

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертационную работу

Симагиной Лилии Викторовны

**«Динамика доменов, созданных в кристаллах твердых растворов
ниобата бария-стронция в поле зонда СЗМ»,**

представленную на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.18 – кристаллография, физика кристаллов.

Актуальность темы диссертации

Диссертационная работа Симагиной Л.В. посвящена изучению особенностей сегнетоэлектрического переключения и динамики доменов в сегнетоэлектрических кристаллах твердых растворов ниобата бария-стронция (SBN). Эта задача связана, в первую очередь, с развитием способов контролируемого создания регулярных микро- и субмикродоменных структур заданного дизайна в сегнетоэлектриках, выступающих в роли нелинейных фотонных систем, способных к преобразованию лазерного излучения. Вопросы исследования закономерностей локальной переполаризации сегнетоэлектриков и реализации управляемой записи мелкомасштабных доменных структур решаются в работе с применением современных методов сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ). Необходимо отметить, что важность исследования локального переключения SBN обусловлена не только перспективностью изучения способов управления параметрами нано- и микродоменных структур при создании нелинейных фотонных кристаллов, но и необходимостью более углубленного понимания механизмов поляризации и динамики доменов в малоизученном в настоящее время классе релаксорных сегнетоэлектриков, к которому принадлежит SBN. В связи с этим, актуальность, научная и практическая значимость диссертационной работы Симагиной Л.В. очевидны и не вызывают сомнений.

Структура и содержание работы

Представленная диссертация состоит из введения, 5 глав, выводов и библиографии. Объем диссертации составляет 144 страницы, включая 56 рисунков, 12 таблиц и список литературы из 100 наименований.

Первая глава представляет собой обзор литературных данных о сегнетоэлектрических свойствах изучаемых в работе кристаллов SBN, результатах исследований процессов переключения SBN и кристаллов других сегнетоэлектриков (в частности, в поле зонда СЗМ), а также освещает вопросы генерации второй гармоники (ГВГ) лазера на регулярных доменных структурах в сегнетоэлектриках и описывает возможности доменной структуры SBN в качестве нелинейной среды для преобразования оптического излучения. Обзор достаточно развернутый, но имеет ряд недостатков, которые будут отмечены ниже.

Во второй главе приводится описание экспериментальных методик, используемых в работе для исследования кристаллов SBN. Изложены основы метода силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика (PFM) для визуализации доменной структуры полярного среза сегнетоэлектриков и получения петель локального пьезоэлектрического гистерезиса, а также метода СЗМ-литографии для осуществления локальной реполяризации образцов и записи регулярных доменных структур (РДС) в SBN. Большое внимание уделено разделению вкладов различной природы в считываемый PFM-сигнал. Описана компенсационная электрометрическая методика, применяемая в работе для изучения поляризации кристаллов в макроскопических полях. Для исследования ГВГ на записанной в SBN приповерхностной РДС автором предложен метод нелинейной дифракции в геометрии на отражение. Приведено описание физических явлений, на которых основаны используемые методы, и показано устройство экспериментальных установок, применяемых в работе. В качестве объектов исследования автором выбраны различные составы твердых растворов SBN: кристаллы $\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Nb}_2\text{O}_6$ (SBN- x , где $x = 0,61$ - содержание стронция), состава SBN-0,61, беспримесные и легированные примесью редкоземельного

металла (Nd), а также кристаллы с более выраженными релаксорными свойствами – SBN-0,75.

В третьей главе приведены экспериментальные результаты исследования сегнетоэлектрических свойств кристаллов SBN различного состава методами СЗМ. Переключение образцов изучается путем измерения петель локального пьезоэлектрического гистерезиса в SBN при различных параметрах скважности в последовательности импульсов подаваемого напряжения, проведения многократной записи субмикродоменов в SBN и исследования кинетики их латерального разрастания. Выполненный автором комплекс СЗМ-исследований экспериментальных образцов позволил выявить особенности переполяризации SBN как релаксорного сегнетоэлектрика, а также специфику динамики доменов в условиях пространственно неоднородного поля СЗМ-зонда. Наряду с изучением переключения в SBN на субмикроскопическом уровне в работе проводятся исследования поляризации кристаллов в макроскопическом поле. Проведенное в работе сопоставление исследований кристаллов макро- и микроскопическими методами выявило корреляцию наблюдаемой кинетики роста доменов, создаваемых в поле СЗМ-зонда, с процессами поляризации кристалла в однородном поле.

В четвертой главе изучаются вопросы временной устойчивости доменов, записанных в SBN в поле СЗМ-зонда. Автором исследована зависимость релаксационных характеристик доменных структур от их геометрии и состава кристалла. Кроме того, в работе изучается перестройка неравновесных доменов в SBN при отжиге выше температуры фазового перехода, а также в условиях фотовозбуждения проводимости при освещении кристалла SBN-Nd УФ-излучением. Полученные результаты представляются важными с практической точки зрения и, кроме того, являются информативными для анализа механизма динамики доменов в релаксорах.

В пятой главе представлены данные об исследовании ГВГ Ti-сапфирового лазера, получаемой путем квазисинхронного преобразования излучения на регулярных доменных структурах в SBN. Для решения этой задачи на поверхности исследуемого кристалла в поле СЗМ-зонда была сформирована периодическая доменная структура с модулированным (вдоль одного направления) знаком квадратичной восприимчивости. С помощью компенсации фазового рассогласования фундаментальной и преобразованной волн за счет создания в кристалле системы антипараллельных доменов с периодом 3,64 мкм автором была реализована генерация второй гармоники лазерного излучения с длиной волны 800 нм. Наблюдение этого нелинейного преобразования проводилось с помощью метода нелинейной дифракции, и поскольку записанная РДС являлась планарной (тонкой), эксперимент проводился в геометрии на отражение.

К достоинствам диссертационной работы можно отнести:

1. Использование нескольких современных экспериментальных методов, дополняющих друг друга, что обеспечивает достоверность полученных результатов.
2. Углубленный анализ экспериментальных результатов на основе современных теоретических представлениях о процессах переполяризации доменов и движении доменных стенок, позволивший понять механизмы наблюдаемых явлений.
3. Решение на основе полученных результатов реальной практической задачи по генерации второй гармоники в SBN.

К наиболее важным и интересным научным результатам работы можно отнести следующее:

1. Путем применения комплекса методов СЗМ к решению актуальной задачи изучения сегнетоэлектрического переключения в SBN как релаксорном сегнетоэлектрике были обнаружены

особенности его переполяризации в виде низкочастотной дисперсии коэрцитивных полей SBN, специфике обратного переключения и медленном термоактивационном характере латерального разрастания доменов с выходом на уровень насыщения, определяемый величиной приложенного поля.

2. Автором реализована запись периодической знакопеременной структуры в SBN методом СЗМ, впервые протестированной в работе на предмет квазисинхронного преобразования частоты лазерного излучения методом нелинейной дифракции в геометрии на отражение. Оценка периода записанной планарной структуры из нелинейно-оптических измерений оказалась в очень хорошем согласии с заданным значением.

3. Установлены закономерности долговременной релаксации доменных структур, записанных в SBN в поле СЗМ-зонда. Обнаружены зависимости характеристик релаксации доменных ансамблей от их геометрии. Автором впервые показано, что изменение проводимости кристаллов SBN путем легирования или фотовозбуждения при воздействии на кристалл УФ-излучением изменяет кинетику распада доменов в данном материале.

4. При изучении воздействия высокотемпературного отжига на неравновесные домены в SBN автором обнаружено фундаментальное отличие температурной динамики доменов в данном материале от характера изменения поляризации с температурой в модельных сегнетоэлектриках.

Детально сформулированные выводы, представленные в работе, полностью отражают основные научные результаты, полученные автором.

Научная новизна работы

На полярном срезе кристаллов SBN различных составов было впервые проведено комплексное исследование локальных сегнетоэлектрических

свойств с помощью набора методов СЗМ, результаты которого были сопоставлены с осуществленным в работе изучением поляризации SBN в макроскопическом поле. Тщательно проведенный анализ полученных экспериментальных результатов и данных, известных из литературы, позволил автору обнаружить специфику поляризации SBN с точки зрения его релаксорной природы. Аномалии исследуемого материала также были впервые выявлены при исследовании отклика созданных в нем доменных структур на внешние воздействия (температурный отжиг и облучение УФ светом). Изучение локального сегнетоэлектрического переключения в SBN и изучение свойств записываемых в этом кристалле доменных структур позволили автору сформировать в поле СЗМ-зонда устойчивую РДС, успешно протестированную на способность к квазисинхронному преобразованию частоты лазерного излучения.

Практическая значимость

Продемонстрировано, что на кристаллах SBN со сформированной методом СЗМ периодической структурой можно получить генерацию второй гармоники. Показана перспективность кристаллов SBN в качестве модельного объекта для управляемого конструирования и исследования мелкомасштабных периодических доменных систем, предназначенных для нелинейного преобразования оптического излучения и применимости предложенного автором метода нелинейной дифракции в геометрии на отражение для нелинейно-оптического исследования планарных несквозных регулярных доменных структур.

Достоверность результатов представленной работы обеспечена применением современного оборудования, большим объемом проведенных экспериментальных исследований, согласованием результатов, полученных с помощью разных методик (в частности, с помощью макро- и микрометодов). Автор владеет методами современной экспериментальной физики и

понимает суть исследуемых физических явлений. Качество научных результатов также подтверждается публикациями материалов работы в высокорейтинговых рецензируемых отечественных и международных научных журналах из списка ВАК, в которых изложены основные результаты диссертационной работы, а также многочисленными докладами на отечественных и международных конференциях.

Автореферат диссертации правильно отражает диссертационной работы.

Замечания по диссертационной работе:

Диссертационная работа не лишена ряда недостатков. Их можно разделить на две группы: 1) недостатки в оформлении диссертации; 2) вопросы и замечания по существу диссертации.

1. Недостатки в оформлении диссертации:

1.1. К недостаткам оформления диссертации следует отнести отсутствие в тексте ссылок на собственные работы, список которых приведен в начале диссертации. Обычно, многие авторы собственные работы, опубликованные по теме диссертации, отмечают в списке публикаций дополнительной буквой, например [A1, A2 и т.д.]. В этом случае при чтении текста диссертации легко понять в каких работах опубликованы те или иные полученные автором результаты.

1.2. Имеется незначительное количество опечаток. Например, на стр. 124 диссертации перепутаны обозначения - вместо ссылки в тексте на рис.5.3 должна быть ссылка на рис.5.4. На странице стр. 127 вместо ссылки на рис. 5.4 должна быть ссылка на рис.5.5.

1.3. Есть ряд неудачных терминов. Например, вместо используемого автором термина «температура диэлектрического максимума» (стр. 16, 35 и 63) лучше было написать – «температура максимума диэлектрической проницаемости».

1.4. Наверное стоило привести более расширенный список сокращений и обозначений, приведенный на стр. 132. Кроме приведенной расшифровки

нескольких аббревиатур (типа RFIM, РДС, ГВГ) неплохо было бы привести в конце диссертации расшифровку обозначений типа ЭМО, $T_{\text{фл}}$, P_s , P_e , V_{DW} , t_p , t_s и других. Это заметно облегчило бы чтение диссертации.

1.5. Мне представляется не совсем удачной форма изложения Основных положений, выносимых на защиту. Фактически они сводятся к перечислению основных полученных результатов, а обычно их формулируют в виде утверждений. Например, вместо используемого предложения «Применимость модели точечного заряда для оценки поля под острием СЗМ-зонда» на мой взгляд лучше было бы привести утверждение «Используемая модель точечного заряда применима для оценки поля под острием СЗМ-зонда», которое автор выносит на защиту.

2. Вопросы и замечания по существу диссертации.

2.1. В литературном обзоре мало ссылок на недавно опубликованные работы других авторов по теме диссертации. За весь период с 2011 по 2015 год я нашел только 4 ссылки за 2011 год и 1 ссылку за 2013 года. Ссылок на публикации за 2012, 2014 и 2015 годы вообще нет. Хотя в целом обзор достаточно детальный и в нем проведен компетентный анализ работ по тематике диссертации, ряд исследований других авторов нужно было в обзоре отразить. В частности, это относится к формированию методами СЗМ доменов в ниобате бария-стронция (нет ссылки на известную работу В.Я. Шур и др. ФТТ – 2011 – т. 53 – № 11 – с. 2195-2199). Это же можно сказать и о формировании периодических работ в сегнетоэлектриках различными методами (например, не упоминается обзор, опубликованный в УФН (Голенищев-Кутузов А.В., и др. УФН 2000 – Т. 170, N 7 . с 697-712) или работа Коханчик Л.С. с соавторами (ФТТ, 2010, том 52, вып. 8 стр. 1602-1609).

2.2. Во второй главе диссертации, посвященной экспериментальным методикам, нет достаточно корректного описания измеряемой величины S (площади домена). Площадь домена в дальнейшем используется для изучения кинетики распада сформированных доменов, анализе эффектов

появления доменов противоположного направления поляризации внутри исходной области однородной поляризации и даже для измерения петли гистерезиса. Только при чтении 4-ой главы, из описания автором экспериментов по исследованию процессов релаксации микродоменных структур, становится понятным, что автор понимает под S суммарную площадь участков доменной полосы с положительными или отрицательными значениями H_ω (величины сигнала электромеханического отклика).

2.3. В диссертации приведено много PFM – изображений (микроскопических изображений пьезоэлектрического отклика), представленных в формате grey-scale, где значения $H_\omega (X,Y)$ отражаются цветовой шкалой от темного поля (малые значения H_ω) до светлого (большие H_ω). На мой взгляд, этого недостаточно, особенно при появлении на PFM – изображениях доменов противоположного направления поляризации с положительными и отрицательными значениями H_ω . Для наглядности желательно было бы (как это часто делается при отображении трехмерных результатов сканирующей зондовой микроскопии) на PFM – изображениях привести, кроме шкалы X, Y , и численную шкалу H_ω . В некоторых случаях в диссертации этот недостаток отчасти компенсируется дополнительным размещением рядом с PFM – изображением профиля значений $H_\omega (X)$.

2.4. В пятой главе диссертации автор, анализируя кинетику распада сформированной в сегнетоэлектрике периодической решетки, к сожалению, не приводит зависимость интенсивности генерации второй гармоники от времени хранения записанной решетки. Нет также данных, насколько сильно влияет нагрев образца с решеткой лазерным излучением на снижение эффективности генерации второй гармоники. Это важно с точки зрения практического использования созданных структур как преобразователей лазерного излучения.

Приведенные выше замечания не являются принципиальными и не ставят под сомнение научную и практическую ценность диссертации Симагиной Л.В.

В целом диссертационная работа Симагиной Л.В., представленная на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, является самостоятельно выполненной, законченной научно-исследовательской работой, посвященной актуальным проблемам современной физики. Содержание диссертации соответствует специальности 01.04.18 – кристаллография, физика кристаллов. Диссертация удовлетворяет требованиям ВАК России, предъявляемым к кандидатским диссертациям, а ее автор - Симагина Лилия Викторовна заслуживает присвоения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.18 – кристаллография, физика кристаллов.

Отзыв составил:

Официальный оппонент

Бухараев Анастас Ахметович

Доктор физико-математических-наук, профессор,
заслуженный деятель науки РТ,
член-корр. Академии наук РТ

Главный научный сотрудник,
заведующий лабораторией физики и химии поверхности
ФГБУН Казанский Физико-технического институт им. Е.К. Завойского
КазНЦ РАН
420029, Казань, ул. Сибирский тракт, д. 10/7
Телефон: 843-2319107
Электронная почта: a_bukharaev@kfti.knc.ru

ЗАВЕРЯЮ
ПОДПИСЬ Бухараев
/Зав. канцелярией КФТИ КазНЦ
А.З. Губайдул



26.08.2016