

ОТЗЫВ
официального оппонента о диссертации А.Ф. Цацульникова
«Светоизлучающие III-N гетероструктуры с трехмерной локализацией носителей
заряда», представленной на соискание ученой степени доктора физико-
математических наук по специальности 01.04.10 — физика полупроводников

Актуальность темы. Использование широкозонных A_3 -нитридных полупроводников в оптоэлектронных и электронных устройствах стало впечатляющей успешной историей последних лет. Впервые гетероструктуры InGaN/GaN для лазерных диодов были созданы в 1996 году. С тех пор был достигнут значительный прогресс в технологии изготовления светоизлучающих приборов на диапазон 400 - 460 нм и развернуто их коммерческое производство. Коммерчески доступные источники белого света на основе A_3 -N светодиодов уже превосходили все другие типы ламп по всем основным показателям. Несмотря на значительные успехи, существует ряд фундаментальных проблем, ограничивающих развитие A_3 -N технологии, например, существуют трудности получения InGaN/GaN квантовых ям (КЯ) с высоким содержанием индия и высокой эффективностью люминесценции, что затрудняет создание светодиодов в желтой и красной областях спектра и RGB белых светодиодов с высокими индексами цветопередачи и возможностью динамического управления цветовыми параметрами. В связи с этим диссертационная работа Цацульникова А.Ф., посвященная экспериментальному изучению технологических методов стимулирования или подавления процессов формирования In-обогащенных областей в КЯ и комплексным исследованиям взаимосвязи методов и параметров эпитаксиального роста со структурными и оптическими свойствами гетероструктур InGaN/GaN с локальными In-обогащенными областями и созданию с помощью разработанных методов новых типов гетероструктур для светоизлучающих приборов является безусловно актуальной.

Диссертация состоит из введения, 3 глав, заключения с перечнем основных результатов, списка литературы. Общий объем диссертации 200 страниц, в том числе 9 таблиц, 113 рисунков, списка публикаций по теме диссертации из 51 наименования и списка цитируемой литературы из 126 наименования.

Во введении отражены требуемые признаки квалификационной работы, представленной на соискание ученой степени доктора физико-математических наук - актуальность рассмотренной проблемы, цель работы, задачи и методы исследования, ее научная новизна, практическая значимость, апробация работы и научные положения, выносимые на защиту.

В оригинальной части работы (главы с 1 по 3) автор последовательно развивает технологию получения методом газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (ГФЭ МОС) гетероструктур с квантовыми ямами и квантовыми точками на основе материалов InGaAlN, рассматривает способы роста активных областей

гетероструктур для светоизлучающих приборов, конструкции и электронные процессы в гетероструктурах для монохромных и белых светоизлучающих приборов.

В первой главе исследуются способы получения однородных КЯ и КЯ с областями, намеренно обогащенными индием. Области, обогащенные индием, формируются в результате фазового распада тройного твердого раствора нитрида галлия- нитрида индия, который является термодинамически нестабильным. В работе исследованы условия эпитаксиального роста, позволяющие управлять процессом распада, акцент сделан на исследовании влияния легко контролируемых, но достаточно малоизученных технологических параметров, таких как атмосфера и давление в реакторе, периодическое изменение температуры подложки. Изучено влияние состава газовой атмосферы в реакторе на структурные свойства InGaN/GaN гетероструктур, показано, что кратковременная выдержка слоя InGaN в азот-водородной атмосфере (прерывание роста) позволяет изменять микроструктуру КЯ InGaN, трансформируя ее в массив островков с латеральными размерами в десятки нанометров. Ключевым фактором здесь является добавление водорода, в атмосфере которого InGaN нестабилен, и поэтому атмосфера чистого водорода не используется при росте высококачественных КЯ InGaN для активных областей светоизлучающих приборов методом ГФЭ МОС. Однако, проведенные исследования показали, что небольшая добавка водорода в азотную атмосферу реактора позволяет модифицировать структуру КЯ InGaN не приводя к декомпозиции InGaN. Исследования показали, что при низком содержании индия в КЯ InGaN (около 1%), излучающих в УФ диапазоне, прерывание роста приводит к удалению избытка атомов индия с поверхности, улучшая структурное качество КЯ, но не нарушает сплошность КЯ. В случае КЯ InGaN с большим содержанием индия (около 15-20%), соответствующим излучению в синем диапазоне, прерывание роста при определенных условиях роста приводит к трансформации сплошной КЯ InGaN в массив изолированных островков. При этом смещения длины волны излучения КЯ практически не происходит, а внешняя квантовая эффективность излучения (ВКЭ) значительно возрастает. В случае КЯ InGaN с высоким содержанием индия, излучающих в желто-зеленом диапазоне, с помощью прерываний роста можно трансформировать сплошную КЯ в изолированные островки. При увеличении давления несущего газа эффект прерывания роста усиливается, хотя само по себе увеличение давления не приводит к формированию островков. В диссертации также продемонстрирована возможность улучшения однородности распределения индия в КЯ InGaN, добавляя водорода в азот непосредственно при росте КЯ и понижая давление газа. Кроме того, в этой главе исследован способ формирования множественных КЯ путем периодического изменения температуры роста, а не обычным путем модуляции потока индия. Этот метод позволяет улучшить структурные и люминесцентные свойства КЯ за счет роста барьеров GaN при более высоких температурах. Пространственное

распределение индия в КЯ тщательно исследовано методами электронной микроскопии высокого разрешения и люминесценции с временным разрешением, показано, что предложенные ростовые приемы позволяют трансформировать сплошную КЯ в массив изолированных островков с латеральными размерами от единиц до десятков нанометров. В гетероструктурах с активной областью на основе КЯ InGaN, содержащих In-обогащенные области размеров единицы нанометров, продемонстрирован высокий коэффициент усиления света, что позволяет использовать их для создания торцевых и поверхностно-излучающих лазеров.

Во второй главе рассмотрены способы получения различных типов низкоразмерных гетероструктур InGaN/(Al,Ga)N. Первый тип гетероструктур с короткопериодными сверхрешетками InGaN/GaN был получен с помощью периодических прерываний роста слоя InGaN, во время которого происходило удаление атомов In из приповерхностного слоя и формирование слоев GaN толщиной примерно 1 нм. Вторым типом гетероструктур с КЯ InGaN малого состава был получен, используя субмонослойное нанесение InGaN на поверхность GaN. В третьем типе гетероструктур свойства КЯ InGaN модифицировались, при наращивании КЯ InGaN слоями InGaN с меньшим содержанием индия, а также за счет использования широкозонных барьеров AlGaN. В четвертом типе гетероструктур тонкий слой InGaN осаждался на поверхность стрессоров, сформированных с использованием широкозонного InAlN. За счет неоднородных упругих напряжений в слое InAlN в КЯ InGaN создавалось неоднородное распределение атомов, что приводило к формированию локальных In-обогащенных областей. Были исследованы способы задания структурных параметров островков в слое InAlN, которые определяют формирование массива изолированных островков в последующем слое InGaN. Было установлено, что рост InAlN начинается с образования сплошного слоя AlN толщиной несколько нанометров (2-4 нм), который затем трансформируется в массив островков InAlN, которые имеют сложную структуру, представляя собой, по сути, последовательность областей AlN-InAlN-AlN. В пятом варианте гетероструктур области с трехмерной локализацией носителей заряда в КЯ InGaN задавались локальными ямками травления, *in-situ* сформированными в нижележащей AlN/GaN структуре. В таких КЯ формирование областей локализации с большим содержанием атомов индия позволяет существенно увеличить длину волны излучения при невысоком среднем содержании индия. Разработанные гетероструктуры были тщательно исследованы в том числе методами микрофотолюминесценции и фотолюминесценции ближнего поля в магнитном поле, что позволило определить условия получения гетероструктур с требуемыми структурными и люминесцентными свойствами.

Во третьей главе приведены результаты исследований применимости разработанных в диссертации подходов для создания светодиодных структур. Показано, что комбинированное использование короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN и КЯ

InGaN, трансформированных в массив островков, позволяет создавать новые конструкции активных областей светодиодных структур, расширять спектральный диапазон их излучения и создавать светодиодные структуры с активной областью, содержащей несколько КЯ InGaN, излучающих при различных длинах волн. Совместно с итальянскими коллегами было показано, что транспорт носителей заряда в структурах, содержащих островки InGaN, осуществляется между островками в GaN матрице, инжекция носителей в островки происходит, в основном, через их края, темп безызлучательной рекомбинации в этих структурах меньше, чем таковой в структурах со сплошными КЯ InGaN, что делает их перспективными для использования в светоизлучающих структурах. Наиболее впечатляющие результаты были получены при использовании короткопериодных сверхрешеток InGaN/GaN (КПСР), сформированных при циклической конвертации InGaN в GaN при выдержке InGaN в азотно-водородной атмосфере. Показано, что использование КПСР в активной области светодиодных гетероструктур, излучающих в синей и желто-зеленой областях спектра, позволяет улучшить структурное совершенство активной области, обеспечить эффективную инжекцию носителей заряда и получить высокую эффективность излучения. Более того, использование КПСР в качестве барьеров между КЯ InGaN, излучающими при различных длинах волн, обеспечивает эффективный транспорт носителей заряда в КЯ в гетероструктурах для монолитных светодиодов белого света. Для создания монолитных белых светодиодов на основе КЯ InGaN и КПСР InGaN/GaN опробовано два подхода: использование гетероструктур, излучающих в широком спектральном диапазоне 440-570 нм и обеспечивающих белое излучение без люминофора, и гетероструктур, излучающих в синей 430-435 нм и лазерной областях спектра 460-490 нм, которые возбуждают смесь двух люминофоров, излучающих в зеленой и красной областях спектра. Оба подхода имеют свои достоинства, в первом случае можно динамически управлять параметрами белого света, а во втором, получать высокие значения внешней квантовой эффективности и предельные значения индекса цветопередачи.

Основные новые научные результаты, полученные автором, сформулированы в заключении и являются основой для пяти защищаемых положений.

Научная новизна и практическая значимость исследований. В диссертации Цацульникова А.Ф. представлены результаты, обладающие научной новизной. Детальное исследование влияния условий в реакторе на характер роста, разработка ряда принципиально новых подходов к росту различных типов эпитаксиальных структур, демонстрация перспективности развитых подходов для получения приборных структур несомненно имеют большую практическую значимость. Отмечу, что белые светодиоды, созданные на основе разработанных гетероструктур, излучающих в диапазоне 430-510 нм, продемонстрировали параметры (индекс цветопередачи $Ra(8)=98.6$ и $Ra(14)=97.4$ при

коррелированной цветовой температуре ССТ=3300-3500К), соответствующие мировому уровню.

Обоснованность и достоверность научных положений и выводов обеспечивается корректностью постановки цели и задач исследований, использованием современной технологии изготовления гетероструктур и самых передовых методов их исследований, самосогласованностью большого объема полученных результатов и их сопоставимостью с данными других авторов, а также непротиворечивостью существующим научным представлениям. Основные результаты исследований, представленные в работе, достаточно полно отражены в 51 публикации в периодических научных изданиях, доложены и обсуждены на представительных российских и международных научных конференциях и семинарах.

Замечания по работе.

В диссертации не достаточно детально обсуждаются механизмы трансформация сплошной КЯ InGaN в массив изолированных островков при добавлении водорода в азотную атмосферу реактора. В частности не объяснено аномальное увеличение максимального локального содержания индия в In-обогащенных островках. Отсутствуют математические модели, описывающие полученные экспериментальные результаты и позволяющих получать информацию о ключевых параметрах, определяющих эти процессы.

В диссертации не разъяснено, почему нанометровый слой GaN, формирующийся на поверхности слоя InGaN, выдержанного в водородно-азотной атмосфере, блокирует диффузию индия из нижележащего слоя InGaN?

Из текста диссертации неясно, насколько изменялась температура подложки за короткое время роста КЯ InGaN нанометровой толщины методом термоциклирования? Применим этот метод в промышленных установках МОСГФЭ с более массивными держателями подложек?

На странице 151 диссертации написано, что «плотность дислокаций в структурах составляет $\sim 5 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ ». Это ошибка?

Указанные замечания не снижают значимости полученных результатов и не влияют на общую положительную оценку представленного диссертационного исследования.

Общее заключение. Оценивая диссертацию в целом можно сказать, что диссертация А.Ф.Цацульникова является законченной научно-исследовательской работой, выполненной на высоком научном уровне и содержит новое решение научной проблемы, развивает направление совершенствования технологии роста A_3 -нитридных гетероструктур для светоизлучающих приборов. Диссертационная работа написана хорошим четким языком, содержание и результаты исследований изложены ясно и понятно. Рассмотренный в диссертации круг вопросов представляет собой цельное

исследование, выполненное с единых позиций. Автореферат диссертации правильно и полно отражает содержание диссертации. Тема и содержание диссертации соответствуют специальности 01.04.10 «Физика полупроводников». По актуальности темы, новизне и достоверности полученных результатов работа соответствует критериям, предъявляемым к диссертации на соискание ученой степени доктора физико-математических наук, установленным Постановлением Правительства «о порядке присуждения ученых степеней» от 24 сентября 2013 года №842. Автор диссертации, Цацульников Андрей Федорович, несомненно, заслуживает присуждения ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.10 - «физика полупроводников».

официальный оппонент, Журавлев Константин Сергеевич
доктор физико-математических наук,
заведующий лабораторией молекулярно лучевой эпитаксии соединений A_3B_5
Федерального государственного бюджетного учреждения науки «Институт физики
полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН»
630090, г.Новосибирск, пр. Академика. Лаврентьева, 13,
Тел.: (383) 3304475; E-mail:zhur@isp.nsc.ru
« ».06.2019

Подпись Журавлёва К.С. заверяю
ученый секретарь ИФП СО РАН
к.ф.-м.н.

С.А. Аржанникова