

ЗАКЛЮЧЕНИЕ ДИССЕРТАЦИОННОГО СОВЕТА
24.1.029.01 (Д002.034.01) НА БАЗЕ ФЕДЕРАЛЬНОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО
БЮДЖЕТНОГО УЧРЕЖДЕНИЯ НАУКИ ИНСТИТУТ АНАЛИТИЧЕСКОГО
ПРИБОРОСТРОЕНИЯ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК (ИАП РАН),
Г. САНКТ-ПЕТЕРБУРГ
ПО ДИССЕРТАЦИИ НА СОИСКАНИЕ УЧЕНОЙ СТЕПЕНИ КАНДИДАТА
НАУК

аттестационное дело № _____

решение диссертационного совета от «28» октября 2022 г. № 14

о присуждении Дворецкой Лилии Николаевне, гражданке Российской Федерации, ученой степени кандидата физико-математических наук.

Диссертация «Теоретическое и экспериментальное исследование микросферной фотолинтографии на подложках кремния для селективной эпитаксии полупроводниковых структур» по специальности 1.3.2 (01.04.01) – Приборы и методы экспериментальной физики принята к защите 12.08.2022 г., протокол № 11, диссертационным советом 24.1.029.01 (Д002.034.01) на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Институт аналитического приборостроения Российской академии наук (ИАП РАН), 198095, Санкт-Петербург, ул. Ивана Черных, д.31-33, лит.А, приказ 714/нк от 02.11.2012 г.

Соискатель: Дворецкая Лилия Николаевна, 1991 года рождения, окончила в 2014 году магистратуру НИУ ИТМО (Университет ИТМО) по направлению подготовки 200700 «Фотоника и оптоинформатика» на кафедре Фотоника и оптоинформатика, в 2018 г. окончила очную аспирантуру Академического университета по направлению 03.06.01 «Физика и астрономия» по профилю 01.04.07 «Физика конденсированного состояния». В настоящее время работает в должности младшего научного сотрудника лаборатории Возобновляемых источников энергии Федерального государственного бюджетного учреждения высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет имени Ж.И. Алфёрова Российской академии наук».

Диссертация выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования и науки «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет имени Ж.И. Алфёрова Российской академии наук», г. Санкт-Петербург.

Научный руководитель: Мухин Иван Сергеевич, доктор физико-математических наук, профессор, директор Высшей инженерно-физической школы Санкт-Петербургского Политехнического университета Петра Великого, г. Санкт-Петербург.

Официальные оппоненты:

1) Новиков Алексей Витальевич, доктор физико-математических наук, профессор, директор, заведующий лабораторией Молекулярно-пучковой эпитаксии полупроводниковых гетероструктур отдела физики полупроводников Института физики микроструктур Российской академии наук (ИФМ РАН), представил на диссертацию и автореферат **положительный отзыв**, в котором содержатся следующие замечания:

1. Отсутствие в диссертации списка работ автора по ней и ссылок на эти работы в тексте диссертации значительно затрудняет оценку степени представления результатов диссертации в рецензируемых научных изданиях.
2. В первой главе при обзоре литографических методов не рассмотрен метод интерференционной литографии, который, как и метод микросферной литографии, используется для получения субмикронного рисунка на больших площадях.
3. В четвертой главе диссертации недостаточно прослеживается связь с результатами, полученными во второй и третьих главах. Были ли при проведении микросферной литографии для получения упорядоченных нанокластеров использованы результаты численных расчетов и экспериментальных исследований из второй и третьей глав диссертации?
4. Не понятно, при какой температуре проходил синтез нитевидных нанокристаллов (ННК) GaN, так как на странице 84 и рисунке 26(г) указано, что при 830°C нитевидные нанокристаллы не формируются, а на странице 85 – что именно эта температура использовалась для их получения.
5. В тексте диссертации присутствуют ошибки и опечатки. На странице 21 неверно указано сокращенное название Института физики микроструктур РАН. На странице 30 вместе ссылок на рисунок 4а и 4б указаны ссылки на рисунки 3а и 3б. На странице 68 неверно указано сокращение для КМОП технологии. На странице 83 не указана температура роста для рисунка 26(г). К ошибкам можно отнести и использование термина «термически прокисленный оксидный слой» (стр. 78), так не очень удачный, на мой взгляд, термин «термически прокисленный» можно отнести к слою кремния, но не к слою окисла.

2) Целиков Глеб Игоревич, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник лаборатории Нанооптики и плазмоники Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Московского физико-технического института (национального исследовательского университета)» (МФТИ), представил на диссертацию и автореферат **положительный отзыв**, в котором содержатся следующие замечания:

1. В первой главе не рассмотрен подход к синтезу планарных полупроводниковых слоёв методом сращивания отдельных наноструктур, используя отверстия в ростовой подложке.

2. В третьей главе в разделе 3.2 не обсуждается, что может произойти с резистом при высокой дозе экспонирования для сфер с диаметром 1,5 мкм. Будет ли рисунок фотомаски также разрушаться, как это было показано для высоких доз для сфер с диаметром 0,6 мкм?
3. В третьей главе диссертации не рассмотрено влияние нарушения порядка сборки микросфер на процесс литографии. А также, не обсуждается вопрос, повлияет ли образование отдельных доменов из отверстий в ростовой маске на нуклеацию полупроводниковых структур?
4. В четвёртой главе, на рисунке 31 не понятно, с чем связана уширенная линия электролюминесценции для структуры на основе НК InGaN?
5. Также, в тексте имеются незначительные опечатки. Например, на странице 30 вместо ссылок на рисунок 5а и 5б указаны ссылки на рисунки 3а и 3б и на 68 стр. неверно написано сокращение КМОП технологии.

Ведущая организация Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС», Москва, в своём положительном заключении, утвержденном профессором М.Р. Филоновым, проректором по науке и инновациям НИТУ «МИСиС», подписанном Диденко Сергеем Михайловичем, кандидатом физико-математических наук, заведующим кафедрой Полупроводниковой электроники и физики полупроводников и Сараниным Данилой Сергеевичем, кандидатом технических наук, доцентом «МИСиС», указала, что диссертация Дворецкой Л.Н. соответствует всем требованиям, предъявляемым к диссертациям на соискание ученой степени кандидата наук, а соискатель заслуживает присуждения ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 1.3.2 (01.04.01), и отметила следующие замечания:

1. Во Введении автором указывается, что «для приборных приложений (например для светоизлучающих диодов или солнечных элементов) особенно востребованы упорядоченные массивы НК». В связи с этим необходимо было отметить, какие транспортные или оптоэлектронные свойства НК выделяет их в сравнении с пластинами и тонкими пленками полупроводников.

2. Во второй главе «Теоретическое и экспериментальное исследование процесса фотолитографии по микросферическим линзам на подложках кремния» представлены результаты по численному расчёту. Представлены зависимости диаметра пучка от диаметра микросферы при экспонировании. В должной мере не было объяснено наличие минимума диаметра пучка при увеличении диаметра сферы от 10^{-1} до 10^0 мкм.

3. В третьей главе представлены экспериментальные результаты по фотолитографии с применением метакрилатных фоторезистов. Преимущества применения данного типа материалов в должной мере не объяснены.

4. В главе 4 «Создание ростовой маски для селективного синтеза

наноструктур материалов III-V группы» представлены результаты измерений ВАХ для полученных фотодиодов. Представленные результаты демонстрируют высокие значения темнового тока утечки в диапазоне микроампер. Соискателем не были представлены исчерпывающие объяснения потери шунтирующих свойств, что требует уточнения.

5. Важным приборным параметром фотодиодов является спектральная чувствительность, воспроизводимость ВАХ при циклических измерениях. Исследование приборных характеристик полученных фотодиодов с ННК АЗВ5 требует более подробного анализа или комментариев по работоспособности примененных подходов.

Соискатель имеет 9 (девять) опубликованных работ в рецензируемых научных изданиях, входящих в перечень ВАК РФ и Международные библиометрические базы SCOPUS и/или Web of Science, а также 8 (восемь) публикаций в материалах всероссийских и международных научных конференций.

К наиболее значительным работам, отражающим основное содержание диссертации, относятся:

1. **Dvoretckaia L.N.** и др. Optimization of microsphere optical lithography for nanopatterning / Dvoretckaia L.N., Mozharov A.M., Berdnikov Y., Mukhin I.S. //Journal of Physics D: Applied Physics. – 2021. – Т. 55. – №. 9. – С. 09LT01.
2. **Dvoretckaia L.N.** и др. Light-Emitting Diodes Based on InGaN/GaN Nanowires on Microsphere-Lithography-Patterned Si Substrates / Dvoretckaia L.N., Gridchin V.O., Mozharov A.M., Maksimova A.A., Dragunova A.S., Melnichenko I.A., Mitin D.M., Vinogradov A.V., Mukhin I.S., Cirlin G.E. //Nanomaterials. – 2022. – Т. 12. – №. 12. – С. 1993.
3. Fedorov V.V. и др. Formation of wurtzite sections in self-catalyzed GaP nanowires by droplet consumption / Fedorov V.V., Dvoretckaia L.N., Kirilenko D.A., Mukhin I.S., Dubrovskii V.G. //Nanotechnology. – 2021. – Т. 32. – №. 49. – С. 495601.
4. **Dvoretckaia L.N.** и др. Electrically driven metal and all-dielectric nanoantennas for plasmon polariton excitation / Dvoretckaia L.N., Ladutenko K.S., Mozharov A.M., Zograf G.P., Bogdanov A.A., Mukhin I.S. //Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. – 2020. – Т. 244. – С. 106825.
5. Bolshakov A.D. и др. Microlens-enhanced substrate patterning and MBE growth of GaP nanowires / Bolshakov A.D., Dvoretckaia L.N., Fedorov V.V., Sapunov G.A., Mozharov A.M., Shugurov K.Y., Shkoldin V.A., Mukhin M.S., Cirlin G.E., Mukhin I.S. //Semiconductors. – 2018. – Т. 52. – №. 16. – С. 2088-2091.
6. **Dvoretckaia L.N.** и др. Theoretical optimization of the photolithography through array of 1.2 μm silica microspheres / Dvoretckaia L.N., Mozharov A.M., Bolshakov A.D., Fedorov V.V., Vasiliev A.A., Mukhin I.S. //Journal of Physics:

Conference Series. – IOP Publishing, 2019. – Т. 1410. – №. 1. – С. 012129.

7. Gridchin V.O. и др. Selective-area growth and optical properties of GaN nanowires on patterned SiO_x/Si substrates / Gridchin V.O., Reznik R.R., Kotlyar K.P., Dragunova A.S., Dvoretckaja L.N., Parfeneva A.V., Shevchuk D.S., Kryzhanovskaya N.V., Mukhin I.S., Cirlin G.E. //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2021. – Т. 1851. – №. 1. – С. 012006.
8. Dvoretckaja L.N. и др. Fabrication method of the patterned mask for controllable growth of low-dimensional semiconductor nanostructures / Dvoretckaja L.N., Mozharov A.M., Fedorov V.V., Bolshakov A.D., Mukhin I.S. //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2018. – Т. 1124. – №. 2. – С. 022042.
9. Dvoretckaja L.N., Mozharov A.M., Mukhin I.S. High resolution photolithography using arrays of polystyrene and SiO₂ micro-and nano-sized spherical lenses //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2017. – Т. 917. – №. 6. – С. 062062.

На автореферат диссертации поступили следующие отзывы:

1. От Преображенского Валерия Владимировича, кандидата физико-математических наук, заведующего Лабораторией физических основ эпитаксии полупроводниковых гетероструктур Института физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук.

Замечаний нет.

2. От Брункова Павла Николаевича, доктора физико-математических наук, заместитель директора по научной работе Физико-технического института им. А.Ф. Иоффе РАН.

Замечания:

- В качестве источника коротковолнового излучения, применяемого для экспонирования фоторезиста, в работе упоминается источник излучения на основе N₂ плазмы, однако его принципиальная конструкция, и, что более важно, спектр его излучения никак не обсуждаются.

- При подготовке структурированных подложек соискателем широко применялся метод химической полировки Si в щелочном растворе КОН, приводящий к латеральному вытравливанию Si по периметру отверстия ростовой маски. В частности, на Рисунке 5 автореферата видно, что края отверстия ростовой маски SiO_x могут “нависать” над ямкой, образующейся в Si. Рассматривался ли в работе эффект присутствия подвешенного слоя оксида на процесс селективного эпитаксиального роста?

3. От Крыжановской Натальи Владимировны, доктора физико-математических наук, заведующей международной лабораторией Квантовой оптоэлектроники Национального исследовательского университета Высшей школы экономики «ВШЭ», Санкт-Петербург.

Замечания:

- В работе не обсуждается влияние немонахроматичности источника излучения при экспонировании фоторезиста через массив микросфер.
- В экспериментальной части работы выбраны пластины кремния Si(111), однако чем обусловлен выбор такой ориентации пластины не ясно?

4. От Мошников Вячеслава Алексеевича, доктора физико-математических наук, профессора, профессора кафедры Микро- и наноэлектроники Санкт-Петербургского государственного электротехнического университета «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина) и Налимовой Светланы Сергеевны, кандидата физико-математических наук, доцента кафедры Микро- и наноэлектроники Санкт-Петербургского государственного электротехнического университета «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина).

Замечание:

- Из текста автореферата не совсем ясен выбор неопола в качестве ПАВ.

5. От Фирсова Дмитрия Анатольевича, доктора физико-математических наук, профессора Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого.

Замечания:

- Было бы оправданным привести данные атомно-силовой микроскопии для структур, сформированных в резисте, что позволило бы определить профиль литографических структур. Представленные данные сканирующей электронной микроскопии не позволяют оценить глубину сформированных наноструктур.
- Для многих задач является востребованным текстурирование подложек Si с ориентацией (100). В работе следовало бы расширить разработанные технологические подходы к микросферной литографии на данном типе подложек.

6. От Зуева Дмитрия Александровича, кандидата физико-математических наук, старшего научного сотрудника «Национального исследовательского университета ИТМО».

Замечания:

- В работе не приведено обсуждение о том, как влияет шероховатость поверхности сфер и отклонение их формы от идеальной на процесс фотолитографии.
- Также не обсуждается кинетика синтеза нитевидных нанокристаллов на текстурированных подложках SiO_x/Si?

Все отзывы на автореферат диссертации положительные.

Выбор официальных оппонентов и ведущей организации обосновывается их большим опытом работы в областях физики, эпитаксиальных технологий, физики конденсированного состояния, оптики, расчёту оптических систем, экспериментальных методов создания микро- и наноструктур, исследованию полупроводниковых нанокристаллов, приборостроения, что подтверждается публикациями, в которых рассматриваются вопросы, связанные с тематикой диссертационного исследования соискателя.

Диссертационный совет отмечает, что на основании выполненных соискателем исследований:

развита модель для численного анализа процесса микросферной фотолитографии с учетом нелинейных особенностей фоторезиста, таких как обесцвечивание красителя и диффузия активированных химических связей резиста при последующей термической обработке;

на основании разработанной модели **впервые определена** зависимость диаметра сфокусированного пятна под микросферой от толщины фоторезиста (в диапазоне от 100 до 500 нм) и дозы экспонирования;

развит метод микросферной фотолитографии через массив гексагонально упакованных кварцевых микролинз на поверхности фоторезиста, нанесенного на подложки с высоким показателем преломления, например Si, для их последующего текстурирования.

впервые достигнуто пространственное разрешение микросферной фотолитографии 110 нм (± 5 нм) в слое метакрилатного резиста толщиной 170 нм (± 20 нм) на Si, используя источник излучения N₂ плазмы;

впервые с использованием комбинации методов микросферной фотолитографии, плазмохимического и жидкостного травления и молекулярно-пучковой эпитаксии **были синтезированы** гексагонально-упорядоченные массивы наноструктур GaP, GaN, GaN/InGaN, InAs на поверхности текстурированных подложек SiO_x/Si(111) с контролируемой поверхностной плотностью и морфологией;

впервые показано, что использование неионогенного поверхностно-активного вещества неонол в концентрации 1:300 на поверхности резиста при нанесении водного коллоидного раствора кварцевых микросфер методом центрифугирования

позволило увеличить адгезию и сформировать на поверхности резиста гексагональный массив микросфер, при этом разрушение слоя резиста не наблюдалось;

продемонстрировано, что упорядоченные массивы полупроводниковых наноструктур, синтезированные на текстурированных методом микросферной литографии Si подложках, можно использовать для создания **приборных структур** светоизлучающих диодов сине-зеленого спектрального диапазона и фотоприемников ближнего инфракрасного диапазона.

Теоретическая значимость исследования обоснована тем, что применительно к проблематике диссертации эффективно, с получением обладающих новизной результатов:

предложена численная модель процесса микросферной фотолитографии с учетом интерференции волн, сфокусированных и отраженных от кремниевой подложки, также учитывающая свойства фоторезиста (такие как, обесцвечивание красителя и диффузия активированных химических связей резиста при последующей термической обработке), обеспечивающая определение технологических параметров при процессе экспонирования;

впервые определён минимальный диаметр микросфер равный 300 нм для применения их в процессе фотолитографии при длине волны экспонирования 365 нм, соответствующей i-линии ртутной лампы;

установлена зависимость диаметра сфокусированного пятна под микросферой от толщины слоя фоторезиста (в диапазоне от 100 до 500 нм) и дозы экспонирования, что может быть использовано при фотолитографии, обеспечивающей создание наноструктур с заданной формой.

Значение полученных соискателем результатов исследования для практических применений подтверждается тем, что:

они были использованы при синтезе гексагонально-упорядоченных массивов наноструктур GaP, GaN, GaN/InGaN, InAs на поверхности SiO_x/Si(111) с контролируемой поверхностной плотностью и морфологией, в том числе в рамках реализации проекта РФФИ «Создание и исследование электрофизических свойств упорядоченного массива нитевидных нанокристаллов GaP, полученного на кремниевой подложке методом молекулярно-пучковой эпитаксии» (руководитель Л.Н. Дворецкая). Синтезированные упорядоченные массивы полупроводниковых наноструктур, полученные при росте на текстурированных методом микросферной литографии подложках, использовались для создания прототипных приборных структур светоизлучающих диодов сине-зеленого спектрального диапазона и фотоприемников ближнего инфракрасного диапазона.

Полученные в диссертации результаты могут быть использованы на российских предприятиях, занимающихся производством полупроводниковых оптоэлектронных устройств, такие как ПАО «Светлана», АО «Светлана-Рост»,

российских образовательных и научных организациях, которые ведут исследования и разработки в области полупроводниковой техники и постростовых технологий, а также осуществляют подготовку высококвалифицированных специалистов: СПБАУ РАН им. Ж.И. Алферова, ИФМ РАН, ИФП СО РАН, МФТИ, Университет ИТМО, Сколковский институт науки и технологий, Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, СПбГУ и др.

Кроме того, результаты исследований были использованы соискателем при подготовке и проведении лабораторных работ по курсу «Постростовые технологии» в СПБАУ РАН им. Ж.И. Алферова.

Оценка достоверности результатов исследования выявила, что научные положения, выводы и результаты, содержащиеся в диссертационной работе, подтверждаются использованием общеизвестных, апробированных и обоснованных физических методов; комплексным характером выполненных экспериментальных исследований и использованием апробированных программных пакетов для проведения численного моделирования с выбором корректных с физической точки зрения граничных условий и размеров пространственных и временных сеток разбиения в методе конечных элементов, обеспечивающих сходимость численного решения систем уравнений с использованием корректных допущений и приближений, а также воспроизводимостью получаемых экспериментальных данных для серии образцов. Результаты эксперимента согласуются с результатами численного моделирования; а также с данными полученными другими научными группами исследователей, где возможно сравнение.

Основные результаты докладывались и обсуждались на следующих конференциях: 3rd/4th/5th/6th International School and Conference "Saint-Petersburg OPEN 2017/2018/2019", март-апрель 2017-2019 гг. Санкт-Петербург, Россия; 26 International symposium "Nanostructures: Physics and Technology", июнь 2018г., Минск, Белоруссия; XIV Российская конференция по физике полупроводников ФГБУН Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова СО РАН, сентябрь 2019 г., Новосибирск, Россия; 19 Всероссийская молодежная конференция по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике, ноябрь 2017-2018 гг., Санкт-Петербург, Россия; Российская конференция и школа молодых ученых по актуальным проблемам полупроводниковой фотоэлектроники, ФОТОНИКА 2021, ИФП СО РАН им. А.В. Ржанова, октябрь 2021 г., Новосибирск, Россия.

Личный вклад соискателя заключается в следующем:

- Разработка новой модели для численного анализа процесса микросферной фотолитографии с учетом особенностей фоторезиста, таких как обесцвечивание красителя резиста и диффузия активированных химических связей резиста при последующей термической обработке.

- Предростовая подготовка подложек к селективному синтезу массивов НК GaP, GaN, GaN/InGaN, InAs методом молекулярно-пучковой эпитаксии, включая проведение микросферной фотолитографии, жидкостного и плазмохимического травления масочного слоя, а также исследование влияния температуры роста на морфологию синтезированных НК;
- Создание экспериментальных образцов упорядоченных массивов НК, включающее в себя создание верхнего и нижнего контактов с помощью методов литографии, вакуумного напыления материалов и жидкостного травления, и измерение вольт-амперных характеристик GaN/InGaN и InAs структур.
- Участие в подготовке статей в научных изданиях, входящих в перечень рецензируемых ВАК, WoS и Scopus.

На заседании 28 октября 2022 года диссертационный совет принял решение присудить Дворецкой Лилии Николаевне ученую степень кандидата физико-математических наук.

Для проведения тайного голосования диссертационный совет в количестве 19 человек, из них 19 докторов наук, участвовавших в заседании, из 21 человека входящих в состав совета, дополнительно введены на разовую защиту 0 человек, проголосовали: за – 18, против – 1, недействительных бюллетеней – нет.

Председатель
диссертационного совета
д.т.н., профессор

Ученый секретарь
диссертационного совета
д.ф.-м.н.

Дата оформления заключения
28 октября 2022 г.
М.П.



В.Е. Курочкин

А.Л. Буляница