VILNIAUS UNIVERSITETAS

SAULIUS NARGELAS

NEPUSIAUSVIRŲJŲ KRŪVININKŲ DINAMIKOS TYRIMAS SUŽADINIMO-ZONDAVIMO METODIKOMIS InN, InGaN, GaAsBi

Daktaro disertacija Fiziniai mokslai, fizika (02 P), puslaidininkių fizika (P 265)

Vilnius, 2012

Disertacija rengta Vilniaus universitete, Taikomųjų mokslų institute 2008–2012 metais.

Mokslinis vadovas:

Profesorius, habilituotas daktaras Kęstutis Jarašiūnas (Vilniaus universitetas, fiziniai mokslai, fizika – 02P, puslaidininkių fizika – P265).

Padėka

Ypatingą padėką reiškiu darbo vadovui prof. Kęstučiui Jarašiūnui už pasitikėjimą, suteiktas galimybes tobulėti bei kūrybingą vadovavimą dirbant mokslinį darbą.

Norėčiau padėkoti prof. Artūrui Žukauskui už suteiktą galimybę darbuotis ir atlikti mokslinį darbą Taikomųjų mokslų institute.

Dėkoju dr. Mikui Vengriui už suteiktą galimybę naudotis VU Lazerinių Tyrimų Centre esančia ultrasparčiosios spektroskopijos laboratorijos įranga ir naudingas konsultacijas.

Taip pat dėkoju laboratorijos kolegoms dr. Ramūnui Aleksiejūnui, dr. Arūnui Kadžiui ir dr. Tadui Malinauskui už bendradarbiavimą, pagalbą ir vertingas diskusijas bei konsultacijas sprendžiant mokslines problemas.

Dėkoju savo tėvams, žmonai Viktorijai už kantrybę, supratingumą ir palaikymą visais gyvenimo atvejais bei visiems pažįstamiems, kurie palaiko mano siekius kasdieniniame gyvenime.

Šį darbą iš dalies finansavo Valstybinis studijų fondas ir Lietuvos mokslo taryba.

Įvadas	6
Publikacijų sąrašas	13
1. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos ypatumai stipriai sužadintuose	
tiesiatarpiuose puslaidininkiuose	17
2. Krūvininkų dinamikos tyrimų metodikos su laikine skyra	23
2.1 Skirtuminio pralaidumo metodika	24
2.2 Šviesa indukuotų dinaminių gardelių metodika	27
2.3 Krūvininkų dinamikos skaitmeninis modeliavimas	33
3. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika InN sluoksniuose su skirtingu	
pusiausvirųjų krūvininkų tankiu	35
3.1 Krūvininkų rekombinacijos tyrimai skirtuminio pralaidumo metodika	38
3.2 Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos ir difuzijos procesų	
priklausomybės nuo temperatūros tyrimas naudojant DG metodiką	46
Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados	50
4. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimai In _x Ga _{1-x} N sluoksniuose su	
skirtingu In kiekiu	52
4.1 Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos ypatumų tyrimai DG metodik	a
In _x Ga _{1-x} N sluoksniuose su x>0,7	56
4.2 Rekombinacijos spartos priklausomybės nuo nepusiausvirųjų krūvininkų j	jų
tankio ir bandinio temperatūros tyrimas $In_xGa_{1-x}N$ sluoksnyje su $x=0,13$	62
4.3 Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimas InGaN daugybiniuose	
kvantiniuose lakštuose su skirtingu In kiekiu (0,034 <x<0,16)< td=""><td>68</td></x<0,16)<>	68
Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados	77
5. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika GaAsBi sluoksniuose su skirtingu Bi	
kiekiu	78
5.1 Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos palyginimas GaAs ir GaAsBi	
kambario temperatūroje naudojant DG metodiką	81
5.2 Krūvininkų gyvavimo trukmės ir nepusiausvirųjų skylių dinamikos	
priklausomybės nuo bandinio temperatūros tyrimas naudojant DG metodiką	88
Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados	92
Išvados	94
Cituojamos literatūros sąrašas	96

Turinys

Tekste naudojamų sutrumpinimų sąrašas

DG - dinaminės gardelės (angl. Transient gratings);

SP – skirtuminis pralaidumas (angl. Differential Transmission);

LS – laisvakrūvė sugertis (angl. Free Carrier Absorption);

IP – indukuotas praskaidrėjimas (angl. Induced bleaching);

MQW – daugybiniai kvantiniai lakštai (angl. Multiple Quantum Wells);

PL – fotoliuminescencija (angl. Photoluminescence);

 β –BBO – beta bario borato (BaB₂O₄) kristalas naudojamas netiesinėje optikoje;

YAG – itrio aliuminio granatas (Y₃Al₅O₁₂);

TRPL – fotoliuminescencijos su laikine skyra metodas (angl. *Time-Resolved Photoluminescence*);

TRDR – skirtuminio atspindžio su laikine skyra metodika (angl. *Time-Resolved Differential Reflectivity*);

TRDT – skirtuminio pralaidumo su laikine skyra metodika (angl. *Time-Resolved Differential Transmission*);

MBE – molekulinio pluoštelio epitaksija (angl. Molecular Beam Epitaxy);

MOCVD – cheminis nusodinimas iš metalo-organinių garų fazės (angl. *Metal-Organic Chemical Vapour Deposition*);

IQE – vidinis kvantinis našumas (angl. Internal Quantum Efficiency)

EQE – išorinis kvantinis našumas (angl. External Quantum Efficiency)

TMIn – trimetilindis (In(CH₃)₃)

TMGa –trimetilgalis (Ga(CH₃)₃)

Įvadas

Pastaraisiais dešimtmečiais stebima labai sparti įvairių sričių puslaidininkinės elektronikos ir optoelektronikos plėtra, apimanti naujų prietaisų medžiagų paiešką ir jų auginimo technologijų tobulinimą bei optimizavimą, naujų medžiagų savybių tyrimus, jų taikymą elektronikoje ir optoelektronikoje, optinėse informacijos perdavimo ir valdymo sistemose.

Viena iš sparčiausiai augančių puslaidininkių pramonės sričių – puslaidininkiniai šviestukai. Nors ekranų gamyboje juos buvo nukonkuravusi skystųjų kristalų technologija, tačiau susidomėjimas puslaidininkinėmis technologijomis ir šioje srityje vėl sparčiai kyla. Šviestukų spinduliuojamos šviesos bangos ilgis ir intensyvumas priklauso nuo aktyvios medžiagos draustinių energijų juostos tarpo ir nuo spindulinės rekombinacijos efektyvumo. Infraraudonieji šviestukai, naudojami apsaugos sistemose, gaminami iš GaAs. Atskirose matomo šviesos spektro srityse yra įsitvirtinusios kelios technologijos: raudoną šviesą skleidžiantys puslaidininkiniai prietaisai gaminami iš GaAsP, geltoną iš GaP. Ultravioletinėje-mėlynoje srityje isitvirtinusi nitridinių junginių technologija, o gretimose ilgabangio spektro srityse (mėlyna ir žalia) bandoma panaudoti InGaN kietuosius tirpalus. Kadangi InGaN draustiniu energiju tarpa galima varijuoti nuo ultravioletinės (3,5 eV) iki infraraudonosios (0,7 eV) šviesos spektro srities, pastarasis kietasis tirpalas leistų įgyvendinti kietakūnio apšvietimo plėtotojų svajonę – pagaminti vienlustį baltą šviesą spinduliuojantį puslaidininkinį šviestuką, susidedantį iš trijų šviestukų - raudono, žalio ir mėlyno. Jų auginimo technologijos būtų suderinamos, tereiktų varijuoti aktyvios srities sudėtį. Puslaidininkiniams lazeriams, kurių spinduliuotės bangos ilgis patenka į ruožą naudojamą informacijos perdavimo ir valdymo sistemose, taip pat nuolat ieškomos naujos medžiagos, kurių draustinių energijų tarpas kuo mažiau priklausytų nuo temperatūros ir spinduliuojamas bangos ilgis išliktų pastovus.

Kita sparčiai besiplečianti puslaidininkinės pramonės sritis – saulės energetika, kur vis ieškoma naujų medžiagų efektyvių saulės elementų gamybai. Iš silicio pagaminti saulės elementai jau senai gaminami ir

6

naudojami. Tačiau iš vienos medžiagos pagaminto puslaidininkinio saulės elemento teorinis našumas pagal Shockley-Queisser teorija tegali siekti 34%. Šios teorinės ribos galima išvengti, panaudojant daugiasluoksnius saulės elementus sudarytus iš dviejų ir daugiau p-n sandūrų, tačiau tokių elementų technologija yra žymiai sudėtingesnė. Daugiasluoksniai saulės elementai sudaryti iš kelių puslaidininkinių sluoksnių su skirtingu draustinių energijų tarpu: apačioje turi būti sluoksnis su mažiausia $E_{\rm g}$ verte, o einant į viršų $E_{\rm g}$ didėja. Tokie elementai jau gaminami naudojant Si, Ge ir (Al,Ga)InP technologijas, tačiau technologinis visų sluoksnių gamybos suderinamumas tebėra didelė problema. Todėl ieškoma naujų puslaidininkinių medžiagų, kurių draustinių energijų juostos tarpą būtų galima varijuoti per visą saulės spinduliuojamo spektro ploti, o visų sluoksnių auginimo technologija būtų Tokius keliamus reikalavimus atitinkančios medžiagos vienoda. yra (Al,In)GaN ar GaAs(Bi,N) kietieji tirpalai.

Dar viena didelio susidomėjimo sulaukianti puslaidininkių pramonės sritis – THz spinduliuotės (nuo 0,3 iki 3 THz) emiteriai ir detektoriai. Kadangi THz spinduliuotė apima spektro sritį nuo infraraudonos iki mikrobangų nuo 100 µm iki 1 mm, ši spinduliuotė pasižymi tiek vienai tiek kitai spektro sričiai būdingomis savybėmis: ji yra nejonizuojanti bei silpnai sugeriama nelaidžiose medžiagose. THz spinduliuotės galimos panaudojimo sritys yra medicina (kadangi THz spinduliuotę stipriai sugeria vanduo, todėl tokios spinduliuotės sugertis yra geras vandens kiekio audiniuose rodiklis; priešingai nei Rentgeno spinduliai neardo audinių ir nedaro poveikio DNR), apsaugos sistemos (kadangi drabužių audiniai yra skaidrūs THz spinduliuotei, ji gali būti panaudota įvairiuose saugos vartuose ginklams ar draudžiamiems daiktams aptikti), didelio informacijos srauto perdavimo sistemos (pvz. lėktuvaspalydovas ar palydovas-palydovas). Vienas THz spinduliuotės generavimo būdų yra ultratrumpu (šimtai fs) lazerio impulsu apšviesti puslaidininkį ant kurio paviršiaus yra planarinė antena su prijungta įtampa. Tokiu būdu generuoto THz impulso spektro plotis ir trukmė priklauso nuo nepusiausvirųjų krūvininkų judrio ir rekombinacijos spartos. Todėl vis ieškoma naujų medžiagų, kuriose būtų didelės krūvininkų judrio ir tuo pačiu rekombinacijos spartos vertės.

Nors daugelis aukščiau paminėtų prietaisų pavyzdžių jau gaminami pramoniniu būdu, tačiau prietaisų su platesniu veikimo diapazonu ir funkcionalumu poreikis (pvz. efektyvūs žalias ir raudonas InGaN šviestukai, reikalingi balto vienlusčio puslaidininkinio šviestuko gamybai; efektyvus daugiasluoksnis saulės elementas ar efektyvus THz šaltinis/detektorius) skatina panaudoti naujas medžiagas ir technologijas. Naujos prietaisų gamybos technologijos susiduria su sunkumais, tokiais kaip šviestukų našumo mažėjimas, dėl kurio priežasčių iki šiol aktyviai diskutuojama tarptautinėje mokslininkų visuomenėje ar saulės elementų neefektyvus veikimas dėl prasto krūvininkų judrio, sparčios rekombinacijos, mažo difuzijos nuotolio. Tad natūralu, kad reikalingi ir adekvatūs medžiagų savybių diagnostikos metodai. Struktūrinės medžiagų savybės tiriamos naudojant atominės jėgos spektroskopija, mikroskopija, Ramano Rentgeno spinduliu difrakcija. savybių žinomi tyrimams naudojami plačiai Elektriniu ir optinių fotoliuminescencijos, katodoliuminescencijos, Holo, foto-Holo, laisvo lėkio trukmės ar elektronų pluoštelio kuriamos srovės metodai.

Netiesinių optinių ir elektrinių savybių diagnostikos su laikine skyra metodikos tai pat yra galingas puslaidininkinių medžiagų tyrimų įrankis, kadangi įgalina tiesiogiai tirti nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką ir įvertinti tokius svarbius medžiagos parametrus kaip krūvininkų gyvavimo trukmę, difuzijos koeficiento vertę ar difuzijos nuotolį. Krūvininkų rekombinacijos spartą ir difuziją dažniausiai lemia defektų tankis medžiagoje, tad krūvininkų dinamikos tyrimai leidžia charakterizuoti naujas medžiagas, įvertinti jų fotoelektrinius parametrus ir tuo būdu įvertinti jų auginimo technologijas. Nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmė yra jautrus parametras taškinių ir išplėstinių defektų tankio tiriamoje medžiagoje matas. Spindulinės ir nespindulinės rekombinacijos trukmių santykis, kuris parodo vidinį kvantinį medžiagos našumą, lemia puslaidininkinių šviestukų efektyvumą, o difuzijos nuotolis yra vienas iš svarbiausių parametrų lemiančių saulės elemento efektyvumą.

Prieš tai minėtos aktualios tematikos ir yra nagrinėjamos šiame darbe, kurio **tikslas** yra ištirti nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos ypatumus perspektyviose puslaidininkinei elektronikai ir optoelektronikai naujose medžiagose su technologiniškai varijuojamomis savybėmis: InN, InGaN, GaAsBi. Įvertinti įvairiuose bandiniuose krūvininkų rekombinacijos ir difuzijos procesų ypatumus bei nustatyti jų parametrus plačiame nepusiausvirųjų krūvininkų tankių (10¹⁸–10²⁰ cm⁻³) ir bandinio temperatūrų (10–300 K) intervale, siekiant surasti optimalius medžiagų fotoelektrinius parametrus galimiems taikymams. Siekiant šio tikslo buvo suformuluoti tokie **darbo uždaviniai**:

- InN bandiniuose su skirtingu pusiausvirųjų elektronų tankiu įvertinti nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento vertes skirtingomis eksperimento sąlygomis (zonduojančio pluoštelio bangos ilgis, sužadinimo intensyvumas, bandinio temperatūra). Skaitmeniškai modeliuojant eksperimentines kreives nustatyti dominuojančius krūvininkų rekombinacijos ir sklaidos mechanizmus.
- InGaN sluoksniuose bei InGaN daugybiniuose kvantiniuose lakštuose 2. su skirtingu In kiekiu ištirti krūvininkų lokalizacijos itaka rekombinacijos spartai ir difuzijos procesams bei nespindulinės ir spindulinės rekombinacijos procesų konkurencija įvairiose spektro srityse. Tuo tikslu išmatuoti nepusiausviruju krūvininku rekombinacijos spartos priklausomybes nuo ju tankio ir temperatūros skirtingos krūvininkų injekcijos sąlygomis. Skaitmeninio modeliavimo būdu nustatyti dominuojančius krūvininkų rekombinacijos mechanizmus ir ju koeficientus.
- Dinaminių gardelių (DG) metodu ištirti nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką GaAsBi bandiniuose su skirtingu Bi kiekiu ir įvertinti Bi kiekio įtaką krūvininkų rekombinacijos spartai ir nepusiausvirųjų skylių difuzijos koeficiento vertėms.

Darbo naujumas

- Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos tyrimams InN sluoksniuose panaudotas laisvakrūvės sugerties metodas, kai sužadinta medžiaga zonduojama pluošteliu, kurio kvanto energija yra mažesnė už InN draustinių energijų juostos tarpą. Remiantis šių tyrimų rezultatais pasiūlytas naujas nespindulinės krūvininkų rekombinacijos mechanizmas stipriai sužadintame InN – gaudyklių įtakota Ožė rekombinacija.
- Išmatuotos krūvininkų gyvavimo trukmės τ ir difuzijos koeficiento D priklausomybės nuo In kiekio bandinyje, bandinio temperatūros ir krūvininkų tankio InGaN sluoksniuose ir kvantinėse sandarose. Nustatyta fotosužadintų krūvininkų delolakizacijos sąlygota koreliacija tarp D ir τ verčių bei skaitmeninio modeliavimo metodu įvertinti spindulinės ir nespindulinės rekombinacijos parametrai.
- Optiniais metodais GaAsBi nustatytos nepusiausvirųjų skylių difuzijos koeficiento vertės ir rekombinacijos spartos priklausomybės nuo bandinio temperatūros ir Bi kiekio bandinyje.

Ginamieji teiginiai

- Laisvakrūvės sugerties kinetikos InN optinio skaidrumo spetrinėje srityje ir difrakcijos efektyvumo kinetikos nėra įtakojamos krūvininkų persiskirstymo tarp būsenų laidumo/valentinėje juostose ir leidžia nustatyti nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmes InN bei jų priklausomybes nuo injektuotų krūvininkų tankio.
- 2. MBE būdu užaugintuose InN sluoksniuose su pusiausvirųjų krūvininkų tankiu $n_0=(1,4-4,7)\times10^{18}$ cm⁻³ dominuojantis nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos mechanizmas kambario temperatūroje yra gaudyklių įtakota Ožė rekombinacija.
- MOCVD būdu užaugintame In_{0.13}Ga_{0.87}N sluoksnyje nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos spartos augimą mažėjant bandinio

temperatūrai (295 K–100 K) ir didėjant žadinančios energijos tankiui lemia spindulinė rekombinacija (nustatytas koeficientas $B_{T=300K}=7\times10^{-11}$ cm³/s).

- Krūvininkų rekombinacijos spartos didėjimą MOCVD būdu užaugintuose In_xGa_{1-x}N kvantiniuose lakštuose (0,16>x>0,034) stipraus sužadinimo sąlygomis lemia ne tik spindulinė rekombinacija, bet ir išaugusi nespindulinės rekombinacijos sparta.
- 5. Bi atomų sąlygota nepusiausvirųjų skylių lokalizacija $GaAs_{1-x}Bi_x$ sluoksniuose su skirtingu Bi kiekiu (0,025<x<0,063) lemia nepusiausvirųjų skylių judrio sumažėjmą kambario temperatūroje daugiau nei 10 kartų (iki 10–20 cm²/(V·s)), lyginant su GaAs.

Disertacijos planas

Disertacija yra sudaryta iš penkių skyrių, suskirstytų į smulkesnius poskyrius. Kiekvieno skyriaus pradžioje yra apžvelgiami aktualūs tyrimai ir problemos. Skyrių pagrindiniai rezultatai ir išvados yra pateikiamos kiekvieno skyriaus gale. Visos disertacijos išvados yra pateikiamos disertacijos pabaigoje prieš cituojamos literatūros sąrašą. Bendras visuose skyriuose cituotos literatūros sąrašas yra pateikiamas darbo pabaigoje. Disertacijos pradžioje yra disertanto kartu su bendraautoriais publikuotų mokslinių straipsnių sąrašas (tiek įtrauktų, tiek neįtrauktų į disertaciją).

Pirmas šio darbo **skyrius** yra skiriamas nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos ypatumų stipriai sužadintuose tiesiatarpiuose puslaidininkiuose apžvalgai.

Antras skyrius, sudarytas iš trijų poskyrių, yra skirtas darbe naudojamų sužadinimo–zondavimo metodikų apžvalgai ir supažindinimui su skaitmeninio modeliavimo algoritmu.

Trečiame šio darbo skyriuje yra pateikiami InN sluoksnių su skirtingu pusiausvirųjų krūvininkų tankiu tyrimų rezultatai naudojant SP ir DG metodikas. Pateikiami SP signalo gesimo trukmių kitimo rezultatai keičiant zonduojančio pluoštelio bangos ilgį ir sužadinimo energijos tankį. Skaitmeniškai analizuojamos DG metodika išmatuotos difrakcijos efektyvumo kinetikos ir pateikiamos įvertintos netiesinės krūvininkų rekombinacijos koeficiento vertės. Šio skyriaus rezultatai yra publikuoti darbuose [P2–P5, P8].

Ketvirtas disertacijos **skyrius**, sudarytas iš trijų poskyrių, yra skirtas InGaN sluoksnių ir kvantinių sandarų su skirtingu In kiekiu tyrimų rezultatams naudojant SP ir DG metodikas. Pateikiama difrakcijos efektyvumo kinetiku gesimo trukmės analizė esant skirtingoms žadinančios energijos tankio vertėms bandinio temperatūroms. Aptariamos nepusiausvirujų krūvininku ir rekombinacijos ypatybės InGaN sluoksnyje su 13% bei skaitmeninė jų analizė. Pateikiama krūvininkų difuzijos koeficiento ir gyvavimo trukmės verčių kitimo tendencijos skirtingiems nepusiausvirujų esant krūvininku tankiams InGaN/GaN MQW ir tyrimų rezultatai naudojant SP metodiką. Šio skyriaus rezultatai yra publikuoti darbuose [P1] ir [P7].

Penktame skyriuje yra pateikiami GaAsBi sluoksnių su skirtingu Bi kiekiu tyrimų rezultatai naudojant DG metodiką. Apžvelgiama skirtingose bandinio temperatūrose įvertintų nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento verčių priklausomybė nuo bandinio temperatūros ir skaitmeninė jų analizė. Šio skyriaus rezultatai yra publikuoti darbe [P6].

Autoriaus indėlis

Disertacijos autorius atliko visus darbe pateikiamus sugerties spektrų matavimus, eksperimentus DG metodika ir daugumą eksperimentų SP metodika (InGaN MQW SP matavimus atliko dr. Ramūnas Aleksiejūnas) bei atliko jų skaitmeninę analizę. Autorius taip pat dalyvavo rengiant visas bendras mokslines publikacijas ir konferencijos pranešimus, bei buvo dalies jų pagrindinis autorius.

Publikacijų sąrašas

Publikacijos, įtrauktos į disertaciją:

- P1. S. Nargelas, T. Malinauskas, K. Jarašiūnas, E. Dimakis, A. Georgakilas, "Investigation of optical nonlinearities and carrier dynamics in In–rich InGaN alloys", Acta Physica Polonica A, 113, 839–843 (2008).
- P2. S. Nargelas, T. Malinauskas, A. Kadys, E. Dimakis, T.D. Moustakas, K. Jarašiūnas, "Nonlinear carrier recombination and transport features in highly excited InN layer", Phys. Stat. Solidi C, 6, S735–S738 (2009).
- P3. S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, K. Jarašiūnas, M. Vengris, "Light induced bleaching and absorption kinetics in highly excited InN layers", Phys. Stat. Solidi C, 6, 2632–2634 (2009).
- P4. S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, M. Vengris, T. Malinauskas, K. Jarašiūnas, E. Dimakis, "Dynamics of free carrier aborption in InN layers", Apl. Phys. Lett., 95, 162103 (2009).
- P5. S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, M. Vengris, K. Jarašiūnas, "Carrier relaxation Dynamics in InN investigated by femtosecond pump-probe technique", Phys. Stat. Solidi C, 7, 1853–1855 (2010).
- P6. S. Nargelas, K. Jarašiūnas, K. Bertulis, V. Pačebutas, "Hole diffusivity in GaAsBi alloys measured by picosecond transient grating technique", Apl. Phys. Lett., 98, 082115 (2011).
- P7. T. Malinauskas, A. Kadys, T. Grinys, S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, S. Miasojedovas, J. Mickevičius, R. Tomašiūnas, K. Jarašiūnas, M. Vengris, S. Okur, V. Avrutin, X. Li, F. Zhang, U. Ozgur, H. Morkoc, "Impact of carrier localization, recombination, and diffusivity on excited state dynamics in InGaN/GaN Quantum wells", Gallium Nitride Materials and Devices VII, Proc. of SPIEE, 8262, 82621S (2012).
- P8. K. Jarašiūnas, R. Aleksiejūnas, T. Malinauskas, S. Nargelas, P. Ščajev, "Nonlinear optical technicues for characterization of wide bandgap semiconductor electronic properties: III–nitrides, SiC and diamonds", MRS Proceedings, 1396, 147–158 (2012).

Publikacijos, neįtrauktos į disertaciją:

- P9. R. Aleksiejūnas, M. Azize, Z. Bougrioua, T. Malinauskas, S. Nargelas, K. Jarašiūnas, "Carrier Dynamics in Fe-doped GaN epilayers", Phys. Stat. Solidi C, 6, S723–S726 (2009).
- P10. K. Jarašiūnas, T. Malinauskas, S. Nargelas, V. Gudelis, J.V. Vaitkus, V. Soukhoveev, A. Usikov, "Layer thickness dependent carrier recombination rate in HVPE GaN", Phys. Stat. Solidi B, 247, 1703– 1706 (2010).
- P11. R. Aleksiejūnas, S. Krotkus, S. Nargelas, S. Miasojedovas, S. Juršėnas, "Impact of doping on carrier recombination and stimulated emission in highly excited GaN:Mg", Physica B – Condensed Matter, 406, 2990– 2993 (2011).

Konferencijų pranešimai disertacijos tema:

- K.1 S. Nargelas, T. Malinauskas, K. Jarasiunas, E. Dimakis, and A. Georgakilas, "Investigation of optical nonlinearities and carrier dynamics in In-rich InGaN alloys", International Symposium on Ultrafast Phenomena in Semiconductors (UFPS-13), August 26–29, 2007, Vilnius, Lithuania. (žodinis pranešimas)
- K.2 S. Nargelas, T. Malinauskas, A. Kadys, E. Dimakis, T.D. Moustakas, and K. Jarasiunas, "Nonlinear carrier recombination and transport features in highly excited InN layer", International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN2008), October 6–10, 2008, Montreux, Switzerland. (žodinis pranešimas)
- K.3 S. Nargelas, T. Malinauskas, A. Kadys, K. Jarašiūnas, M. Vengris, E. Dimakis, T.D. Moustakas, "Investigation of optical nonlinearities in InN layers by using time-resolved differential transmission and light-induced transient grating techniques", European Materials Research Society (E-MRS) Fall Meeting, September 14–18, Warsaw, Poland. (stendinis pranešimas)
- K.4 S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, M. Vengris, K. Jarašiūnas, "Carrier recombination in InN investigated by femtosecond pump-probe technique", 8th International Concefernce on Nitride Semiconductors (ICNS-8), October 18–23, 2009, Jeju Island, Republic of Korea. (stendinis pranešimas)

- K.5 S. Nargelas, R. Aleksiejūnas, K. Jarašiūnas, M. Vengris, "Nonlinear carrier recombination in highly excited InN layers", 15th Semiconducting and Insulating Materials Conference (SIMC-XV), June 15–19, 2009, Vilnius, Lithuania. (stendinis pranešimas)
- K.6 K. Jarašiūnas, T. Malinauskas, R. Aleksiejūnas, A. Kadys, S. Nargelas,
 V. Gudelis, *"Innovative Time-Resolved Optical Characterization Techniques for Monitoring of Carrier Dynamics in Wide Band Gap Semiconductors*", 52nd Electronic Materials Conference, June 23–25, 2010, Notre Dame, Indiana, USA. (žodinis pranešimas)
- K.7 S. Nargelas, K. Jarasiunas, V. Pačebutas, "Optical diagnostics of GaBiAs/GaAs heterostructures with varying Bi content", 10th Expert Evaluation & Control of Compound Semiconductor Materials & Technologies, May 19–21, 2010, Darmstadt, Germany. (žodinis pranešimas)
- K.8 T. Malinauskas, A. Kadys, T. Grinys, S. Nargelas, S. Miasojedovas,
 K. Jarašiūnas, J. Mickevičius, R. Tomašiūnas, "Optical studies of carrier dynamics in InGaN/GaN MQWs with different In content", 9th International Concefernce on Nitride Semiconductors (ICNS-9), July 10–15, Glasgow, Scotland. (stendinis pranešimas)
- K.9 T. Malinauskas, A. Kadys, T. Grinys, S. Nargelas, S. Miasojedovas, K. Jarašiūnas, J. Mickevičius, R. Tomašiūnas, *"Recombination and diffusion of carriers in strained InGaN/GaN MQWs with different In content*", Advanced Optical Materials and Devices (AOMD-7), August 28–31, 2011, Vilnius, Lithuania. (žodinis pranešimas)
- K.10 T. Malinauskas, A. Kadys, T. Grinys, S. Nargelas, S. Miasojedovas, K. Jarašiūnas, J. Mickevičius, R. Tomašiūnas, "Poliarizacinių laukų ir lokalizacijos įtaka nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikai InGaN/GaN kvantiniuose lakštuose su skirtingu In kiekiu", 39–oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, Spalio 6–8 d., Vilnius, Lietuva. (žodinis pranešimas)
- K.11 S. Nargelas, A. Kadys, K. Jarašiūnas, K. Bertulis, V. Pačebutas, E. Dimakis, T. Malinauskas, *"Investigation of carrier recombination* and diffusion in III generation photovoltaic materials", Next Generation Solar Energy From Fundamentals to Applications, December 12–14, 2011, Erlangen, Germany. (stendinis pranešimas)
- K.12 K. Jarašiūnas, R. Aleksiejūnas, S. Nargelas, T Malinauskas,
 S. Miasojedovas, A. Kadys, S. Okur, X. Li, Ü. Özgür, H. Morkoç,
 O. Tuna, M. Heuken, "On injection-activated defect recombination in

InGaN layers", 9th International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices, July 22–27, 2012, Berlin, Germany. (žodinis pranešimas)

- K.13 R. Aleksiejūnas, P. Ščajev, S. Nargelas, T. Malinauskas, A. Kadys, K. Jarašiūnas, *"Impact of diffusivity to carrier recombination ratein nitride semiconductors: from bulk GaN to(In,Ga)N quantum wells*", International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, 14–19 October, 2012, Sapporo, Japan. (žodinis pranešimas)
- K.14 S. Nargelas, K. Jarašiūnas, M. Vengris, T. Yamaguchi, Y. Nanishi, *"Injection-activated defect-governed recombination rate in InN"*, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, 14–19 October, 2012, Sapporo, Japan. (stendinis pranešimas)

1. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos ypatumai stipriai sužadintuose tiesiatarpiuose puslaidininkiuose

Puslaidininkyje sužadinus nepusiausviruosius krūvininkus jie gali rekombinuoti nespinduliniu ar spinduliniu būdu, taip pat dėl tankio gradiento difunduoti tolyn nuo sužadintos srities. Šiame skyriuje apžvelgsime nepusiausvirųjų krūvininkų spindulinius ir nespindulinius rekombinacijos mechanizmus taip pat krūvininkų difuziją kai nėra pridėto išorinio elektrinio lauko.





Elektrono ir skylės rekombinacijos metu išnyksta abu krūvininkai – elektronas vieno ar kelių energetinių šuolių metu užima laisvą skylei priskiriamą vietą. Tokio proceso metu yra išlaisvinama energija lygi pradinės ir galutinės elektrono būsenos energijų skirtumui. Pagal tai kokiu būdu ši energija išsiskiria galime suklasifikuoti rekombinacijos procesus. Spindulinės rekombinacijos atveju energija bus išspinduliuota fotono pavidalu. Shockley-Read-Hall (SRH) rekombinacijos atveju energija išsiskirs vieno ar kelių fononų pavidalu. Ožė (*angl. Auger*) rekombinacijos atveju ši energija bus perduota kitam krūvininkui, kuris užims aukštesnės energijos būseną juostoje. Išvardinti rekombinacijos mechanizmai schematiškai pavaizduoti 1.1 paveiksle.

17

SRH rekombinacijos modelis aprašo elektrono-skylės poros gyvavimo trukmę, kai jie rekombinuoja per gaudyklės lygmenį $E_{\rm T}$. Lygmuo gali atsirasti dėl priemaišinių atomų ar kristalo gardelės netobulumų (dislokacijos, taškiniai defektai). Iš pradžių elektronas iš laidumo juostos peršoka į gaudyklės lygmenį, o vėliau nušokęs į valentinę juostą rekombinuoja su skyle (analogiškai galima pritaikyti ir skylėms) [1]. SRH rekombinacijos sparta išreiškiama:

$$R_{SRH} = \frac{pn - n_i^2}{p + n + 2n_i \cdot \cosh\left(\frac{E_T - E_F}{k_B T}\right)} N_T v_{th} \sigma, \qquad (1.1)$$

kur $E_{\rm T}$ ir $E_{\rm F}$ yra gaudyklės ir puslaidininkio Fermi energijos, p ir n – atitinkamai skylių ir elektronų tankiai, $v_{th} = \sqrt{\frac{8k_BT}{\pi m^*}}$ – terminis greitis, k_B – universalioji Boltomano konstanta, σ – krūvininkų sugerties skerspjūvis į gaudyklę (šuolio per sekundę iš juostos lygmens E į lygmenį $E_{\rm T}$ tikimybė). Šalutinių krūvininkų atveju (1.1) galima supaprastinti:

$$R_n = \frac{n - n_0}{\tau_n} \text{ kai } p \gg n, \qquad (1.2)$$

$$R_p = \frac{p - p_0}{\tau_p} \text{ kai } n \gg p, \qquad (1.3)$$

kur

$$\tau_n = \tau_p = \frac{1}{N_T v_{th} \sigma} \,. \tag{1.4}$$

Kai nepusiausvirieji krūvininkai kuriami optiškai ir galime laikyti, kad $\Delta n \sim \Delta p \sim \Delta N$ (šio darbo eksperimentuose pastaroji išraiška galioja daugumoje atvejų), tada pagal SRH rekombinacijos modelį gyvavimo trukmės išraiška bus [1]:

$$\tau = \frac{\tau_p \left(n_0 + n_1 + \Delta N \right) + \tau_n \left(p_0 + p_1 + \Delta N \right)}{n_0 + p_0 + \Delta N},$$
(1.5)

kur τ_n ir τ_p pagal (1.4), p_0 ir n_0 – atitinkamai pusiausvirųjų skylių ir elektronų tankis, $n_1 = N_L \exp\left(\frac{E_T - E_L}{k_BT}\right)$ – elektronų tankis laidumo juostoje, kai Fermi lygmuo lygus E_T , $p_1 = N_V \exp\left(\frac{E_V - E_T}{k_BT}\right)$ – skylių tankis valentinėje juostoje, kai Fermi lygmuo lygus E_T . Matome, kad kuo gaudyklės lygmuo arčiau energijos tarpo vidurio tuo spartesnė rekombinacija, kadangi ir elektronai ir skylės gaudomi panašiu greičiu.

Atskiras SRH rekombinacijos atvejis yra paviršinė krūvininkų rekombinacija. Kadangi kristalo paviršius pats savaime yra defektas (daug nutrūkusių atominių ryšių) jo paviršiuje gali susidaryti pakankamai didelis paviršinių lygmenų, veikiančių kaip krūvininkų rekombinacijos centrai, tankis, kuris įtakoja bendrą krūvininkų gyvavimo trukmę. Taip pat paviršiuose ir sandūrose įprastai būna didesnis priemaišinių atomų tankis, nes jie būna atviri gamybiniame procese. Paviršinės rekombinacijos spartą esant tolygiam krūvininkų tankiui apytiksliai galima išreikšti [2]:

$$\frac{1}{\tau_s} = \left(\frac{d_s}{2S} + \left(\frac{d_s}{\pi}\right)^2 D\right)^{-1},\tag{1.6}$$

kur S – paviršinės rekombinacijos koeficientas, D – difuzijos koeficientas, $d_s=2d$ (d – sluoksnio storis) kai paviršinė rekombinacija vyksta prie vieno paviršiaus, ir $d_s=d$ kai prie abiejų ir vienoda. Dažniausiai paviršinė rekombinacija įvertinama skaitmeniškai sprendžiant diferencinę krūvio tolydumo lygtį, kur paviršinė rekombinacija įskaitoma per pradines sąlygas.

Spindulinės (arba juosta–juosta) rekombinacijos atveju elektronas rekombinuoja su skyle šokdamas iš laidumo juostos į valentinę juostą, o perteklinė energija išspinduliuojama fotono pavidalu. Spindulinės rekombinacijos sparta priklauso nuo abiejų krūvininkų tipų tankio, o rekombinacijos sparta išreiškiama [2]:

$$\boldsymbol{R}_{spind} = \boldsymbol{B} \left(\boldsymbol{n} \boldsymbol{p} - \boldsymbol{n}_i^2 \right), \tag{1.7}$$

kur *B* yra spindulinės rekombinacijos koeficientas, n_i – pusiausvirųjų krūvininkų tankis. Spindulinės rekombinacijos koeficiento vertė puslaidininkiuose yra proporcinga bandinio temperatūrai laipsnine priklausomybe $B \propto T^{-3/2}$, t.y. kinta pagal Lasher–Stern dėsnį [3].

Juosta-juosta Ožė rekombinacijos atveju elektronas rekombinuoja su skyle šokdamas iš laidumo juostos į valentinę juostą, tačiau šiuo atveju išsiskyrusi energija bus perduota kitam krūvininkui ir jis užims aukštesnės energijos būseną juostoje. Tokiam rekombinacijos procesui reikalingos trys dalelės (2 elektronai ir 1 skylė ar atvirkščiai). Ožė rekombinacijos spartos išraiška panaši į spindulinės rekombinacijos, tačiau yra papildomai įskaitomas krūvininkų gaunančių perteklinę energiją tankis:

$$R_{O\dot{z}\dot{e}} = C_n n \left(np - n_i^2 \right) + C_p p (np - n_i^2), \qquad (1.8)$$

kur C_n ir C_p yra Ožė rekombinacijos koeficientai atitinkamai elektronams ir skylėms.

Gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos atveju elektronas (skylė) rekombinuoja per gaudyklę, o išsiskyrusi energija perduodama kitam krūvininkui, kuris užima aukštesnės energijos būseną juostoje. Gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos sparta tokia pati kaip spindulinės rekombinacijos atveju (nors procesui ir reikalingos trys dalelės, tačiau gaudyklių tankis dažniausiai nekinta) [4]:

$$R_{TAAR} = C_{TAAR} \cdot N_T \cdot np = B_{TAAR} \cdot np, \qquad (1.9)$$

kur C_{TAAR} – gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos koeficientas, N_T – rekombinacijoje dalyvaujančių gaudyklių tankis. Dažnai yra stebima kartu vykstančios spindulinė ir gaudyklių įtakota Ožė rekombinacijos. Tada krūvininkų rekombinacijos spartą nusakys efektinis rekombinacijos koeficientas:

$$B_{ef} = B_{TAAR} + B_{spind} . (1.10)$$

Puslaidininkyje susidarius laidumo ir/ar valentinės juostos moduliacijai, pavyzdžiui dėl erdvinio krūvio aplink dislokacijas [5] ar netolygaus įterptinių atomų pasiskirstymo daugianariame junginyje [6, 7] (žiūr. 1.2 paveikslą), dėl nepusiausvirųjų krūvininkų lokalizacijos gali būti stebima jų gyvavimo trukmės, difuzijos koeficiento vertės, PL signalo intensyvumo ar smailės padėties priklausomybė nuo temperatūros. Krūvininkų rekombinacijos spartos ar PL signalo intensyvumo priklausomybė nuo temperatūros tokiu atveju dažniausiai gali būti aprašoma Arenijaus lygtimi (angl. *Arrhenius equation*):

$$R = A \cdot \exp\left[-\frac{\Delta E}{k_B T}\right] + R_0, \qquad (1.11)$$





b)

a)

Puslaidininkio 1.2 paveikslas. E_g fliuktuacijos, susidarančios dėl a) netolygaus iterptinių atomų pasiskirstymo daugianariame junginyje, b) dėl erdvinio krūvio aplink dislokacijas.

kur R – spartos konstanta, A – amplitudė, ΔE – aktyvacijos energija, k_R universalioji _ Bolcmano konstanta, T temperatūra, R_0 – pastovioji spartos konstantos dalis. Tokiu būdu galima ivertinti potencialo fliuktuacijų, kurios įtakoja nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką, vertę. Įprastu atveju, kai nepasireiškia krūvininkų lokalizacija, PL eksperimentuose stebima PL spektro smailės padėties priklausomybė nuo temperatūros

aprašoma Varšni (angl. *Varshni*) formule. Nepusiausvirųjų krūvininkų lokalizacijos atveju, PL eksperimentuose stebima S-formos PL spektro smailės padėties priklausomybė nuo temperatūros, o jai aprašyti nebeužtenka vien Varšni lygties ir reikia įskaityti krūvininkų lokalizaciją [8].

Esant nepusiausvirųjų krūvininkų tankio gradientui erdvėje jie difunduoja į mažesnio tankio sritis. Difuzijos procesui aprašyti naudojamas difuzijos koeficientas D yra susietas su krūvininkų judriu μ per Einšteino sąryšį:

$$D = \frac{k_B T}{e} \mu \,, \tag{1.12}$$

kur k_B – Boltemano konstanta, e – elementarusis krūvis.

Krūvininkų judris randamas iš krūvininkų dreifo greičio v_d priklausomybės nuo pridėto elektrinio lauko *E*, $v_d = \mu |E|$. Judrio išraiška būtų tokia:

$$\mu = \frac{e}{m^*} \langle \tau \rangle, \qquad (1.13)$$

kur m^* – laidumo krūvininko efektinė masė (skylės ar elektrono), τ – impulso relaksacijos trukmė, kuri priklauso nuo temperatūros ir yra skirtinga veikiant skirtingiems sklaidos mechanizmams. Pagrindiniai krūvininkų sklaidos mechanizmai: sklaida fononais, elektron-skylinė sklaida, sklaida priemaišomis (neutraliomis, jonizuotomis), sklaida dislokacijomis. Dominuoja tas sklaidos mechanizmas, kuris sąlygoja mažiausią judrumą.

Atsiradus nepusiausvirųjų krūvininkų tankio gradientui elektronai, dažniausiai dėl didesnio jų judrio, difunduoja greičiau nei skylės. Toks krūvio persiskirstymas tarp greit judančių elektronų ir lėtai judančių skylių sukuria taip vadinamą Demberio lauką, kuris neleidžia atsiskirti priešingo ženklo krūvininkams ir suriša juos į bipolinį judėjimą su difuzijos koeficientu D_a :

$$D_a = \frac{n+p}{\frac{n}{D_h} + \frac{p}{D_e}},\tag{1.14}$$

kur D_e ir D_h – difuzijos koeficientas atitinkamai elektronams ir skylėms.

Jei nepusiausvirųjų krūvininkų koncentracijos vienodos n=p, tada (1.14) pavirsta į:

$$D_{a} = \frac{2D_{e}D_{h}}{D_{e} + D_{h}}.$$
 (1.15)

Jei $n \ll p$, tada $D_a \approx 2D_e$; jei $n \gg p$, tada $D_a \approx 2D_h$. Matome, kad bipolinės difuzijos koeficientas yra lemiamas šalutinių krūvininkų.

Esant dideliems nepusiausvirųjų krūvininkų tankiams (kada reikia įskaityti Pauli draudimo principą) norint įvertinti difuzijos koeficiento vertę reikia naudoti bendrąjį Einšteino sąryšį [9]:

$$D(N) = \frac{\mu k_B T}{e} \frac{F_{1/2}(\eta)}{F_{-1/2}(\eta)},$$
(1.16)

kur $F(\eta)$ yra Fermi integralai, o $\eta = \frac{(E_F - E_C)}{k_B T}$. [10] darbe parodoma, kad atliekant skaitmeninį krūvininkų dinamikos modeliavimą ir norint supaprastinti skaičiavimus (1.16) išraišką galima pakeisti Teiloro eilute:

$$D(N) = D_0(1 + N / N^*), \qquad (1.17)$$

kur D_0 – difuzijos koeficientas esant mažiems nepusiausvirųjų krūvininkų tankiams, N^* – krūvininkų tankio vertė, kada difuzijos koeficiento vertė dėl Fermi slėgio pasidaro dvigubai didesnė už D_0 . Tokiu atveju laikoma kad krūvininkų judris nepriklauso nuo krūvininkų tankio, o difuzijos koeficiento vertė kinta dėl puslaidininkio išsigimimo.

2. Krūvininkų dinamikos tyrimų metodikos su laikine skyra

Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimams puslaidininkiuose plačiai naudojamos optinės sužadinimo-zondavimo metodikos su laikine skyra. Tiriama medžiaga apšviečiama trumpu lazerio impulsu ir pakeičiamos jos savybės. Pakeistųjų savybių (pvz. lūžio rodiklio n, sugerties koeficiento α , atspindžio koeficiento R) atsistatymas stebimas kitu lazerio pluošteliu. Laikinę skyra galima pasiekti signalo gesima registruojant greito atsako fotodetektoriumi ir oscilografu ar naudojant fotochronografa (angl. STREAK camera). Tokių metodų laikinę skyrą lemia detektoriaus atsako greitis ir gali siekti iki kelių dešimčių pikosekundžių. Kitas būdas išmatuoti signalo gesimą laike yra keičiant zonduojančio pluoštelio optinį kelią, t.y. jį leidžiant per optomechaninę vėlinimo liniją (kadangi šviesos greitis $c \approx 3 \times 10^8$ m/s, zondo užvėlinimas 1 mm erdvėje atitinka ~3 ps vėlinimą laike). Tokiais metodais didžiausia pasiekiama laikinė skyra atitinka naudojamo lazerio impulso trukmę ir siekia šimtus femtosekundžių.

Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimams šiame darbe mes panaudojome skirtuminio pralaidumo (SP) ir šviesa indukuotų dinaminių gardelių (DG) metodikas. Šių optinės diagnostikos su laikine skyra metodikų privalumai: i) bekontaktės ir neardančios (daugumos naujų medžiagų problema yra geri ominiai kontaktai), ii) jautris (DG metodikoje signalas yra matuojamas tamsiame lauke), iii) galima atskirti krūvininkų difuzijos ir rekombinacijos procesus (varijuojant dinaminės gardelės periodą DG metodikoje), iv) galimas nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimas tiek pačiame bandinio paviršiuje, tiek ir tūryje, v) galima pritaikyti įvairioms puslaidininkinėms medžiagoms (nuo stipriai legiruotų iki didžiavaržių kristalų ar su silpna spinduline išeiga), taip pat galimos įvairios eksperimento sąlygos (skirtinga bandinio temperatūra, nepusiausvirųjų krūvininkų tankis, žadinančios spinduliuotės bangos ilgis). Kadangi DG metodikoje nepusiausvirųjų krūvininkų tankis yra erdviškai moduliuojamas, be jau išvardintų DG metodikos privalumų, šiuo metodu galima tirti ne tik lokalius procesus, bet ir sužadintų sričių dinamiką – įvertinti šilumos difuzijos koeficiento vertę ar garso greitį tiriamoje medžiagoje.

Šiame skyriuje bus plačiau apžvelgiamos skirtuminio pralaidumo ir šviesa indukuotų dinaminių gardelių metodikos bei darbe naudoto nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos skaitmeninio modeliavimo metodas.

2.1 Skirtuminio pralaidumo metodika

SP eksperimento principinė schema pavaizduota 2.1 paveiksle. Nepusiausvirieji krūvininkai kuriami šviesos impulsais, kurie yra sugeriami tiriamoje medžiagoje. Dažniausiai pasitaikantis atvejis yra tarpjuostiniai šuoliai, tačiau taip pat galima nepusiausvirųjų krūvininkų generacija iš priemaišinių lygmenų ar kelių fotonų sugertimi. SP metodikos išsamus



aprašymas pateikiamas [11, 12] darbuose. Eksperimentų metu yra registruojama praėjusio zonduojančio pluoštelio intensyvumo santykinio

2.1 paveikslas. Žadinimo-zondavimo metodikos principinė schema.

pokyčio $T(t)/T_0$ priklausomybė nuo zondo vėlinimo. Norint zonduoti kuo vienodesnį krūvininkų tankį naudojamo zonduojančio pluoštelio diametras turėtų būti bent du kartus mažesnis už žadinančio pluoštelio diametrą. Šio darbo eksperimentuose buvo tyrinėjamas santykinis sugerties koeficiento α pokytis zonduojančiam pluošteliui:

$$T(t) = T_0 \cdot \exp[-\alpha(hv, t) \cdot d] \quad \to \qquad \alpha(hv, t) \cdot d = -\ln\left[\frac{T(t)}{T_0}\right], \tag{2.1}$$

kur T(t) – bandinio pralaidumas sužadinus, T_0 – bandinio pralaidumas be žadinimo, d – bandinio storis.



2.2 paveikslas. Skirtuminio pralaidumo eksperimento schema. V1–V4 – dielektriniai veidrodžiai, PV1–PV2 – paraboliniai veidrodžiai, L1–L4 – kvarciniai lęšiai, P1 – pertraukiklis (angl. *chopper*), VL1 – opto-mechaninė vėlinimo linija, BBO - β-BBO netiesinis kristalas, PD1 – Si fotodetektorius.

SP metodika stebimas signalo gesimas lemiamas nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos. Matuojama charakteringa signalo gesimo trukme τ laikomas laiko tarpas per kurį signalas sumažėja 1/*e* karto.

InN SP tyrimuose naudota eksperimento schema pavaizduota 2.2 paveiksle. Femtosekundinis Ti:safyro lazeris (*SuperSpitfire, Spectraphysics*) 1 kHz dažniu generuojantis 800 nm bangos ilgio, ~1 mJ energijos, ~120 fs trukmės impulsus buvo naudojamas kaupinti du optinius parametrinius stiprintuvus (*TOPAS, Šviesos Konversija*). Jų generuojamų impulsų bangos ilgį galima tolydžiai keisti 1200–2500 nm intervale (naudojant papildomus dažnių maišytuvus šis intervalas išplečiamas nuo 190 nm iki 20 μ m). Vieno *TOPAS* generuojamas pluoštelis buvo naudojamas kaip žadinantis, o kito *TOPAS* spinduliuotė buvo praleidžiama per opto-mechaninę vėlinimo liniją ir naudojama kaip zondas. Abu pluošteliai paraboliniais veidrodžiais buvo fokusuojami ties bandinio paviršiumi, o jų persiklojimas erdvėje pasiekiamas naudojant precizinius *x*–*y* pozicionavimo laikiklius. Į bandinį krintančių pluoštelių erdvinė forma ir energija buvo registruojami CCD kamera ir energijos matuokliu. Per bandinį praėjusio zonduojančio pluoštelio intensyvumas buvo registruojamas Si fotodetektoriumi. Kadangi standartinio Si fotodetektoriaus ribinis registruojamas šviesos bangos ilgis yra ~1100 nm, tad didesnių bangos ilgių intervale registruodavome per β -BBO kristalą praėjusio zonduojančio pluoštelio antrą harmoniką.

InGaN kvantinių sandarų SP tyrimuose, kai zonduojama baltos šviesos kontinuumu, naudota eksperimento schema pavaizduota 2.3 paveiksle. Schema analogiška pateiktai 2.2 paveiksle tik vietoje vieno optinio parametrinio stiprintuvo naudojamas CaF₂ langelis baltos šviesos kontinuumui generuoti, kuriuo zonduojamas tiriamas bandinys. Pro monochromatorių praėjęs zonduojantis pluoštelis registruojamas CCD kamera.



2.3 paveikslas. Skirtuminio pralaidumo eksperimento schema kai zonduojama su baltos šviesos kontinuumu. V1–V4 – dielektriniai veidrodžiai, PV1–PV2 – paraboliniai veidrodžiai, L1–L4 – kvarciniai lęšiai, P1 – pertraukiklis, VL1 – opto-mechaninė vėlinimo linija, $CaF_2 - CaF_2$ langelis, CCD – CCD kamera.

Abiem atvejais duomenys renkami naudojant laboratorinę *National Instruments* duomenų surinkimo plokštę ir siunčiami į kompiuterį, kuriame veikianti *LabView* programinė įranga valdo eksperimentą. Sukaupti eksperimentinių duomenų masyvai apdorojami programine įranga *MatLAB* parašytais algoritmais.

2.2 Šviesa indukuotų dinaminių gardelių metodika

Šviesa indukuotų dinaminių gardelių (DG) metodika yra viena iš daugelio sužadinimo–zondavimo metodikų. Jos išskirtinumas yra tai, kad tiriamoji medžiaga paveikiama ne vienu šviesos pluošteliu (pvz. SP metodika), o dviejų šviesos pluoštelių interferenciniu lauku. Eksperimentuose registruojama trečio (zonduojančio) pluoštelio difrakcija nuo sukurtos dinaminės gardelės.

Dinaminei gardelei užrašyti naudojami du TEM₀₀ šviesos pluošteliai, kurių bangos frontas artimas idealiai plokščiai bangai (2.4 paveikslas). Pluošteliams interferuojant tiriamo bandinio paviršiuje susidaro periodinis šviesos intensyvumo pasiskirstymas:

$$I(x) = I_0(1 + m \cdot \cos[K_g \cdot x]), \qquad (2.2)$$

kur $I_0=I_1+I_2$ yra suminis žadinančių spindulių intensyvumas, $m = \frac{2\sqrt{I_1 \cdot I_2}}{I_1 + I_2}$ –

moduliacijos gylis, $K_g = \frac{2\pi}{\Lambda}$ – gardelės vektorius. Λ yra gardelės periodas, kurį galima keisti varijuojant kampą θ tarp žadinančių spindulių $\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin(\theta/2)}$. Dėl netolygaus šviesos intensyvumo yra sukuriama tiriamos medžiagos savybių periodinė moduliacija erdvėje (gardelė). Šviesa veikiamos savybės gali būti nepusiausvirųjų krūvininkų tankis (puslaidininkiuose), erdvinis laukas (fotorefraktyviose medžiagose), molekulių orientacija (skysčiuose). Šių savybių pokytis sukelia optinių medžiagos savybių (sugerties koeficiento ir lūžio rodiklio) kitimą, kurį ir stebime eksperimentuose.



2.4 paveikslas. Dinaminės gardelės užrašymo schema. Pagal [13].

Daugumoje šio darbo eksperimentų stebėti nepusiausvirųjų krūvininkų sukelti optiniai netiesiškumai. Kaip ir minėta ankstesniame skyrelyje dažniausiai nepusiausvirieji krūvininkai puslaidininkyje kuriami šviesa, kurios kvanto energija yra didesnė už puslaidininkio E_g , tačiau galima ir nepusiausvirųjų krūvininkų generacija iš priemaišinių lygmenų ar sugėrus keletą fotonų kai $hv < E_g$. Sugerties koeficiento ir lūžio rodiklio pokyčius galima įvertinti naudojant Drude modelį, kuriame elektronai ir skylės laikomi kvazi-laisvomis dalelėmis (su efektinėmis masėmis m_e^* ir m_h^*) svyruojančiomis elektromagnetiniame lauke [13]:

$$\Delta n = -\frac{e^2}{2n_0\omega^2\varepsilon_0} \left(\frac{\Delta N_e}{m_e^*} + \frac{\Delta N_h}{m_h^*}\right) = \Delta N \cdot n_{eh}; \qquad (2.3)$$

$$\Delta \alpha = -\frac{e^2}{n_0 \omega^2 c \tau_d \varepsilon_0} \left(\frac{\Delta N_e}{m_e^*} + \frac{\Delta N_h}{m_h^*} \right) = \Delta N \cdot \sigma_{eh} \,. \tag{2.4}$$

Čia ΔN yra fotosužadintų nepusiausvirųjų krūvininkų tankis, ω – ciklinis zonduojančios šviesos dažnis, τ_d – elektrono impulso relaksacijos trukmė, n_0 – medžiagos lūžio rodiklis, n_{eh} – vienos elektrono-skylės poros sukeltas lūžio rodiklio pokytis, σ_{eh} – sugerties skerspjūvis.

Nepusiausvirųjų krūvininkų sąlygoti netiesiškumai dominuoja kai zonduojančios šviesos dažnis yra toli nuo rezonansinio medžiagos dažnio, t.y. skaidrumo srityje. Matome, kad elektronų sukeltų netiesiškumų indėlis į lūžio rodiklio ir sugerties koeficiento moduliaciją yra didesnis už skylių, nes dažniausiai yra teisinga nelygybė $m_e^* > m_h^*$.

Dinaminė gardelė puslaidininkyje gali būti suformuojama ir dėl periodinės kristalo temperatūros moduliacijos (vadinama temperatūrinė gardelė). Galimi keli temperatūrinės gardelės sukūrimo atvejai: i) jei nepusiausvirieji krūvininkai kuriami šviesa, kurios kvanto energija ženkliai viršija puslaidininkio Eg, tada elektronams ir skylėms "auštant" sugertos energijos dalis lygi $(hv - E_g)/hv$ bus išspinduliuota fononų pavidalu; ii) jeigu bandinyje yra didelis pusiausvirujų krūvininkų tankis, jie gali būti "šildomi" dviejų infraraudonos spinduliuotės pluoštelių interferenciniu lauku šuoliais laidumo juostoje dėl laisvakrūvės sugerties; iii) jei bandinyje yra sparčių centru, nespindulinės rekombinacijos elektrono-skylės tai pora rekombinuodama per juos gali fononų pavidalu išspinduliuoti energiją lygią puslaidininkio Eg. Pakitusi medžiagos temperatūra sukelia teigiamą lūžio rodiklio pokyti, t.y. priešingo ženklo nei pokytis dėl nepusiausvirųjų krūvininkų:

$$\Delta n = \frac{\partial n}{\partial T} \Delta T \,. \tag{2.5}$$

Terminė gardelė dažniausiai stebima žemose temperatūrose, nes dėl sumažėjusios medžiagos specifinės šilumos, tas pats sužadinimo intensyvumas sukuria didesnį temperatūros gradientą. Terminės gardelės dažnai sukelia medžiagos tankio pokyčius [13]. Staigi lokali periodinė temperatūros moduliacija medžiagoje sukuria stovinčią garso bangą, kurios periodas yra lygus $T = \Lambda/\nu$, kur ν – garso greitis medžiagoje. Tokiu būdu dinaminių gardelių metodu buvo išmatuotas garso greitis SiC ir sintetiniame deimante [14-16].

Sukurtą periodinę kompleksinio lūžio rodiklio moduliaciją galime išmatuoti matuodami zonduojančio spindulio difrakciją nuo tokios dinaminės gardelės. Efektinis dinaminės gardelės storis $d_{ef} = \frac{1 - \exp(-\alpha \cdot d)}{\alpha}$ (d - bandinio storis) stipriai įtakoja difrakcijos pobūdį. Išskiriami du dinaminių gardelių atvejai: tai "plonos" (*Raman-Nath*) ir "storos" (*Bragg*) gardelės [13, 17]. "Plona" ar "stora" gardelė galima įvertinti lyginant d_{ef} su gardelės periodu Λ : jei d_{ef} yra palyginamas ar mažesnis už Λ , vadinasi gardelė "plona", kitais atvejais – "stora". Tikslesnį gardelės storio įvertinimą galima atlikti dalinant gardelę į daug mažų sluoksnelių ir skaičiuojant fazių skirtumą Q tarp dviejų gretimų sluoksnelių [13]:

$$Q = \frac{2\pi d_{ef}\lambda}{\Lambda^2 n},$$
(2.6)

Jei fazių skirtumas mažas ($Q \ll 1$), tada pluošteliai nuo visų gardelės plokštumų interferuoja konstruktyviai. Šiuo atveju galima stebėti daug difrakcijos eilių. Jei fazių skirtumas didelis ($Q \gg 1$), tarp difragavusių pluoštelių pasireiškia destruktyvi interferencija ir bendras difrakcijos efektyvumas labai sumažėja. Šiuo atveju jei zondas kris į bandinio plokštumą tam tikru kampu α bus stebimas tik vienas difrakcijos maksimumas kampu $\phi=2\alpha$ (vadinama *Bragg 'o difrakcija*), nes tik tokiu atveju nebus fazių skirtumo ir konstruktyviai interferuos pluošteliai difragavę nuo skirtingų gardelės plokštumų. Šio darbo eksperimentuose buvo stebima difrakcija nuo "plonų" gardelių, nes Q ~ 0,1 (kai $d_{ef} \sim 0,5 \ \mu m, \lambda \sim 1-2 \ \mu m, \Lambda \sim 7 \ \mu m, n \approx 2,7-3,3$).

Dinaminių gardelių eksperimentuose registruojamas difrakcijos efektyvumas η , kuris yra difragavusio ir praėjusio pluoštelių santykis $\eta = I_D/I_{Pr}$. Plonų gardelių atveju pirmo difrakcijos maksimumo intensyvumas išreiškiamas [13]:

$$\eta = \left| J_1(\phi) \right|^2, \tag{2.7}$$

kur J_1 – pirmos eilės Beselio funkcija ($\phi = 2\pi \Delta \tilde{n} d_{ef} / \lambda$, kur $\tilde{n} = n + ik$ – kompleksinis lūžio rodiklis), d_{ef} – gardelės storis, λ – zondo bangos ilgis. Jeigu Beselio funkcijos argumentas mažas $\phi \ll 1$, tada Bezelio funkciją galima aproksimuoti:

$$J_1(\phi) = \frac{\phi}{2},\tag{2.8}$$

o difrakcijos efektyvumas tokiu atveju:

$$\eta = \left| J_1(\phi) \right|^2 \approx \left| \frac{2\pi \Delta \tilde{n} d_{ef}}{\lambda} \right|^2 = \left(\frac{2\pi \Delta n d_{ef}}{\lambda} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \alpha d_{ef}}{4} \right)^2.$$
(2.9)

Dažniausiai medžiagos skaidrumo srityje galioja nelygybė $\Delta n > \Delta \alpha$, tad laisvųjų krūvininkų ar terminių gardelių atveju sugerties narį galime atmesti ir difrakcijos efektyvumas:

$$\eta = \left(\frac{2\pi\Delta nd_{ef}}{\lambda}\right)^2. \tag{2.10}$$

Išraiška (2.10) kartu su (2.3) ir (2.5) leidžia įvertinti nepusiausvirųjų krūvininkų ir temperatūros dinamiką puslaidininkiuose iš matuojamo difrakcijos efektyvumo.

Sukurta dinaminė gardelė laikui bėgant suyra dėl nepusiausvirųjų krūvininkų <u>rekombinacijos</u> ir <u>difuzijos</u> išilgai gardelės vektoriaus. Nepusiausvirųjų krūvininkų tankio evoliucija erdvėje ir laike supaprastintame DG eksperimento modelyje, kur stebima difrakcija nuo "storos" gardelės, o jos irimą sąlygoja krūvininkų difuzija ir tiesinė rekombinacija, yra aprašoma:

$$\frac{\partial N(x,t)}{\partial t} = G(x,t) + D \frac{\partial^2 N(x,t)}{\partial x^2} - \frac{N}{\tau_R} . \qquad (2.11)$$

kur G(x,t) – krūvininkų generacijos funkcija, τ_R – krūvininkų gyvavimo trukmė. Jei generacijos funkcija yra delta funkcija, išraiška (2.11) turi analitinį sprendinį [13]:

$$N(x,t) = N_0 \left[1 + \exp\left(-\frac{t}{\tau_D}\right) \cos(K_g \cdot x) \right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_R}\right), \qquad (2.12)$$

kur τ_D – difuzinė gardelės irimo trukmė:

$$\tau_D = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 D},\tag{2.13}$$

Nepusiausvirųjų krūvininkų dinaminės gardelės charakteringa irimo trukmė yra lemiama tiek rekombinacinių tiek difuzinių procesų:

$$\frac{1}{\tau_G} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_D} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{4\pi^2 D}{\Lambda^2}.$$
(2.14)

Iš pastarosios išraiškos matome, kad difuziniai ir rekombinaciniai procesai gali būti atskirti išmatavus gardelės irimo trukmės priklausomybę nuo atvirkštinio gardelės periodo $(1/\tau_G = f(1/\Lambda^2))$. Gautos tiesės polinkis duos difuzijos koeficiento vertę, o vieta kur tiesė kirs ordinačių ašį kai abscisė yra lygi nuliui– gyvavimo trukmės vertę.

Kaip minėta anksčiau, difrakcijos efektyvumas priklauso nuo gardelės moduliacijos gylio kvadrato, o gardelės irimas charakterizuojamas trukme τ_G , per kurią difrakcijos efektyvumas η sumažėja e² kartų [13]:

$$\eta \propto \exp\left(-\frac{2t}{\tau_G}\right).$$
 (2.15)

Tyrimuose naudota DG eksperimento schema pavaizduota 2.5 paveiksle. Nepusiausvirieji krūvininkai buvo kuriami dviejų YAG:Nd⁺³ kietakūnio lazerio (PL-2141, *Ekspla*) 25 ps trukmės 355, 532 ar 1064 nm bangos ilgio impulsų interferenciniu lauku. Zondui, priklausomai nuo tiriamos medžiagos, buvo naudojamas vėlinamas to paties lazerio 1064 nm bangos ilgio pluoštelis arba 355 nm bangos ilgio šviesa kaupinamas optinis parametrinis generatorius (OPG-401, *Ekspla*), kurio generuojamos spinduliuotės bangos ilgi galima tolydžiai keisti 420–680; 720–2200 nm intervale. Žadinantis pluoštelis padalinamas į du apytiksliai vienodo intensyvumo pluoštelius holografiniu



2.5 paveikslas. Dinaminių gardelių eksperimento schema.

dalikliu HSD [18], o teleskopu sudarytu iš lęšių L1 ir L2 pluošteliai suvedami pačiame bandinio taške. Žadinančio pluoštelio intensyvumas tame varijuojamas slopintuvu sudarytu iš poliarizacinės $\lambda/2$ plokštelės PP1 ir poliarizatoriaus P1 atitinkamam bangos ilgiui. Veidrodžiais V1, V2 ir V3 zondas nukreipiamas į tą patį tašką kaip ir užrašantys pluošteliai. Zonduojančio pluoštelio optinis kelias keičiamas stumdant opto-mechaninę vėlinimo liniją VL1. Žadinančio ir zonduojančio pluoštelių erdvinė forma registruojama CCD kamera, o jų energija matuojama energijos matuokliu. Bandinys gali būti patalpintas į kriostatą ir jo temperatūra varijuojama 10K-800K intervale. Fotodetektorius FD1 registruoja žadinančio pluoštelio intensyvumą, FD2 praėjusio, o FD3 – difragavusio zondo intensyvumus. Fotodetektoriai ir vėlinimo linija prijungti prie kompiuterio, kuriame veikianti programinė įranga LabView valdo eksperimenta ir renka/apdoroja duomenų masyvus.

2.3 Krūvininkų dinamikos skaitmeninis modeliavimas

DG eksperimento atveju nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką aprašo dvimatė diferencialinė krūvio tolydumo lygtis [10]:

$$\frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t} = \nabla \left[D \nabla N(x,z,t) \right] - \frac{N(x,z,t)}{\tau_R} - B N^2 \left(x, z, t \right) -, \qquad (2.16)$$
$$-C N^3(x,z,t) + G(x,z,t)$$

su kraštinės sąlygomis:

$$\frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t}\Big|_{z=0} = \frac{S_1}{D}N(x,0,t)$$

$$\frac{\partial N(x,z,t)}{\partial t}\Big|_{z=d} = -\frac{S_2}{D}N(x,d,t)$$
(2.17)

Čia D – krūvininkų difuzijos koeficientas, B ir C – atitinkamai bimolekulinės ir Ožė rekombinacijos koeficientai, S_1 ir S_2 – paviršinės rekombinacijos koeficientai ties bandinio paviršiais. G(x,z,t) generacijos funkcija lygi:

$$G(x,z,t) = \frac{I_0 \alpha}{hv} (1-R) \left(1 + \cos\left[\frac{2\pi x}{\Lambda}\right] \right) \exp(-\alpha z) \cdot \frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\tau_L} 2^{-\frac{4(t-t_0)^2}{\tau_L^2}} ,$$

kur α – medžiagos sugerties koeficientas žadinančio pluoštelio bangos ilgiui, I_0 – žadinančių pluoštelių energijos tankis, hv – žadinančio pluoštelio kvanto energija, R – atspindžio koeficientas, t_L – lazerio impulso trukmė (FWHM). diferencialinė (2.16) lygtis sprendžiama skaitmeniškai baigtinių intervalų metodu. Kadangi DG eksperimentuose registruojama pirma difrakcijos eilė, tad modeliavime yra skaičiuojama krūvininkų tankio moduliacijos pirma harmonika:

$$N_1(z,t) = \frac{2}{\Lambda} \int_{-\Lambda/2}^{\Lambda/2} N(x,z,t) \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right) dx \,. \tag{2.19}$$

Skaičiuojama tik pusėje periodo, nes kitur sprendiniai kartosis. Pagal (2.3) ir (2.19) galime įvertinti lūžio rodiklio moduliaciją $\Delta n(z,t) = n_{eh}N_1(z,t)$. Integruojant per bandinio storį suskaičiuojame momentinį difrakcijos efektyvumą:

$$\eta^*(t) = \left(\int_0^d \frac{\pi \Delta n(z,t)}{\lambda}\right)^2.$$
(2.20)

Kadangi zonduojantis impulsas nėra nulinės trukmės (τ_L =25 ps), tai matuojamas difrakcijos efektyvumas yra momentinio η^* ir zonduojančio impulso sąsūka. Turime atlikti integravimą per zonduojančio impulso trukmę:

$$\eta(t) = \frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\tau_L \sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \eta^*(t - t_z) \cdot 2^{-\frac{4t_z}{\tau_L}} dt_z.$$
(2.21)

SP eksperimento skaitmeniniame modeliavime buvo neįskaitoma krūvininkų difuzija išilgai sluoksnio (sprendžiamas vienmatis (2.16) atvejis), o kiti skaičiavimai analogiški. Atliekant rekombinacinių parametrų įvertinimą, suskaičiuotos signalų gesimo kinetikos buvo tapatinamos su atitinkamais eksperimentiniais duomenimis.

3. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika InN sluoksniuose su skirtingu pusiausvirųjų krūvininkų tankiu

2002 metais pasirodžius tyrimų rezultatams apie mažesnį (0,65–0,7 eV) nei ilgai manyta (~1,9 eV) InN draustinių energijų tarpa atgimė susidomėjimas InN tyrimais. Buvo nustatyta, kad InN iš visos nitridų šeimos (InN, GaN, AlN) turi pačia mažiausia elektrono efektinę masę ($m^*=0.04-0.07$), o tai salygoja didesni elektronų dreifo greiti ir soties elektrini lauka nei kituose panašiuose puslaidininkiuose [19-21]. Remiantis šiomis naujai atrastomis InN savybėmis mokslinių tyrimų laboratorijoje buvo pademonstruoti InN pagrindu pagaminti termoelektrinių [22], THz spinduliuotės prietaisų [23] prototipai, metanolio dujų ar vandens jutiklis [24], taip pat buvo pademonstruoti InN ominiai kontaktai ant GaN, InAlN ar GaAs/AlGas heterosandūru [25-27]. InN buvo panaudotas kaip skaidrus elektrodas saulės elementų gamyboje [28], taip pat InN/Si p-n sandūrose [29]. Šiuo metu InN istorija yra labai panaši į GaN istoriją prieš 20 metų, tačiau priešingai nei GaN atveju, kada 1993 m. Nakamura iš Nichia kompanijos laboratorijoje pademonstravo GaN pagrindu pagamintą pirmą mėlyną šviestuką ir prasidėjo komercinė jų gamyba, iš InN šiuo metu nera pagaminta nei vieno komercinio prietaiso, nors prietaisu prototipai demonstruojami mokslinėse laboratorijose. Komercinį panaudojimą stabdo prasta auginamų InN sluoksnių kokybė dėl nepakankamai ištobulintų auginimo technologijų. Užaugintuose sluoksniuose yra didelis pusiausvirųjų krūvininkų tankis n_0 taip pat pasireiškia sparti nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija.

InN kaip ir GaN auginami heteroepitaksiškai ant nenuosavų padėklų (kas sąlygoja didelius defektų tankius auginamoje medžiagoje), o GaN atveju buvo pademonstruota, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta yra tiesiogiai susijusi su užaugintame sluoksnyje esančiu dislokacijų tankiu, kitais žodžiais – sluoksnio kokybe [30]. Tad panašaus rezultato galime tikėtis ir InN atveju. Kita problema su kuria susiduria InN augintojai – didelis pusiausvirųjų elektronų tankis ($n_0 > 10^{17}$ cm⁻³) specialiai nelegiruotuose MBE

35

metodu užaugintuose kristaluose, o auginant MOCVD metodu no retai būna mažesnis už 10^{18} cm⁻³. Kas lemia dideles n_0 vertes aktyviai tiriama iki šiol, pagrindiniai kandidatai – savieji defektai (N vakancijos) ir priemaišos (O ir H) [31-35]. Pastaruoju metu nepusiausviruju krūvininkų dinamika InN yra aktyviai tyrinėjama naudojant įvairias spektroskopijos metodikas su laikine skyra. Krūvininkų rekombinacijos tyrimai naudojant skirtuminio pralaidumo, skirtuminio atspindžio ar fotoliuminescencijos su laikine skyra metodikomis bandiniuose, kuriuose pusiausvirųjų krūvininkų tankis varijuoja nuo 4×10^{17} iki 1,2×10¹⁹ cm⁻³ yra publikuojami eilėje mokslinių straipsnių [35-42]. Nepaisant eksperimentinių tyrimų gausos nėra prieita vieningos nuomonės apie krūvininkų rekombinacijos mechanizmus InN. [37] darbe InN bandinių krūvininkų dinamikos tyrimams naudojant skirtuminės THz spinduliuotės sugerties metoda, o [35] darbe skirtuminio pralaidumo metodiką krūvininkų dinamiką zonduojant su 1800 nm bangos ilgio pluošteliu InN bandiniuose buvo išmatuotos krūvininkų gyvavimo trukmės τ nuo 50 ps iki 1,3 ns, kurios buvo atvirkščiai proporcingos pusiausvirųjų krūvininkų tankiui ($\tau \propto 1/n_0$). Darbe [35] rekombinacijai per defektus priskiriamos krūvininkų gyvavimo trukmės išliko pastovios net nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui pasiekus $\Delta n \sim 10^{19}$ cm⁻³. Panašūs rezultatai publikuojami ir [38] darbe, kur skirtuminio atspindžio kinetikų gesimo trukmė nepriklauso nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio. Pagal pastarųjų tyrimų rezultatus, t.y. τ priklausomybę nuo n_0 ir τ pastovią vertę kintant nepusiausvirujų krūvininkų tankiui galima spręsti, kad InN dominuoja nespindulinė "tiesinė" nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija per defektus. Taip pat pagal tai, kad τ priklauso nuo n_0 galima spręsti, kad rekombinacijoje dalyvaujančių defektų tankis yra susijęs su pusiausvirujų krūvininkų tankiu bandinyje. Tačiau [36] darbe publikuojami tyrimai naudojant skirtuminio atspindžio metodiką iš kurių nustatyta, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta InN nuo krūvininkų tankio priklauso dėsniu $1/\tau = B(n_0 + \Delta n)$, o netiesinės rekombinacijos koeficientas B priskiriamas Ožė rekombinacijai išsigimusioje krūvininkų sistemoje. Darbe
[41] publikuojami InN tyrimai, atlikti naudojant fotoliuminescencijos su laikine skyra metodiką (TRPL), kuriais parodoma, kad fotoliuminescencijos (PL) signalo gesimo trukmės priklauso tiek nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio, tiek nuo bandinio temperatūros. Pateikiamos iš PL signalo kinetikų gesimo trukmės pusiau empiriškai įvertintos tiesinės, spindulinės ir Ožė rekombinacijos spartos koeficientų vertės. Taip pat [42] darbe pateikiami InN tyrimų rezultatai naudojant TRPL metodiką, kurie rodo kad InN PL spektro



3.1 paveikslas. Krūvininku gyvavimo trukmių InN ivertintu skirtingomis metodikos priklausomybės nuo pusiausvirujų krūvininkų tankio n_0 suvestinė. Ref.A - [38], Ref.B - [35], Ref.C - [42], Ref.D - [39], Ref.E - [37].

atskiros komponentės gęsta skirtingu greičiu - trumpabangė spektro sritis gęsta sparčiau nei ilgabangė. PL spektro priklausomybės nuo temperatūros vpatumai parodė, kad PL intensyvumas didėja žemėjant temperatūrai, PL spektro 0 smailės padėtis nebesikeičia temperatūrose žemose dėl eksitonų lokalizacijos. Taip pat nustatyta, nespindulinė kad krūvininkų rekombinacija yra termiškai aktyvuojama su aktyvacijos terminės verte Tačiau $\Delta E = 8 \text{ meV}.$ mažos

krūvininkų judrio vertės [~50–100 cm²/(V·s)] ir jų priklausomybės nuo temperatūros net ir stipriai išsigimusiuose InN kristaluose, kur $n_0 \approx 10^{20}$ cm⁻³, rodo, kad reikia atsižvelgti į dominuojančią kristalo defektų, kurių kaip anksčiau minėta gausu InN, įtaką tiriamų kristalų optinėms ir elektrinėms savybėms.

3.1 paveiksle pateikiama krūvininkų gyvavimo trukmių, įvertintų skirtingomis metodikomis, priklausomybės nuo pusiausvirųjų krūvininkų tankio suvestinė. Pilkai užpildyti simboliai vaizduoja šio darbo rezultatus. Toks

platus skelbiamų rekombinacijos trukmių ir rekombinacijos mechanizmų spektras InN rodo, kad reikalingi tolimesni tyrimai, kurie papildytų jau atliktus tyrimus ir padėtų susidaryti vieningą nuomonę apie nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos mechanizmus InN.

Šiame skyriuje pateikiami įvairiuose technologiniuose centruose MBE metodu ant safyro užaugintų InN sluoksnių su skirtingu pusiausvirųjų krūvininkų tankiu tyrimų rezultatai naudojant skirtuminio pralaidumo bei šviesa indukuotų dinaminių gardelių metodikas. Parodoma, kad InN tyrimams naudojant skirtuminio pralaidumo metodika registruojamo signalo gesimo trukmė priklauso nuo zonduojančio pluoštelio kvanto energijos. Registruojamo indukuoto praskaidrėjimo signalo gesimo trukmė neatspindi nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės, o norint įvertinti krūvininkų rekombinacijos trukmes reikia registruoti laisvakrūvės sugerties signalo dinamiką. Parodoma, kad krūvininkų rekombinacijos sparta atvirkščiai proporcinga jų tankiui $1/\tau \propto B(\Delta N + n_0)$ ir skaitmeniniu modeliavimu įvertinamos netiesinės rekombinacijos koeficiento B vertės. Tyrimais DG metodika parodoma, kad rekombinacijos spartos priklausomybė nuo temperatūros netenkina $1/\tau \propto T^{-3/2}$ dėsnio, kuris būdingas spindulinei rekombinacijai ir pasiūlomas naujas nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos mechanizmas stipriai sužadintame InN.

3.1 Krūvininkų rekombinacijos tyrimai skirtuminio pralaidumo metodika

Tirti InN sluoksniai buvo užauginti MBE metodu ant safyro (0001) padėklų naudojant GaN ar/ir AlN pasluoksnius įvairiuose technologiniuose centruose Jungtinėse Amerikos Valstijose, Japonijoje ir Vokietijoje. 3.1 lentelėje pateikiami tirtų InN bandinių parametrai.

38

Bandinio Nr.	Storis (µm)	$n_0 ({\rm cm}^{-3})$
#1	1,2	$1,4 \times 10^{18}$
#2	0,7	$2,1 \times 10^{18}$
#3	0,65	$3,5 \times 10^{18}$
#4	0,6	$4,7 \times 10^{18}$

3.1 lentelė. Tirtų InN sluoksnių parametrai.

3.2 paveiksle pavaizduoti tirtų InN sluoksnių sugerties spektrai išmatuoti *Hamamatsu* spektrometru. Naudodami [43] darbe pateikiamą sigmoidinę išraišką įvertinome InN bandinių draustinių energijų tarpo E_g vertes. E_g priklausomai nuo bandinio kito nuo 0,66 eV(#1) iki 0,72 eV (#4). Sugerties spektrų tyrimų rezultatai puikiai dera su naujausių tyrimų duomenis, kuriuose išmatuota aukštos kokybės InN bandinių E_g vertė yra apytiksliai 0,65 eV [44, 45]. Matome, kad InN bandiniuose, kuriuose didesnis pusiausvirųjų krūvininkų tankis, išmatuotas sugerties spektras pasislinkęs į didesnių energijų pusę dėl Burstein-Moss efekto. Pusiausvirieji krūvininkai užpildo laidumo/valentinės juostos žemiausias būsenas ir sugertyje dalyvauja tik aukštesnės energijos būsenos – taip padidėja stebima efektyvi draustinių



3.2 paveikslas. Tirtų InN sluoksnių sugerties spektrai.

energijų tarpo vertė. Palyginimui 3.2 paveikslo priedėlyje pateikiamas MOCVD metodu užauginto 1,5 µm storio InN sluoksnio sugerties spektras, kuriame pusiausvirujų krūvininkų $\sim 10^{20}$ cm⁻³. Dėl vra tankis Burstein–Moss efekto stebima $E_{\rm g}$ vertė yra apie 1,9 eV ir atitinka ankstyvuose InN tyrimuose įvertintas $E_{\rm g}$ vertes [46-48].

Iki šiol InN tyrimuose

sužadinimo–zondavimo metodikomis mažiausia naudota zonduojančio pluoštelio fotonų energija siekė 0,65 eV (λ_z =1900 nm) [39]. Šį ribojimą galėjo sąlygoti mažas skirtuminio signalo dydis ties mažesnėmis energijomis [35, 39] arba komercinių Si ar InGaAs detektorių ribinis registruojamas bangos ilgis. Šiame darbe pastarojo ribojimo išvengėme β–BBO netiesiniu kristalu dvigubindami praėjusio zonduojančio pluoštelio dažnį ir detektoriumi registruodami dvigubo dažnio SP signalą. SP tyrimuose naudota eksperimento schema pavaizduota 2 skyriaus 2.2 paveiksle.



3.3 paveikslas. Skirtuminio pralaidumo signalo kinetikos InN bandiniuose #1 ir #4 esant skirtingiems zonduojančio šviesos pluoštelio kvanto energijoms.

3.3 paveiksle pavaizduotos SP signalo kinetikos #1 ir #4 InN bandiniuose kai zonduojama su šviesa kurios fotono energija varijuojama nuo 0,8 iki 0,54 eV (tai atitinka bangos ilgį nuo 1500 iki 2300 nm), o žadinančio pluoštelio fotono energija 1,24 eV (λ =1000 nm). Iš sugerties spektrų nustatytas sugerties koeficientas žadinančio pluoštelio bangos ilgiui yra $\alpha(1,24 \text{ eV})\approx5\times10^4 \text{ cm}^{-1}$, kas atitiktų ~200 nm gylio sužadinimą InN sluoksnyje pradiniu laiko momentu (Δt =0 ps). Žadinančios energijos tankis visuose matavimuose vienodas. Eksperimentai atlikti kambario temperatūroje.

Mažindami hv_z nuo 0,8 iki 0,54 eV (1,21> hv_z/E_g >0,82) stebėjome skirtuminio signalo perėjimą iš šviesa indukuoto praskaidrėjimo (toliau IP)

 $(\Delta \alpha < 0, 3.3 \text{ pav.}$ viršutinės dalys) į šviesa indukuotą užtamsėjimą $(\Delta \alpha > 0, 3.3 \text{ pav.}$ apatinės dalys). Taip pat buvo stebimas tarpinis režimas kai šie priešingo ženklo reiškiniai beveik panaikindavo vienas kitą (6 kreivė 3.3 pav. a)). Yra priimta, kad IP yra stebimas dėl laidumo juostos būsenų užpildymo nepusiausviraisiais krūvininkais [37, 38]. Taigi IP signalo gesimas yra lemiamas ir krūvininkų rekombinacijos ir jų persiskirstymo tarp skirtingos energijos būsenų. Užpildytos būsenos nebedalyvauja šviesos sugertyje todėl ir stebimas sugerties koeficiento sumažėjimas ties zonduojančio pluoštelio hv,



3.4 paveikslas. SP signalo gesimo trukmės priklausomybė nuo zondo fotono energijos. Ref. A – [35], Ref. B – [37]. Punktyrinės linijos vaizduoja τ kitimo tendencijas. t.y. praėjusio zonduojančio pluoštelio intensyvumo padidėjimas.

Bandinyje #1 išmatuota SP signalo gesimo trukmė buvo apie 120 ps esant didelėms (lyginant su InN E_g) zonduojančio pluoštelio fotono energijoms ($hv_z=0,8 \text{ eV}$, $hv_z/E_g=1,21$). Kai zondo kvanto energija buvo artima InN E_g ($hv_z=0,65-0,72 \text{ eV}$, $hv_z/E_g=0,98-$ 1,09) buvo stebimas SP signalo gesimo trukmės padidėjimas iki 600 ps. InN bandinyje #4, kuriame didesnis pusiausvirujų

krūvininkų tankis, buvo stebėtos tokios pačios SP signalo kinetikų tendencijos tačiau gesimo trukmės vertės buvo eile mažesnės (apie 60 ps tie $hv_z \approx E_g$). Šie rezultatai kokybiškai sutampa su [35, 37] darbuose atliktų tyrimų naudojant SP metodiką rezultatais, kur stebėtas spartus signalo gesimas zonduojant 200–300 meV aukščiau InN E_g , o zonduojant su šviesa kurios kvanto energija artima InN E_g stebėtas SP signalo gesimo sulėtėjimas (žiūr. 3.4 pav.). Šiuose darbuose spartus SP signalo gesimas kai $hv_z > E_g$ priskiriamas "karštų" krūvininkų "aušimui", t.y. krūvininkai esantys aukštesnės energijos juostos būsenose

persiskirsto ir užima žemesnės energijos būsenas. Lėtos SP signalo gesimo kinetikos priskiriamos tarpjuostinės krūvininkų rekombinacijos trukmei. Tačiau šios išvados padarytos remiantis šviesa indukuoto praskaidrėjimo signalo kinetikomis. Darbuose [49, 50] InN sluoksnių tyrimams naudojant fotoliuminecencijos (PL) metodiką stebėtas PL spektro mėlynasis poslinkis didinant fotosužadintų nepusiausvirųjų krūvininkų tankį. Tokia PL spektro eiga aiškinama laisvų elektronų rekombinacija su valentinės juostos "uodegose" (*angl. "valence band tails"*) esančiomis lokalizuotomis nepusiausvirosiomis skylėmis (*angl. "free-to-bound" recombination*). Valentinės juostos "uodegas" galima laikyti kaip akceptorinio tipo centrus, kuriuos sukuria netolygus priemaišų pasiskirstymas ir potencialo fliuktuacijos stipriai legiruotuose puslaidininkiuose [49, 50]. Mūsų stebėtos SP signalo kinetikos prie skirtingų zondo fotonų energijų atitinka pastarąją hipotezę: galimai mažas valentinės juostos "uodegose" esančių lokalizuotų skylių tankis įtakoja nepusiausvirųjų elektronų rekombinacija SP signalo gesimą.

Siame darbe mes zonduojančiam pluošteliui panaudojome lazerinę spinduliuotę, kurios fotono energija hv_z siekė 0,54 eV (λ_z =2300 nm, $hv_z/E_g=0.82$) ir buvo mažiausiai 100 meV žemiau už InN E_g (3.3 pav. apatinės dalys). Naudodami tokias zondavimo sąlygas stebėjome SP signalą sąlygotą laisvakrūvės sugerties (toliau LS) efekto, nes: i) SP signalas buvo proporcingas nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui; ii) nebuvo stebėta jokios priemaišinės sugerties tokiai fotono energijai (žiūr. 3.2 pav.). LS atveju signalas yra proporcingas visam nepusiausvirujų krūvininkų tankiui, tad LS gesimo trukmė buvo priskirta nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmei ir buvo ~360 ps bandinyje #1 ir ~30 ps bandinyje #4. Matome, kad LS signalo gesimo trukmė yra maždaug 2 kartus trumpesnė už IP signalo gesimo trukmę. Reikia pažymėti, kad abiejuose bandiniuose SP signalo ženklo apsivertimas buvo stebimas kai $E_g - hv_z \approx 80$ meV. Šie rezultatai rodo, kad IP kinetikos InN sluoksniuose kai zonduojama su šviesos kvantu artimu medžiagos $E_{\rm g}$ tikriausiai yra nulemtos ne vien paprastos tarpjuostinės rekombinacijos, kaip galvota [35, 40] darbuose.

Kaip jau minėta aukščiau, IP yra proporcingas laidumo/valentinės juostos būsenų užpildymui nepusiausviraisiais krūvininkais. Kokybiniam IP kinetikų irimo greičių ties skirtinga zonduojančio pluoštelio hv_z paaiškinimui atlikome InN laidumo juostos būsenų užpildos skaitmeninį modeliavimą. Skaičiavimų supaprastinimui laikėme, kad InN laidumo juosta parabolinė. Skaičiavimams naudojome InN elektronų efektinę masę $m_e^* = 0,07m_0$ [51], pradinį (laiko momentu t=0 ps) sužadintų krūvininkų tankį $n_0=10^{19}$ cm⁻³ ir jų gyvavimo trukmę $\tau=360$ ps. Laikėme, kad netiesinės rekombinacijos nėra, o krūvininkų rekombinacijos dėsnis $n(t) = n_0 \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$. Laidumo juostos būsenų užpildos (PDOS) priklausomybės nuo energijos skirtingais laiko momentais ir nuo zondo vėlinimo ties skirtinga hv_z pavaizduotos 3.5 paveiksle. Matome, kad net ir neįskaitant netiesinės rekombinacijos, E_g renormalizacijos ar valentinės juostos uodegose lokalizuotų skylių įtakos, arti E_g gaunamos lėtesnės būsenų tuštėjimo kreivės. Taip yra todėl, kad rekombinavus krūvininkui buvusiam mažesnės energijos būsenoje ji akimirksniu užpildoma "auštančių" krūvininkų



3.5 paveikslas. Kairėje: Laidumo juostos būsenų užpildymas (PDOS) skirtingais laiko momentais; dešinėje: PDOS priklausomybė nuo zondo vėlinimo ties skirtingais hv_z . Pilka linija pavaizduotas $const \cdot exp\left(-\frac{t}{360}\right)$ rekombinacijos dėsnis.

iš aukštesnės energijos būsenų (laikome, kad krūvininkų "aušimo" sparta yra daug didesnė už jų rekombinacijos spartą). Zonduojant su hv_z 0,02–0,4 eV didesniu už E_g stebime krūvininkų "aušimo" ir rekombinacijos spartų mišinį.

3.6 paveiksle pavaizduotos LS signalo kinetikų InN bandiniuose priklausomybės nuo žadinančio pluoštelio energijos tankio kai zonduojančio pluoštelio kvanto energija $hv_z=0,54$ eV. Eksperimentai atlikti kambario temperatūroje. Matome, kad visuose InN bandiniuose pardinės LS kinetikų dalys spartėja didinant žadinančio pluoštelio energijos tankį, t.y. didėjant



3.6 paveikslas. Normuotos LS signalo kinetikos InN bandiniuose. Taškais pavaizduoti eksperimentiniai duomenys, ištisinėmis linijomis – skaitmeninio modeliavimo rezultatai naudojant parametrus pateiktus paveiksluose.

nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui ΔN . Krūvininkų rekombinacijos spartos augimas didėjant ΔN yra netiesinės rekombinacijos požymis. Dominuojančio rekombinacijos mechanizmo ir netiesinės rekombinacijos koeficientų (*B*, *C*) nustatymui atlikome skaitmeninį LS kinetikų modeliavimą naudodami 2.3 skyriuje aprašytą metodą. Skaitmeniniame modeliavime įskaitėme tai, kad pusiausvirųjų krūvininkų tankis n_0 bandiniuose yra palyginamas su šviesa sukuriamu nepusiausvirųjų krūvininkų tankiu ΔN . Kai žadinančios energijos tankis yra ~0,03 mJ/cm² sukuriamas nepusiausvirųjų krūvininkų tankis yra ~4×10¹⁸ cm⁻³. Skaitmeninio modeliavimo rezultatai pavaizduoti ištisinėmis linijomis 3.6 paveiksle.

Skaitmeninio modeliavimo rezultatai parodė, kad momentinė bandiniuose rekombinacijos sparta visuose InN yra proporcinga nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui, $\frac{1}{\tau} = B^*(n_0 + \Delta N)$. Tokia rekombinacijos spartos kitimo tendencija yra būdinga spindulinei nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijai. Tačiau šiuo atveju nustatytos netiesinės rekombinacijos koeficiento vertės $[(4-32)\times 10^{-10} cm^3 / s]$ yra mažiausiai eile didesnės už teoriškai InN numatytą spindulinės rekombinacijos koeficientą B kambario temperatūroje ($B_{InN}=3\times10^{-11}$ cm³/s) [40]. Mūsų įvertintos B^* vertės dera su pateikiama [36] darbe $(B_2=2,48\times10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s})$, kuri apskaičiuota iš skirtuminio atspindžio kinetikų InN sluoksniuose. Pastarajame darbe tokia nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos tendencija ir koeficiento B vertė priskiriama juostajuosta Ožė rekombinacijai išsigimusioje krūvininkų sistemoje. Tačiau pastaruoju atveju netiesinės rekombinacijos koeficientas B^* neturėtų priklausyti nuo pusiausvirųjų krūvininkų tankio n_0 . Didelis pusiausvirųjų krūvininkų tankis n_0 specialiai nelegiruotame InN paaiškinamas [52] ir [53] darbuose, kuriuose aprašoma puslaidininkių didžiausio galimo legiravimo teorija bei pagrindžiama eksperimentiniai rezultatais. Juose parodoma, kad Fermi lygio stabilizacija E_{FS} (angl. Fermi stabilization level) InN yra ~0,9 eV aukščiau laidumo juostos minimumo, todėl InN dominuoja donorinio tipo savieji defektai. [33] darbe teoriniais skaičiavimais parodoma, kad didžiausias indėlis

į n_0 InN yra dėl donorinio tipo azoto vakancijų (V_N), o [31] darbe antrinių jonų masių spektroskopijos ir pozitronų anihiliacijos analizės eksperimentais parodoma, kad didžiausią įtaką n_0 turi azoto vakancijos V_N, o jų šaltinis yra kraštinės (angl. *edge-type*) dislokacijos. Taip pat pastarajame darbe parodoma, kad anksčiau didžiausiais elektronų šaltiniais InN laikytų donorinių deguonies (O) ir vandenilio (H) priemaišų indėliai yra ženkliai mažesni nei V_N.

3.2 Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos ir difuzijos procesų priklausomybės nuo temperatūros tyrimas naudojant DG metodiką

Išsamesnę rekombinacijos mechanizmų analizę atlikome panaudoję DG metodiką. Ištyrėme difrakcijos efektyvumo kinetikų irimo spartos priklausomybes nuo temperatūros ir žadinančios energijos tankio bandiniuose #1 ir #2, kadangi juose iš SP tyrimų rezultatų buvo nustatytos ilgiausios krūvininkų gyvavimo trukmės. Dinaminės gardelės užrašymui buvo naudojama 1064 nm bangos ilgio spinduliuotė, o zonduojančio pluoštelio bangos ilgis buvo 1800 nm. 3.7 paveiksle pavaizduotos difrakcijos efektyvumo η kinetikų



3.7 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikos InN bandiniuose #1 ir #2 esant skirtingiems žadinančios energijos tankiams. Taškais pavaizduoti eksperimentiniai rezultatai, o ištisinės linijos vaizduoja skaitmeninio modeliavimo rezultatus naudojant parametrus pateiktus paveiksle.

priklausomybės nuo žadinančios energijos tankio kambario temperatūroje esant dideliam dinaminės gardelės periodui. Kai Λ =16 µm, o difuzijos koeficientas InN kambario temperatūroje pagal [39] yra 2 cm²/s, tai gardelės difuzinis irimo laikas τ_D pagal (2.13) yra ~32 ns. Tokiu atveju galime laikyti, kad gardelės irimo trukmė atspindi krūvininkų rekombinacijos trukmę. Matome, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija spartėja didėjant jų tankiui. Atlikę skaitmeninį η kinetikų modeliavimą (žiūr. 2.3 skyrių) nustatėme, kad krūvininkų rekombinacijos sparta yra proporcinga (ΔN + n_0) (kaip ir SP eksperimentų atveju) ir įvertinome netiesinės rekombinacijos koeficientą *B** ir tiesinės rekombinacijos trukmę τ . Nustatytos vertės puikiai dera su įvertintomis iš SP matavimų rezultatų. Vadinasi DG eksperimente mes stebime nepusiausvirųjų krūvininkų sukelto lūžio rodiklio pokyčio dinaminės gardelės irimą, o ne sugerties koeficiento pokyčio gardelę, nors zondo bangos ilgis 1800 nm (šiuo atveju gauname, kad $\Delta n > \Delta \alpha$).

Keisdami dinaminės gardelės periodą Λ (3–20 µm) išmatavome η





3.9 paveikslas.Krūvininkųrekombinacijos spartos priklausomybėnuo temperatūros InN bandiniuose #1(kvadratai) ir #2 (apskritimai).Punktyrinės linijos vaizduoja $1/\tau \propto \sqrt{T}$ priklausomybes.

kinetikas esant skirtingoms bandinio temperatūroms ir nustatėme krūvininkų difuzijos koeficiento priklausomybės nuo temperatūros InN. Pasinaudoję Einšteino sąryšiu tarp krūvininkų judrio μ ir difuzijos koeficiento įvertinome μ priklausomybę nuo temperatūros. Krūvininkų judrio priklausomybės nuo temperatūros polinkis *log–log* skalėje suteikia informacijos apie krūvininkų sklaidos mechanizmus. 3.8 paveiksle pavaizduota bipolinio krūvininkų judrio priklausomybė nuo temperatūros. Priklausomybės polinkis artimas -3/2 rodo, kad dominuojantis krūvininkų sklaidos mechanizmas stipriai sužadintame InN yra sklaida akustiniais fononais.

Krūvininkų rekombinacijos spartos priklausomybės nuo temperatūros InN bandiniuose #1 ir #2 pavaizduotos 3.9 paveiksle. Punktyrinėmis linijomis vaizduojamos $1/\tau \propto \sqrt{T}$ priklausomybės. Laikant, kad mūsų nustatytos krūvininkų rekombinacijos spartos paklaidų ribose atitinka punktyrais vaizduojamas priklausomybes ir atsižvelgiant į *SRH* rekombinacijos išraišką $1/\tau \propto \sigma N_T v_{th}$, tokia rekombinacijos spartos priklausomybė rodo, kad didėjant bandinio temperatūrai auga krūvininkų terminis greitis $v_{th} = \sqrt{8kT/\pi m^*}$, o ne aktyvių gaudyklių tankis N_T .



3.10 paveikslas. a) Difrakcijos efektyvumo kinetikos InN bandinyje #1 ir b) bandinyje #2. Punktyrinėmis linijomis pavaizduotos skaitmeniškai sumodeliuotos η kinetikos laikant, kad B^* yra spindulinės rekombinacijos koeficientas.

Ar iš SP ir DG eksperimentų rezultatų skaitmeninio modeliavimo įvertinta koeficiento B^* vertė yra spindulinės rekombinacijos koeficientas InN kambario temperatūroje galima nustatyti atlikus krūvininkų rekombinacijos spartos priklausomybės nuo temperatūros tyrimus. Jei stebimas rekombinacijos spartos augimas būtų dėl spindulinės rekombinacijos, koeficientas B^* nuo temperatūros turėtų priklausyti pagal gerai žinomą Lasher-Stern dėsnį, t.y. $B(T) \propto T^{\gamma}$, kur $\gamma = -3/2$ [3]. 3.10 paveiksle pavaizduotos difrakcijos efektyvumo kinetikos skirtingose temperatūrose #1 ir #2 InN bandiniuose bei skaitmeninio modeliavimo rezultatai kai rekombinacijos spartos kitimą nuo temperatūros lemia spindulinė rekombinacija. Skaitmeniniame modeliavime laikėme, kad *SRH* rekombinacijos trukmė nuo temperatūros kinta 3.9 paveiksle pavaizduotu dėsniu $1/\tau \propto \sqrt{T}$. Iš pateiktų paveikslų matome, kad išmatuotos η kinetikų gesimo trukmių priklausomybės nuo temperatūros tendencijos neatitinka (yra priešingos) spindulinės rekombinacijos spartos kitimo nuo temperatūros.





Kadangi mūsų įvertintos B^* koeficiento vertės (žiūr. 3.11 pav.) priklauso nuo pusiausvirųjų krūvininkų tankio n_0 bandinyje (tuo pačiu galima laikyti, kad ir nuo defektų tankio) netiesine krūvininkų mes rekombinaciją InN aiškiname kaip gaudyklių itakota Ožė rekombinaciją. Netiesinės rekombinacijos koeficientas B^* susideda iš dviejų dedamuju: krūvininkų spindulinės rekombinacijos ir gaudyklių itakotos Ožė rekombinacijos,

kadangi jų spartos priklausomybė nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio yra tokio paties laipsnio [4]:

$$B^* = B + B_{TAAR} = B + C_{TAAR} N_T, \qquad (3.1)$$

kur B – spindulinės rekombinacijos koeficientas, C_{TAAR} – gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos koeficientas, N_T – aktyvių gaudyklių tankis. Pagal skaitmeniniu modeliavimu įvertintą koeficiento B^* verčių dydį galime manyti, kad kambario temperatūroje InN galioja sąlyga $B \ll B_{TAAR}$, o nustatytos B^* vertės atitinka B_{TAAR} vertes.

Bandinio Nr.	$n_0 ({\rm cm}^{-3})$	τ (ns)	$B^* (\mathrm{cm}^3/\mathrm{s})$	$C (\mathrm{cm}^{6}/\mathrm{s})$	$C_{\mathrm{TAAR}} (\mathrm{cm}^{6}/\mathrm{s})$
#1	$1,4 \times 10^{18}$	1,45	4×10 ⁻¹⁰	—	2,8×10 ⁻²⁸
#2	$2,1 \times 10^{18}$	0,32	5,5×10 ⁻¹⁰	_	2,6×10 ⁻²⁸
#3	$3,5 \times 10^{18}$	0,8	16×10 ⁻¹⁰	10 ⁻²⁹	4,6×10 ⁻²⁸
#4	$4,7 \times 10^{18}$	0,12	32×10 ⁻¹⁰	_	6,4×10 ⁻²⁸

3.2 lentelė. Skaitmeninio modeliavimo InN sluoksniuose rezultatų suvestinė.

Jei laikysime, kad sąryšis tarp pusiausvirųjų krūvininkų tankio n_0 ir N_T tirtuose InN bandiniuose yra tiesioginis (t.y. $n_0 \approx N_T$), pagal (3.1) galime kiekybiškai įvertinti gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos koeficiento C_{TAAR} vertes. Padarius anksčiau minėtas prielaidas tirtuose InN bandiniuose įvertinta C_{TAAR} vertė kambario temperatūroje yra $(4,5\pm2)\times10^{-28}$ cm⁶/s. 3.2 lentelėje pateikiama skaitmeninio modeliavimo InN sluoksniuose rezultatų suvestinė.

Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados

- ▶ Išmatuoti sugerties spektrai parodė, kad InN bandiniuose didėjant pusiausvirųjų krūvininkų tankiui dėl Burstein–Moss efekto padidėja optiškai matuojamos draustinių energijų tarpo vertės. Įvertintos E_g vertės keičiasi nuo 0,66 eV bandinyje su $n_0=1,4\times10^{18}$ cm⁻³ iki ~1,9 eV bandinyje, kuriame $n_0\approx10^{20}$ cm⁻³.
- Išmatuotos šviesa indukuoto praskaidrėjimo kinetikos tiesiogiai neparodo nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės, o atspindi

laidumo/valentinės juostos būsenų užpildos dinamiką ties zonduojančio pluoštelio kvanto energija. Būsenų užpildos dinamika rodo krūvininkų rekombinacijos ir jų energetinio persiskirstymo juostose trukmės vidutinę vertę.

- Nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trumes InN naudojant skirtuminio pralaidumo metodiką galima išmatuoti registruojant laisvakrūvės sugerties signalą, kurio amplitudė yra proporcinga nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui. Laisvakrūvė sugertis InN sluoksniuose gali būti registruojama zonduojančiam pluošteliui naudojant lazerinę spinduliuotę, kurios kvanto energija yra ~150 meV žemesnė nei InN E_g.
- ➢ Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta InN yra atvirkščiai proporcinga jų tankiui, kai krūvininkų tankis kinta nuo 10^{18} – 10^{20} cm⁻³. Skaitmeniškai modeliuojant laisvakrūvės sugerties kinetikas įvertintas netiesinės rekombinacijos koeficientas *B**, kurio vertė kinta nuo 4×10⁻¹⁰ cm³/s bandinyje kur *n*₀=1,4×10¹⁸ cm⁻³ iki 32×10⁻¹⁰ cm³/s bandinyje kur *n*₀=4,7×10¹⁸ cm⁻³.
- ➢ Nustatyta, kad įvertintos B^{*} vertės nėra spindulinės rekombinacijos koeficientas, o netiesinės rekombinacijos mechanizmas priskirtas gaudyklių įtakotai Ožė rekombinacijai. Taip pat įvertinta gaudyklių įtakotos Ožė rekombinacijos koeficiento C_{TAAR} vertė, kuri yra C_{TAAR}=(4,5±2)×10⁻²⁸ cm⁶/s.
- Nustatyta, kad nepusiausvirųjų skylių InN judrio vertė kai T=295 K yra apytiksliai μ_h≈40 cm²/Vs ir μ_h≈200 cm²/Vs kai T=100 K, o dominuojantis krūvininkų sklaidos mechanizmas šiame intervale (stipriai sužadintame InN) yra sklaida akustiniais fononais.

4. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimai In_xGa_{1-x}N sluoksniuose su skirtingu In kiekiu

Nitridiniai puslaidininkiai susilaukia itin daug dėmesio tarptautiniu mastu dėl labai plačių jų pritaikymo galimybių. Nitridinių puslaidininkių šeima susideda iš kelių tiesiatarpių puslaidininkių, kurių trinarių junginių draustinių energijų tarpas gali būti varijuojamas labai plačiame intervale. 4.1 paveiksle pavaizduota kaip keičiasi nitridinių trinarių junginių draudžiamųjų energijų tarpas $E_{\rm g}$ keičiant kurios nors komponentės kiekį. $E_{\rm g}$ nuo 0,7 eV (InN) iki





6,2 eV (AlN) galima keisti keičiant vienos trinario junginio komponentės moline dalį. Kadangi InGaN draudžiamųjų energijų juostos tarpas perkloja visą regimąją spektro dalį, tai iš vienos medžiagos būtų galima pagaminti tris skirtingomis spalvomis (raudona, žalia ir mėlyna) šviečiančius šviestukus. Tai atitiktų visų kietakūnių šviestuvų gamintojų svajonę vienlustį kietakūnį šviestuką. Taip pat šios InGaN savybės vilioja ir

saulės elementų gamintojus, nes InGaN pranašumai saulės energetikoje yra: i) tolygiai keičiamas E_g visame saulės spinduliuotės spektre, ii) atsparumas didelės energijos jonizuojančiai spinduliuotei (palanku panaudojimui atvirame kosmose), iii) kristalo fononų spektro ypatybės, kurios galimai leistų sulėtinti "karštų" krūvininkų aušimą [19, 54].

In_xGa_{1-x}N su mažu In kiekiu (x=0,01-0,2) jau plačiai naudojamas pramonėje, iš jo gaminami ultravioletiniai ir mėlyni šviestukai ir puslaidininkiniai lazeriai [55, 56]. Taip pat parodyta, kad mažas In kiekis

padidina šviestuko aktyvaus InGaN sluoksnio liuminescencijos išeiga [20], jame gausu nors taškiniu defektu ir dislokacijų. Tai plačiatarpiai šios nitridų grupės junginiai. Tačiau net ir šios technologijos susiduria su problemomis: atrastas šviestukų našumo sumažėjimas didėjant per jį tekančios srovės stipriui (angl. *efficiency droop*), pastarojo efekto apie 0 priežastis diskutuojama iki šiol ir joms skiriamas didžiulis



4.2 paveikslas. Šviestukų išorinio kvantinio našumo priklausomybė nuo spinduliuojamo bangos ilgio (taškai) ir žmogaus akies jautrio priklausomybė nuo bangos ilgio (ištisinė linija). Pagal [19].

mokslininkų grupių dėmesys [57-63]. 4.2 paveiksle pavaizduota kaip keičiasi InGaN pagrindu gaminamų šviestukų išorinis kvantinis našumas (EQE) didėjant In kiekiui InGaN trinariame junginyje. Matome, kad einant į ilgesnių bangų pusę, link žmogaus akies jautrumo smailės, EQE drastiškai sumažėja. Šis tarpas dviejų technologijų (InGaN ir (AlGa)InP) sankirtoje tarp mokslininkų skambiai vadinamas "žaliuoju mirties slėniu" (angl. green valley of death).

Nepaisant didelio postūmio InGaN auginimo technologijoje, nemaža dalis fizikinių ir cheminių InGaN junginių savybių yra paremta ekstrapoliacija tarp dviejų dvinarių puslaidininkių – GaN ir InN. GaN yra pakankamai ištyrinėtas ir galima rasti nemažai apžvalginių straipsnių apie šį puslaidininkį [64-66], tačiau žinios apie InN nėra tokios gilios. Vien faktas, kad InN draustinių energijų tarpo vertė tik 2002 metais buvo patikslinta ir yra ne 1,9 eV, kaip ilgai manyta, o 0,65–0,7 eV parodo, kad InGaN ekstrapoliuoti duomenys tarp GaN ir InN nėra patikimi. Yra žinoma, kad auginimo sąlygos ir technologija stipriai įtakoja struktūrines, elektrines ir optines InGaN sluoksnių savybes. Nežymus auginimo sąlygų pokytis (III/V santykis, slėgis ir tt.) gali lemti didelius skirtumus galutinių InGaN sluoksnių parametruose. Todėl yra svarbu suprasti ir analizuoti InGaN auginimo sąlygas taip padedant optimizuoti iš InGaN auginamų prietaisų parametrus.

In_xGa_{1-x}N sluoksniai su dideliu In kiekiu (x>0,3) yra mažiausiai ištyrinėti iš visos nitridų šeimos. Apie tai galima spręsti palyginus publikacijų kiekius per pastaruosius metus. Nors jie yra aktualūs tiek puslaidininkinių šviestukų/lazerių, tiek saulės elementų gamyboje, tačiau jų auginimo technologijos nėra iki galo optimizuotos. Užauginti sluoksniai pasižymi dideliu pusiausvirųjų krūvininkų tankiu ir sparčia nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija. Kadangi InGaN sluoksniai dažniausiai auginami ant safyro padėklų, heteroepitaksinis auginimas kai tarp gardelės konstantų yra didelis neatitikimas lemia didelį išplėstinių defektų tankį, kurie kaip manoma lemia savąjį n-tipą InGaN ir InN [35]. Siekiant optimizuoti InGaN su dideliais In kiekiais auginimo technologiją ir prietaisų gamyboje naudojamas procedūras yra reikalingi tyrimai galintys padėti susieti struktūrines ir (foto)elektrines tokių sluoksnių savybes.

Tarptautinėje mokslininkų visuomenėje pastaruoju metu vyksta itin aktyvi diskusija apie vidinio kvantinio našumo (IQE) ar išorinio kvantinio našumo (EQE) mažėjimo priežastis didėjant srovei šviestukuose su $In_xGa_{l-x}N$ aktyviais sluoksniais. [67] darbe yra apžvelgiamos kelios iškeltos galimos versijos tačiau nei viena nėra pilnai patvirtinta ir visuotinai priimta. Darbuose EQE mažėjima InGaN šviestukuose, kuriuose apie publikuojami elektroliuminescencijos eksperimentiniai rezultatai, dažniausiai tiriamos prietaisų sandaros yra sudėtingos daugiasluoksnės struktūros su uždėtais elektriniais kontaktais. Taigi tyrimu rezultatu išvados, kad dėl EQE mažėjimo yra atsakinga nepakankama skylių injekcija ir nuotėkis [68] ar aktyvios srities kaitimas [69] gali būti įtakojamos pačios tiriamos struktūros niuansų. Taip pat šie metodai leidžia registruoti tik spinduliniu būdu rekombinavusių krūvininkų dinamika, nespindulinių rekombinacijos kanalų 0 itaka ivertinama netiesioginiais skaičiavimais. Kita vertus yra publikuotų rezultatų, kad IQE

54

mažėjimas yra stebimas tūriniame GaN [70]. Pastarasis rezultatas, gautas PL metodu, leidžia manyti, kad IQE mažėjimo priežastimi gali būti savasis medžiagos nespindulinės rekombinacijos mechanizmas. Todėl yra tikslinga tiriamus objektus kiek galima supaprastinti, pavyzdžiui vietoje pilnos šviestuko struktūros eksperimentams naudoti tik aktyviąją sritį iš daugybinių InGaN/GaN kvantinių lakštų (angl. *Multiple Quantum Well*) ar vienetinį "kvazitūrinį" InGaN sluoksnį. Pastaruoju atveju būtų išvengiama kvantinio Štarko efekto įtakos analizuojant ir interpretuojant rezultatus apie IQE mažėjimą.

Vienas iš aukščiau aprašytų problemų (šviestukų IQE ar EQE mažėjimas, šiam reiškiniui tirti naudojamų tyrimų metodikų ypatybės ir tyrimuose naudojamų objektų ypatybės) sprendimo būdų yra tyrimus atlikti naudojant metodikas ir sąlygas, kurios leidžia tiesiogiai įvertinti tiek spindulinės tiek nespindulinės krūvininkų rekombinacijos spartas, o tyrimuose naudoti įvairias heterosandaras. Šiame skyriuje bus pateikiami InGaN sluoksnių su In kiekiu $0,13 \le x \le 0,9$ tyrimų naudojant šviesa indukuotų gardelių metodiką rezultatai. Pateikiamos nepusiausvirųjų dinaminių krūvininkų gyvavimo trukmės verčių priklausomybės nuo jų tankio ir bandinio temperatūros, taip pat skaitmeninė šių priklausomybių analizė. Šiais rezultatais parodoma, kad nepusiausvirujų krūvininkų rekombinacija InGaN sluoksniuose su In kiekiu 0.8 < x < 0.9 yra įtakojama lokalizacijos efektų. Parodoma, kad InGaN sluoksnyje su 13% In nepusiausvirujų krūvininkų rekombinacijos trukmės vertės lemiamos difuzijos ribotos rekombinacijos, yra 0 rekombinacijos sparta yra atvirkščiai proporcinga krūvininkų tankiui. Pateikiama skaitmeninio modeliavimo metodu ivertinta spindulinės rekombinacijos koeficiento vertė kambario temperatūroje. Taip pat šiame skyriuje InGaN daugybinių kvantinių lakštų (toliau MQW) su skirtingu In kiekiu (0,034<x<0,16) tyrimais naudojant PL, DG ir SP metodikas parodoma, kad nepusiausvirujų krūvininkų dinamika InGaN MQW yra stipriai įtakojama krūvininkų lokalizacijos efektų – tai rodo mažėjanti nepusiausvirųjų krūvininkų difuzijos koeficiento vertė ir tuo pačiu ilgėjanti jų gyvavimo trukmė, kai kvantiniame lakšte didėja In kiekis. Difrakcijos efektyvumo

55

kinetikų skaitmeninio modeliavimo rezultatais parodoma, kad šiuose bandiniuose krūvininkų gyvavimo trukmę lemia rekombinacijos mechanizmas priklausantis nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio.

4.1 Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos ypatumų tyrimai DG metodika In_xGa_{1-x}N sluoksniuose su x>0,7

4.1 lentelėje yra pateikiami tirtų InGaN sluoksnių parametrai. #1–#3 bandiniai su dideliu In kiekiu buvo užauginti Graikijos mokslininkų laboratorijoje MBE metodu ant safyro (0001) padėklų naudojant GaN pasluoksnį. Skirtingas In kiekis buvo įterpiamas keičiant Ga ir In atomų srautus laikant N atomų srautą pastovų. Siekiant sumažinti In atomų desorbciją ir tuo

4.1 lentelė. Tirtų In_{*x*}Ga_{*1-x*}N sluoksnių parametrai.

Bandinio Nr.	Storis (µm)	In kiekis (x)
#1	0,5	0,9
#2	0,6	0,8
#3	0,65	0,7
#4	0,05	0,13



4.3 paveikslas. Tirtų InGaN sluoksnių sugerties spektrai.

pačiu pasiekti kuo geresnį jų judrumą auginamo kristalo paviršiumi buvo pasirinkta 400 °C auginimo temperatūra [71]. #4 InGaN sluoksnis buvo užaugintas kompanijos AIXTRON MOCVD reaktoriumi Achene (Vokietija) (0001)ant safyro padėklo naudojant ~3 µm GaN pasluoksnį. 4.3 paveikslo kairėje dalyje pavaizduoti išmatuoti tirtų InGaN sluoksnių su dideliu In kiekiu sugerties spektrai. Matome, kad #1 ir #2 bandiniuose E_g yra ~1 eV.

4.4 paveiksle pavaizduotos #1–#3 bandinių difrakcijos efektyvumo η kinetikos kai žadinančio pluoštelio bangos ilgis yra $\lambda_p=532 \text{ nm}$ ($hv \gg E_g$), o zonduojančio pluoštelio bangos ilgis $\lambda_z=1064 \text{ nm}$. Matome, kad didėjant Ga kiekiui bandinyje trumpėja η kinetikų gesimo trukmė. Ilgiausia dinaminės gardelės irimo trukmė $\tau_G\approx180 \text{ ps}$ išmatuota #1 bandinyje su 90% In. Reikia pažymėti, kad visuose bandiniuose buvo stebėtas terminės gardelės



4.4 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikos #1-#3 InGaN bandiniuose, kai žadinančio pluoštelio hv=2,32 eV.

formavimasis. Kadangi lūžio rodiklio pokytis dėl nepusiausvirųjų krūvininkų $\Delta n_{\rm LK}$ ir dėl temperatūros $\Delta n_{\rm T}$ yra priešingų ženklų ($\Delta n_{\rm LK} < 0$, o $\Delta n_{\rm T}$ >0), tad kai šių pokyčių vertės susilygina $|\Delta n_{LK}| = |\Delta n_T|$ stebime idubima η kinetikose (žiūr. 4.4 pav. #3 bandinio kinetiką ties 100 ps). Terminė gardelė šiuo atveju gali susidaryti dėl: i) sparčios krūvininku rekombinacijos

nespinduliniu būdu kai elektrono-skylės poros energija išspinduliuojama fononais; ii) "auštančių" nepusiausvirųjų krūvininkų perteklinės energijos virš tiriamos medžiagos E_g . Šiuo atveju žadinančios šviesos hv=2,32 eV, o bandinių $E_g\approx$ 1 eV, tad energijos perviršis \approx 1,3 eV. Tačiau reikia pastebėti, kad sparčiausia η kinetika, tuo pačiu ir efektyviausias terminės gardelės formavimasis buvo išmatuotas bandinyje, kuriame In kiekis buvo 0,7, t.y. su didžiausiu E_g . Pastarasis rezultatas leidžia manyti, kad terminės gardelės susidarymo priežastis yra ne žadinančios šviesos kvanto energijos perteklius virš tiriamos medžiagos E_g (nes perteklius mažėja didėjant medžiagos E_g), o spartesnė nepusiausvirųjų krūvininkų nespindulinė rekombinacija, kuri spartėja didėjant Ga kiekiui bandinyje. Siekiant išvengti terminės gardelės įtakos vėlesni eksperimentai buvo atliekami žadinančiam pluošteliui naudojant 1064 nm bangos ilgio spinduliuotę, o dinaminė gardelė buvo zonduojama su 1800 nm bangos ilgio pluošteliu.



4.5 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikų gesimo trukmės priklausomybė #1 InGaN bandinyje nuo žadinančios energijos tankio kambario (**a**) ir 10 K temperatūroje (**b**).



4.6 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikų gesimo trukmės priklausomybė #2 InGaN bandinyje nuo žadinančios energijos tankio kambario (**a**) ir 10 K temperatūroje (**b**).

4.5 ir 4.6 paveiksluose pavaizduotos η kinetikų priklausomybės nuo žadinančios energijos tankio I skirtingose temperatūrose #1 ir #2 InGaN bandiniuose. Dinaminės gardelės periodas buvo pasirinktas pakankamai didelis $(A=10 \,\mu\text{m})$, kad difuzinė gardelės irimo trukmė mažai įtakotų matuojamų η kinetiku gesimo trukmes. Matome, kad η kinetikos susideda iš dvieju komponenčių: pirmoji sparti, beveik lazerio impulsą kartojanti dalis, ir antroji dalis, lėtoji komponentė. Sparčiosios komponentės amplitudė nežymiai auga tiek didinant žadinančios energijos tankį, tiek mažinat bandinio temperatūrą. Tuo tarpu lėtosios komponentės gesimas spartėja didinat žadinančios energijos tankį. Gardelės irimo trukmė τ_G #1 bandinyje sutrumpėjo nuo 550 iki 150 ps žadinančios energijos tankiui padidėjus nuo 0,15 iki 5 mJ/cm². #2 bandinyje τ_{G} vertės varijavo nuo 500 iki 400 ps padidinus I nuo 0,15 iki 1,25 ps. Kambario temperatūroje prie didžiausių energijos tankio verčių (I=10 mJ/cm² #1 bandinyje ir $I=5-10 \text{ mJ/cm}^2 \#2$ bandinyje) taip pat buvo stebėtas terminės gardelės susiformavimas. Žemoje temperatūroje (T=10K) taip pat stebėta η kinetikų gesimo trukmių priklausomybė nuo I, tačiau τ_G vertės buvo didesnės lyginant su kambario temperatūra: τ_G vertė #1 bandinyje sumažėjo nuo 4,5 ns iki 1,2 ns žadinančios energijos tankį padidinus nuo 0,15 iki 10 mJ/cm², #2



4.7 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikų gesimo trukmės priklausomybė nuo temperatūros (**a**) #1 ir (**b**) #2 InGaN bandiniuose kai I=0,3 mJ/cm².

bandinyje τ_G vertės kito nuo 5,8 iki 1,7 ns padidinus I nuo 0,15 iki 10 mJ/cm². η kinetikų gesimo trukmių mažėjimą didinant žadinančios energijos tankį gali (tokiu lemti spindulinė nepusiausvirujų krūvininkų rekombinacija atveju 1/ $\tau_{sp} \propto BN$, kur B – spindulinės rekombinacijos koeficientas), tačiau $\tau_{\rm G}$ vertės nuo temperatūros turėtų priklausyti pagal Lasher-Stern dėsnį, kuris nurodo priklausomybę $B \propto T^{-3/2}$, taigi ir $1/\tau_G \propto T^{-3/2}$ [3]. 4.7 paveiksle pavaizduotos difrakcijos efektyvumo kinetikos #1 ir #2 InGaN bandiniuose esant skirtingoms bandinio temperatūroms ir pastoviam žadinančios energijos tankiui. Matome, kad abiejuose bandiniuose η kinetikų gesimo sparta mažėja žemėjant bandinio temperatūrai. τ_G #1 bandinyje padidėja nuo 0,55 iki 4,5 ns, o #2 bandinyje nuo 0,46 iki 5 ns bandinio temperatūrai pakitus nuo 295 iki 10 K. Šioms τ_G verčių priklausomybėms nuo temperatūros aprašyti pritaikėme Arenijaus kuri naudojama fizikiniu lygti (1.11),procesu spartos priklausomybės nuo temperatūros aprašymui. Tokiu būdu įvertinome



4.8 paveikslas. (taškai) τ_{G} verčių nuo atvirkštinės šiluminės priklausomybės energijos #1 ir 2# bandiniuose kai $I=0,3 \text{ mJ/cm}^2$. Ištisinė linija vaizduoja Arenijaus funkciją su ΔE ir τ_0 parametrais pateiktais paveiksle.

nepusiausvirujų krūvininkų gyvavimo trukmės aktyvacijos energiją ∠E #1 ir #2 InGaN bandinyje kai žadinančios energijos tankis yra $0,3 \text{ mJ/cm}^2$. 4.8 paveiksle pateiktos verčių τ_{G} priklausomybės nuo atvirkštinės šiluminės energijos #1 ir 2# bandiniuose kai $I=0,3 \text{ mJ/cm}^2$. Apskaičiuota ΔE vertė buvo apytiksliai lygi 19 meV abiejuose bandiniuose. Ivertintos nepusiausvirujų krūvininkų gyvavimo trukmės vertė žemoje temperatūroje taip

pat buvo apytiksliai lygi 5 ns abiejuose bandiniuose. Tokio pobūdžio τ priklausomybė nuo temperatūros leidžia manyti, kad nepusiausvirieji krūvininkai yra lokalizuojami dėl potencinių barjerų ir jų judėjimas kristale yra apribotas. Potencinių barjerų prigimčiai paaiškinti literatūroje yra pasiūlyti du modeliai: i) InGaN Eg fliuktuacijos dėl netolygaus In pasiskirstymo ar sankaupų [6, 7, 72, 73], ii) įkrautų dislokacijų, kurios kuria potencinius barjerus [5]. Pirmuoju atveju krūvininkai yra lokalizuojami potenciniuose minimumuose ir negali "pabėgti" kol jų kinetinė energija yra mažesnė už barjerų gylį ($kT < \Delta E$). Taip pat šiuo atveju galima būtų manyti, kad krūvininkų rekombinacijos centrai yra ne potenciniuose minimumuose, kadangi žemoje temperatūroje (t.y. "stipresnės" lokalizacijos atveju) padidėja krūvininkų gyvavimo trukmės vertės. Antruoju atveju dislokacijos pagavusios elektroną tampa neigiamai įkrautos. Erdvinio krūvio sritis aplink tokią dislokaciją sukuria $E_{\rm g}$ moduliaciją, kuri tampa potenciniu barjeru nepusiausviriesiems krūvininkams laidumo bei valentinėje juostose. Kadangi erdvinio krūvio srities radiusas yra apytiksliai lygus Debajaus ekranavimo nuotoliui $\lambda_D = \sqrt{\frac{\mathcal{E}\mathcal{E}_0 kT}{\rho^2 n}}$, tiek temperatūra, tiek nepusiausvirųjų krūvininkų fotosužadinimas gali įtakoti efektyvų erdvinio krūvio srities aplink įkrautas dislokacijas poveikio dydį. Debajaus ekranavimo nuotolis mažėja žemėjant temperatūrai tad dislokacijų kaip sparčių rekombinacijos centrų įtaka taip pat mažėja. Tai paaiškintų stebėtą krūvininkų gyvavimo trukmių verčių didėjimą žemėjant temperatūrai. Taip pat, stipraus fotosužadinimo sąlygomis, tokie potenciniai barjerai būtų ekranuojami nepusiausvirųjų krūvininkų ir dislokacijų įtaka rekombinacijoje padidėtų. Tai paaiškintų τ_G priklausomybes nuo žadinančios energijos tankio (t.y. nepusiausvirųjų krūvininkų tankio). Kadangi tirtuose bandiniuose buvo didelis (~10¹⁹ cm⁻³) pusiausvirųjų krūvininkų tankis n₀, o InN ir GaN savojo n-tipo viena iš priežasčių yra kraštinės (angl. edgetype) dislokacijos [31] ir aplink jas susikaupusios azoto vakancijos (V_N^+) [33]

tikėtina, kad ir tirtuose InGaN sluoksniuose yra didelis dislokacijų tankis.

Laikant, kad ΔE aukščio ar gylio potenciniai barjerai atskiria spindulinės ir nespindulinės rekombinacijos sritis, iš priklausomybės $\tau = f(T)$ įvertinta krūvininkų gyvavimo trukmė τ_0 10 K temperatūroje gali būti įtakota spindulinės krūvininkų rekombinacijos. Tačiau silpna τ_G priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio net ir 10 K temperatūroje rodo, kad spindulinė nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos trukmė yra daug didesnė už nespindulinės rekombinacijos, t.y. nespindulinė rekombinacija yra žymiai efektyvesnė tirtuose bandiniuose.

4.2 Rekombinacijos spartos priklausomybės nuo nepusiausvirųjų krūvininkų jų tankio ir bandinio temperatūros tyrimas $In_xGa_{I-x}N$ sluoksnyje su x=0,13

50 nm storio #4 InGaN sluoksnio sugerties spektras pavaizduotas 4.3 paveikslo dešinėje dalyje. Atsižvelgiant į tiriamo bandinio E_g dinaminių gardelių užrašymui buvo pasirinktas 355 nm bangos ilgio pluoštelis, kurio kvanto energija yra 3,49 eV ($hv>E_g$). Dinaminės gardelės irimo dinamika buvo zonduojama su 1064 nm bangos ilgio pluošteliu.

4.9 paveikslo **a**) dalyje pavaizduota η kinetikų gesimo priklausomybė nuo žadinančios šviesos energijos tankio #4 InGaN bandinyje kambario temperatūroje kai dinaminės gardelės periodas Λ =12 µm. Tokiu atveju difuzinė gardelės irimo trukmė $\tau_{\rm D}$ mažai įtakoja matuojamą η kinetikų gesimo trukmę ir galime laikyti, kad gardelės irimo trukmė τ_G yra lygi nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmei τ (kai Λ =12 µm, o tipinė difuzijos koeficiento D vertė GaN yra apie 1,7 cm²/s [74, 75], tai $\tau_D \approx 21$ ns). Matome, kad krūvininkų rekombinacijos sparta auga didėjant žadinančios energijos tankiui I. Taip pat I esant didesniam už 0,18 mJ/cm² η kinetikos pradinėje dalyje galime matyti atsiradusią aštrią smailę, kuri kartoja žadinančio lazerio impulsą. Ši greita atsiranda dėl priverstinės (spindulinės) nepusiausvirųjų komponentė krūvininkų rekombinacijos. η kinetikų spartėjimas didinant I rodo, kad krūvininkų rekombinacija lemia nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio



4.9 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikų gesimo trukmės priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio (**a**) ir difrakcijos efektyvumo signalo priklausomybės nuo žadinančios energijos tankio esant skirtingiems zonduojančio pluoštelio vėlinimams (**b**) #4 InGaN bandinyje kambario temperatūroje.

priklausantis rekombinacijos mechanizmas. Bendru atveju laikoma, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta InGaN gali būti užrašyta kaip tiesinės *SRH*, spindulinės ir Ožė rekombinacijos spartų suma $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{SRH}} + \frac{1}{\tau_{sp}} + \frac{1}{\tau_{Ože}} = \sigma v_{th} N_T + BN + CN^2$. Šiuo atveju nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio gali priklausyti tik spindulinės ir Ožė rekombinacijos spartos. Nehomogeniškuose ir defektuotuose puslaidininkiniuose kristaluose galimi ir kiti rekombinacijos mechanizmai priklausantys nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio: i) difuzijos ribojama krūvininkų rekombinacija ties kristalo defektais GaN [30]; ii) difuzijos koeficiento išaugimas ir *B* verčių sumažėjimas išsigimusiame puslaidininkyje kai krūvininkų tankis viršija 10¹⁸ cm⁻³ [63]; iii) potencinių barjerų aplink dislokacijas ekranavimas taip paspartinant krūvininkų rekombinacija ties jomis [76].

Išmatavę η kinetikų gesimo trukmių priklausomybes nuo dinaminės gardelės periodo (Λ =12–2,9 µm) ir jas išanalizavę 2 skyriuje aprašytu metodu įvertinome difuzijos koeficiento verčių priklausomybę nuo žadinančios energijos tankio #4 InGaN bandinyje. Difuzijos koeficiento verčių suvestinė pateikta 4.2 lentelėje. Matome, kad *I* padidinus beveik eile *D* vertės išlieka pastovios.

4.2 lentelė. Difuzijos koeficiento verčių #4 InGaN bandinyje kambario temperatūroje priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio.

$I (mJ/cm^2)$	0,01	0,02	0,04	0,08
$D (\mathrm{cm}^2/\mathrm{s})$	0,9±0,1	1,2±0,2	1,1±0,1	1±0,1

Skaitmeniniam η kinetiku modeliavimui reikalinga sugerties koeficiento α verte ivertinome iš η signalo priklausomybių nuo I esant skirtingiems zonduojančio pluoštelio vėlinimams, kurios pavaizduotos 4.9 paveikslo b) dalyje. Kai zonduojamas didžiausias žadinančio pluoštelio sukurtas nepusiausvirųjų krūvininkų tankis ($\Delta t=0$ ps) I pasiekus ~0,2 mJ/cm² η signalas pasiekia pastovią vertę, o toliau didinant I pradeda vėl augti. η signalas ties $I \approx 0.2 \text{ mJ/cm}^2$ isisotina dėl itin sparčios priverstinės (spindulinės) rekombinacijos InGaN. Esant didesniam nepusiausviruju krūvininku tankiui jie akimirksniu rekombinuoja spinduliniu keliu. Taigi, galime laikyti, kad I esant 0.2 mJ/cm^2 pasiekiamas didžiausias galimas $(\approx 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3})$ apie nepusiausvirųjų krūvininkų tankis tiriamame InGaN bandinyje. Vėlesnis η signalo augimas prie didesnių už 0,3 mJ/cm² I verčių yra stebimas dėl po InGaN sluoksniu esančio apie 2 µm storio GaN pasluoksnio, kadangi tirtas InGaN sluoksnis tėra 50 nm storio, todėl dalis žadinančios 355 nm bangos ilgio spinduliuotės prasiskverbia į GaN pasluoksnį ir jame kuria nepusiausviruosius krūvininkus. Pratęsdami η signalo priklausomybę GaN pasluoksnyje į mažesnių I pusę įvertinome santykį tarp signalų iš InGaN ir GaN (4.9 pav. b) priedėlis). Difrakcijos signalas yra proporcingas nepusiausvirųjų krūvininkų tankio kvadratui $(\eta \propto \Delta N^2)$, o nepusiausvirujų krūvininkų tankis yra proporcingas sugerties koeficientui ($\Delta N \propto I_0 \cdot \alpha \cdot \exp(-\alpha \cdot z)$). Išsprendę lygčių sistema:

$$\begin{cases} (\Delta N_{InGaN} + \Delta N_{GaN})^2 = \frac{Y_1}{Y_1}, \\ (\Delta N_{GaN})^2 = \frac{Y_2}{Y_1}, \end{cases}$$
(4.1)

gauname, kad šaknis iš santykio tarp signalų InGaN ir GaN leidžia įvertinti sugerties koeficientą InGaN sluoksnyje ties 3,49 eV šviesos kvanto energija:

$$\alpha_{InGaN}(3,49eV) = -\frac{\ln\left(\sqrt{\frac{Y_2}{Y_1}}\right)}{d} = 1,6 \times 10^5 cm^{-1}.$$
(4.2)

4.10 paveiksle pavaizduota išmatuotų (taškai) bei skaitmeniškai sumodeliuotų (ištisinės linijos) η kinetikų priklausomybė nuo *I* #4 InGaN bandinyje kambario temperatūroje naudojant paveiksle pateiktus parametrus. Matome, kad η kinetikų gesimo spartėjimą kambario temperatūroje pavyko aprašyti įskaitant vien tik netiesinę nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinaciją su koeficientu *B*=7×10⁻¹¹ cm³/s.

Išmatave η kinetiku gesimo priklausomybes nuo dinaminės gardelės periodo skirtingose bandinio temperatūrose įvertinome D ir τ verčių #4 InGaN bandinyje priklausomybes nuo bandinio temperatūros esant pastoviam žadinančios energijos tankiui $(I=60 \ \mu J/cm^2, \Delta N \approx 4 \times 10^{18} \ cm^{-3}),$ kurios pavaizduotos 4.11 paveikslo a) dalyje. Matome, kad D ir τ vertės koreliuoja didėjant tarpusavyje _ D



4.10 paveikslas. Išmatuotos (taškai) ir naudojant paveiksle pateiktus parametrus skaitmeniškai sumodeliuotos (linijos) difrakcijos efektyvumo kinetikos #4 InGaN bandinyje kambario temperatūroje.

 $(D \propto T^{-1/2})$ proporcingai mažėja τ ($\tau \propto T^{1/2}$). Tokia koreliacija leidžia manyti, kad krūvininkų rekombinacijos trukmė yra valdoma jų difuzijos link defektų, t.y. difuzijos ribota rekombinacijos sparta (panašios tendencijos buvo stebėtos aukštos kokybės mažo defektiškumo GaN sluoksnyje kur buvo stebėta tiesinė priklausomybė tarp *D* ir τ verčių ($\tau \propto T$ ir $D \propto 1/T$) [30, 77]). Jei krūvininkų rekombinacija vyktų per taškinius defektus, *SRH* rekombinacijos sparta būtų aprašoma $1/\tau_R = N_T \sigma v_{th}$, kur krūvininkų terminis greitis $v_{th} \propto T^{1/2}$, tad ir $1/\tau_R \propto T^{1/2}$. Mūsų atveju stebima atvirkštinė rekombinacijos spartos priklausomybė $1/\tau_R \propto T^{-1/2}$ patvirtina difuzinę krūvininkų pernašą link nespindulinės rekombinacijos centrų-dislokacijų.



4.11 paveikslas. (a) Krūvininkų difuzijos koeficiento ir gyvavimo trukmės verčių priklausomybė nuo temperatūros kai $I=30 \ \mu J/cm^2$ ir (b) bipolinio krūvininkų judrio priklausomybė nuo temperatūros #4 InGaN bandinyje.

Bipolinio judrio μ_a priklausomybės nuo temperatūros (žiūr. 4.11 pav. b)) kai *I*=60 μ J/cm² polinkis γ =-3/2 rodo, kad dominuojantis krūvininkų sklaidos mechanizmas tirtame bandinyje yra akustiniai fononai. μ_a priklausomybės nuo *T* polinkio sumažėjimas prie dvigubai mažesnių *I* verčių (dvigubai mažesnio nepusiausvirųjų krūvininkų tankio) rodo papildomo sklaidos mechanizmo įtaką krūvininkų judriui (galimai įkrautais defektais [5, 76]). Stebėtos judrio ir τ kitimo tendencijos leistų manyti, kad defektų ekranavimas gali vesti prie krūvininkų difuzijos koeficiento didėjimo ir gyvavimo trukmių mažėjimo kai nepusiausvirųjų krūvininkų tankis siekia 10^{19} cm^{-3} . Tačiau reikia pažymėti, kad eksperimentiškai mes stebėjome gyvavimo trukmių mažėjimą kambario temperatūroje, bet difuzijos koeficiento vertės nepriklausė nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio (nors *D* ir τ verčių koreliacija ir $D(\Delta N)$ priklausomybė buvo stebėta GaN [10], kai ΔN viršijo 3– $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Gali būti, kad draustinių energijų tarpo renormalizacija InGaN gardelės maksimumuose sulėtina difuzijos spartą ir tuo būdu dalinai užmaskuoja *D* vertės padidėjimą.



4.12 paveikslas. (a) Išmatuotų (taškai) ir skaitmeniškai sumodeliuotų (linijos) difrakcijos efektyvumo kinetikų priklausomybė nuo temperatūros. (b) Skaitmeniniame modeliavime naudotų *B* verčių priklausomybė nuo temperatūros.

4.12 paveikslo a) dalyje pavaizduotos išmatuotos ir skaitmeniškai sumodeliuotos η kinetikos esant skirtingoms bandinio temperatūroms. 4.12 paveikslo b) dalyje pateikta skaitmenino modeliavimo būdu nustatytų *B* verčių priklausomybė nuo temperatūros. Skaitmeniniame modeliavime buvo atsižvelgiama į τ ir *D* verčių priklausomybes nuo temperatūros. Netiesinės rekombinacijos koeficiento vertės priklausomybė nuo temperatūros pagal Lasher–Stern dėsnį ($B \propto T^{-3/2}$) [3] leidžia manyti, kad tirtame InGaN bandinyje temperatūrų intervale 300–100 K spindulinė nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija yra dominuojantis rekombinacijos mechanizmas dideliuose nepusiausvirųjų krūvininkų tankiuose.

4.3 Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimas InGaN daugybiniuose kvantiniuose lakštuose su skirtingu In kiekiu (0,034<x<0,16)

Šiame skyrelyje bus pateikiami InGaN kvantinių struktūrų su skirtingu In kiekiu tyrimų naudojant PL, DG ir SP metodikas rezultatai. Bandiniai sudaryti iš 10 pasikartojančių 2–4 nm storio InGaN kvantinių lakštų ir 8 nm storio GaN barjerų buvo užauginti Vilniaus Universiteto mokslininkų MOCVD būdu ant safyro (0001) padėklo naudojant ~3 µm storio GaN pasluoksnį. InGaN kvantiniai lakštai buvo auginami 720 °C, o GaN barjerai 850 °C temperatūroje. Skirtingas In kiekis buvo įterpiamas varijuojant prekursorių



4.13 paveikslas. Išmatuoti PL spektrai InGaN/GaN MQW su skirtingu In kiekiu kai žadinančios energijos tankis 0,7 mJ/cm², o žadinančio pluoštelio bangos ilgis 266 nm. Skaičiai virš PL spektrų rodo In kiekį bandinyje.

TMIn/TMGa santyki, kuris auginant skirtingus bandinius kito nuo 0,5 iki 2,6. Taip pat tiriamas kontrolinis buvo bandinys, kuriame nebuvo In, t.y. jį sudarė 10 pasikartojančių GaN/GaN sluoksnių, kurie tokiomis buvo užauginti pačiomis sąlygomis kaip ir InGaN/GaN kvantiniai lakštai.

4.13 paveiksle pavaizduoti InGaN MQW su skirtingu In kiekiu PL spektrai išmatuoti kai žadinančios energijos tankis 0,7 mJ/cm², o žadinančio pluoštelio bangos

ilgis 266 nm. Iš PL spektrų smailės padėties buvo nustatytas In kiekis bandiniuose. Skaičiavimuose buvo atsižvelgta į E_g vertės padidėjimą dėl kvantinio suspraudimo efekto. Vidinio elektrinio lauko įtakai įvertinti buvo atlikti PL spektrų matavimai žadinančios energijos tankį *I* padidinus iki

~5 mJ/cm² (*I* ~7 kartus didesnis nei pateikiamas 4.13 pav.), tačiau PL spektro smailės poslinkio į didesnių energijų pusę nebuvo stebėta. Todėl galime laikyti, kad žadinančios energijos tankiui esant 0,7 mJ/cm² vidinis elektrinis laukas jau yra ekranuotas. Įvertintos In kiekio vertės kito nuo 0,034 iki 0,16. Matome, kad PL spektras išplinta didėjant In kiekiui bandinyje dėl didėjančios struktūrinės netvarkos, In kiekio ar kvantinio lakšto storio netolygumų.

Šviesa indukuotų dinaminių gardelių tyrimuose žadinančio pluoštelio bangos ilgis buvo 355 nm, o dinaminė gardelė buvo zonduojama su 1064 nm bangos ilgio pluošteliu. 355 nm bangos ilgio žadinanti spinduliuotė įsiskverbia į bandinio gylį apie ~100 nm (10 InGaN/GaN kvantinių lakštų suminis storis yra ~100 nm). Laikome, kad nepusiausvirieji krūvininkai sukurti 8 nm storio GaN barjeriniame sluoksnyje dėl difuzijos tuoj pat "sukrenta" į InGaN kvantinius lakštus, tad galime manyti, kad 70% difrakcijos signalo yra iš InGaN kvantiniuose lakštuose esančių nepusiausvirųjų krūvininkų. Žadinančios energijos tankis eksperimentuose buvo varijuojamas nuo 0,05 iki 1 mJ/cm². Mažiausią žadinančios energijos tankį lėmė naudojamos sistemos



4.14 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikos išmatuotos InGaN MQW bandiniuose su skirtingu In kiekiu kai žadinančios energijos tankis 50 μJ/cm², o dinaminės gardelės periodas 9,6 μm.

jautrumo riba, o didžiausia nepusiausvirujų krūvininkų priverstinė rekombinacija 4.14 paveiksle pavaizduotos difrakcijos efektyvumo η kinetikos InGaN MQW su skirtingu In kiekiu kai žadinančios energijos tankis $50 \,\mu\text{J/cm}^2$, 0 dinaminės gardelės periodas 9,6 µm. Kinetikos dėl aiškumo yra išskleistos vertikaliai. Šiuo atveju $\tau_{\rm G}$ vertės rodo nepusiausvirųjų krūvininkų

rekombinacijos trukmę, nes difuzijos koeficientui esant 2 cm²/s (tipinė vertė GaN) ir gardelės periodui 10 µm difuzinis gardelės irimo laikas būtų ~16 ns, o matuojamos $\tau_{\rm G}$ vertės yra ~1–3 ns. Matome, kad dinaminės gardelės irimo trukmė $\tau_{\rm G}$ ilgėja didėjant In kiekiui bandinyje. Kontroliniame bandinyje (*x*=0) difrakcijos efektyvumo kinetiką galima laikyti eksponente, o gardelės irimo trukmė 0,9 ns. Didėjant In kiekiui bandiniuose η kinetikų pradinė dalis (0–500 ps) spartėja, o "uodega" lėtėja lyginant su kontroliniu bandiniu. Bandinyje, kuriame yra 16% In $\tau_{\rm G}$ vertė padidėja iki 3,5 ns.

Išmatavę η kinetikas esant skirtingiems dinaminės gardelės periodams bei varijuodami žadinančios energijos tankį įvertinome nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės

ir difuzijos koeficiento vertes bandiniuose su skirtingu In kiekiu. Nepusiausvirujų krūvininkų difuzijos koeficiento vertė buvo apskaičiuojama gardelės irimo trukmę įvertinant iš η kinetikų "uodegu" kur η kinetikų gesimą galime laikyti eksponentiniu. 4.15 paveiksle pavaizduotos krūvininku gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento verčių priklausomybės nuo žadinančios energijos tankio. Matome, kad kai žadinančios energijos tankis yra 50 μ J/cm² difuzijos koeficiento vertė mažėja didėjant In kiekiui -



4.15 paveikslas. Nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento verčių priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio InGaN/GaN MQW bandiniuose su skirtingu In kiekiu.



4.16 paveikslas. Difrakcijos
efektyvumo kinetikos esant
skirtingiems žadinančios energijos
tankiams GaN/GaN kontroliniame
bandinyje.



nuo $1.2 \text{ cm}^2/\text{s}$ bandinyje su 3.4% In iki 0.15 cm²/s bandinyje su 15% In. Didinant žadinančios energijos tankį difuzijos koeficiento vertės auga ir įsisotina ties 1,5-2,5 cm²/s. Nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmė, atvirkščiai nei difuzijos koeficiento vertės, žadinančios energijos tankiui esant 50μ J/cm² ilgėja didėjant In kiekiui bandinyje – nuo 1,3 ns bandinyje su 3,4% In iki 3,5 ns bandinyje su 15% InN. Didinant žadinančios energijos tanki krūvininkų rekombinacija spartėja, o krūvininkų gyvavimo trukmės spartėjimas staigesnis bandiniuose, kuriuose In kiekis didesnis. Reikia pažymėti, kad kontroliniame GaN/GaN bandinyje krūvininkų gyvavimo trukmė buvo pastovi visame žadinančios energijos intervale (žiūr. 4.16 pav.). 4.17 paveiksle pavaizduota η kinetikų gesimo spartos priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio bandinyje kuriame yra 10,8% In kai dinaminės gardelės periodas 9,6 µm. Ištisinėmis linijomis pavaizduotos skaitmeniškai sumodeliuotos η kinetikos.

Skaitmeniniame modeliavime varijavome τ_R (čia τ_R vertė yra rekombinacijos per defektus trukmė), spindulinės ir Ožė rekombinacijos koeficientus *B* ir *C*, o difuzijos koeficiento vertė buvo žinoma iš matavimų. Matome, kad kinetikų gesimas spartėja didėjant žadinančios energijos tankiui. Geriausias sutapimas tarp eksperimento ir skaitmeninio modeliavimo buvo pasiektas naudojant pastovų netiesinės rekombinacijos koeficientą *B* (*B* vertė skirtinguose bandiniuose skirtinga) ir varijuojant τ_R . Pastarieji rezultatai rodo, kad šiuose eksperimentuose matuojama krūvininkų gyvavimo trukmė nėra vien tik tiesinės rekombinacijos trukmė (t.y. *SRH* rekombinacijos trukmė), kuri siejama su krūvininkų rekombinacija per defektus, o gali būti kelių rekombinacijos mechanizmų spartų suma.



4.18 paveikslas. (a) Lokalizuotų ir (b) delokalizuotų krūvininkų rekombinacija InGaN.

Tiek išmatuotos tiek skaitmeniniu modeliavimu įvertintos krūvininkų gyvavimo trukmės (i) ilgėja didėjant In kiekiui (ši tendencija labiau pastebima ties mažiausiais žadinančios energijos tankiais), (ii) trumpėja didinant žadinančios energijos tankį (žiūr. 4.14, 4.15 ir 4.19 pav.). Taip pat didinat žadinančios energijos tankį, kaip jau buvo minėta, buvo stebėtas D verčių augimas (žiūr. 4.15 pav.). Šias τ ir D verčių kitimo tendencijas galima paaiškinti lokalizuotų ir laisvų nepusiausvirųjų krūvininkų modeliu (žiūr. 4.18 pav.). Kai žadinančios energijos tankis santykinai mažas (4.18 pav. a), didžioji nepusiausvirųjų krūvininkų krūvininkų modeliu (žiūr. 4.18 pav.).
kvantinio lakšto storio netolygumų sukeltuose E_{g} fliuktuacijų minimumuose. Tokios krūvininkų sistemos judrumas yra mažas kas ir atsispindi mažose matuojamo difuzijos koeficiento vertėse. Krūvininkų lokalizacija taip pat gali sulėtinti jų nespindulinę rekombinaciją, nes lokalizuoti krūvininkai yra erdviškai atskirti nuo nespindulinės rekombinacijos centrų, todėl pailgėja krūvininkų gyvavimo trukmė. Kai nepusiausvirųjų krūvininkų tankis padidėja, lokalizuotos būsenos užpildomos ir dalis krūvininkų tampa laisvi (4.18 pav. b), tai rodo padidėjusios difuzijos koeficiento vertės. Dėl paspartėjusios difuzijos daugiau krūvininkų pasiekia nespindulinės rekombinacijos centrus, o matuojamos krūvininkų gyvavimo trukmės vertės sumažėja. Panašus difuzijos įtakotos krūvininkų rekombinacijos modelis yra pasiūlytas [78] darbe. Tačiau negalima pamiršti ir vidinio elektrinio lauko, kuris yra stiprus c ašies kryptimi užaugintuose InGaN kvantiniuose lakštuose, įtakos. Vidinis elektrinis laukas gali įtakoti nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės ilgėjimą mažėjant jų tankiui, kadangi sumažėja elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimas, o tuo pačiu ir rekombinacijos tikimybė [79]. Didėjant krūvininkų tankiui vidinis elektrinis laukas ekranuojamas, tuo pačiu didėja elektronų ir skylių banginių funkcijų persiklojimas ir sutrumpėja krūvininkų gyvavimo trukmė. Šias dvi krūvininkų gyvavimo trukmės ilgėjimo/trumpėjimo priežastis (dėl vidinio elektrinio lauko ir dėl krūvininkų lokalizacijos) yra sunku atskirti, nes abiejų poveikio kryptis vienoda. Vidinis elektrinis laukas įtakoja krūvininkų rekombinacija, tačiau neturėtų daryti įtakos jų difuzijai. Mūsu atveju yra stebima krūvininkų rekombinacijos spartos ir difuzijos koeficiento koreliacija, kuri leidžia manyti, kad lokalizacijos efektai turi didesne itaka krūvininku rekombinacijai ir difuzijai. Nepusiausviruju krūvininkų lokalizacija taip pat turėtų įtakoti jų spindulinę rekombinacija, nes krūvininkų tankis potenciniuose minimumuose turėtų efektyviai padidėti, o tai turi atsispindėti spindulinės rekombinacijos koeficiento vertės B priklausomybėje nuo In kiekio bandiniuose. 4.20 paveiksle, kur pavaizduota B vertės priklausomybė nuo In kiekio, matome, kad *B* vertės padidėja nuo $\sim 1 \times 10^{-11}$ cm³/s bandinyje kur x=0,034 iki $2,3\times10^{-10}$ cm³/s bandinyje kur x=0,16. Tačiau kvantinis našumas,



4.19 paveikslas. Skaitmeniškai sumodeliuotų τ_R verčių priklausomybė nuo In kiekio bandinyje esant skirtingiems žadinančios energijos tankiams.

4.20 paveikslas. *B* verčių (apskritimai) ir PL spektro ploto (kvadratai) priklausomybė nuo In kiekio bandinyje.

kuris gali būti išreikštas PL spektro plotu, didžiausią vertę pasiekia bandinyje kur x=0,108 ir toliau didėjant x vertėms krenta. Šie rezultatai rodo, kad skaitmeniniame modeliavime nustatomas apibendrintas spindulinės rekombinacijos koeficientas B^* , kurį tikslinga sieti ne vien tik su tarpjuostine nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija. Jo vertę taip pat įtakoja ir nespindulinės krūvininkų rekombinacijos mechanizmas, priklausantis nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio.

Taip pat reikia pažymėti, kad tirtame nepusiausvirųjų krūvininkų tankių intervale Ožė rekombinacijos įtaka nebuvo stebėta. Ožė rekombinacijos vertės siekiančios iki 1×10^{-30} cm⁶/s (vertė didesnė nei teoriškai numatyta darbe [80]) skaitmeniškai modeliuojant žadinančios energijos tankiui esant net 1 mJ/cm² neturėjo pastebimos įtakos η kinetikų gesime. Didesnio nepusiausvirųjų krūvininkų tankio pasiekti nebuvo galima dėl priverstinės krūvininkų rekombinacijos.

4.21 paveiksle pavaizduoti SP signalo (indukuotas praskaidrėjimas) spektrai kai zonduojama baltos šviesos kontinuumu ir jų gesimo kinetikos bandiniuose su skirtingu In kiekiu. Žadinančio pluoštelio bangos ilgis 374 nm (hv=3,31 eV) buvo pasirinktas taip, kad nepusiausvirieji krūvininkai būtų kuriami tik InGaN kvantiniuose lakštuose išvengiant jų generacijos barjeruose ar padėkle. SP matavimuose zondavimui naudojant baltos šviesos kontinuumą galima stebėti visų sužadintų sugertyje dalyvaujančių būsenų dinamiką, todėl



4.21 paveikslas. a) SP signalo spektrai bandiniuose kur x=0,108 ir 0,16 kai žadinančios energijos tankis $50 \,\mu\text{J/cm}^2$ esant skirtingiems zondo vėlinimams. Punktyrinės linijos rodo PL signalo spektrus. b) SP signalo kinetikos ties skirtingais bangos ilgiais. c) SP signalo kinetikos ties skirtingais bangos ilgiais esant skirtingiems žadinančios energijos tankiams.



informacijos galima gauti daugiau nei iš PL spektrų kur registruojami tik spinduliniu keliu rekombinavę krūvininkai. 4.21 paveikslo a) dalyje pavaizduoti SP signalo spektrai esant skirtingiems zondo vėlinimams. SP signalo spektras yra labiau išplites nei PL spektras (punktyrinė linija), taip pat išplitimas yra didesnis bandinyje su didesniu In kiekiu. Matome, kad skirtingos SP signalo spektro komponentės gesta skirtingu greičiu, o gesimo spartų skirtumas aiškiai matomas bandinyje kur x=0,108. Signalo relaksacija yra spartesnė trumpabangėje spektro dalyje ir lėtėja einant į ilgesnių bangų pusę (gesimo trukmė išauga nuo 1,5 ns prie 389 nm iki 9,5 ns prie 429 nm) (žiūr. 4.21 pav. b)). Didinant žadinančio energijos tankį visos spektrinės komponentės spartėja (4.21 pav. c). Spektro dalies nuo 400 iki 460 nm abiejuose bandiniuose relaksaciją galime laikyti tokia pačia, tačiau spektro dalyje λ >480 nm bandinyje kur x=0,16 atsiranda dvi skirtingos komponentės. Pirmoji komponentė kai $I=50 \mu J/cm^2$ yra sparti ~25 ps prie 509 nm ir toliau eina lėtai gestanti komponentė. Šių greitos ir lėtos dalies komponenčių amplitudžių santykis didėja didinant žadinančios energijos tankį. Taip pat reikia paminėti, kad bandinyje kur x=0,16 visų SP signalo spektro dalių gesimo sparta yra didesnė negu bandinyje su 10,8% In. Greitają signalo gesimo komponentę mes priskiriame sparčiai nespindulinei nepusiausvirujų krūvininkų rekombinacijai, kurios priežastis yra prastesnė bandinio kristalo struktūros kokybė kur In kiekis didesnis. Tyrimų rezultatai naudojant SP metodiką rodo, kad laisvu–delokalizuotu nepusiausviruju krūvininku rekombinacija yra spartesnė nei tų, kurie yra lokalizuoti ir jiems yra didesnė tikimybė rekombinuoti nespinduliniu būdu. Didėjant In kiekiui bandinyje didėja ir lokalizuotu būsenų tankis, o tai atsispindi B^* verčių augime. Kvantinio našumo didžiausia vertė pasiekiama bandinyje kur x=0,108 ir vėliau mažėja dėl augančios kristalo struktūrinės netvarkos, kuri lemia didesnį nespindulinės rekombinacijos centrų tankį didėjant In kiekiui bandinyje. Tačiau per visą In kiekio intervalą didėjanti B^* vertė rodo, kad jos vertę taip pat įtakoja ir nespindulinės rekombinacijos mechanizmas priklausantis nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio.

76

Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados

InGaN sluoksniuose, su In kiekiu x>0,7, didėjant Ga kiekiui didėja sparčios nespindulinės rekombinacijos centrų tankis. Tai rodo efektyvesnis terminės gardelės susidarymas sluoksniuose su didesniu E_g , kurį lemia ne žadinančios šviesos kvanto perviršis virš tiriamos medžiagos E_g , o sparti nespindulinė nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija.

Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta lėtėja mažėjant bandinio temperatūrai (300–10 K) ir nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui. Šios tendencijos gali būti paaiškintos nepusiausvirųjų krūvininkų lokalizacija potenciniais barjerais InGaN, kai i) krūvininkai yra lokalizuojami potenciniuose minimumuose ir taip yra atskiriami nuo rekombinacijos centrų arba ii) energetiniais barjerais aplink įkrautas dislokacijas. Įvertinta nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės aktyvacijos energija yra $\Delta E=19\pm1$ meV In_xGa_{1-x}N sluoksniuose kur 0,9>x>0,8.

➤ In_{0,13}Ga_{0,87}N sluoksnyje nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo ir difuzijos koeficiento temperatūrinės priklausomybės atvirkščiai koreliuoja, t.y. didėjant difuzijos koeficiento vertėms $D \propto T^{-1/2}$ dėl difuzijos ribotos krūvininkų rekombinacijos proporcingai trumpėja gyvavimo trukmė $\tau \propto T^{1/2}$. Nustatytas dominuojantis nepusiausvirųjų krūvininkų sklaidos mechanizmas kai jų tankis yra ~10¹⁸ cm⁻³ yra sklaida akustiniais fononais.

Skaitmeniškai modeliuojant difrakcijos efektyvumo kinetikų priklausomybes nuo nepusiausvirųjų krūvininkų tankio ir bandinio temperatūros įvertintos spindulinės rekombinacijos koeficiento *B* vertės $In_{0,13}Ga_{0,87}N$ sluoksnyje, o *B* vertė kambario temperatūroje yra 7×10⁻¹¹ cm⁻³.

MOCVD metodu užaugintose $In_xGa_{I-x}N/GaN$ kvantinėse sandarose su skirtingu In kiekiu D verčių ir rekombinacijos spartos koreliaciją $(D \propto \frac{1}{\tau})$ lemia krūvininkų lokalizacija, kuri taip pat veda prie $B^*(In)$. Nespindulinė krūvininkų gyvavimo trukmė yra įtakojama nepusiausvirųjų krūvininkų tankio dėl padidėjusios krūvininkų pernašos link rekombinacijos centrų.

77

5. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika GaAsBi sluoksniuose su skirtingu Bi kiekiu

Ieškant naujų puslaidininkinių medžiagų, iš kurių būtų galima pagaminti efektyvius saulės elementus, mažos galios tranzistorius bevielei elektronikai ar puslaidininkinius lazerius, kurių spinduliuojamas bangos ilgis nepriklausytų nuo temperatūros, paskutiniame XX a. dešimtmetyje buvo susintetintas GaAs_{1-x}N_x trinaris junginys, kuriame buvo 4% N. Teoriniais skaičiavimais bei eksperimentais naudojant fotoliuminescencijos metodika buvo parodyta, kad 1% N įterpimas GaAsN junginio E_g gali sumažinti per 200 meV [81, 82]. Remiantis šiais atradimais, GaAsN ir InGaAsN junginiai susilaukė itin daug mokslininkų dėmesio kaip naujos medžiagos infraraudonos spinduliuotės šviestukų ar puslaidininkinių lazerių gamybai [83]. 1,55 µm ar 1,3 µm spinduliuotės bangos ilgio puslaidininkiniai lazeriai vra naudojami telekomunikacijų optinėse sistemose, kadangi tokia spinduliuotė patiria mažiausius nuostolius sklisdama šviesolaidžiais. Iš draustinių energijų tarpo inžinerijos pusės, N atomų įterpimas į GaAs atrodo labai perspektyvus, tačiau medžiagos kokybės rodikliai nėra optimistiniai. Įterpiant N atomus prastėja medžiagos kvantinis našumas, taip pat elektronų judris [84-86], kas rodo, kad medžiagos kokybė prastėja didėjant N molinei daliai junginyje. Viena iš priežasčių gali būti tai, kad N atomo dydis yra mažesnis už As atomo, o jų pakeitimas vienas kitu sukuria kristalinės gardelės įtempimus. Tokie itempimai, kai GaAsN auginamas ant GaAs, gali salygoti elastinius ir plastinius kristalo relaksacijos procesus, kurie įtakoja paviršiaus šiurkštumą, dislokacijų susidarymą [87], t.y. kristalo defektus, kurie blogina auginamų kristalų kokybę. InGaAsN ant GaAs atveju, N atomo mažas radiusas padeda kompensuoti In atomo didesnį radiusą, tačiau ir šiuo atveju susiduriama su problemomis draustinių energijų tarpą stumiant į infraraudonąją pusę. Kristalo itempimų relaksacijos procesų suvokimas yra svarbus norint pagaminti aukštos kokybės medžiagas tinkamas optoelektronikos prietaisų gamybai.

Vienas iš bandymų pagerinti GaAsN ir InGaAsN sluoksnių kokybę buvo izoelektroninio arsenui didelio radiuso V grupės atomo įterpimas MBE būdu. Kadangi šie elementai yra izoelektroniniai su As atomu, tikėtina, kad jie bus elektriškai neaktyvūs naujame junginyje. Kelios mokslininkų grupės publikavo sėkmingus tokių bandymų rezultatus naudojant stibį [88] ar bismutą [89]. Abiem atvejais buvo stebėtas liuminescencijos efektyvumo išaugimas ir paviršiaus šiurkštumo sumažėjimas.

Toks sekmingas Bi panaudojimas GaAsN ir InGaAsN kokybės pagerinimui paskatino bandymus Bi atomus iterpti i GaAs. Pradžioje GaAsBi trinaris kietasis lydinys buvo susintetintas MOVPE [90], o vėliau ir MBE [91] būdu. Bi yra sunkiausias neradioaktyvus elementas periodinėje elementų lentelėje, taip pat netoksiškas kaip jo lentelės kaimynai Hg, Sb ar Tl, o už Ga ir As atomus Bi atomas yra didesnis apie 25%. Dėl didelio atomo radiuso, standartinėmis GaAs auginimo sąlygomis įterpti Bi atomo į auginamą sluoksnį nepavyksta ir formuojasi Bi sankaupos sluoksnio paviršiuje. Bi atomai iterpiami GaAsBi auginant žemoje temperatūroje (T>400 °C) ir tinkamai parenkant As/Ga prekursorių santykį [91]. Panašiai kaip ir GaAsN atveju, taip ir GaAsBi tyrimai naudojant fotoliuminescencijos metodiką parodė, kad GaAsBi draustinių energijų tarpas gali sumažėti iki 90 meV dydžiu įterpus 1% Bi [92]. Tai nėra tiek daug kaip GaAsN, kur stebimas $0,2 \text{ eV} E_g$ poslinkis įterpus 1% N, tačiau tai yra beveik aštuonis kartus didesnė E_{g} postūmio vertė lyginant su In priemaiša InGaAs (12 meV/%) [93]. Tad kaip GaAsN atveju keičiant N molinę dalį, taip ir GaAsBi keičiant Bi molinę dalį galima varijuoti trinario junginio draustinių energijų tarpą, taip pat GaAsBi galima tikėtis pritaikyti tose pačiose srityse kaip ir GaAsN, o galbūt net pakeisti GaAsN jei GaAsBi kristalų kokybė būtų geresnė. Taip pat GaAsBi, manoma, turi dideles galimybes sukinių fizika paremtų prietaisų gamyboje dėl atrastos didelės spinorbitinės suskilimo energijos vertės [94].

GaAsN yra aktyviai tyrinėjamas pastaruosius dešimtmečius, tuo tarpu GaAsBi junginiai yra pakankamai naujas tyrimų objektas. Tačiau pradėjus tyrinėti GaAsBi buvo atrasta nemažai panašumų su GaAsN. GaAsN didelis E_g vertės postūmis didėjant N molinei daliai atsiranda dėl N atomo 2*s* orbitalės rezonansinės sąveikos su GaAs laidumo juostos minimumo aplinka [95]. Panaši rezonansinė sąveika tarp Bi atomų 6*p* orbitalės su GaAs valentinės juostos maksimumo aplinka sąlygoja E_g postūmį GaAsBi junginyje [96]. Schematinė energijos lygmenų diagrama GaAsN ir GaAsBi atveju pavaizduota 5.1 paveiksle. Dažniausiai puslaidininkyje vieną atomą pakeičiant kitu izovalentiniu atomu sukeliamos potencialo fliuktuacijos. GaAsN ar GaAsBi, N



5.1 paveikslas. Schematinė GaAsN ir GaAsBi energijos lygmenų diagrama.

ar Bi atomai pakeičia As atomus. Kristalo gardelės itempimai susidaro dėl to, kad arba N atomas yra mažesnis už As, arba Bi atomas už As didesnis vra Dėl atoma. tokių fliuktuacijų potencialo susidaryti gali lokalizacijos centrai, o priklausomai nuo

izovalentinių atomų sąveikos su puslaidininkio laidumo/valentine juostomis jie įtakos elektronų ar skylių dinamiką junginyje.

Yra žinoma, kad GaAsN įterpus kelis procentus azoto drastiškai sumažėja nepusiausvirųjų elektronų judris – įterpus 1% N elektronų judris sumažėja mažiausiai eile [97, 98] kadangi N kiekis GaAsN junginyje įtakoja laidumo juostos savybes. Tuo tarpu įterpiant Bi GaAsBi junginyje nepusiausvirųjų elektronų judris išlieka beveik nepakitęs (bent iki 1,4% Bi) [86, 99]. Nors yra žinoma, kad Bi įtakoja GaAsBi junginio valentinės juostos padėtį, tačiau jo įtaka nepusiausvirųjų skylių dinamikai, kuri taip pat yra labai svarbi prietaisų veikime, nebuvo anksčiau tyrinėta. Nepusiausvirųjų krūvininkų judris dažniausiai yra matuojamas elektriniais metodais, pvz. Holo matavimais, tačiau tam reikalingi geri elektriniai (ominiai) kontaktai. Kitas būdas nepusiausvirųjų krūvininkų judrio įvertinimui yra optinė dinaminių gardelių metodika. Šiuo atveju nereikalingi elektriniai kontaktai ar ypatinga bandinio forma, tad dinaminių gardelių metodika yra parankus būdas įvertinti nepusiausvirųjų skylių judrius bismiduose.

Šiame skyriuje pateikiami GaAsBi sluoksnių su skirtingu Bi kiekiu optinės sugerties spektrų tyrimai. Parodoma, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos ir difuzijos procesai GaAsBi sluoksniuose yra įtakojami krūvininkų lokalizacijos efektų. Pateikiamos nepusiausvirųjų skylių difuzijos koeficiento ir judrio verčių priklausomybės nuo Bi kiekio ir bandinio temperatūros iš kurių įvertinama nepusiausvirųjų skylių difuzijos koeficiento terminės aktyvacijos energija.

5.1 Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos palyginimas GaAs ir GaAsBi kambario temperatūroje naudojant DG metodiką

Naudojant DG metodiką buvo tiriama *Fizinių ir Technologijos Mokslų Centro* (FTMC) mokslininkų grupės užauginta GaAsBi bandinių serija. GaAsBi sluoksniai buvo auginami MBE būdu ant GaAs padėklo. Chemiškai

Bandinio Nr.	<i>x</i> *	<i>d</i> (µm)	$T_{\rm G}$ (°C)
#1	0,025	1,5	330
#2	0,036	1,5	330
#3	0,054	1,4	290
#4	0,063	1,2	280
#5 **	0	8	_
#6 ***	0	300	-

5.1 lentelė. Tirtų GaAs_{*I-x*}Bi_{*x*} sluoksnių parametrų suvestinė.

* – Bi kiekis x nustatytas pagal E_g (Bi) priklausomybę [92] iš sugerties spektrų įvertinus E_g .

** – epitaksinis GaAs sluoksnis.

*** – didžiavaržis GaAs padėklas ant kurio auginami GaAsBi sluoksniai.

nuvalius (oksidams pašalinti) didžiavaržį GaAs padėklą buvo užauginamas kelių šimtų nanometrų storio žematemperatūrio GaAs pasluoksnis, vėliau ant

jo auginamas GaAsBi sluoksnis. Galiausiai ant GaAsBi sluoksnio viršaus užauginamas 25-30 nm storio pasyvuojantis GaAs sluoksnis. Skirtingas Bi kiekis buvo iterpiamas varijuojant auginimo temperatūra $T_{\rm G}$. Detalesnis auginimo procedūrų aprašymas [100-104] pateikiamas darbuose. Tirtu GaAsBi



5.2 paveikslas. GaAsBi sluoksnių ir padėklo, ant kurio jie auginami, sugerties spektrai.

sluoksnių parametrų suvestinė pateikiama 5.1 lentelėje. Taip pat, kaip kontroliniai bandiniai, buvo ištirti didžiavaržis GaAs padėklas (ant kurio auginami GaAsBi) ir aukštos kokybės 8 µm storio GaAs epitaksinis sluoksnis.

5.2 paveiksle pavaizduoti tirtų GaAsBi sluoksnių ir padėklo, ant kurio jie auginami, sugerties spektrai buvo išmatuoti *Hamamatsu* spektrometru 860– 1500 nm bangos ilgių intervale. Kaip matome, didėjant Bi kiekiui stebimas raudonasis sugerties spektro poslinkis (ko ir siekiama įterpiant Bi) tačiau tuo pat metu plinta ir sugerties kraštas. Tai parodo, kad Bi atomai kuria struktūrinę netvarką, dėl kurios išplinta sugerties kraštas [105]. Išplitusio sugerties krašto kiekybiniam aprašymui dažnai yra naudojama sigmoidinė išraiška, kurioje sugerties kraštas apibūdinamas draustinių energijų tarpu E_g ir Urbacho išplitimo faktoriumi Δ [106]:

$$\alpha(E) = \frac{\alpha_0}{1 + \exp\left[\frac{E_g - E}{\Delta}\right]}.$$
(5.1)

Pagal (5.1) apskaičiuotos E_g ir Urbacho išplitimo faktoriaus vertės pateikiamos 5.2 lentelėje.

5.2 lentelė. E_g ir Δ suvestinė tirtuose GaAs_{1-x}Bi_x sluoksniuose.Bandinio Nr.#1#2#3

Bandinio Nr.	#1	#2	#3	#4
E_g (eV)	1,22	1,15	1,05	0,99
Δ (meV)	43	40	58	70

DG eksperimentuose buvo naudojama 2.5 paveiksle pavaizduota schema. Nepusiausvirieji krūvininkai buvo kuriami tarpjuostiniais šuoliais dviejų 532 nm bangos ilgio (hv=2,33 eV) YAG:Nd⁺³ lazerio impulsų interferenciniu lauku. Dinaminės gardelės zondavimui buvo naudojamas vėlinamas (iki 4 ns) to paties lazerio 1064 nm bangos ilgio pluoštelis. Žadinančių pluoštelių energijos tankis I_0 eksperimentuose kito nuo 30 μ J/cm² iki ~1 mJ/cm²; tai atitiktų 10^{18} – 10^{20} cm⁻³ nepusiausvirųjų krūvininkų tankį pačiame bandinio paviršiuje (laikoma, kad $\alpha = 7 \times 10^4$ cm⁻¹). Dinaminės gardelės periodas buvo varijuojamas nuo 2,9 iki 18,6 µm. Pradžioje atlikome tyrimus kontroliniuose GaAs bandiniuose, kuriuose nėra Bi, kad galėtume įvertinti Bi iterpimo Difrakcijos efektyvumo kinetikos ir įtaką. ekspozicinės



5.3 paveikslas. a) Išmatuotos (taškai) ir skaitmeniškai sumodeliuotos (ištisinės linijos) difrakcijos efektyvumo kinetikos. Skaitmeniniame modeliavime naudoti parametrai: $S=5\times10^5$ cm/s, D=18 cm²/s, $\tau_R=8$ ns. b) Ekspozicinės charakteristikos epitaksiniame GaAs sluoksnyje esant skirtingiems zondo vėlinimams.

charakteristikos epitaksiniame GaAs sluoksnyje pavaizduotos 5.3 paveiksle. Stebėtas neeksponentinis difrakcijos signalo gesimas ir priklausomybė nuo žadinančios energijos tankio yra būdingas esant sparčiai paviršinei rekombinacijai. Tai patvirtina ir išmatuotos ekspozicinės charakteristikos, išlieka kurios lygiagrečios skirtingiems esant zondo vėlinimams (5.3 pav. b)). Tai



5.4 paveikslas. Skaitmeniškai sumodeliuoti krūvininkų tankio profiliai į bandinio #5 gylį prabėgus skirtingam laiko tarpui po sužadinimo, kai $I_0=0,25$ mJ/cm².

reiškia, kad nėra rekombinacijos mechanizmo, kuris lemtų spartesnę krūvininkų rekombinaciją esant didesniam krūvininkų tankiui. Stiprios sugerties sąlygomis (α =7×10⁴ cm⁻¹, 1/ α ≈150 nm) prie pat paviršiaus sukurti nepusiausvirieji krūvininkai sparčiai rekombinuoja per paviršines būsenas, tačiau laikui bėgant dėl difuzijos į gylį krūvininkai "pabėga" nuo paviršiaus (žiūr. 5.4 pav.) ir paviršinė rekombinacija mažiau įtakoja signalo gesimą todėl ir stebimos neeksponentinės η kinetikos.

Tokios pačios difrakcijos signalo gesimo tendencijos buvo stebimos ir didžiavaržiame GaAs padėkle (5.5 pav.). Išmatavę difrakcijos efektyvumo kinetikas prie skirtingų dinaminės gardelės periodų įvertinome *D* ir $\tau_{\rm R}$ vertes: #5 – *D*=18±1 cm²/s, τ =2,5±0,5 ns; #6 – *D*=21±1 cm²/s, τ =0,36±0,05 ns. Skaitmeninis modeliavimas naudojant šias vertes (ištisinės linijos 5.3 pav. a) ir 5.5 pav. a)) leido įvertinti paviršinės rekombinacijos spartas ir krūvininkų gyvavimo trukmes bandinių tūryje: #5 – *S*=5×10⁵ cm/s, $\tau_{\rm R}$ =8 ns; #6 – *S*=5×10⁵ cm/s, $\tau_{\rm R}$ =0,56 ns. Laikant, kad GaAs atveju $D_e \gg D_h$, pagal (1.12) ir (1.15) apskaičiuoti skylių judriai μ_h ≈400 cm²/(V·s) ir paviršinės rekombinacijos



5.5 paveikslas. a) Išmatuotos (taškai) ir skaitmeniškai sumodeliuotos (ištisinės linijos) difrakcijos efektyvumo kinetikos. Skaitmeniniame modeliavime naudoti parametrai: $S=5\times10^5$ cm/s, D=21 cm²/s, $\tau=0,56$ ns. b) Ekspozicinės charakteristikos didžiavaržiame GaAs padėkle esant skirtingiems zondo vėlinimams.

spartos $S=5\times10^5$ cm/s vertės puikiai dera su literatūroje GaAs pateikiamais duomenimis [107]. Trumpesnė krūvininkų gyvavimo trukmė bei didesnis difuzijos koeficientas didžiavaržiame GaAs rodo, kad šiame bandinyje yra daugiau rekombinacinių centrų nei epitaksiniame GaAs sluoksnyje. Taip yra todėl, kad kompensuojant GaAs įvedamos priemaišos, kurios sukuria būsenas draustinių energijų tarpe, ir šios būsenos veikia kaip rekombinaciniai centrai. Gauta didesnė bipolinio krūvininkų judrio vertė ($\mu_{a\#6}$ =840 cm²/(V·s)) irgi netiesiogiai rodo, kad elektronai yra efektyviau gaudomi. Esant vienodiems skylių ir elektronų tankiams (n=p), bandinyje #5 išmatuotą bipolinio difuzijos koeficiento vertę D=18 cm²/s, atitinka bipolinio judrio vertė $\mu=720$ cm²/(V·s). Bipolinis judris gali būti suskaičiuojamas pagal (2.11) ir (2.13) sąryšius, ir jeigu elektronai yra gaudomi efektyviau nei skylės, matuojamas judris yra didesnis nei vien bipolinis (n=p). Išmatuotoji vertė ($\mu_{a\#6}=840$ cm²/(V·s)) atitinka santykį n/p=0,71 ir rodo efektyvesnę elektronų rekombinaciją didžiavaržiame GaAs dėka taškinių defektų.

5.6 paveiksle pavaizduotos difrakcijos efektyvumo kinetikos bandiniuose #2 ir #3 esant skirtingiems I_0 ir ekspozicinės charakteristikos

bandinyje #3 esant skirtingiems zondo vėlinimams. Didinant žadinimo intensyvumą buvo stebėtas temperatūrinės gardelės susiformavimas dėl: i) sparčios krūvininkų rekombinacijos nespinduliniu būdu kai elektrono-skylės poros energija išspinduliuojama fononais, ii) krūvininkų aušimo dėl žadinančios šviesos kvanto perviršio virš medžiagos E_g . Šviesos kvanto energija hv=2,33 eV, bandinių $E_g < 1,42$ eV, tad perviršis ≈ 1 eV. Mažesnį perviršį galima buvo pasiekti žadinimui panaudojant 1064 nm bangos ilgio spinduliuotę, tačiau dalyje bandinių šis bangos ilgis yra jų skaidrumo srityje (labai silpnai sugeriamas arba išvis nesugeriamas). Todėl eksperimentai buvo atliekami žadinimui naudojant 532 nm bangos ilgio pluoštelį ir kuo mažesnius žadinančios energijos tankius, kad išsiskyrusi šiluma neįtakotų eksperimento



86

rezultatų. Lūžio rodiklio pokyčio mechanizmų konkurencija aiškiai matoma bandinyje #3 išmatuotose ekspozicinėse charakteristikose esant skirtingiems zondo vėlinimams (5.6 pav. b)). Prie mažų krūvininkų tankių dominuoja Δn dėl nepusiausvirųjų krūvininkų, tai matome iš ekspozicinės charakteristikos polinkio artimo 2, kai zondas krenta į bandinį kartu su žadinančiu impulsu. Padidinus zondo vėlinimą ekspozicinės charakteristikos polinkis ima mažėti ir ji net "užlinksta", t.y. padidinus krūvininkų tankį difrakcijos efektyvumas vietoje to, kad didėtų – sumažėja. Pavėlinus zondą iki 500 ps prie didesnių energijos tankių vėl matome ekspozicinės charakteristikos polinkio vertės padidėjimą iki 2 – stebima difrakcija nuo dinaminės gardelės sukurtos periodinio temperatūros gradiento.

Difrakcijos efektyvumo kinetikos bandinyje #1 su mažiausiu Bi kiekiu pavaizduotos 5.7 paveiksle. Matome, kad η kinetikos neeksponentinės –







5.8 paveikslas. Difrakcijos efektyvumo kinetikų palyginimas GaAsBi ir GaAs bandiniuose. Kinetikos išskleistos vertikaliai dėl aiškumo.

analogiškai kaip ir GaAs atveju. Skaitmeniškai sumodeliuotos kinetikos naudojant $S=7\times10^4$ cm/s, $\tau_R=2,6$ ns ir D=1,1 cm²/s pavaizduotos ištisinėmis linijomis (5.7 pav.). Įvertinta paviršinės rekombinacijos sparta beveik eile mažesnė negu GaAs. Taip yra galimai dėl GaAsBi sluoksnio paviršiaus pasyvavimo plonu GaAs sluoksniu, t.y. GaAs/GaAsBi sandūroje yra mažesnis paviršinių būsenų tankis nei epitaksinio GaAs paviršiuje. Prie didesnių energijos tankių taip pat buvo stebėtas terminės gardelės susidarymas (5.7 pav. pridėtinis paveikslas). Bandiniuose su didesniu Bi kiekiu η kinetikos buvo artimos eksponentinėms, t.y. paviršinės rekombinacijos įtaka krūvininkų dinamikai nebuvo stebėta galimai dėl spartesnės krūvininkų rekombinacijos bandinio tūryje (žiūr. 5.8 pav). Kaip matome iš 5.8 paveiksle pavaizduotų η kinetikų esant dideliam dinaminės gardelės periodui ir pateiktų gardelės irimo trukmių τ_G – didėjant Bi kiekiui trumpėja krūvininkų gyvavimo trukmė.

5.2 Krūvininkų gyvavimo trukmės ir nepusiausvirųjų skylių dinamikos priklausomybės nuo bandinio temperatūros tyrimas naudojant DG metodiką

Išmatavę η kinetikas prie skirtingų dinaminės gardelės periodų ir atidėję $\tau_{\rm G}^{-1} = f(\Lambda^{-2})$ įvertinome krūvininkų gyvavimo trukmes ir difuzijos koeficientus GaAsBi bandiniuose kambario temperatūroje. 5.9 paveiksle pateikiama apskaičiuotų $\tau_{\rm G}$ ir *D* verčių priklausomybė nuo Bi kiekio GaAsBi sluoksniuose. Matome, kad nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmė ir difuzijos koeficientas mažėja didėjant Bi. Auginant GaAsBi trinarius kietuosius tirpalus Bi atomai pakeičia As atomus [91, 108, 109], o bismuto atomas didesnis už As (beveik 25%). Taip pat galima manyti, kad ne visi Bi atomai pakeičia As atomus (Bi į As pakeitimo išeiga nėra 100%). Dėl atominių matmenų skirtumo GaAs kristalinės gardelės tvarka yra stipriai pažeidžiama: nutrūkinėja atominiai ryšiai, susidaro defektai, kurie veikia kaip efektyvūs krūvininkų rekombinacijos centrai. Yra žinoma, kad žematemperatūriame GaAs As

pakaitinis atomas vietoje Ga (angl. As_{Ga} *antisite*) sukuria itin sparčius krūvininkų rekombinacijos centrus [103, 110].

Bandinio temperatūros keitimui panaudoję uždaro ciklo helio kriostatą ivertinome krūvininkų gyvavimo trukmes τ ir difuzijos koeficiento D vertes esant skirtingoms GaAsBi bandinių temperatūroms (300-10 K intervale). τ ir D verčių priklausomybė nuo atvirkštinės šiluminės $I_0 = 30 \, \mu J/cm^2$ energijos kai pavaizduota 5.10 paveiksle.



5.9 paveikslas. Krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento priklausomybė nuo Bi bandiniuose kiekio GaAsBi kambario temperatūroje. Užpildyti stačiakampiai vaizduoja krūvininkų gyvavimo trukmes, tuščiaviduriai apskritimai difuzijos koeficiento linijos vertes. Punktyrinės vaizduoja laipsnines priklausomybes.

Matome, kad krūvininkų rekombinacijos spartos ir difuzijos koeficiento vertės auga didėjant temperatūrai. τ ir D temperatūrinėms priklausomybėms aprašyti bei aktyvacijos energijos įvertinimui naudojome Arenijaus tipo lygtį (1.11). Kai nepusiausvirųjų krūvininkų kinetinė energija kT yra daug didesnė negu energetinių barjerų aukštis $(kT \gg \Delta E)$, jie juda kristale netrukdomai, "nematydami" barjerų. Tačiau jeigu kT yra žymiai mažesnė negu barjero aukštis $(kT \ll \Delta E),$ nepusiausvirieji krūvininkai yra lokalizuojami potenciniuose minimumuose tarp barjerų ir nebegali laisvai judėti, o tai atsispindi sumažėjusiose difuzijos koeficiento vertėse. Tarp šių kraštinių atvejų esančios tarpinės vertės ir aprašomos (1.11) lygtimi. Išmatuotą difuzijos koeficiento ir rekombinacijos spartos terminę aktyvaciją GaAsBi galima paaiškinti nepusiausvirujų krūvininkų lokalizacija Bi kuriamose potencialo fliuktuacijose [111, 112]. Darbuose [85, 108, 109, 113] fotoliuminescencijos



5.10 paveikslas. Nepusiausviruju krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento verčių priklausomybė nuo atvirkštinės šiluminės energijos GaAsBi bandiniuose su skirtingu Bi kiekiu kai $I_0=30 \ \mu J/cm^2$. Užpildyti simboliai vaizduoja $\tau_{\rm R}$ vertes, neužpildyti – D. Ištisinės linijos vaizduoja aproksimacijas Arenijaus tipo lygtimi.



metodikomis GaAsBi bandiniuose taip pat stebima terminė PL signalo aktyvacija, kuri aiškinama Bi ar Bi kompleksų kuriamais lygmenimis. 5.3 lentelėje pateikta parametrų, naudotų aproksimuojant 5.10 paveiksle pavaizduotas $\tau_{\rm R}$ ir *D* priklausomybes, verčių suvestinė.

5.10 paveiksle pavaizduotose priklausomybėse matome, kad visuose tirtuose GaAsBi bandiniuose stebima τ ir *D* verčių koreliacija: sumažėjus *D* vertei padidėja τ – lokalizuotiems krūvininkams yra "sunkiau pasiekti" rekombinacijos centrus todėl išauga krūvininkų gyvavimo trukmė. Krūvininkų rekombinacijos spartos aktyvacijos vertės tiesiogiai nekoreliuoja su Bi kiekiu bandinyje, tačiau galime įžvelgti kokybinę koreliaciją su apskaičiuotu Urbacho išplitimo faktoriumi (žiūr. 5.2 lentelę). Šie rezultatai rodo, kad nepusiausvirųjų

Bandinio Nr.	$\Delta E_{\tau R} (\text{meV})$	τ_0 (ns)	$\Delta E_{\rm D} ({\rm meV})$	$D_0 (\mathrm{cm}^2/\mathrm{s})$
#1	38±6	7,8±0,3	46±6	0,07±0,02
#2	24±4	5,1±0,2	46±6	$0,05{\pm}0,02$
#3	46±4	5,1±0,2	46±6	0,02±0,01

5.3 lentelė. $\Delta E_{\tau R}$, ΔE_D , τ_0 ir D_0 verčių suvestinė.

krūvininkų rekombinacija nėra tiesiogiai susijusi su Bi kuriamomis potencialo fliuktuacijomis. Matome, kad didėjant Bi kiekiui GaAsBi bandinyje Daktyvacijos vertės nesikeičia (tirtame x intervale), t.y. potencialo fliuktuacijų gylis lieka toks pat, nors medžiagos E_g sumažėja. Pasinaudoję pastaruoju rezultatu ir D verčių priklausomybe nuo Bi kiekio (5.9 pav.) kambario temperatūroje galime daryti išvadą, kad didinant Bi molinę dalį potencialo fliuktuacijų gylis nesikeičia, o didėja jų tankis.

Darbuose [86, 99] parodoma, kad elektronų judris nežymiai sumažėja įterpus kelis % Bi, tad galima manyti, kad kaip ir GaAs atveju nelygybė $\mu_e \gg \mu_h$ galioja ir GaAsBi. Pasinaudoję šiais rezultatais iš išmatuotų bipolinių difuzijos koeficientų įvertinome nepusiausvirųjų skylių judrius tirtuose



5.11 paveikslas. Nepusiausvirųjų skylių judrio priklausomybė nuo temperatūros GaAsBi bandiniuose su skirtingu Bi kiekiu.

GaAsBi bandiniuose (5.11 pav.). Nustatyta $\Delta E_{\rm D}$ vertė yra beveik dvigubai didesnė už krūvininkų kinetine energija kТ kai T=300 K, todėl skylių sklaida net ir kambario temperatūroje stipriai itakota yra lokalizacijos. Tai matosi iš skylių judrio priklausomybės nuo temperatūros (100-300 K intervale): μ_h auga didėjant temperatūrai ir nenusistovi net

pasiekus 300 K. Panašios krūvininkų judrio tendencijos buvo stebėtos [114] darbe kur buvo tiriamas itin daug taškinių defektų turintis žemoje temperatūroje užaugintas GaAs.

Skyriaus pagrindiniai rezultatai ir išvados

- Išanalizavus išmatuotus sugerties spektrus įvertintos GaAs_{1-x}Bi_x bandinių draustinių energijų tarpo vertės ir išplitimo faktoriai. E_g vertė keičiasi nuo 1,22 eV bandinyje kur x=0,025 iki 0,99 eV bandinyje kur x=0,063.
- Nustatyta, kad nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta ir skylių difuzijos koeficientas priklauso nuo Bi kiekio GaAs_{1-x}Bi_x bandiniuose kur Bi kiekis yra 0,063>x>0,025: tiek D, tiek τ vertės mažėja didėjant Bi kiekiui. Rekombinacijos spartos ir difuzijos koeficiento terminės aktyvacijos koreliacija $(D \propto \frac{1}{\tau})$ susijusi su krūvininkų pernaša link nespindulinės rekombinacijos centrų.
- ➢ Krūvininkų rekombinacijos spartos ir difuzijos koeficiento terminė aktyvacija GaAsBi bandiniuose rodo, kad Bi atomai medžiagoje sukelia draustinių energijų tarpo fliuktuacijas, kurios pasireiškia kaip krūvininkus lokalizuojantys/atskiriantys barjerai. Vienoda *D* aktyvacijos energijos vertė (∆*E*_D=46±6 meV) skirtinguose bandiniuse rodo, kad didėjant Bi kiekiui potencialo fliuktuacijų gylis lieka toks pat, tačiau didėja jų tankis, ką patvirtina *D* vertės mažėjimas kambario temperatūroje didėjant Bi kiekiui bandinyje.
- Skaitmeniškai modeliuojant difrakcijos efektyvumo kinetikas įvertintos paviršinės rekombinacijos koeficiento vertės kontroliniuose GaAs ir GaAsBi bandiniuose. Paviršinės rekombinacijos koefieciento vertė GaAs yra 5×10⁵ cm/s, kai tuo tarpu GaAsBi beveik eile mažesnė S=7×10⁴ cm/s. Šis rezultatas leidžia manyti, kad sumažėjusi paviršinės rekombinacijos įtaka yra pasyvuojančio paviršinio plono GaAs sluoksnio įtaka.

Vertintos nepusiausvirųjų skylių judrio vertės GaAsBi ($\mu_h=10-20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, 0,063>x>0,025, T=295 K), kurios yra daugiau nei 10 kartų mažesnės lyginant su GaAs, rodo, kad nepusiausvirųjų skylių dinamiką GaAsBi lemia su Bi susijusios potencialo fliuktuacijos.

Išvados

- Išmatuotos šviesa indukuoto praskaidrėjimo kinetikos tiesiogiai neparodo nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės, o atspindi laidumo/valentinės juostos būsenų užpildos dinamiką ties zonduojančio pluoštelio kvanto energija, o būsenų užpildos dinamika rodo krūvininkų rekombinacijos ir jų energetinio persiskirstymo juostose trukmės vidutinę vertę.
- 2. Nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trumes InN naudojant skirtuminio pralaidumo metodiką galima išmatuoti registruojant laisvakrūvės sugerties signalą, kurio amplitudė yra proporcinga nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui. Laisvakrūvė sugertis InN sluoksniuose gali būti registruojama zonduojančiam pluošteliui naudojant lazerinę spinduliuotę, kurios kvanto energija yra ~100 meV mažesnė nei InN E_g .
- 3. Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta InN yra proporcinga jų tankiui, kai krūvininkų tankis kinta nuo 10^{18} – 10^{20} cm⁻³. Skaitmeninio modeliavimo metodu įvertintas netiesinės rekombinacijos koeficientas B^* , kurio vertė kinta nuo 4×10^{-10} cm³/s bandinyje kur n_0 =1,4×10¹⁸ cm⁻³ iki 32×10^{-10} cm³/s bandinyje kur n_0 =4,7×10¹⁸ cm⁻³. Nustatyta, kad įvertintos B^* vertės nėra spindulinės rekombinacijos koeficientas, o rekombinacijos mechanizmas priskirtas gaudyklių įtakotai Ožė rekombinacijai, kurios koeficiento vertė C_{TAAR} kambario temperatūroje apytiksliai lygi (4,5±2)×10⁻²⁸ cm⁶/s.
- 4. MBE būdu užaugintuose $In_xGa_{I-x}N$ sluoksniuose, su In kiekiu x>0,7, didėjant Ga kiekiui auga sparčios nespindulinės rekombinacijos centrų tankis. Tai rodo spartesnis terminės gardelės susidarymas sluoksniuose su didesniu E_g , kurį lemia ne žadinančios šviesos kvanto perviršis virš tiriamos medžiagos E_g , o sparti nespindulinė nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija. Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos spartos lėtėjimas mažėjant bandinio temperatūrai (300–10 K) ir nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui gali būti paaiškintass nepusiausvirųjų krūvininkų

lokalizacija potenciniais barjerais InGaN, kai i) krūvininkai yra lokalizuojami potenciniuose minimumuose ir taip yra atskiriami nuo rekombinacijos centrų arba ii) energetiniais barjerais aplink dislokacijas. Įvertinta nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos spartos aktyvacijos energija yra $\Delta E=19\pm1$ meV.

- 5. MOCVD būdu užaugintame $In_{0,13}Ga_{0,87}N$ sluoksnyje nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmės ir difuzijos koeficiento vertės atvirkščiai koreliuoja, t.y. didėjant difuzijos koeficiento vertėms $(D \propto T^{-1/2})$ dėl difuzijos ribotos krūvininkų rekombinacijos proporcingai trumpėja gyvavimo trukmė $(\tau \propto T^{1/2})$. Rekombinacijos spartos augimą didėjant nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui $(\Delta N=10^{18}-10^{20} \text{ cm}^{-3})$ ir mažėjant bandinio temperatūrai (295 K>T>100 K) lemia spindulinė nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacija, kurios koeficiento vertė kambario temperatūroje yra $B_{T=300K}=7 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/\text{s}.$
- 6. MOCVD būdu užaugintose $In_xGa_{1-x}N/GaN$ kvantinėse sandarose su skirtingu In kiekiu *D* verčių ir rekombinacijos spartos koreliaciją lemia krūvininkų lokalizacija, o rekombinacijos spartos didėjimą stipraus sužadinimo sąlygomis lemia ne tik spindulinė rekombinacija, bet ir išaugusi nespindulinės rekombinacijos sparta.
- 7. Krūvininkų rekombinacijos spartos ir difuzijos koeficiento terminė aktyvacija GaAsBi bandiniuose rodo, kad Bi atomai medžiagoje sukelia draustinių energijų tarpo fliuktuacijas, kurios pasireiškia kaip krūvininkus lokalizuojantys/atskiriantys barjerai. Vienoda D aktyvacijos energijos vertė (ΔE_D =46±6 meV) ir D vertės mažėjimas kambario temperatūroje didėjant Bi kiekiui bandinyje rodo, kad su Bi atomais susijusių potencialo fliuktuacijų gylis lieka toks pat, tačiau didėja jų tankis.
- Įvertintos nepusiausvirųjų skylių judrio vertės GaAsBi, kurios net ir kambario temperatūroje yra daugiau nei 10 kartų mažesnės lyginant su GaAs, rodo, kad nepusiausvirųjų skylių dinamiką GaAsBi lemia su Bi susijusios potencialo fliuktuacijos.

Cituojamos literatūros sąrašas

[1] W. Shockley and W. T. Read, Physical Review, 87, 835 (1952).

[2] P. T. Landsberg, "*Recombination in semiconductors*", (Cambridge University Press, Cambridge, 1991) p.616.

[3] G. Lasher and F. Stern, Physical Review, **133**, A553 (1964).

[4] P. T. Landsberg, Appl. Phys. Lett., 50, 745 (1987).

[5] J. L. Farvacque, Z. Bougrioua, and I. Moerman, Phys. Rev. B, **63**, 115202 (2001).

[6] H.-C. Wang, Y.-C. Lu, C.-C. Teng, Y.-S. Chen, C. C. Yang, K.-J. Ma, C.-C. Pan, and J.-I. Chyi, J. Appl. Phys., **97**, 033704 (2005).

[7] S. Chichibu and T. Azuhata, Appl. Phys. Lett., 70, 2822 (1997).

[8] J. Bai, T. Wang, and S. Sakai, J. Appl. Phys., 88, 4729 (2000).

[9] H. M. van Driel, Phys. Rev. B, **35**, 8166 (1987).

[10] T. Malinauskas, K. Jarasiunas, M. Heuken, F. Scholz, and P. Brückner, Phys. Status Solidi C, **6**, S743 (2009).

[11] J. Linnros, J. Appl. Phys., 84, 275 (1998).

[12] A. Othonos, J. Appl. Phys., 83, 1789 (1998).

[13] H. J. Eichler, "Laser-induced dynamic gratings", (Springer-Verlag, Berlin, 1986) p.256.

[14] P. Scajev and K. Jarasiunas, J. Phys. D. Appl. Phys., 42, 055413 (2009).

[15] P. Scajev, A. Kadys, and K. Jarasiunas, Mater. Sci. Forum, **615-617**, 319 (2009).

[16] T. Malinauskas, K. Jarasiunas, E. Ivakin, N. Tranchant, and M. Nesladek, Phys Status Solidi A, **207**, 2058 (2010).

[17] A. Miller, "Semiconductors and semimetals", knygoje "Nonlinear optics in semiconductors II", (Academic Press, 1999) p.334.

[18] K. Jarasiunas, R. Aleksiejunas, T. Malinauskas, V. Gudelis, T. Tamulevicius, S. Tamulevicius, A. Guobiene, A. Usikov, V. Dmitriev, and H. J. Gerritsen, Review of Scientific Instruments, **78**, 033901 (2007).

[19] J. Wu, J. Appl. Phys., **106**, 011101 (2009).

[20] A. G. Bhuiyan, A. Hashimoto, and A. Yamamoto, J. Appl. Phys., **94**, 2779 (2003).

[21] S. N. Mohammad and H. Morkoç, Progress in Quantum Electronics, **20**, 361 (1996).

[22] S. Yamaguchi, R. Izaki, K.-i. Yamagiwa, K. Taki, Y. Iwamura, and A. Yamamoto, Appl. Phys. Lett., **83**, 5398 (2003).

[23] E. Starikov, P. Shiktorov, V. Gruzinskis, L. Reggiani, L. Varani, J. C. Vaissière, and H. Z. Jian, Journal of Physics: Condensed Matter, **13**, 7159 (2001).

[24] H. Lu, W. J. Schaff, and L. F. Eastman, J. Appl. Phys., 96, 3577 (2004).

[25] S. M. Donovan, J. D. MacKenzie, C. R. Abernathy, S. J. Pearton, F. Ren, K. Jones, and M. Cole, Appl. Phys. Lett., **70**, 2592 (1997).

[26] F. Ren, C. R. Abernathy, S. N. G. Chu, J. R. Lothian, and S. J. Pearton, Appl. Phys. Lett., **66**, 1503 (1995).

[27] M. E. Lin, F. Y. Huang, and H. Morkoc, Appl. Phys. Lett., 64, 2557 (1994).

[28] A. Yamamoto, M. Tsujino, M. Ohkubo, and A. Hashimoto, Solar Energy Materials and Solar Cells, **35**, 53 (1994).

[29] M. Yoshimoto, Y. Yamamoto, and J. Saraie, physica status solidi (c), **0**, 2794 (2003).

[30] P. Scajev, A. Usikov, V. Soukhoveev, R. Aleksiejunas, and K. Jarasiunas, Appl. Phys. Lett., **98**, 202105 (2011).

[31] H. Wang, D. S. Jiang, L. L. Wang, X. Sun, W. B. Liu, D. G. Zhao, J. J. Zhu, Z. S. Liu, Y. T. Wang, S. M. Zhang, and H. Yang, Journal of Physics D: Applied Physics, **41**, 135403 (2008).

[32] W. J. Schaff, X. Chen, D. Hao, K. Matthews, T. Richards, L. F. Eastman, H. Lu, C. J.-H. Cho, and H.-Y. Cha, physica status solidi (b), **245**, 868 (2008).

[33] L. F. J. Piper, T. D. Veal, C. F. McConville, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., **88**, 252109 (2006).

[34] J. Wu, W. Walukiewicz, S. X. Li, R. Armitage, J. C. Ho, E. R. Weber, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, A. Barcz, and R. Jakiela, Appl. Phys. Lett., **84**, 2805 (2004).

[35] F. Chen, A. N. Cartwright, H. Lu, and W. J. Schaff, J. Cryst. Growth, **269**, 10 (2004).

[36] T.-R. Tsai, C.-F. Chang, and S. Gwo, Appl. Phys. Lett., **90**, 252111 (2007).

[37] V. Pacebutas, G. Aleksejenko, A. Krotkus, J. W. Ager, W. Walukiewicz, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., **88**, 191109 (2006).

[38] R. Ascazubi, I. Wilke, S. Cho, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., **88**, 112111 (2006).

[39] F. Chen, A. N. Cartwright, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., 87, 212104 (2005).

[40] F. Chen, A. N. Cartwright, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., **83**, 4984 (2003).

[41] D. J. Jang, G. T. Lin, C. L. Hsiao, L. W. Tu, and M. E. Lee, Appl. Phys. Lett., **92**, 042101 (2008).

[42] R. Intartaglia, B. Maleyre, S. Ruffenach, O. Briot, T. Taliercio, and B. Gil, Appl. Phys. Lett., **86**, 142104 (2005).

[43] J. Wu, W. Walukiewicz, W. Shan, K. M. Yu, J. W. Ager Iii, S. X. Li, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, J. Appl. Phys., **94**, 4457 (2003).

[44] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager Iii, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, Y. Saito, and Y. Nanishi, Appl. Phys. Lett., **80**, 3967 (2002).

[45] V. Y. Davydov, A. A. Klochikhin, R. P. Seisyan, V. V. Emtsev, S. V. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmuller, H. Harima, A. V. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova, and J. Graul, Phys Status Solidi B, **229**, R1 (2002).

[46] Q. X. Guo and A. Yoshida, Japan. J. Appl. Phys., 33, 2453 (1994).

[47] T. L. Tansley and C. P. Foley, J. Appl. Phys., 59, 3241 (1986).

[48] K. Osamura, S. Naka, and Y. Murakami, J. Appl. Phys., 46, 3432 (1975).

[49] S. P. Fu, Y. F. Chen, and K. Tan, Solid State Commun., 137, 203 (2006).

[50] B. Arnaudov, T. Paskova, P. P. Paskov, B. Magnusson, E. Valcheva, B. Monemar, H. Lu, W. J. Schaff, H. Amano, and I. Akasaki, Phys. Rev. B, **69**, 115216 (2004).

[51] J. Wu, W. Walukiewicz, W. Shan, K. M. Yu, J. W. Ager, III, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, Phys. Rev. B, **66**, 201403 (2002).

[52] W. Walukiewicz, Physica B: Condensed Matter, **302–303**, 123 (2001).

[53] S. X. Li, K. M. Yu, J. Wu, R. E. Jones, W. Walukiewicz, J. W. Ager, III,W. Shan, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, Phys. Rev. B, **71**, 161201 (2005).

[54] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager Iii, E. E. Haller, H. Lu, and W. J. Schaff, Appl. Phys. Lett., **80**, 4741 (2002).

[55] S. Nakamura, M. Senoh, S.-i. Nagahama, N. Iwasa, T. Matsushita, and T. Mukai, Appl. Phys. Lett., **76**, 22 (2000).

[56] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, Appl. Phys. Lett., **62**, 2390 (1993).

[57] Y. Zhao, Q. Yan, C.-Y. Huang, S.-C. Huang, P. S. Hsu, S. Tanaka, C.-C. Pan, Y. Kawaguchi, K. Fujito, C. G. Van de Walle, J. S. Speck, S. P. DenBaars, S. Nakamura, and D. Feezell, Appl. Phys. Lett., **100**, 201108 (2012).

[58] D.-S. Shin, D.-P. Han, J.-Y. Oh, and J.-I. Shim, Appl. Phys. Lett., **100**, 153506 (2012).

[59] T. Malinauskas, A. Kadys, T. Grinys, S. Nargelas, R. Aleksiejunas, S. Miasojedovas, J. Mickevicius, R. Tomasiunas, K. Jarasiunas, M. Vengris, S. Okur, V. Avrutin, X. Li, F. Zhang, U. Ozgur, and H. Morkoc, Proc. SPIE, **8262**, 82621s (2012).

[60] X. Li, S. Okur, F. Zhang, S. A. Hafiz, V. Avrutin, U. Ozgur, H. Morkoc, and K. Jarasiunas, Appl. Phys. Lett., **101**, 041115 (2012).

[61] P. Kivisaari, L. Riuttanen, J. Oksanen, S. Suihkonen, M. Ali, H. Lipsanen, and J. Tulkki, Appl. Phys. Lett., **101**, 021113 (2012).

[62] F. Bertazzi, M. Goano, and E. Bellotti, Appl. Phys. Lett., **101**, 011111 (2012).

[63] J. I. Shim, H. Kim, D. S. Shin, and H. Y. Yoo, Journal of the Korean Physical Society, **58**, 503 (2011).

[64] M. A. Reshchikov and H. Morkoc, J. Appl. Phys., 97, 061301 (2005).

[65] S. J. Pearton, J. C. Zolper, R. J. Shul, and F. Ren, J. Appl. Phys., 86, 1 (1999).

[66] H. Morkoc, S. Strite, G. B. Gao, M. E. Lin, B. Sverdlov, and M. Burns, J. Appl. Phys., **76**, 1363 (1994).

[67] U. Ozgur, L. Huiyong, L. Xing, N. Xianfeng, and H. Morkoc, Proceedings of the IEEE, **98**, 1180 (2010).

[68] I. A. Pope, P. M. Smowton, P. Blood, J. D. Thomson, M. J. Kappers, and C. J. Humphreys, Appl. Phys. Lett., **82**, 2755 (2003).

[69] A. Efremov, N. Bochkareva, R. Gorbunov, D. Lavrinovich, Y. Rebane, D. Tarkhin, and Y. Shreter, Semiconductors, **40**, 605 (2006).

[70] A. David and N. F. Gardner, Appl. Phys. Lett., 97, 193508 (2010).

[71] E. Iliopoulos, A. Georgakilas, E. Dimakis, A. Adikimenakis, K. Tsagaraki, M. Androulidaki, and N. T. Pelekanos, physica status solidi (a), **203**, 102 (2006).

[72] Y.-S. Lin, K.-J. Ma, C. Hsu, S.-W. Feng, Y.-C. Cheng, C.-C. Liao, C. C. Yang, C.-C. Chou, C.-M. Lee, and J.-I. Chyi, Appl. Phys. Lett., **77**, 2988 (2000).

[73] S. F. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, T. Mukai, and S. Nakamura, J. Appl. Phys., **88**, 5153 (2000).

[74] T. Malinauskas, K. Jarasiunas, S. Miasojedovas, S. Jursenas, B. Beaumont, and P. Gibart, Appl. Phys. Lett., **88**, 202109 (2006).

[75] R. Aleksiejunas, M. Sudzius, T. Malinauskas, J. Vaitkus, K. Jarasiunas, and S. Sakai, Appl. Phys. Lett., **83**, 1157 (2003).

[76] R. A. Oliver, S. E. Bennett, T. Zhu, D. J. Beesley, M. J. Kappers, D. W. Saxey, A. Cerezo, and C. J. Humphreys, Journal of Physics D: Applied Physics, **43**, 354003 (2010).

[77] P. Scajev, K. Jarasiunas, S. Okur, U. Ozgur, and H. Morkoc, J. Appl. Phys., **111**, 023702 (2012).

[78] J. Hader, J. V. Moloney, and S. W. Koch, Appl. Phys. Lett., **96**, 221106 (2010).

[79] M. Henini, J. Ibanez, M. Schmidbauer, M. Shafi, S. V. Novikov, L. Turyanska, S. I. Molina, D. L. Sales, M. F. Chisholm, and J. Misiewicz, Appl. Phys. Lett., **91**, 251909 (2007).

[80] E. Kioupakis, P. Rinke, K. T. Delaney, and C. G. Van de Walle, Appl. Phys. Lett., **98**, 161107 (2011).

[81] E. Nodwell, M. Adamcyk, A. Ballestad, T. Tiedje, S. Tixier, S. E. Webster, E. C. Young, A. Moewes, E. Z. Kurmaev, and T. van Buuren, Phys. Rev. B, **69**, 155210 (2004).

[82] U. Tisch, E. Finkman, and J. Salzman, Appl. Phys. Lett., 81, 463 (2002).

[83] M. Fischer, D. Gollub, M. Reinhardt, M. Kamp, and A. Forchel, J. Cryst. Growth, **251**, 353 (2003).

[84] R. Mouillet, L.-A. de Vaulchier, E. Deleporte, Y. Guldner, L. Travers, and J.-C. Harmand, Solid State Commun., **126**, 333 (2003).

[85] R. Kudrawiec, M. Syperek, P. Poloczek, J. Misiewicz, R. H. Mari, M. Shafi, M. Henini, Y. G. Gobato, S. V. Novikov, J. Ibanez, M. Schmidbauer, and S. I. Molina, J. Appl. Phys., **106**, 023518 (2009).

[86] R. N. Kini, L. Bhusal, A. J. Ptak, R. France, and A. Mascarenhas, J. Appl. Phys., **106**, 043705 (2009).

[87] X. Wu, J. M. Baribeau, J. A. Gupta, and M. Beaulieu, J. Cryst. Growth, **282**, 18 (2005).

[88] H. B. Yuen, S. R. Bank, M. A. Wistey, J. James S. Harris, M.-J. Seong, S. Yoon, R. Kudrawiec, and J. Misiewicz, J. Appl. Phys., **97**, 113510 (2005).

[89] S. Tixier, M. Adamcyk, E. C. Young, J. H. Schmid, and T. Tiedje, J. Cryst. Growth, **251**, 449 (2003).

[90] K. Oe and H. Okamoto, Japan. J. Appl. Phys., 37, L1283 (1998).

[91] S. Tixier, M. Adamcyk, T. Tiedje, S. Francoeur, A. Mascarenhas, P. Wei, and F. Schiettekatte, Appl. Phys. Lett., **82**, 2245 (2003).

[92] K. Alberi, O. D. Dubon, W. Walukiewicz, K. M. Yu, K. Bertulis, and A. Krotkus, Appl. Phys. Lett., **91**, 051909 (2007).

[93] H. Riechert, Advanced Materials, **6**, 86 (1994).

[94] B. Fluegel, S. Francoeur, A. Mascarenhas, S. Tixier, E. C. Young, and T. Tiedje, Physical Review Letters, **97**, 067205 (2006).

[95] W. Shan, W. Walukiewicz, J. W. Ager, III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, and S. R. Kurtz, Physical Review Letters, **82**, 1221 (1999).

[96] Y. Zhang, A. Mascarenhas, and L. W. Wang, Phys. Rev. B, **71**, 155201 (2005).

[97] S. R. Kurtz, A. A. Allerman, C. H. Seager, R. M. Sieg, and E. D. Jones, Appl. Phys. Lett., **77**, 400 (2000).

[98] J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, S. R. Kurtz, and B. M. Keyes, J. Cryst. Growth, **195**, 401 (1998).

[99] D. G. Cooke, F. A. Hegmann, E. C. Young, and T. Tiedje, Appl. Phys. Lett., **89**, 122103 (2006).

[100] V. Pacebutas, K. Bertulis, A. Biciunas, and A. Krotkus, Physica Status Solidi C - Current Topics in Solid State Physics, Vol 6, No 12, **6**, 2649 (2009).

[101] V. Pacebutas, K. Bertulis, G. Aleksejenko, and A. Krotkus, J Mater Sci-Mater El, **20**, 363 (2009).

[102] V. Pacebutas, K. Bertulis, G. Aleksejenko, R. Adontavicius, G. Molis, and A. Krotkus, Opt. Mater., **30**, 756 (2008).

[103] V. Pacebutas, K. Bertulis, L. Dapkus, G. Aleksejenko, A. Krotkus, K. M. Yu, and W. Walukiewicz, Semicond. Sci. Tech., **22**, 819 (2007).

[104] K. Bertulis, A. Krotkus, G. Aleksejenko, V. Pacebutas, R. Adomavicius, G. Molis, and S. Marcinkevicius, Appl. Phys. Lett., **88**, 201112 (2006).

[105] W. Z. Shen, L. F. Jiang, H. F. Yang, F. Y. Meng, H. Ogawa, and Q. X. Guo, Appl. Phys. Lett., **80**, 2063 (2002).

[106] F. B. Naranjo, M. A. Sanchez-Garcia, F. Calle, E. Calleja, B. Jenichen, and K. H. Ploog, Appl. Phys. Lett., **80**, 231 (2002).

[107] K. Jarasiunas, R. Aleksiejunas, T. Malinauskas, V. Gudelis, M. Sudzius, A. Maasdorf, F. Brunner, and M. Weyers, Eur. Phys. J.-Appl. Phys, **27**, 181 (2004).

[108] S. Francoeur, S. Tixier, E. Young, T. Tiedje, and A. Mascarenhas, Phys. Rev. B, **77**, 085209 (2008).

[109] T. Tiedje, E. C. Young, and A. Mascarenhas, Int. J. Nanotechnol., **5**, 963 (2008).

[110] H. Nemec, A. Pashkin, P. Kuzel, M. Khazan, S. Schnull, and I. Wilke, J. Appl. Phys., **90**, 1303 (2001).

[111] R. A. Faulkner, Physical Review, **175**, 991 (1968).

[112] J. J. Hopfield, D. G. Thomas, and R. T. Lynch, Physical Review Letters, **17**, 312 (1966).

[113] A. R. Mohmad, F. Bastiman, C. J. Hunter, J. S. Ng, S. J. Sweeney, and J. P. R. David, Appl. Phys. Lett., **99**, 042107 (2011).

[114] J. Betko, M. Morvic, J. Novak, A. Forster, and P. Kordos, Appl. Phys. Lett., **69**, 2563 (1996).