



НАНОСТРУКТУРЫ

математическая физика и моделирование



Nanostructures. Mathematical physics & modelling

НАНОСТРУКТУРЫ

математическая физика и моделирование

Nanostructures.
Mathematical Physics & Modelling

2023, volume 23(1)

Наноструктуры. Математическая физика и моделирование

Редколлегия:

**В.А. Аветисов, А.А. Белолипецкий И.В. Волович,
В.В. Гусаров, П.Н. Дьячков, Р.Г. Ефремов, Ю.Е. Лозовик,
М.А. Мазо, В.П. Маслов,
А.В. Махиборода (*ответственный секретарь*), А.Ю. Морозов,
С.А. Никитов, Г.Э. Норман, Р.А. Сурис, В.А. Тулин, Ю.А. Флёров,
А.С. Холево, А.Р. Хохлов, А.В. Чаплик,
Л.А. Чернозатонский, К.В. Шайтан**

Электронная версия журнала размещается на сайте
<http://nano-journal.ru>

Адрес редакции:

123458, Москва, ул. Таллинская, д. 34, каб. 429
+7 (495) 916-88-76
nanostructures@hse.ru

Контакты для представления статей и деловой переписки

Ответственный секретарь Махиборода А.В.
+7 (916) 578-95-27
makhiboroda@yandex.ru

Москва

© 2023, ООО Сенсор Микрон

Содержание

В.Ф. Дегтярев

**Перестройка резонансных туннельных уровней
при образовании квантово-размерной цепочки с базисом 5**

М.Д. Кочергин, К.К. Удодова, И.А. Беляков, Д.В. Вертянов, А.А. Гаврилова

**Исследование влияния модификации поверхностей промоторами адгезии
на основе аминосилана и эпоксихлоридов на адгезию полиимидных диэлектриков
к кремнию и меди в слоях перераспределения 16**

Е.Р. Бурмистров, Л.П. Авакянц

**Самосогласованное решение системы уравнений Шредингера
и электронейтральности Пуассона для гетероструктур со множественными
квантовыми ямами $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ 31**

Актуальные публикации прошлых лет

Л. Вольперт

**Проблема трехцветного флага —
к вопросу о развитии и регуляции пространственной структуры 47**

Б. Гудвин

Деление клеток и объединение идей 57

Информация и правила для авторов 63

Contents

V.F. Degtiarev

**Restructuring resonance tunnel levels during the formation
of a quantum-dimensioned chain with a basis5**

M.D. Kochergin, K.K. Udodova, I.A. Belyakov, D.V. Vertyanov, A.A. Gavrilova

**Investigation of the effect of surface modification with adhesion promoters based
on aminosilane and epoxysilane on adhesion of polyimide dielectrics
to silicon and copper in redistribution layers16**

E.R. Burmistrov, L.P. Avakyants

**Photo- and electroluminescence spectra
of heterostructures with $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ multiple quantum wells31**

Actual matter published in the last years

Wolpert L.

**The problem of the tricolor flag — to the question of the development
and regulation of spatial structure47**

Goodwin B.C.

Cell division and the unification of ideas57

The information and rules for authors63

ПЕРЕСТРОЙКА РЕЗОНАНСНЫХ ТУННЕЛЬНЫХ УРОВНЕЙ ПРИ ОБРАЗОВАНИИ КВАНТОВО-РАЗМЕРНОЙ ЦЕПОЧКИ С БАЗИСОМ

В.Ф. Дегтярев

*Московский технический университет связи и информатики,
Москва, Авиамоторная ул., 8а;
E-mail: vfsteel2008@gmail.com*

Поступила 13.10.2023

Исследован механизм перестройки резонансных туннельных уровней в процессе образования слоистой квантово-размерной структуры. Для частиц с энергией, равной энергии уровней, прозрачность структуры равна единице. Рассмотрена цепочка с базисом, состоящим из двух барьеров различной высоты. Установлено, что с увеличением числа звеньев происходит расщепление этих уровней на близкие подуровни и изменение волновой функции. Рассмотрен механизм перестройки уровней в цепочке, основанный на представлениях о точках смены фаз колебаний осцилляторов. Установлено, что параметры этих подуровней (энергия, полуширина и волновая функция) зависят от параметров ячейки и числа звеньев в цепочке. Рассмотрен случай, когда $E < U$.

Ключевые слова: квантовая механика, квантовый барьер, волновая функция, прозрачность, наноэлектроника, резонансное туннелирование.

DOI: 10/31145/2224-8412-2023-23-1-5-15

Введение

Резонансное туннелирование в квантово-размерных структурах представляет собой новое быстро развивающееся направление исследований в наноэлектронике. Описанию свойств подобных структур посвящен ряд обзоров, например [1-3]. В этих работах достаточно подробно рассмотрена их энергетическая структура, оптические и электрические свойства. Следует ожидать, что роль квантово-размерных эффектов с увеличением размеров сверхрешетки будет возрастать, определяя их основные свойства.

В современных нанoeлектронных приборах (резонансных туннельных диодах и транзисторах и др.) активная область имеет размеры порядка нескольких нанометров. Эта величина сравнима с длиной волны электрона и межатомным расстоянием типичных полупроводников, что приводит к существенному влиянию квантово-размерных эффектов на их работу. Среди этих эффектов значительную роль играют резонансные явления при туннелировании. Полупроводниковые квантово-размерные структуры, в частности гетероструктуры с квантовыми ямами (КЯ) и барьерами (КБ), занимают лидирующие позиции в качестве материалов для опто- и нанoeлектроники [1].

Размерное квантование приводит к значительной перестройке энергетического спектра наноструктур [4,5]. При этом в квантово-размерной цепочке возникают новые резонансные уровни, приводя к существенному изменению их электрических и оптических свойств.

В данной работе изучен процесс перестройки этих уровней при увеличении числа квантово-размерных ячеек, образующих структуру.

Модели структур, изучаемых в работе, и методика моделирования

В настоящей работе нахождение волновых функций и коэффициентов прозрачности системы барьеров проводилось путем непосредственного решения уравнения Шредингера для заданного потенциала с соответствующими граничными условиями в системе компьютерной алгебры MAPLE. Системы компьютерной алгебры помимо численного решения поставленной задачи позволяют получить и аналитическое решение, что делает расчеты более наглядными, и позволяет не только построить теоретическую модель физического процесса, но и визуализировать полученные результаты.

В работе рассмотрена цепочка со сложным базисом, состоящим из двух барьеров различной высоты. Схемы барьеров показаны на рис. 1. При этом рассмотрены два случая, когда в начале цепочки стоит высокий барьер (случай А) или низкий (случай Б) барьер. Последующие барьеры присоединяются к цепочке регулярным образом путем чередования высоких и низких барьеров (рис.1). При этом получается цепочка, состоящая из правильно чередующихся высоких и низких барьеров. Цепочка типа А начиналась с высокого барьера, и заканчивалась высоким (тип 1А), либо низким (тип 2А) барьером. Цепочка типа Б начиналась с низкого барьера, а заканчивалась высоким (тип 2Б), либо низким (тип 1Б) барьером. Параметры барьеров в цепочке принимались следующими: ширина барьеров (а) и ям (b) — 1 нм, что примерно соответствует межатомному расстоянию в кристаллах. Высота большого барьера (U_1) составляла 2, высота малого барьера (U_2) — 1. Амплитуда падающей волны принималась равной единице ($\Psi_{in}(x) = 1 \cdot e^{ikx}$).

В работе исследована зависимость положения резонансных туннельных уровней (РТУ) и прозрачности структуры от характеристик цепочки. По зависимости $T(E)$ (T — коэффициент прозрачности цепочки) определялось положение максимума пика (E_0) и его энергетическая ширина ΔE_{05} на половине высоты.

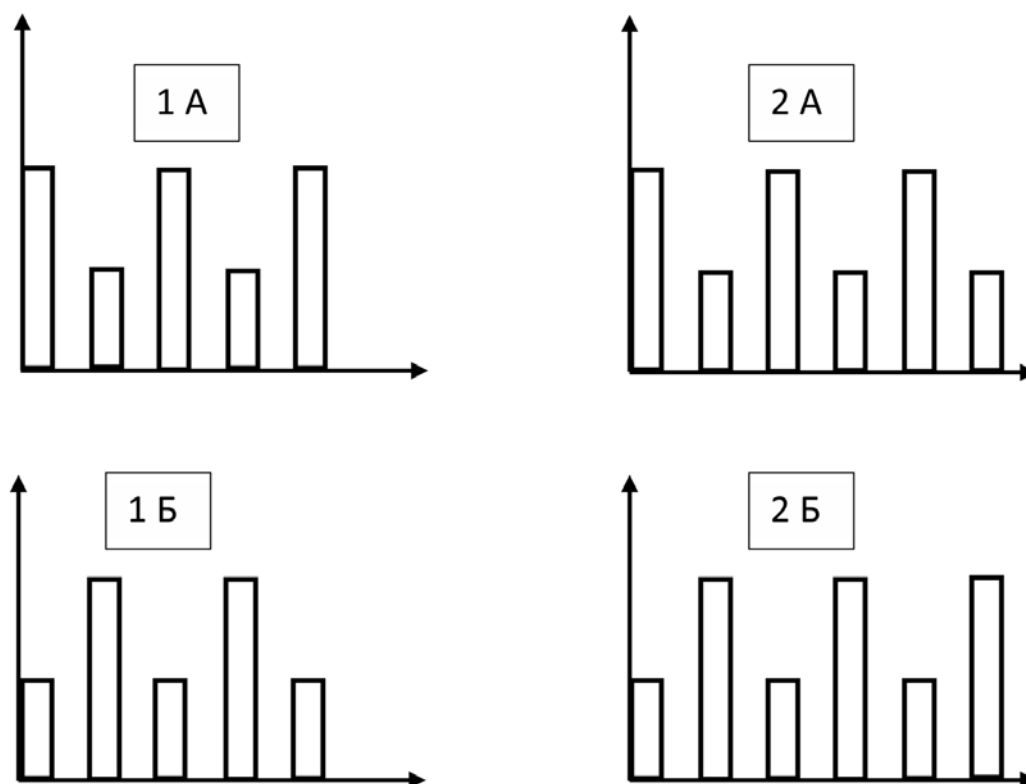


Рис. 1. Схемы квантово-размерных цепочек, исследованные в работе

Некоторые характеристики резонансных уровней в простейшей ячейке, состоящей из двух барьеров

Рассмотрим сначала простейшую ячейку, состоящую из двух барьеров одинаковой высоты (2 эВ). В таком звене, также как и в потенциальной яме конечной глубины возникает система уровней [2,3], положение которых определяется условием $b = n \frac{\lambda}{2}$, где b — ширина ямы, λ — длина волны частицы с энергией частицы E , $n = 1, 2, \dots$ — число полувольт, укладывающихся на ширине ямы. Прозрачность цепочки для частиц с такой энергией равна единице. Энергия этих уровней составляет $E_1 = 0.2289$ эВ, $E_2 = 0.8872$ эВ и $E_3 = 1.8181$ эВ. Энергетическое положение пиков зависит от ширины и глубины ямы. С ростом ширины ямы энергия пиков уменьшается. При постоянной ширине ямы положение резонансных пиков практически не зависит от ширины потенциального барьера, разделяющего звенья.

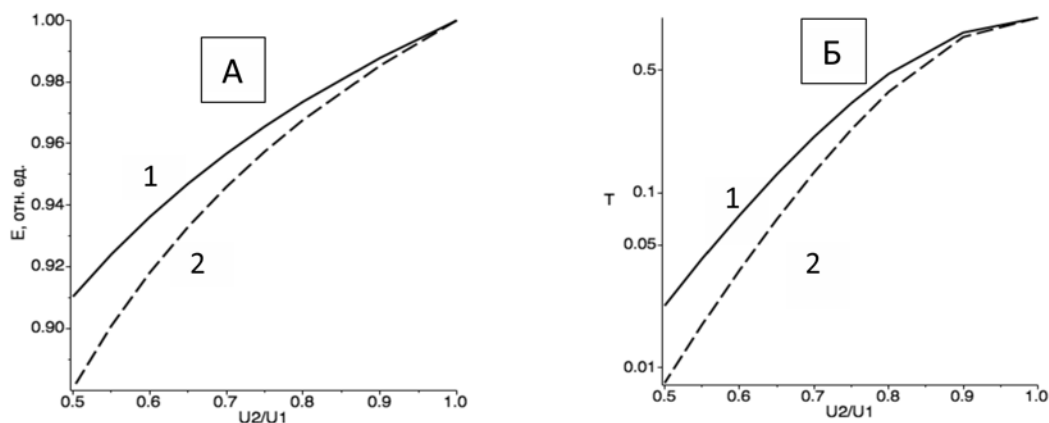


Рис. 2. Зависимость энергии РТУ (А) и прозрачности (Б) двухбарьерной структуры от высоты второго барьера (U_2) для уровней :
1 — $E=0.2289$ эВ и 2- $E=0.8872$ эВ. Высота первого барьера $U_1=2$ эВ

Следует отметить, что прозрачность системы при уменьшении высоты второго барьера также уменьшается. Связано это с ухудшением резонансных характеристик системы. При высоте второго барьера 1 эВ прозрачность для электронов с энергией 0.2084 эВ составляет всего около 2%.

Присоединим к системам из двух барьеров третий в соответствии с рис.1. При этом наблюдается расщепление исходного уровня с энергией 0.2084 эВ на два подуровня. Схемы расщепления показаны на рис. 3 А и Б. Как видно, характер расщепления зависит от типа структуры.

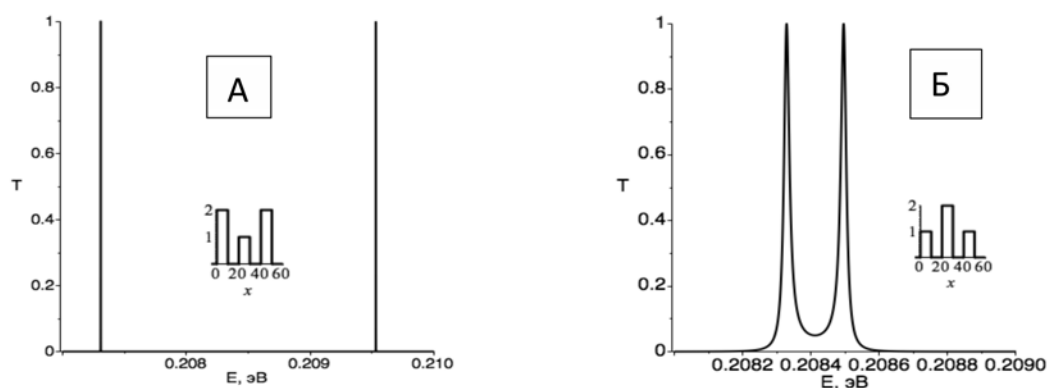


Рис. 3. Схема расщепления уровня 0.20841 эВ на подуровни в структурах типа А и типа Б (рис.1).

Структуры схематически показаны на врезках к рисункам.

Структура на рис. 3А на концах содержит высокие барьеры. Взаимодействие между соседними звеньями при этом достаточно велико, вследствие чего исходный уровень расщепляется на два подуровня с энергиями примерно 0.207 эВ и 0.209 эВ. В структуре второго типа (рис. 3Б) высокий барьер

расположен в центре. Поэтому взаимодействие между соседними ячейками слабее, соответственно меньше и расщепление исходного уровня (рис. 3Б). Величина расщепления составляет всего 0.0002 эВ. Подобный характер расщепления соответствует классическим представлениям о взаимодействии связанных осцилляторов, развитым, например в [6]. Резонансные частоты, согласно [6], находятся из решения уравнения $(1 - \frac{\omega_1^2}{\omega^2})(1 - \frac{\omega_2^2}{\omega^2}) = k^2$, где k — коэффициент связи; ω_1, ω_2 — резонансные частоты изолированных осцилляторов. В случае одинаковых осцилляторов выражения для резонансных частот приобретают вид:

$$\omega_1 = \frac{\omega_0}{\sqrt{1+k}}; \quad \omega_2 = \frac{\omega_0}{\sqrt{1-k}}$$

Отсюда видно, что с ростом k величина расщепления действительно возрастает. При дальнейшем увеличении числа звеньев в цепочке происходит последовательное расщепление получившихся уровней.

Расщепление резонансных уровней при образовании квантово-размерной цепочки

Проведенные компьютерные эксперименты показывают, что характер расщепления РТУ зависит от структуры цепочки барьеров. При этом в процессе образования сверхрешетки наиболее существенную перестройку претерпевают РТУ с энергией 0.207 эВ и 0.209 эВ. Такие энергии имеют структуры, показанные на рис. 3А. Кроме того в ряде цепочек на концах имеются звенья содержащие барьеры высотой 1 эВ (рис. 3Б). Наличие таких звеньев приводит к появлению уровней с энергией 0.2084 эВ. Прозрачность таких цепочек мала и экспоненциально уменьшается с ростом длины (рис. 4). В цепочках, содержащих более четырех барьеров высотой 2 эВ, эти уровни практически не наблюдаются. Поэтому в работе основное внимание уделяется перестройке цепочек, обладающих резонансными уровнями с энергией 0.207 эВ и 0.209 эВ, которые начинаются и заканчиваются высокими барьерами (звенья типа рис. 3А). Каждое такое звено в своем составе имеет два типа барьеров. Поэтому цепочка, содержащая N барьеров, будет состоять из $\frac{N}{2}$ звеньев. С увеличением числа звеньев в цепи резонансные уровни расщепляются на подуровни, число которых равно удвоенному числу звеньев в системе (числу степеней свободы). Основными уровнями, возникающими в ячейке, являются РТУ с энергиями 0.207 эВ и 0.209 эВ. По мере увеличения числа звеньев каждый из этих уровней расщепляется на систему близких подуровней. Основная ячейка такой цепочки (рис. 3А) содержит две потенци-

альные ямы, разделенные сравнительно низким барьером. Вследствие этого электроны, локализованные в каждой яме достаточно эффективно взаимодействуют между собой. Это взаимодействие приводит к образованию либо четной (когда колебания в соседних полуволнах происходят в одной фазе), либо нечетной (когда колебания в соседних полуволнах происходят в противоположных фазах) конфигурации электронных волн. В результате вместо одного исходного уровня с энергией 0.2084 эВ образуются два подуровня. При этом уровню с энергией 0.207 эВ соответствует четная конфигурация (все колебания осцилляторов происходят в одной фазе), а уровню 0.209 эВ — нечетная конфигурация волной функции. При увеличении длины цепочки третье звено взаимодействует с предыдущими аналогичным образом. В результате этого число пиков прозрачности соответствует числу звеньев в цепи. Отметим также, что расщепление уровней во взаимодействующих квантовых ячейках аналогично расщеплению резонансных частот в связанных резонансных контурах [7,8]. Энергия образующихся при этом уровней определяется числом точек смены фаз колебаний. Число таких точек изменяется от 0 до $2N$, где N — число основных ячеек. С ростом числа точек смены фаз энергия подуровня возрастает пропорционально числу этих точек. Следует отметить, что положение точек смены фаз не влияет на энергию подуровней. С увеличением длины цепочки энергетическое расстояние между подуровнями уменьшается, что связано с ослаблением взаимодействия между звеньями. На рис. 5 показано, как происходит перестройка уровней в цепочке типа А с ростом числа звеньев.

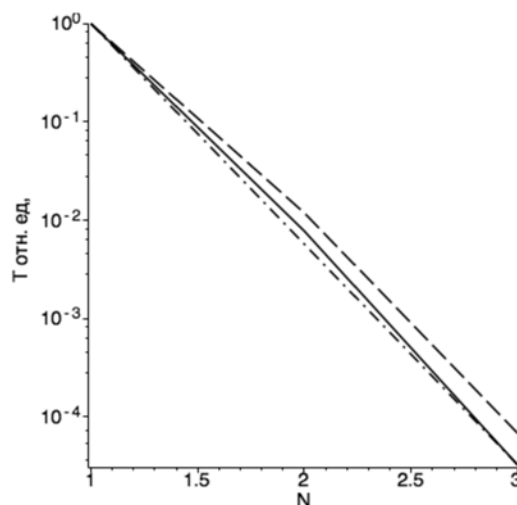


Рис. 4. Зависимость прозрачности цепочки для частиц с энергией 0.2084 эВ от числа звеньев. Сплошная кривая — структура 2Б, пунктирная — 1Б, штрихпунктирная — 2А

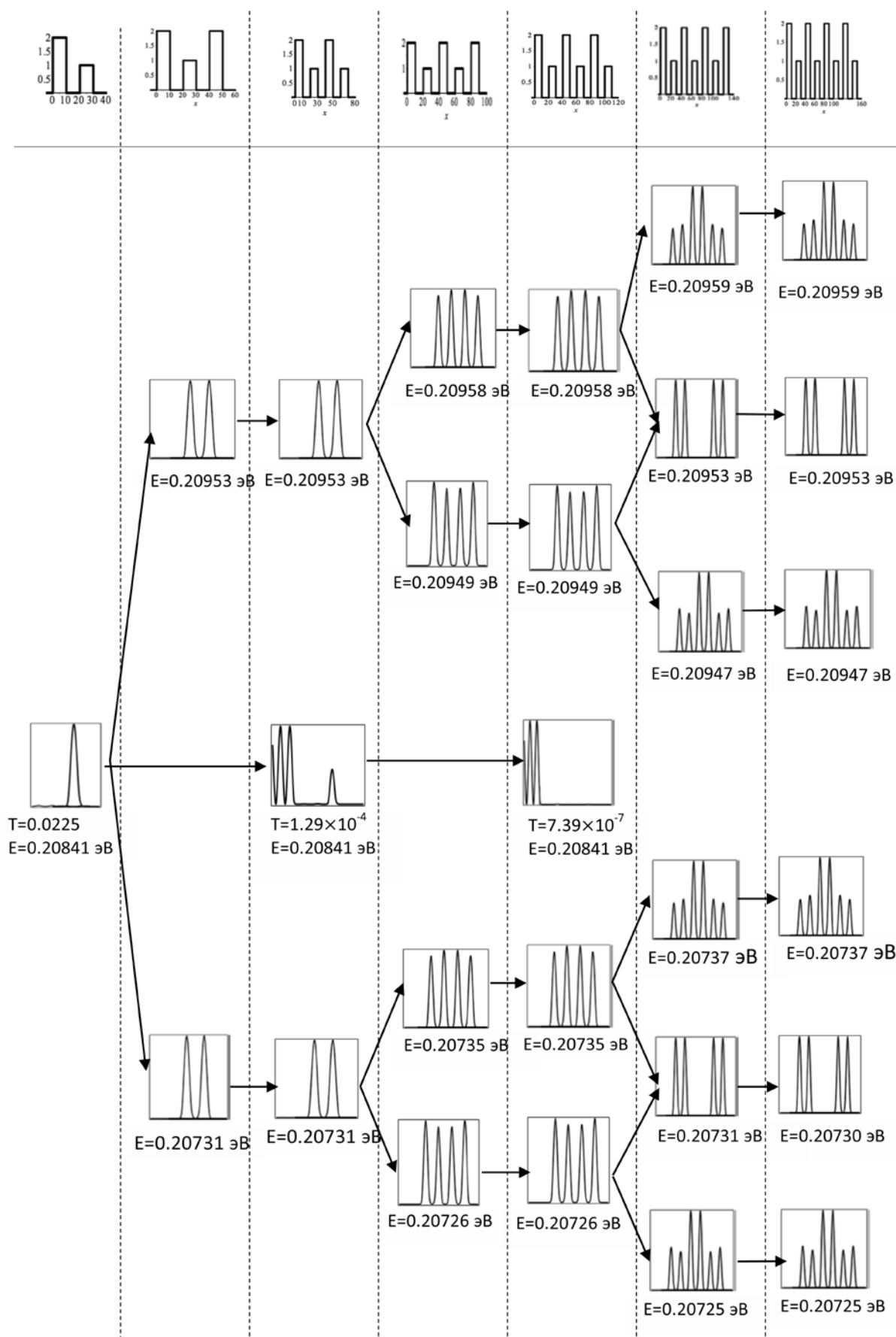


Рис. 5. Схема расщепления РТУ в цепочке типа А (рис. 1).

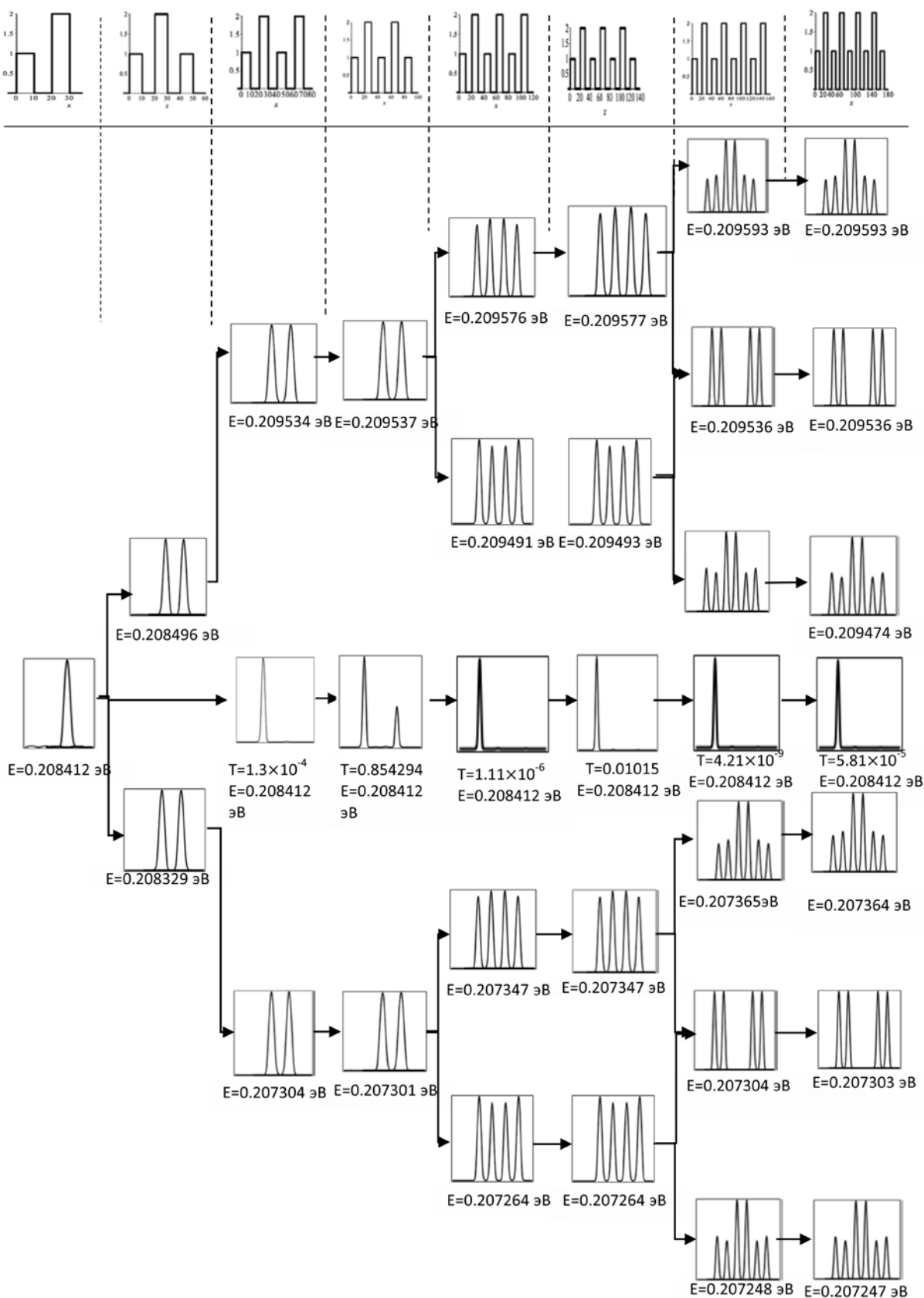


Рис. 6 Схема расщепления РТУ в структуре типа Б (см. рис. 1).

Рассмотрим некоторые особенности расщепления резонансных уровней в цепочке типа Б (рис. 1). Схема цепочки показана на рис. 1 (1Б и 2Б), а схема расщепления уровней на рис. 6. Цепочка этого типа начинается с барьера малой высоты. В дальнейшем в ней происходит чередование высоких и низких барьеров. В цепочках этого типа, также как и в цепочках типа А происходит расщепление исходных уровней на подуровни с энергией 0.207 эВ и 0.209 эВ что говорит об сходстве механизмов образования уровней в этих структурах. Цепочка типа Б всегда содержит на своих концах один или два барьера высотой 1 эВ (рис.1). Это приводит к тому, что в спектрах прозрачности цепочек такого типа наблюдаются уровни с энергией 0.20841 эВ. Причем в структурах, содержащих две ячейки, прозрачность оказывается выше, чем в системах с одной ячейкой. Это может быть вызвано определенным взаимодействием между ячейками. С ростом длины цепочки прозрачность для частиц такой энергии экспоненциально уменьшается. Эта зависимость показана на рис. 4.

Заключение

В работе рассмотрены некоторые особенности взаимодействия квантовых ячеек между собой.

Показано, что при образовании квантово-размерной структуры элементарные ячейки, взаимодействуя между собой, образуют систему квантовых туннельных подуровней.

Установлено, что с уменьшением толщины барьера между ячейками коэффициент связи увеличивается и возрастает величина расщепления между подуровнями. При этом энергия подуровня с симметричной конфигурацией волновой функции уменьшается, а с антисимметричной — возрастает.

Рассмотрена модель взаимодействия квантовых ячеек между собой. Установлено, что характер взаимодействия аналогичен классическому взаимодействию резонансных контуров. На основании рассмотренной модели рассчитаны спектры прозрачности и волновые функции связанных ячеек.

Установлено, что, если раздвигать звенья цепочки с образованием промежуточной потенциальной ямы между ними, то коэффициент связи носит резонансный характер. При этом, если на ширине промежуточной ямы укладывается целое число полувольт, расщепление будет максимальным. При других значениях ширины промежуточной ямы прозрачность системы и расщепление подуровней пренебрежимо мало.

В заключение автор считает своим приятным долгом выразить искреннюю благодарность профессору А.П. Жилинскому за постоянный интерес к работе и полезные замечания.

Литература:

1. *Демиховский В.Я, Вугальтер Г.А.* Физика квантовых низкоразмерных структур// М. , Логос, 2000, 248 с.
2. *Давыдов А.С.* Квантовая механика //М., Наука, 1973, 702 с.
3. *Левич В.Г., Вдовин Ю.А., Мямлин В.А.* Курс теоретической физики, т. 2// М., Наука, 1971, 936 с.
4. *Драгунов В. П., Неизвестный И. Г., Гридчин В. А.* Основы наноэлектроники// Новосибирск: НГТУ, 2000. 331 с.
5. *Аладышкин А.Ю.* Туннельные явления в нанофизике // Нижегород. гос. ун-т. Н. Новгород, 2011. 32 с.
6. *Демирчян К.С, Нейман Л.Р, Коровкин Н.В., Чечурин В.Л.* Теоретические основы электротехники, т.1, // СПб.: Питер, 2003, 463 с.
7. *Стрелков С.П.* Введение в теорию колебаний.// СПб: Лань, 2005. 440 с. 8. Крауфорд Ф. Берклеевский курс физики. Т. 3. Волны. М.: Наука, 1984, 521 с.

RESTRUCTURING RESONANCE TUNNEL LEVELS DURING THE FORMATION OF A QUANTUM- DIMENSIONED CHAIN WITH A BASIS.

V.F. Degtiarev

*Moscow Technical University of Communications and Informatics,
Moscow, Aviamotornaya st., 8a;
E-mail: vfsteel2008@gmail.com*

Received 13.10.2023

The mechanism of rearrangement of resonant tunnel levels during the formation of a layered quantum-size structure has been studied. For particles with energy equal to the energy of the levels, the transparency of the structure is equal to unity. A chain with a basis consisting of two barriers of different heights is considered. It has been established that with an increase in the number of units, these levels split into close sublevels and the wave function changes. The mechanism of rearrangement of levels in the chain, based on ideas about the points of change of phases of oscillator oscillations, is considered. It has been established that the parameters of these sublevels (energy, half-width and wave function) depend on the cell parameters and the number of links in the chain. The case is considered when $E < U$.

Keywords: quantum mechanics, quantum barrier, wave function, transparency, nanoelectronics, resonant tunneling.

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ МОДИФИКАЦИИ ПОВЕРХНОСТЕЙ ПРОМОТОРАМИ АДГЕЗИИ НА ОСНОВЕ АМИНОСИЛАНА И ЭПОКСИСИЛАНА НА АДГЕЗИЮ ПОЛИИМИДНЫХ ДИЭЛЕКТРИКОВ К КРЕМНИЮ И МЕДИ В СЛОЯХ ПЕРЕРАСПРЕДЕЛЕНИЯ

М.Д. Кочергин, К.К. Удодова, И.А. Беляков, Д.В. Вертянов,
А.А. Гаврилова

*Национальный исследовательский университет
«Московский институт электронной техники»
misha.kochergin1999@yandex.ru*

Поступила 20.11.2023

В работе рассмотрены аспекты технологии корпусирования кристаллов на уровне пластины. Для борьбы с деформациями конструкций, вызванных термомеханическими напряжениями в слоях перераспределения из-за несоответствия температурных коэффициентов линейного расширения различных материалов в структуре, предложен подход увеличения адгезии между сопрягающимися материалами. Проведено изучение адгезии различных полиимидных диэлектриков (полиимидные лаки ПИ-ЛК и АД9103) к кремнию и к меди, в том числе после обработки поверхностей промоторами адгезии на основе аминосилана и эпоксисилана. Для испытаний экспериментальных образцов разработан стенд и соответствующая оснастка. По результатам испытаний, адгезия между исследуемыми материалами оказалась выше, чем прочность кремния на разрушение, вследствие чего конкретные значения величины адгезии между исследуемыми материалами не были получены. На основе проведенных испытаний предложено несколько способов усовершенствования методики проведения подобных испытаний.

Ключевые слова: полиимид, адгезия, кремний, медь, корпусирование, слои перераспределения

УДК 621.3.049.7

DOI: 10/31145/2224-8412-2023-23-1-16-30

Введение

С развитием технологий полупроводниковой промышленности процессы изготовления микросхем становятся все более сложными, что требует соответствующих изменений в технологиях корпусирования.

Технология внутреннего монтажа — это монтаж бескорпусных кристаллов в тело основы функционального радиоэлектронного модуля. В соответ-

ствии с данной технологией кристаллы интегральных схем не корпусируются, а встраиваются в тело самой подложки — основы функционального радиоэлектронного блока печатной платы. На сегодняшний день технология внутреннего монтажа находит широкий спектр применений, начиная с потребительских устройств и заканчивая высоконадежной электроникой для космического и военного применения.

По сравнению с другими известными технологиями сборки и монтажа кристаллов, таких, например, как flip-chip или проволоочный монтаж, технология внутреннего монтажа повышает соотношение «функциональность/площадь», позволяет разместить несколько кристаллов в одной микросборке, улучшает электрические характеристики изделия за счет более коротких межсоединений, позволяет повысить эффективность теплоотвода за счет встраивания радиаторов или других систем теплоотвода прямо внутри конструкции, исключает операции пайки или сварки выводов, а также позволяет провести монтаж кристалла с гораздо меньшими топологическими нормами. Для технологии внутреннего монтажа жидкостное химическое травление печатных плат заменяется вакуумным напылением проводящего слоя. Одновременно с формированием токоведущих дорожек печатной платы методом вакуумного напыления происходит соединение контактных площадок интегральных схем с токоведущими дорожками [1,2].

За время своего развития технология внутреннего монтажа разделилась на множество видов, предлагающих различные варианты конструкции и изготовления, но сохраняющих общую концепцию «кристалл внутри тела подложки». Среди наиболее распространенных технологий можно выделить FOWLP (Fan out wafer level packaging, рассредоточенный подход к корпусированию кристаллов на уровне пластины) и FIWLP (Fan in wafer level packaging, сосредоточенный подход к корпусированию кристаллов на уровне пластины) [3].

FOWLP — это технология корпусирования, разработанная для потребностей высокой плотности выводов. Принцип технологии заключается в том, чтобы протянуть проводящую дорожку от кристалла к слою перераспределения (redistribution layer, RDL). Эта технология не требует присоединения интерпозера в виде отдельной подложки или проволоочных соединений, что позволяет сделать общую микросборку тоньше. На рисунке 1 показан технологический процесс производства FOWLP. На 3-ем, 4-ом, 6-ом, 8-ом и 10-ом этапах конструкция подвергается тепловому воздействию [4].

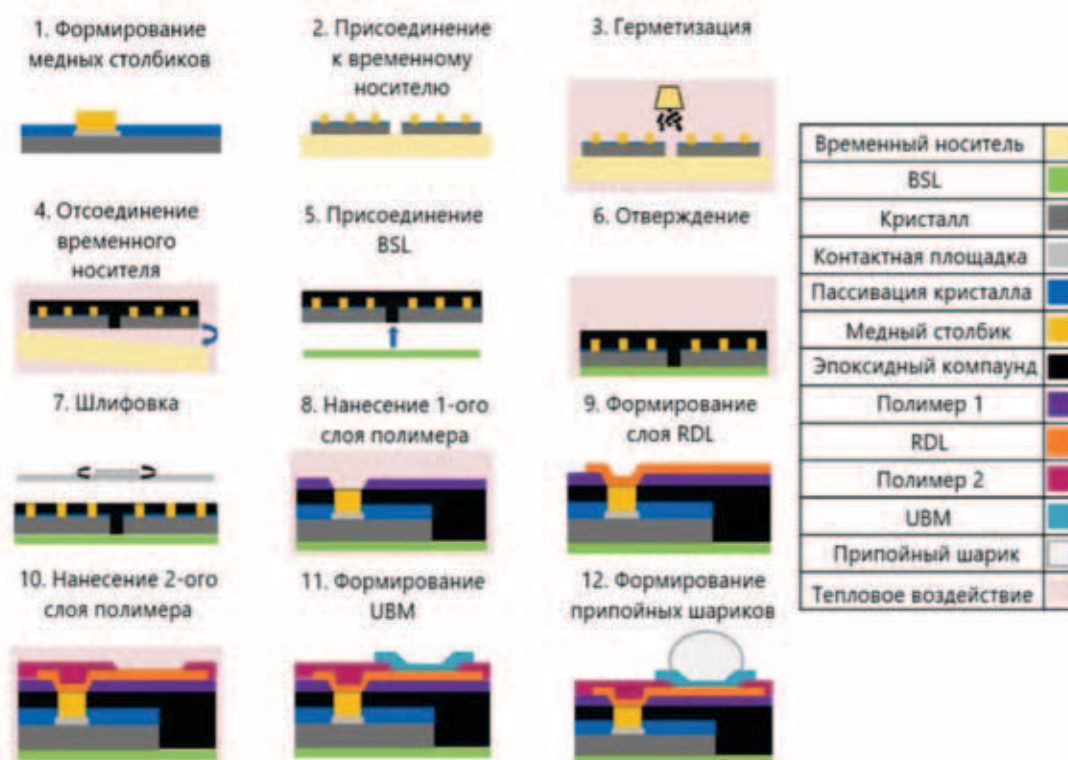


Рисунок 1 — Технологический процесс корпусирования по технологии FOWLP с медными столбиками по методу chip-first

Самой большой проблемой, с которой в настоящее время сталкивается рассматриваемая технология, является возникновение термомеханических напряжений в процессе нагрева. Это вызвано несоответствием температурных коэффициентов линейного расширения (ТКЛР) между различными материалами в структуре. В процессе производства, особенно при термической обработке с экстремальными колебаниями температуры сопряжения данных материалов, это вызывает существенную деформацию конструкции. Такие явления могут привести к неправильной работе устройства, сокращению времени безотказной работы и даже к отслоению материалов друг от друга или их растрескиванию.

Многие исследования сосредоточены на оценке того, могут ли изменения в конструкции или выбор альтернативных материалов уменьшить величину деформации пластин, вызванной термическим воздействием в процессе корпусирования по технологии FOWLP. Анализ влияния свойств материала на деформацию пластин является одним из важных способов понимания факторов эффективного снижения деформации. Существует множество научных публикаций, где данная проблема рассматривается и предлагается ряд подходов для ее решения. Например, изучалось уменьшение разности между величинами ТКЛР временного носителя или полимера, наносяще-

гося на обратную сторону микросборки (backside laminate, BSL) и эпоксидного компаунда [5-6], уменьшение модуля Юнга материала временного носителя [7-8], уменьшение модуля Юнга и ТКЛР материалов тонких пленок, используемых в качестве диэлектрика между слоями RDL [9], понижение температуры стеклования эпоксидного компаунда [10], придание материалу компаунда более однородной структуры [11]. Во многих этих исследованиях в качестве доказательства уменьшения деформации конструкции приводятся результаты моделирования рассматриваемой конструкции методом конечных элементов.

Но существуют также альтернативные способы решения проблемы термомеханических напряжений в слоях перераспределения. Чтобы термомеханическая деформация оказывала менее разрушительное воздействие на слои перераспределения можно увеличить адгезию между сопрягающимися материалами конструкции. Наиболее проблемными являются контакты диэлектрика слоев перераспределения с кремнием и с медью. Полиимид является наиболее широко применяемым в качестве диэлектрика слоев перераспределения материалом. Сам по себе он имеет невысокую адгезию к меди и кремнию, поэтому для получения требуемой адгезии используют модификацию поверхности полиимидного лака после нанесения центрифугированием и отверждения с помощью плазмы, производя нанесение металла методом вакуумного напыления. Но известно и о способах, позволяющих повысить адгезию полиимидных покрытий к меди и кремнию без модификации поверхности. Они основаны на образовании активных связей по поверхности полиимида путём применения промоторов (усилителей) адгезии на базе органотитанатов или органоцирконатов, а также аminosиланов (N-(2-аминоэтил)-3-аминопропилтриметоксисилана, 3-аминоэтилтриэтоксисилана, N-[2(винилбензиламино)]-этил-3-аминопропилтриметокси-силана) [12-14].

Описанное в данной статье исследование направлено на изучение адгезии различных полиимидных диэлектриков к кремнию и меди, в том числе после обработки поверхностей промоторами адгезии на основе аminosилана и эпоксисилана.

Описание изготовления экспериментальных образцов

Для определения величины адгезии различных полиимидов к меди и кремнию было изготовлено 4 экспериментальных образца. Каждый из образцов представляет собой кремниевую пластину диаметром 100 мм, покрытую полиимидом, на поверхность которого с помощью магнетронного распыления наносилась металлизация в виде подслоя хрома и слоя меди. Использовались кремниевые пластины ориентации 100.

При обработке поверхности пластин силанами каждая пластина мысленно разделялась на 4 равные части (области, четверти), согласно рисунку.

ку 2. В первой четверти обработка поверхности силанами не проводилась, во второй четверти силаном была обработана только поверхность кремния перед нанесением полиимида, в третьей четверти силаном была обработана только поверхность полиимида перед распылением слоя металлизации и в последней части силаном были обработаны и поверхность кремния, и поверхность полиимида. Таким образом, каждая пластина имела 4 различных с точки зрения технологического процесса области.

Помимо этого, пластины отличались между собой по типу используемых материалов. На первой пластине использовался полиимидный лак ПИ-ЛК и обработка в аминосилане, на второй — ПИ-ЛК и обработка в эпоксисилане, на третьей — полиимидный лак АД9103 и обработка в аминосилане, на четвертой — АД9103 и обработка в эпоксисилане.

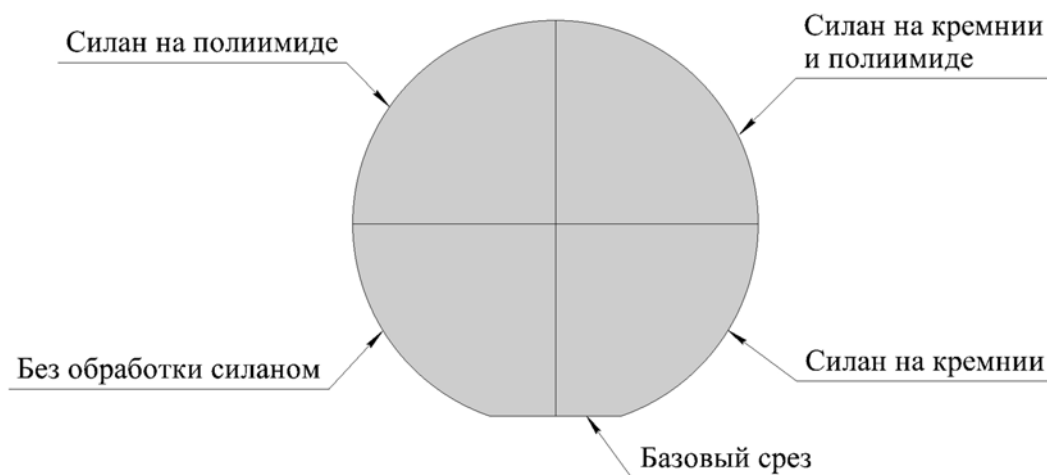


Рисунок 2 — Схематичное разделение пластин на четыре части в соответствии с их разделением на экспериментальных образцах

Технологический процесс изготовления описанных экспериментальных образцов представлен на рисунке 3.

На первом этапе на правую относительно базового среза часть кремниевой пластины с помощью кисти наносили силан (рисунок 3а). Затем слой силана смывался проточной дистиллированной водой, и пластина сушилась в термошкафу в течение 30 минут при температуре 100°C. На втором этапе (рисунок 3б) на пластину методом центрифугирования в течение 1 минуты и при частоте 50 Гц наносился слой жидкого полиимидного лака, после чего происходил процесс его имидизации (процесс отверждения путём циклизации амидокислоты в полиимид) при температуре 150°C в течение 4 часов. На третьем этапе (рисунок 3в) на поверхность имидизированного полиимида наносился еще слой силана на верхнюю относи-

тельно базового среза половину, после чего силан смывался проточной дистиллированной водой, и пластина сушилась при температуре 100°C в течение 30 минут. На четвертом этапе (рисунок 3г) производилось нанесение металлизации методом магнетронного распыления. Толщина подслоя хрома составила 50 нм и толщина слоя меди 1 мкм. После нанесения слоя металлизации, для чистоты эксперимента, слой меди и хрома стравливался с части пластины, где силаном обрабатывался только кремний. Это было сделано для предотвращения случая отрыва слоя металлизации от немодифицированной силаном поверхности полиимида вместо отрыва слоя полиимида от модифицированной силаном поверхности кремния. На рисунке 4 показаны фотографии образцов после окончания процесса их изготовления.

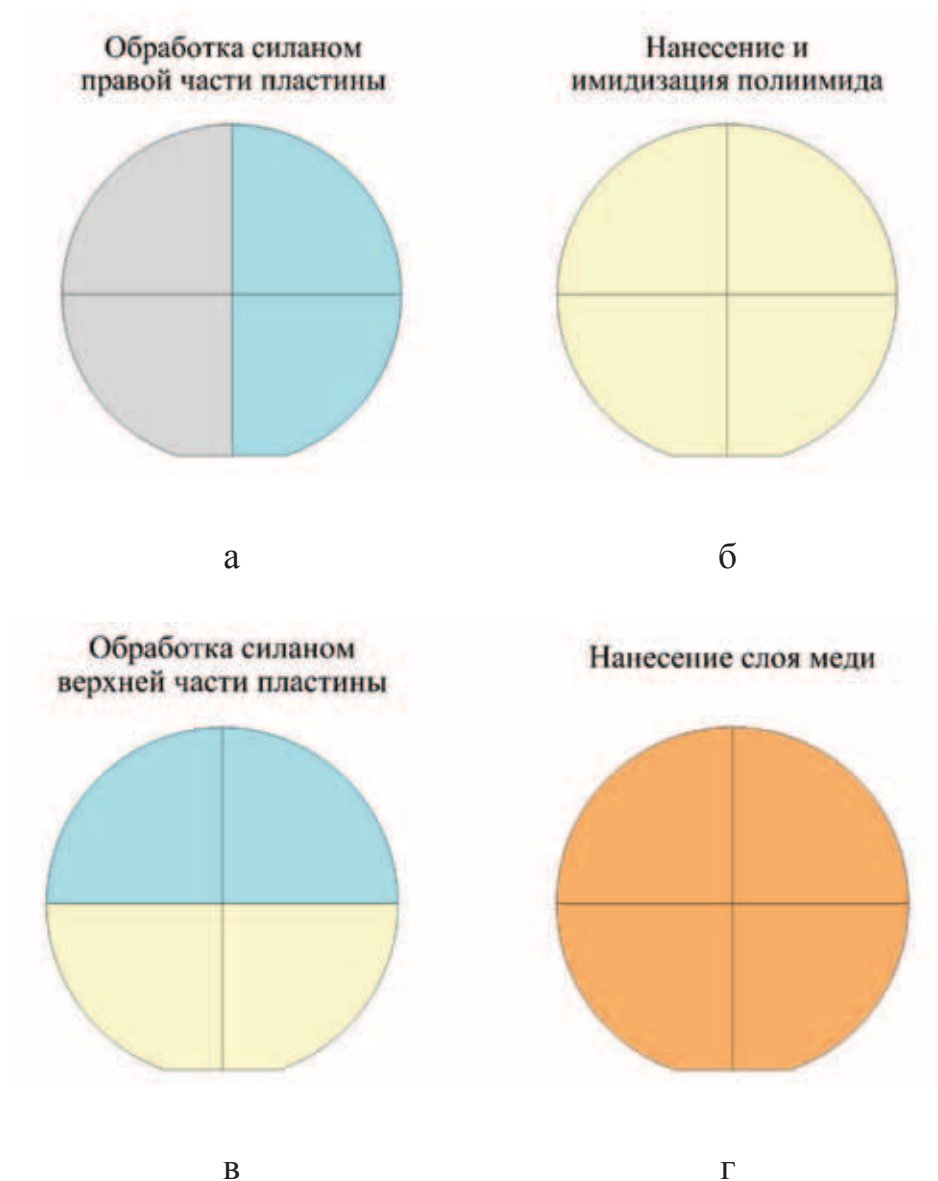


Рисунок 3 — Технологический процесс изготовления экспериментальных образцов пластин

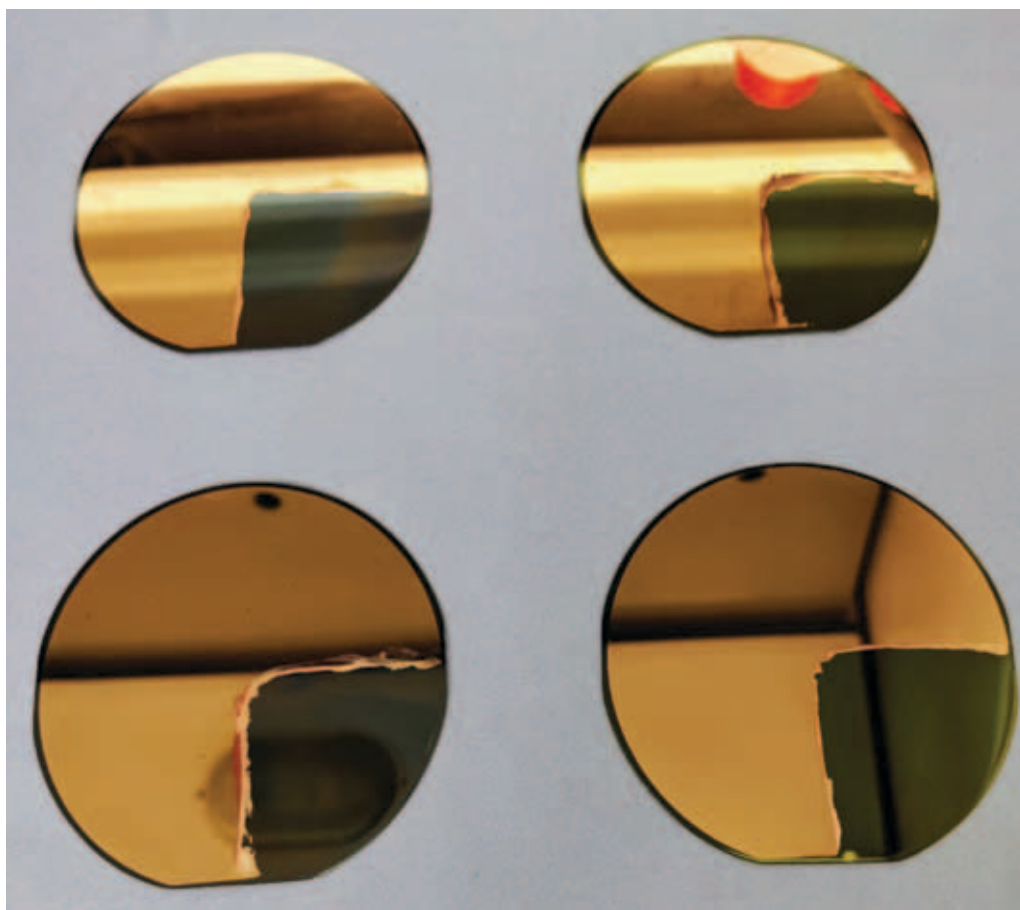


Рисунок 4 — Общий вид четырех экспериментальных образцов пластин перед проведением испытаний на отрыв

Проведение измерений

Для проведения экспериментальных измерений адгезии на описанных образцах была изготовлена оснастка. Оснастка представляет собой коваровую пластину, в которой были вырезаны 4 отверстия. Отверстия располагались симметрично, в соответствии с каждой из четырех частей экспериментальных образцов (рисунок 5). Для придания пластине оснастки жесткости и сопротивлению на изгиб и скручивание она была обрамлена кольцом из стали. Эта пластина размещалась поверх экспериментальных образцов и прижималась к ним. Такая конструкция была сделана с целью предотвращения разрушения всего образца при воздействии на него перпендикулярного растягивающего силового воздействия, направленного вверх на малом участке площади. Помимо этого, между экспериментальным образцом и описанной пластиной оснастки, а также между экспериментальным образцом и зажимами испытательного стенда размещались силиконовые пластины для уменьшения воздействия механического напряжения на изучаемый образец. На рисунке 5 показаны изображения испытательного стенда с динамометром и оснастка для эксперимента.



а



б

Рисунок 5 — Оснастка для проведения испытаний (а);
стенд для проведения измерений усилия на отрыв (б)

Усилие отрыва представляет собой отношение приложенной силы к площади поверхности, при которой структура разрушается. На каждую из четырех областей на всех образцах были приклеены стальные гайки М8 с помощью клея ВК-9 (рисунок 6). Гайки клеились на боковую грань, площадь которой составляла порядка 55 мм^2 . Образцы с приклеенными гайками размещались на стенде и закреплялись зажимами. Конструкция испытательного стенда включала в себя подвижный блок, подвешенный на крюке динамометра. Это означает, что фактическое силовое воздействие на испытуемый объект в два раза выше, чем показание динамометра, поэтому все результаты измерений были умножены на два. Максимальное значение усилия, которое может зафиксировать данный стенд с учетом подвижного блока — 100 Н . Закрепленный на стенде вместе с оснасткой и готовый к проведению испытания на отрыв экспериментальный образец показан на рисунке 7.

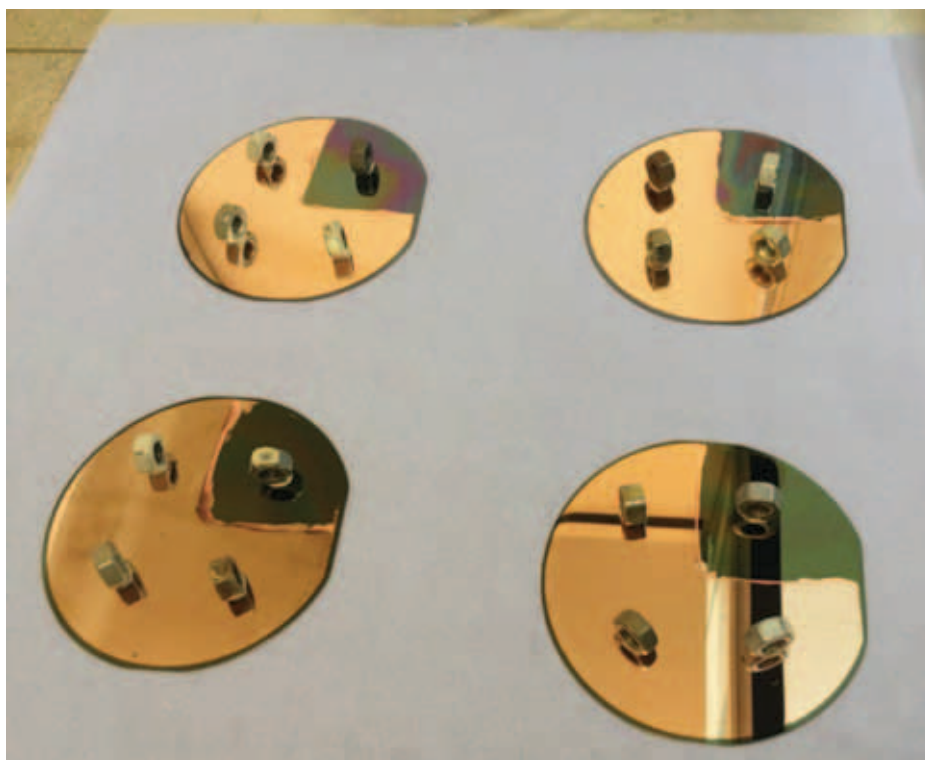


Рисунок 6 — Экспериментальные образцы с посаженными на клей ВК-9 гайками М8



Рисунок 7 — Экспериментальный образец, закрепленный на стенде для испытаний

Согласно количеству изготовленных образцов было проведено 16 испытаний на отрыв — по одному испытанию на каждую комбинацию материала полиимидного диэлектрика и модификации поверхности кремния и полиимида.

Важнейшим результатом испытаний является то, что ни в одном из 16-ти испытаний не удалось выявить конкретные значения адгезии между полиимидом и кремнием и полиимидом и медью. Это произошло из-за того, что адгезия между исследуемыми материалами оказалась выше, чем прочность кремния на разрушение. В большинстве испытаний гайки оторвались вместе с фрагментом кремния, без разрушения связи между исследуемыми слоями кремния, полиимида и меди (рисунок 8). Помимо этого, было выявлено, что в случаях, когда гайка отрывалась от поверхности пластины, не разрушая ее, усилие на отрыв не выдерживал клей ВК-9. Все комбинации материалов и результаты их испытаний приведены в таблицах 1-4.

Таблица 1 — Результаты испытаний на отрыв пластины с полиимидом АД9103, обработанной в аминсилане

Порядок отрыва	Модификация силаном	Результат испытания	Усилие отрыва (Н)
1	Без модификации	Разрушение кремния	99,06
2	Силан на полиимиде*	Разрушение клеевого соединения	>100
3	Силан на кремнии	Разрушение кремния	80,78
4	Силан на кремнии и полиимиде	Разрушение кремния	39,34

Таблица 2 — Результаты испытаний на отрыв пластины с полиимидом АД9103, обработанной в эпоксисилане

Порядок отрыва	Модификация силаном	Результат испытания	Усилие отрыва (Н)
1	Без модификации	Разрушение кремния	27,90
2	Силан на кремнии	Разрушение кремния	94,26
3	Силан на кремнии и полиимиде*	Разрушение клеевого соединения	80,48
4	Силан на полиимиде	Разрушение кремния	26,76

Таблица 3 — Результаты испытаний на отрыв пластины с полиимидом ПИ-ЛК, обработанной в аminosилане

Порядок отрыва	Модификация силаном	Результат испытания	Усилие отрыва (Н)
1	Без модификации	Разрушение кремния	85,78
2	Силан на полиимиде	Разрушение кремния	31,90
3	Силан на кремнии и полиимиде	Разрушение кремния	99,28
4	Силан на кремнии	Разрушение кремния	9,60

Таблица 4 — Результаты испытаний на отрыв пластины с полиимидом ПИ-ЛК, обработанной в эпoxисилане

Порядок отрыва	Модификация силаном	Результат испытания	Усилие отрыва (Н)
1	Без модификации	Разрушение кремния	>100
2	Силан на кремнии	Разрушение кремния	26,36
3	Силан на кремнии и полиимиде	Разрушение кремния	56,70
4	Силан на полиимиде	Разрушение кремния	33,34

Стоит принять во внимание тот факт, что к моменту последнего испытания каждая из пластин уже была достаточно сильно разрушена воздействием на нее силовых нагрузок от первых трех испытаний. Это приводило к тому, что усилие на отрыв получалось значительно ниже, чем максимальное значение на отрыв в предыдущих трех испытаниях на этой пластине.

Для получения максимального значения отрыва, выраженного в МПа необходимо максимальное значения отрыва, полученное в результате испытаний (100 Н) поделить на площадь клеевого соединения (55 мм²). Получится значение, равное 1,82 МПа и тогда можно с уверенностью сказать, что реальная адгезия между исследуемыми материалами выше этого значения. Чтобы сказать, достаточно ли этого значения для того, чтобы выдерживать термомеханические напряжения, возникающие в пластине вследствие ее деформации необходимо проводить дополнительные исследования, направленные на возникновение деформации в подобных экспериментальных образцах при воздействии на них тепловой нагрузки. На рисунке 8 показаны изображения пластин после испытаний на отрыв.

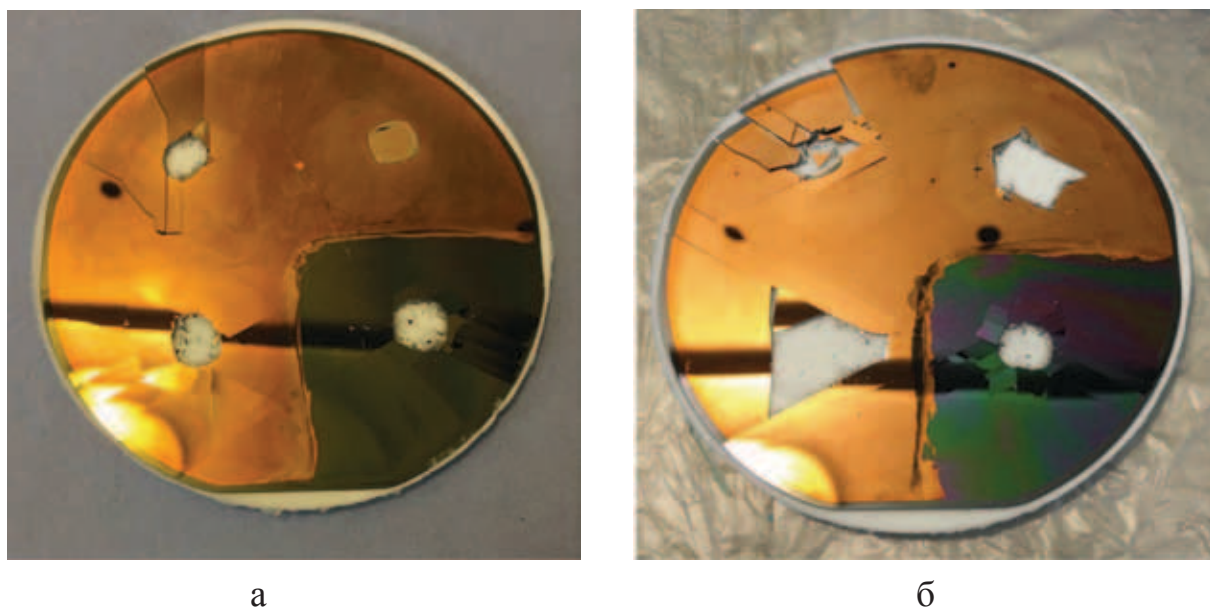


Рисунок 8 — Экспериментальные образцы после проведения испытаний на отрыв: пластина с полиимидом АД9103, обработанная в эпоксисилане (а); пластина с полиимидом ПИ-ЛК, обработанная в эпоксисилане (б)

На основе полученных результатов можно предложить несколько вариантов для совершенствования методики проведения подобных экспериментов. Наиболее простым вариантом представляется осуществлять приклеивание испытуемой пластины задней стороной к пластине оснастки, чтобы сопротивление кремния разрушению было значительно больше. Помимо этого, целесообразно уменьшить площадь соприкосновения отрываемого тела с поверхностью пластины с целью соответствующего уменьшения величины усилия исследуемых пленок на отрыв. Еще одним вариантом является использование для испытаний более толстых пластин кремния.

Заключение

В ходе проведенного исследования установлено, что адгезия полиимидных лаков АД9103 и ПИ-ЛК к кремнию и меди выше 1,82 МПа. Выявить влияние на величину адгезии обработки поверхностей кремния и полиимидов не удалось вследствие недостаточной прочности кремниевых пластин, используемых для изготовления экспериментальных образцов.

На основе проведенных испытаний предложено несколько способов совершенствования методики проведения подобных испытаний: уменьшение площади контакта экспериментального образца с отрываемым телом, посадка экспериментального образца обратной стороной на пластину оснастки при помощи клея, использование для испытаний более прочных кремние-

вых пластин. В будущем данное исследование будет продолжено с использованием усовершенствованной методики эксперимента.

Благодарности

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 23-29-00964).

Литература:

1. Тимошенков С.П., Тихонов К.С., Титов А.Ю., Петров В.С. Разработка технологий внутреннего монтажа бескорпусных кристаллов на гибкие коммутационные платы // ИВД, 2012, 3, 351-357.
2. Вертянов Д.В., Евстафьев С.С., Виклунд П., Сидоренко В. Технологии внутреннего монтажа бескорпусных элементов и особенности проектирования микросистем со встроенными кристаллами. Часть 1. ЭЛЕКТРОНИКА НТБ, 2020, 197, 96-102, doi: 10.22184/1992-4178.2020.197.6.96.102.
3. Fan X.J., Varia B., Han Q. Design and optimization of thermo-mechanical reliability in wafer level packaging // Microelectronics Reliability, 2010, doi: 10.1016/j.microrel.2009.11.010.
4. Chuang W.-Ch., Huang Y., Chen P.-E. Exploring the influence of material properties of epoxy molding compound on wafer warpage in Fan-out wafer-level packaging // Materials, 2023, 16 (9), 3482, doi: 10.3390/ma16093482.
5. Hou F.Z., Lin T.Y., Cao L.Q., Liu F.M., Li J., Fan X.J., Zhang G.Q. Experimental Verification and Optimization Analysis of Warpage for Panel-Level Fan-Out Package // IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 2017, 7, 1721-1728.
6. Lau J.H., Li M., Yang L., Li M., Xu I., Chen T., Chen S., Yong Q.X., Madhukumar J.P., Kai W. et al. Warpage measurements and characterizations of Fan-out wafer-level packaging with large chips and multiple redistributed layers // IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 2018, 8, 1729-1737.
7. Che F.X., Ho D., Chai T.C. Study on warpage and reliability of Fan-out interposer technology // IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 2019, 9, 786-796.
8. Cheng H.C., Wu Z.D., Liu Y.C. Viscoelastic warpage modeling of Fan-out wafer-level packaging during wafer-level mold cure process // IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 2020, 10, 1240-1250.
9. Chen C., Yu D.Q., Wang T., Xiao Z.Y., Wan L.X. Warpage prediction and optimization for embedded silicon Fan-out wafer-level packaging based on an extended theoretical model // IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 2019, 9, 845-853.
10. Hamaguchi K., Noma H., Takahashi H., Suzuki N., Nonaka T. Warpage study of FO-WLP build up by material properties and process // Proceedings of

the 2016 6th Electronic System-Integration Technology Conference (ESTC), Grenoble, France, 13–15 September 2016, 1-4.

11. *Chen H.L., Chiang K.N.* The Effect of geometric and material uncertainty on debonding warpage in Fan-out panel level packaging // Proceedings of the 2023 24th International Conference on Thermal, Mechanical and Multi-Physics Simulation and Experiments in Microelectronics and Microsystems (EuroSimE), Graz, Austria, 16–19 April 2023, 1-6.

12. *Nimbalkar P.* Effect of titanium-polymer interactions on adhesion of polymer-copper redistribution layers in advanced packaging/ P. Nimbalkar, C. Blancher, M. Kathaperumal, M. Swaminathan, R. Tummala // IEEE transactions on device and materials reliability, 2022, 22 (1), 59-63.

13. *Liu J.-N., Sil M.Ch., Cheng R., Feng S.-P., Chen C.-M.* Surface silanization of polyimide for autocatalytic metallization // The Minerals, Metals & Materials Society, 2022, 72 (10), 3529-3537.

14. Adhesion Promoters: Adhesion Basics & Material Selection Tips for Adhesives [электронный ресурс]/ SpecialChem. — URL: <https://adhesives.specialchem.com/selection-guide/adhesion-promoters-adhesives-sealants>

INVESTIGATION OF THE EFFECT OF SURFACE MODIFICATION WITH ADHESION PROMOTERS BASED ON AMINOSILANE AND EPOXYSILANE ON ADHESION OF POLYIMIDE DIELECTRICS TO SILICON AND COPPER IN REDISTRIBUTION LAYERS

M.D. Kochergin, K.K. Udodova, I.A. Belyakov, D.V. Vertyanov,
A.A. Gavrilova

National Research University of Electronic Technology, Moscow

Received 20.11.2023

The paper considers aspects of die encapsulation technology at the wafer level packaging. To combat deformations of structures caused by thermomechanical stresses in the redistribution layers due to the mismatch of coefficients of thermal expansion of different materials in the structure, an approach of increasing adhesion between mating materials is proposed. The adhesion of various polyimide dielectrics (polyimide varnishes PI-LK and AD9103) to silicon and to copper, including after surface treatment with adhesion promoters based on aminosilane and epoxysilane, has been studied. For testing of experimental samples, a bench and appropriate tooling were developed. According to the test results, the adhesion between the materials under study turned out to be higher than the fracture strength of silicon wafers, so the specific values of the adhesion between the materials under study were not obtained. Based on the tests performed, several ways to improve the methodology of such tests have been proposed.

Keywords: polyimide, adhesion, silicon, copper, packaging, redistribution layers, RDL

САМОСОГЛАСОВАННОЕ РЕШЕНИЕ СИСТЕМЫ УРАВНЕНИЙ ШРЕДИНГЕРА И ЭЛЕКТРОНЕЙТРАЛЬНОСТИ ПУАССОНА ДЛЯ ГЕТЕРОСТРУКТУР СО МНОЖЕСТВЕННЫМИ КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GAN}$

Е.Р. Бурмистров¹, Л.П. Авакянц²

*Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова,
Физический факультет, 119234 Москва, Россия*

¹E-mail: eugeni.conovaloff@yandex.ru

²E-mail: avakyants@physics.msu.ru

Поступила 02.07.2023

На основании численного самосогласованного решения уравнения Шредингера и электронейтральности Пуассона рассчитаны значения энергетических уровней и распределение плотности основных носителей заряда в одиночной КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$. Результаты расчетов позволили связать максимумы в спектрах фото- и электролюминесценции с межзонными оптическими переходами основных носителей заряда в КЯ InGaN . Установлено, что наблюдаемые полосы в спектрах фотолюминесценции соответствуют фундаментальному переходу в КЯ InGaN между невозбужденными дырочными и электронными уровнями валентной зоны и зоны проводимости.

Ключевые слова: гетероструктуры, фотолюминесценция, электролюминесценция, квантовые ямы, электронный газ, излучение.

УДК 538.9159

DOI: 10/31145/2224-8412-2023-23-1-31-46

1. Введение

Полупроводниковые гетероструктуры со множественными квантовыми ямами (МКЯ) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ широко используются в оптоэлектронике в качестве светодиодов (СД), работающих в синем и зеленом диапазонах оптического спектра [1, 2]. Например, ультрафиолетовые (УФ) СД на основе гетероструктур со МКЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ обладают 40-процентной эффективностью излучения [3].

В серийном производстве готовых светодиодных устройств со МКЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ используется рост вдоль кристаллографического направления (0001) гексагонального GaN. Это приводит к тому, что в квантово-размерных структурах на основе GaN вюрцитной модификации возникают встроенные электрические поля, вызванные спонтанной и пьезоэлектрической поляризациями. Характерной особенностью гетероструктур $\text{InGaN}/\text{AlGaIn}/\text{GaN}$ являются малые значения спонтанной поляризации.

Основное влияние на динамику излучательной рекомбинации носителей заряда во МКЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ оказывают встроенные пьезоэлектрические поля, вызванные рассогласованием постоянных кристаллических решеток между слоями InGaIn и GaN [4, 5]. Влияние пьезоэлектрических полей на скорость рекомбинации носителей заряда в КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ исследуют по смещениям максимумов в спектрах фотолюминесценции в зависимости от плотности потока возбуждающего излучения [6, 7].

В работе [8] авторы исследовали влияние буферного слоя AlGaIn на спектры фото- и электролюминесценции гетероструктур $\text{InGaIn}/(\text{Al})\text{GaIn}$. В спектрах фотолюминесценции помимо сдвигов, обусловленных воздействием встроенных пьезоэлектрических полей, наблюдались сдвиги, связанные с влиянием слоя AlGaIn .

Авторы работы [9] исследовали влияние высокотемпературного отжига и имплантации атомами примеси на спектры фотолюминесценции гетероструктур со МКЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$. Было показано, что отжиг не влияет на положение и форму основной полосы, при этом, легирование приводит к уменьшению ее интенсивности.

В работе [10, 11] исследовались светоизлучающие свойства лазеров на основе гетероструктур с различным числом КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ методом спектроскопии фотолюминесценции. Показано, что увеличение числа КЯ в активной области приводит к усилению выходной мощности гетеролазера.

В работах [3-11] авторы связывают максимумы в спектрах фото- и электролюминесценции с излучением от КЯ InGaIn без указания типа перехода, которому соответствуют данные максимумы. В спектрах фото- и электролюминесценции помимо основных пиков могут содержаться линии, связанные с примесными или дефектными уровнями. Чтобы определить тип перехода, которому соответствуют наблюдаемые в спектрах фотолюминесценции длины волн, необходимо заранее знать зонную структуру исследуемого образца.

Существует множество методов, широко используемых в настоящее время для расчетов зонной структуры полупроводников. Наиболее успешными являются метод псевдопотенциала, $(\mathbf{k} \cdot \mathbf{p})$ -метод, метод сильной связи [12, 13, 14]. Все они в качестве начальных условий используют небольшой набор данных, который можно получить из эксперимента. Однако, многие из существующих методов расчета зонной структуры полупроводников не по-

звolyют напрямую определить форму потенциала и профиль распределения концентрации основных носителей заряда в КЯ.

В настоящей работе спектры фото- и электролюминесценции сравниваются с моделью зонной диаграммы КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, полученной на основании самосогласованного решения одномерного уравнения Шредингера и электронейтральности Пуассона. Результаты расчетов позволили установить тип перехода и связать его с наблюдаемыми длинами волн в спектрах фотолюминесценции.

2. Экспериментальные образцы

Объектом исследования является типичная для светодиодных гетероструктур с квантовыми ямами InGaN/GaN в p-n-переходе GaN слeвая структура. Исследовались промышленные образцы гетероструктур $\text{InGaN}/\text{AlGaIn}/\text{GaN}$, выращенные методом газofазной эпитаксии (ГФЭ). Типичная слeвая структура образцов представлена на рис.1.

(a)	Al ₂ O ₃ (430 μm)		(b)	Al ₂ O ₃ (430 μm)	
	<i>i</i> -GaN (2 μm)			<i>i</i> -GaN (2 μm)	
	<i>n</i> -GaN (3 μm)			<i>n</i> -GaN (3 μm)	
	Barrier GaN (15 nm)	3QW		Barrier GaN (12 nm)	5QW
	QW InGaIn (2.5 nm)			QW InGaIn (3 nm)	
	Barrier GaN (15 nm)			Barrier GaN (12 nm)	
		<i>p</i> -GaN (100 nm)			
</					

Рис. 1. Слeвая структура исследованных образцов (a) с тремя и (b) пятью КЯ (QW) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaIn}$ в активной области

Для гетероструктур $\text{InGaIn}/\text{AlGaIn}/\text{GaIn}$ на сапфировой подложке Al_2O_3 площадью 0.4 мм² и толщиной 430 мкм в направлении [0001] первым наращивался затравочный низкотемпературный слой *i*-GaIn толщиной 2 мкм, предназначенный для уменьшения рассогласования постоянных кристаллических решеток между формируемыми слоями. Затем формировался буферный слой *n*-GaIn (3 мкм), легированный Si с концентрацией доноров $N_D = 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Активная область гетероструктур состоит из трех и пяти квантовых ям/квантовых барьеров (КЯ/КБ) $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaIn}$ с толщинами 2.5/15 и 3/12 нм. Последним был выращен слой *p*-GaIn (100 нм), легированный Mg с концентрацией акцепторов $N_A = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$. К *n*- и *p*-областям гетероструктуры были вмонтированы Ni-Al контакты. Ширина запрещенной зоны и мольная доля In определялись с помощью методики фототоковой спектроскопии,

как это описывается, например, в работе [15]. Основные параметры исследуемых образцов представлены в таблице 1.

Таблица 1. Параметры образцов гетероструктур $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$

N	КЯ/КБ, нм	d , мм	x_{In}	E_g , эВ
3	2.5/15	0.4	0.24	2.6
5	3/12		0.22	2.6

В таблице 1 приняты обозначения: d — толщина кристалла, N — число КЯ в активной области, концентрация In в слое $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$, E_g — ширина запрещенной зоны тройного соединения $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$.

Спектры электролюминесценции были получены при постоянном токе со значениями в диапазоне от 4 до 12 мА с шагом 2 мА. Фотолуминесценция возбуждалась лазерным диодом на длине волны 405 нм со средней выходной мощностью 50 мВт при комнатной температуре. Частота модуляции световой засветки для фотолуминесценции составила 20 кГц. Измерения проводились в лаборатории оптической спектроскопии материалов опто- и микроэлектроники Физического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова.

3. Основные формулы

Для моделирования волновых функций двумерных носителей в КЯ используется приближение Фанга-Ховарда [16], в котором волновая функция записывается в виде:

$$\psi(z) = z\sqrt{(b^3/2)} \exp(-bz/2), \quad (1)$$

где $b = (33\pi m^* N / 2\epsilon_s)^{1/3} (e/\hbar)^{2/3}$ — нормировочная константа, $z \in [0, L]$, где L — ширина КЯ, m^* , N — эффективная масса и концентрация основных носителей заряда в КЯ, ϵ_s — диэлектрическая проницаемость. Однако приближение Фанга-Ховарда не позволяет учесть влияние встроенных пьезоэлектрических полей на форму волновых функций основных носителей заряда в КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$.

В настоящей работе для точного определения формы волновых функций и значений энергетических уровней в КЯ InGaN производилось самосогласованное решение одномерного уравнения Пуассона для электростатического потенциала $\varphi(z)$

$$\frac{d}{dz} \left[\epsilon(z) \frac{d\varphi(z)}{dz} \right] = \frac{e}{\epsilon_0} [N_D^+(z) - N_{2DEG}(z) - N_A^-(z)], \quad (2)$$

$$N_i = \frac{m_{\text{GaN}}^* k_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left[1 + \exp \left(\frac{E_F - E_i}{k_B T} \right) \right] |\psi_i(z)|^2 \quad (3)$$

и одномерного уравнения Шредингера в приближении эффективной массы в форме БенДаниэла-Дюка [17]

$$-\frac{\hbar^2}{2} \frac{d}{dz} \left[\frac{1}{m^*(z)} \frac{d}{dz} \psi_i(z) \right] + U(z) \psi_i(z) = E_i \psi_i(z), \quad (4)$$

где $\mathcal{E}(z)$ – зависящая от координаты диэлектрическая проницаемость, $N_{2\text{DEG}}$ – концентрация основных носителей заряда, ψ_i – волновая функция двумерных носителей на соответствующем уровне, N_D^+, N_A^- – концентрации ионизированных доноров и акцепторов, $m^*(z)$ – зависящая от координаты эффективная масса основных носителей заряда и E_i – энергия i -ого уровня, m_{GaN}^* – эффективная масса двумерных носителей в КБ GaN, k_B – постоянная Больцмана, T – температура, E_F – энергия Ферми, $U(z) = eFz - e\phi(z)$ – потенциальная энергия, F – напряженность встроенного электрического поля в КЯ, вызванного пьезоэлектрической P_{pz} и спонтанной P_{sp} поляризациями. В процессе расчета использовались значения F , полученные авторами работы [7].

Величину пьезоэлектрической поляризации в $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ можно оценить по формуле

$$P_{pz} = 2\mathcal{E}(e_{31} - e_{33}(C_{11}/C_{33})), \quad (5)$$

где

$$\mathcal{E} = (a^{\text{GaN}} - x_{\text{In}} a^{\text{InN}} - (1 - x_{\text{In}}) a^{\text{GaN}}) / (x_{\text{In}} a^{\text{InN}} + (1 - x_{\text{In}}) a^{\text{GaN}}). \quad (6)$$

В формулы (5) и (6) входят компоненты пьезоэлектрического тензора e_{33}, e_{31} , константы упругости C_{11}, C_{33} , а также постоянные кристаллических решеток GaN и InN [18, 19]. При мольной доли In равной $x_{\text{In}} = 24\%$ подстановка в формулу $e_{33}, e_{31}, C_{11}, C_{33}$ и $a^{\text{GaN}}, a^{\text{InN}}$ приводит к $P_{pz} = 0.092 \cdot 10^{-6}$ Кл/см². В бинарном GaN и тройном $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ соединениях спонтанная поляризация принимает значения $P_{sp} = -0.029 \cdot 10^{-6}$ Кл/см² и $P_{sp} = -0.032 \cdot 10^{-6}$ Кл/см² [18, 19]. Следовательно, основное влияние на динамику излучательной рекомбинации носителей заряда в КЯ оказывает пьезоэлектрическая поляризация. В процессе работы из-за нагрева в кристалле могут также возникать пьезоэлектрические поля. Учитывая многослойную структуру исследуемых образцов и малые интенсивности возбуждающего излучения, влиянием пьезоэлектрической поляризации можно пренебречь.

Уравнение Шредингера (4) в приближении эффективной массы для одной долины в операторном виде можно переписать следующим образом

$$\hat{H}\psi_i(\vec{r}) = \left[\sum_{k,l} \hat{p}_k q_{k,l}(\vec{r}) \hat{p}_l + \hat{U}(\vec{r}) \right] \psi_i(\vec{r}) = E_i \psi_i(\vec{r}), \quad (7)$$

где $\hat{p}_k = -i\hbar \frac{\partial}{\partial x_k}$ – оператор импульса в координатном представлении, $q_{k,l}(\vec{r})$ – тензор обратной эффективной массы, зависящей от координаты. Первое слагаемое в уравнении (7) с учетом кратности вырождения спина имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{T}\psi_i(\vec{r}) &= \sum_{k,l} \hat{p}_k q_{k,l}(\vec{r}) \hat{p}_l \psi_i(\vec{r}) = \sum_{k,l} i\hbar \frac{\partial}{\partial x_k} q_{k,l}(\vec{r}) i\hbar \frac{\partial}{\partial x_l} \psi_i(\vec{r}) = \\ &= -\frac{\hbar^2}{2} \sum_{k,l} \frac{\partial}{\partial x_k} q_{k,l}(\vec{r}) \frac{\partial}{\partial x_l} \psi_i(\vec{r}). \end{aligned} \quad (8)$$

где $k, l = 1, 2, 3$. Так как движение основных носителей заряда в КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ ограничено в направлении оси z , то $k = l = 3$.

Рассмотрим действие оператора кинетической энергии \hat{T} на некоторую функцию $f(z)$, зависящую от координаты z . Тогда с учетом (8)

$$\hat{T}(q)f(z) = \frac{\partial}{\partial z} q(z) \frac{\partial}{\partial z} f(z) = D(z). \quad (9)$$

Если проинтегрировать выражение (9) по объему КЯ и затем применить теорему Остроградского-Гаусса, можно получить следующее

$$\iiint_{V_{\text{КЯ}}} \frac{\partial}{\partial z} q(z) \frac{\partial}{\partial z} f(z) dV = \iint_S q(z) \vec{\nabla}_z f(z) d\vec{S} = \iiint_{V_{\text{КЯ}}} D(z) dV, \quad (10)$$

где $S, V_{\text{КЯ}}$ – площадь боковой поверхности и объем КЯ, $\vec{\nabla}_z f(z)$ – поток электрического поля через боковую поверхность КЯ. В настоящей работе рассматривается математическая модель КЯ с конечной высотой потенциального барьера. Поэтому в (10) интегрирование производится по замкнутому объему КЯ.

В одномерном случае поток $\vec{\nabla}_z f(z) = 0$, тогда

$$\begin{aligned} \iint_S q(z) \vec{\nabla}_z f(z) d\vec{S} &\approx S \left\{ q(z = z_0 + L) \frac{\partial}{\partial z} f(z = z_0 + L) - \right. \\ &\quad \left. - q(z = z_0) \frac{\partial}{\partial z} f(z = z_0) \right\}, \end{aligned} \quad (11)$$

где $\frac{\partial}{\partial z} f(z = z_0 + L)$ и $\frac{\partial}{\partial z} f(z = z_0)$ – производные функции $f(z)$ на левой и правой боковых поверхностях КЯ (рис.3). Так как функции $f(z)$ и $q(z)$ меняются слабо в пределах КЯ, то частные производные в (11) можно представить в виде конечно-разностных аппроксимаций

$$\oint_S q(z) \vec{\nabla}_z f(z) dS \approx S(q(z_{i,i+1}) \frac{f(z_{i+1}) - f(z_i)}{L} - q(z_{i-1,i}) \frac{f(z_i) - f(z_{i-1})}{L}) = D(z_i) \cdot S \cdot L. \quad (12)$$

или применяя символ Кронекера $\delta_{k,l} = \begin{cases} 1, k = l \\ 0, k \neq l \end{cases}$

$$(q(z_{i,i+1})(\delta_{i+1,l} f(z_l) - \delta_{i,l} f(z_l)) - q(z_{i-1,i})(\delta_{i,l} f(z_l) - \delta_{i-1,l} f(z_l))) = D(z_i) \cdot L^2, \quad (13)$$

где

$$\begin{aligned} f(z_{i+1}) &= \delta_{i+1,l} f(z_l), \quad f(z_i) = \delta_{i,l} f(z_l), \\ f(z_{i-1}) &= \delta_{i-1,l} f(z_l). \end{aligned} \quad (14)$$

Тогда выражение (9) с учетом (13) и (14) можно записать следующим образом

$$\begin{aligned} \sum_{i,l} T_{i,l}(q) f(z_l) &= D(z_i), \\ T_{i,l}(q) &= \frac{1}{L^2} (q(z_{i,i+1})(\delta_{i+1,l} - \delta_{i,l}) - q(z_{i-1,i})(\delta_{i,l} - \delta_{i-1,l})). \end{aligned} \quad (15)$$

В уравнении (7) произведение оператора потенциальной энергии $\hat{U}(\vec{r})$ на волновую функцию $\psi_i(\vec{r})$ сводится к матричному умножению

$$\hat{U}(z_k) \psi(z_k) = \sum_l \delta_{k,l} U(z_l) \psi(z_k). \quad (16)$$

Подставляя (15) и (16) в (7) получаем уравнение Шредингера в матричной форме

$$\sum_l (-\frac{\hbar^2}{2} T_{i,l}(q) + \delta_{k,l} U(z_l)) \cdot \psi(z_k) = E_k \psi(z_k). \quad (17)$$

Уравнение Пуассона (2) можно переписать следующим образом

$$\sum_{k,l} \frac{\partial}{\partial x_k} \varepsilon(\vec{r}) \frac{\partial}{\partial x_l} \varphi(\vec{r}) = \frac{e}{\varepsilon_0} [N_D^+(z) - N_{2DEG}(z) - N_A^-(z)]. \quad (18)$$

Сравнивая между собой (18) и (8) легко заметить, что левая часть последнего уравнения представляет собой действие оператора кинетической энергии на функцию $\varphi(\vec{r})$ при замене тензора обратной эффективной массы $q(\vec{r})$ на диэлектрическую проницаемость $\varepsilon(\vec{r})$

$$\sum_l T_{k,l}(\varepsilon)\varphi(z_l) = \frac{e}{\varepsilon_0} [N_D^+(z) - N_{2DEG}(z) - N_A^-(z)] \quad (19)$$

Новизна данной работы заключается в том, что отыскание волновых функций и энергетических уровней в КЯ осуществлялось путем решения задачи о нахождении собственных векторов и собственных значений матрицы $T_{i,l}(q) + \delta_{k,l}U(z_l)$. Собственные значения данной матрицы соответствуют уровням энергии КЯ E_k , которым отвечают волновые функции $\psi(z_k)$. В процессе решения использовались следующие граничные условия для электростатического потенциала

$$\varphi(0) = \varphi_{\text{int}}, \varphi(L) = 0 \quad (20)$$

и потенциальной энергии

$$U(z) = \begin{cases} e\varphi(z) + eFz, z \in (0, L) \\ e\varphi(z), z \in (L, L + L_b) , \\ e\varphi_{\text{int}} + \Delta E_c, z = 0 \end{cases} \quad (21)$$

где L, L_b – ширина КЯ и барьера, $\varphi_{\text{int}} = 1.1$ эВ и $\varphi_{\text{int}} = 1.3$ эВ — встроенный поляризационный потенциал в GaN и InGaN [20, 21].

Система линейных уравнений (17) и (19) с граничными условиями (20), (21) не решается аналитически. Для ее решения применялись итерационные способы вычислений, которые позволили определить потенциальный рельеф КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$, форму волновых функций, а также уровни энергий с учетом влияния встроенных полей. Использовался блочно-итерационный алгоритм, включающий в себя следующие этапы [22]:

1. Выбор начального приближения для $\varphi(z)$
2. Решение уравнения Пуассона
3. Подстановка решения в уравнение Шредингера
4. Нахождение уровней энергии и волновых функций
5. Расчет новой концентрации по формуле [23]

$$N_{2DEG}(z) = \frac{m^*(z)k_B T}{\pi \hbar^2} \sum_i |\psi_i(z)|^2 \ln(1 + e^{\frac{E_F - E_i}{k_B T}}). \quad (22)$$

Исследуемые образцы гетероструктур имеют множественные КЯ, которые разделены барьерами GaN. Связанность КЯ приводит к размытию энергетических уровней и образованию энергетических минизон. При толщине барьеров более 35\AA размытие составляет менее 1.5 мэВ . Встроенные электрические поля с напряженностью F до 3 МВ/см приводят к сильному искривлению потенциального рельефа активной области. Все это позволило в качестве начальных приближений для самосогласованного расчета использовать результаты (энергии и волновые функции), полученные аналитически для одиночной треугольной КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$. Вычисления были проведены для концентрации основных носителей заряда $N_{2\text{DEG}} = 2.2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$ при $T = 300 \text{ К}$. Также учитывалось, что при переходе через гетерограницу значения эффективной массы, диэлектрической проницаемости и электростатического потенциала меняются плавно. Математически резкий переход не представляет физического интереса.

4. Результаты и их обсуждение

На рис. 2(а) показана энергетическая диаграмма одиночной КЯ шириной 2.5 нм , полученная на основании численного решения системы уравнений (17) и (19). Видно, что в КЯ заселены только два энергетических уровня, которые расположены друг относительно друга на расстоянии 0.7 эВ . На рис. 2(б), (с) показаны формы волновых функций носителей заряда на основном и возбужденном энергетических уровнях. Так как максимум плотности вероятности обнаружения носителей на возбужденном уровне локализован ближе к гетерогранице, его волновая функция проникает в барьер GaN на большую глубину. Частичное проникновение хвоста волновой функции в область барьера может приводить к изменению эффективной массы основных носителей заряда в КЯ. Данный вопрос требует дополнительных исследований.

Численное решение уравнения Шредингера показало, что в КЯ шириной 2.5 и 3 нм заселены два энергетических уровня с энергиями $E_0 = 2.7 \text{ эВ}$ и $E_1 = 3.4 \text{ эВ}$ (рис. 3.(а)), а также $E_0 = 2.4 \text{ эВ}$ и $E_1 = 3.1 \text{ эВ}$ (рис. 3.(б)). Энергия отсчитывалась от потолка валентной зоны.

В исследованных гетероструктурах $\text{InGaN}/\text{AlGaIn}/\text{GaInN}$ уровень Ферми поверхностного состояния отличается от объемного уровня Ферми. Следовательно, вблизи поверхности граница запрещенной зоны искривляется. В области искривления формируются встроенные электрические поля, которые приводят к перераспределению электронной плотности в глубь полупроводника. Ширина запрещенной зоны в области КЯ InGaIn равна 2.6 эВ . Фотолюминесценция возбуждалась лазерным диодом с длиной волны излучения равной 405 нм . Поэтому используемый квант света имеет энергию 3.1 эВ . Следовательно, в результате однофотонного поглощения в КЯ

InGaN возникают пространственно разделенные электроны и «дырки». Под действием встроенного электрического поля электрон-дырочная пара становится поляризованной. Это ведет к генерации дипольного момента в системе с напряженностью электрического поля \vec{E}_{dip} (рис.3). Полярность генерируемого диполя противоположна полярности встроенного электрического поля с напряженностью \vec{E}_{int} (рис.3). Частичное экранирование встроенного поля наведенным в процессе фотовозбуждения диполем приводит к тому, что результирующее электрическое поле в КЯ $|\vec{E}_{int}|$ отлично от нуля. Данный процесс можно рассматривать как «обратный» пьезоэлектрический эффект, в результате которого уменьшение напряженности встроенного электрического поля сопровождается изменением деформации кристаллической решетки. Стоит отметить, что мощность возбуждающего лазерного излучения недостаточна для полного экранирования встроенного поля, то есть для реализации состояния плоских зон.

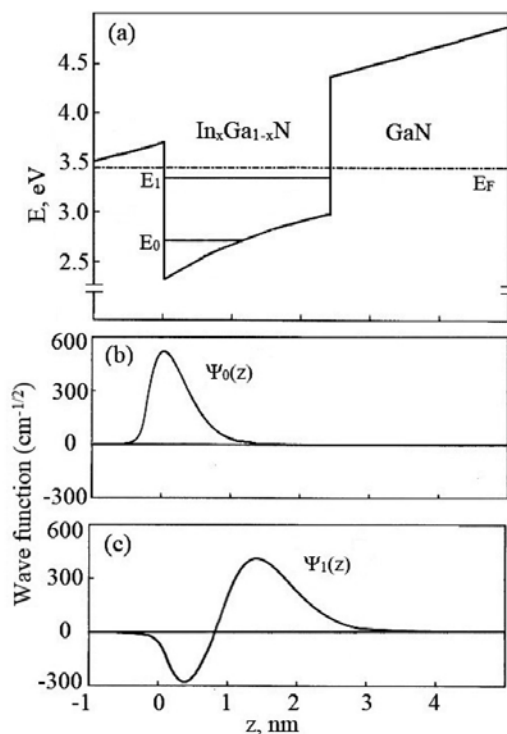


Рис. 2. (a) Зонная диаграмма одиночной КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ шириной 2.5 нм, полученная на основании решения уравнений Шредингера и Пуассона. Показаны положения основного E_0 и возбужденного E_1 энергетических уровней, а также уровня Ферми E_F . (b), (c) Формы волновых функций на уровнях E_0 и E_1 .

Решение уравнения Пуассона позволило установить отклонение электростатического потенциала КЯ от прямоугольной формы в результате воздействия встроенных электрических полей (рис. 3). Искривление потенциа-

ного рельефа приводит к неравномерному сдвигу энергетических уровней вдоль все активной области гетероструктуры $\text{InGaN}/\text{AlGaIn}/\text{GaN}$ (эффект Штарка).

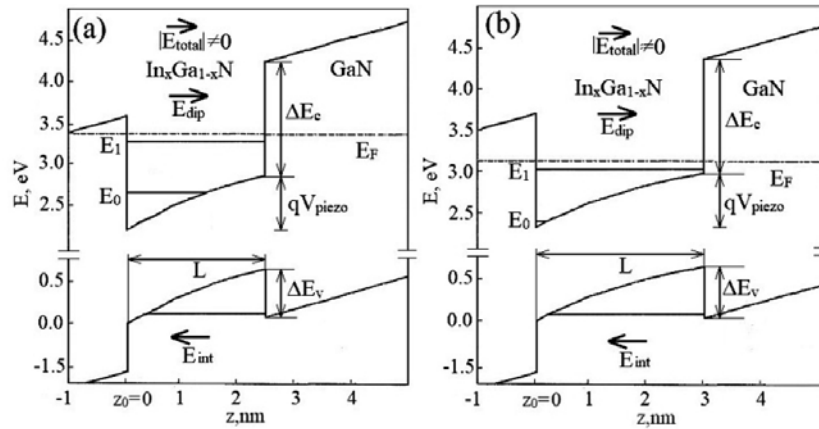


Рис.3. Зонные диаграммы одиночной КЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ шириной (a) 2.5 нм и (b) 3 нм, полученные на основании решения уравнений Шредингера и Пуассона: \vec{E}_{int} — напряженность встроенного электрического поля, \vec{E}_{dip} — напряженность поля диполя, наведенного в системе в процессе фотовозбуждения, \vec{E}_{total} — результирующее электрическое поле в КЯ шириной L , $\Delta E_c, \Delta E_v$ — разрыв зоны проводимости и валентной зоны. Кружочками показан положительный и отрицательный избыточный пьезоэлектрический заряд на гетерогранице, вызванный рассогласованием постоянных кристаллических решеток GaN и InGaIn.

В серийном производстве готовых СД устройств на основе МКЯ $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ используется рост вдоль полярного направления $[0001]$ гексагонального GaN. В результате пьезоэлектрической и спонтанной поляризации в активной области гетероструктур $\text{InGaIn}/\text{AlGaIn}/\text{GaIn}$ формируются электрические поля. Встроенные электрические поля обуславливают изгиб энергетических зон, что, в свою очередь, приводит к пространственному разделению основных носителей заряда. Следовательно, интеграл перекрытия волновых функций электронов и «дырок» снижается и уменьшается доля излучательной рекомбинации, что приводит к уменьшению интегральной светимости приборов. Последнее обусловлено тем, что вероятность межзонного оптического перехода прямо пропорциональна квадрату интеграла перекрытия электронной и дырочной волновых функций. Уменьшение пространственного перекрытия электронной и дырочной волновых функций приводит к меньшей вероятности и энергии перехода с испусканием кванта света.

5. Заключение

Таким образом, в настоящей работе на основании численного самосогласованного решения одномерного уравнения Шредингера и электронейтральности Пуассона рассчитаны уровни энергии в КЯ InGaN, а также установлено распределение плотности носителей заряда на данных уровнях. Результаты расчетов согласуются с наблюдаемыми в спектрах фото- и электролюминесценции длинами волн. Это говорит о хорошем согласии используемой математической модели и эксперимента.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Финансирование

Работа выполнена при финансовой поддержке фонда развития теоретической физики и математики «Базис».

Литература:

1. *Nakamura S.* // Rev. Mod. Phys. 2015. V. 87. pp. 1139 — 1151.
2. *Narukawa Y., Narita J., Sakamoto T., et al.* // Phys. Status Solidi A. 2007. V. 204. pp. 2087–2093.
3. *Hensley J.M., Montoya J., Xu J., et al.* // Optics express. 2009. V. 22. pp. 20476–20482.
4. *Prudaev I., Sarkisov S., Tolbanov O., et al.* // Physical Status Solidi B. 2015. V. 252. pp. 946–951.
5. *Van Capel P.J.S., Turchinovich D., Porte H.P., et al.* // Physical Review B. 2011. V. 84. pp. 1–8.
6. *Криволапчук В.В., Кожанова Ю.В., Лундин В.В. и др.* // ФТТ. 2005. Т. 47. С. 1203–1207.
7. *Асланян А.Э., Авакянц Л.П., Червяков А.В. и др.* // ФТП. 2020. Т. 54. С. 420 — 425.
8. *Любовский Р. Б., Песоцкий С. И., Шилов Г. В. и др.* // Письма в ЖЭТФ. 2013. Т. 98. С. 204 — 207.
9. *Sousa M.A., Esteves T.C., Sedrine N.B., et al.* // Scientific Reports. 2015. V. 5. pp. 1–6.
10. *Байдусь Н.В., Алешкин В.Я., Дубинов А.А. и др.* // ФТП. 2017. Т. 51. С. 1579–1587.
11. *Бадгутдинов М.Л., Юнович А.Э.* // ФТП. 2008. Т. 42. С. 438–446.
12. *Горкавенко Т.В., Зубкова С.М., Русина Л.Н.* // ФТП. 2007. Т. 41. С. 661–669.
13. *Luttinger J.M., Kohn W.* // Physical Review. 1955. V. 97. P. 869–883.
14. *Герт А.В., Нестоклон М.О., Прокофьев А.А. и др.* // ФТП. 2017. Т. 51. С. 1325–1340.

15. *Franssen G., Perlin P., Suski T.* // Physical Review B. 2004. V. 69. pp. 1-6.
16. *Davies J.H.* The physics of low-dimensional semiconductors: an introduction (Cambridge University Press, 1998).
17. *BenDaniel D.J., Duke C.B.* // Phys. Rev. 1966. V. 152. pp. 683-692.
18. *Bernardini F., Fiorentini V., Vanderbilt D.* // Phys. Rev. B. 1997. V. 56. pp. 450-457.
19. *Kehagias Th., Dimitrakopoulos G.P., Becker P., et al.* // Nanotechnology. 2013. V. 24. 435702.
20. *Hacke P., Detchprohm T., Hiramatsu K., et al.* // Appl. Phys. Lett. 1993. V. 63, pp. 2676–2678.
21. *Suzue K. et al.*, // J. Appl. Phys. 1996. V. 80, pp. 4467–4478.
22. *Indlekofer K. M., Dona E., Malindretos J., et al.* // Phys. Status Solidi B. 2002. V. 234. pp. 769-772.
23. *Brounikov P.N., Benyattou T., Guillot G.* // J. Appl. Phys., 1996. V. 80, pp. 864-871.

PHOTO- AND ELECTROLUMINESCENCE SPECTRA OF HETEROSTRUCTURES WITH $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ MULTIPLE QUANTUM WELLS

E.R. Burmistrov¹, L.P. Avakyants²

Moscow State University, Faculty of Physics, 119234 Moscow, Russia

¹*E-mail: eugeni.conovaloff@yandex.ru*

²*E-mail: avakyants@physics.msu.ru*

Received 02.07.2023

Photo- and electroluminescence spectra of LED heterostructures with three and five $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ quantum wells in the active region were obtained. Photoluminescence was excited by a laser with a wavelength of 405 nm at room temperature. Electroluminescence spectra were obtained at direct current in the range from 4 to 12 mA in 2 mA increments. Based on the numerical self-consistent solution of the Schrodinger equation and the Poisson electroneutrality, the values of energy levels and the density distribution of the main charge carriers in a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ quantum well are calculated. The results of the calculations made it possible to associate the maxima in the photo- and electroluminescence spectra with the interband optical transitions of the main charge carriers in the InGa_N quantum well. It is established that the observed bands in the photoluminescence spectra correspond to the fundamental transition in the InGa_N quantum well between the unexcited hole and electron levels of the valence band and conduction band.

Keywords: heterostructure, photoluminescence, quantum well, spectra, radiation

АКТУАЛЬНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПРОШЛЫХ ЛЕТ

Продолжение. Начало в предыдущих номерах.

НА ПУТИ К ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ БИОЛОГИИ. I. ПРОЛЕГОМЕНЫ.

Перевод с английского
С.Г. Васецкого

Под редакцией и с предисловием
акад. Б.Л. Астаурова

Издательство «Мир» Москва, 1970.

Предисловие к английскому изданию

Теоретическая физика представляет собой вполне сложившуюся самостоятельную науку, и во многих университетах ею занимаются специальные лаборатории и кафедры. Более того, наши теории о природе окружающего нас материального мира, безусловно, оказывают глубокое влияние на общефилософские концепции. Что же касается теоретической биологии, то едва ли можно сказать, что такая наука уже существует. Трудно сказать, чем она должна заниматься и по каким путям ей следует развиваться; к тому же очень редко случается, что

философы ощущают связь таких биологических проблем, как теория эволюции или восприятие раздражения, с традиционными проблемами философии.

Международный союз биологических наук (МСБН) счел своим долгом, как организация, объединяющая биологов из разных стран, стимулировать создание некоего костяка понятий и методов, на котором могла бы формироваться теоретическая биология. Это совсем не простая задача; поэтому было решено провести три симпозиума на эту тему с годовыми интервалами. Эти симпозиумы предполагалось посвятить не обсуждению теоретических основ каких-либо частных биологических процессов, например проницаемости мембран, наследственности, нервной деятельности и т. д., а попыткам выявить и сформулировать основные концепции и логические связи, характеризующие живые системы в отличие от неживых, и рассмотрению вытекающих из них общепhilosophических представлений.

На меня была возложена обязанность пригласить докладчиков и организовать заседания.

Первый симпозиум проходил с 28 августа по 3 сентября 1966 г. на вилле Сербеллони в Беладжо (озеро Комо). Чтобы создать известную базу для дискуссии и сосредоточить внимание на некоторых проблемах, я разослал участникам симпозиума свои лекции, прочитанные за год до этого в университете Северного Уэльса и нарочито переработанные с тем, чтобы придать им несколько полемический характер. Одновременно были разосланы некоторые комментарии Рене Тома к этим лекциям, а также статья Эрнста Майра.

Заседания на вилле Сербеллони, носившие весьма непринужденный характер и оказавшиеся очень плодотворными, не стенографировались.

В процессе обсуждения внимание было сосредоточено главным образом на проблемах биологической теории, а не на более общих проблемах. Хотя в результате работы симпозиума стали вырисовываться пусть еще не очень четкие, но уже определенные контуры теоретической биологии, было совершенно ясно, что необходимо продолжить обсуждение и обмен мнениями между приверженцами различных точек зрения, прежде чем удастся разработать некое подобие схемы стройной и самостоятельной науки. Поэтому предлагаемая вниманию читателя книга состоит из отдельных статей, написанных после симпозиума в духе проводившегося на нем обсуждения. Они еще не связаны друг с другом в некое единое целое. Именно сознание того, что такого единого целого не существует, что его создание представляет собой длительную и нелегкую задачу, и заставило принять решение провести три симпозиума. Мы надеемся, что на втором симпозиуме будут сделаны дальнейшие шаги на пути к синтезу различных точек зрения. Поэтому этот первый том и получил подзаголовок «Прологомены».

К. Уоддингтон

ПРОБЛЕМА ТРЕХЦВЕТНОГО ФЛАГА — К ВОПРОСУ О РАЗВИТИИ И РЕГУЛЯЦИИ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ СТРУКТУРЫ

Л. ВОЛЬПЕРТ

(Медицинская школа Миддлсекской больницы)

Пытаясь ввести процесс развития в рамки некой общей теории, в нем удобно различать процессы, протекающие в основном во времени, и процессы, идущие в пространстве. Такое разделение отражает также современный подход к проблеме развития. Большинство текущих исследований в области эмбриологии затрагивает главным образом процессы развития во времени, проявляющиеся в дифференцировке клеток. Точнее, в этих работах изучаются последовательные процессы, связанные с регуляцией синтеза специфических макромолекул; это направление исчерпывающе рассмотрено одним из участников данного симпозиума [1]. Пространственные аспекты процессов развития, которым уделяется значительно меньше внимания, включают в себя регионализацию, или образование пространственной структуры (pattern formation), и морфогенез, или возникновение формы.

Центральная проблема развития — это проблема о том, как из яйца, кажущегося недифференцированным и простым в структурном отношении, развивается сложный организм. В одной из наших прежних работ о значении теории информации для проблем развития [2] мы высказали предположение, что развитие сложного организма легче понять, если допустить, что яйцо содержит лишь программу того, как строить организм, а не полную спецификацию всего организма, который из него разовьется. На наш взгляд, значительно проще написать программу для создания сложного организма, чем запрограммировать самый организм. Некоторое экспериментальное подтверждение подобной точки зрения было получено при изучении клеточных основ морфогенеза у зародыша морского ежа [3]. Исходя из полученных результатов, мы высказали предположение, что большинство изменений формы зародыша в ходе раннего развития обусловлено клеточной активностью двух типов: контактом между клетками и образованием псевдоподий. Разумеется, запрограммировать эти два типа активности значительно проще, чем форму возникающих в результате структур. Более того, клеточная активность может оказаться связующим звеном между действием генов и возникающими структурами.

В формулировке Уоддингтона проблема образования пространственной структуры «заключается в том, чтобы определить непосредственные причины разделения однородной области на отдельные элементы, расположенные в пространстве в определенном порядке». Если о морфогенезе (возникновении формы) можно составить какое-то представление на основе указанных выше данных, проблема возникновения пространственной структуры значительно менее ясна [4]. Нам необходимо знать природу клеточной активности, связанной с образованием пространственной структуры, не только потому, что это важная эмбриологическая проблема, но и потому, что это может иметь значение для всех наших представлений о природе развития. Это особенно относится к регуляции развития, играющей большую роль в возникновении пространственной структуры. Именно восстановление пространственной структуры, которое Уоддингтон назвал *гомеорезом* [5], обычно имеют в виду, когда говорят о канализации развития или о регуляции, сопровождающей удаление какой-либо части организма. С другой стороны, современные представления о регуляции, например ингибирование и репрессия конечным продуктом, затрагивают исключительно процессы, протекающие во времени. (Следует, однако, отметить, что и возникновение пространственной структуры и морфогенез всегда включают в себя дифференцировку во времени.)

Мы рассматривали проблему возникновения пространственной структуры [4] лишь на примере простых осевых структур, потому что они, во-первых, легче поддаются анализу и, во-вторых, достаточно хорошо изучены экспериментально. Существо этой проблемы лучше всего пояснить на нескольких примерах.

1 Зародыш морского ежа на ранних стадиях развития разделяется, по анимально-вегетативной оси на эктодерму, энтодерму и мезенхиму. Хотя соотношение этих областей можно изменять как оперативным путем, так и с помощью химических воздействий, система характеризуется устойчивой тенденцией к регуляции, направленной на сохранение нормального соотношения. Например, если удалить микромеры, т. е. те клетки зародыша, из которых в норме образуется первичная мезенхима, то из прилежащего участка образуется более или менее обычное количество мезенхимных клеток [6].

2. У слизистого гриба клеточная форма может развиваться из одной амебoidalной клетки, вышедшей из споры. Из этой клетки путем роста и деления образуется популяция клеток, которые в конечном счете собираются в комок, напоминающий по форме патрон; у *Dictyostelium* эти клетки мигрируют. Передние клетки образуют стебелек, а задние — спорангий, и соотношение этих двух типов клеток может оставаться неизменным даже при больших колебаниях общего числа клеток. Более того, это соотношение сохраняется и при удалении части клеток мигрирующей массы [7].

3. Многие гидроиды характеризуются, по существу, осевой организацией; например, *Tubularia* по своей оси подразделяется на ротовой конус, дистальные щупальца, гонофоры, проксимальные щупальца и столон. При этом гидроиды обнаруживают значительную способность к регуляции, восстанавливая характерную для них структуру после удаления какой-либо части [8, 9].

Способность к восстановлению осевой структуры, проиллюстрированная на этих примерах, может быть прослежена и во многих других системах. Некоторыми наиболее характерными чертами таких систем являются: а) постоянство (в известных пределах) соотношений между частями в структурах разных размеров; б) способность части системы воспроизводить всю систему или (опять-таки в известных пределах) способность любой части системы превратиться в любую другую часть; в) сохранение полярности системы, т. е. образование частей системы в правильном положении по отношению друг к другу и к исходной системе. Мы обобщили эти аспекты регуляции пространственной структуры с тем, чтобы их было легче подвергнуть теоретическому анализу.

Поведение таких систем резко отличается от так называемого «мозаичного», или нерегуляционного, образования структур, при котором удаление какой-либо части приводит к повреждению системы, тесно связанной с удаленной частью. Однако, как подчеркнул Вейс [10], различие между регуляционным и мозаичным типами развития, может быть, лишь отражает различия в сроках, после которых регуляция уже невозможна. Мозаичные структуры обычно рассматривают как предструктуры, и можно предположить, что при этом всегда имеется фаза регуляции.

Экспериментальный подход к этой проблеме привел к тому, что был сформулирован ряд интересных и упрощающих проблему концепций, связанных с представлениями о градиентах и доминантности [9, 11]. Поразительно, однако, насколько мало внимания было уделено теоретической стороне проблемы, в частности созданию работающих моделей. Мне известна лишь одна серьезная попытка создания модели, способной к развитию и регуляции осевой структуры [12]. Если говорить о более общих работах, то лишь очень немногие, и среди них Спигелман [13], обратили внимание на эту сторону проблемы. Как указал Спигелман, одна из характерных черт регенерации заключается в том, что потенциями к образованию определенной части структуры обладает более обширная область, нежели та, из которой эта часть в действительности развивается. Он высказал предположение, что подобная система должна руководствоваться «принципом ограниченной реализации». Это могло бы осуществляться посредством по крайней мере двух различных механизмов, один из которых заключается в подавлении реализации потенций, а другой обеспечивает возникновение различий между частями систе-

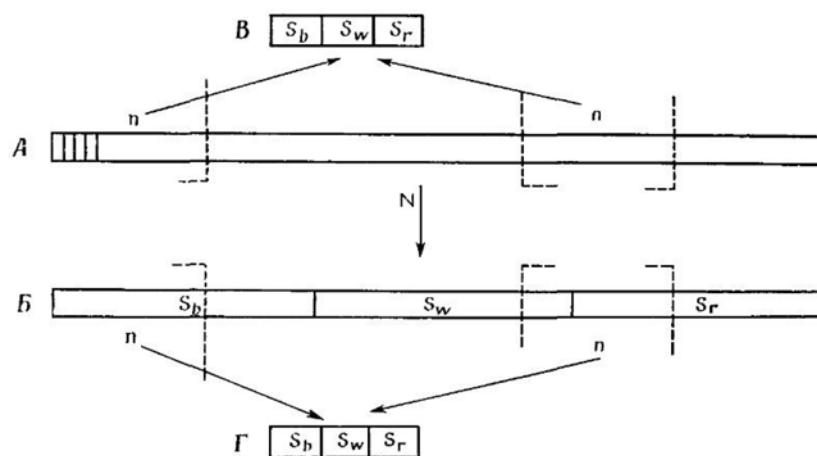
мы. Спигелман полагал, что если, например, две части системы способны к образованию определенной области, а делает это только одна из частей, то необходимо, чтобы эти части отличались друг от друга и чтобы одна часть подавляла развитие другой. Он подчеркнул, что одно лишь различие между двумя частями, проявляющееся, например, в виде какого-либо градиента, не может само по себе служить адекватным механизмом. В течение некоторого времени мы считали эти выводы правильными и рассматривали их как «Первую теорему образования пространственной структуры». Однако проведенный нами анализ ясно показал, что эти выводы требуют существенного пересмотра: принцип ограниченной реализации приложим лишь к спонтанным самоограничивающимся реакциям, и постоянно существующие различия между частями системы вовсе не являются необходимыми.

Формализация проблемы. Рассмотрим осевой ряд из N сходных элементов. Каждый элемент может находиться в k взаимно исключающих состояниях S_p ($p = 1...k$). Состояние S_p любого элемента определяется лишь входными сигналами и его предшествующим состоянием. Проблема заключается в том, чтобы определить входные и выходные сигналы, свойства элемента и природу связи между ними, приводящие к подразделению системы вдоль продольной оси на r участков, расположенных в определенном порядке. Каждый из этих участков содержит n элементов и характеризуется специфическим состоянием S_p , так что $n_p / N = A_p$ (т. е. число элементов в данном состоянии представляет собой некоторую постоянную часть общего числа элементов). Эта конфигурация должна сохраняться при нарушениях системы, вызванных удалением отдельных ее частей. Удобнее рассматривать частный случай для $r = 3$ и для $A_1 = A_2 = A_3 = 1/3$. Если S_1 , S_2 и S_3 — это синий, белый и красный цвета и обозначаются соответственно S_b , S_w и S_r , то мы получим структуру, аналогичную французскому (трехцветному) флагу, которая должна восстанавливаться при удалении любой части (фиг. I). Эту ситуацию можно считать типичным примером возникновения структуры, и она представляет собой обобщение приведенных выше конкретных биологических примеров. (Более сложной проблемой является случай двумерной структуры — британский флаг.)

Несомненно, существует какой-то общий путь решения этой проблемы, и я очень надеюсь, что он будет найден. Поскольку в настоящее время такого пути нет, мы можем продвигаться лишь ощупью. И первым шагом на этом пути было построение простых работающих моделей и изучение их общих свойств.

Модельные системы. Прежде чем перейти к рассмотрению наших собственных моделей, я хотел бы упомянуть о механизмах, предложенных Розумом [12], и не только потому, что им предпринята единственная серьезная попытка создания модели, но и потому, что при обсуждении пространствен-

ной структуры и градиентов неоднократно использовались в той или иной форме идеи, лежащие в основе его модели. Роуз высказал предположение, что происхождение пространственной структуры может быть следствием целой иерархии самоограничивающихся реакций и распространением ограничивающей или тормозящей информации от одного дифференцирующегося участка к другому, а также градиентом скоростей дифференцировки, сходным с осевыми градиентами Чайльда. В такой системе реакции будут идти с наибольшей скоростью в верхней точке градиента, а доминирующей окажется реакция, находящаяся на вершине иерархии. Эта реакция является самоограничивающейся, и следующая реакция происходит в прилежащем участке — таким образом градиент скоростей дифференцировки обеспечивает пространственное выражение иерархии в реакциях. Хотя на первый взгляд эта система и может показаться привлекательной, ее анализ показывает, что она неудовлетворительна в качестве системы, генерирующей пространственную структуру, и что она не способна к регуляции [4]. Нам вообще не удалось создать никакой модели на основе градиента скоростей реакции. Еще более важная черта модели Роуза состоит в том, что размер участка определяется продолжительностью реакции; на такой основе модель трехцветного флага нам создать не удалось.



Фиг. 1. Проблема трехцветного флага.

А. Осевая система, образованная из N сходных элементов (лишь несколько таких элементов изображено на левом конце).

Каждый элемент может находиться в состоянии S_b , S_w или S_r .

Б. Образуется трехцветный (французский) флаг, поскольку левая треть окрашена в синий, средняя — в белый и правая — в красный цвет.

В. Если изолировать часть системы А из n элементов, то эта часть также образует трехцветную структуру.

Г. Если изолировать часть системы, уже имеющей трехцветную структуру,

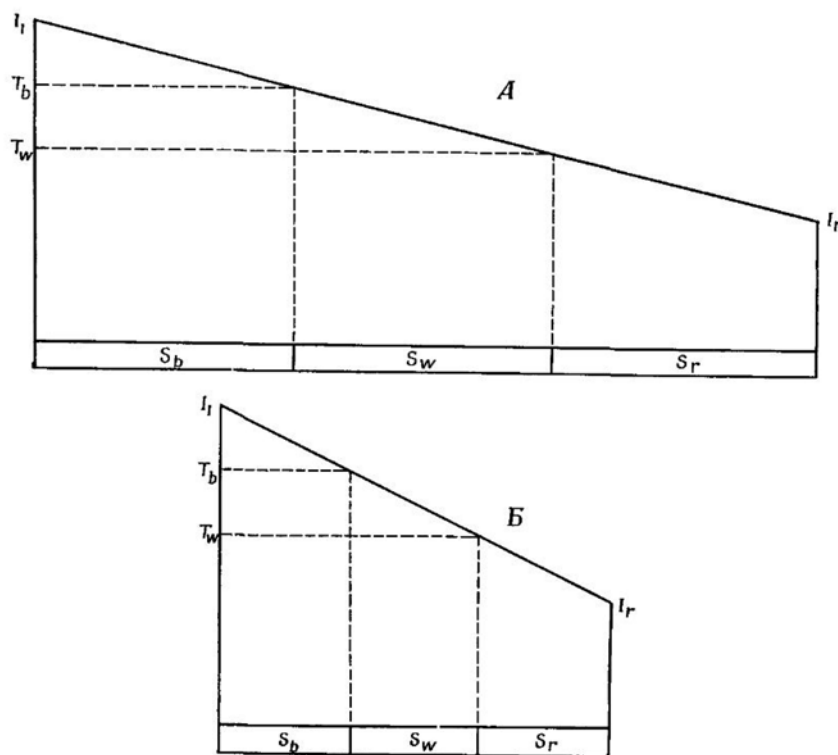
то эта часть также дает трехцветную структуру меньшего размера.

Наши попытки решить проблему трехцветного флага показали, что существуют, по-видимому, два главных пути ее решения. Прежде всего это разработка механизма, посредством которого элемент может точно высчитать свое положение в системе и «решить», в каком состоянии он должен находиться. Простой механизм, который может это обеспечить,— это наличие двух строгих градиентов, возникающих на обоих концах системы. Отдельный элемент может рассчитать свое положение на основе значений двух градиентов и перейти в соответствующее состояние. Модель этого типа можно назвать «моделью с установившимся градиентом». В модели второго типа отдельный элемент не может вычислить свое положение в системе относительно двух ее концов. В основе этого механизма лежит «баллотировка», или «уравновешивание» размеров участков по отношению друг к другу. Примером такого механизма может служить модель порогового градиента Уэбстера [14]. В этой модели один участок S_b , образует легко диффундирующее вещество, а прилегающий участок S_w разрушает его. Элементы обратимо переходят из состояния S_b в состояние S_w до тех пор, пока концентрация вещества не станет постоянной. В модели Уэбстера есть градиент порогов, который обеспечивает расположение элементов, изменяющих свое состояние, между участком S_w и участком S_b . Пропорции участков определяются скоростью образования и разрушения диффундирующих веществ. Теперь мы рассмотрим эти две модели несколько более подробно.

Но прежде было бы полезно подчеркнуть различия между глобальными, или системными, свойствами, характерными для системы в целом или для отдельных ее элементов, когда они входят в систему, и локальными, или элементарными, свойствами. Не следует также чересчур поспешно отождествлять элементы с клетками.

Модель установившихся градиентов. Допустим, что элементы имеют фиксированные пороги T по отношению к единственному веществу I , так что концентрация этого вещества определяет состояние клетки. Тогда, если $I > T_b$, то элемент будет находиться в состоянии S_b ; если $T_b > I > T_w$, то элемент будет в состоянии S_w ; если же $T_w > I$, то элемент будет в состоянии S_r . Это локальные свойства системы. К глобальным ее свойствам относится установление линейного градиента, абсолютные значения которого на двух концах системы равны I_l и I_r (фиг. 2). Тогда, если $I - T_b = T_b - T_w = T_w - I_r$, система образует трехцветный флаг. Система будет способна к весьма совершенной регуляции, если при удалении какого-либо участка значения I на обоих концах восстанавливаются до I_l и I_r , а градиент I между ними остается линейным (фиг. 2). Такая регуляция может быть достигнута в том случае, если элемент в левом конце служит единственным источником вещества I , образующегося в количестве I_l , а элемент в правом конце служит «стоком»

вещества I , причем скорость его выведения такова, что концентрация I в этом участке равна I_r . При этих условиях вещество I станет диффундировать от левого конца к правому, а градиент концентраций будет линейным [4]. Ясно, что такая система нуждается в механизме, который определял бы поведение элемента в зависимости от того, свободен ли левый конец системы (источник), не свободен ни один из концов или свободен правый конец (сток). Это, конечно, означает, что каждый элемент поляризован.



Фиг. 2. Схема модели фиксированных градиентов.

- А. Система трехцветного флага устанавливается посредством градиента концентраций вещества I .
- Б. Если удалить участок с правой стороны, то устанавливается новый градиент, поскольку концентрация I в правом конце равна I_r , и структура восстанавливается.

У такой системы, способной к весьма совершенной регуляции, есть несколько интересных особенностей. Пороговые характеристики элементов фиксированы, и диффундирует лишь одно вещество независимо от того, на сколь большое число участков подразделяется система. Особый интерес представляет тот факт, что участки S_b , S_w и S_r не взаимодействуют и что размеры одного из них не влияют на размеры любого другого. Межклеточные связи возможны лишь между элементами, получающими входные сигналы от соседних элементов: если с какой-либо их стороны расположен

еще один элемент, то либо образование, либо разрушение вещества I в них подавлено; если этот элемент расположен справа, то подавлено разрушение и происходит образование вещества I , так что его концентрация составляет I_i ; если же этот элемент располагается слева, то подавлено образование I .

Модель уравнивания. Эта модель сходна с моделью порогового градиента Уэбстера [14], но она не нуждается ни в каких градиентах. Рассмотрим сначала систему, разделенную на два участка S_b и S_w , так что $A_b = 1/3$, а $A_w = 2/3$. Элементы спонтанно переходят в состояние S_b к образуют вещество I_b со скоростью k_b на 1 элемент; это вещество индуцирует клетки к переходу в состояние S_w , и к образованию вещества I_w со скоростью k_w . Оба вещества I_b и I_w быстро диффундируют и характеризуются сходными непродолжительными периодами полусуществования. Правило для перехода в состояние S_b или S_w таково, что если I_w больше, чем I_b , то элементы переходят в состояние S_b ; если же I_b больше, чем I_w , то элементы переходят в состояние S_w , однако изменять состояние может лишь тот элемент, который расположен между элементами, находящимися в состояниях S_b и S_w , т. е. на границе. Из этого последнего правила есть лишь одно исключение: элемент, находящийся на левом конце, может переходить в состояние S_b и S_w , если $I_b = 0$, а элемент на правом конце — в S_w из S_b , если $I_w = 0$. Очевидно, что пограничные элементы будут переходить из одного состояния в другое до тех пор, пока концентрации веществ не станут равными, т. е. $I_b = I_w$, поэтому если $k_b = 2 k_w$, то система будет регулироваться так, чтобы $A_b = 1/3$, а $A_w = 2/3$. Подобное рассуждение можно легко расширить, подразделив элементы в S_w , с тем чтобы образовался трехцветный флаг — система, которая будет регулироваться столь же хорошо. Модель этого типа можно противопоставить первой, поскольку в ней нет градиента и элемент не может вычислить своего положения в системе. Этот момент очень важен, поскольку он показывает, что существование градиентов не обязательно для регуляции структуры.

Общие принципы. Модели этих двух типов, по-видимому, представляют вполне приемлемые решения проблемы трехцветного флага. Поэтому мы можем рассмотреть некоторые их характеристики более подробно, с тем чтобы выделить черты, общие для всех моделей, позволяющих решить проблему трехцветного флага. Очевидно, можно выделить три необходимых условия. Первое условие состоит в том, что система должна быть поляризованной, т. е. каждый элемент должен обладать механизмом, посредством которого определяется тот конец системы, который находится в состоянии S_b ; для того чтобы создать трехцветный флаг, всегда должен быть определен конец, который будет синим. Второе условие, общее для всех моделей, заключается в том, что элементы должны обладать пороговыми свойствами. Это означает, что состояние элемента будет зависеть от некоторых значений

входных сигналов и что элемент будет переходить из одного состояния в другое при критических значениях этих сигналов. Эти пороги могут зависеть не только от сигналов как таковых, но и от какой-то зависящей от них сложной функции. Наличие порогов может быть свойственно отдельным элементам (модель установившихся градиентов) или системе в целом (модель порогового градиента Уэбстера [14]). Третье условие, также общее для всех моделей, определить труднее. Я бы назвал его потребностью хотя бы в одной спонтанной самоограничивающейся реакции. Называя ее «спонтанной», мы имеем в виду, что реакция может идти в любом элементе, если она не подавляется какой-либо другой частью системы; определение «самоограничивающаяся» означает, что она подавляется в результате реакции, происшедшей в какой-либо другой части системы; в этом-то и состоит механизм подавления. В модели установившихся градиентов имеются две спонтанные самоограничивающиеся реакции: образование вещества I и его выведение. Эти реакции локализованы на концах системы. В модели «уравновешивания» спонтанная самоограничивающаяся реакция заключается в том, чтобы перейти в состояние S_b . Эта реакция самоограничивается, поскольку элементы S_b образуют вещество I_b , вызывающее переход элементов из состояния S_b в S_w . Спонтанная самоограничивающаяся реакция — это единственная часть системы, для которой необходим принцип ограниченной реализации Спигелмана и не нужен градиент различий между частями. Следует отметить также, что спонтанная самоограничивающаяся реакция может лежать в основе динамической регуляции.

Хотя я прекрасно сознаю всю наивность моего подхода к проблеме трехцветного флага, мне все же представляется, что для ее решения необходимы (и, быть может, достаточны) эти три условия: полярность, пороги и спонтанная самоограничивающаяся реакция. Я очень надеюсь, что кто-нибудь предложит значительно более общее и изощренное решение этой проблемы. Было бы важно установить, действительно ли эти три условия необходимы для развития и регуляции системы трехцветного флага. Если это так, то на их основе можно было бы оценивать модели и, что более важно, попытаться идентифицировать их в биологических системах; было бы заманчиво, например, сопоставить спонтанную самоограничивающуюся реакцию с понятием доминантности.

Интересно рассмотреть регуляцию системы трехцветного флага в связи с гомеостазом и гомеорезом. Поскольку мы считали систему трехцветного флага дефинитивной пространственной структурой, не претерпевающей дальнейших изменений, ее строение неизбежно следует рассматривать как пример гомеостаза, а не гомеореа, так как система всегда возвращается к неизменному состоянию, а не к определенному морфогенетическому пути. (В сущности, мне не вполне ясно, что представляет собой морфогенетиче-

ский путь на клеточном уровне.) Практически многие структуры типа трехцветного флага в биологии не являются просто дефинитивными. Так, из трех примеров, упомянутых во введении, зародыш морского ежа на ранних стадиях и масса клеток слизистого гриба — это переходные стадии развития в значительно более длинной последовательности морфогенетических процессов. Поэтому необходимо выяснить, в какой степени развитие пространственной структуры включает в себя последовательное образование систем трехцветного флага, участки которых затем развиваются в системы двуцветного флага и т. д. Для рассмотрения таких проблем длительного образования пространственной структуры и модификации потребуются, невидимому, дальнейшие теоретические разработки. Можно, однако, надеяться, что обсуждение сравнительно простой системы, связанной лишь со структурным гомеостазом, послужит хорошей отправной точкой для дальнейших исследований. В заключение можно отметить, что такие концепции, как гомеостаз, гомеорез и эпигенетический ландшафт, представляют собой, возможно, лишь описания логических свойств систем и даже не пытаются проникнуть в механизмы возникновения этих свойств. Поэтому они не связаны с факторами полярности и спонтанной самоограничивающейся реакцией, которые, как мне кажется, являются основными свойствами, необходимыми для регуляции пространственной структуры, а также с пространственными аспектами развития.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Goodwin B. C.*, Temporal organization in cells, Acad. Press, 1963 (Б. Гудвин, Временная организация клетки, изд-во «Мир», М., 1966.)
2. *Apter M., Wolpert L.*, *J. Theoret. Biol.*, 8, 244 (1965).
3. *Gustafson T., Wolpert L.*, *Int. Rev. Cytol.*, 10, 163 (1963).
4. *Wolpert L., Webster G.*, 1968, in preparation.
5. *Waddington C. H.*, The strategy of the genes, Allen and Unwin, 1957.
6. *Hörstadius S.*, *Biol. Rev.*, Cambridge, 14, 132 (1939).
7. *Raper K., J. Elisha Mitch.* *Sci. Soc.*, 56, 421 (1940).
8. *Webster G., Wolpert L.*, *J. Embryol. Exp. Morphol.*, 16, 91 (1966).
9. *Huxley J. S., de Beer G. R.*, The elements of experimental embryology, Cambridge Univ. Press, 1934. (Гексли и де Бер, Экспериментальная эмбриология, М., 1946).
10. *Weiss P.*, Principles of development, Holt, 1939.
11. *Child C. M.*, Patterns and problems of development, Univ. of Chicago Press, 1941.
12. *Rose S. M.*, *Amer. Nat.*, 86, 337 (1952).
13. *Spiegelman S.*, *Q. Rev. Biol.*, 20, 121 (1945).
14. *Webster G.*, *J. Embryol. Exp. Morphol.*, 16, 123 (1966).

ДЕЛЕНИЕ КЛЕТОК И ОБЪЕДИНЕНИЕ ИДЕЙ

Б. ГУДВИН
(Сассекский университет)

Два основных типа вычислительных машин, существующих в настоящее время, — аналоговые и цифровые — довольно точно отражают два совершенно различных подхода к анализу биологических систем. Аналоговый подход подчеркивает динамику, непрерывность биологических процессов, таких, как физиологическая активность или взаимодействие организма со средой, тогда как цифровой подход подчеркивает квазистатичность, дискретность, логику биологических явлений, например принятие решений в психологии. Особенно плохо поддаются теоретическому анализу такие области исследования, в которых мы непрерывно сталкиваемся как с тем, так и с другим типом поведения, например зародышевое развитие или обучение, и в любом сколько-нибудь полном их изучении непременно следует учитывать как их непрерывность, так и дискретность.

В мире вычислительных машин нетрудно объединить машины этих двух типов, создав своеобразный «гибрид». Быть может, не случайно, что в таком гибриде два его компонента неравноправны: цифровой компонент функционирует как «мозг» машины, а аналоговый играет подчиненную роль его «раба». Их взаимоотношения несколько напоминают отношения между «ид» и «эго». Представление о том, какой компонент играет в конечном счете ведущую роль, зависит от точки зрения и от того, разделяете ли вы взгляды Бергсона или Рассела.

В мире математики не так просто объединить теорию автоматов и теорию регуляции, которые, грубо говоря, отражают различные подходы к изучению тех или иных процессов. Это сложная задача, и от ее решения, как мне кажется, в значительной мере зависит судьба теоретической биологии. Я бы хотел довольно кратко и несколько поверхностно рассмотреть одно частное биологическое явление — цикл роста и деления клетки, чтобы проиллюстрировать эти два комплементарных аспекта одного явления и показать, как к ним можно подойти с позиций теории автоматов и теории регуляции. Я попытаюсь также показать, как их можно объединить и какие при этом встают проблемы.

Дискретность в биологических системах. В тех областях биологии, где существенную роль играет биохимия, а от концентрации веществ во многом

зависит поведение системы, возникновение дискретности обычно связывают с существованием порогов. Так, например, дифференцировку такого простого организма, как гидра, приводящую к образованию двух различных участков переднего конца и тела, обычно объясняют тем, что вдоль оси симметрии гидры существует направленный непрерывный градиент концентраций какого-то вещества, а в каждой клетке имеется «детектор» порогового типа. Все клетки, попавшие в зону сверхпороговых концентраций, дифференцируются в клетки переднего конца, тогда как клетки в зоне подпороговых концентраций дифференцируются в клетки тела. Эта модель слишком проста, чтобы объяснить все факты дифференцировки и регуляции у гидры, но она показывает, как биологи представляют себе пороговые явления в системах, зависящих от концентраций тех или иных веществ. Подобного рода пороговые реакции на непрерывно изменяющиеся концентрации привлекают также для объяснения «решений», принимаемых клетками в процессе своего жизненного цикла, например решения о времени начала новой волны репликации ДНК (в этом случае концентрация меняется во времени, а не в пространстве). Таким образом, логические черты пространственных и временных решений, принимаемых клетками, обусловлены биохимическими переключающими механизмами.

Не вполне ясно, как именно осуществляется такое переключение на молекулярном уровне; по-видимому, скорее всего оно обеспечивается взаимодействием полимерных макромолекул, чаще всего белков. При некоторой критической концентрации белковых мономеров может начаться довольно внезапная агрегация белка с образованием димеров, тримеров, тетрамеров и полимеров более высокого порядка. Этот процесс напоминает фазовый переход в физической системе, поскольку полимеры весьма отличаются от мономеров по своим биохимическим свойствам. В силу того что мелкие молекулы и ионы могут сдвинуть положение равновесия процесса агрегации — дезагрегации, градиенты или временные изменения концентрации могут довольно точно определять пороговый момент для агрегации. Таким образом, более или менее непрерывный биохимический субстрат из мелких молекул, действующих на макромолекулы или макромолекулярные структуры, может создать пространственную или временную гетерогенность, позволяющую рассматривать клетку как автомат или сообщество молекулярных автоматов, действующих исключительно по принципу двоичных решений. Клетку можно представить и в виде машины Тьюринга, как это сделал, например, Сталь [1].

Эта процедура позволяет сконцентрировать внимание на логических особенностях поведения клетки. Можно, например, спросить, способна ли такая клетка-автомат к ламарковской эволюции, при которой адаптивная структура или молекула должны стать закодированными в геноме и должны

быть приведены в соответствие со всеми имеющимися у клетки свойствами. Сталь [2] указывает, что при этом мы сталкиваемся с некоторыми неразрешимыми проблемами. Так, быть может, удастся показать, что в автомате, построенном с учетом способности клетки к приспособлению и самовоспроизведению, ламарковская эволюция невозможна — результат, не лишенный интереса. Высказывалось также мнение, что злокачественный рост можно объяснить как неспособность организма-хозяина распознать злокачественную клетку как аномальную, что также упирается в неразрешимую проблему. Однако лишь дальнейшие исследования покажут, насколько плодотворен такой подход к проблеме рака, для которой уже предложено много менее хитроумных объяснений.

Динамика клеточных процессов. Автомат, моделирующий рост и деление клетки, обладает динамическими свойствами, но они носят прерывистый ступенчатый характер. Последовательность процессов, составляющих клеточный цикл, в описании Сталя относится к простому причинному типу; она представляет собой ряд решений, в результате которых гены считываются один за другим, после чего они выключаются, а затем происходит репликация ДНК, ее разделение между дочерними клетками и т. д. Это вполне допустимая схематизация клеточной активности, необходимая при решении некоторых логических и вычислительных проблем. Однако многие главные проблемы организации молекулярных процессов, лежащих в основе клеточного цикла, связаны с деталями взаимодействия генов, сроками их считывания и колебаниями этих взаимодействий и сроков под влиянием различных условий среды. Для теории автоматов эти вопросы не являются основными, и она начинает с анализа, проводимого на несколько ином уровне. Тем не менее необходимо получить ответ хотя бы на некоторые из этих вопросов, прежде чем можно будет перейти к адекватному теоретическому рассмотрению клеточного цикла. Например, допущение о последовательном считывании генов требует прямой экспериментальной проверки, так как, по-видимому, транскрипция одних генов идет непрерывно, а транскрипция других — с перерывами. Поскольку в процессе деления бактерии, продолжающемся около 50 мин (минимальная среда с глюкозой), считывается до 2000 генов, а макромолекулярный синтез происходит со скоростью, соответствующей синтезу одной молекулы информационной РНК или белка примерно в 1 сек, совершенно очевидно, что все гены не могут считываться строго последовательно. Различные гены должны считываться либо в перекрывающейся последовательности, либо группами, так чтобы одновременно происходила транскрипция многих генов.

В связи с динамикой регуляторных процессов в клетках возникает важный вопрос: подчиняется ли действие гена закону «все или ничего», т. е. включается ли ген на полную мощность, когда концентрация его репрессо-

ра падает ниже определенного порогового значения, и выключается ли он полностью, если концентрация репрессора превышает это значение? Если это так, то ген предстает в виде модуля, имеющего два состояния, а клетка на этом уровне регуляции — по существу в виде механизма цифрового типа. Однако имеющиеся данные достаточно убедительно показывают, что исследованные до сих пор гены (гены щелочной фосфатазы и р-галактозидазы) могут непрерывно регулироваться в пределах некоторого порядка величин путем непрерывного изменения концентрации репрессора. Это позволяет рассматривать проблему генной регуляции скорее как проблему управления, а не как строго логическую проблему, хотя пороговые механизмы, безусловно, действуют и на более высоких уровнях организации (например, упомянутое выше переключение в ходе дифференцировки и морфогенеза у гидры).

Поскольку активность генов не является строго последовательной и не подчиняется закону «все или ничего», упорядоченность во времени включения отдельных генов или групп генов на протяжении клеточного цикла следует, по-видимому, рассматривать как проблему фазовых взаимоотношений между осцилляторами, а не как проблему последовательного переключения. Необходимо, однако, чтобы динамическая характеристика активности генов учитывала и возможность ярко выраженной дискретности, подобной той, которая характерна для осциллятора релаксационных колебаний. Данные о характере действия биологических часов у простейших, например у *Euglena* или *Gonyaulax* (у которых явления ритма и клеточный цикл тесно связаны), явно указывают именно на такой тип сильно нелинейного поведения.

Таким образом, в поисках молекулярной модели процессов, лежащих в основе роста и деления клетки, мы вынуждены выбирать нечто среднее между непрерывным линейным миром, оказавшимся столь полезным и плодотворным при анализе физических систем, для которых характерна аддитивность, и абсолютно дискретным, в высшей степени нелинейным миром булевой логики и теории автоматов, расцвет которых наступил с появлением цифровых вычислительных машин. В начале нашего века казалось, что физика вынуждена будет вступить в эту трудную область математики для объяснения необычных свойств излучения черного тела, фотоэлектрических эффектов и атомных спектров. Однако открытие универсальной элементарной единицы, ставшее возможным благодаря введению постоянной Планка, означало, что квантовая механика может развиваться посредством процедуры квазилинеаризации, и таким образом стало возможным распространить линейную область на квантовые явления. Еще слишком рано говорить о том, возможна ли такая процедура в биологии, например в связи с изучением динамики процессов регуляции клеточного цикла. Быть может, будут найдены правила, сравнительно просто связывающие некоторую функцию частот и

амплитуд периодически изменяющихся величин, например ферментативной активности, с принципами исключения и запрета, определяющими порядок событий в ходе клеточного цикла. Некоторые простые принципы такого рода уже выявляются в результате моих исследований, касающихся взаимосвязи фаз, частот и амплитуд величин, описывающих действие ряда ферментов в синхронизированных культурах *Escherichia coli*. Многие из этих «правил» просто соответствуют правилам взаимодействия нелинейных генераторов колебаний, но они выражены в полуэмпирической форме. Вместо того чтобы пытаться вывести детали поведения клеток на основе дифференциальных уравнений, описывающих молекулярные процессы регулирования, мы следовали по иному пути, что представляет собой первый шаг к описанию, основанному на теории автоматов. При этом основное внимание уделяется логической последовательности событий, а не энергетическим взаимодействиям. Единственные используемые при этом «переменные» — частоты и фазы событий, а не амплитуды или взаимодействия, и даже эти переменные строго фиксированы. Как мне кажется, наиболее успешный анализ рассматриваемой проблемы будет достигнут, если подойти к ней с некоторой промежуточной позиции, лежащей где-то между исключительно детальным описанием с помощью дифференциальных уравнений и описанием на основе теории автоматов.

На пути к решению проблемы. Один из недостатков непрерывного динамического анализа клеточной активности заключается в том, что, наблюдая за изменениями многочисленных переменных системы, можно упустить из виду существенные черты их поведения. Описание молекулярной организации на основе теории автоматов начинается с абстракции и, таким образом, избегает этой трудности; однако, как я уже отметил, оно делает поведение системы чересчур определенным, в силу чего от внимания наблюдателя может ускользнуть основа организации этой системы.

Выход заключается в том, чтобы, отбросив несущественные детали, отобрать наиболее характерные для системы переменные и взаимодействия. В физике этой цели служат термодинамические или волновые функции. Мне кажется, что для описания и анализа биологических процессов нужна аналогичная функция, но она должна быть выражена в единицах регуляторной активности клетки. Этой цели может служить функция таландической энергии, описанная мною чисто теоретически несколько лет назад [3]. Она дает возможность выразить количественно регуляторную и информационную активность какого-либо регуляторного элемента и его влияние на другие элементы клетки. Это влияние или взаимодействие выражается в модуляции как частоты, так и амплитуды.

Я надеюсь, что такая процедура позволит найти функцию состояния, минимальное значение которой определит «конфигурацию» системы, вы-

ражаемую в конечном счете в терминах частот, фаз, амплитуд и других существенных характеристик клеточных переменных, необходимых для описания динамического состояния растущей и делящейся клетки. Эти количественные характеристики позволят затем определить упорядоченную во времени периодическую последовательность событий, из которых складывается самовоспроизводящийся морфогенетический процесс, известный как цикл клеточного деления. Важнейшая черта такого описания клеточного цикла на основе теории автоматов состоит в том, что при этом подчеркивается последовательный характер биосинтетических и морфогенетических процессов, который Патти [4] считает существенным для всякого самовоспроизводящегося цикла. В действительности логическая характеристика организации и системы необходима, но она должна быть дополнена другими свойствами, связанными с более непрерывными регуляторными особенностями системы. До сих пор были выяснены лишь немногие детали этого в известной мере абстрагированного нелинейного динамического описания клеточного цикла. Экспериментальные исследования скоро покажут, позволяют ли эти полу-эмпирические процедуры упростить нелинейные аспекты динамики регуляции и использовать квазилинейные операции при их описании и анализе. Такой подход, по-видимому, дает возможность включить существенные аналоговые и цифровые свойства исследуемой биологической системы в некую связную теорию. Насколько он будет плодотворен в других областях, например при изучении зародышевого развития и обучения, пока еще неясно.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Stahl W. R. J. Theoret. Biol.*, 8, 371 (1965).
2. *Stahl W. R.*, in: *Natural automata and useful simulations*, Macmillan, pp. 43—72, 1966.
3. *Goodwin B. C.*, *Temporal organization in cells*, Acad. Press, 1963. (Б. Гудвин, *Временная организация клетки*, изд-во «Мир», М., 1966.)
- Pat fee H. H., in: *Natural automata and useful simulations*, Macmillan, pp. 73—105, 1966.

Информация и правила для авторов

Общие положения

Журнал «Наноструктуры. Математическая физика и моделирование» (сокращенно: НМФМ) публикуется с 2009 года и является периодическим научным изданием. Электронная версия журнала размещается на сайте <http://www.nano-journal.ru>. Основная цель издания: представление новых теоретических и вычислительных методов моделирования наноструктур и мягкой материи, общих подходов в исследовании мезосистем, а также ключевых экспериментальных результатов в данной области и связанных с этим проблем математической физики.

Журнал НМФМ имеет междисциплинарный характер и в силу этого несет определенную образовательную направленность, а не только узко научную. Работы, представляемые в журнал, должны содержать вводные сведения, которые обеспечат понимание постановок задач и восприятие результатов не только прямыми специалистами. Определения понятий, объяснение обозначений и терминов, оценки характерных параметров, теоретические предпосылки и идеи, используемые методы, и т.п., должны быть кратко объяснены в тексте статьи, имея в виду читателей, специализирующихся в иных направлениях. Должны быть описаны базовые математические модели и уравнения. Во Введении и в последующих разделах очерчивается стратегия и основные трудности, это увязывается с используемыми моделями. Структура статьи ориентируется на прояснение общей логики и методики исследования, содержит резюмирующие выводы. В тексте должны быть рассмотрены характерные примеры (хотя бы, методические), ясно иллюстрирующие предлагаемые алгоритмы.

Журнал публикует научные обзоры, исследовательские статьи и краткие научные сообщения, а также избранные аналитические и информационно-образовательные материалы, тексты докладов и циклов лекций, прочитанных в университетах, научных центрах, на школах-семинарах, конференциях, нигде ранее не публиковавшиеся и не принятые к публикации в других изданиях. Язык публикации в журнале НМФМ, как правило, русский. Работы, представляемые в журнал, не могут иметь научно-популярный или компилятивный характер. Все статьи рецензируются и могут быть отклонены редколлегией журнала. В случае принятия работы к печати ее авторы передают издательству журнала НМФМ право на разовую безвозмездную публикацию текста и его размещение в электронной версии на сайте журнала. Перевод опубликованных в журнале статей на другие языки может осуществляться только с разрешения и при участии авторов.

Порядок представления статей

- В редакцию изначально представляются:
 - файл статьи, файлы с иллюстрациями;
 - сопроводительное письмо, можно в электронной форме, содержащее сведения об объеме статьи и обо всех авторах (фамилии, имена, отчества, полные названия мест работы, почтовый адрес с индексом, номер контактного телефона с кодом города, электронный адрес автора, ответственного за переписку с редакцией); предпочтительно, чтобы это письмо было выполнено на бланке учреждения, в котором работает кто-то из авторов, было заверено печатью и содержало утверждение о возможности открытого опубликования статьи;
 - файл с переводом на английский язык названия статьи, фамилий и инициалов авторов, аннотации, ключевых слов.
- Авторские файлы могут быть присланы на электронный адрес: papers@nano-journal.ru; (резервный адрес в случаях затруднений с пересылкой: nano@miem.edu.ru) или переданы в редакцию на любом электронном носителе. Авторы получают из редакции подтверждение о получении их материалов.
- Телефон (факс) редакции: +7 (495) 916-8876. Адрес редакции: Москва 109028, Б. Трехсвятительский пер., 3/12, Московский институт электроники и математики (МИЭМ), комн. 449.

Общие требования к представляемым файлам

- Допускается использование текстовых редакторов WORD и LATEX. К рабочим файлам должна быть приложена их pdf-копия. В названии файлов используется латинский алфавит, пробелы заменяются знаком `_`. Шапка статьи содержит название, инициалы и фамилии авторов, место работы, электронный адрес, краткую аннотацию, ключевые слова. В аннотации не следует использовать формулы и ссылки на текст работы или список литературы; в конце она должна содержать индекс УДК (к английской версии аннотации можно добавить индексы зарубежных рубрикаторов).
- Объем кратких сообщений 4-8 страниц, исследовательских статей, как правило, до 20 страниц, а обзоров – более 20 страниц. Верхняя граница согласуется с редколлегией. При подсчете объема нужно ориентироваться на страницы формата А4, шрифт 12, знаков в строке 80, интервалов между строками 1.
- Авторы не должны злоупотреблять сокращениями, составленными из заглавных начальных букв терминов. Предпочтительней каждый раз использовать полное наименование объекта. Возможно использование только устоявшихся аббревиатур.

Требования к файлам Word

- Рекомендуемый шрифт – Times New Roman.
- Строки в пределах абзаца не должны разделяться символом возврата каретки (Enter).
- Нельзя использовать автоматическое создание сносков, автоматический перенос или автоматический запрет переносов, создание списков, автоматический отступ и т.п.
- Ссылки на список литературы даются цифрами в квадратных скобках: [1], [5,6,7], [1-9].
- Все без исключения формулы и обозначения размерности, даже состоящие из одной латинской буквы, и в тексте и вынесенные в отдельную строку, всегда набираются в формульном редакторе и никогда – в обычном текстовом редакторе.

- При создании таблицы рекомендуется использовать возможности Word или MS Excel. Таблицы, набранные вручную (с помощью большого числа пробелов), не принимаются.

Требования к иллюстрациям

- Иллюстрации представляются в отдельных файлах, черно-белыми. Они должны иметь разрешение не менее 600 dpi.
- Форматы файлов – TIFF, EPS, PSD, JPEG.

Требования к списку литературы

- Ф.И.О. авторов или редакторов выделяются курсивом.
- Для статей приводится название. Названия отделяются от выходных данных знаком //. Расположение выходных данных указано на образце ниже. Номер тома выделяется жирным шрифтом, номер выпуска дается в скобках. Указываются номера первой и последней страниц статьи, либо уникальный номер статьи и ее объем. Для книг желательно указывать их объем. Если известна ссылка на электронный архив или сайт, то ее желательно указать.

Фамилия И.О. Название статьи // Назв. журн., 2000, **1** (1), 1-6.

Family F.M. and Family F. Title of the paper // Name of the Journal, 2006, **73**, 165313, 9 pp.

Фамилия И.О., Фамилия И.О. Название книги // Наука, С.-П., 1999, 176 стр.

Family F.M. Title of the paper // In book: *Family F.M. (et al. eds)*, Title of the collection, Publisher, Boston, 2005, 9-24.

Family F.M. (ed.), Title of the collection // Publisher, N.Y., 2005, 324 pp.

Фамилия И.О. Название доклада // Доклад на конференции «Название конференции (место и дата проведения)»; ссылка на электронный ресурс.

Наноструктуры. Математическая физика и моделирование

Журнал зарегистрирован

в Министерстве РФ по делам печати,
телерадиовещания и средств массовых коммуникаций.
Свидетельство о регистрации
ПИ № ФС77-34934 от 29 декабря 2008 г.

Учредители

Московский институт электроники и математики (МИЭМ),
Европейский центр по качеству

Издатель

ООО Сенсор Микрон
Журнал входит в перечень ВАК РФ
Статьи рецензируются

Контакты для представления статей и деловой переписки

Ответственный секретарь Махиборода А.В.
+7 (916) 578-95-27
makhiboroda@yandex.ru

ПОДПИСКА НА ЖУРНАЛ НМФМ

Подписной индекс журнала в каталоге агентства «Урал-Пресс» 70017.
Электронный подписной каталог и контакты всех представительств «Урал-Пресс»
на сайте www.ural-press.ru.