

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.

В диссертации Л.В. Симагиной исследуются процессы создания микро- и субмикронных структур методом сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ) в релаксорных сегнетоэлектрических кристаллах ниобата бария-стронция (SBN) различной степени неупорядоченности, в том числе с добавлением гетеровалентных ионов неодима. Изучаются закономерности роста и релаксации доменов и доменных структур SBN, их температурная динамика, а также влияние УФ-излучения на их распад. Сегнетоэлектрическое переключение изучается на субмикроскопическом уровне и сопоставляется с макроскопическими измерениями поляризации. На записанных доменных структурах в SBN изучается нелинейное преобразование лазерного излучения.

В работе Л.В. Симагиной рассматривается практически весь комплекс проблем нового современного направления исследований, включающего изучение совокупности разнообразных свойств электроупорядоченных материалов, используемых в нелинейной оптике и акустике. Активные исследования формирования периодических доменных структур в оксидных сегнетоэлектриках и их прикладного использования в широком частотном диапазоне для генерации когерентного излучения, для модуляции, умножения частоты, сканирования и прерывания интенсивности оптических пучков являются наиболее важными направлениями исследований. Поэтому актуальность темы, научная и практическая значимость диссертационной работы Л.В. Симагиной не вызывают сомнений.

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов, списка сокращений и списка цитируемой литературы из 100 наименований.

Во введении обоснованы актуальность темы и ее значимость для науки и практики, сформулированы цели и задачи исследования, определена научная новизна результатов исследования, изложены выносимые на защиту научные положения, аргументирована достоверность полученных результатов. Приведена информация об апробации и личном вкладе автора диссертации, публикациях по теме исследования, кратко описаны структура и содержание диссертации.

Первая глава посвящена обзору и анализу литературных данных, отражающих современное состояние исследований по кристаллической структуре, фазовому переходу, механизмам поляризации и доменной структуре сегнетоэлектрических кристаллов SBN, а также изложены принципы нелинейного преобразования излучения на регулярной доменной структуре сегнетоэлектриков. В обзоре отмечается, что статистическое заполнение каналов, характерных для структуры твердых растворов SBN, определяется составом

раствора и обуславливает большое разнообразие физических характеристик кристаллов SBN. Из этого анализа делается вывод о возможности выращивания кристаллов с различными сегнетоэлектрическими свойствами, сопоставительное исследование которых и послужило одной из задач в исследованиях соискателя. Обращается внимание на наличие в кристаллах SBN стабильных и метастабильных состояний, приводящее к нестандартному поведению поляризации в этих кристаллах. Изучение поляризации SBN на субмикроскопическом уровне также стало одной из задач исследований данной работы. Анализ немногочисленных данных о применении метода СЗМ в отношении исследований кристаллов SBN – записи и визуализации доменов – позволил сделать вывод о перспективности использования этого метода для понимания механизма доменообразования и специфики сегнетоэлектрических свойств кристаллов SBN, а также для создания доменных структур заданного дизайна с целью преобразования лазерного излучения.

Вторая глава посвящена описанию экспериментальных методик записи и исследования доменов и доменных ансамблей, измерения петель гистерезиса и релаксации поляризации (набор СЗМ-методов), а также методики изучения преобразования частоты лазерного излучения (метод нелинейной дифракции). Здесь же описаны кристаллы и их подготовка к исследованиям. Для подавления шума полидоменного фона и улучшения оценки остаточной площади при построении кинетических кривых роста и релаксации в работе осуществлялась предварительная поляризация поверхности в поле зонда. Вторая гармоника излучения изучалась в исследованиях нелинейной дифракции излучения фемтосекундного Ti-сапфирового лазера на длине волны 800 нм. Малый размер исследуемых доменных структур (80x80 мкм) создавал трудность для фокусировки волны накачки. Проблема была решена нанесением на кристалл специальных оптически непрозрачных окон определенного размера, хорошо визуализируемых при фокусировке.

Третья глава содержит результаты исследования сегнетоэлектрических свойств кристаллов SBN: процессов переключения в поле зонда СЗМ чистых и легированных кристаллов и доменообразования в них (в режиме микроскопии пьезоотклика с осуществлением многократной записи субмикродоменов). При измерении локальных петель гистерезиса наряду с обнаружением последовательного уменьшения величины коэрцитивного поля в ряду составов SBN-0,61; SBN-Nd и SBN-0,75, впервые была обнаружена зависимость величины коэрцитивного поля кристаллов от длительности импульса поля. Для случая SBN-Nd показано, что при определенных временах выдержки кристалла под полем коэрцитивное поле релаксационного сегнетоэлектрика выходит на квазиравновесное значение, чему в диссертации дается объяснение. При изменении скважности импульсов напряжения, подаваемого на SBN при измерении петель гистерезиса, впервые было обнаружено уменьшение измеряемого сигнала пьезоэлектрического отклика с ростом интервала между полевыми импульсами. Обнаружено, что величина сигнала перестает зависеть от скважности при длительности импульса 1000 мс. При изучении кинетических характеристик записи субмикродоменов в поле зонда в работе отмечено

медленное боковое движение доменной стенки в SBN в полях, существенно меньших коэрцитивных, что представляет специфику динамики доменов в релаксорном сегнетоэлектрике. В работе также впервые показано, что в условиях пространственно неоднородного поля СЗМ по мере удаления доменной стенки SBN от точки контакта с зондом происходит трансформация механизма ее латерального (бокового) движения.

Результаты исследования релаксации субмикронных и микродоменных структур представлены в четвертой главе. Одним из важнейших условий применения этих структур является их устойчивость, которая изучалась в работе по изменению во времени площади доменов или сигнала пьезоэлектрического отклика доменов, записанных при разных экспозиционных параметрах, после выключения постоянного поля. Показано, что в допированных образцах экранирование поляризации реализуется более эффективно, в связи с чем для одиночных доменов в них характерны более высокие значения времен распада. Исследования записи структур различной геометрической формы и дискретности обнаружили эффект «слипания» доменов, т.е. их способность к «коалесценции», что, как полагает автор, является спецификой записи доменов в SBN и иллюстрирует гибкость материала для получения доменных структур произвольной конфигурации. Показано, что стабильность структуры тем выше, чем выше ее размерность, а с переходом размера домена из субмикро- на микроуровень поверхностная плотность доменных границ в расчете на домен сильно падает, что сопровождается значительным увеличением устойчивости записанного домена. Температурная стабильность микродоменных структур в SBN отличается от поведения модельных сегнетоэлектриков таким образом, что в SBN как релаксорном сегнетоэлектрике поляризация не исчезает даже при нагреве до температур много выше фазового перехода. Этот эффект связывается в работе с существованием пространственных флуктуаций случайных полей в структуре релаксора вплоть до очень высоких температур. Кроме того, в диссертационной работе обнаружены различия в кинетике распада доменов разных знаков при освещении УФ-излучением, объясняемые автором различием глубин доменов в зависимости от знака.

Пятая глава представляет результаты исследования преобразования частоты лазерного излучения на микроскопических полосчатых доменных структурах, созданных в поле зонда СЗМ на кристалле SBN-0,61. Исследовались 2D-микродоменные ансамбли в виде доменных решеток с периодом, соответствующим удвоению частоты Ti-сапфирового лазера на длине волны $\lambda = 800$ нм. Методом нелинейной дифракции (по типу Брэгга) в геометрии на отражение впервые на тонких регулярных доменных структурах была получена генерация второй гармоники. В работе впервые показана возможность исследования приповерхностной сегнетоэлектрической доменной структуры методом так называемой «нелинейной микроскопии».

Таким образом, в диссертационной работе Симагиной Л.В. впервые получена генерация второй гармоники лазерного излучения на микродоменной решетке, созданной (с периодом 3,64 мкм) на поверхности кристалла SBN в поле

СЗМ-зонда, успешно апробирован метод СЗМ для конструирования таких регулярных доменных структур и предложен метод исследования нелинейного преобразования частоты лазерного излучения в таких планарных (тонких) периодических системах.

К несомненным достоинствам диссертационной работы Л.В. Симагиной следует отнести ее целостность и законченность. Это комплексное исследование проблем, включающих создание периодических поляризованных структур для задач нелинейной оптики, изучение их динамики, разработка методов управления параметрами нано- и микродоменных структур, исследование их стабильности и, наконец, иллюстрация их нелинейных свойств в виде генерации второй гармоники. Также к достоинствам работы следует отнести использование автором большого количества новейших методов исследования интересующих автора структур, которые нашли подробное описание и обсуждение в работе.

Наиболее интересными и важными результатами диссертационной работы, на мой взгляд, являются следующие:

1. Впервые показана возможность расширения диапазона частот генерируемого когерентного излучения с помощью созданных в поле зонда СЗМ в кристаллах SBN планарных микродоменных структур. Показано, что эти структуры являются нелинейными дифракционными решетками, способными преобразовать излучение фемтосекундного Ti-сапфирового лазера с длиной волны 800 нм в излучение на длине волны 400 нм в условиях квазисинхронизма в неколлинеарной геометрии.

2. Впервые визуализированы процессы перестройки доменных структур под действием УФ-излучения и показано, что излучение стабилизирует домены одного знака и ускоряет распад доменов другого знака. Автор объясняет наблюдаемые эффекты различием в прорастании вглубь кристалла доменов в зависимости от знака при их формировании методом СЗМ в легированном кристалле в силу его униполярности.

3. Обнаружены фундаментальные отличия температурной динамики микродоменов в SBN, заключающиеся в их более высокой устойчивости к отжигу при температурах, существенно превышающих температуру фазового перехода.

4. Впервые выявлены особенности переключения SBN как релаксорного сегнетоэлектрика: низкочастотная дисперсия коэрцитивных полей; временная специфика эффекта обратного переключения, связанная с пиннингом доменных стенок; медленный термоактивационный характер разрастания доменов в SBN с выходом на уровень насыщения, определяемый величиной приложенного поля, с изменением механизма движения стенки в поле, равном половине коэрцитивного.

Достоверность и качество результатов диссертационной работы обеспечиваются применением автором современного оборудования, сертифицированного в соответствии с российскими и международными стандартами. Достоверность результатов также подтверждается: большим объемом экспериментальных данных, полученных с использованием широкого

набора методик; квалифицированным анализом изучаемых явлений, сделанным на основе разумных физических представлений; хорошим совпадением полученных результатов с данными других методик. Для записи доменов и их визуализации автор использовала прецизионные методы сканирующей зондовой микроскопии и неразрушающие методы микроскопии пьезоотклика с высоким пространственным разрешением, которые также использовались для измерения локальных петель гистерезиса путем приложения цуга импульсов меняющейся амплитуды, длительности импульса и их скважности. Метод нелинейной дифракции был выбран для изучения преобразования лазерного излучения, а сложность в исследовании структуры небольшой глубины по сравнению с толщиной образца была решена путем реализации эксперимента в геометрии на отражение.

Научная новизна работы определяется, прежде всего, тем, что большинство результатов получены в диссертации впервые, а, значит, они вносят вклад в дальнейшее развитие этого направления исследований. Самым важным следствием данной работы можно считать, что сделан большой шаг вперед в направлении дизайна доменных структур заданной геометрии и размерности.

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в 5-ти статьях в рецензируемых научных изданиях и доложены на более, чем 15 отечественных и международных конференциях.

Диссертационная работа выполнена на высоком экспериментальном уровне, прекрасно написана и оформлена. Замечательная особенность работы состоит в том, что автор при обсуждении результатов говорит не только о положительных сторонах полученных результатов, но и обсуждает вопросы, оставшиеся открытыми в рамках проведенных исследований, как то: воздействие УФ-излучения на домены различной глубины, преобразование лазерного излучения на структурах субмикронного масштаба, влияние других редкоземельных металлов на свойства SBN. В связи с этим, поднятые автором в диссертации научные вопросы открывают широкие перспективы для их дальнейших экспериментальных исследований.

К недостаткам, или скорее, пожеланиям в диссертационной работе можно отнести, на мой взгляд:

- 1) хотелось бы видеть результаты исследований температурной динамики интенсивности второй гармоники и ее связи с фазовым переходом;
- 2) недостаточно четко сформулированные выводы, когда главный полученный результат прячется за описанием тех способов или методик, которыми он получен, несмотря на то, что это описание уже присутствует в соответствующих главах.

Однако, эти замечания являются скорее пожеланиями к дальнейшей работе автора и ни в коей мере не снижают достоинств работы, которая выполнена на высоком научном уровне.

Диссертация Симагиной Л.В. является самостоятельно выполненной, законченной научно-исследовательской работой, посвященной актуальным проблемам. Содержание диссертации Симагиной Лилии Викторовны соответствует специальности 01.04.18 – кристаллография, физика кристаллов. По актуальности, научной новизне и практической значимости выполненной работы диссертация отвечает требованиям ВАК РФ, а ее автор — Симагина Лилия Викторовна — заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.18.

Отзыв составил:

Официальный оппонент

Овчинникова Галина Ивановна,

кандидат физико-математических наук

Старший научный сотрудник кафедры фотоники и физики микроволн
физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова

119991, г. Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2, ГСП-1, МГУ им. М.В. Ломоносова

Телефон 495 9391669

Электронная почта: gio@physics.msu.ru

Подпись официального оппонента Г.И. Овчинниковой заверяю

Декан физического факультета
МГУ им. М.В. Ломоносова
профессор



Н.Н. Сысоев

05.09.2016