

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук Лукьянцева Дениса Сергеевича на тему: «Метод контролируемого формирования наноструктурированных металл-оксидных пленок» по специальности 1.3.5. Физическая электроника

Актуальность диссертационной работы

Тонкие и ультратонкие слои различных материалов все чаще становятся важными и зачастую ключевыми элементами микро- и наноразмерных устройств и систем. Управляемая модификация с одновременной неразрушающей диагностикой их состава и структуры становятся все более актуальным направлением исследований.

Диссертация находится в русле этого направления исследований и посвящена разработке методов формирования наноструктурированных металл-оксидных пленок и их исследованию с применением рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС). Работа является актуальной также в связи с широким применением металл-оксидных тонких пленок в современных технологиях, ориентированных на электронику, сенсорику, энергетику и биомедицину.

Особое внимание уделено исследованию оксидов ниобия, которые перспективны для создания мемристивных устройств – ключевых компонентов нейроморфных вычислительных систем. Эффективное использование таких пленок требует разработки способов точного управления их химическим составом. Одним из перспективных способов изменения химического состава пленки является ионное облучение: оптимальный выбор параметров облучения аргоновым пучком позволяет изменять свойства пленок за счёт управления их химическим составом. В связи с этим возрастает потребность также в неразрушающих методах диагностики, способных определять химический состав с субнанометровой точностью. В этом контексте предложенные в диссертации методы управляемого формирования, модификации и диагностики

металл-оксидных пленок представляют собой важный вклад в развитие материаловедения и нанотехнологий.

Структура и содержание диссертационной работы

Диссертация состоит введения, четырёх глав, заключения, публикаций автора по теме диссертации, благодарности и списка литературы. Работа изложена на 152 страницах печатного текста и содержит 57 рисунков, 7 таблиц и списка литературы, состоящего из 215 наименований.

В первой главе представлен аналитический обзор современного состояния исследований, посвященных созданию, модификации и анализу неоднородных ультратонких металлических и металл-оксидных пленок. Особое внимание уделяется применению рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии для послойного химического и фазового анализа неоднородных ультратонких пленок.

Вторая глава посвящена развитию метода послойного химического фазового анализа ультратонких пленок, который основан на плоскопараллельной модели мишени. В этой главе представлен многоэтапный алгоритм послойного химического фазового анализа, включающий решение ряда задач: вычитание фона многократно неупругорассеянных фотоэлектронов, разложение фотоэлектронного спектра на парциальные пики с оценкой химического сдвига методом функционала электронной плотности, расчет толщин слоев по аналитической формуле, расчет послойного профиля при различных углах зондирования. Показано, что в результате применения данного алгоритма становится возможным достичь субнанометровую точность при послойном анализе поверхности.

Третья глава посвящена созданию метода послойного химического фазового анализа для неоднородных пленок с наноструктурированной поверхностью. Этот метод основан на использовании рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением и решении уравнения переноса фотоэлектронов в приближении «прямо-вперед». В данной главе рассматриваются различные методы моделирования энергетических спектров фото-

электронов для мишеней с периодическими и стохастическими наноструктурами. Особое внимание уделяется эффектам шероховатости и затенения поверхности. Предложены алгоритмы для расчёта функции фотоэлектронной эмиссии, в том числе для модели мишени с неоднородной поверхностью, которая описывается нормальным (Гауссовым) распределением. Показано, что учёт наноразмерных неоднородностей значительно влияет на результаты послойного анализа. Представлен численный метод послойного анализа неоднородных плёнок с наноструктурированной поверхностью, позволяющий определить химический фазовый состав по глубине, а также параметры наноструктурированного поверхностного слоя, такие как средняя и максимальная толщины и дисперсию толщин слоя. Результаты анализа плёнок с наноструктурированной поверхностью, полученных разработанным методом, были проверены и подтверждены с помощью атомно-силовой микроскопии (АСМ).

Четвертая глава посвящена разработке метода формирования неоднородных металл-оксидных плёнок. Этот метод включает в себя несколько этапов облучения ионами аргона и кратковременного атмосферного окисления с одновременным контролем изменения послойного химического и фазового состава плёнок с субнанометровой точностью. Для этого используются методы, описанные во второй и третьей главах.

Выбор аргона обусловлен тем, что он не вступает в химические реакции с кислородом и металлами. Расчёты глубины проникновения аргона и коэффициентов распыления, выполненные с использованием программы TRIM, показали возможность формирования изменённого слоя порядка одного нанометра при воздействии ионов с энергией 500 эВ при скользящих углах падения. Были определены два наиболее предпочтительных режима воздействия, обеспечивающих «послойную» модификацию плёнки и сглаживание шероховатости поверхности: режим модифицирования и режим распыления. В первом случае происходит выборочное обеднение оксидных слоёв кислородом без значительного изменения их толщины, во втором — эффективное уменьшение толщины плёнки. Комбинация режимов распыления,

модификации, кратковременного атмосферного окисления и контроля послойного химического фазового состава с субнанометровой точностью открывает широкие возможности для создания разнообразных гетерогенных структур. В данной главе приведены примеры сформированных неоднородных многослойных металл-оксидных пленок.

Диссертационная работа написана понятным языком, соответствует установленным правилам научного цитирования, материал изложен последовательно с учётом поставленных в работе целей и задач.

Новизна полученных результатов.

Среди новых результатов, полученных в диссертационной работе, хотелось бы выделить следующие:

- Разработан и реализован алгоритм послойного химического фазового анализа ультратонких металл-оксидных пленок с субнанометровой точностью.
- Впервые предложена аналитическая модель фотоэлектронной эмиссии от слоисто-неоднородной пленки с наноструктурированной поверхностью.
- Разработан численный метод расчета спектров РФЭС для сложных неоднородных систем.
- Оптимизированы режимы ионного облучения пленок для их целенаправленной модификации.
- Впервые предложен метод управляемого формирования неоднородных многослойных пленок путем чередования облучения и окисления.

Степень обоснованности и достоверности полученных положений, основных результатов и выводов обеспечена строгостью и корректностью математических доказательств и рассуждений, поддерживается использованием современных экспериментальных методов анализа вещества (рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением, атомно-силовой микроскопии), а также отсутствием противоречий с литературными данными в тех случаях, когда такие имеются.

Практическая значимость результатов.

В диссертационной работе Лукьянцева Д.С. предложен метод управляемого формирования наноструктурированных металл-оксидных пленок при контроле их химического состава с помощью рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии с угловым разрешением. Его применение открывает дополнительные возможности оптимизации параметров пленок для обеспечения стабильной работы нанoeлектронных устройств, созданных на их основе. Метод может быть использован для создания разнообразных гетерогенных наноструктур с помощью различных ионно-плазменных технологий.

Полученные результаты о влиянии ионного облучения и атмосферного окисления на послойный химический фазовый состав металл-оксидных пленок уточняют представления о стадиях формирования различных оксидных структур и важны для прогнозирования и контроля процессов их модификации.

Предложенный метод послойного химического фазового анализа наноструктурированных поверхностей твердых тел с субнанометровым разрешением обладает значительным потенциалом для исследования тонкопленочных функциональных покрытий. Он также крайне полезен для исследования состава и структуры тонких приповерхностных слоев функциональных элементов современных наноразмерных структур и устройств, включая квантовые.

Апробация работы.

Все результаты, представленные в диссертации, докладывались на 20 международных и всероссийских конференциях, опубликованы в 5 статьях в рецензируемых журналах, индексируемых RSCI/Web of Science/Scopus, 8 статьях в сборниках конференций, индексируемых Scopus, 2 свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ.

Содержание автореферата раскрывает основные результаты и выводы диссертации, соответствует перечню опубликованных работ. Материал автореферата позволяет раскрыть главные достоинства работы.

Диссертация соответствует специальности 1.3.5. «Физическая электроника», а именно следующим ее направлениям: «изучение физических основ плазменных и пучковых технологий, в том числе модификации свойств поверхности, нанесение тонких пленок и пленочных структур»; «эмиссионная электроника, включая процессы на поверхности, определяющие явления эмиссии, эмиссионную спектроскопию и все виды эмиссии заряженных частиц».

Вопросы и замечания по работе.

1. В работе представлены результаты послойного химического анализа ультратонких плёнок с субнанометровой точностью. Однако отсутствует сравнение полученных данных с результатами, полученными другими методами анализа.
2. На рис. 3.21 представлена зависимость плотности вероятности пройденного фотоэлектронами расстояния в поверхностном слое при различных углах их вылета. В тексте на стр. 102 указано, что данная зависимость получена «...на основе экспериментального трёхмерного АСМ-изображения поверхности (рисунок 3.20)». Следует пояснить, каким образом были рассчитаны кривые для различных углов вылета фотоэлектронов.
3. В работе рассмотрены в основном пленки на основе оксидов ниобия. Возможна ли экстраполяция предложенных методов на другие металлоксидные системы?
4. Какой вклад вносит конкретный механизм фотоэлектронной эмиссии в погрешность при определении химического состава шероховатых пленок?
5. Насколько стабилен химический состав пленок после длительной эксплуатации мемристивных структур?

Однако, указанные замечания не умаляют значимости диссертационного исследования. В целом, по объёму представленного материала, научной новизне, фундаментальности и достоверности результатов, обоснованности

защищаемых положений, практической значимости диссертация Лукьянцева Дениса Сергеевич «Метод контролируемого формирования наноструктурированных металл-оксидных пленок» отвечает требованиям, установленным Положением о присуждении ученых степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова.

Считаю, что соискатель Лукьянцев Денис Сергеевич заслуживает присуждения учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.5. Физическая электроника.

Официальный оппонент:

доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории «Криоэлектроника», Кафедра физики полупроводников и криоэлектроники, Отделение физики твёрдого тела, Физический факультет, МГУ имени М.В. Ломоносова

Крупенин Владимир Александрович

Контактные данные:

тел.: +7(495)939-30-14, e-mail: krupenin@phys.msu.ru

Специальность, по которой официальным оппонентом защищена диссертация: 01.04.04 - Физическая электроника.

Адрес места работы: 119991, ГСП-1, Москва, Ленинские горы, дом 1, строение 2.

Подпись Крупенина В.А. удостоверяю.