilon\varepsilon_0 L} \cdot \frac{x}{2} (1 + \cos^2 \varphi). \quad (4.28)$$

С учетом последнего, выражение (4.25) можно записать в форме:

$$\frac{dx}{dt} = \frac{L}{\tau_1} \exp \left[- \frac{\tau_2}{t + \frac{\tau_3}{2l} \cdot \frac{x}{2} (1 + \cos^2 \varphi)} \right], \quad x(t_0) = 0, \quad \cos^2 \varphi = \frac{y^2}{x^2 + y^2}. \quad (4.29)$$

Таким образом, базовая детерминированная математическая модель будет сформулирована в виде задачи Коши для обыкновенного дифференциального уравнения (4.29), формулой для расчета поля в необлученной части кристалла (4.28) и выражением для аппроксимации тока переключения поляризации (4.26).

Проведенный в главах 2 и 3 фрактальный анализ токов переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов подтверждает, что рассматриваемый процесс демонстрирует сложный скейлинг, а также характеризуется так называемым эффектом долговременной памяти и носит неслучайный характер, в процессе формирования последующих состояний системы учитываются предыдущие состояния. Согласие с экспериментом при использовании модернизированных моделей Колмогорова – Авраами достигается в случае дробных значений размерности кинетического процесса. Воспользуемся математическим аппаратом дробно-дифференциального исчисления [181] для описания динамики доменной границы при переключении поляризации сегнетоэлектриков, как фрактального процесса со степенной памятью. Фрактальный характер движения доменной границы, как было показано в главе 1 и в §3.1, можно ввести в рассмотрение, используя производную дробного порядка по времени. Такой подход был использован также авторами работы [106]. С этой целью представим уравнение, определяющее процесс переключения поляризации (4.29), в безразмерном виде с использованием оператора дробного дифференцирования:

$$\frac{d^\alpha s}{dw^\alpha} = \exp\left(-\frac{\tau_2}{\tau_1 w + \frac{\tau_3}{2l}(1 + \cos^2 \varphi) \frac{Ls}{2}}\right), s(w_0) = 0, \quad (4.30)$$

$$0 \leq s(w) \leq 2\left(1 - \frac{l}{L}\right).$$

где $s = \frac{x}{L}$ – безразмерное расстояние; $w = \frac{t}{\tau_1}$ – безразмерное время; α – динамическая фрактальная размерность.

Для вычисления тока переключения поляризации (в размерном виде) преобразуем (4.26) к виду:

$$I(w) = \begin{cases} \frac{4 \cdot P_S \cdot d \cdot y}{\tau_1} \cdot \frac{d^\alpha s}{dw^\alpha}, & \text{при } 0 \leq s \leq 1 - \frac{l}{L}, \\ \frac{4 \cdot P_S \cdot d \cdot y}{s^2 \cdot \tau_1} \cdot L^2 \cdot \left[1 - \frac{i}{N}\right] \cdot \frac{d^\alpha s}{dw^\alpha}, & \text{при } 1 - \frac{l}{L} < s \leq 2 \left(1 - \frac{l}{L}\right). \end{cases} \quad (4.31)$$

Соответственно выражение для поля в необлученной части кристалла E_2 определится следующим образом:

$$E_2(w) = \frac{j l \tau_1 w}{\varepsilon \varepsilon_0 L} + \frac{P_S}{\varepsilon \varepsilon_0 L} \cdot \frac{L s}{2} (1 + \cos^2 \varphi). \quad (4.32)$$

Для получения зависимостей $I(t)$ и $E_2(t)$ требуется выполнить обратную замену переменной $t = w \cdot \tau_1$.

Таким образом, модифицированная физико-математическая модель формирования тока переключения поляризации в режиме инжекции электронного пучка включает начальную задачу для дробно-дифференциального уравнения (4.30), выражение для вычисления поля (4.32) и выражение для тока переключения (4.31).

Предложенная модель в постановке (4.30) не разрешается аналитическими методами и требует привлечения численных процедур. Построим схему численного решения дифференциального уравнения. Для аппроксимации производной дробного порядка используем формулу Грюнвальда – Летникова [178] (4.6). Формула (4.6) лежит в основе большинства современных вычислительных алгоритмов решения уравнений с дробными производными. Дробная производная является нелокальным оператором свертки. Значение дробной производной по времени от функции в текущий момент зависит от значений функции во все предыдущие моменты. Таким образом, в каждый момент времени функция учитывает все свои предыдущие состояния.

Для уравнения (4.30) введем в рассмотрение функцию $f(w, s)$, задающую правую часть дифференциального уравнения, и будем строить численную схему решения для уравнения вида:

$$\frac{d^\alpha s(t)}{dw^\alpha} = f(w, s), \quad (4.33)$$

с начальным условием $s(w_0) = s_0$.

Тогда последовательная аппроксимация производной для i -го узла $s(w_i) \approx s_i$ на сетке $\Omega = \{w_i = w_0 + ih, i = \overline{0, N}\}$ может быть последовательно записана в следующей форме:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \frac{1}{h^\alpha} \left(\frac{\Gamma(-\alpha)}{\Gamma(1)} s_1 + \frac{\Gamma(1-\alpha)}{\Gamma(2)} s_0 \right) &= f(s_0, w_0), \quad i = 1; \\ \frac{1}{\Gamma(-\alpha)} \frac{1}{h^\alpha} \left(\frac{\Gamma(-\alpha)}{\Gamma(1)} s_2 + \frac{\Gamma(1-\alpha)}{\Gamma(2)} s_1 + \frac{\Gamma(2-\alpha)}{\Gamma(3)} s_0 \right) &= f(s_1, w_1), \quad i = 2; \\ \dots & \end{aligned}$$

Таким образом, построим явную конечно-разностную схему решения задачи вида (4.33):

$$s_{i+1} = \frac{h^\alpha f(s_i, w_i) - \sum_{j=1}^{i+1} \Lambda_j^\alpha s_{i-j+1}}{\hat{\Lambda}_0}, \quad i = \overline{0, N},$$

где $\Lambda_j^\alpha = \frac{\Gamma(j-\alpha)}{\Gamma(-\alpha) \cdot \Gamma(j+1)}$, $\hat{\Lambda}_0 = \frac{\Gamma(-\alpha)}{\Gamma(-\alpha) \cdot \Gamma(1)}$.

Тогда

$$s_{i+1} = \Gamma(1) \left[h^\alpha f(s_i, w_i) - \sum_{j=1}^{i+1} \Lambda_j^\alpha s_{i-j+1} \right], \quad i = \overline{0, N}. \quad (4.34)$$

Общая схема (4.34) отражает идейный смысл использования дробной производной для моделирования физических систем с памятью: для моделирования динамики доменной границы, определяемой ее положением с течением времени, используются значения предшествующих положений.

4.4. Прогнозирование динамики изменения полярного состояния сегнетоэлектриков в режиме инжекции электронного пучка на основе интерпретации результатов вычислительных экспериментов

Моделирование проводилось в размерных величинах, соответствующих данным физического эксперимента. Были заданы геометрические размеры, физические параметры кристалла, а также характерные времена τ_1, τ_2, τ_3 , определяющие процесс переключения. Характеристики зонда (ток инжекции, ускоряющие напряжения) выбирались также соответствующими параметрам экспериментального наблюдения процесса переключения в режиме токов электрон-

но-стимулированной поляризации [134]. Толщина слоя инжекции l определялась с помощью моделирования транспорта электронов в облученной мишени методом Монте-Карло с использованием программного приложения, предложенного в [152].

Пример результата компьютерного моделирования электронных траекторий для кристалла триглицинсульфата при стартовой энергии пучка электронов $E_0=15$ кэВ показан на рис. 4.10. Прослеживалось $N=10000$ историй электронов. Следует отметить, что реализация Монте-Карло симуляции транспорта электронов (при одном и том же значении энергии ускоряющих напряжений) для кристалла с нанесенными на грань серебряными, алюминиевыми или золотыми электродами приводит к аналогичной геометрии зоны взаимодействия пучка с материалом при толщине электрода, меньшей чем 1 мкм. Траектории, визуализируемые темным цветом, соответствуют прошедшим электронам, а визуализируемые светлым – эмитированным из образца.

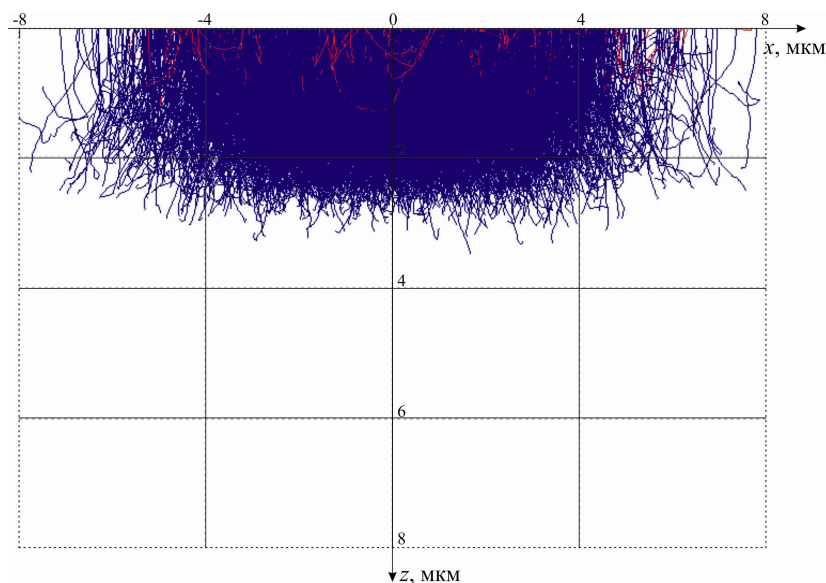


Рис. 4.10. Результаты моделирования транспорта электронов в кристалле ТГС при стартовой энергии пучка $E_0=15$ кэВ (диаметр зонда $d_0=14$ мкм, число электронов – $N=10000$).

Таким образом, устанавливались следующие параметры моделирования. Для проведения вычислительного эксперимента выбран кристалл ТГС. Геометрические параметры кристалла:

толщина кристалла (L) – 10^{-3} м;

облучаемая площадь пятна на верхней грани кристалла (S) – $0.25 \cdot 10^{-6}$ м²,

линейные размеры облучаемой области кристалла ($d, 2y$) – $0.5 \cdot 10^{-3}$ м (число областей, на которые разделено основание области переключения $n=20$).

Глубина слоя инжекции зарядов (l) – $3 \cdot 10^{-6}$ м.

Физические параметры кристалла:

значение спонтанной поляризации (P_S) – $2 \cdot 10^{-2}$ Кл/м²,

диэлектрическая проницаемость образца (ϵ) – 50.

Электрическая постоянная (ϵ_0) – $8.85 \cdot 10^{-12}$ Ф/м.

Характерные параметры времени: $\tau_1 = 13.5$ с, $\tau_2 = 37$ с, $\tau_3 = 16.5$ с, которые соответствуют значению поля активации $\delta = 6 \cdot 10^5$ В/м (что по порядку величины согласуется с данными работы [159]) и плотности тока инжекции $j = 2.4 \cdot 10^{-3}$ А/м² (при токе зонда $I = 6 \cdot 10^{-10}$ А).

Значение фрактальной размерности процесса варьировалось в пределах $\alpha = 0.5 - 0.99$.

Реализация модели (4.30) – (4.32) проводилась численным методом с использованием построенной вычислительной схемы (4.34). Верификация результатов модельного расчета разбивалась на два этапа. Во-первых, проводилось сопоставление данных численного решения дробно-дифференциального уравнения вида (4.33) с аналитическими решениями для тестовых задач. Во-вторых, устанавливалась численная сходимость результатов расчета по схеме (4.34) при фрактальном параметре $\alpha = 0.99$ с результатами реализации детерминированной модели в постановке (4.26), (4.28), (4.29) с помощью предикт-корректорной схемы метода Адамса III порядка точности.

На рис. 4.11 представлен результат моделирования импульса тока переключения в сравнении с экспериментальной кривой (расчет проведен при указанных выше параметрах моделирования и значении $\alpha = 0.7$). Импульс тока переключения поляризации кристалла ТГС имеет следующие особенности. Кривая тока переключения имеет «остроконечный» максимум, характерный для импульсной методики, и повторяет особенности экспериментальных данных (при регистрации сигнала с нижнего электрода).

От момента включения зонда до начала переключения поляризации проходит некоторое время, необходимое для накопления в слое инжекции стартового заряда, создающего в необлученной части кристалла поле, равное коэрцитивному. После некоторой задержки, требуемой для накопления стартового заряда, ток характеризуется резким возрастанием, после чего следует фаза спада тока. Завершение процесса переключения соответствует спаданию тока переключения до нулевого уровня (рис. 4.11). Длительность импульса тока поляризации составляла десятки секунд, а полный заряд переполаризации соответствует величине $2P_S \cdot S$. Обработка данных, представленных на рис. 4.11, дает оценку среднеквадратического отклонения модельной от экспериментальной кривой $5 \cdot 10^{-11}$.

На рис. 4.12 представлена динамика изменения положения границы с течением времени.

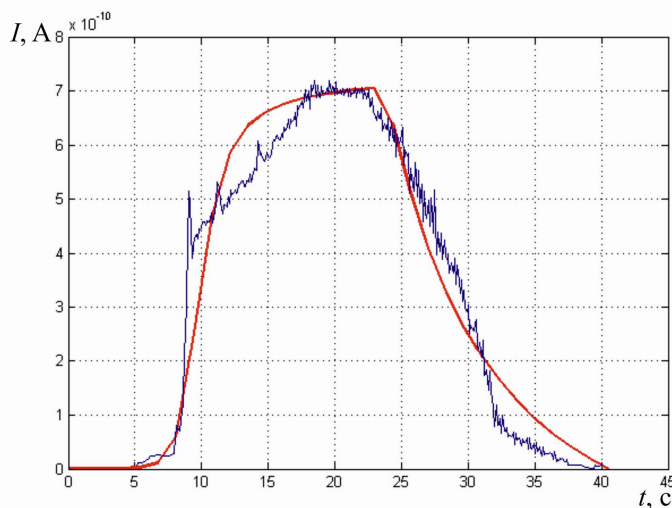


Рис. 4.11. Модельное представление тока переключения поляризации кристалла ТГС в режиме инжекции электронного пучка (гладкая кривая) в сравнении с данными эксперимента [137]

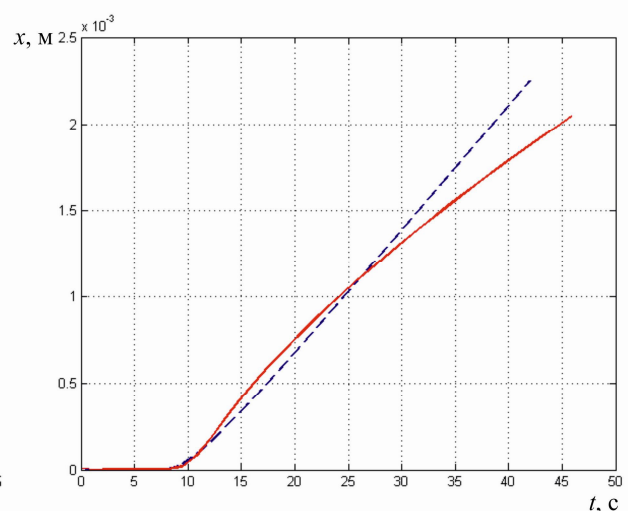


Рис. 4.12. Изменение координаты при движении доменной границы (непрерывная кривая соответствует реализации фрактальной модели, пунктирная – детерминированной).

Время старта, требуемое для накопления заряда и начала процесса переключения, составляет $t_{st}=8$ с; за время наблюдения процесса (42-45 с) доменная граница достигает нижней грани кристалла, процесс переключения заканчивается, и основной объем кристалла будет характеризоваться инверсным значением вектора \mathbf{P}_S .

Сравнительный анализ кривых, полученных с помощью реализации базовой модели (4.26), (4.28), (4.29) и ее фрактальной модификации (4.30)-(4.32), показывает, что фрактальная динамика имеет более сложный характер и отличается от практически линейного роста $x(t)$ детерминированной модели нелинейным поведением, обусловленным присутствием эффекта памяти физической системы.

Одновременно проводился расчет поля в необлученной части образца. На рис 4.13 представлен результат компьютерного моделирования изменения поля E_2 для фрактальной двумерной модели с проращиванием доменов призматической формы. Следует заметить, что процесс переключения поляризации

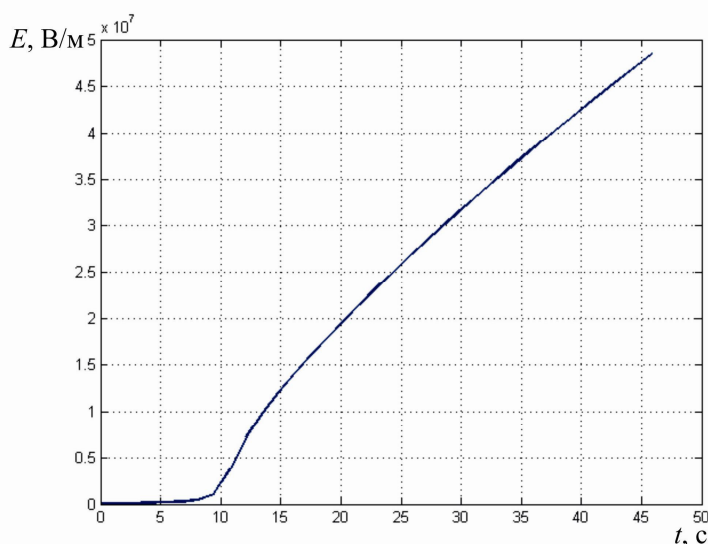


Рис. 4.13. Изменение поля E_2 в необлученной части кристалла ТГС.

кристалла ТГС при облучении электронным лучом протекает в режиме не постоянного поля, а постоянного тока инжекции. В рассматриваемом диапазоне параметров модели значение поверхностной плотности инжектированных зарядов $\sigma = jt$ сравнимо со значением спонтанной поляризации $2P_s$, при этом поля в зоне инжекции достигают значений деполяризующего поля в монодоменных кристаллах ($\sim 10^8$ В/м при $\epsilon=50$), а поле в необлученной части кристалла превышает значение коэрцитивного поля ($E_c \sim 4 \cdot 10^4$ В/м – по данным эксперимента, $E_c \sim 10^5$ В/м – теоретическое значение для ТГС, полученное с помощью термодинамических соотношений для идеального кристалла [1]).

Резкое увеличение поляризационного тока, наблюдаемого на рис. 4.11, вызвано дрейфом доменной границы и соответствующим усилением поля, показанного на рис. 4.13. Поле, формируемое в необлученной части кристалла, нарастает нелинейно и соответствует величинам порядка 10^7 В/м.

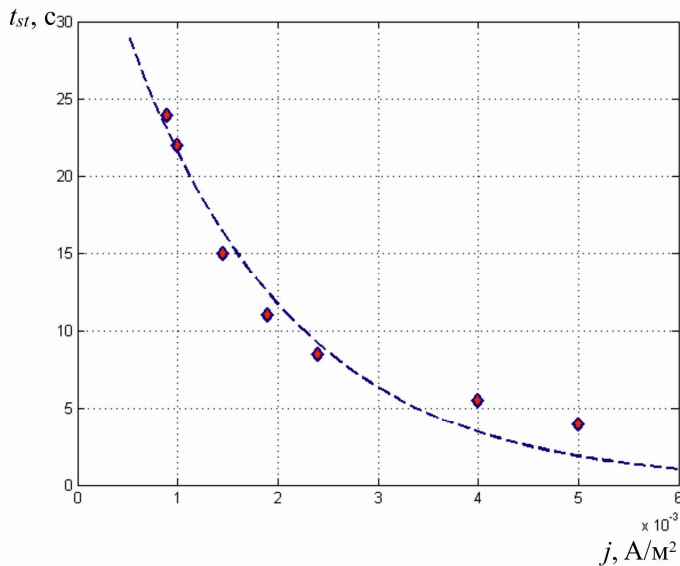


Рис. 4.14. Зависимость времени старта переключения поляризации кристалла ТГС от плотности тока инжекции (аппроксимация экспоненциальной зависимостью).

ных реализаций.

Характер поведения модели отвечает экспериментально наблюдаемым закономерностям процесса:

время старта процесса переключения поляризации t_{st} уменьшается экспоненциально от 24 с до 4 с при увеличении параметра j от $0.9 \cdot 10^{-3} \text{ A/m}^2$ до $5 \cdot 10^{-3} \text{ A/m}^2$. Максимальная по модулю ошибка аппроксимации составляет

$$\max_i |\delta(t_{sti})| \approx 2.12.$$

На рис. 4.15 показана нормированная на величину тока зонда I_{pr} зависимость

Рассмотрим поведение основных характеристик при варьировании определяющих параметров модели, соответствующих условиям экспериментального наблюдения процесса переключения. На рис. 4.14 показана зависимость времени старта t_{st} процесса переключения поляризации кристалла ТГС от значения плотности инжекционного тока j (изменению подлежат параметры τ_3 и τ_2 , зависящие от j) для семи модель-

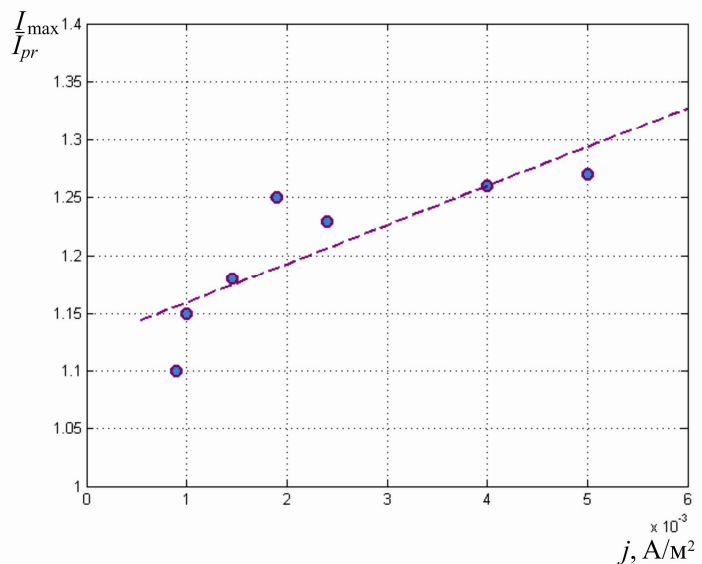


Рис. 4.15. Зависимость относительного тока импульса переключения поляризации кристалла ТГС от плотности тока инжекции.

уровня максимального значения поляризационного тока I_{max} от плотности тока инжекции j (значение параметра j варьировалось в тех же пределах, что и в предыдущем случае).

Следует заметить, что при увеличении плотности инжекционного тока ($j > 0.8 \cdot 10^{-3}$ А/м²) поляризационный отклик кристалла превышает значение эффективного тока инжекции. В каждой реализации модели для начала процесса переключения поляризации требуется накопление стартового заряда

$$\sigma_{st} = j_{st} \cdot t_{st}, \text{ по порядку величины равного } \frac{2P_S}{4} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ Кл/м}^2.$$

Для исследования кинетики накопления инжектированных зарядов рассмотрим зависимость времени старта процесса переключения поляризации от толщины слоя инжекции. Глубина залегания инжектированных зарядов l определяется величиной стартовой энергии электронного пучка (и, соответственно, значением энергии ускоряющих напряжений электронов). Для установления численных значений l при различных значениях ускоряющих напряжений U проведем моделирование геометрии области взаимодействия пучка с облученной мишенью методом Монте-Карло. Результаты представлены в табл. 1.

Как видно из табл. 1, различные значения ускоряющих напряжений U будут соответствовать различным значениям глубины залегания инжектированного заряда l . Поле в необлученной части образца будет достигать значения стартового согласно соотношению (4.15) при условии:

$$q_{st} l = \text{const}. \quad (4.35)$$

Таким образом, для различных значений ускоряющих напряжений U будут определены значения q_{st} , обеспечивающие выполнение (4.35). Принимая во внимание степенную связь между глубиной инжекции l и ускоряющим напряжением U , получим:

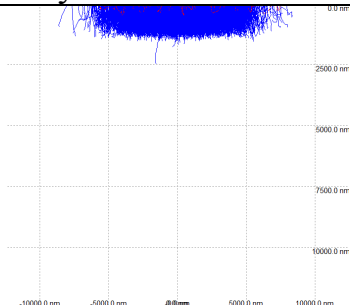
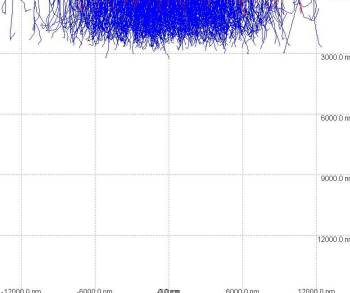
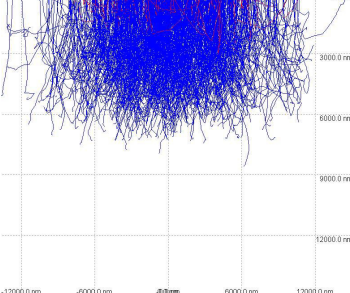
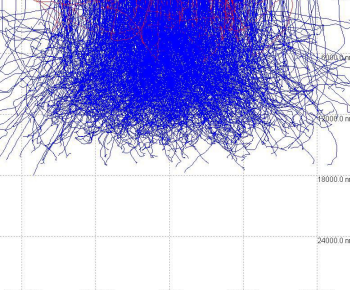
$$q_{st} U^n = \text{const}. \quad (4.36)$$

По данным реализации модели можно оценить время накопления стартового заряда и вычислить степень n , переходя к зависимости:

$$t_{st} U^n = \text{const} \text{ или } \lg(t_{st}) = -n \lg(U) + \text{const}. \quad (4.37)$$

Таблица 1

Характеристики модельного представления области взаимодействия пучка с облученной мишенью, полученного с помощью метода Монте-Карло

Значение ускоряющих напряжений U , кВ	Геометрическое представление взаимодействия электронного пучка с мишенью	Параметры аппроксимации
10		$y = 10 \cdot 10^{-6}$ м, $l = 1.4 \cdot 10^{-6}$ м
15		$y = 10 \cdot 10^{-6}$ м, $l = 3 \cdot 10^{-6}$ м
25		$y = 10 \cdot 10^{-6}$ м, $l = 7 \cdot 10^{-6}$ м
40		$y = 12 \cdot 10^{-6}$ м, $l = 16 \cdot 10^{-6}$ м

На рис. 4.16 представлена зависимость времени накопления стартового заряда от значений ускоряющего напряжения в двойном логарифмическом масштабе.

Обработка данных, показанных на рис. 4.16, позволяет оценить $n=1.7$, что согласуется с оценками, приведенными в [137, 182].

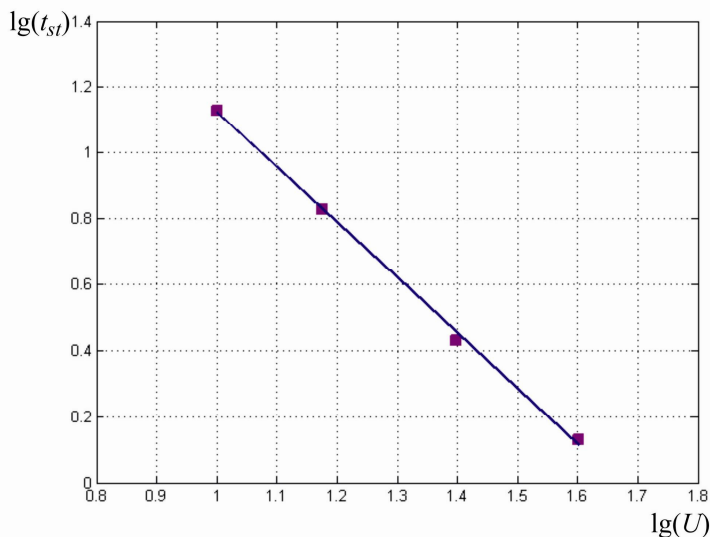


Рис. 4.16. Зависимость времени накопления стартового заряда t_{st} от значений ускоряющих напряжений U при постоянном токе зонда (в двойном логарифмическом масштабе).

а также рассчитать основную динамическую характеристику процесса переключения – ток переключения.

4.5. Основные результаты и выводы

Таким образом, четвертая глава «Развитие теоретических подходов к описанию процесса переключения поляризации сегнетоэлектриков в неравновесных условиях электронного облучения» обобщает результаты построения и реализации математических моделей формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов с учетом фрактальных особенностей динамики доменов. Основные результаты, полученные в данной главе, можно сформулировать в виде следующих выводов.

1. Предложена модификация базовой модели Колмогорова-Аврами с использованием фрактального подхода и численной аппроксимации дробной производной по времени. Такой подход позволяет моделировать процесс переключения с учетом нецелого значения показателя степени доменного роста. Показано согласование численного представления тока переключения с аналитической аппроксимацией, полученной с помощью гипергеометрической функции Куммера. Общая схема отражает идейный смысл использования дробной

Таким образом, предложенная модель позволяет адекватно описать процесс переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов в режиме токов электронно-стимулированной поляризации. В основу модели положены фундаментальные соотношения, позволяющие теоретически описать механизм перестройки доменной структуры в режиме инжекции электронного пучка,

производной для моделирования физических систем с памятью: расчет тока в каждый последующий момент времени учитывает все предыдущие состояния. В качестве недостатка численной схемы можно отметить ресурсоемкость выполняемых вычислительных процессов. Проведено сопоставление результатов моделирования с экспериментальными данными тока переключения поляризации кристалла нитрита натрия. Постановка и реализация компьютерного эксперимента позволяют установить значения параметров, определяющих законы фрактальной динамики доменной структуры.

2. Сформулирован следующий вывод: введенный в рассмотрение подход имеет ряд недостатков применительно к решению задачи моделирования токов переключения поляризации, индуцированных электронным облучением. Во-первых, он не приводит к удовлетворительному согласованию с формой регистрируемых токовых кривых. Во-вторых, в силу введения эмпирических зависимостей вида (4.5) относится к группе методов, аппроксимирующих токовые кривые, и не будет учитывать специфику динамики доменной структуры, индуцированной электронным зондом. В-третьих, модель не учитывает параметры экспериментальных режимов исследования сегнетоэлектриков в РЭМ.

3. Представлены результаты математического моделирования формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов, индуцированного электронным облучением. На основе анализа механизмов формирования контраста в инжекционном режиме представлена модельная схема перестройки 180° доменной структуры в процессе переключения. Предложен имитационный вариант реализации модели применительно к исследованию электронно-стимулированных процессов переключения поляризации в кристаллах ТГС. Модель основана на клинообразном характере роста доменов и учитывает специфику формирования полей в необлученной части кристалла, индуцирующих переключение ориентированных против поля доменов.

Предложена авторская модификация модели формирования тока переключения поляризации в режиме инжекции электронного пучка, учитывающая фрактальный характер динамики доменных границ в процессе переключения поляризации. В аналитическом виде модель выражается дробно-дифференци-

альным уравнением, описывающим движение доменной границы, с начальными условиями и выражением для вычисления тока переключения. Предложен численный алгоритм реализации данной модели на основе построения явной конечно-разностной схемы решения дифференциального уравнения. Предложенная физико-математическая модель динамики переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов в режиме инжекции электронного пучка составляет теоретическое обоснование экспериментальной методики формирования изображения доменных структур сегнетоэлектриков – режима токов электронно-стимулированной поляризации.

4. Моделирование поляризационных процессов проведено с учетом выбора параметров, отвечающих условиям экспериментального наблюдения. Предложенная модель позволяет рассчитывать ток переключения и изменение поля в необлученной части кристалла. Основные закономерности поведения модели соответствуют экспериментально наблюдаемым. Установлено, что разработанная модель дает результаты, имеющие удовлетворительное согласование с данными эксперимента при значении фрактального динамического параметра, согласующегося с величиной параметра Херста для той же кривой. Показаны условия, при которых возможно превышение поляризационного тока по сравнению с инжекционным. Установлен характер зависимости изменения времени накопления стартового заряда при изменении плотности инжекционного тока. С использованием результатов прямого моделирования транспорта электронов методом Монте-Карло проведена оценка глубины инжекции в кристаллах ТГС в зависимости от стартовой энергии пучка. На основе данных моделирования уточнен характер зависимости глубины инжекции от значений ускоряющих напряжений.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Монография обобщает результаты исследования фрактальных закономерностей РЭМ-изображений доменных структур и динамических характеристик индуцированного электронным зондом переключения поляризации сегнетоэлектриков. Также в работе представлено развитие теоретических подходов к описанию процесса формирования тока переключения поляризации в сегнетоэлектриках при электронном облучении.

Основная концепция монографии была ориентирована на разработку многоаспектного подхода к исследованию фрактальной динамики сегнетоэлектрических доменных структур при пользовании методами РЭМ, предполагающего реализацию взаимосвязанных этапов:

оценка скейлинговых характеристик геометрии статических и динамических доменных конфигураций;

диагностика фрактальных размерностей временных зависимостей токов переключения поляризации;

моделирование на основе проведенного анализа процесса формирования отклика сегнетоэлектриков на воздействие электронного зонда.

Результаты исследований можно сформулировать в виде следующих выводов по работе в целом.

1. Модель формирования контраста доменов и доменных границ в том или ином режиме РЭМ, информация о конфигурации доменной структуры и численная спецификация геометрических особенностей доменных конфигураций, проведенная на основе методов фрактального и мультифрактального анализа, в совокупности позволяют описать потенциальный контраст сегнетоэлектрика, визуализируемого с помощью методов РЭМ.

Неоднородная геометрия доменных конфигураций типичных сегнетоэлектриков может быть специфицирована численно на основе концепций фрактального формализма: 1) с помощью методов расчета фрактальной размерности двумерных растровых изображений – для количественной характеристики степени заполнения плоскости; 2) на основе мультифрактального анализа (методы

покрытий и вейвлет-анализа) – для расчета распределения размерностей в сложных многокластерных доменных структурах; 3) с использованием методов расчета размерностей фрактальных границ – для оценки степени изрезанности и неоднородности доменной границы.

С учетом сложности и неоднородности строения анализируемых доменных структур, предложен авторский «перколяционно-фрактальный» алгоритм расчета размерности растровых изображений границ кластерных объектов. Разработанная модификация основана на использовании классического соотношения «площадь – периметр» для фрактальных границ, процессе маркировки кластеров с помощью перколяционного алгоритма Хошена – Копельмана и включает рекурсивную процедуру, исключающую некорректную маркировку кластеров при повторном просмотре.

Алгоритмы фрактального и мультифрактального анализа реализованы в виде приложения, объединяющего в один комплекс набор программных модулей, предназначенных для фрактального анализа изображений, заданных в растровом формате.

Установлено, что анализ геометрических свойств изображений доменных структур сегнетоэлектриков, визуализируемых с помощью методик РЭМ, обладает рядом специфических особенностей в силу того, что картина потенциального контраста в РЭМ есть результат взаимодействия пучка электронов с исследуемым образцом. На основе систематизации данных по методическим основам экспериментального зондирования сегнетоэлектриков в РЭМ представлены модели механизмов формирования контраста доменов и доменных границ. Показано, что одним из приоритетных в проведении фрактального анализа будет вопрос правильной интерпретации растрового изображения анализируемых элементов доменной структуры и корректного представления входных данных.

2. Проведены исследования скейлинговых характеристик временных зависимостей импульсов токов переключения поляризации в сегнетоэлектрических кристаллах ТГС, наблюдаемых в режиме электронно-стимулированной

поляризации в РЭМ, с использованием метода нормированного размаха (R/S -анализ) и метода Фурье. Импульсы тока переключения поляризации, отражающие процессы перестройки доменной структуры под действием электронного облучения, характеризуются персистентным поведением: в процессе формирования последующих состояний системы учитываются предыдущие состояния. Данный факт можно связать с присутствием эффектов долговременной памяти в сегнетоэлектрических материалах.

Проведенный фрактальный анализ разбитой на участки временной зависимости тока переключения показал, что фрактальная размерность на отдельных участках оказывается различной. Такой результат обусловлен смешанной природой тока переключения, которая количественно может быть охарактеризована с помощью мультифрактального анализа.

Применение мультифрактального анализа позволило более детально исследовать фрактальные свойства токов переключения. Картина вейвлет-коэффициентов наглядно показывает иерархическую структуру флуктуаций сигнала; такая особенность обусловлена тем, что исследуемый сигнал обладает свойствами самоподобия. Рассчитанный спектр фрактальных размерностей дает вариацию значений фрактальной размерности в диапазоне от 0.9 до 1.9, что подтверждает предположение о мультифрактальной природе процесса переключения поляризации в инжекционном режиме. Абсцисса максимума спектральной кривой соответствует параметру Херста фрактального процесса.

Для поддержки проводимых исследований разработан программный комплекс, который объединяет отдельные модули, реализующие методы фрактального (метод R/S -анализа и метод Фурье) и мультифрактального анализа (метод мультифрактального флуктуационного анализа и метод максимумов модулей коэффициентов вейвлет-преобразования).

Установленные фрактальные закономерности могут быть учтены при построении математических моделей токов переключения поляризации в режиме инжекции пучка электронов на этапе учета характерной величины размерности кинетического процесса.

3. Предложена модификация базовой модели Колмогорова – Аврамы с использованием фрактального подхода и численной аппроксимации дробной производной по времени. Такой подход позволяет моделировать процесс переключения с учетом нецелого значения показателя степени доменного роста.

Установлено, что введенный в рассмотрение подход характеризуется рядом недостатков применительно к решению задачи моделирования токов переключения поляризации, индуцированных электронным облучением. Во-первых, он не приводит к удовлетворительному согласованию с формой регистрируемых токовых кривых. Во-вторых, данный метод не будет учитывать специфику динамики доменной структуры, индуцированной электронным зондом. В-третьих, модель не рассматривает параметры экспериментальных режимов исследования сегнетоэлектриков в РЭМ.

Предложена авторская модификация модели формирования тока переключения поляризации в режиме инжекции электронного пучка, учитывающая фрактальный характер динамики доменных границ в процессе переключения поляризации. На основе анализа механизмов формирования контраста в инжекционном режиме представлена модельная схема перестройки 180° доменной структуры в процессе переключения. Предложен имитационный вариант реализации модели применительно к исследованию электронно-стимулированных процессов переключения поляризации в кристаллах ТГС. Модель основана на клинообразном характере роста доменов и учитывает особенности формирования полей в необлученной части кристалла, индуцирующих переключение ориентированных против поля доменов.

В аналитическом виде модель представляется дифференциальным уравнением дробного порядка, описывающим движение доменной границы с начальными условиями и выражением для вычисления тока переключения. Предложена математическая схема реализации данной модели на основе построения явного конечно-разностного алгоритма решения дробно-дифференциального уравнения.

Проведено моделирование тока переключения поляризации в инжекционном режиме с учетом выбора параметров, отвечающих условиям экспери-

ментального наблюдения. Предложенная модель позволяет рассчитывать ток переключения и изменение поля в необлученной части кристалла. Основные закономерности поведения модели соответствуют экспериментально наблюдаемым. Установлен характер зависимости изменения времени накопления стартового заряда при изменении плотности инжекционного тока. С использованием результатов прямого моделирования транспорта электронов методом Монте-Карло проведена оценка глубины инжекции в кристаллах ТГС в зависимости от стартовой энергии пучка. На основе данных моделирования токовых кривых уточнен характер зависимости глубины инжекции от значений ускоряющих напряжений.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Барфут, Дж. Полярные диэлектрики и их применения / Дж. Барфут, Дж. Тейлор. – М.: Мир, 1981. – 526 с.
2. Кенциг, В. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики / В. Кенциг. – М.: Изд-во иностранной литературы, 1960. – 234 с.
3. Смоленский, Г.А. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики / Г.А. Смоленский, В.А. Боков, В.А. Исупов, Н.Н. Крайник, Р.Е. Пасынков, М.С. Шур. – М.: Наука, 1971. – 465 с.
4. Лайнс, М. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы / М. Лайнс, А. Гласс. – М.: Мир, 1981. – 736 с.
5. Струков, Б.А. Физические основы сегнетоэлектрических явлений в кристаллах / Б.А. Струков, А.П. Леванюк. – М.: Наука, 1995. – 304 с.
6. Рудяк, В.М. Процессы переключения в нелинейных кристаллах. – М.: Наука, 1986. – 248 с.
7. Сидоркин, А.С. Доменная структура и сегнетоэлектриках и родственных материалах. – М.: Физматлит, 2000. – 240 с.
8. Желудев, И.С. Основы сегнетоэлектричества. – М.: Атомиздат, 1973. – 463 с.
9. Белугина, Н.В. Доменная структура, неоднородность поляризации и некоторые физические свойства кристаллов ТГС с различной степенью дефектности: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – М., 1997. – 24 с.
10. Дрождин, С.Н. Релаксация доменной структуры кристаллов ТГС и ДТГС в процессе статической реполяризации / С.Н. Дрождин, О.М. Голицина, А.И. Никишина, Ф.А. Тума, Д.П. Тарасов // Физика твердого тела. – 2006. – Т. 48, № 3. – С. 497-500.
11. Жирнов, В.А. К теории доменных стенок в сегнетоэлектриках // Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 1958. – Т. 35, вып. 5 (1). – С. 1175–1180.
12. Гоулдстейн, Дж. Практическая растровая электронная микроскопия / Дж. Гоулдстейн, Х. Яковиц; пер. с англ. – М.: Мир, 1978. – 656 с.
13. Гоулдстейн, Дж. Растровая электронная микроскопия и рентгеновский микроанализ / Дж. Гоулдстейн, Д. Ньюбери, П. Эчлин. – М.: Мир, 1984. – 348 с.
14. Kim, Y. Non-Kolmogorov-Avrami-Ishibashi switching dynamics in nanoscale ferroelectric capacitors / Y. Kim, H. Han, W. Lee, S. Baik, D. Hesse, M. Alexe // Nano Lett. – 2010 – V. 10. – P. 1266-1270.

15. Донцова, Л.И. Закономерности динамики доменов в процессе переполяризации кристаллов ТГС / Л.И. Донцова, Л.Г. Булатова, Э.С. Попов, А.В. Шильников, А.А. Чеботарев, Н.А. Тихомирова, А.И. Баранов, Л.А. Шувалов // Кристаллография. – 1982. – Т. 27, вып. 2. – С. 305-312.
16. Sekhar, K.C. Polarization switching in ferroelectric sodium nitrite thick film / K.C. Sekhar, A. Nautiyal, R. Nath // Appl. Phys. Express. – 2008. – V. 1. – P. 091601-091604.
17. Фридкин, В.М. Сегнетоэлектрики – полупроводники. – М.: Наука, 1976. – 408 с.
18. Мелешина, В.А. Применение метода заряженных порошков для изучения доменной структуры и морфологических особенностей роста кристаллов триглицинсульфата / В.А. Мелешина, И.С. Желудев, И.С. Рез // Кристаллография. – 1960. – Т.5. – С. 322-323.
19. Мелешина, В.А. Движение доменных стенок и зарождение доменов в кристалле триглицинсульфата // Кристаллография, 1971. – Т. 16, № 3. – С. 557-562.
20. Донцова, Л.И. Доменная структура и процессы 180° переполяризации модельных сегнетоэлектриков: Автореф. дис. ...д-ра физ.-мат. наук. – Воронеж, 1991. – 20 с.
21. Залесский, В.Г. Токи локальной переполяризации и инжекции носителей заряда при сканировании поверхности LiNbO_3 подвижным иглообразным электродом / В.Г. Залесский, А.Б. Шерман, С.О. Фрегатов // Физика твердого тела. – 2001. – Т. 43, вып. 9. – С. 1669-1674.
22. Nakatani, N. Observation of ferroelectric domain structure in TGS // Ferroelectrics. – 2011. – V. 413. – P. 238–265.
23. Белугина, Н.В. Исследование микрорельефа поверхности кристаллов сегнетоэлектриков ТГС и Rb_2ZnCl_4 методом атомно-силовой микроскопии / Н.В. Белугина, А.Л. Толстихина // Кристаллография. – 1996. – Т. 41. – № 6. – С. 1072-1076.
24. Гайнутдинов, Р.В. Атомно-силовая микроскопия сегнетоэлектрических кристаллов ТГС: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – М., 2005. – 24 с.
25. Lee, J.K. Direct observation of asymmetric domain wall motion in a ferroelectric capacitor / J.K. Lee et al. // Acta Materialia. – 2013. – V. 61. – P. 6765-6777.
26. Thomas, Ch. 200 femtometer sensitivity for near-field analysis of surface acoustic waves in a scanning electron/scanning probe microscope hybrid system / Ch. Thomas, R. Heiderhoff, L.J. Balk // Appl. Phys. Lett.. – 2007. – V. 90. – P. 144106-3.

27. Eng, L.M. Ferroelectric domains and domain boundaries observed by scanning force microscopy / L.M. Eng, J. Fousek, P. Gunter // *Ferroelectrics*. – 1997 – V. 191. – P. 211-218.
28. Merz, W.J. Domain formation and domain wall motion in ferroelectric BaTiO₃ single crystals / W.J. Merz // *Phys. Rev.* – 1954. – V. 95. – P. 690-698.
29. Miller, R.C. Motion of 180° domain walls in metal electroded barium titanate crystals as a function of electron field and sample thickness / R.C. Miller, A. Savage // *J. Appl. Phys.* – 1960. – V. 31. – P. 662-669.
30. Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд / под ред. К.М. Рабе, Ч.Г. Анна, Ж.-М. Трискона; пер. с англ. – М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2011. – 440 с.
31. Chandra, P. A Landau primer for ferroelectrics / P. Chandra, P.B. Littlewood // In: *Physics of Ferroelectrics: a Modern Perspective*, Top. Appl. Phys., Topics in Applied Physics, 105, eds. Rabe K., Ahn CH., Triscone J. – Springer-Verlag Berlin, 2007. – P. 69-115.
32. Liu, J.-M. A Monte-Carlo simulation on domain pattern and ferroelectric behaviors of relaxor ferroelectrics / J.-M. Liu, S.T. Lau, H.L.W. Chan, C.L. Choy // *Journal of Material Science*. – 2006. – V. 41. – P. 163-175.
33. Шильников, А.В. Некоторые диэлектрические свойства полидоменных монокристаллов сегнетовой соли, триглицинсульфата и дигидрофосфата калия: Дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Воронеж, 1972. – 224 с.
34. Рудяк, В.М. Вязкостные явления в сегнетоэлектриках и сегнетоэластиках // *Изв. АН СССР. Сер. физич.* – 1985. – Т. 47, № 4. – С. 798-808.
35. Попов, Э.С. Поверхностное натяжение 180°-градусных доменных стенок и некоторые явления в кристаллах триглицинсульфата и С-доменного титаната бария / Э.С. Попов, Л.А. Шувалов // *Кристаллография*. – 1973. – Т. 18, вып. 3. – С. 642-644.
36. Нестеров, В.Н. Динамика доменных и межфазных границ в сегнетоэлектрических твердых растворах на основе цирконата-титана свинца: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Волгоград, 1997. – 20 с.
37. Ломаев, Г.В. Моделирование движения доменной границы в конденсированных средах / Г.В. Ломаев, А.В. Ходырев // *Процессы переключения в сегнетоэлектриках и сегнетоэластиках: Тез. докл. семинара, посвященного памяти В. М. Рудяка.* – Тверь, 2002. – С. 15.
38. Алешин, В.И. Моделирование переполяризации кристалла и керамики типа BaTiO₃ / В.И. Алешин, А.Г. Лучанинов // *Изв. РАН. Сер. физич.* – 2001. – Т. 65, № 8. – С. 1114.

39. Масловская, А.Г. Упорядоченное движение доменных границ сегнетоэлектрических кристаллов в неоднородном тепловом поле / А.Г. Масловская, Е.А. Ванина // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Серия «Физико-математические науки». – 2010. – № 2 (98). – С. 7-11.
40. Масловская, А.Г. Применение вариационных принципов для компьютерного моделирования динамики доменной границы сегнетоэлектрика в поле градиента температуры // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Серия «Информатика. Телекоммуникации. Управление». – 2013. – №1 (164). – С.68-75.
41. Kittel, C. Ferromagnetic domain theory / C. Kittel, J. Galt // Solid State Physics. – N.Y. Acad. Press Inc. 1956. – V. 3. – P. 337-564.
42. Shilnikov, A.V. Simulation motion of domain and interphase boundaries and their contribution to the dielectric properties of ferroelectrics / A.V. Shilnikov, V.N. Nesterov, A.I. Burkhanov // Ferroelectrics. – 1996. – V. 175. – P. 145-151.
43. Parlunski, K. Domain pattern formation near phase transition – challenge for computer simulations / K. Parlunski // Ferroelectrics. – 1997. – V.191. – P. 245-253.
44. Hatch, D.M. Determination of domain and domain wall formation at ferroic transitions / D.M. Hatch, W. Cao // Ferroelectrics. – 1999. – V. 222. – P. 1-10.
45. Menzel, A. Two models to simulate rate-dependent domain switching effects – application to ferroelectric polycrystalline ceramics / A. Menzel, A. Arockiarajan, S.M. Sivakumar // Smart Matter Struct. – 2008. – V. 17. – P. 015026-015039.
46. Кукушкин, С.А. Кинетика переключения в сегнетоэлектриках / С.А. Кукушкин, А.В. Осипов // Физика твердого тела. – 2001. – Т. 43. – С. 88-98.
47. Захаров, М.А. Теория переключения многоосных сегнетоэлектриков (основные стадии) / М.А. Захаров, С.А. Кукушкин, А.В. Осипов // Физика твердого тела. – 2005. – Т. 47, вып. 4. – С. 673-678.
48. Ouyang, K-Q. Simulation on the Hysteresis of ferroelectric thin films / K-Q. Ouyang, T-L. Ren, L-T. Liu, D. Wei // Integrated Ferroelectrics. – 2004. – V. 64. – P. 69-75.
49. Zhong, S. Dielectric permittivity and pyroelectric response of compositionally graded ferroelectrics / S. Zhong, S.P. Alpay, Z.-G. Ban, J.V. Mantese // Integrated Ferroelectrics. – 2005. – V. 71. – P. 1-9.
50. Chen, X. Micromechanics simulation of ferroelectric polarization switching / X. Chen, D.N. Fang, K.C. Hwang // Acta mater. – 1997. – V. 45, № 8. – P. 3181-3189.
51. Grekov, A.A. Coupling and percolation in irregular structures of polycrystalline ferroelectrics / A.A. Grekov, S.O. Kramorov, Yu. V. Dashko, A.V. Zhdanov // Ferroelectrics. – 1997. – V. 199. – P. 235-243.

52. Колмогоров, А.Н. К статистической теории кристаллизации металлов // Изв. АН СССР. Сер. матем. – 1937. – Т. 1, вып. 3. – С. 355-359.
53. Avrami, M. Kinetics of phase change. I: general theory // J. Chem. Phys. – 1939. – V. 7. – P. 1103-1112.
54. Avrami, M. Kinetics of phase change. II: transformation-time relations for random distribution of nuclei // J. Chem. Phys. – 1940. – V. 8. – P. 212-224.
55. Avrami, M. Kinetics of phase change. III: granulation, phase change and microstructures // J. Chem. Phys. – 1941. – V. 9. – P. 177-184.
56. Fatuzzo, E. Theoretical considerations on the switching transient in ferroelectrics // Physical Review. – 1962. – V. 127. – P. 1999-2005.
57. Ishibashi, Y. Note on ferroelectric domain switching / Y. Ishibashi, Y. Takagi // J. Phys. Soc. Jpn. – 1971. – V. 31, № 2. – P. 506-510.
58. Ishibashi, Y. A model of polarization reversal in ferroelectrics // J. Phys. Soc. Jpn. – 1990. – V. 59, № 1. – P. 4158-4154.
59. Ishibashi, Y. A Theory of polarization reversals in finite systems // Integrated Ferroelectrics. – 1993. – V. 3. – P. 351-354.
60. Omura, M. Simulations of polarization reversals by a two-dimensional lattice model / M. Omura, Y. Ishibashi // Japanese Journal of Applied Physics. – 1992. – V. 31. – P. 3238-3240.
61. Orihara, H. A Statistical theory of nucleation and growth in finite systems / H. Orihara, Y. Ishibashi // J. Phys. Soc. Jpn. – 1992. – V. 61. – P. 1919-1925.
62. Scott, J.F. Switching kinetics of lead zirconate titanate submicron thin-film memories / J.F. Scott, L. Kammerdiner, M. Parris, S. Traynor, V. Ottenbacher, A. Sha-Wabkeh, W.F. Oliver // J. Appl. Phys. – 1998. – V. 64, № 2. – P. 787-792.
63. Scott, J.F. Fractal dimensions in switching kinetics of ferroelectrics. – Cambridge: University of Cambridge Press, 1998. – 9 p.
64. Шур, В.Я. Кинетика переключения поляризации в сегнетоэлектриках конечных размеров / В.Я. Шур, Е.Л. Румянцев, С.Д. Макаров // ФТТ. – 1995. – Т. 37, № 6. – С. 1687-1692.
65. Шур, В.Я. Математическое моделирование кинетики фазовых превращений: методическое пособие. – Екатеринбург: УГУ, 2005. – 12 с.
66. Shur, V.Ya. Kinetics of polarization reversal in normal and relaxor ferroelectrics: relaxation effects // Phase Transitions. – 1998. – V. 65. – P. 49-72.
67. Шур, В.Я. Кинетика доменной структуры и токи переключения в монокристаллах конгруэнтного и стехиометрического танталата лития / В.Я. Шур, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин, В.Л.Кожевников, А.П. Черных // Физика твердого тела. – 2002. – Т. 44, вып. 11. – С. 2055-2060.

68. Kumar, N. Ferroelectric polarization switching in KNO_3 : PVDF films / N. Kumar, R. Nath // *Journal of Phys. D: Appl. Phys.*. – 2003. – V. 36. – P. 1308-1313.
69. Zhang, Y. Multiple-Kolmogorov-Avrami-Ishibashi polarization switching kinetics model for $\text{Bi}_{3.15}\text{Nd}_{0.85}\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ thin films / Y. Zhang, X.L. Zhong, Z.H. Zhang, J.B. Wang, Y.C. Zhou // In: *Proc. of SPIE*. – 2012. – V. 8409. – P. 84091Q1-84091Q10.
70. Мандельброт, Б. Фрактальная геометрия природы. – М.: Институт компьютерных исследований, 2002. – 656 с.
71. Божокин, С.В. Фракталы и мультифракталы / С.В. Божокин, Д.А. Паршин. – Ижевск: НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», 2001. – 128 с.
72. Морозов, А.Д. Введение в теорию фракталов. – М.; Ижевск: Институт компьютерных исследований, 2002. – 160 с.
73. Федер, Е. Фракталы. – М.: Мир, 1991. – 254 с.
74. Шредер, М. Фракталы, хаос, степенные законы. – Ижевск: РХД, 2001. – 528 с.
75. Иванова, В.С. Синергетика и фракталы в материаловедении / В.С. Иванова, А.С. Баланкин, И.Ж. Бунин, А.А. Оксогоев – М.: Наука, 1994. – 383 с.
76. Ozaki, T. Fractal Aspects of the Ferroelectric Domain Structures in KH_2PO_4 crystals / T. Ozaki, K. Fujii, J. Ohgami // *Journal of the physical Society of Japan*. – 1993. – V. 62, № 9. – P. 3027-3030.
77. Ozaki, T. Ferroelectric domain structure characterized by prefractals of the pentad cantor sets in KH_2PO_4 // *Ferroelectrics*. – 1995. – V. 172. – P. 65-77.
78. Ozaki, T. Fractal Aspects of Lamellar Ferroelectric Domain Structures Formed under the Influence of Depolarization Fields in CsH_2PO_4 and $(\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH})_3\text{H}_2\text{SO}_4$ / T. Ozaki, K. Fujii, J. Ohgami // *Journal of the physical Society of Japan*. – 1995. – V. 64, № 7. – P. 2282-2285.
79. Камзина Л.С. Влияние электрического поля на перколяционный фазовый переход в монокристаллах скандотанталата свинца / Л.С. Камзина, Н.Н. Крайник // *Физика твердого тела*. – 2000. – Т. 42, вып. 1. – С. 136.
80. Исупов, В.А. Природа фрактальных образований на поверхности сегнетоэлектрических кристаллов с размытым фазовым переходом // *Физика твердого тела*. – 1998. – Т. 40, № 7. – С. 1305-1306.
81. Пелегов, Д.В. Использование фрактального формализма для описания кинетики фазовых превращений в конечных системах: Дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Екатеринбург, 2000. – 133 с.

82. Shur, V.Ya. Formation of self-similar surface nano-domain structures in lithium niobate under highly nonequilibrium conditions / V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, A.I. Lobov, E.V. Nikolaeva, M.A. Dolbilov, A.N. Orlov, V.V. Osipov // *Ferroelectrics*. – 2006. – V. 341. – P. 85-93.
83. Галиярова, Н.М. Диэлектрическая спектроскопия сегнетоэлектриков, фрактальность и механизмы движения доменных и межфазных границ: Дис. ...д-ра физ.-мат. наук. – Воронеж, 2006. – 399 с.
84. Galiyarova, N.M. Fractal dimensionalities and microstructural parameters of piezoceramics PZTNB-1 / N.M. Galiyarova, A.B. Bey, E.A. Kuznetsov, Y.I. Korchmariyuk // *Ferroelectrics*. – 2004. – V. 307. – P. 205-211.
85. Галиярова, Н.М. Микроструктура пьезокерамики на основе титаната-цирконата свинца / Н.М. Галиярова, А.Б. Стреляева // *Прикаспийский журнал: управление и высокие технологии*. – 2012. – № 2 (18). – С. 114-119.
86. Galiyarova, N. Fractal features of domain boundaries / N. Galiyarova, L. Donysova // *Ferroelectrics*. – 1999. – V. 222. – P. 269-274.
87. Jeng, Y-R. Nanomeasurement and fractal analysis of PZT ferroelectric thin films by atomic force microscopy / Y-R. Jeng, P-C. Tsai, T-H Fang // *Microelectronic Engineering*. – 2003. – V. 65. – P. 406-415.
88. Солодуха, А.М. Перенос и релаксация заряда в неоднородных сегнетоэлектриках и родственных материалах: Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. – Воронеж, 2005. – 341 с.
89. Li, X. Computer simulation of fatigue in ferroelectric thin films by a modified diffusion limited aggregation model with drift / X. Li, J. Liu, D. Lu, J. Zhao, L. Huang, J. Xuan // *Jpn. Appl. Phys.* – 1995. – V. 34. – P. L51-L53.
90. Wu Z. Self-organization nanodomain structure in ferroelectric ultrathin films / Z. Wu, W. Duan, J. Wu, B-L. Gu // *Nanotechnology*. – 2007. – V. 18. – P. 325703-325707.
91. Roy, M.K. Domain dynamics and fractal growth analysis in thin ferroelectric films / M.K. Roy, J. Paul, S. Dattagupta // *IEEE Xplore*. – 2010. – V. 109. – P. 014108-014108-4.
92. Titov, V.V. Evolution of fractal grain structures in $\text{NaNbO}_3\text{-Ca}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ and $\text{NaNbO}_3\text{-Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ systems / V.V. Titov, V.V. Akhnazarova, L.A. Reznitchenko, S.V. Titov, V.D. Komarov // *Ferroelectrics*. – 2004. – V. 298. – P. 335-339.
93. Масловская, А.Г. Расчет скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков методом фрактальной параметризации / А.Г. Масловская, Т.К. Барабаш // *Вестник АмГУ*. – 2011. – Вып. 55. – С. 35-42.

94. Колесник, М.А. Применение перколяционно-фрактальных алгоритмов для анализа растровых изображений доменных структур сегнетоэлектриков / М.А. Колесник, Т.К. Барабаш // Материалы XV регион. научно-практ. конф. «Молодежь XXI века: шаг в будущее». – Благовещенск, 2014. – Т. 5. – С. 51-52.
95. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2014619367. «Программный комплекс для расчета скейлинговых характеристик растровых изображений неоднородных физических структур» // Барабаш Т.К., Колесник М.А., Масловская А.Г.
96. Tadic, B. Switching current noise and relaxation of ferroelectric domains // Eur. Phys. J. B. –2002. – V. 28. – P. 81-89.
97. Барабаш, Т.К. Компьютерное моделирование фрактальных временных рядов / Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская // Вестник АмГУ. – 2010. – Вып. 49. – С. 31-38.
98. Барабаш, Т.К. Мультифрактальный анализ токов переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов / Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская // Материалы IX регион. научной конф. «Физика, фундаментальные и прикладные исследования, образование». – Хабаровск, 2010. – С. 6-8.
99. Масловская, А.Г. Вейвлет-мультифрактальный анализ индуцированного электронным зондом тока реполяризации сегнетоэлектрических кристаллов / А.Г. Масловская, Т.К. Барабаш // Вестник Саратовского гос. техн. ун-та. – 2011. – № 62. – С. 232-238.
100. Масловская, А.Г. Оценка мультифрактальных характеристик процесса реполяризации сегнетоэлектрических кристаллов при электронном облучении / А.Г. Масловская, А.В. Сивунов, Т.К. Барабаш // Материалы XII Международной научной конф. «Физика диэлектриков». – СПб., 2011. – Т. 1. – С. 96-99.
101. Barabash, T.K. Multifractal detrended fluctuation analysis of polarization reversal processes in ferroelectrics / T.K. Barabash, A.G. Maslovskaya // Proc. of International Russian-Chinese symposium «Modern materials and technologies 2011». – Khabarovsk, 2011. – P. 13-18.
102. Барабаш, Т.К. Оценка фрактальных параметров процесса реполяризации сегнетоэлектриков методами Фурье- и вейвлет-преобразований // Материалы Всероссийской конф. студентов, аспирантов и молодых ученых по физике. – Владивосток, 2011. – С. 28-29.
103. Барабаш, Т.К. Исследование спектральных характеристик токов переключения сегнетоэлектриков методом вейвлет анализа / Т.К. Барабаш, А.И. Бурдина, А.Г. Масловская // Вестник АмГУ. – 2012. – Вып. 57. – С. 23-26.

104. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2012660562. «Программа мультифрактального анализа динамических характеристик физических систем» // Барабаш Т.К., Масловская А.Г.
105. Барабаш, Т.К. Система анализа динамических характеристик фрактальных физических систем // Вестник АмГУ. – 2013. – Вып. 61. – С. 29-32.
106. Мейланов, Р.П. Фрактальная модель кинетики переключения поляризации в сегнетоэлектриках / Р.П. Мейланов, С.А. Садыков // Журнал технической физики. – 1999. – Т. 69, № 5. – С. 128-129.
107. Садыков, С.А. Процессы переключения поляризации в сегнетоэлектриках в самосогласованном электрическом поле: Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. – Махачкала, 2001. – 20 с.
108. Масловская, А.Г. Фрактальный подход к исследованию процессов переполаризации сегнетоэлектриков / А.Г. Масловская, Т.К. Барабаш, А.Ю. Гресс // Материалы VIII региональной научной конф. «Физика, фундаментальные и прикладные исследования, образование». – Благовещенск, 2009. – С. 32-36.
109. Барабаш, Т.К. Развитие фрактального подхода в задачах моделирования формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов / Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская // Вестник АмГУ. – 2014. – Вып. 67. – С. 26-31.
110. Robinson, G.Y. Scanning electron microscopy of ferroelectric domains in barium titanate / G.Y. Robinson, R.M. White // Appl. Phys. Lett. – 1967. – V. 10, № 11. – P. 320-323.
111. Спивак, Г.В. О наблюдении диэлектриков в растровом электронном микроскопе / Г.В. Спивак, М.В. Быков, Г.В. Сапарин, Ю.А. Андреев // Радиотехника и электроника. – 1971. – Т. 16, № 8. – С. 1530-1532.
112. Антошин, М.К. Наблюдение в растровом электронном микроскопе влияния температуры на доменную структуру сегнетоэлектриков / М.К. Антошин, Г.В. Спивак // Изв. АН СССР. Сер. физич. – 1972. – Т. 36, № 9. – С. 1901-1905.
113. Nakatani, N. Ferroelectric domain structure of triglycine sulphate observed using a scanning electron microscope // Japan. J. Appl. Phys. – 1973. – V. 12, № 11. – P. 1723-1728.
114. Le Bihan, R. Study of domains of ferroelectric crystals with the scanning electron microscope / R. Le Bihan, C. Sella // J. Phys. Soc. Japan. – 1970. – V. 28, suppl. – P. 377-379.

115. Le Bihan, R. Study of ferroelectric and ferroelastic Domain Structures by Scanning Electron Microscopy // *Ferroelectrics*. – 1989. – V. 97. – P. 19.
116. Le Bihan, R. Study of the charging of TGS crystals during direct observation in a scanning electron microscope / R. Le Bihan, H. Boudjema // *Ferroelectrics*. – 1988. – V. 81. – P. 119-122.
117. Maussion, M. Study of surface and domain structure of pure and doped BaTiO₃ crystals by auger electron spectroscopy and scanning electron microscopy / M. Maussion, R. Le Bihan // *Ferroelectrics*. – 1980. – V. 26. – P. 847-850.
118. Ikeda, S. SEM imaging of ferroelectric domains / S. Ikeda, Y. Uchikawa // *J. Electron Microsc.* – 1980. – V. 29, № 3. – P. 209-217.
119. Uchicawa, Y. Application of scanning electron microscopy (SEM) to analysis of surface domain structure of ferroelectrics / Y. Uchicawa, S. Ikeda // *Scanning electron microscopy*. – 1981. – № 1. – P. 209-220.
120. Schilling, D. Imaging of polarized regions in ferroelectric polymers by scanning electron-microscopy / D. Schilling, K. Dransfeld // *Ferroelectrics*. – 1988. – V. 81. – P. 377-380.
121. Szczesniak, L. Visualization of interaction between ferroelectric domains in GASH crystal by the electron microscope methods // *Ferroelectrics*. – 1988. – V. 81. – P. 139-142.
122. Szczesniak, L. Ferroelectric domain wall studied by scanning electron microscopy and electron microscope decoration technique / L. Szczesniak, B. Hilczer, K.-P. Meyer // *Ferroelectrics*. – 1995. – V. 172, № 1-4. – P. 227-231.
123. Gruner, D. Direct scanning electron microscope imaging of ferroelectric domains after ion milling / D. Gruner, Z. Shen // *Journal of American Ceramic Society*. – 2010. – V. 93. – P. 48-50.
124. Олейник, А.С. Наблюдение доменной структуры сегнетоэлектриков с помощью растрового электронного микроскопа / А.С. Олейник, В.А. Боков // *Физика твердого тела*. – 1975. – Т. 17, № 3. – С. 883-885.
125. Rosenman, G. Observation of ferroelectric domain structures by secondary-electron microscopy in as-grown KTiOPO₄ crystals / G. Rosenman, A. Skliar, I. Lareah // *Phys. Review B*. – 1996. – V. 54, № 9. – P. 6222-6226.
126. Aristov, V.V. Scanning electron microscopy in submicron structure diagnostics / V.V. Aristov, V.V. Kazmiruk, N.G. Ushakov, E.B. Yakimov, S.I. Zaitsev // *Vakuum*. – 1988. – V. 38. – P. 1045-1050.
127. Aristov, V.V. Scanning electron microscopy investigation of lithium niobate properties / V.V. Aristov, L.S. Kokhanchik // *Ferroelectrics*. – 1992. – V. 126. – P. 353-358.

128. Коханчик Л.С. Методические особенности исследования сегнетоэлектрических материалов в РЭМ // Заводская лаборатория. – 1994. – № 7. – С. 21-25.
129. Kokhanchic, L.S., The use of surface charging in the SEM for lithium niobate domain structure investigation // *Micron*. – 2009. – V. 40. –P. 41-45.
130. Согр, А.А. Наблюдение динамики доменной структуры сегнетоэлектриков в растровом электронном микроскопе. / А.А. Согр, В.З. Бородин // *Изв. АН СССР. Сер. физич.* – 1984. – Т. 4, № 6. – С. 1086-1089.
131. Hadni, A. Direct study of nucleation and domain wall motion in ferroelectric triglycine sulphate / A. Hadni, R. Thomas // *Phys. stat. sol. (a)*. – 1975. – V. 31, № 1. – P. 71–81.
132. Latham, R.V. A theoretical interpretation of the pyroelectric response from a scanning micro heat probe // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 1976. – V. 9, № 15. – P. 2295–2304.
133. Maslovskaya, A.G. Simulation of ferroelectric domain structure imaging in pyroelectric mode by scanning electron microscopy // *Ferroelectrics*. – 2010. – V. 398. – P. 55-63.
134. Sogr, A.A. Advanced modes of imaging of ferroelectric domains in the SEM / A.A. Sogr, A.G. Maslovskaya, I.B. Kopylova // *Ferroelectrics*. – 2006. – V. 341. – P. 29-37.
135. Копылова, И.Б. Инжекция электронного зонда растрового электронного микроскопа в монокристаллы триглицинсульфата: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Благовещенск, 1996. – 24 с.
136. Sogr, A.A. Modification of an EBIC mode in the SEM for imaging of ferroelectric domains / A.A. Sogr, I.B. Kopylova, A.G. Maslovskaya // *Proc. SPIE. Fundamental problems of opto-and microelectronics II*. – 2005. – V. 5851. – P. 246-250.
137. Масловская, А.Г. Взаимодействие электронных пучков средних энергий с сегнетоэлектрическими материалами / А.Г. Масловская, И.Б. Копылова – Владивосток: Изд-во «Дальнаука», 2010. – 204 с.
138. Иванцов, В.А. Наблюдение развития доменной структуры монокристаллов NaNO_2 в растровом электронном микроскопе / В.А. Иванцов, В.И. Николаев, И.Н. Попов // *Физика твердого тела*. – 1987. – Т. 29, № 6. – С. 1855-1857.
139. Масловская, А.Г. Имитационное моделирование процесса переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов под действием инжектированных зарядов / А.Г. Масловская, Т.К. Барабаш // *Вестник Московского гос. обл. ун-та. Сер. «Физика – математика»* – 2011. – № 2. – С. 53-60.

140. Maslovskaya, A.G. Multifractal analysis of electron beam induced polarization switching processes in ferroelectrics / A.G. Maslovskaya, T.K. Barabash // Proc. of Asian School-Conference on Physics and Technology of Nanostructured Materials. – Vladivostok, 2011. – P. 163-164.

141. Барабаш, Т.К. Использование концепций дробного дифференциального исчисления для моделирования индуцированного электронным облучением процесса переполяризации сегнетоэлектриков / Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская, И.М. Шпилевская // Материалы Всероссийской молодежной научной конф. «Физика, фундаментальные и прикладные исследования, образование». – Благовещенск, 2012. – С. 30-33.

142. Масловская, А.Г. Исследование фрактальных закономерностей процессов переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов в инжекционном режиме / А.Г. Масловская, Т.К. Барабаш // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. – 2012. – № 1. – С. 1-8.

143. Maslovskaya, A.G. Multifractal analysis of electron beam stimulated process of polarization reversal in ferroelectrics / A.G. Maslovskaya, T.K. Barabash // Physics Procedia. – 2012. – № 23. – P. 81-85.

144. Барабаш, Т.К. Применение дробно-дифференциального исчисления в задачах моделирования фрактальной динамики сегнетоэлектрических доменных структур / Т.К. Барабаш, А.Г. Масловская, М.А. Колесник // Физика: фундаментальные и прикладные исследования, образование: материалы XII региональной научной конф. – Хабаровск, 2013. – С. 17-23.

145. Maslovskaya, A.G. Dynamic simulation of polarization reversal processes in ferroelectric crystals under electron beam irradiation / A.G. Maslovskaya, T.K. Barabash // Ferroelectrics. – 2013. – V. 442. – P. 18-26.

146. Maslovskaya, A. Polarization switching response and domain structure dynamics induced in ferroelectrics by incident electron beams / A. Maslovskaya, T. Barabash, E. Veselova // Solid State Phenomena. – 2016. – V. 247. – P. 131-137.

147. He, J. Two-dimensional structures of ferroelectric domain inversion in LiNbO₃ by direct electron beam lithography / J. He, S.H. Tang, Y.Q. Qin, P. Dong, H.Z. Zhang, C.H. Kang, W.X. Sun, Z.X. Shen // J. Appl. Phys. – 2003. – V.93. – P. 9943-9946.

148. Li, D.B. Polarization reorientation in ferroelectric lead zirconate titanate thin films with electron beams / D.B. Li, J.H. Ferris, D.R. Strachan, D.A. Bonnell // J. Mater. Res. – 2006. – V. 21. – P. 935-941.

149. Restoin, C. Ferroelectric-domain inverted gratings by electron beam on LiNbO_3 / C. Restoin, C. Darraud-Taupiac, J.L. Decossas, J.C. Vareille, J. Hauden // *Material Science in semiconductor processing*. – 2000. – V. 3. – P. 405-407.
150. Molina, P. Effect of Electron Beam Writing Parameters for Ferroelectric Domain Structuring $\text{LiNbO}_3:\text{Nd}^{3+}$ / P. Molina, M.O. Ramirez, J. Garcia-Sole, L.E. Bausa // *Optical materials*. – 2009. – V. 31. – P. 1777-1780.
151. Коханчик, Л.С. Формирование регулярных доменных структур и особенности переключения спонтанной поляризации в кристаллах танталата лития при дискретном облучении электронами / Л.С. Коханчик, Д.В. Иржак // *Физика твердого тела*. – 2010. – Т. 52 № 2 – С. 285-289.
152. Масловская, А.Г. Математическое моделирование процессов взаимодействия электронных пучков с полярными материалами: Автореф. дис. ...д-ра физ.-мат. наук. – СПб., 2014. – 32 с.
153. Аккерман, А.Ф. Моделирование траекторий заряженных частиц в веществе. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 200 с.
154. Cazaux, J. Mechanisms of charging in electron spectroscopy // *Journal of electron spectroscopy*. – 1999. – V. 105. – P. 155-185.
155. Cazaux, J. About the mechanisms of charging in EPMA, SEM, and ESEM with their time evolution // *Microscopy and Microanalysis*. – 2004. – V. 10, № 6. – P. 670-680.
156. Евстафьева, Е.Н. Механизм зарядки диэлектрических мишеней при облучении электронными пучками с энергией 1-50 кэВ: Дис. ...канд. физ.-мат. наук. – М., 2009. – 121 с.
157. Пешиков, Е.В. Радиационные эффекты в сегнетоэлектриках. – Ташкент: ФАН, 1986. – 139 с.
158. Голицина, О.М. Релаксация радиационных дефектов в облученном триглицинсульфате / О.М. Голицина, Л.Н. Камышева, С.Н. Дрождин // *Физика твердого тела*. – 1998. – Т. 40, № 1. – С. 116-117.
159. Донцова, Л.И. Кинетика процесса переключения локально облученных образцов триглицинсульфата / Л.И. Донцова, Н.А. Тихомирова, А.В. Гинзберг // *Физика твердого тела*. – 1988. – Т. 30, вып. 9. – С. 2692-2697.
160. Макаров, В.В. Влияние электронного облучения на процессы переполяризации монокристаллов ТГС и ДТГС: Автореф. дис. ...канд. физ.-мат. наук. – Тверь, 2005. – 24 с.
161. Олемской, А.И. Использование концепции фрактала в физике конденсированной среды / А.И. Олемской, А.Я. Флат // *УФН*. – 1993. – Т. 7, № 5. – С. 1-50.

162. Тарасевич, Ю.Ю. Перколяция: теория, приложения, алгоритмы. – М.: Едиториал УРСС, 2002. – 112 с.
163. Cummins, S.E. Electron-beam writing of ferroelectric domains in $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ single crystals / S.E. Cummins, B.H. Hill // Proc. IEEE. – 1970. – V. 58, № 6. – P. 158.
164. Хмелевская, В.С. Компьютерный анализ процессов самоорганизации в металлических материалах / Н.В. Куликова, В.С. Хмелевская, В.В. Бондаренко // Математическое моделирование. – 2006. – Т. 18, № 1. – С. 88–98.
165. Спиридонов, К.Н. Применение спектра обобщенных фрактальных размерностей Реньи для сравнения текстур изображения. – Петрозаводск, 2008. – С. 1-19.
166. Встовский, Г.В. Введение в мультифрактальную параметризацию структур материалов / Г.В. Встовский, А.Г. Колмакова, И.Ж. Бунин // НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика». – 2001. – Т. 5, № 2. – С. 116-120.
167. Klenke, T. Multifractal analysis of elemental distributions in SEM/EDX images of palladium conditioned ET-AAS platforms // Microchimica Acta. – 1995. – V. 120. – P. 91-100.
168. Arneodo, A. A wavelet-based method for multifractal image analysis. I. Methodology and test applications on isotropic and anisotropic random rough surfaces / A. Arneodo, N. Decoster, S.G. Roux // Eur. Phys. J. B. – 2000. – V. 15. – P. 567-600.
169. Гиляров, В.Л. Применение вейвлет-преобразования при изучении изменения фрактальных свойств поверхностей аморфных металлов под воздействием механической нагрузки / В.Л. Гиляров, В.Е. Корсуков, П.Н. Бутенко, В.Н. Светлов // Физика твердого тела. – 2004. – Т. 46, вып. 10. – С. 1806-1810.
170. Астафьева, Н.М. Вейвлет-анализ: основы теории и примеры применения // УФН. – 1996. – Т. 166, № 11. – С. 1145-1170.
171. Михайлов, О.И. Вейвлет-мультифрактальный анализ самоподобных изображений / О.И. Михайлов, Ю.О. Водолазский // Вестник Винницкого политехнического института. – 2009. – Т. 5, № 2. – С. 84-87.
172. Павлов, А.Н. Мультифрактальный анализ сложных сигналов / А.Н. Павлов, В.С. Анищенко // УФН. – 2007. – Т. 177, № 8. – С. 859-872.
173. Шур, В.Я. Скачки Баркгаузена при движении одиночной сегнетоэлектрической доменной стенки / В.Я. Шур, В.Л. Кожевников, Д.В. Пелегов, Е.В. Николаева, Е.И. Шишкин // Физика твердого тела. – 2001. – Т. 43, вып. 6. – С. 1089-1092.

174. Ахметханов, Р.С. Применение теории фракталов и вейвлет-анализа для выявления особенностей временных рядов при диагностике систем // Вестник научно-технического развития. – 2009. – № 1 (17). – С. 26-31.

175. Шишкин, Е.И. Моделирование и анализ пространственных и временных фрактальных объектов. – Екатеринбург: УГУ им. Горького, 2004. – 88 с.

176. Kantelhardt, J.W. Fractal and multifractal time series. – Halle-Wittenberg: Institute of Physics, Martin-Luther-University (Germany), 2010. – 42 p.

177. Олемской, А.И. Мультифрактальный анализ временных рядов // Вестник СумДУ. – 2008. – № 2. – С. 11.

178. Scherera, R. The Grünwald-Letnikov method for fractional differential equations / R. Scherera, S.L. Kallab, Y. Tangc, J. Huang // Computers & Mathematics with Applications. – 2011. – V. 62. – P. 902 – 917.

179. Васильев, В.В. Дробное исчисление и аппроксимационные методы в моделировании динамических систем. Научное изд. / В.В. Васильев, Л.А. Симак – Киев: НАН Украины, 2008. – 256 с.

180. Самко, С.Г. Интегралы и производные дробного порядка и некоторые их приложения / С. Г. Самко, А. А. Килбас, О. И. Маричев. – Минск: Наука и техника, 1987. – 688 с.

181. Нахушев, А.М. Дробное исчисление и его применение. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2003. – 272 с.

182. Филиппов, М.Н. Количественный микронзондовый анализ фазово-неустойчивых объектов: Автореф. дис. ...д-ра физ.-мат. наук. – М.: МИТХТ, 1992. – 48 с.

ОГЛАВЛЕНИЕ

<i>ВВЕДЕНИЕ</i>	3
1. Сегнетоэлектрические материалы и использование аналитических методов растровой электронной микроскопии для исследования их свойств	6
1.1. Фундаментальные концепции физики полярных диэлектриков	7
1.1.1. Определение и характерные свойства сегнетоэлектриков	7
1.1.2. Домены и их переключение	11
1.1.3. Основные положения термодинамической теории сегнетоэлектричества	17
1.2. Доменная структура и переключения поляризации в сегнетоэлектриках: теоретические аспекты и моделирование	20
1.2.1. Базовые модельные представления динамики доменных границ и основных характеристик процесса переключения поляризации	20
1.2.2. Применение теории фракталов для описания геометрии, динамики доменных границ и переключения поляризации в сегнетоэлектриках	27
1.3. Применение методик растровой электронной микроскопии для визуализации доменных структур, анализа и модификации свойств сегнетоэлектриков	32
1.3.1. Методика и назначение растровой электронной микроскопии	32
1.3.2. Использование аналитических возможностей растровой электронной микроскопии для изучения полярных материалов	34
1.3.3. Эффекты последействия электронного облучения на сегнетоэлектрические материалы	39
1.4. Основные результаты и выводы	42
2. Исследование свойств самоподобия РЭМ-изображений доменных структур типичных сегнетоэлектриков	44
2.1. Постановка задачи анализа скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных конфигураций сегнетоэлектриков	44
2.2. Исследование фрактальных закономерностей РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков	46
2.2.1. Разработка алгоритмического и программного обеспечения для проведения исследований	46
2.2.2. Использование фрактального формализма для анализа статического контраста РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков	56
2.2.3. Оценка фрактальных характеристик растровых изображений доменных структур сегнетоэлектриков, наблюдаемых в режимах динамического контраста	65

2.3. Мультифрактальные свойства РЭМ-изображений сегнетоэлектрических доменных структур	68
2.3.1. Реализация системы фрактального и мультифрактального анализа растровых изображений в виде программного приложения	68
2.3.2. Анализ скейлинговых характеристик РЭМ-изображений доменных структур сегнетоэлектриков методами мультифрактальной параметризации	73
2.4 Основные результаты и выводы	76
3. Фрактальные и мультифрактальные закономерности динамических характеристик переключения поляризации сегнетоэлектриков под действием электронного облучения.....	81
3.1. Постановка задачи фрактального анализа индуцированного электронным зондом тока переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов.....	81
3.2. Оценка фрактальных параметров тока переключения поляризации сегнетоэлектриков в инжекционном режиме	83
3.3. Исследование мультифрактальных характеристик процесса переключения поляризации сегнетоэлектрических кристаллов под действием инжектированных зарядов	90
3.4. Основные результаты и выводы	98
4. Развитие теоретических подходов к описанию процесса переключения поляризации сегнетоэлектриков в неравновесных условиях электронного облучения.....	100
4.1. Численная модификация фрактальной модели Колмогорова – Аврами для формирования тока переключения поляризации сегнетоэлектриков	101
4.2. Теоретическое описание процесса переключения поляризации сегнетоэлектриков в режиме электронно-стимулированной поляризации.....	107
4.3. Фрактальная модель индуцированного электронным зондом процесса переключения сегнетоэлектриков.....	112
4.4. Прогнозирование динамики изменения полярного состояния сегнетоэлектриков в режиме инъекции электронного пучка на основе интерпретации результатов вычислительных экспериментов	121
4.5. Основные результаты и выводы.....	130
<i>ЗАКЛЮЧЕНИЕ</i>	133
<i>БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК</i>	138

Татьяна Константиновна Барабаш,

*научный сотрудник лаборатории композитных диэлектрических материалов
НОЦ АмГУ, канд. физ.-мат. наук;*

Анна Геннадьевна Масловская,

профессор кафедры МАиМ АмГУ, д-р физ.-мат. наук, доцент

Фрактальные закономерности и модельные представления процессов переключения поляризации сегнетоэлектриков при диагностике методами растровой электронной микроскопии. Монография.

Изд-во АмГУ. Подписано к печати 16.09.16. Формат 60x84/16. Усл. печ. л. 8,60.
Тираж 300. Заказ 762.

Отпечатано в типографии АмГУ.