

“УТВЕРЖДАЮ”

Директор Федерального государственного учреждения науки Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН (ИПТМ РАН)

д.ф.-м.н. проф. В.А. Тулин



ОТЗЫВ

ведущей организации на диссертацию Кусковой А.Н. «Особенности кристаллической и доменной структур и моделирование границы раздела epitаксиальной системы BST/MgO», представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния.

Актуальность работы

Сегнетоэлектрические плёнки могут найти широкое применение в современных устройствах функциональной микроэлектроники, так как обладают широким спектром уникальных свойств, сочетаемых в одном материале. Понимание влияния условий получения как самих пленок, так и их границ раздела с подложкой на атомарном уровне, позволит отработать промышленную технологию изготовления сегнетоэлектрических материалов и приборов на их основе. Интеграция сегнетоэлектрических материалов в технологии микроэлектроники перспективна для создания энергонезависимых систем хранения и записи информации. Сегнетоэлектрики используются также в качестве элементов фазовращателей для фазированных антенных решеток в радиолокационных системах. Работы

по исследованию сегнетоэлектрических пленок ведутся в крупнейших исследовательских центрах мира.

Гетероструктуры BST/MgO являются перспективными материалами для создания элементов функциональной микроэлектроники. Созданные на основе таких структур лабораторные макеты планарных конденсаторов и фазовращателей обладают уникальным сочетанием физических свойств (постоянной высокой диэлектрической проницаемостью в широком диапазоне рабочих температур, хорошими частотными характеристиками и высоким коэффициентом добротности). Однако свойства таких систем, особенно, на основе тонких пленок, весьма существенно зависят от условий получения и формируемой под их воздействием кристаллической структуры.

Таким образом, понимание физических процессов, происходящих в сегнетоэлектрических пленках при релаксации внутренних упругих напряжений и их влияния на формирование кристаллической структуры как самих пленок, так и границы раздела пленка-подложка является актуальной материаловедческой задачей. В связи с этим актуальна тема диссертации Кусковой А.Н., посвященной изучению структуры пленок BST различной толщины, выявлению механизмов их роста и релаксации упругих напряжений, а также исследованию на атомарном уровне границы раздела BST-MgO.

Цель диссертационной работы – установление особенностей структуры гетероэпитаксиальных пленок Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO₃ (BST(80/20)) широкого диапазона толщин (от двух до 1500 нм) и их границ раздела на подложках MgO (100), выращенных модифицированным методом магнетронного напыления.

Содержание работы

В работе описаны особенности структуры и свойств тонких сегнетоэлектрических плёнок в сравнении с их объемными аналогами. Рассмотрены различные механизмы роста эпитаксиальных пленок, а также различные теоретические и экспериментальные методы, применяемые в

настоящее время для анализа структуры тонких пленок. Описаны особенности методики получения исследуемых плёнок и примененные в работе современные методики исследования тонких пленок и границ раздела. Исследованы начальные стадии роста пленок и ультратонкие пленки, эволюция сегнетоэлектрической доменной структуры с увеличением толщины пленок, строение границы раздела на атомарном уровне, выявлен механизм релаксации упругих напряжений в пленках. Для получения достоверных результатов применен комплекс экспериментальных и теоретических методов, включающих метод просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения (ВРЭМ), растрово-просвечивающей электронной микроскопии высокого разрешения с применением широкоуглового детектора темного поля (HR HAADF STEM), позволяющий получать изображения с Z-контрастом, моделирование обоих видов электронно-микроскопических изображений, применение количественного картирования для определения химического состава атомных колонок на границе раздела, а также моделирование и расчет методом молекулярной статики различных вариантов строения границы раздела. Для определения сегнетоэлектрической доменной структуры применялся метод атомно-силовой микроскопии и микроскопии пьезоэлектрического отклика.

Новизна полученных результатов

В работе впервые применена совокупность экспериментальных (электронно-микроскопических) и теоретических (моделирование HAADF STEM ВРЭМ-изображений, статистический количественный анализ относительного химического состава, атомистическое моделирование) методов для анализа структуры границы раздела BST(80/20)-MgO. Этот подход, ранее не применявшийся к данным структурам, позволил автору получить оригинальные результаты. Впервые было показано, что пленки такого состава на подложках MgO могут расти не как разориентированные островки, а по слоевому механизму, при этом ступени на поверхности подложки препятствуют образованию антифазных границ, ухудшающих

физические характеристики. Впервые визуализирована сегнетоэлектрическая доменная структура ультратонких пленок (6 и 12 нм) BST(80/20) на подложках MgO, а также получены и обобщены данные о зависимости доменной структуры от толщины пленки в широком диапазоне толщин (6-1500 нм).

Указанные результаты имеют как прикладное значение, так и являются важными с точки зрения фундаментальной науки, т.к. вносят новые представления об устройстве границ раздела эпитаксиальных систем BST/MgO.

Достоверность результатов работы

Достоверность результатов, представленных в работе, подтверждается согласованностью результатов, полученных различными методами (теоретическими и экспериментальными), их воспроизводимостью при заданных условиях эксперимента, а также сравнением с экспериментальными данными других авторов.

Основные результаты диссертации изложены в статьях, опубликованных в реферируемых журналах, и доложены на российских и международных конференциях. В диссертации представлен список из 5 статей (из них 4 в реферируемых журналах ВАК), и 15 тезисов докладов.

Автореферат диссертации полностью отражает содержание диссертационной работы.

Практическая значимость работы.

Результаты диссертации могут быть использованы в организациях, занимающихся созданием и структурными исследованиями наноматериалов и многослойных композиций на основе тонких плёнок: в научных лабораториях ФГБУН ИК им. А.В. Шубникова РАН, физического, химического факультета, факультета наук о материалах МГУ им. М.В. Ломоносова, ФГБУН ИПТМ РАН, ФГБОУВПО МГТУ МИРЭА, ФГАОУВПО НИУ МИЭТ, ФГБОУВПО РХТУ им. Д.И.Менделеева, ФГБОУВПО МГТУ им. Н.Э.Баумана, ФГБОУВПО НИТУ МИСиС,

предприятиях микроэлектронной промышленности «Микрон», «Ангстрем» и других учреждениях. Материалы диссертации могут быть также использованы в качестве лекционного материала для студентов, изучающих методы исследования микро- и наносистем, материалы для микроэлектроники, кристаллофизику, кристаллографию и современные нанотехнологии.

Личный вклад автора

Личный вклад автора заключается в изготовлении образцов для электронно-микроскопических исследований с применением методов ионного травления и фокусированного ионного пучка, выполнении исследования на просвечивающем электронном микроскопе, моделировании ВРЭМ-изображений. Для статистической обработки STEM-изображений автором была написана программа в среде программирования Matlab. Автором выполнены построение моделей границы раздела и расчеты структуры границы раздела методом молекулярной статики, а также обработка и анализ данных, полученных различными методами. Автор диссертации участвовала в обсуждении и обобщении основных научных результатов, написании статей и в подготовке представления докладов на конференциях. Результаты других авторов, упомянутые в тексте диссертации, отмечены соответствующими ссылками.

Замечания по работе

Замечания к Главе 3.1.

Раздел 3.1.2.

- 1) Использование в диссертации методики наблюдения картин муара при направлении электронного пучка перпендикулярно границе раздела BST/MgO для исследования дислокаций ограничивается, как отмечает и сам диссертант, случаем дислокаций направленных параллельно электронному пучку, и к тому же не различая ситуации, где находится конкретная дислокация – в пленке BST или в подложке MgO. В этой связи, области муарового контраста на рис.3.5 (стр.85), где имеется одна

дополнительная полоса, могут относиться к дислокациям в MgO. Последний имеет структуру типа NaCl и вектор Бюргерса дислокаций \mathbf{b} в котором равен $1/2<110>$, что дает произведение \mathbf{gb} для дифракционного отражения 020 равным единице (условие видимости одной дополнительной полосы).

2) Мы отмечаем также наличие отдельных рассогласований между утверждениями, высказанными диссертантом, и иллюстрирующими рисунками. В частности, утверждение диссертанта о том, что начиная с определенной толщины пленки BST дислокации упорядоченно локализуются вблизи границы BST/MgO, не иллюстрируется в целом на рис.3.1, где такой эффект виден только для толщины 36 нм. Возможно, что это является следствием того, что изображения на рис.3.1 были получены вдоль разных кристаллографических направлений. Приведение картин электронной дифракции для каждого из изображений на рис.3.1 могло бы прояснить ситуацию.

3) Картинны электронной дифракции соответствующие каждому из изображений муарового контраста также не приводятся на рис.3.4. Особенным является изображение рис.3.4в соответствующим как раз толщине 36 нм пленки BST, где муаровый контраст почти всех локальных областей имеет двумерный характер, в отличие от одномерного для других толщин. Непонятно, является ли появление двумерного муарового контраста на рис.3.4в следствием условий наблюдения, когда контраст на этом рисунке формировался двумя типами отражений 020 и 200, что противоречит с утверждением на стр.82, что муаровый контраст наблюдался только в одном рефлексе, или это как-то связано с наличием для данной толщины пленки упорядоченной сетки дислокаций на границе BST/MgO.

4) При описании рис.3.8г (стр.89) говорится, что на этом рисунке могут быть видны дополнительные экстраплоскости, но на самом рисунке их положение не показано. В области сильной деформации – область ядра контраст полос от плоскостей практически исчезает, и обнаружить экстраплоскости в этих областях не представляется возможным. Однако

подсчет числа полос решетки сверху и снизу рис.3.8г обнаруживает их точное совпадение, что указывает на отсутствие дополнительных экстраплоскостей. Аналогичное замечание относится и к части дислокаций на подрисунках а-б рис.3.9 – там не видно дополнительных плоскостей в BST. Для выбранной геометрии наблюдения рис.3.8-3.9 (ось зоны [100]) это означает отсутствие для этих дислокаций в пленке BST краевой компонентой вектор Бюргерса вдоль [010]. Дополнительные экстраплоскости в BST относительно MgO хорошо прослеживаются для каждой дислокации только на рис.3.9в.

Раздел 3.1.3.

1) Мы отмечаем структурную неточность или описку, допущенную в диссертации, когда указываются колонки Ba(Sr)O на рис.3.14 и 3.16. На самом деле при ориентации пероскитовой ячейки относительно электронного пучка вдоль направления [100] позиции Ba(Sr) и O не перекрываются, что видно из рис.3.10.

2) В модели границы на рис.3.10в ионы бария в пленке и магния в подложке располагаются друг напротив друга и, следовательно, должны взаимодействовать. Однако в расчете для такой модели энергии адгезии парные взаимодействия бария-магния не учитываются и потенциалы их взаимодействий не приводятся в таблице 3.

Сделанные замечания не снижают общего положительного мнения о работе. Представленный в работе обширный экспериментальный материал получен с помощью современных методик исследования. Основные результаты, излагаемые в диссертации, являются новыми и оригинальными.

Диссертационная работа Кусковой А.Н. может быть отнесена к научно-квалификационной работе, в которой содержится решение актуальной задачи, имеющей важное значение для создания материалов функциональной микроэлектроники. Рассматриваемая диссертационная работа является законченным исследованием и полностью соответствует критериям,

предъявляемым к кандидатским диссертациям, установленным п. 9 "Положения о порядке присуждения ученых степеней", утвержденного постановлением Правительства РФ, а ее автор, Кускова Александра Николаевна, заслуживает присвоения искомой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 ("Физика конденсированного состояния").

Работа рассмотрена на заседании семинара "Материаловедение и Технология" ИПТМ РАН. Отзыв утвержден на заседании Ученого Совета ИПТМ РАН (протокол № 13 от 31.10.2014).

Отзыв составил

д. физ.-мат. н., в.н.с.,
лаб. просвечивающей электронной
микроскопии

В.И. Николайчик

Николайчик В.И.

Руководитель семинара

"Материаловедение и Технология" ИПТМ РАН

зав. лаб. ИПТМ РАН, д. физ.-мат. н., проф.

Е.Б. Якимов

Якимов Е.Б.

142432, г. Черноголовка, Московская область, ул. Академика Осипьяна, д. 6, ИПТМ РАН, лаборатория локальной диагностики полупроводниковых материалов, заведующий лабораторией.

телефон: 8 (49652) 44161, 8 (49652) 44182.

e-mail: yakimov@ipmtm.ru