



Минобрнауки России
Федеральное государственное
бюджетное научное учреждение
«Федеральный исследовательский центр
Институт прикладной физики
им. А.В. Гапонова-Грехова
Российской академии наук»
(ИПФ РАН)

Ульянова ул., 46, Бокс-120, Нижний Новгород, 603950

Тел. (831) 436-62-02

Факс (831) 416-06-16

E-mail: dir@ipfran.ru

http://www.ipfran.ru

ОКПО 04683326, ОГРН 1025203020193,

ИНН/ КПП 5260003387/526001001

УТВЕРЖДАЮ

Директор ИПФ РАН

академик

Г.Г.Денисов

«2» мая 2024 г.

_____ № _____
На № _____ от _____



ОТЗЫВ ВЕДУЩЕЙ ОРГАНИЗАЦИИ

на диссертацию Европейцева Евгения Андреевича

«Кинетика экситонной фотолюминесценции в квантовых ямах в системе (Al,Ga,In)N»,

представленную на соискание степени кандидата физико-математических наук

по специальности 1.3.11 – «физика полупроводников»

Диссертационная работа Европейцева Евгения Андреевича посвящена исследованию экситонной люминесценции в гетероструктурах с квантовыми ямами на основе нитридов металлов III группы.

Актуальность темы исследований

В настоящее время разработка светоизлучающих устройств на основе A3-нитридных (A3N) соединений в системе (Al, Ga, In)N является активно развивающимся направлением оптоэлектроники. Ширина запрещённой зоны этих соединений может варьироваться в широком диапазоне в зависимости от состава, что позволяет изготавливать на их основе источники излучения различных длин волн, включая видимый и УФ диапазоны. В настоящее время синие светодиоды с активной областью на основе квантовых ям (КЯ) InGaN/GaN широко используются в источниках освещения и LED-дисплеях. Однако светодиоды, излучающие в ультрафиолетовом (УФ) диапазоне по-прежнему обладают низкой внешней квантовой эффективностью, что ограничивает возможность их практического применения. Помочь в решении этой задачи могут результаты детальных исследований фотолюминесценции (ФЛ) A3-нитридных структур с КЯ, приведенные в диссертации Е.А. Европейцева.

В диссертационной работе Е.А. Европейцева исследуются излучательные свойства трёх типов структур: 1) КЯ GaN/AlN толщиной от 1 до 4 монослоёв; 2) более толстых КЯ

на основе AlGaIn; 3) микроколонок типа ядро-оболочка с неполярными, полуполярными и полярными квантовыми ямами InGaIn/GaIn, расположенными на различных гранях микроколонок. Первые два типа структур представляют интерес как источники света в среднем УФ диапазоне и могут найти применение в экологии, медицине, науке и промышленности. Микроколонки с квантовыми ямами InGaIn/GaIn различной полярности имеют потенциал для создания на их основе монолитных белых светодиодов и цветных дисплеев высокого разрешения.

На внутренний квантовый выход излучения исследуемых структур влияет ряд факторов, включая квантово-размерный эффект Штарка, особенно сильный в КЯ, выращенных в направлении [0001], наличие светлых и тёмных экситонных состояний, а также характер локализации носителей на неоднородностях потенциала КЯ. Используемые в работе подходы и методы (спектроскопия стационарной и время-разрешённой ФЛ, а также микрофотолюминесценции (микро-ФЛ)) позволили выявить степень влияния этих факторов на излучательные свойства нитридных структур, что, несомненно, имеет важное прикладное и фундаментальное значение и обуславливает актуальность диссертационной работы.

Структура диссертации

Диссертация включает в себя введение, пять глав и заключение.

Во введении приведена общая характеристика работы, обоснована актуальность темы, сформулирована цель работы и поставленные в ней задачи, изложена научная новизна и практическая значимость работы, сформулированы основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе представлены общие сведения о структуре энергетических зон и особенностях фотолюминесценции объёмных полупроводников AlN, GaN, InGaIn, а также гетероструктур на их основе. Отдельное внимание уделено температурным зависимостям радиационного времени жизни экситонов в КЯ с учётом энергетического расщепления между тёмными и светлыми экситонами, которое возникает в результате электрон-дырочного короткодействующего обменного взаимодействия.

Вторая глава преимущественно посвящена описанию основных методов исследования оптических свойств структур, развиваемых и применяемых в ходе работы над диссертацией, а также описанию исследуемых образцов, методов их изготовления и результатов исследования их структурных свойств.

В третьей главе представлены результаты экспериментальных исследований кинетики ФЛ ультратонких КЯ GaIn/AlN, а также ФЛ нанокколонок диаметром до 50-60 нм, формируемых методами фотолитографии и травления из исходных планарных структур. Обнаружено необычное увеличение скорости излучательной рекомбинации с ростом температуры, которое было объяснено большой величиной синглет-триплетного расщепления между тёмными и лежащими выше по энергии светлыми экситонами. В результате анализа экспериментальных данных была определена величина этого энергетического расщепления. В наноколонках с КЯ GaIn/AlN были обнаружены спектрально узкие (менее 1 мэВ) линии ФЛ, часть из которых по результатам исследования температурных и временных зависимостей была отнесена к светлым, а другая часть – к тёмным экситонным состояниям. Синхронное изменение интенсивностей пары линий (возгорание одной и гашение другой) с ростом температуры свидетельствует о наблюдении серии темных и светлых состояний, присущих одному экситону, локализованному на неоднородностях толщины КЯ.

В четвёртой главе приведены рассчитанные значения энергии связи экситона и энергии активации экситона из AlGaN КЯ в зависимости от ее параметров, таких как толщина и составы слоёв. В результате расчётов были выбраны параметры КЯ для экспериментальной реализации, при которых ожидается стабильность экситонов при комнатной температуре и высокий внутренний квантовый выход ФЛ с длиной волны менее 300 нм. Исследования излучательных свойств выращенных по предложенному дизайну КЯ подтвердили соответствие с теоретическими прогнозами.

Пятая глава посвящена исследованию излучательных свойств микроколонок типа ядро-оболочка с КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$. С помощью ряда методов, включая микро-ФЛ и просвечивающую электронную микроскопию (ПЭМ), были идентифицированы полосы ФЛ неполярных, полуполярных и полярных КЯ. Обнаружены свидетельства локализации носителей на различного рода дефектах, неоднородностях толщины и состава КЯ. Для КЯ различной полярности выявлены различия в зависимостях спектра ФЛ от мощности накачки, а также в кинетике затухания ФЛ. С учётом выявленных различий были идентифицированы полосы ФЛ микроколонок с различным содержанием индия в КЯ, излучающих в ближнем УФ, синем и зелёном диапазонах длин волн.

В Заключение обобщены результаты работы.

Соответствие содержания диссертации специальности

Диссертация полностью соответствует специальности 1.3.11 – «физика полупроводников», а именно пунктам 7 – «Оптические и фотоэлектрические явления в полупроводниках и в композиционных полупроводниковых структурах», 8 – «Спонтанная и стимулированная люминесценция в полупроводниковых материалах и композитных структурах, полупроводниковые лазеры и светоизлучающие устройства», 13 – «Транспортные и оптические явления в структурах пониженной размерности».

Новизна исследований и полученных результатов

Наиболее важными среди новых результатов, полученных в диссертационной работе Европейцева Е.А., являются следующие:

1. Впервые экспериментально определено значение синглет-триплетного расщепления экситонов в квантовой яме GaN/AlN, составившее от 10 до 42 мэВ при уменьшении толщины КЯ с 4 до 1 нм.
2. Формирование нанокколонок на основе планарных структур с квантовыми ямами GaN/AlN позволило кардинально сократить поверхностную плотность локализуемых центров для экситонов. В результате впервые были экспериментально наблюдаемы линии (с шириной не более 0.6 мэВ при 5К) «темных» и «светлых» экситонных состояний из серии одного экситона, локализованного на флуктуациях потенциала атомарно-тонких КЯ GaN/AlN.
3. На основе расчётов была проведена оптимизация параметров структур с квантовыми ямами $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{Al}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$, при которых при комнатной температуре в диапазоне длин волн 260-330 нм достигается внутренний квантовый выход ФЛ более 75%. Для оптимизированной структуры с КЯ $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}/\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{N}$ толщиной 1.4 нм экспериментально продемонстрирован внутренний квантовый выход ФЛ ~ 80% при комнатной температуре.
4. Методами спектроскопии микро-ФЛ и время-разрешённой ФЛ проведена интерпретация спектров излучения микроколонок GaN типа ядро-оболочка, содержащих неполярные, полуполярные и полярные КЯ InGaN/GaN.

Практическая значимость полученных результатов

Практическая значимость работы заключается в исследовании возможности создания эффективных источников света на основе нитридов УФ и видимом диапазонах. В зависимости от необходимой длины волны источника рассматриваются разные дизайны структур – для более коротких длин волн 230 – 280 нм предлагаются структуры с ультратонкими КЯ GaN/AlN; для более длинноволновых источников 260 – 330 нм оптимизируются параметры КЯ $Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N$ и демонстрируется их высокая эффективность. Для формирования широкополосных источников белого света предлагается использовать микроколонки типа ядро-оболочка с КЯ InGaN/GaN. Благодаря граням различной полярности квантовые ямы InGaN/GaN, сформированные на них обладают различными спектральными и другими характеристиками, которые и исследуются в настоящей работе.

Рекомендации для использования результатов и выводов

Результаты диссертационной работы могут быть рекомендованы к использованию в научных и образовательных организациях, проводящих исследования в области физики полупроводников и физики конденсированных сред, например, МГУ, СПбГУ, ИФП СО РАН, ИФМ РАН, ННГУ, ИФТТ РАН и других организациях. Также выводы диссертации необходимо учитывать при разработке источников излучения на основе нитридов металлов III группы.

Достоверность основных результатов и выводов

Достоверность результатов подтверждается их внутренней согласованностью и повторяемостью при проведении дополнительных измерений, соответствием между экспериментальными данными и теоретическими расчётами, близостью номинальных параметров исследуемых гетероструктур к результатам исследования просвечивающей электронной микроскопии, а также использованием современного оборудования для исследования оптических свойств, позволяющего измерять спектры ФЛ с высоким пространственным и временным разрешением в видимом и УФ спектральных диапазонах. Основные результаты диссертационной работы были опубликованы в ведущих международных и российских журналах за 2016 – 2023 гг. и докладывались на многочисленных международных и отечественных конференциях.

По диссертации имеются следующие вопросы и замечания:

1. В первом пункте научной новизны диссертации указывается, что «..КЯ GaN/AlN... наибольший внутренний квантовый выход ФЛ при комнатной температуре – 75% - наблюдается на длине волны ~ 235-240 нм в ямах толщиной 1-1.5 нм.» Однако, в тексте диссертации величина 75% не возникает. На рисунке 3.7а показана зависимость внутреннего квантового выхода для КЯ GaN/AlN разной толщины. К сожалению, расчёт этой величины в тексте диссертации не приведён, хотя подробно рассматривается неприменимость определения внутреннего квантового выхода по соотношению интенсивностей ФЛ при комнатной температуре и низких температурах (формулы 1.17) для сверхтонких ям GaN/AlN.
2. В Главе 3 для расчёта эффективного времени излучения используется равновесное («Больцмановское») распределение экситонов по уровням (формула 3.9). Однако в диссертации не обосновывается обоснованность использования данного приближения в реализуемых в эксперименте неравновесных условиях.

3. В Главе 3 для описания безызлучательной рекомбинации феноменологически вводится энергетический уровень (стр. 67), единственным параметром которого является его энергетическое положение. Однако для модельных расчётов кроме значения энергии уровня необходимо также знать скорость (или время) безызлучательной рекомбинации, которая в работе не приведена.

4. Уравнения, описывающие экспериментальные данные на рис. 3.11, содержат значительное число подгоночных параметров. Насколько достоверны численные оценки, сделанные на основе такой «подгонки», в частности отношение $\Gamma_A/\Gamma_{AF} \sim 1/22$, расщепление между светлыми и тёмными экситонами 61мэВ, которое существенно выше 42мэВ, указанных для 1МС КЯ GaN на стр. 68 и т.д.

5. В Главе 4 для оценки внутренней квантовой эффективности КЯ $Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N$ по формуле (4.1) был взят предэкспоненциальный фактор из работы [107], полученный для квантовых ям GaN/ $Al_{0.1}Ga_{0.9}N$, выращенных на подложках GaN. Насколько обосновано использование данного значения предэкспоненциального фактора в диссертации не поясняется.

6. Очевидно, что экспериментально полученная для 300К высокая внутренняя квантовая эффективность в 80% для квантовых ям $Al_{0.4}Ga_{0.6}N/Al_{0.7}Ga_{0.3}N$ толщиной 1.4нм при подбарьерном возбуждении связана с высокой степенью локализации экситонов в квантовой яме при комнатной температуре. Согласно диссертации в исследованных структурах даже при 300К подавлены как активация экситонов в барьер, так и движение экситонов в плоскости квантовой яме к дефектам. Но, к сожалению, величины и масштабы флуктуаций потенциала, приводящих к «латеральной» локализации, в диссертации не обсуждаются.

7. В диссертации мало данных об исследованиях структурного совершенства квантовых ям как GaN/AlN, так и $Al_xGa_{1-x}N/Al_yGa_{1-y}N$, хотя локальные изображения ПЭМ и говорят о высоком качестве образцов. В частности, рентгеноструктурный анализ позволил бы оценить плотность прорастающих дислокаций, которые в значительной степени определяют масштабы необходимой локализации экситонов для получения высокого внутреннего квантового выхода.

8. В Главе 5 (пункт 5.2) при анализе как спектральных, так и временных характеристик ФЛ КЯ InGaN/GaN разной полярности делается упор на наличие (в полярных), ослабление (в полуполярных) и отсутствие (в неполярных) встроенного поля. Однако, хорошо известно, что вероятность встраивания In при росте на плоскостях разных полярностей может отличаться в разы (см., например, [J. Vac. Sci. Technol. A 30, 041513 (2012)]), что может привести к различию в составе КЯ на разных гранях. Однако состав КЯ на плоскостях разной полярности в диссертации не обсуждается. Также в диссертации указывается на различие в толщинах КЯ (стр. 49) на гранях одной полярности. Влияние указанных выше факторов может усложнить интерпретацию представленных в диссертации экспериментальных данных.

Приведенные замечания не имеют принципиального значения и не влияют на общую высокую оценку диссертационной работы.

Заключение по диссертационной работе.

Диссертационная работа Е.А. Европейцева представляет собой законченное исследование, выполненное на высоком научном уровне, вносящее вклад в понимание

излучательных свойств квантово-размерных гетероструктур на основе нитридов III группы. Автореферат правильно и достаточно полно отражает содержание диссертации.

Доклад, отражающий основные результаты диссертационной работы, был заслушан на семинаре по физике полупроводников Института физики микроструктур РАН 19 апреля 2024 г. На заседании присутствовало 35 человек. На все вопросы, возникшие в процессе обсуждения, были получены исчерпывающие ответы.

Считаем, что диссертационная работа Европейцева Евгения Андреевича «Кинетика экситонной фотолюминесценции в квантовых ямах в системе (Al,Ga,In)N» отвечает всем требованиям, предъявляемым к диссертациям на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.11 – «физика полупроводников» согласно Положению о присуждении учёных степеней в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физико-техническом институте им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, а её автор заслуживает присуждения ему учёной степени кандидата физико-математических наук.

Отзыв составили:

Старший научный сотрудник ИФМ РАН,
к. физ.-мат. н.

Д.Н.Лобанов

директор ИФМ РАН, д.ф.м.н.

А.В. Новиков

Подписи А.В. Новикова и Д.Н. Лобанова заверяю.
Начальник отдела кадров

М.Л.Осипенко