

О Т З Ы В

официального оппонента на диссертацию Кусковой Александры Николаевны «Особенности кристаллической и доменной структур и моделирование границы раздела эпитаксиальной системы BST/MgO», представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 «физика конденсированного состояния»

Твердые растворы на основе титанатов бария и стронция являются представителями класса сегнетоэлектриков, т.е. веществ, кристаллическая структура которых допускает существование в определенных условиях (температура и давление) спонтанной электрической поляризации, величина и пространственная ориентация которой могут быть изменены под действием внешнего электрического поля. Помимо электрически переключаемой спонтанной поляризации сегнетоэлектрики характеризуются высокой диэлектрической проницаемостью, наличием прямого и обратного пьезоэлектрического и пироэлектрического эффектов. Эти свойства тонких сегнетоэлектрических пленок делают их перспективным материалом для создания элементов функциональной микро- и наноэлектроники, таких, как ячейки энергонезависимой и динамической памяти с произвольной выборкой, конденсаторы, микроактюаторы, волноводы и линии задержки и т.п. Реализация уникальных свойств этих материалов в микро- и наноэлектронике требует решения задачи контролируемой совместимости тонких слоев сегнетоэлектриков с полупроводниковыми коммутационными матрицами в рамках планарной технологии полупроводниковых приборов, т.е. – использование гетеросистем. Структурное совершенство пленок в гетеросистемах, определяется, как условиями синтеза, так и механизмами аккомодации кристаллографического несоответствия материалов пленки и подложки. От них зависит атомное строение гетерограниц, тип и плотность дефектов структуры в объеме пленки, структурно-химическая однородность

и доменная структура пленки, морфология её поверхности. Все эти параметры, которые можно назвать одним словом – кристаллографическое совершенство, будут определять основные сегнетоэлектрические свойства пленки и, в конечном итоге, параметры создаваемого устройства (прибора).

Просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения (ВРЭМ) является единственным методом прямого наблюдения структурных особенностей материалов на нанометровом и субнанометровом уровнях и именно она позволяет наиболее адекватно охарактеризовать кристаллографическое совершенство материала на атомарном уровне. Диссертационная работа Кусковой А.Н. посвящена исследованию с помощью этого метода структурно – химических особенностей пленок и границ раздела в гетеросистеме $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ - MgO (100), которая в настоящее время рассматривается в качестве одного из перспективных сегнетоэлектрических материалов и, поэтому, **несомненно является актуальной** и имеет важное значение, как для фундаментальной науки, так и для практического использования в области синтеза и структурной диагностики тонкопленочных сегнетоэлектрических материалов.

Квалификационная работа состоит из введения, трех глав и заключения с выводами. *Во введении* обоснована актуальность проблемы, сформулированы цель и задачи исследования. *В первой главе* приведён обзор литературы по теме диссертационной работы. Описаны особенности структуры и свойств тонких сегнетоэлектрических плёнок по сравнению с их объемными аналогами. Рассмотрены различные механизмы роста эпитаксиальных пленок, а также различные методы исследования как теоретические, так и экспериментальные, применяемые в настоящее время для анализа структуры тонких пленок. На основе детального анализа литературных данных по экспериментальному исследованию структуры и свойств тонких сегнетоэлектрических плёнок очень грамотно сформулированы основные методические и научные задачи квалификационной работы. *Во второй главе* описаны особенности синтеза

исследуемых плёнок и использованные в работе методы их исследования. Для решения такой сложной задачи, как установление атомного строения границ раздела в материалах со структурой перовскита диссертант успешно на высоком профессиональном уровне использовал современные методы, как препарирования объектов для электронной микроскопии, так и различные методики аналитической ВРЭМ. Для подтверждения результатов, полученных экспериментально, проводилось моделирование ВРЭМ изображений, в том числе полученных в растрово-просвечивающем режиме (STEM). Совокупность оригинальных методов цифровой обработки и моделирования ВРЭМ изображений, статистического количественного анализа и молекулярной статистики позволило получить новую количественную информацию о химическом составе границы раздела $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ - MgO (100). Зависимость сегнетоэлектрической доменной структуры от толщины плёнок определялась методами атомно-силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика. Адекватность использованных взаимодополняющих экспериментальных и теоретических методов задачам квалификационной работы, использование современного аналитического оборудования и высокий экспериментаторский уровень соискателя определяют высокую **достоверность** полученных результатов. *В третьей главе* подробно представлены экспериментальные результаты о кристаллической структуре плёнок $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ широкого диапазона толщин и границ раздела $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ - MgO . Выявлены механизмы роста и релаксации механических напряжений в плёнках. Исследована эволюция сегнетоэлектрической доменной структуры с увеличением толщины плёнки. Цифровая обработка и моделирование ВРЭМ изображений в совокупности с данными статистического количественного анализа и расчетами методом молекулярной статистики позволило соискателю получить важные новые результаты, среди которых следует выделить следующие.

- Впервые экспериментально обнаружено два варианта стыковки кристаллических решеток – TiO_2 - MgO и $\text{Ba}(\text{Sr})\text{O}$ - MgO на границе раздела

$Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$ - MgO. Первый вариант реализуется в случае атомно гладкой поверхности и ранее был подтвержден только теоретическими расчетами. Плоскость начала роста Ba(Sr)O присутствует только при наличии ступеней на ростовой поверхности MgO и не формируется на атомно гладкой поверхности подложки.

- Ионы бария (стронция) диффундируют в приграничные слои подложки на расстояние нескольких моноатомных слоев. Сделано предположение, что диффузия атомов связана с периодическим полем напряжений, создаваемым сеткой дислокаций несоответствия на границе раздела.

Важным результатом работы является также экспериментально установленные особенности доменной структуры пленок BST(80/20), выявленные методом атомно-силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика:

- в ультратонких пленках (6 и 12 нм) присутствуют только сегнетоэлектрические aa-домены, при этом размеры положительных aa-доменов уменьшаются с увеличением толщины пленки.

- в пленках толщиной более 36 нм существуют только с-домены, при этом размеры положительных с-доменов увеличиваются с увеличением толщины пленки.

- изменение типа доменной структуры связано со сменой знака внутренних механических напряжений с растягивающих на сжимающие.

В качестве замечаний и пожеланий следует отметить следующие моменты.

В диссертационной работе приведено только одно моделированное STEM изображение, которое на взгляд автора наилучшим образом соответствует экспериментально наблюдаемой структуре при заданных условиях съемки. Обычно приводят карту теоретических изображений и критерий соответствия расчетных и экспериментальных изображений.

В тексте диссертационной работы недостаточно ясно обосновано, что контраст вдоль границы раздела на HAADF STEM-изображениях обусловлен

диффузией тяжелых ионов вглубь подложки, а не наложением решеток вследствие наличия ступеней.

Известно, что недавно появилась возможность получать карты распределения химических элементов на атомном уровне, например, с помощью методики ChemiSTEM, что было продемонстрировано для соединения SrTiO_3 . Такая методика позволила бы проверить экспериментально результаты расчетов химического состава на границе раздела, полученных в диссертации.

В целом можно заключить, что диссертационная работа Кусковой Александры Николаевны является законченным и ценным исследованием, выполненном на мировом уровне. Результаты работы существенно расширяют наши представления как об атомном строении пленок и границ раздела в гетеросистеме $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ - MgO , так и о возможностях метода аналитической ВРЭМ по изучению атомной структуры материалов со сложной структурой. Указанные выше замечания не изменяют основных выводов работы.

По актуальности и объему, оригинальности полученных результатов, их достоверности, научной новизне и практической значимости диссертационная работа Кусковой Александры Николаевны «Особенности кристаллической и доменной структур и моделирование границы раздела эпитаксиальной системы BST/MgO », удовлетворяет всем требованиям, предъявляемым ВАК к кандидатским диссертациям. Работа полностью соответствует паспорту специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния. В соответствии с пунктом 9 «Положения о порядке присуждения ученых степеней» диссертационная работа Кусковой А.Н. может быть отнесена к научно – квалификационной работе, в которой содержится решение актуальной задачи, имеющей важное значение для физики гетеросистем. Автор диссертационной работы, Кускова Александра Николаевна заслуживает, безусловно, присуждения ученой степени

кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния.

Основные результаты диссертационной работы своевременно и в надлежащем объеме опубликованы в рецензируемых журналах, входящих в список ВАК. Автореферат полно и правильно отражает содержание диссертации.

ведущий научный сотрудник

ФГБУН Институт физики полупроводников

им. А.В. Ржанова СО РАН

кандидат физ.-мат. наук



А.К. Гутаковский

Подпись А.К. Гутаковского заверяю

Ученый секретарь ИФП СО РАН

кандидат физ.-мат. наук



А.В. Каламейцев

630090, Россия, Новосибирск, пр. ак. Лаврентьева, 13, ФГБУН Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, нанодиагностики и нанолитографии, ведущий научный сотрудник.

тел. 8 (383) 330-90-82, вн. 1263.

e-mail: gut@isp.nsc.ru