

УТВЕРЖДАЮ:

Заместитель декана физического факультета
МГУ имени М.В.Ломоносова



профессор

А.А. Федянин

«27» февраля 2015 г.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»,
физического факультета

Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук «Оптические свойства рассеивающих сред на основе кремниевых нанонитей» выполнена на кафедре общей физики и молекулярной электроники физического факультета. В период подготовки диссертации соискатель Гончар Кирилл Александрович являлся аспирантом кафедры общей физики и молекулярной электроники физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова».

В 2011 году окончил физический факультет Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова» по специальности «физика».

Удостоверение о сдаче кандидатских экзаменов выдано в 2015 году Федеральным государственным бюджетным образовательным учреждением высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова».

В 2014 году окончил очную аспирантуру физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова».

Научные руководители:

по специальности 01.04.05 - оптика – доктор физико-математических наук Головань Леонид Анатольевич, доцент кафедры общей физики и молекулярной электроники физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова»;

по специальности 01.04.10 - физика полупроводников – доктор физико-математических наук Тимошенко Виктор Юрьевич, профессор кафедры общей физики и молекулярной электроники физического факультета Федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова».

Необходимость защиты диссертации по двум специальностям обусловлена выполненным диссертантом исследованием свойств ансамблей кремниевых нанонитей. В данном объекте исследования, отличающемся сильным рассеянием, детальное изучение электронных и рекомбинационных свойств невозможно без учета эффектов задержки

излучения в ансамбле кремниевых нанонитей и, наоборот, модификация электронных свойств изучаемой системы в силу эффективного взаимодействия света и вещества сказывается на оптических свойствах ансамблей кремниевых нанонитей. Поэтому в изучении свойств ансамблей кремниевых нанонитей невозможно ограничиться изучением какого-то одного аспекта (сугубо оптического или сугубо полупроводникового), а требуется комплексное исследование. В связи с этим возникает необходимость руководства диссертационной работой как специалистом в области физики полупроводников, так и специалистом в области оптики. Выполнение работ, касающихся измерений спектров отражения и индикатрисы рассеяния, а также фотолюминесцентных измерений (разделы 3.1 и 3.4 диссертации) проводилось диссертантом под непосредственным руководством профессора В.Ю. Тимошенко, тогда как измерения методом комбинационного рассеяния света, нелинейно-оптические измерения и измерения времени задержки фотонов в ансамблях кремниевых нанонитей (разделы 3.2 и 3.3 диссертации) были выполнены диссертантом под руководством доцента Л.А. Голованя.

По результатам рассмотрения диссертации «Оптические свойства рассеивающих сред на основе кремниевых нанонитей» принято следующее **заключение**:

Диссертационная работа Гончара К.А. «Оптические свойства рассеивающих сред на основе кремниевых нанонитей» посвящена исследованию линейных и нелинейных оптических свойств ансамблей кремниевых нанонитей, формируемых методом металл-стимулированного химического травления на подложках кристаллического кремния. Диссертационная работа посвящена актуальной научной проблеме, имеет высокую теоретическую и практическую ценность, является законченным научным исследованием, удовлетворяет всем требованиям, предъявляемым ВАК РФ к диссертациям на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук, и соответствует специальностям 01.04.05 - оптика и 01.04.10 - физика полупроводников.

Актуальность работы. Актуальность исследования наноструктур на основе кремния обусловлена большим потенциалом их применения в микро- и оптоэлектронике, фотонике, сенсорике и в других областях науки и техники. Известно, что физические свойства полупроводниковых наноструктур зависят от их характерных размеров (размерные эффекты), формы, расположения в пространстве и ближайшего окружения. Для кремниевых нанокристаллов нитевидной формы (нанонитей) с поперечными размерами менее 10 нм реализуется так называемый квантовый размерный эффект для носителей заряда (электронов и дырок), который приводит к росту ширины запрещенной зоны и сдвигу края оптического поглощения в высокоэнергетическую область. Оптические свойства кремниевых наноструктур с большими поперечными размерами будут существенно зависеть от эффектов, связанных с пространственным распределением локальных электрических полей, и обуславливаться рассеянием света как отдельными нанообъектами, так и их ансамблями. Изучение таких эффектов в наноструктурах в виде ансамблей кремниевых нанонитей актуально, поскольку они могут быть легко интегрируемы с устройствами микроэлектроники, что приведёт как к улучшению характеристик последних, например солнечных элементов, транзисторов и сенсоров, так и созданию принципиально новых устройств и материалов для различных применений, включая биофотонику и медицину.

Одним из наиболее активно исследуемых видов кремниевых нанонитей являются структуры, получаемые металл-стимулированным химическим травлением, которые

имеют вид плотных ансамблей (массивов) нанонитей с характерными размерами поперечных сечений порядка 100 нм. Благодаря высокому значению показателя преломления кремния и близкому расположению нанонитей, такие наноструктуры представляют большой интерес для исследования явления рассеяния света в широком спектральном диапазоне. Однако влияние условий приготовления кремниевых нанонитей на их структурные и оптические свойства изучено пока в недостаточной степени. Проведение таких исследований важно как для развития оптики рассеивающих сред, так и для сенсорных и биомедицинских применений кремниевых нанонитей.

Цель диссертационной работы состояла в исследовании зависимости линейных и нелинейных оптических свойств ансамблей кремниевых нанонитей, получаемых методом металл-стимулированного химического травления и обладающих сильным рассеянием света в видимом и инфракрасном диапазонах спектра, от их структурных свойств.

Для достижения указанной цели были решены следующие **задачи**:

1. Изучить зависимость спектров отражения и пропускания света в слоях кремниевых нанонитей от их длины.
2. Измерить и проанализировать индикатрисы упругого рассеяния света в слоях кремниевых нанонитей различной длины.
3. Выявить особенности спонтанного комбинационного рассеяния света, генерации третьей гармоники и когерентного антистоксова рассеяния света в ансамблях кремниевых нанонитей в сравнении со случаем подложек кристаллического кремния, использованных для получения нанонитей.
4. Определить время взаимодействия света с веществом в ансамблях кремниевых нанонитей различной морфологии с помощью измерения кросс-корреляционной функции рассеянных фотонов.
5. Исследовать зависимость фотолуминесцентных свойств кремниевых нанонитей от их структурных характеристик и электронных свойств подложек.

Основные результаты, полученные в работе, состоят в следующем:

1. Для слоёв кремниевых нанонитей с длиной порядка и более 1 мкм в спектральной области от 400 до 1000 нм наблюдаются низкие значения коэффициента полного отражения порядка 1%, что объясняется рассеянием света в условиях его сильного поглощения. В ближнем инфракрасном диапазоне 1000 – 1500 нм наблюдается повышение диффузного отражения, что указывает на усиление взаимодействия света с веществом в результате сильного рассеяния в области слабого поглощения. В среднем инфракрасном диапазоне спектра (2,5 – 50 мкм) слои кремниевых нанонитей могут быть рассмотрены как эффективные оптические среды, показатель преломления которых определяется их пористостью.
2. Установлено, что индикатрисы упругого рассеяния света с длиной волны 1064 нм в ансамблях кремниевых нанонитей длиной более 2 мкм хорошо описываются законом Ламберта, а интенсивность рассеянного назад сигнала растёт по логарифмическому закону с увеличением длины нанонитей.
3. Установлено, что интенсивность спонтанного комбинационного рассеяния света и когерентного антистоксова рассеяния света может многократно возрасти в ансамблях кремниевых нанонитей вследствие эффектов сильного рассеяния возбуждающего света. Рост интенсивности комбинационного рассеяния зависит от морфологии кремниевых нанонитей, их длины и длины волны возбуждающего света. Для длины волны возбуждающего света 1064 нм наблюдается логарифмическая зависимость

интенсивности комбинационного рассеяния от длины нанонитей. Для нанонитей длиной более 1 мкм наблюдается деполяризация ориентационных зависимостей сигналов комбинационного рассеяния света.

4. Измерения кросс-корреляционных функций падающих и рассеянных фотонов свидетельствуют об увеличении времени взаимодействия света с веществом в слоях кремниевых нанонитей, которое оказалось максимальным для вертикально упорядоченных нанонитей при возбуждении светом с частотой ниже края межзонного поглощения кремния. Для длины волны накачки 1250 нм обнаружено увеличение эффективности генерации третьей гармоники и изменение её ориентационных зависимостей в слоях кремниевых нанонитей длиной 10-40 мкм по сравнению с исходными подложками кристаллического кремния, что хорошо согласуется с увеличением времени взаимодействия возбуждающего света в массивах кремниевых нанонитей.

5. Обнаружен рост интенсивности межзонной фотолюминесценции кремниевых нанонитей при возбуждении светом с длиной волны 1064 нм по сравнению с исходными подложками кристаллического кремния, что объясняется увеличением эффективного поглощения возбуждающего излучения в условиях его сильного рассеяния и низкой скорости безызлучательной рекомбинации на поверхности нанонитей. Интенсивность фотолюминесценции немонотонно зависит от длины кремниевых нанонитей, а именно, в диапазоне длин от 0,1 до 2 мкм интенсивность растёт по логарифмическому закону, тогда как для больших длин кремниевых нанонитей интенсивность фотолюминесценции спадает вследствие роста полного отражения возбуждающего света.

6. Измерения спектров и кинетик фотолюминесценции в диапазоне длин волн 500-1000 нм показывают, что она может быть объяснена излучательными процессами в нанокристаллах кремния на поверхности нанонитей. Интенсивность фотолюминесценции зависит от условий формирования нанонитей, в частности, от электронных свойств используемых кремниевых подложек и оказывается выше для нанонитей, выращенных на сильнолегированных подложках кремния. Интенсивность фотолюминесценции при возбуждении лазерным излучением с длинами волн 364 нм и 488 нм линейно зависит от длины кремниевых нанонитей в диапазоне длин от 0,1 до 10 мкм, что указывает на проникновение возбуждающего света между нанонитями за счёт отражения от их стенок.

Научная новизна работы:

1. Обнаружена немонотонная зависимость величины коэффициента полного отражения света, включающего диффузную и зеркальную компоненты, слоёв кремниевых нанонитей от их длины.

2. Впервые установлено, что индикатриса упругого рассеяния света с длиной волны 1064 нм в ансамблях кремниевых нанонитей длиной более 2 мкм может быть аппроксимирована законом Ламберта, а интенсивность света, рассеянного в заднюю полусферу, растёт по логарифмическому закону при увеличении длины нанонитей.

3. Обнаружено, что в слоях кремниевых нанонитей по сравнению с подложками кристаллического кремния возрастает эффективность процессов преобразования частоты оптического излучения, таких как спонтанное комбинационное рассеяние света, когерентное антистоксово рассеяние света и генерация третьей гармоники.

4. Впервые проведены измерения кросс-корреляционных функций фотонов, рассеянных в массивах кремниевых нанонитей, в результате чего зарегистрировано многократное увеличение времени взаимодействия света с кремниевыми нанонитями по сравнению с подложками кристаллического кремния.

5. Впервые обнаружена немонотонная зависимость интенсивности межзонной фотолюминесценции в области 1100-1200 нм в слоях кремниевых нанонитей от их длины.

Практическая значимость

Результаты, изложенные в диссертации, могут быть использованы для создания новых фотонных устройств и сенсоров, основанных на кремнии. Так, увеличение интенсивности комбинационного рассеяния в структурах кремниевых нанонитей может быть использовано для создания сенсоров на активные молекулы; крайне низкое полное отражение в видимом диапазоне спектра в слоях нанонитей может быть использовано в фотовольтаике для повышения эффективности солнечных батарей; наличие видимой фотолюминесценции исследованных кремниевых наноструктур может быть использовано в биомедицине для люминесцентной диагностики тканей и клеток.

Изложение материалов диссертации в публикациях:

Материалы, вошедшие в диссертацию, неоднократно докладывались на российских и международных конференциях: Конференция Ломоносов (Москва, Россия, 2010), Волны (Звенигород, Россия, 2010), ICONO (Казань, Россия, 2010), ALT (Золотые пески, Болгария, 2011), Полупроводники (Нижний Новгород, Россия, 2011), Нанобиотехнологии: проблемы и перспективы (Белгород, Россия 2011), Волны (Звенигород, Россия, 2012), EMRS spring meeting (Страсбург, Франция, 2013), Оптика (Санкт-Петербург, Россия, 2013), PSST (Аликанте-Бенидорм, Испания, 2014), Волны (Можайск, Россия, 2014).

Материалы диссертации опубликованы в 20 печатных работах, в том числе в 7 статьях в рецензируемых журналах и 13 публикациях в сборниках трудов международных и российских конференций. Представленные в диссертации результаты достаточно полно отражены в следующих статьях:

1. Гончар К. А., Головань Л. А., Тимошенко В. Ю., Сиваков В. А., Кристиансен С. Эффекты локализации света при фотолюминесценции и комбинационном рассеянии в кремниевых наноструктурах // Известия РАН. Серия физическая. 2010. Т. 74, № 12. С. 1782-1784.

2. Timoshenko V. Yu., Gonchar K. A., Golovan L. A., Efimova A. I., Sivakov V. A., Dellith A., Christiansen S. H. Photoluminescence and Raman scattering in arrays of silicon nanowires // J. Nanoelectronics and Optoelectronics. 2011. Vol. 6, no 4. Pp. 519–524.

3. Golovan L. A., Gonchar K. A., Osminkina L. A., Timoshenko V. Yu., Petrov G. I., Yakovlev V. V. Coherent anti-Stokes Raman scattering in silicon nanowire ensembles // Laser Phys. Lett. 2012. Vol. 9, no 2. Pp. 145-150.

4. Osminkina L. A., Gonchar K. A., Marshov V. S., Bunkov K. V., Petrov D. V., Golovan L. A., Sivakov V. A., Timoshenko V. Yu. Optical properties of silicon nanowire arrays formed by metal-assisted chemical etching: evidences for light localization effect // Nanoscale Research Letters. 2012. Vol. 7. P. 524.

5. Gonchar K. A., Osminkina L. A., Galkin R. A., Gongalsky M. B., Marshov V. S., Timoshenko V. Yu., Kulmas M. N., Solovyev V. V., Kudryavtsev A. A., Sivakov V. A. Growth, structure and optical properties of silicon nanowires formed by metal-assisted chemical etching // J. Nanoelectronics and Optoelectronics. 2012. Vol. 7, no. 6. Pp. 602-606.

6. Буньков К. В., Головань Л. А., Гончар К. А., Тимошенко В. Ю., Кашкаров П. К., Kulmas M., Sivakov V. Зависимость эффективности комбинационного рассеяния света в ансамблях кремниевых нанонитей от длины волны возбуждения // ФТП. 2013. Т. 47, №3. С. 329-333.

7. Гончар К. А., Осминкина Л. А., Сиваков В., Лысенко В., Тимошенко В. Ю. Оптические свойства нитевидных наноструктур, полученных металл-стимулированным химическим травлением пластин слабо легированного кристаллического кремния // ФТП. 2014. Т. 48, №12. С. 70-75.

Личный вклад автора заключается в выборе объектов исследования, проведении измерений и интерпретации полученных результатов. Содержание диссертации и основные положения, выносимые на защиту, отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Подготовка к публикации полученных результатов проводилась совместно с соавторами, причём вклад диссертанта был определяющим.

Диссертация «Оптические свойства рассеивающих сред на основе кремниевых нанонитей» Гончара Кирилла Александровича обсуждена на заседании кафедры общей физики и молекулярной электроники физического факультета федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова» «11» февраля 2015 г. (протокол № 1) и рекомендуется к защите на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальностям 01.04.05 - оптика и 01.04.10 - физика полупроводников.

Присутствовало на заседании 20 чел. Результаты голосования: «за» - 20 чел., «против» - 0 чел., «воздержалось» - 0 чел., протокол № 1 от «11» февраля 2015 г.

Заведующий кафедрой
общей физики и молекулярной электроники
профессор, доктор физ.-мат. наук

П.К. Кашкаров

Ученый секретарь кафедры
доцент, кандидат физ.-мат. наук

А.В. Зотеев