

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FTMC PUSLAIDININKIŲ FIZIKOS INSTITUTAS

DARIUS DOBROVOLSKAS

KRŪVININKŲ DINAMIKOS InGaN TYRIMAS LIUMINESCENCIJOS SU  
ERDVINE SKYRA METODAIS

Daktaro disertacijos santrauka

Fiziniai mokslai, fizika (02 P), puslaidininkų fizika (P 265)

Vilnius, 2013

Disertacija rengta 2009 – 2013 metais Vilniaus universitete, Puslaidininkų fizikos katedroje ir Taikomųjų mokslų institute.

**Mokslinis vadovas:**

Prof. habil. dr. Gintautas Tamulaitis (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02 P, puslaidininkų fizika – P 265)

**Disertacija ginama Vilniaus universiteto Fizikos mokslų krypties taryboje:**

Pirmininkas:

Prof. habil.dr. Juozas Vidmantis Vaitkus (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, puslaidininkų fizika – P265).

Nariai:

Prof. habil. dr. Kęstutis Jarašiūnas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, puslaidininkų fizika – P265);

Prof. dr. Šarūnas Meškiniš (Kauno technologijos universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, kondensuotos medžiagos – P260);

Prof. dr. Vincas Tamošiūnas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, puslaidininkų fizika – P265).

Prof. habil. dr. Sigitas Tamulevičius (Kauno technologijos universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, kondensuotos medžiagos – P260);

Oponentai:

Prof. habil. dr. Rimantas Vaišnoras (Lietuvos edukologijos universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, kondensuotos medžiagos – P260).

Prof. habil. dr. Artūras Žukauskas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika 02 P, puslaidininkų fizika P256).

Disertacija bus ginama 2013 metų lapkričio 29 d. 15.00 valandą Vilniaus universitete, Saulėtekio al. 9-III, 212 auditorijoje

Disertacijos santrauka išsiuntinėta 2013 metų spalio .... d..

Disertaciją galima peržiūrėti Vilniaus universiteto ir Fizinių ir technologijos mokslų centro bibliotekose.

VILNIUS UNIVERSITY  
CPST SEMICONDUCTOR PHYSICS INSTITUTE

DARIUS DOBROVOLSKAS

STUDY OF CARRIER DYNAMICS IN InGaN USING SPATIALLY-RESOLVED  
PHOTOLUMINESCENCE TECHNIQUES

Summary of doctoral thesis

Physical Sciences, Physics (02 P), Semiconductor Physics (P 265)

Vilnius, 2013

The research work has been carried out in 2009-2013 at the Semiconductor Physics Department and the Institute of Applied Research, Vilnius University.

**Scientific supervisor:**

Prof. habil. dr. Gintautas Tamulaitis (Vilnius University, Physical Sciences, Physics – 02 P, Semiconductor Physics – P 265).

**Council of defense of the doctoral thesis on Physical Sciences at Vilnius University:**

Chairman:

Prof. habil. dr. Juozas Vidmantis Vaitkus (Vilnius University, Physical Sciences, Physics – 02 P, Semiconductor physics – P 265).

Members:

Prof. habil. dr. Kęstutis Jarašiūnas (Vilnius University, Physical Sciences, Physics – 02 P, Semiconductor Physics – P 265);

Prof. dr. Šarūnas Meškiniš (Kaunas University of Technology, Physical Sciences, Physics – 02 P, Condensed Matter – P 260);

Prof. dr. Vincas Tamošiūnas (Vilnius University, Physical Sciences, Physics – 02 P, Semiconductor Physics – P 265).

Prof. habil. dr. Sigitas Tamulevičius (Kaunas University of Technology, Physical Sciences, Physics – 02 P, Condensed Matter – P 260).

Opponents:

Prof. habil. dr. Rimantas Vaišnoras (Lithuanian University of Educational Sciences, Physical Sciences, Physics – 02 P, Condensed Matter – P 260 )

Prof. habil. dr. Artūras Žukauskas (Vilnius University, Physical Sciences, Physics – 02 P, Semiconductor Physics – P 265).

The official defense of the doctoral thesis will be held on November 29, 2013, at 3.00 p.m. in the lecture room 212 at Vilnius University, Saulėtekio ave. 9-III, Vilnius, Lithuania.

The summary of the doctoral thesis has been distributed on October .... , 2013.

The thesis is available at Vilnius University library and at the library of the Center for Physical Sciences and Technology.

## Abstract

Over the past two decades, an extensive investigation of group-III nitrides has resulted in a significant progress in growth and processing technologies of these semiconductors. Such rapid development is fueled, in particular, by the growing expectations and demand in white light emitting diodes (LEDs) for solid state lighting. LEDs are energy-efficient and provide additional functionalities and design options in lighting and many other applications. InGaN-based LEDs have already penetrated into medical, signage, display, and automotive applications. In principle, InGaN semiconductor alloys are potentially suitable for light emission in the entire visible range.

Despite a high defect density, InGaN-based LEDs are efficient enough to compete or even outperform conventional light sources in many applications. Certainly, the insensitivity of optical properties on the dislocation density is an advantage of InGaN, but the understanding of this phenomenon is still incomplete. It is suggested that the carrier localization by compositional inhomogeneities in InGaN increases the electron-hole wavefunction overlap and, consequently, enhances the radiative recombination. At the same time, the localization prevents carriers from reaching nonradiative recombination centers and recombining there nonradiatively. In quantum wells, potential fluctuations may also arise due to the variation of the well thickness or inhomogeneous distribution of built-in electric fields. All these effects contribute to the inhomogeneous distribution of the luminescence intensity in InGaN epilayers and structures. Thus, the study of spatial inhomogeneity of luminescence in InGaN provides a direct insight into the carrier localization and recombination peculiarities.

In this work, carrier dynamics in InGaN materials is investigated. The experimental work is based on optical characterization by spatially-resolved photoluminescence spectroscopy techniques, namely, confocal and scanning near-field optical microscopy. Combination of these techniques with the structural analysis provides a deeper insight into peculiarities of InGaN.

Studies of InGaN epitaxial layers showed the influence of lattice strain and its relaxation on the in-plane inhomogeneities of optical properties. The spatial photoluminescence distribution in a series of InGaN epilayers of different indium

content is compared. The variation of the photoluminescence spectra properties was linked with the structural changes of the layer.

The influence of thermal annealing on optical properties was investigated in InGaN epilayers and multiple quantum wells (MQWs). A possibility to suppress the defect-related emission by laser annealing is demonstrated, and the laser-annealing-induced compositional changes in InGaN epilayers are described. Moreover, the influence of the elevated temperature during the growth of InGaN/GaN MQWs structures was studied. The concurrent influences of thermal annealing and strain on PL properties are discussed.

A negative correlation between the PL intensity and the band peak position is investigated in InGaN MQWs. The origin of the observed optical features is explained by inhomogeneous defect distribution.

The emission efficiency enhancement in InGaN quantum wells due to the coupling of the optical dipole with localized surface plasmons in silver nanoparticles is investigated. The influence of potential fluctuations on the coupling with localized surface plasmons is revealed.

## **Padėka**

Norėčiau padėkoti darbo vadovui prof. Gintautui Tamulaičiui už įkvėpimą ir kūrybingą vadovavimą studijų metu.

Reiškiu didelę padėką prof. Artūriui Žukauskui ir prof. Sauliui Juršėnui už suteiktą galimybę atlikti tyrimus Taikomųjų mokslų institute.

Taip pat išreiškiu didelę padėką dr. Jūriui Mickevičiui už vertingus patarimus ir konsultacijas. Dėkoju visiems draugams ir kolegoms už pagalbą ir gerą nuotaiką institute.

Nuoširdžiai dėkoju savo šeimai ir žmonai už rūpestingumą ir palaikymą.

## Ivadas

Intensyvūs trečios grupės nitrindinių puslaidininkių tyrimai, atlikti per pastaruosius du dešimtmečius, leido pasiekti didelę pažangą šių puslaidininkių ir jų darinių auginime bei panaudojime optoelektroninių ir elektroninių prietaisų gamyboje. Augantis baltą šviesą skleidžiančių šviestukų (šviesos diodų) poreikis bendrajam apšvietimui yra pagrindinis šių plačiatarpių puslaidininkių tobulinimo variklis. Šviestukai yra energiją taupantys šviesos šaltiniai, suteikiantys papildomų funkcionalumo ir dizaino galimybių. Prognozuojama, kad InGaN pagrindu veikiantys šviestukai galiausiai pakeis įprastines kaitrines ir fluorescencines lempas.

Mėlyną šviesą skleidžiantys InGaN šviestukai jau yra sėkmingai komercializuoti. Norint, kad šviestukai skleistų didesnio bangos ilgio (žalią, raudoną) šviesą, indžio kiekį aktyviojoje šviestuko srityje būtina padidinti. Tačiau tai yra gan sudėtinga: didinant indžio kiekį, InGaN šviestukų našumas sparčiai mažėja.

InGaN šviestukų aktyviosios sritys dažniausiai yra auginamos ant safyro padėklų. Tačiau dėl InGaN ir padėklo gardelių neatitikimo šių medžiagų sandūroje atsiranda defektai, kurie blogina prietaisų parametrus. Siūlinių dislokacijų tankis InGaN yra net keliomis eilėmis didesnis nei kituose III-V grupės puslaidininkiuose, kurie jau naudojami elektronikoje ir optoelektronikoje. Nepaisant to, InGaN šviestukai jau yra pakankamai našūs, kad galėtų konkuruoti su kitais šviesos šaltiniais. Toks InGaN atsparumas defektams yra neabejotinas šios medžiagos privalumas, bet jis nėra gerai suprastas. Manoma, kad InGaN junginio sudėties fliktuacijos sukuria potencialo fliktuacijas, kuriose lokalizuojami nepusiausvyrieji krūvininkai. Tokiu būdu lokalizuotiems krūvininkams tikimybė patekti į nespindulinės rekombinacijos centrus sumažėja. Ši ir kitos InGaN puslaidininkio ypatybės priklauso nuo indžio kiekio InGaN junginyje. Todėl tolimesniam InGaN šviestukų tobulinimui yra svarbu tirti netolygiai pasiskirčiusios liuminescencijos prigimtį ir ypatumus.

Šiame darbe InGaN darinių tyrimas buvo atliekamas konfokalinio ir skenuojančiuoju artimojo lauko optiniu mikroskopu. Optinius bandinių tyrimus papildė struktūrinė analizė. Tai leido išsamiau charakterizuoti InGaN junginio ypatumus.



## Darbo tikslas ir uždaviniai

Šis darbas yra skirtas krūvininkų lokalizacijos ir rekombinacijos tyrimams InGaN epitaksiniuose sluoksniuose ir dariniuose panaudojant fotoluminescencinę spektroskopiją su submikrometrine erdvine skyra. Pagrindiniai darbo uždaviniai buvo šie:

1. ištirti gardelės įtempimo ir relaksacijos daromą poveikį optinėms savybėms ir susieti jį su struktūriniais pokyčiais InGaN epitaksiniuose sluoksniuose;
2. ištirti iškaitinimo daromą įtaką InGaN epitaksiniuose sluoksniuose ir kvantiniuose dariniuose;
3. išnagrinėti koreliaciją tarp fotoluminescencijos intensyvumo ir juostos smailės bangos ilgio InGaN kvantiniuose dariniuose su dideliu indžio kiekiu;
4. ištirti intensyvumo padidėjimą InGaN kvantiniuose dariniuose dėl optinio dipolio sąveikos su lokalizuotais paviršiniais plazmonais, indukuotais sidabro nanodalelėse.

## Darbo naujumas ir svarba

Atskleistas gardelės įtempimo ir relaksacijos daromas poveikis erdviniam fotoluminescencijos pasiskirstymui. Parodyta, jog relaksavusiuose sluoksniuose egzistuoja į nanokolonas panašūs dariniai, kurie papildomai prisideda prie netolygaus fotoluminescencijos pasiskirstymo InGaN epitaksiniuose sluoksniuose.

Pademonstruota, kad priemaišinės kilmės liuminescenciją InGaN sluoksnyje įmanoma nuslopinti sluoksnius iškaitinant lazerio spinduliuote.

Parodyta, kad formuojant  $p$  tipo sluoksnius vyksta netyčinis aktyviojo sluoksnio iškaitinimas, keičiantis InGaN kvantinių darinių optines savybes.

Pasiūlytas naujas neigiamos koreliacijos tarp fotoluminescencijos intensyvumo ir juostos viršūnės bangos ilgio InGaN kvantiniuose dariniuose interpretavimo modelis.

Lokaliai stebėtas liuminescencijos intensyvumo padidėjimas dėl sąveikos su lokalizuotais paviršiniais plazmonais, indukuotais sidabro nanodalelėse. Parodytas potencialo fliktuacijų daromas poveikis rezonansinei sąveikai tarp optinių dipolių kvantinėse duobėse ir lokalizuotų paviršinių plazmonų.

## Ginamieji teiginiai

1. Didinant InGaN epitaksinio sluoksnio storį, formuojasi relaksavęs InGaN pasluoksnis, kuris sąlygoja antros juostos fotoluminescencijos spektre atsiradimą. Tolesnio augimo metu paviršiuje formuojasi nanokolonos, kuriose nespindulinių rekombinacijos centrų tankis mažas, kristalinė dardelė relaksavusi, o indžio kiekis yra toks pat, kaip ir įtemptame pasluoksnyje.
2. InGaN šviestukų dariniuose formuojant  $p$  tipo sluoksnius, vyksta netyčinis InGaN kvantinių darinių iškaitinimas. Kvantinio suspraudimo Štarko reiškinio daromas poveikis optinėms savybėms yra didžiausias plonuose  $p$  tipo sluoksniuose, bet jis užgožiamas aktyvaus sluoksnio iškaitinimo daromu poveikiu storesniuose  $p$  tipo sluoksniuose.
3. Neigiama koreliacija tarp fotoluminescencijos intensyvumo ir juostos smailės bangos ilgio gali būti paaiškinta netolygiu nespindulinių rekombinacijos centrų pasiskirstymu. Mažiau lokalizuotiems krūvininkams tikimybė delokalizotis ir pasiekti nespindulinės rekombinacijos centrus yra didesnė, todėl srityse, kuriose yra didesnis nespindulinių rekombinacijos centrų tankis, liuminescencijos juosta pasislinkusi į ilgabangę pusę.
4. InGaN kvatiniuose dariniuose optinių dipolių sąveika su lokalizuotais paviršiniais plazmonais sidabro nanodalelėse lemia liuminescencijos intensyvumo padidėjimą. Sąveika yra stipriai veikiamą potencialo fliktuacijų: liuminescencijos padidėjimas yra didesnis srityse, kurių spinduliuojamos šviesos bangos ilgis yra artimesnis lokalizuotų paviršinių plazmonų rezonansiniam bangos ilgiui.

## Disertacijos santrauka

Disertaciją sudaro septyni skyriai. **Pirmasis** skyrius yra skirtas įvadui. **Antrajame** skyriuje trumpai aprašomos pagrindinės trečioios grupės nitridinių puslaidininkių savybės bei aptariamios šių medžiagų auginimo problemos ir detaliau apžvelgiami kitų grupių, tiriančių netolygų liuminescencijos pasiskirstymą, gauti rezultatai.

### 3 skyrius. Eksperimentinės metodikos

Šiame darbe erdviškai išskirtos fotoluminescencijos (FL) tyrimai buvo atlikti naudojant *WITec* firmos daugiavandinę mikroskopinę sistemą *Alpha 300*. Ši sistema gali veikti trimis skirtingais režimais: konfokalinio mikroskopo, skenuojančiojo artimojo lauko optinio mikroskopo (SNOM, angl. *scanning near field optical microscope*) ir atominės jėgos mikroskopo (AFM, angl. *atomic force microscope*) režimais. FL buvo žadinama He–Cd lazerio spinduliuote ( $\lambda_{exc} = 442$  nm) arba lazerinio diodo spinduliuote ( $\lambda_{exc} = 405$  nm). FL registruota *UHTS 300* spektrometru, sujungtu su termoelektriškai šaldoma CCD (*Coupled Charge Detection*) kamera. Konfokaliniam mikroskope naudotas aukštos skaitinės apertūros objektyvas (N.A. = 0,9) leido pasiekti ~ 250 nm erdvinę skyrą. SNOM erdvinė skyra yra ribojama zondo ertmės matmenimis ir mūsų eksperimentuose buvo lygi ~100 nm. Bandinių paviršius buvo charakterizuotas atominės jėgos mikroskopu, galinčiu išskirti 10 nm dydžio paviršiaus nelygumus. Visi erdviškai išskirtos FL matavimai buvo atlikti kambario temperatūroje.

### 4 skyrius. InGaN gardelės įtempimo ir jos relaksacijos poveikis optinėms InGaN savybėms

Dėl gardelės konstantų neatitikimo InGaN sluoksniai, užauginti ant GaN, yra įtempti. Didinant sluoksnio storį, jis neišlaiko deformacijos ir relaksuoja, taip sukurdamas didelį defektų tankį.

Rentgeno spindulių difrakcijos tyrimai rodo, jog InGaN sluoksnis relaksuoja netolygiai: pasluoksnis, esantis arčiau padėklo, yra įtemptas, o pasluoksnis, esantis

arčiau paviršiaus, yra pilnai arba dalinai relaksavęs [1–5]. Manoma, kad pradiniame sluoksnio auginimo etape indžio atomams įsiterpti į sluoksnį yra sunkiau, todėl įtemptame sluoksnyje indžio kiekis yra mažesnis nei relaksavusiame sluoksnyje.

Šiame skyriuje tirtas InGaN gardelės įtempimo ir jos relaksacijos poveikis optinėms InGaN savybėms. Buvo tirtos dvi bandinių serijos. Bandinių serijoje A 50 nm storio InGaN sluoksniuose A17, A19, A21 ir A23 indžio koncentracija buvo skirtinga, atitinkamai, 17%, 19%, 21% ir 23%. Bandinių seriją B sudarė vienodą indžio koncentraciją (17%) turintys sluoksniai B90, B135 ir B150, turintys slirtingus storius: 90, 135 ir 150 nm.

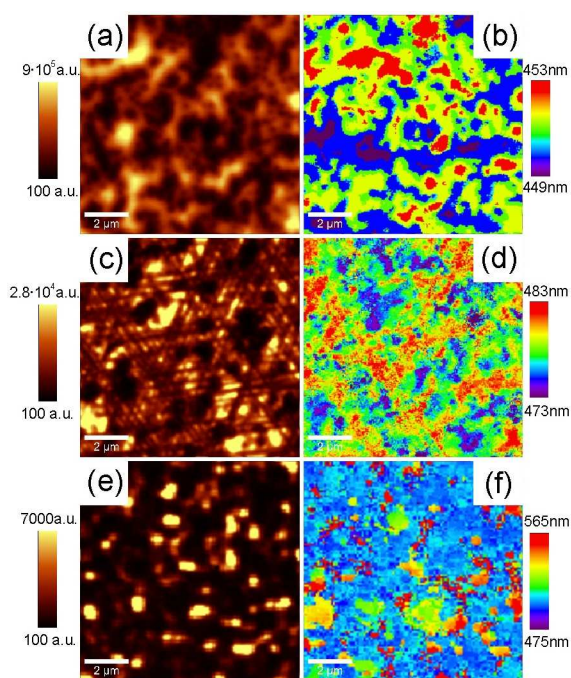
Erdvinis FL pasiskirstymas bandiniuose tirtas *WITec* mikroskopine sistema *Alpha 300*, veikiančia konfokaliniame režime. FL žadinimui naudota nuolatinės veikos lazerinio diodo 405 nm bangos ilgio spinduliuotė, fokusuota į ~ 300 nm diametro tašką. Bandinių topografija tirta ta pačia mikroskopine sistema, veikiančia AFM režime.

Rentgeno spindulių difrakcijos tyrimas parodė, kad A17, A19 ir A21 sluoksniai yra įtempti. B serijos sluoksnių storis maždaug dvigubai viršijo kritinį storį, todėl jie yra

relaksavę. Tą patvirtino Rentgeno spindulių difrakcijos matavimai.

Sluoksnių struktūrinius pokyčius parodė ir FL spektroskopija. A serijos bandinių erdviškai suvidurkintame FL spektre dominuoja viena juosta. Didinant In kiekį, juosta plėtėja ir slenka į ilgabangę pusę. B serijos bandinių FL spektre išsiskiria kelios juostos.

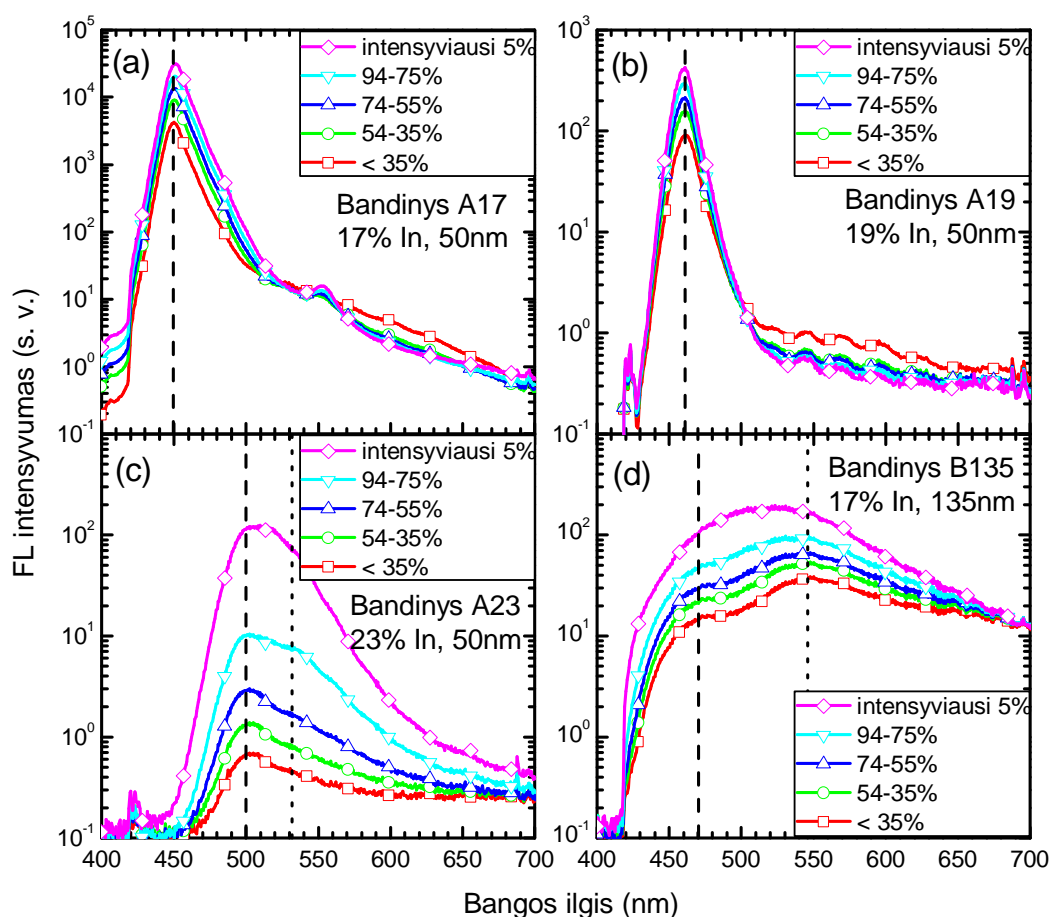
Kokybiniai struktūros pokyčiai matomi ir FL intensyvumo bei juostos viršūnės padėties erdviniuose pasiskirstymuose (žr. 4.1 pav.). Nustatyta, kad intensyvumo ir juostos viršūnės bangos ilgio Pirsono (*Pearson*) koreliacijos koeficientas  $r$  yra teigiamas ( $r = 0.23$ ) tik A17 bandinyje.



**4.1 pav.** FL intensyvumo ir juostos viršūnės padėties erdvinis pasiskirstymas bandiniuose A17 [(a) ir (b)], A21 [(c) ir (d)] ir A23 [(e) ir (f)]. Paveikslų plotas yra  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  [P2]

Likusiuose A serijos bandiniuose koreliacija nestebima ( $r \approx 0$ ). B serijos bandiniuose koreliacija yra neigiama. Koreliacijos nebuvimas gali būti paaiškinamas besikompensuojančiais FL indėliais iš įtempto ir dalinai relaksavusio pasluoksnių. Neigiama koreliacija yra sąlygota netolygiu nespindulinių rekombinacijos centrų pasiskirstymu. Stebėtos neigiamos koreliacijos priežastys plačiau aptartos 6 skyriuje.

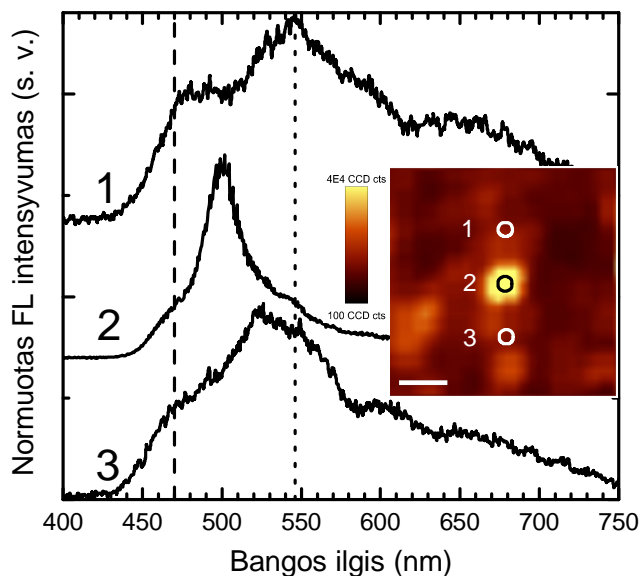
Bandinių FL spektrai buvo analizuoti skirtingo FL intensyvumo srityse. Dalis FL spektrų parodyta 4.2 paveiksle. Brūkšninė linija žymi FL, kuri kyla dėl emisijos iš įtempto pasluoksnių, juostos padėtį. Pagal literatūroje pateiktus skaičiavimus [6–8], nustatyta, jog bandinyje su 23% In FL juostos ilgabangis petys (pažymėtas taškine linija) kyla iš dalinai relaksavusio pasluoksnių. B serijos bandinių FL spektruose stebimos dvi FL juostos. Ilgabangė juosta dominuoja žemo ir vidutinio FL intensyvumo srityse. Ši juosta kyla iš relaksavusio pasluoksnių, turinčio didesnę In kiekį.



**4.2 pav.** InGaN sluoksnių erdviškai suvidurkinti FL spektrai iš skirtingo FL intensyvumo sričių. Šalia spektrų yra nurodytas bandinio numeris, indžio kiekis ir sluoksnių storis. [P2]

Intensyviausios FL juostos viršūnės padėtis B serijos bandiniuose yra tarp relaksavusio ir įtempto pasluoksnių FL juostų. Ši padėtis atitinka FL juostą, kuri kiltų dėl emisijos iš relaksavusio pasluoksnio, turinčio nepakitusį In kiekį.

Darome prielaidą, kad storesniuose už kritinį storį InGaN sluoksniuose, pasikeitus sluoksnio augimo tipui iš dvimačio į trimatį, formuojasi nanokolonos. Dėl geresnės kristalinės gardelės kokybės, nespindulinių rekombinacijos centrų tankis šiose kolonose yra mažesnis, nei supančioje sluoksnio dalyje. Todėl erdviniam FL intensyvumui pasiskirstyme šios nanokolonos matomos kaip ryškios sritys. Tipiniai FL spektrai iš tokios srities parodyti 4.3 paveiksle.



**4.3 pav.** Bandinio B135 FL spektrai iš skirtingų FL intensyvumo sričių, parodytų intarpe. Visi spektrai sunormuoti ir pasilinkti vertikalčiai. Baltos juostelės ilgis yra 500 nm. [P2]

formuojasi nanokolonos, kurios sąlygoja papildomą optinių savybių nehomogeniškumą. Šių nanokolonų gardelės konstanta yra relaksavusi, nespindulinių rekombinacijos centrų tankis yra mažas, o indžio kiekis – toks pat kaip ir įtemptame pasluoksnyje. Sluoksniuose, kurių storis viršija kritinį, nanokolonos yra apsuptos pasluoksniu, turinčiu relaksavusią gardelę, didesnį indžio kiekį ir didesnį defektų tankį.

AFM matavimai patvirtino paviršiaus morfologijos pokyčius. Didinant In kiekį nuo 17% iki 23%, paviršiaus šiurkštis didėja nuo 0,9 nm iki 47,3 nm. Didžiausią In dalį turinčio bandinio paviršiuje stebimi kelių šimtų nanometrų aukščio dariniai. B serijos sluoksniuose paviršiaus šiurkštis dėl koalescencijos sumažėja iki  $\approx 1,5$  nm.

Apibendrinant, auginamo epitaksinio InGaN sluoksnio storiui pasiekus kritinę vertę, paviršiuje

## 5 skyrius. InGaN iškaitinimas

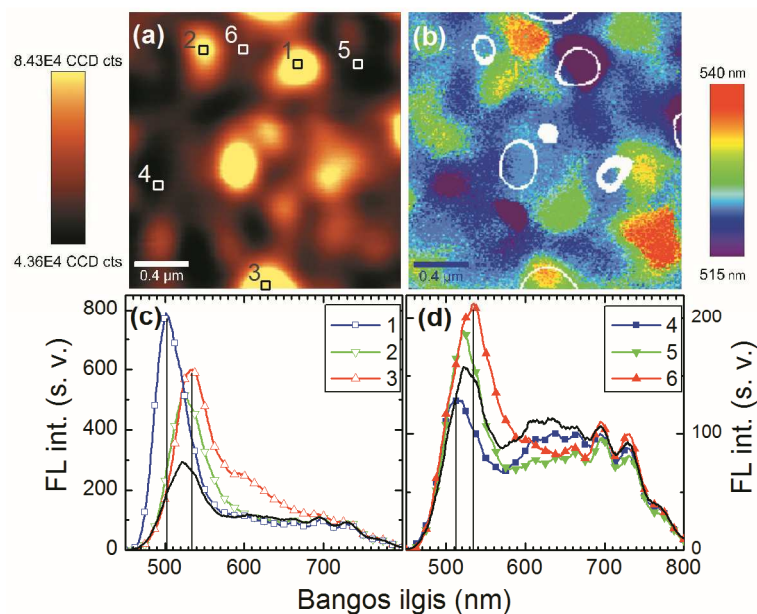
Penktajame skyriuje pateikiamas temperatūrinio poveikio InGaN sluoksniams tyrimas. Skyrius suskirstytas į du poskyrius: pirmajame tirtas InGaN sluoksnis, kuriame yra intensyvi priemaišinė liuminescencija, antrajame netyčinis aktyvaus InGaN sluoksnio iškaitinimas, vykstantis šviestukų darinių auginimo metu.

### 5.1. Lazerinio iškaitinimo daromas poveikis priemaišinei liuminescencijai InGaN sluoksniuose

InGaN epitaksinių sluoksnių ir darinių FL spektruose greta tarpjuostinės liuminescencijos stebima plati juosta, kuri siejama su defektais [9–12]. Manoma, kad ją, panašiai kaip ir GaN, sąlygoja krūvininkų rekombinacija tarp seklaus donoro ir gilaus akceptorius porų [10]. Ši priemaišinė liuminescencija yra nepageidautina, nes blogina prietaisų charakteristikas.

Tirtas 200 nm storio  $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}$  sluoksnis. Dalis bandinio buvo iškaitinta Nd:YAG lazerio antrosios harmonikos ( $\lambda = 532$  nm) spinduliuote, kurios galios tankis buvo keičiamas nuo 4,2 iki 25 MW/cm<sup>2</sup>. Erdvinis FL pasiskirstymas tirtas *WITec* mikroskopine sistema *Alpha 300*, veikiančia konfokaliniame režime. FL žadinimui naudota nuolatinės veikos He-Cd lazerio 442 nm bangos ilgio spinduliuotė.

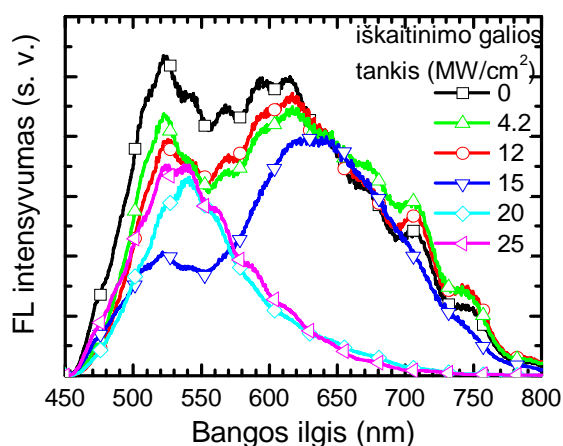
Erdvinis FL intensyvumo pasiskirstymas bandinyje yra nehomogeniškas (žr. 5.1(a) pav.). Koreliacijos tarp intensyvumo ir FL viršūnės bangos ilgio nenustatyta: skirtingo FL intensyvumo srityse vidutinė FL juostos padėtis išlieka ties 523 nm. FL spektruose tiek tamsiose, tiek ir šviesiose srityse stebimos dvi juostos [5.1(c) ir (d)]. Trumpabangė juosta ties 530 nm yra sąlygota tarpjuostinės rekombinacijos. Plati ilgabangė juosta ties 650 nm yra sąlygota spindulinės rekombinacijos defektuose (donorinėse priemaišose, galio vakancijose arba jų kompleksuose [10,13]). Šios juostos intensyvumas kinta tik maždaug 30%. Tuo tarpu tarpjuostinės emisijos intensyvumas svyruoja apie 4 kartus. Tokius didelius svyravimus galima paaiškinti indžio sudėties fliuktuacijomis arba netolygiu nespindulinių rekombinacijos centrų pasiskirstymu.



**5.1 pav.** Spektriškai integruotos FL intensyvumo (a) ir smailės bangos ilgio (b) erdvinis pasiskirstymas  $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}$  sluoksnyje. FL spektrai iš atskirų šviesių ir tamsių sričių parodyti, atitinkamai, (c) ir (d) dalyse. Suvidurkinti spektrai atitinkamose srityse pavaizduoti

lokalizuotas būsenas. Tai sukuria didesnę deloklizuoatų krūvininkų tankį. Deloklizuotiems krūvininkams nespindulinės rekombinacijos tikimybė yra didesnė. O tai lemia lėtesnį FL intensyvumo augimą.

Siekiant ištirti galimybę sumažinti priemaišinės liuminescencijos intensyvumą, bandinys buvo iškaitintas lazerio spinduliuote. Iškaitinimo spinduliuotės galios tankis



**5.2 pav.** Erdviškai suvidurkinti  $\text{In}_{0.21}\text{Ga}_{0.79}\text{N}$  sluoksniu FL spektrai prieš (juoda kreivė) ir po lazerinio iškaitinimo skirtingais galios tankiais. [P6]

FL intensyvumo nuo žadinimo galios tankio matavimai parodė, kad intensyvumas didėja tiesiškai, didinant žadinimą iki  $0,5 \text{ MW/cm}^2$ , ir lėčiau negu tiesiškai toliau didinant žadinimo galios tankį iki  $2,5 \text{ MW/cm}^2$ . Tiesinė priklausomybė būdinga

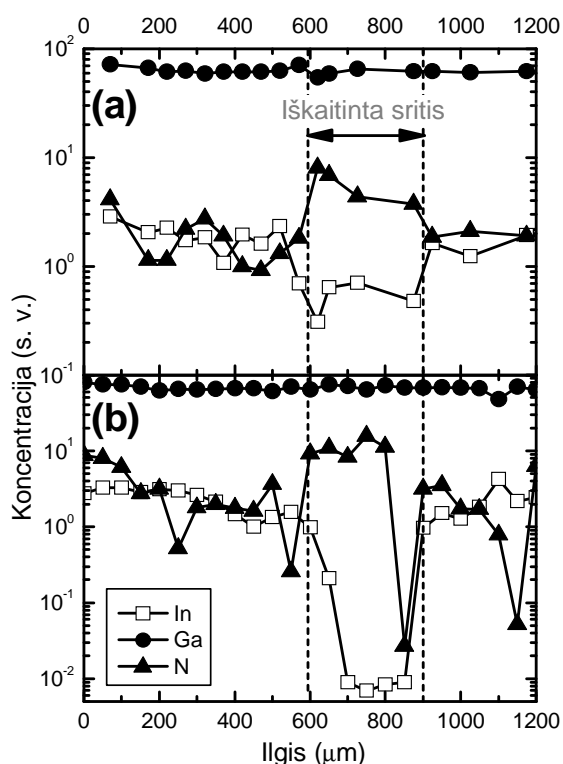
lokalizuotų elektronų ir skylių rekombinacijai. Žadinimo intensyvumo didinimas didina sužadintų krūvininkų tankį, kurie palaipsniui užpildo

lokalizuotas būsenas. Tai sukuria didesnę deloklizuoatų krūvininkų tankį. Deloklizuotiems krūvininkams nespindulinės rekombinacijos tikimybė yra didesnė. O tai lemia lėtesnį FL intensyvumo augimą. Siekiant ištirti galimybę sumažinti priemaišinės liuminescencijos intensyvumą, bandinys buvo iškaitintas lazerio spinduliuote. Iškaitinimo spinduliuotės galios tankis buvo keičiamas nuo  $4,2 \text{ MW/cm}^2$  iki  $25 \text{ MW/cm}^2$ , išlaikant vienodą ekspozicijos trukmę. Pademonstruota, kad priemaišinė juosta išnyksta bandinį paveikus didesniu nei  $20 \text{ MW/cm}^2$  iškaitinimo galios tankiu (žr. 5.2 pav.).

$\text{InGaN}$  sluoksniu sudėties tyrimai panaudojant Ože (*Auger*) elektronų spektroskopiją neparodė jokių sudėties pokyčių srityse, iškaitintose mažesniais nei  $15 \text{ MW/cm}^2$  galios tankiais. Iškaitinus



20 MW/cm<sup>2</sup> galios tankiu, įvyksta ženklus elementų kiekio persiskirstymas. Palyginus In, Ga ir N elementų pasiskirstymą iškaitintose ir nepaveiktose srityse (5.3 pav.) matyti keli skirtumai: i) N dalis iškaitintoje srityje padidėja; ii) In dalis iškaitintoje srityje mažesnė; iii) In dalis iškaitintoje srityje mažėja, tolstant gilyn į sluoksnį.



**5.3 pav.** In, Ga ir N elementų erdvinis pasiskirstymas, lazeriu iškaitintoje srityje ir šalia jos. Ožė elektronų spektroskopija atlikta nuėsdinus viršutinius 30 nm (a) ir 100 nm (b) storio bandinio sluoksnius. [P6]

Apibendrinant, priemaišinės liuminescencijos intensyvumas InGaN sluoksnyje pasiskirtęs tolygiai. Tuo tarpu, tarpjuostinės liuminescencijos intensyvumas pasiskirtęs netolygiai dėl junginio sudėties fliktuacijų. Pademonstruota galimybė nuslopinti priemaišinę liuminescenciją sluoksnius iškaitinus lazerio spinduliuote. Nepageidaujamos rekombinacijos nuslopinimas gali būti svarbus didelį In kiekį turinčiuose InGaN sluoksniuose ir dariniuose, naudojamuose šviestukuose ir lazeriniuose dioduose.

Indžio kiekio persiskirstymą sluoksnyje galima paaiškinti naudojant termogradientinio efekto modelį [14]. Šis modelis teigia, kad didesnio atominio spindulio elementai (šiuo atveju, In) dreifuoja aukštesnės temperatūros link, o mažesnio atominio spindulio elementai (N) priešinga kryptimi. Temperatūros gradientą bandinyje sukuria netolygus bandinio iškaitinimas: lazerio spindulys bandinio paviršių kaitinta stipriau nei sluoksnio tūrį.

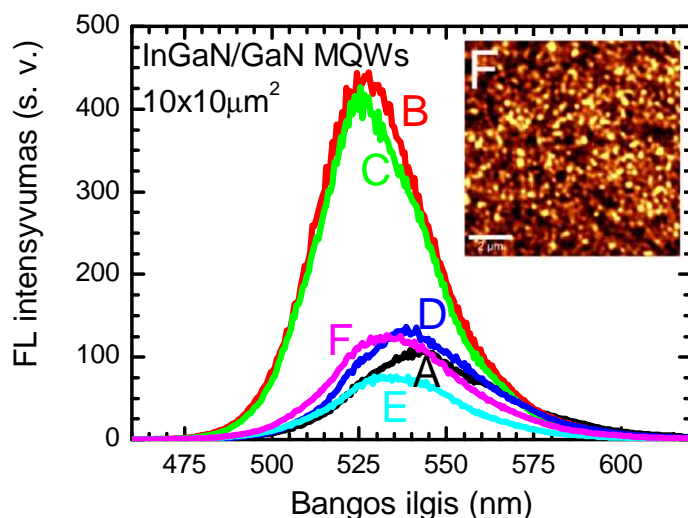
Be to, lazerinio iškaitinimo metu, sumažėja Ga vacancijų. Jos sudaro dalį kompleksų, kuriuose vyksta spindulinė rekombinacija, todėl priemaišinės liuminescencijos intensyvumas sumažėja.

## 5.2. InGaN kvantinių duobių netyčinis iškaitinimas darinių auginimo metu

Šviestukų darinių auginimo metu  $p$  tipo sluoksniai formuojami ant aktyviojo sluoksnio. Dažniausiai  $p$  sluoksnių auginimo temperatūra yra aukštesnė už InGaN kvantinių duobių auginimo temperatūrą, todėl aktyvusis sluoksnis yra iškaitinimas to auginimo metu.

Šiame skyriuje pateikiami rezultatai, gauti tiriant InGaN kvantinių duobių seriją su skirtingo storio (20200 nm)  $p$  tipo sluoksniais (A-E bandiniai). Palyginimui iširtas InGaN kvantinių duobių bandinys F be  $p$  tipo sluoksnių. Visuose tirtuose  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  bandiniuose indžio kiekis  $x = 22\%$ , o kvantinių duobių plotis 2.6 nm. Erdvinis FL pasiskirstymas tirtas *WITec* mikroskopine sistema *Alpha 300*, veikiančia konfokaliniame režime. FL žadinimui naudota nuolatinės veikos lazerinio diodo 405 nm bangos ilgio spinduliuotė.

Erdvinis FL intensyvumas visuose bandiniuose buvo panašus: stebimos ne mažesnės nei 250 nm diametro intensyvios FL sritys. Tipinis FL intensyvumo pasiskirstymas  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  plote bandinyje F be  $p$  tipo sluoksnių parodytas 5.4 paveikslėlyje. Didėjant  $p$  tipo sluoksnio storiui, FL intensyvumas auga. Intensyviausia FL bandiniuose C ir B, turinčiuose, atitinkamai, 80 nm ir 140 nm storio  $p$  tipo sluoksnius (žr. 5.4 pav.).



**5.4 pav.** InGaN bandinių A-F erdviškai suvidurkinti FL spektrai. Intarpe pavaizduotas būdingas FL intensyvumo pasiskirstymas  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  plote F bandinyje. [P3]

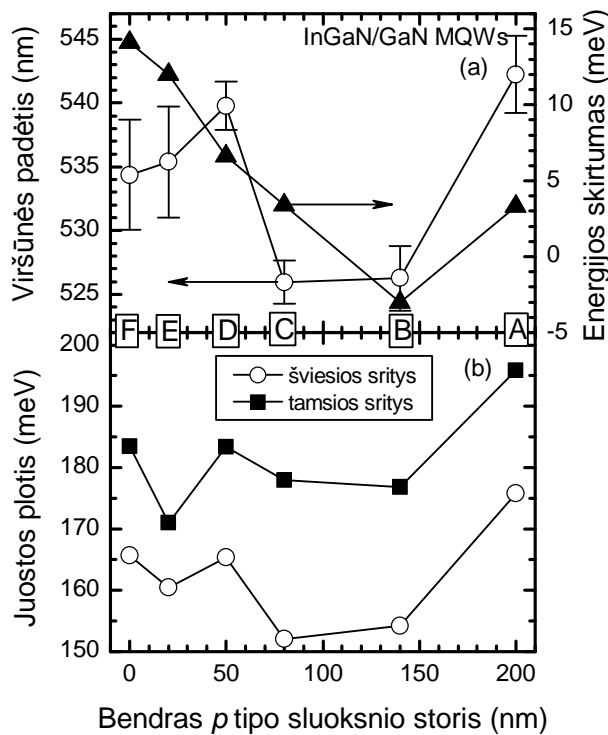
Tačiau bandinyje su storiiausiu  $p$  tipo sluoksniu FL intensyvumas sumažėja ir yra palyginamas su FL intensyvumo verte F bandinyje (5.4 pav.). FL intensyvumo santykinis pokytis (vidutinis kvadratinis nuokrypis, padalintas iš vidutinės reikšmės) visuose bandiniuose išlieka panašus. Tirtų bandinių struktūros ir FL parametrų statistiniai duomenys pateikti 5.1 lentelėje.

**5.1 lentelė.** InGaN bandinių struktūros ir FL parametrų statistiniai duomenys.

Bandinys	A	B	C	D	E	F
<i>p</i> -AlGaN storis (nm)	20	20	20	20	20	0
<i>p</i> -GaN storis (nm)	180	120	60	30	0	0
FL intensyvumo vidurkis (s.v.)	9.5	32.4	29.6	10.9	6.2	10.5
Intensyvumo v.k.n. (s.v.)	2.7	8.7	8.1	3.0	1.9	2.6
Intensyvumo santykinis pokytis	0.29	0.27	0.28	0.28	0.27	0.25
Vidutinis smailės bangos ilgis (nm)	541.6	526.4	525.6	538.9	533.7	532.7
Smailės bangos ilgio v.k.n. (nm)	3.4	3.2	2.1	2.2	4.7	4.8
Juostos pločio vidurkis (meV)	187	165	162	176	166	175
Juostos pločio v.k.n. (meV)	21.5	14.8	14.4	16.6	13.9	17.1
Pirsono koreliacijos koef. tarp smailės bangos ilgio ir intensyvumo	0.10	-0.09	-0.06	0.20	0.14	0.13

\*v.k.n. – vidutinis kvadratinis nuokripis; s.v. – santykiniai vienetai.

FL spektrai yra platūs (165200 meV). Tai rodo, kad bandiniuose yra dvigubo mastelio potencialo fliktuacijų: didesnios sritys (200 nm- $\mu$ m) išskiriamos mikroskopu, mažesnios (kelių nm dydžio) sritys neišskiriamos, bet jos pasireiškia išplėsdamos FL juosta.



**5.5 pav.** FL parametrai skirtingo *p* tipo sluoksnio storio bandiniuose (AF): vidutinė FL juostos viršūnės padėtis šviesiose srityse (a, apskritimai) kartu su vidutiniu kvadratinu nuokripium, skirtumas tarp FL juostos viršūnės padėties tamsiose ir šviesiose srityse (a, trikampiai) ir FL juostos plotis tamsiose ir šviesiose srityse (b). [P3]

Siekiant gauti daugiau informacijos apie galimą netolygiai pasiskirčiusios FL intensyvumo pasiskirstymo priežastį, FL parametrai buvo atskirai analizuoti tamsiose ir šviesiose srityse. FL parametrų priklausomybės nuo bandinių *p* tipo sluoksnio storio atidėtos 5.5 pav. Kadangi visuose bandiniuose indžio kiekis yra vienodas, stebėti FL parametrų pokyčiai susiję su struktūriniais medžiagos pokyčiais, vykstančiais aktyviame sluoksnyje. Galima išskirti du konkuruojančius efektus: 1) kvantinio suspraudimo Štarko efektą ir 2) aktyvaus sluoksnio iškaitinimą auginant *p* tipo sluoksnius. Didėjantis *p* tipo sluoksnio storis didina gardelės

įtempimą, kuris stiprina pjezoelektrinį lauką ir sąlygoja kvantinio suspraudimo Štarko efektą kvantinėse duobėse [15]. Tai paaiškina FL juostos poslinkį į ilgesnių bangų pusę. Tačiau teoriniai skaičiavimai rodo, kad vidinio lauko stipris įsisotina storesniuose nei 60 nm  $p$  tipo sluoksnio storio bandiniuose [16]. Didinant  $p$  tipo sluoksnio storį, tuo pat metu vyksta ir aktyvaus sluoksnio iškaitinimas, kurio metu iš indžiu praturtintų sričių indis difunduoja į supančią gardelę [17,18]. Todėl indžio pasiskirstymas aktyviajame sluoksnyje tampa homogeniškesnis, mažėja potencialo fliuktuacijų gylis. Tai paaiškina stebimą FL juostos poslinkį į trumpesnių bangų pusę, mažėjantį juostos viršūnės padėties energijos skirtumą tarp tamsių ir šviesių sričių, mažėjantį juostos plotį (5.5 pav.). Be to, iškaitinimo metu mažėja nespindulinių rekombinacijos centrų tankis, todėl FL intensyvumas padidėja.

Bandinyje su storiausiu  $p$  sluoksniu (bandinyje A), dėl sumažėjusių potencialo fliuktuacijų, dalis krūvininkų yra delokaluoti. Delokaluotiems krūvininkams tikimybė pasiekti nespindulinės rekombinacijos centrus yra didesnė, todėl bandinio FL intensyvumas sumažėja. Sumažėjusios potencialo fliuktuacijos taip pat mažina krūvininkų akumuliaciją. Vidinis laukas yra mažiau ekranuojamas. Todėl FL juosta pasislenka atgal į ilgesnių bangos ilgių pusę.

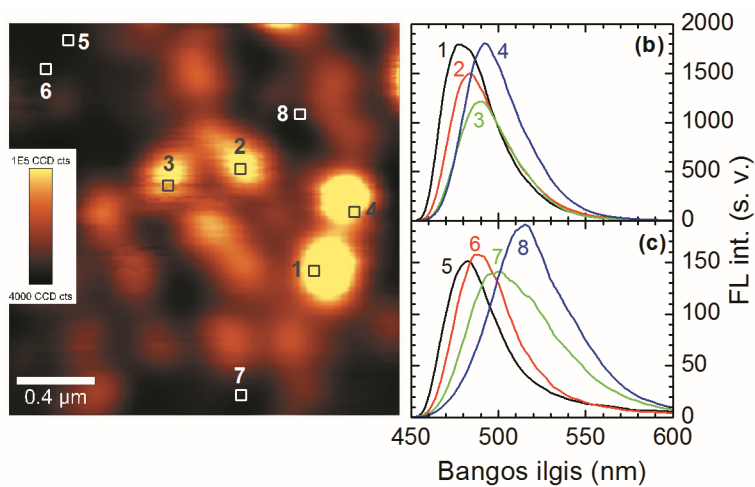
Apibendrinant, InGaN kvantinių duobių FL parametrų svyravimus,  $p$  tipo sluoksnio storį, daugiausia lemia temperatūros poveikis.  $p$  tipo sluoksnio auginimo metu vyksta netyčinis aktyvaus sluoksnio iškaitinimas, kuris sumažina potencialo fliuktuacijas. Iškaitinimas gerina FL parametrus bandiniuose su plonesniu  $p$  sluoksniu (iki 150 nm), tačiau yra žalingas storesniuose  $p$  sluoksnio bandiniuose, nes sąlygoja krūvininkų delokalizaciją. Kvantinio suspraudimo Štarko efektas FL parametrus stipriausiai veikia bandiniuose su plonesniu  $p$  sluoksniu (iki 60 nm). Didinant  $p$  sluoksnio storį, vidinio lauko stipris bandinyje įsisotina.

## **6 skyrius. Defektų poveikis fotoluminescencijos pasiskirstymui InGaN kvantinėse duobėse su dideliu indžio kiekiu**

Krūvininkų lokalizacija potencialo fliuktuacijose yra svarbi InGaN ypatybė, reikalaujanti detalaus tyrimo, ypač dariniuose, turinčiuose didelį indžio kiekį. Šiame

skyriuje pateikiamas FL erdvinio pasiskirstymo tyrimas InGaN kvantinėse duobėse su dideliu indžio kiekiu. Parodyta, kad gautus rezultatus negalima interpretuoti vien lokalizacijos arba vidinio lauko daromu poveikiu.

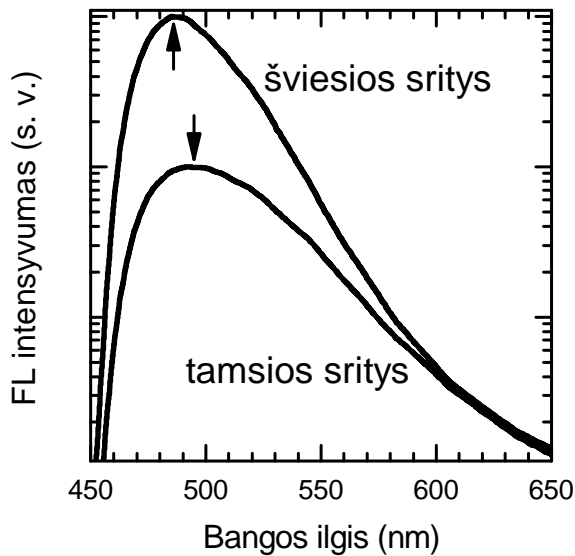
Tirtas InGaN kvantinių duobių darinys, užaugintas ant safyro padėklo. Aktyvųjį sluoksnį sudarė penkios 2 nm pločio In<sub>0.27</sub>Ga<sub>0.73</sub>N kvantinės duobės su 5 nm pločio GaN barjeriais. Erdvinis FL pasiskirstymas tirtas *WITec* mikroskopine sistema *Alpha 300*, veikiančia konfokaliniame režime. FL žadinimui naudota nuolatinės veikos He-Cd lazerio 442 nm bangos ilgio spinduliuotė.



**6.1 pav.** Būdingas FL intensyvumo pasiskirstymas  $2 \times 2 \mu\text{m}^2$  plote In<sub>0.27</sub>Ga<sub>0.73</sub>N kvantinėse duobėse (a). Dešinėje parodyti FL spektrai iš kelių nurodytų sričių šviesiose (b) ir tamsiose (c) srityse. [P5]

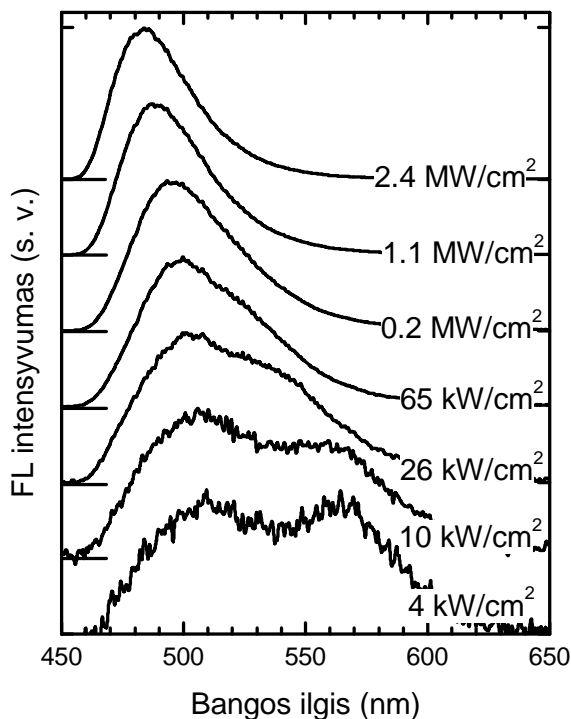
Erdivinis FL intensyvumo pasiskirstymas bandinyje yra būdingas InGaN: mažesnio FL intensyvumo fone stebimos intensyvios FL sritys (6.1 pav.). Intensyvumas šviesiose srityse yra apie 8 kartus didesnis nei tamsiose srityse. Tačiau ilgabangėje FL juostos dalyje intensyvumas šviesiose ir tamsiose srityse yra vienodas. Tiek tamsiose, tiek ir šviesiose srityse FL juostos viršūnės padėtis fliuktuuoja, bet tamsiose srityse vidutiniškai ji yra pasislinkusi 10 nm į ilgabangę pusę (6.2 pav.). Koreliacija tarp FL intensyvumo ir bangos ilgio yra neigiama (Pirsono koreliacijos koeficientas  $r = 0,20$ ). Tai yra nebūdinga InGaN. Jei erdivinį FL pasiskirstymą sąlygotų vien tik krūvininkų (eksitonų) lokalizacija potencialo fliuktuacijose, didesnis FL intensyvumas būtų stebimas ilgabangėje pusėje.

Siekiant gauti daugiau duomenų apie galimas netolygaus FL intensyvumo pasiskirstymo priežastis, buvo analizuota FL spektrų priklausomybė nuo žadinimo galios. Ši priklausomybė tamsiose srityse parodyta 6.3 paveiksle. Spektre dominuoja viena FL juosta ties 500 nm, tačiau, esant žemiems sužadanimams, stebima antra FL juosta ties 560 nm, kurios intensyvumas įsisotina esant aukštiems sužadanimams.



**6.2 pav.** Erdviškai suvidurkinti FL spektrai iš tamsių ir šviesių sričių. [P7]

reikalingas  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  krūvininkų tankis. Apytiksliai paskaičiuota, kad mūsų eksperimente naudota didžiausia žadinimo galia  $2.4 \text{ MW/cm}^2$  sukuria  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$  krūvininkų. Todėl stebėtas FL juostos viršūnės mėlinasis poslinkis yra didesnis, esant aukštesniems sužadanimams dėl vidinio lauko ekranavimo. Tuo tarpu eksperimente



**6.3 pav.** Tamsių sričių FL spektrų priklausomybė nuo žadinimo galios tankio. Visi spektrai normuoti ir paslinkti vertikalia ašimi. [P5]

Ilgabangė juosta siejama su spinduline rekombinacija defektuose. Antra FL juosta šviesiose srityse nebuvo stebėta.

Skaitmeniškai įvertinta, jog  $\text{In}_{0.27}\text{Ga}_{0.73}\text{N}/\text{GaN}$  kvantinėje duobėje vidinio elektrinio lauko stipris yra  $3.4 \text{ MV/cm}$ . Toks laukas sukelia kvantinio suspaudimo Štarko efektą ir žemiausio optinio šuolio energiją paslenka apie  $200 \text{ meV}$ . Tirtose  $2 \text{ nm}$  pločio kvantinėse duobėse ženkliajam (10%) vidinio lauko ekranavimui

reikalingas  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  krūvininkų tankis. Apytiksliai paskaičiuota, kad mūsų eksperimente naudota didžiausia žadinimo galia  $2.4 \text{ MW/cm}^2$  sukuria  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$  krūvininkų. Todėl stebėtas FL juostos viršūnės mėlinasis poslinkis yra didesnis, esant aukštesniems sužadanimams dėl vidinio lauko ekranavimo. Tuo tarpu eksperimente naudota žemiausia ( $4 \text{ kW/cm}^2$ ) sužadimo galia sukuria mažesnę krūvininkų tankį ( $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ), kurio nepakanka ženkliajam lauko ekranavimui.

Esant žemiems sužadanimams, FL juostos padėties skirtumas tarp tamsių ir šviesių sričių yra  $\sim 25 \text{ nm}$ . Tokį skirtumą turėtų sąlygoti 30% vidinio lauko stiprio svyravimas. Tačiau paskaičiuota, kad net ir toks didelis lauko stiprio svyravimas FL intensyvumą gali pakeisti tik 1,5 karto. Bandinyje stebėti daug didesni FL svyravimai (siekiantys 8 kartus), todėl paaiškinti stebėtą neigiamą koreliaciją tarp FL intensyvumo ir bangos ilgio

netolygiu vidinio lauko pasiskirstymu negalima.

Potencialo fliktuacijos, gali kilti ir dėl kvantinės duobės pločio svyravimų. Tačiau  $\pm 0,25$  nm storio (vieno monosluoksniu) svyravimai elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimą gali pakeisti tik du kartus. To nepakanka paaiškinti didelius FL intensyvumo skirtumus bandinyje.

Stebėtą FL parametrų dinamiką siūloma paaiškinti netolygiu nespindulinių rekombinacijos centrų pasiskirstymu. Mažai lokalizuoti eksitonai emituoja trumpabangėje FL juostos dalyje. Tačiau šiems eksitonams nespindulinės rekombinacijos tikimybė didesnė, todėl nespindulinė rekombinacija veiksmingiau slopina emisiją trumpabangėje FL juostos dalyje. Tai lemia raudonąjį FL spektro poslinkį tamsiose srityse. Šią interpretaciją patvirtina 6.2 paveikslas, kuriame parodyta, jog ilgabangėje spektro dalyje FL intensyvumas panašus tamsiose ir šviesiose srityse, tačiau šviesiose srityse palaipsniui didėja trumpabangėje dalyje.

Šią prielaidą netiesiogiai patvirtina ir tai, jog ilgabangė FL juosta buvo stebėta tik tamsiose srityse. Ankstesniuose tyrimuose buvo parodyta, kad GaN egzistuoja tiesioginis ryšys tarp nespindulinės rekombinacijos centrų tankio ir su defektais siejamų spindulinės rekombinacijos centrų tankio. Su sąlyga, jog ši išvada galioja ir InGaN, galima teigti, kad tamsiose srityse nespindulinių rekombinacijos centrų tankis yra didesnis.

Apibendrinant, In<sub>0.27</sub>Ga<sub>0.73</sub>N kvantinėse duobėse stebėta neigiama koreliacija tarp FL intensyvumo ir juostos viršūnės bangos ilgio. FL parametrų dinamika, didinant žadinimo intensyvumą, ir detali spektrų analizė skirtingo FL intensyvumo srityse parodo bandinyje egzistuojantį netolygų nespindulinės rekombinacijos centru pasiskirstymą, kuris lemia krūvininkų persiskirstymą. Tai sukelia nehomogenišką emisijos intensyvumo pasiskirstymą.

## **7 skyrius. Fotoluminescencijos intensyvumo padidėjimas InGaN kvantinėse duobėse dėl sąveikos su lokalizuotais paviršiniaisiais plazmonais**

Didelį indžio kiekį turinčių InGaN šviestukų našumas yra mažas. Šviestukų našumą galima pagerinti padidinus spindulinės rekombinacijos spartą. Rekombinacijos sparta gali būti padidinta, jei optinis dipolis kvantinėse duobėse sąveikauja su paviršiniaisiais

plazmonais, indukuotais metalo ir dielektriko sandūroje [19,20], arba su lokalizuotais paviršiniaisiais plazmonais ant metalo nanodalelių [21–23].

Sąveika su plazmonais dažniausiai yra tiriama analizuojant FL parametrų kitimą registruojant emisiją iš didelio bandinio ploto, padengto metalo sluoksniu [19,20] arba metalo nanodalelėmis [21–23]. Siekiant geriau suprasti optinių dipolių InGaN kvantinėse duobėse sąveiką su lokalizuotais plazmonais, šiame skyriuje tiriamas lokalus FL parametrų kitimas aplink sidabro nanodaleles.

Buvo tirti du identiškai InGaN kvantinių duobių bandinai: bandinys I buvo padengtas Ag nanodalelėmis; bandinys II buvo be nanodalelių. Bandinių aktyvusis sluoksnis sudarytas iš penkių 3 nm pločio kvantinių duobių su 12 nm pločio GaN barjeriais. Paviršius buvo padengtas 15 nm storio GaN dengiamuoju sluoksniu. Ant dengiamojo sluoksnio suformuotų Ag nanodalelių vidutinis diametras buvo 80 nm. Optinio pralaidumo matavimais nustatyta, kad lokalizuotų paviršinių plazmonų rezonanso bangos ilgis šiose dalelėse yra ties 550 nm. Jis gerai sutampa su kvantinių duobių FL bangos ilgiu (~ 536 nm). Erdvinis FL pasiskirstymas tirtas *WITec* mikroskopine sistema *Alpha 300*, veikiančia konfokaliniame režime ir skenuojančiojo artimojo lauko optinio mikroskopo (SNOM) režime. FL žadinimui naudota nuolatinės veikos He-Cd lazerio 442 nm bangos ilgio spinduliuotė. Bandinių paviršius charakterizuotas atominės jėgos mikroskopu.

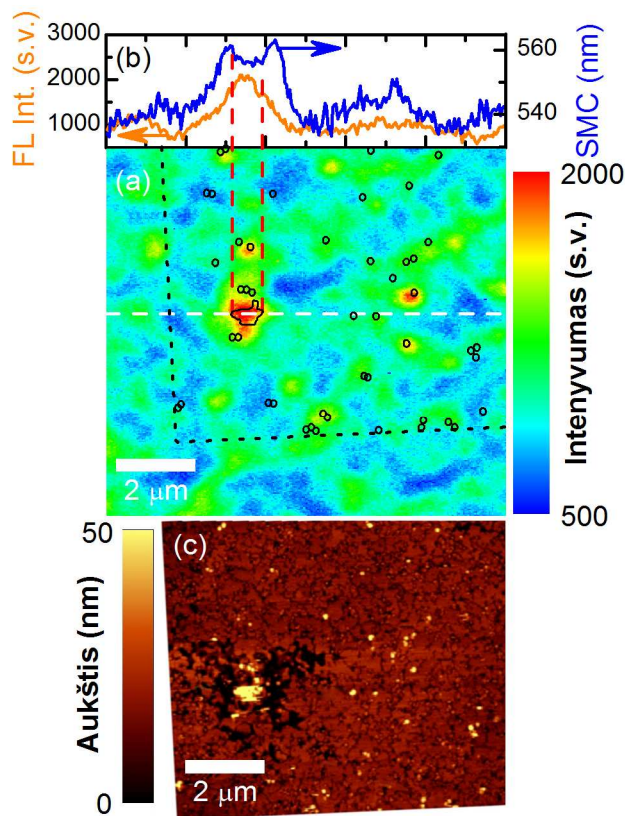
FL intensyvumo erdvinis pasiskirstymas abiejuose bandiniuose yra nehomogeniškas. Tačiau bandinyje I, padengtame Ag nanodalelėmis, išsiskiria labai intensyvios FL sritys, kuriose intensyvumas 4 kartus didenis už vidurkį. FL spektrai, surinkti iš skirtingo intensyvumo sričių, parodė, kad FL juosta ryškiausiose srityse pasislinkusi vidutiniškai 8 nm į ilgų bangų pusę. Tokių intensyvios FL sričių ir tokio didelio juostos poslinkio bandinyje II (be nanodalelių) nebuvo stebėta. Ženklus bandinio II FL juostos poslinkis ryškiausiose srityse netiesiogiai parodo, kad šiose srityse yra Ag nanodalelių, kurios dėl sąveikos su InGaN kvantinėmis duobėmis lokaliai padidina FL intensyvumą.

Šią išvadą patvirtino SNOM matavimai: Ag nanodaleles supa ~ 300 nm diametro intensyvesnės FL žiedas. Tačiau šio žiedo centre FL intensyvumas yra žemas, nes SNOM zondas, priartėjęs nanodalelei, pakyla. Dėl padidėjusio atstumo tarp zondo ir



kvantinių duobių FL intensyvumas sumažėja, o plazmonų sąveika FL intensyvumo sumažėjimo neatsveria.

Derinant konfokalinę spektroskopiją ir atominės jėgos mikroskopiją tame pačiame paviršiaus plote, bandinys su nanodalelėmis buvo ištirtas detaliau. Žadinant ir surenkant FL pro safyro padėklą, aiškiai išsiskiria FL intensyvumo padidėjimas šalia Ag nanodalelių sankaupos (7.1(a) pav). Kartu matyti ir ženklus (~ 20 nm) FL juostos padėties raudonasis poslinkis [žr. 7.1(b) pav.]. Šie požymiai rodo, kad emisijos sustiprinimą lemia paviršinių plazmonų sąveika su optiniais dipoliais kvantinėse duobėse [22]. Mažas (~ 0,2%) bandinio II paviršiaus ploto padengimas nanodalelėmis leido atskirai ištirti ir pavienes Ag nanodaleles. FL intensyvumo padidėjimas ne visada stebimas šalia Ag nanodalelių. Tikriausiai tai yra sąlygota potencialo fliktuacijų

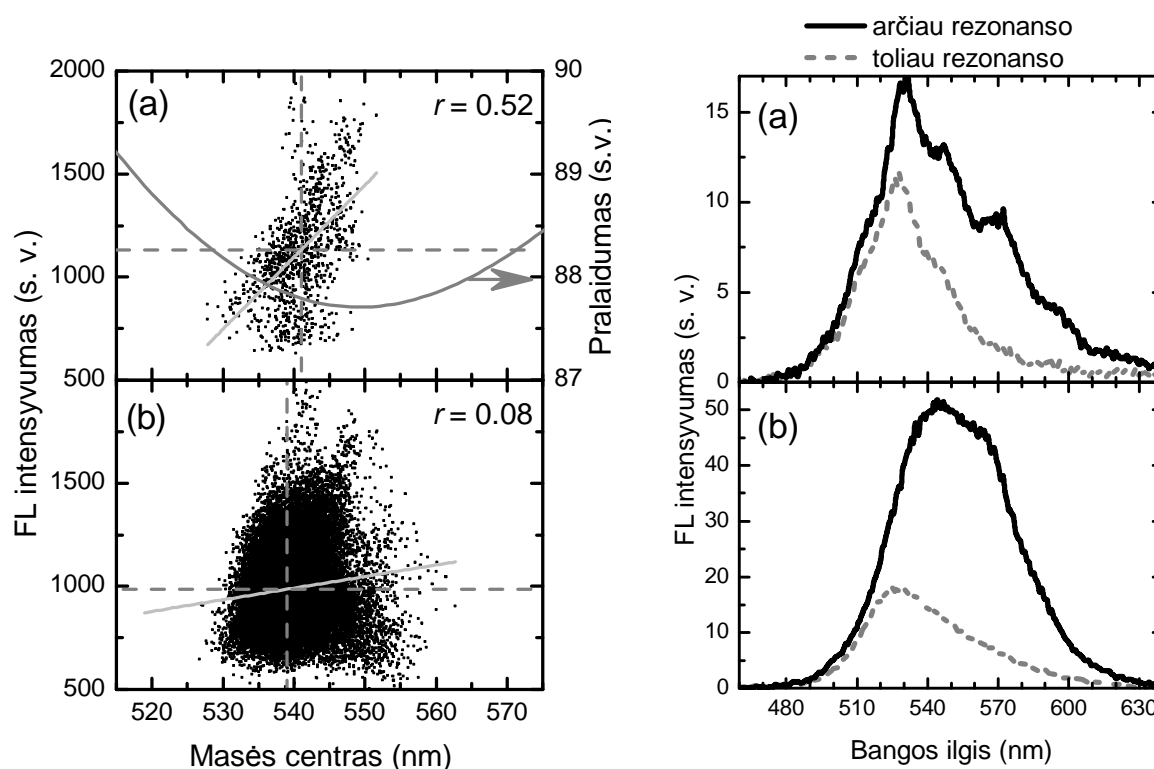


**7.1 pav.** Spektriškai integruoto FL intensyvumo pasiskirstymas bandinyje su Ag nanodalelėmis (a). Nanodalelių padėtys pažymėtos apskritimais. Viršuje (b) parodytas FL intensyvumo ir spektrinio masės centro (SMC) profilis ties brūkšnine horizontalia linija. Taškine linija (b) pažymėtas AFM matuotas paviršiaus plotas (c). [P1]

kvantinėse duobėse: Ag nanodalelės, esančios gilesnės fliktuacijos aplinkoje, FL stiprina veiksmingiau, nes tokiose srityse emituotos šviesos bangos ilgis yra artimesnis lokalizuotų plazmonų rezonansui. Siekiant patvirtinti šią prielaidą, FL intensyvumo ir spektrinio masės centro (SMC) bangos ilgio vertės palygintos 200×200 nm<sup>2</sup> ploto srityse po kiekviena nanodalele [7.2(a) pav.]. Sąryšys tarp šių verčių nustatytas skaičiuojant Pirsono (*Pearson*) koreliacijos koeficientą *r*. Gauta koreliacijos koeficiento vertė (*r* = 0,52) po nanodalelėmis yra didenė negu srityse be jų (*r* = 0,08). Tai patvirtina anksčiau minėta prielaidą, kad plazmonų sąveika yra stipriai įtakojama potencialo fliktuacijų.

Stipresnis nanodalelių sukeltas FL intensyvumo padidėjimas siauresnio efektinio draustinio tarpo srityse pademonstruotas 7.3 paveiksle. Jame palyginti FL spektrai aplink Ag nanodaleles, esančias bandinio vietose, kur optinių šuolių energija yra artimesnė (ištisinė kreivė) ir tolimesnė (punktyrinė kreivė) plazmonų rezonansui. Spektrai, FL žadinant ir surenkant pro safyro padėklą, yra moduluoti Fabri ir Pero (*Fabry-Perot*) interferencijos, todėl tiksli juostos viršūnės padėtis sunkiai išskiriama [7.3(a) pav.]. Interferencija silpnesnė FL matuojant iš priešingos pusės, kuomet Ag nanodalelės yra tarp kvantinių duobių ir FL registravimo sistemos [7.3(b) pav.]. Abiem atvejais FL intensyvumas yra didesnis, kuomet Ag nanodalelė yra gilesnio potencialo fliuktuacijos aplinkoje.

FL žadinant ir surenkant pro safyro padėklą, po Ag nanodalelėmis intensyvumas vidutiniškai išauga 15%. FL žadinant ir surenkant iš priešingos pusės, kuomet Ag



**7.2 pav.** FL intensyvumo ir spektrinio masės centro koreliacija bandinio srityse po Ag nanodalelėmis (a) ir be nanodalelių (b). Punktyrinės linijos žymi vidutines vertės. Ištisinė pilka kreivė (a) rodo Ag nanodalelių pralaidumo spektrą. [P1]

**7.3 pav.** FL spektrai aplink Ag nanodaleles, esančias artimesnėje ir tolimesnėje plazmonų rezonansui bandinio srityje. Dalyje (a) FL žadinta ir surinkta pro safyro padėklą, (b) – FL žadinta ir surinkta iš priešingos pusės. [P1]

nanodalelės yra tarp kvantinių duobių ir FL registravimo sistemos, intensyvumas padidėja 46%. Tai rodo, kad antruoju atveju Ag nanodalelės sąlygoja geresnę šviesos išstrūką, kuri papildomai prisideda prie FL intensyvumo padidėjimo.

Apibendrinant, pademonstruotas lokalus FL intensyvumo padidėjimas InGaN kvantinėse duobėse dėl optinio dipolio sąveikos su lokalizuotais paviršiniaisiais plazmonais atskirose Ag nanodalelėse. FL intensyvumo padidėjimą įtakoja potencialo fliktuacijos, kurios kyla dėl kvantinės duobės storio arba junginio sudėties pokyčių. Padidėjimas yra didesnis, kuomet Ag nanodalelė yra bandinio srityse, kurių spinduliuojamos šviesos bangos ilgis yra artimesnis lokalizuotų paviršinių plazmonų rezonansui.

### Literatūra

- 1 M. Leyer, J. Stellmach, C. Meissner, M. Pristovsek, and M. Kneissl, *J. Cryst. Growth* **310**, 4913 (2008).
- 2 S. Pereira, M.R. Correia, E. Pereira, K.P. O'Donnell, E. Alves, A.D. Sequeira, and N. Franco, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1432 (2001).
- 3 S.M.D.S. Pereira, K.P. O'Donnell, and E. Jorge da Costa Alves, *Adv. Funct. Mater.* **17**, 37 (2007).
- 4 B. Wilsch, U. Jahn, B. Jenichen, J. Lähnemann, H.T. Grahn, H. Wang, and H. Yang, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 052109 (2013).
- 5 Z. Liliental-Weber, M. Benamara, J. Washburn, J.Z. Domagala, J. Bak-Misiuk, E.L. Piner, J.C. Roberts, and S.M. Bedair, *J. Electron. Mater.* **30**, 439 (2001).
- 6 E. Sakalauskas, Ö. Tuna, A. Kraus, H. Bremers, U. Rossow, C. Giesen, M. Heuken, A. Hangleiter, G. Gobsch, and R. Goldhahn, *Phys. Status Solidi* **249**, 485 (2012).
- 7 M.D. McCluskey, C.G. Van de Walle, C.P. Master, L.T. Romano, and N.M. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2725 (1998).
- 8 A.F. Wright, K. Leung, and M. van Schilfgaarde, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 189 (2001).
- 9 N. Grandjean, J. Massies, M. Leroux, and P. De Mierry, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3190 (1998).
- 10 C. Manz, M. Kunzer, H. Obloh, a. Ramakrishnan, and U. Kaufmann, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 3993 (1999).

- 11 W. Lü, *J. Appl. Phys.* **95**, 4362 (2004).
- 12 S.-W. Feng, E.-C. Lin, T.-Y. Tang, Y.-C. Cheng, H.-C. Wang, C.C. Yang, K.-J. Ma, C.-H. Shen, L.C. Chen, K.H. Kim, J.Y. Lin, and H.X. Jiang, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3906 (2003).
- 13 M. Reshchikov and H. Morkoç, *J. Appl. Phys.* **97**, 061301 (2005).
- 14 A. Medvid, *Defect Diffus. Forum* **210-212**, 89 (2002).
- 15 M. Leroux, N. Grandjean, J. Massies, B. Gil, P. Lefebvre, M. Ii, C. Courier, M. Cedex, and P. Bigenwald, *Phys. Rev. B* **60**, 1496 (1999).
- 16 C.-Y. Chen, C. Hsieh, C.-H. Liao, W.-L. Chung, H.-T. Chen, W. Cao, W.-M. Chang, H.-S. Chen, Y.-F. Yao, S.-Y. Ting, Y.-W. Kiang, C.C. Yang, and X. Hu, *Opt. Express* **20**, 11321 (2012).
- 17 C. Chuo, C. Lee, T. Nee, and J. Chyi, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3902 (2000).
- 18 C.-C. Chuo, M.N. Chang, F.-M. Pan, C.-M. Lee, and J.-I. Chyi, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1138 (2002).
- 19 A. Neogi, C.-W. Lee, H. Everitt, T. Kuroda, A. Tackeuchi, and E. Yablonovitch, *Phys. Rev. B* **66**, 153305 (2002).
- 20 K. Okamoto, I. Niki, A. Scherer, Y. Narukawa, T. Mukai, and Y. Kawakami, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 071102 (2005).
- 21 M.-K. Kwon, J.-Y. Kim, B.-H. Kim, I.-K. Park, C.-Y. Cho, C.C. Byeon, and S.-J. Park, *Adv. Mater.* **20**, 1253 (2008).
- 22 D.-M. Yeh, C.-F. Huang, C.-Y. Chen, Y.-C. Lu, and C.C. Yang, *Nanotechnology* **19**, 345201 (2008).
- 23 J. Henson, J.C. Heckel, E. Dimakis, J. Abell, A. Bhattacharyya, G. Chumanov, T.D. Moustakas, and R. Paiella, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 151109 (2009).

## Publikacijų disertacijos tema sąrašas

- P1. **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, G. Tamulaitis, H.S. Chen, C.P. Chen, Y.L. Jung, Y.W. Kiang, C.C. Yang, Spatially resolved study of InGaN photoluminescence enhancement by single Ag nanoparticles, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46**, 145105 (2013)
- P2. **D. Dobrovolskas**, A. Vaitkevičius, J. Mickevičius, Ö. Tuna, C. Giesen, M. Heuken, G. Tamulaitis, Correlation between structure and photoluminescence properties in InGaN epilayers with thickness below and above critical thickness, *J. Appl. Phys.* (2013) (*priimtas spausdinti*)
- P3. J. Mickevičius, **D. Dobrovolskas**, I. Šimonytė, G. Tamulaitis, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, H.-S. Chen, C.C. Yang, Unintentional annealing of the active layer in the growth of InGaN/GaN quantum well light-emitting diode structures, *Phys. Stat. Solidi A* **210**, 1657 (2013)
- P4. G. Tamulaitis, **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, V. Kazlauskienė, J. Miškinis, E. Kuokštis, P. Onufrijevs, A. Medvids, J.-J. Huang, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, and C.C. Yang, Suppression of defect-related luminescence in laser-annealed InGaN epilayers, *Phys. Stat. Solidi C* **9**, 1021 (2012)
- P5. **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, E. Kuokštis, G. Tamulaitis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska, Confocal spectroscopy of InGaN LED structures, *Journal of Physics D-Applied Physics*, **44**, 135104 (2011)
- P6. **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, V. Kazlauskienė, J. Miškinis, E. Kuokštis, G. Tamulaitis, P. Onufrijevs, A. Medvids, J.J. Huang, C.Y. Chen, C.H. Liao, C.C. Yang, Influence of laser annealing on defect-related luminescence of InGaN epilayers, *Journal of Luminescence*, **131**, 1322 (2011)
- P7. G. Tamulaitis, J. Mickevičius, **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska, Spatially-resolved photoluminescence study of high indium content InGaN LED structures, *Phys. Status Solidi C* **7**, No. 7–8, 1869 (2010)

## Pranešimai konferencijose

- C1. **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, J. Mickevičius, G. Tamulaitis, Jeng-Jie Huang, Chih-Yen Chen, C. C. Yang, „*Epitaksinio InGaN sluoksnio su dideliu In kiekiu fotoluminescencijos tyrimas konfokalinės spektroskopijos metodu*“, 38-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, balandžio 8–10 d. 2009 m., Vilnius, Programa ir pranešimų tezės, p. 94 (stendinis).
- C2. **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, J. Mickevičius, G. Tamulaitis, J.-J. Huang, C.-Y. Chen, C.-C. Yang, “*Characterization of In-rich InGaN epitaxial layer using confocal spectroscopy*“, Book of Abstracts of the 11-th International Summer School-Conference Advanced Materials and Technologies, 27–31 August 2009, Palanga, p. 69 (stendinis).

- C3. G. Tamulaitis, J. Mickevičius, **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska, “*Spatially-resolved Photoluminescence Study of High Indium Content InGaN LED Structures*“, The 8th International Conference on Nitride Semiconductors, 18–23 October 2009, ICC Jeju, Korea, Abstract book, Volume 1, p. 357-358 (stendinis).
- C4. **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, E. Kuokštis, G. Tamulaitis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska, “*Spatially and spectrally resolved photoluminescence study of InGaN LED structures*“, XXXIX „Jeszowiec“ 2010 International School and Conference on the Physics of Semiconductors, 19–24 June, Krynica-Zdroj, Poland, Abstract book, p. 149 (stendinis).
- C5. G. Tamulaitis, **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, V. Kazlauskienė, J. Miškinis, E. Kuokštis, P. Onufrijevs, A. Medvids, J.J. Huang, C.Y. Chen, C.H. Liao, C.C. Yang, “*Suppression of defect-related luminescence in laser-annealed InGaN epilayers*“, E-MRS 2011 Spring Meeting IUMRS ICAM 2011 & E-MRS / MRS Bilateral Conference on Energy May 9–13, 2011, Nice, France (stendinis).
- C6. G. Tamulaitis, J. Mickevičius, **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, M.S. Shur, M. Shatalov, J. Yang, R. Gaska, “*Carrier dynamics and efficiency droop in AlGaIn epilayers with different Al content*“, Program and Abstracts of the 16th Semiconducting and Insulating Materials Conference (SIMC XVI), June 19–23, 2011, KTH, Stockholm, Sweden, p. We2-3 (žodinis).
- C7. **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, J. Mickevičius, G. Tamulaitis, S. Suikonen, “*Photoluminescence intensity spatial distribution dependence on well width in InGaIn single quantum well*“, Book of Abstracts of the 13-th International Summer School-Conference Advanced Materials and Technologies, 27-31 August 2011, Palanga, p.78 (stendinis).
- C8. **D. Dobrovolskas**, E. Kuokštis, J. Mickevičius, G. Tamulaitis, S. Suihkonen, „*Erdvinis fotoluminescencijos intensyvumo pasiskirstymas InGaIn vienalypiuose kvantiniuose lakštuose*“, 39-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, spalio 6-8 d. 2011 m., Vilnius, Programa ir pranešimų tezės, p. 64 (stendinis)
- C9. G. Tamulaitis, **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, C.-W. Huang, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, C. Hsieh, Y.-L. Jung, D.-M. Yeh, C.C. Yang, “*Spatially resolved study of surface-plasmon-enhanced photoluminescence in InGaIn quantum wells*“, Program of the E-MRS Spring Meeting, May 14-18, 2012, Strasbourg, France, p. T-13. (žodinis).
- C10. **D. Dobrovolskas**, G. Tamulaitis, J. Mickevičius, V. Kazlauskienė, J. Miškinis, E. Kuokštis, P. Onufrijevs, A. Medvids, J.-J. Huang, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, and C.C. Yang, “*Spatially-Resolved Study of Defect-Related Luminescence in Laser-Annealed InGaIn Epilayers*“, Program and Abstract Book of the 41st "Jaszowiec" International School and Conference on the Physics of Semiconductors, June 8-15, 2012, Krynica-Zdroj, Poland, p. 111 (stendinis).

- C11. **D. Dobrovolskas**, G. Tamulaitis, J. Mickevičius, C.W. Huang, C.Y. Chen, C.H. Liao, C. Hsieh, Y.L. Jung, D.M. Yeh, C.C. Yang, „*Plasmon-Enhanced Photoluminescence in InGaN Quantum Wells*“, Book of Abstracts of the 14-th International Summer School-Conference Advanced Materials and Technologies, 27-31 August 2012, Palanga, p. 74 (stendinis, **apdovanotas už geriausią pranešimą**).
- C12. J. Mickevicius, **D. Dobrovolskas**, G. Tamulaitis, C.-W. Huang, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, C. Hsieh, Y.-L. Jung, D.-M. Yeh, and C.C. Yang, “*Spatial distribution of surface-plasmon-enhanced photoluminescence in InGaN/GaN quantum wells*” Final program of the 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-2012), July 29-August 3, 2012, Zurich, Switzerland, p. 122 (stendinis).
- C13. J. Mickevicius, **D. Dobrovolskas**, R. Aleksiejunas, A. Kadys, T. Malinauskas, T. Grinys, and G. Tamulaitis, “*Carrier localization in graded-shape InGaN/GaN quantum wells*“, Program and Exhibition Guide of International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN-2012), October 14-19, 2012, Sapporo, Japan, p. 49 (stendinis).
- C14. **D. Dobrovolskas**, A. Vaitkevičius, J. Mickevičius, Ö. Tuna, C. Giesen, M. Heuken, G. Tamulaitis, „*Įtemptų ir relaksavusių InGaN epitaksinių sluoksnių liuminescencijos erdvinis pasiskirstymas*“, 40-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, birželio 10-12 d. 2011 m., Vilnius, Programa ir pranešimų tezės, p. 102 (stendinis)
- C15. A. Vaitkevičius, **D. Dobrovolskas**, J. Mickevičius, Ö. Tuna, C. Giesen, M. Heuken, G. Tamulaitis, „*Kilpinių defektų įtaka InGaN kvantinių lakštų fotoluminescencijai*“, 40-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, birželio 10-12 d. 2013 m., Vilnius, Programa ir pranešimų tezės, p. 103 (stendinis)
- C16. A. Kalpakovaitė, **D. Dobrovolskas**, M. Dmukauskas, T. Grinys “*Optical Response of Metal Nano-Islands Fabricated on GaN Based Structures*” Book of Abstracts of the 15-th International Summer School-Conference Advanced Materials and Technologies, 27-31 August 2013, Palanga, p. 55 (stendinis)
- C17. R. Tomasiunas, E. Jelmakas, P. Gecys, **D. Dobrovolskas**, A. Kadys, G. Raciukaitis, and S. Margueron, “*GaN epitaxial lateral overgrowth of laser patterned*”, Program and Exhibit Guide of 10-th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-10), August 25-30, 2013, Washington, DC, USA, p.98 (stendinis).
- C18. S. Nargelas, **D. Dobrovolskas**, J. Mickevicius, M. Vengris, R. Aleksiejunas, G. Tamulaitis, H.-S. Chen, C.-F. Chen, C.-Y. Chen, C.-H. Liao, and C.C. Yang, “*Space- and time-resolved spectroscopic study of InGaN/GaN quantum wells coupled with the localized surface plasmons in metal nanoparticles*” Program and Exhibit Guide of 10-th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-10), August 25-30, 2013, Washington, DC, USA, p.165 (stendinis).

## Informacija apie autorių

<b>Vardas Pavardė</b>	<b>Darius Dobrovolskas</b>	
<b>Gimimo data ir vieta</b>	1984 m. rugpjūčio 7 d., Trakai, Lietuva	
<b>Adresas</b>	Pakalnės g. 5-4, Lentvaris, Lietuva	
<b>El. paštas</b>	darius.dobrovolskas@ff.vu.lt	
<b>Išsilavinimas</b>	2003 m.	M. Šimelionio vidurinė mokykla
	2003-2007 m.	Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas gautas bakalauro laipsnis
	2007-2009 m.	Vilniaus universitetas, Fizikos fakultetas gautas magistro laipsnis
	2009-2013 m.	Vilniaus universitetas, doktorantūros studijos
<b>Darbo patirtis</b>	2007-2011 m.	Vilniaus universitetas, Medžiagotyros ir taikomųjų mokslų institutas; inžinierius
	2011-2013 m.	Vilniaus universitetas, Medžiagotyros ir taikomųjų mokslų institutas; jaunesnysis mokslo darbuotojas
<b>Specializacija</b>	Puslaidininkų ir jų darinių charakterizavimas fotoluminescencijos su erdvine skyra spektroskopiniais metodais	
<b>Publikacijos</b>	12 straipsnių (8 iš jų žurnaluose, įtrauktuose į ISI duomenų bazę) ir 29 pranešimai konferencijose	