

Toruń 27 VI 2013

Prof. dr hab. Franciszek Firszt
Instytut Fizyki
Uniwersytet M. Kopernika

Recenzja
dorobku naukowego i rozprawy habilitacyjnej
dr Michała Boćkowskiego
z Instytutu Wysokich Ciśnień PAN w Warszawie

Dr Michał Boćkowski ukończył Wydział Fizyki Technicznej i Matematyki Stosowanej Politechniki Warszawskiej w roku 1989 uzyskując tytuł mgr. inż. Podstawowych Problemów Techniki. Jego specjalnością była Fizyka Ciała Stałego. Po ukończeniu studiów rozpoczął pracę w Centrum Badań Wysokociśnieniowych PAN, na stanowisku asystenta. Jego praca dotyczyła termodynamiki i wzrostu kryształów półprzewodnikowych grupy III-V, azotków galu, indu i glinu oraz badania diagramów fazowych dla wybranych półprzewodników z grupy II-VI. W roku 1992 rozpoczął studia doktoranckie na Uniwersytecie Montpellier II we Francji, które ukończył z wyróżnieniem w roku 1995. Jego praca doktorska poświęcona była otrzymywaniu azotku glinu poprzez reakcję samopropagującego się spalania w wysokim ciśnieniu hydrostatycznym gazu. Do momentu uzyskania stopnia doktora był autorem lub współautorem 16 prac, cytowanych 380 razy.

Po uzyskaniu stopnia doktora ponownie podjął w roku 1996 pracę w Laboratorium Krystalizacji IWC PAN, na stanowisku adiunkta, zajmując się krystalizacją azotku galu i azotku glinu w warunkach wysokich ciśnień. W roku 1998 otrzymał nagrodę European High Pressure Research Group (EHPRG) za wkład pracy w badania półprzewodników, w szczególności z grupy azotków. W latach 2004-2008 pracował jako technolog w spółce TopGaN, której działalność poświęcona jest rozwojowi technologii i produkcji elektronicznych i optoelektronicznych przyrządów półprzewodnikowych opartych o półprzewodniki azotkowe. W roku 2008 został jednym z dwóch wiceprezesów tej spółki. Funkcję tę pełni do dziś.

W roku 2010 został jednym z trzech edytorów książki "Technology of Gallium Nitride Crystal Growth" wydanej przez Springer'a, która została rok później w języku rosyjskim wydana w Rosji i jest dostępna internetowo na stronach wydawnictwa (Springer online platform). Do czerwca 2012 r. rozdziały książki były pobierane ze strony internetowej 2552 razy, co świadczy o tym, że jest to ważna pozycja w światowej literaturze przedmiotu. Do końca 2012 r. dorobek naukowy dr Michała Boćkowskiego obejmował dwa patenty międzynarodowe, 154 publikacji cytowanych 2068 razy z czego około 1/3 prac zostało opublikowanych w takich czasopismach jak: Journal of Crystal Growth (23 prace), Applied Physics Letters (9 prac), Physica Review B (8 prac), Journal of Applied Physics (7 prac). Indeks Hirsha dla publikacji dr Michała Boćkowskiego wynosi 26. Jest to więc dorobek bardzo wartościowy i zdaniem recenzenta ponadprzeciętny. Dr Michał Boćkowski uczestniczył w 45 konferencjach naukowych wygłaszając 19 wykładów zaproszonych. Był współautorem kilku rozdziałów do książek wydawanych przez wydawnictwa: Wiley, Oxford University Press i Springer. Dr Michał Boćkowski uczestniczył i uczestniczy w wielu polskich i europejskich projektach naukowych, naukowo-technologicznych i wdrożeniowych jako kierownik, główny wykonawca i wykonawca. W dziedzinie technologii azotków galu, indu i glinu dr Michał Boćkowski jest niewątpliwie uznanym ekspertem na skalę światową. Prowadzi on szeroko rozwiniętą współpracę naukową z wieloma ośrodkami w kraju za granicą, a o tym, że jest znanym i cenionym specjalistą w uprawianej dziedzinie naukowej, świadczą m.in. wspólne publikacji z takimi „sławami” fizyki półprzewodników jak profesorowie B. Monemar, czy M. Cardona.

Dr Michał Boćkowski był członkiem komitetów organizacyjnych i naukowych oraz sesji naukowych na wielu międzynarodowych konferencjach poświęconych wzrostowi półprzewodników azotkowych takich jak: International Workshop on Bulk Nitride Semiconductors, Japanese Society of Applied Physics (JSAP) Autumn Meeting Symposium J: Nitride Semiconductors-Bulk and Related Growth and Characterization, International Workshop of Nitrides, International Conference on Nitride Semiconductors, International Workshop of Bulk Nitride Semiconductors. Świadczy to o tym, że dr Maciej Boćkowski jest dobrze znany i rozpoznawalny w międzynarodowym środowisku naukowym szerokopasmowych związków III-V.

Dr Michał Boćkowski wykazuje bardzo dużą aktywność na polu zdobywania środków finansowych na badania naukowe. W okresie od uzyskania stopnia doktora był kierownikiem 4 grantów (NCBiR, KBN, WKB i NCN), głównym wykonawcą w 4 grantach oraz wykonawcą w 6 grantach. Ze strony TopGaN Sp. z o.o. prowadził i prowadzi nadzór

formalny i merytoryczny w 17 projektach międzynarodowych i krajowych dotyczących otrzymywania nowoczesnych materiałów półprzewodnikowych oraz diod elektroluminescencyjnych i laserów półprzewodnikowych opartych o GaN pracujących w zakresie widmowym od ultrafioletu do zieleni.

Dr Michał Boćkowski w latach 2007-2008 był ekspertem w Narodowym Programie Foresight "Polska 2020", ekspertem kluczowym w projekcie „Monitorowanie i prognozowanie priorytetowych, innowacyjnych technologii dla zrównoważonego rozwoju województwa mazowieckiego” 2007, członkiem sekcji Technologii Elektronowej i Technologii Materiałów Elektronicznych Komitetu Elektroniki i Komunikacji PAN a w latach 2003 - 2006 członkiem Rady Naukowej IWC PAN (1995-2010). Jest również członkiem Polskiego Towarzystwa Wzrostu Kryształów.

Ocena rozprawy habilitacyjnej

Rozprawa habilitacyjna zatytułowana „**Ukierunkowany wzrost kryształów azotku galu na zarodkach metodą krystalizacji wysokociśnieniowej z roztworu atomowego azotu w galu**” jest zbiorem 7 monotematycznych prac opublikowanych w Journal of Crystal Growth uzupełnionym o opracowanie będące przewodnikiem po pracach załączonych jako habilitacja, zawierające krótki opis historii otrzymywania kryształów i cienkich warstw na bazie GaN w ostatnim dwudziestoleciu, cel pracy i osiągnięte rezultaty. Są to publikacje współautorskie a we wszystkich z nich dr Michał Boćkowski jest pierwszym współautorem i określa swój udział na 60%. Załączone oświadczenia współautorów w/w prac potwierdzają to stwierdzenie i wskazują na dominującą rolę habilitanta w ich przygotowanie.

Celem pracy było eksperymentalne zbadanie i dobranie najlepszych warunków technologicznych dla ukierunkowanego wzrostu azotku galu na zarodkach metodą krystalizacji wysokociśnieniowej z roztworu atomowego azotu w galu (High Nitrogen Pressure Solution - HNPS growth method). Metoda ta została wybrana ponieważ pozwala ona otrzymać przy wzroście spontanicznym, kryształy azotku galu małych rozmiarów ale z gęstością dyslokacji mniejszą od 10^2 cm^{-2} . Wielkim wyzwaniem ostatnich lat jest opracowanie technologii wytwarzania kryształów azotku galu o dużych rozmiarach i niskich koncentracjach defektów nadających się na podłoża do konstrukcji urządzeń optoelektronicznych a w szczególności laserów półprzewodnikowych emitujących promieniowanie w zakresie widmowym UV, niebieskim i zielonym. Zbiór prac będący przedmiotem tej habilitacji przedstawia nie tylko badania procesu krystalizacji, ale również jedną z dróg opracowania takiej technologii.

W pierwszej pracy [H1] „*Directional crystallization of GaN on high-pressure solution grown substrates by growth from solution and HVPE*” przedstawiono rezultaty badań wzrostu GaN na bezdyslokacyjnych heksagonalnych zarodkach azotku galu, otrzymywanych metodą HPS (high-pressure solution growth). Badano wzrost GaN na podłożach polarnych o orientacji (0001) Ga i (000-1) N metodami HPS i HVPE (hydride vapor phase epitaxy). Opracowano metodę przygotowania obu powierzchni do wzrostu i określono warunki zwilżania zarodki poprzez ciekły gal. Stwierdzono, że makroskopowo stabilny wzrost GaN odbywał się jedynie w kierunku $\langle 0001 \rangle$ a szybkość wzrostu w tym kierunku wahała się od 2 $\mu\text{m/h}$ do 10 $\mu\text{m/h}$ i zależała od stosowanych gradientów temperatury. Dla małych gradientów, do 20°C/cm, szybkość wzrostu wynosiła ok. 2 $\mu\text{m/h}$ a front krystalizacji był płaski. Otrzymano warstwy o grubości do 200 μm i gęstości dyslokacji na poziomie zarodki - 10² cm⁻² przy prędkościach stabilnego wzrostu dochodzących do 50 $\mu\text{m/h}$ co jest nowością w literaturze przedmiotu.

W drugiej pracy [H2] „*Deposition of bulk GaN from solution in gallium under high N₂ pressure on silicon carbide and sapphire substrates*” badano ukierunkowany wzrost GaN metodą HPS na obcych podłożach: węgiel krzemu, szafir, cienka warstwa MOCVD-GaN na szafirze. Podłoża te były i są używane w technikach epitaksji z fazy gazowej, w temperaturach do 1100°C. Głównym celem tej pracy było sprawdzenie zachowania się w/w podłożu w procesie epitaksji z fazy ciekłej w wysokich temperaturach (powyżej 1400°C). Tego typu badania nie były do tego czasu wykonywane. Proces wzrostu warstw przeprowadzano w dwóch konfiguracjach, takich, że podłoże znajdowało się w górnej lub dolnej części tygla z roztworem i stwierdzono, że szybkość wzrostu jest większa dla konfiguracji pierwszej. Ustalono, że dla stabilnego wzrostu GaN na obcych podłożach ciśnienie azotu dla danej temperatury wzrostu musi być o około 100 MPa wyższe niż to stosowane przy wzroście na monokryształach GaN. Ten wynik znalazł zastosowanie praktyczne w krystalizacji GaN w IWC PAN i TopGaN Sp. z o.o.. W pracy tej określono prędkości stabilnego wzrostu, które zależały od stosowanego przechłodzenia i gradientu temperatury i nie przekraczały 2 $\mu\text{m/h}$. Stwierdzono, że krystalizacja na SiC dawała warstwy spękane z gęstością defektów rzędu 5x10⁷ cm⁻², wzrost na szafirze jest polikrystaliczny, natomiast na podłożach MOCVD-GaN/szafir morfologicznie był identyczny ze wzrostem na monokryształach GaN, ale gęstość defektów sięgała 5x10⁷ cm⁻². Ten ostatni sposób wzrostu badano dokładnie w kolejnych trzech pracach [H3], [H4] i [H5].

Nowością w pracy [H3] „*Gallium nitride growth on sapphire/GaN templates at high pressure and high temperatures*” było zastosowanie po raz pierwszy przegrody w roztworze,

co pozwoliło uzyskać płaski front krystalizacji na podłożu i stabilny wzrost warstw grubszych niż 100 μm . Wykonane eksperymenty doprowadziły do wniosku, że dla krótkiego czasu krystalizacji do 30 h, szybkość wzrostu rośnie wraz ze wzrostem szybkości transportu azotu do strefy krystalizacji. Przy dłuższych czasach procesu wzrostu formowanie się stopni i tarasów zwalniało prędkość wzrostu w kierunku osi c, prowadząc do całkowitego zatrzymania procesu krystalizacji. Pokazano, że powyższe wnioski są słuszne również dla krystalizacji na monokryształach GaN. Ponieważ otrzymywane w powyższy sposób warstwy charakteryzowały się dużą gęstością dyslokacji rzędu $2,5\text{--}5 \cdot 10^7 \text{cm}^{-2}$, postanowiono zastosować w tej metodzie tzw. „lateral overgrowth” polegający na tym, że zamiast jednolitego podłoża stosuje się warstwę GaN podłoża MOCVD-GaN/szafir ukształtowaną w odpowiednie „paski” wytworzone metodą trawienia (praca [H4] „*Growth of GaN on patterned GaN/sapphire substrates by high pressure solution method*”). W takim przypadku wzrost odbywa się nie tylko w kierunku osi c, ale również „lateralnie” w kierunkach niepolarnych $\langle 10\text{-}10 \rangle$ i $\langle 11\text{-}20 \rangle$. Wiadomo już było wtedy, że we wzroście spontanicznym GaN z roztworu atomowego azotu w galu, prędkość wzrostu w wymienionych wyżej kierunkach jest 100 razy większa niż w kierunku osi c. Okazało się, że otrzymywane w ten sposób warstwy GaN miały o dwa rzędy mniejszą gęstość dyslokacji niż „podłożowe” paski GaN ale parazytyczna nukleacja GaN między paskami oraz efekt koalescencji rozrastanych pasków, powodowały generacji naprężeń i defektów w warstwie.

Praca [H5] „*High pressure-high temperature seeded growth of GaN on 1 in sapphire/GaN templates: Analysis of convective transport*” dotyczy wzrostu GaN tą samą wysokociśnieniową metodą i na tych samych podłożach (MOCVD-GaN/szafir) co w pracy [H3], z tym, że stosowane tutaj podłoża miały średnicę 1 cala a więc powierzchnię kilka razy większą od stosowanych dotychczas. Zastosowano w tej pracy pięć różnych geometrycznych konfiguracji procesu krystalizacji ukierunkowanej, przeprowadzonych w tych samych warunkach eksperymentalnych. Stwierdzono, że szybkość wzrostu silnie zależy od zjawisk zachodzących na powierzchni zarodki i że nie wszystkie atomy azotu docierające do powierzchni zarodki są na niej adsorbowane. Spontaniczna krystalizacja zachodziła również na ściankach tygła. W pracy przedstawiono wyniki modelowania przeprowadzanych eksperymentów za pomocą metody elementów skończonych. Okazało się, że pomiary temperatury w ścianach i dnie tygła nie odzwierciedlają realnego rozkładu temperatury w ciekłym galu. To ostatnie zjawisko jest na ogół powszechne w eksperymentalnych, wysokotemperaturowych układach otrzymywania kryształów i cienkich warstw. Pokazano

w jaki sposób przegroda ogranicza ruch konwekcyjny przy zarodki w stosunku do ruchu w roztworze i tym samym wpływa na otrzymywanie płaskiego frontu krystalizacji na powierzchniach zarodki.

Ostatnie dwie prace dotyczą krystalizacji wysokociśnieniowej GaN na zarodkach GaN otrzymanych metodą HVPE (HVPE-GaN). W pracy [H6] „*GaN crystallization by the high-pressure solution growth method on HVPE bulk seed*”, zarodek zawieszano w roztworze tak, że możliwy był wzrost kryształu w każdym kierunku. Analizowano wzrost w kierunkach $\langle 0001 \rangle$ oraz $\langle 000-1 \rangle$ i okazało się, że tylko wzrost w kierunku $\langle 0001 \rangle$ (strona Ga) był stabilny. Analizowano przepływy konwekcyjne w roztworze, uwzględniając zależności czasowe. Otrzymane w tej pracy rezultaty doprowadziły do uzyskania pierwszego wysokociśnieniowego, odseparowanego od zarodki, kryształu GaN o własnościach nadających się do użycia go jako podłoże dla konstrukcji przyrządów optoelektronicznych. W pracy [H7] „*Multi feed seed (MFS) high pressure crystallization of 1–2 in GaN*”, stosowano krystalizację ukierunkowaną w zaproponowanej przez I. Grzegory, konfiguracji multi-feed-seed (MFS), która polega na ułożeniu kilku zarodków jeden nad drugim i przedzieleniu ich ciekłym galem. Na skutek gradientu temperatury, po górnej stronie zarodki odbywa się krystalizacja GaN, a dolna część zarodki jest rozpuszczana. Używając jako zarodki kryształów HVPE-GaN uzyskano stabilny wzrost ciśnieniowych kryształów IINPS-GaN. Badania pokazały, że w tej metodzie zdecydowanie poprawia się jakość strukturalna i spada gęstość dyslokacji, a koncentracja swobodnych nośników przewyższa $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Rozwój metody krystalizacji w konfiguracji MFS pozwolił na otrzymanie, poprzez domieszkowanie Mg, również wysoko-oporowych kryształów GaN. Dziś ta konfiguracja stanowi podstawę otrzymywania podłoży dla budowy przyrządów optoelektronicznych w IWC PAN i TopGaN Sp. z o.o. jak również była tematem referatu zaproszonego na największej światowej konferencji poświęconej materiałom azotkowym-IWN w 2012 r.

Azotek galu i jego roztwory stałe jest bardzo ważnym materiałem półprzewodnikowych dla współczesnej optoelektroniki. Technologia otrzymywania tego materiału o własnościach użytecznych dla zastosowań praktycznych opracowana została stosunkowo niedawno i w przemyśle przyrządów półprzewodnikowych stosowany jest od około 10 lat a mimo to zajmuje on obecnie drugą pozycję po krzemie. Technologia tego materiału należy do najtrudniejszych technologii materiałów półprzewodnikowych ze względu na wysoką temperaturę topnienia i bardzo dużą różnicę ciśnień par poszczególnych składników. Materiał ten jest niezwykle ważny dla przemysłu optoelektronicznego ale nie wszystkie problemy, głównie technologiczne, zostały dotychczas rozwiązane. Praca dotyczy

jednego z takich problemów. Jest ona nowatorska, ma bardzo duże znaczenie poznawcze, ale przede wszystkim praktyczne i bez wątpienia jest ważnym krokiem naprzód w rozwoju danej dyscypliny naukowej oraz technologii przyrządów optoelektronicznych na bazie GaN.

Recenzowana praca jest pracą głównie eksperymentalną. Przeprowadzane eksperymenty technologiczne są w tym przypadku wyjątkowo trudne i czasochłonne. Wymagają od eksperymentatora cierpliwości i niezwyklej staranności. Sam spędziłem sporo czasu nad technologią otrzymywania kryształów i cienkich warstw związków II-VI i doskonale zdaję sobie sprawę z tego, że dobranie najlepszych warunków krystalizacji jest raczej sztuką opartą o wieloletnią praktykę, niż problemem który można rozwiązać na drodze teoretycznej.

Przedstawiona rozprawa habilitacyjna stanowi podsumowanie wieloletniej pracy dra Boćkowskiego nad technologią otrzymywania kryształów GaN. Praca przynosi szereg interesujących nowych wyników i ma bardzo duże znaczenie aplikacyjne. Reasumując, prace stanowiące podstawę rozprawy habilitacyjnej stanowią istotny wkład w rozwój i zrozumienie procesów odpowiedzialnych za wzrost kryształów azotku galu dla potrzeb współczesnej optoelektroniki.

Podsumowanie

Podsumowując całokształt dorobku naukowego, organizacyjnego i rozprawę habilitacyjną stwierdzam, że dr Michał Boćkowski zgromadził obszerny i wartościowy dorobek naukowy i naukowo-techniczny. Dr Michał Boćkowski w pełni udowodnił swoją dojrzałość naukową, a w dziedzinie fizyki półprzewodników i technologii wzrostu kryształów stał się znaną postacią na arenie międzynarodowej.

Uważam, że dr Michał Boćkowski jest pracownikiem naukowym zasługującym na uzyskanie tytułu naukowego doktora habilitowanego. Przedstawiona do recenzji rozprawa i dokumentacja spełniają wymogi formalne stawiane przez ustawę o stopniach naukowych kandydatom ubiegającym się o nadanie stopnia doktora habilitowanego.

Franciszek Firszt