Vilniaus universiteto Fizikos fakulteto Fotonikos ir nanotechnologijų institutas

Gabija Soltanaitė

LAIKINĖS SKYROS KATODOLIUMINESCENCIJA INGAN JUNGINIŲ V -DEFEKTUOSE

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Fotonikos ir nanotechnologijų studijų programa

Studentas

Leista ginti Darbo vadovas

Instituto atstovas

Gabija Soltanaitė

2024-05-23 dr. Žydrūnas Podlipskas

dr. Augustas Vaitkevičius

Vilnius 2024

Turinys

Įvadas	
1. Literatūros apžvalga	4
1.1 Nitridinių puslaidininkių savybės	4
1.2 InGaN technologijos	5
1.3 Defektai InGaN	6
1.4 V tipo defektai InGaN	7
2. Tyrimo metodika	
3. Tyrimo objektai	12
4. Rezultatai	14
4.1 Tyrimo eiga	14
4.2 InGaN laike integruotos liuminescencijos savybės	16
4.3 InGaN V defektų liuminescencijos laikinės savybės	17
4.4 InGaN kilpinių defektų savybės	22
Išvados	
Literatūros sąrašas	27
Summary	

Įvadas

III grupės puslaidininkiai jau ne vieną dešimtmetį yra aktualūs taikymams elektronikoje ir optoelektronikoje, egzistuoja daugybė jau realizuotų įrenginių, pagamintų būtent šių medžiagų klasės pagrindu. InGaN, kurio pagrindu buvo sukurtas bene pirmasis aukšto našumo mėlynos spalvos LED diodas, išlieka vienu perspektyviausių junginių ateities technologijoms kurti. InGaN atliekama draustinių energijų tarpo inžinerija, kurią atliekant, emisijos bangos ilgis išplėstas beveik per visą regimosios šviesos elektromagnetinių bangų spektrą ir kitos technologinės modifikacijos. Visgi, dėl medžiagai būdingų defektų ir didelio jų tankio optinės savybės neatitinka moderniems taikymams keliamų standartų. Defektų įtaka InGaN/GaN aktyviosios terpės – kvantinių duobių struktūroms neigiamai keičia sluoksnių liuminescencijos profilį ir laikines savybes. Didelio defektų tankiu pasižyminčiuose junginiuose defektai gali nulemti mažesnį kvantinį našumą ir kitus pramonei svarbius parametrus. Defektai dažnai veikia kaip nespindulinės rekombinacijos centrai, todėl jų kiekiui didėjant, didėja krūvininkų, dalyvaujančių nespindulinėje rekombinacijoje kiekis. Šiame darbe tiriamos InGaN būdingų V V-defects) ir kilpinių (angl. trench) defektų erdvinės ir laikinės tipo (angl. katodoliuminescencijos savybės.

Šio darbo tikslas – katodoliuminescencijos su erdvine ir laikine skyra metodu ištirti InGaN V ir kilpinių defektų erdvines ir laikines katodoliuminescencijos savybes defektų aplinkoje bei nustatyti defekto parametrų įtaką katodoliuminescencijos charakteristikoms.

1. Literatūros apžvalga

1.1 Nitridinių puslaidininkių savybės

Puslaidininkių panaudojimą optoelektronikoje istoriškai nulėmė keleta priežasčių. Pirma, puslaidininkinių medžiagų kristalinė struktūra yra tinkama daugeliui prietaisų įgyvendinti. Šios medžiagos pasižymi tvarkinga struktūra, yra suderinamos su kitomis, tinkamos legiravimui ir kitoms modifikacijoms norint taikyti pramonėje ir komercializuoti. Medžiagos yra mechaniškai kietos, gerai pralaidžios šilumai. [15]

Optoelektronikos sektoriaus proveržis prasidėjo, kai buvo sukurtas tranzistorius ir igalintas ketvirtos periodinės lentelės grupės elementas germanis. Po to ilgą laiką pagrindine puslaidininkinės pramonės medžiaga buvo silicis. Vėliau, puslaidininkių pramonei vystantis, buvo pradėti naudoti įvairūs puslaidininkių medžiagų lydiniai, tarp kurių svarbų vaidmenį užima trečios grupės nitridai. Indžio galio nitridas (InGaN) yra trinaris puslaidininkis, turintis tetraedrinę kristalinę gardelę. InGaN draustinio energijų tarpas gali būti keičiamas, keičiant sudedamujų atomų santykį. Draustinių energijų tarpo (angl. bandgap) inžinerija praplėtė požiūri i tai, kokiame taikymų spektre puslaidininkis yra aktualus naudoti. Pradėta auginti sluoksnius su norimu draustiniu tarpu ir formuoti heterostruktūras, tokias kaip kvantinės duobės, gijos ar taškai, optimizuojant jų taikymo galimybes. Heterostruktūros kuriamos, auginant skirtingų medžiagų sluoksnius vieną ant kito, pavyzdžiui, GaN ir InGaN. Indžio galio nitrido heterostruktūros sudaromos iš šių medžiagų aktyvios terpės ir kitų funkcinių sluoksnių. Draustinio energijų inžinerija taip pat gali būti atliekama keičiant kvantinės duobės parametrus. Iprastai kvantinės duobės puslaidininkiniuose dariniuose sukuriamos naudojant epitaksijos irenginius, impulsiniu ar neimpulsiniu būdu reaktoriuje tiekiant medžiagas. Formuojant kvantinius taškus ar gijas (0D ir 1D darinius) naudojami papildomi irankiai ir technologijos, tokios kaip ėsdinimas ir saviformavimasis. Tokie dariniai, sudaryti iš kelių medžiagų sandūros, legiruoti puslaidininkiai bei medžiagų struktūros su įvairiomis inžinerijos detalėmis yra naudojami sudėtingų optoelektronikos prietaisų kūrimui ir tobulinimui. [15]

1.2 InGaN technologijos

Istoriškai, šiuolaikinių mėlynos spalvos LED šviestuku kokybe nulėmė devynesdešimtaisiais Shuji Nakamura atlikti darbai - metaloorganinio nusodinimo iš garų fazės (MOCVD) sistemų patobulinimas, prekursoriumi auginant GaN sluoksnius parenkant trimetilgalį. Tai išsprendė aukštos kokybės GaN sluoksnių auginimo problemą. Iki tol potencialiomis medžiagomis mėlynos spalvos šviestukų kūrimui laikytas ZnSe. Cinko selenidui auginti buvo pasiūlyti GaAs padėklai, kurių kristalinės gardelės konstanta artima ZnSe (apie 0,3%). Visgi, tuo metu GaAs padėklai buvo neprieinami, todėl ZnSe sluoksniai auginti ant safyro padėklu, kurių kristalinės gardelės konstantų nesutapimas (apie 16%) nulėmė didelį dislokacijų ir kitų struktūrinių defektų tankį medžiagoje. Nors laikui bėgant ZnSe auginimo technologijos pasiekė sąlyginai gerų rezultatų, GaN technologija, pasiūlyta Shuji Nakamura leido optimizuoti GaN sluoksnių auginimą ir 1993 m. pristatyti pirmąjį mėlynos spalvos LED šviestuką, kurį sudarė GaN ir InGaN sluoksniai. [18] Pagrindinis šios medžiagos trūkumas – didelis dislokacijų tankis (108-1010 cm-2) GaN sluoksniuose, kurie auginami ant skirtingos kristalinės gardelės medžiagų padėklų. Toks kristalinių gardelių nesutapimas sukelia įtempimus kristalinėje gardelėje ir sluoksnių auginimo metu formuojasi dislokacijos, kiti struktūriniai defektai. Minėtos dislokacijos pasireiškia kaip nespindulinės rekombinacijos centrai. [3]

GaN epitaksinių sluoksnių auginimo temperatūra dažniausiai yra aukštesnė nei 1000 °C, tačiau InGaN auginimui reikalinga žemesnė temperatūra, siekianti apie 800 °C. Jei sluoksniuose yra didesnis indžio kiekis, reikalinga dar žemesnė temperatūra, nes temperatūra tiesiogiai veikia indžio inkorporacijos sąlygas. Pasiekus 760 °C temperatūra, ant medžiagos paviršiaus pradeda formuotis galio "lašai", todėl optimalia auginimo temperatūra laikoma 780 °C, nes tokiomis sąlygomis gaunamas lygus bandinio paviršius ir norima pasirinkta indžio koncentracija, siekianti iki 20%. [17] Pagrindinė problema yra ta, kad auginant tokius kvantinius darinius neoptimalioje temperatūroje padidėja defektų ir kitų struktūrinių trūkumų susidarymo tikimybė. MOCVD reaktoriuje, auginimo metu reikalingo amoniako disociacijos greitis krenta žemesnėje temperatūroje, todėl auginant GaN ir InGaN susidaro azoto vakansijos. Todėl auginimo temperatūra turi būti parinkta taip, kad būtų galima gauti sluoksnius su norimu indžio kiekiu neprarandant jų kokybės. [17]

Safyras yra dažniausiai ir seniausiai naudojamas padėklas trečios grupės nitridų auginimui. Didelio paviršiaus ploto ir geros kokybės safyro padėklai yra skaidrūs ir stabilūs

aukštoje temperatūroje. Be visų šių privalumų, safyras yra nebrangi medžiaga, ant kurios galima užauginti pakankamai geros kokybės medžiagas. Kita populiari padėklui naudojama medžiaga yra silicio karbidas (SiC). Kristalinių gardelių nesutapimas tarp SiC ir GaN yra tik 3,5%, be to, silicio karbidas pasižymi geru elektriniu laidumu. Literatūroje minima, kad praktiškai auginant trečios grupės nitridus ant SiC, pasiekiamas mažesnis įtempimų tankis nei naudojant safyrą. [16] Norint užauginti dar kokybiškesnes medžiagas, paprastai naudojamas buferinis sluoksnis, kuris stabdo defektų skvarbą iš padėklo į formuojamą medžiagą. Toks metodas žymiai sumažina defektų ir dislokacijų tankį auginant kvantinių duobių heterostruktūras ir gali potencialiai pagerinti optines medžiagos savybes. [17]

Šviesos emisija iš puslaidininkinių medžiagų bei jų heterostruktūrų yra nulemta elektronų – skylių porų rekombinacijos mechanizmų, kurie gali būti spinduliniai ir nespinduliniai. Tik maža dalis kristalinių medžiagų pasižymi pakankamai aukšta kristalinės struktūros kokybe ir mažu giliųjų lygmenų, esančių draustinių energijų tarpe skaičiumi, todėl daugeliu atvejų stebima ne tik spindulinė, tačiau ir nespindulinė rekombinacija. [14] Minėti struktūriniai defektai aptariami vėlesniuose skyriuose ir tiriami šiame darbe.

1.3 Defektai InGaN

InGaN ir kitoms nitridininėms puslaidininkinėms medžiagoms būdingi įvairių tipų defektai, vieni dažniausiai sutinkamų – dislokacijos ir taškiniai defektai. Taškiniai defektai, kurie gali būti apibrėžiami kaip tarpmazginiai, pakaitiniai atomai ar vakansijos susiformuoja medžiagos augimo metu. Jų buvimas gali keisti optines medžiagos savybes, defektai veikia kaip spindulinės ir nespindulinės rekombinacijos centrai. Defektuose krūvininkai rekombinuoja tarpiniuose, draustinių energijų tarpe (angl. bandgap) esančiuose lygmenyse, kurie daro įtaką struktūrų spektrams ir laikinėms savybėms. Defektai, suformuojantys šiuos tarpinius defektinius lygmenis giliau draustiniame energijų tarpe dažniau veikia kaip nespindulinės rekombinacijos centrai. [7] Dislokacijų atsiradimas dviejų medžiagų sandūroje ir per visa ilgi yra neišvengiamas, kai medžiaga auginama ant padėklo, kurio kristalinė gardelė nesutampa su auginamos medžiagos kristaline gardele. Nors dislokacijos turi įtakos medžiagos kokybei, dažniausiai InGaN ir kiti III grupės nitridai yra auginami tokiomis sąlygomis dėl keletos priežasčių. Kristalinių gardelių nesutapimas tarp padėklo ir auginamos medžiagos yra aktuali problema, kurią stengiamasi spręsti įvairiais technologiniais metodais. Kristalo sluoksnis gali būti užaugintas ant padėklo, kurio kristalinė gardelė tapati kristalo

kristalinei gardelei, taigi neišvengiamai atsiranda įtempimai, kiti struktūriniai defektai. Šiai problemai spręsti pasitelkiamas buferinis (angl. *buffer*) sluoksnis, kurio kristalinės gardelės konstanta yra artimesnė auginamai medžiagai. Auginant medžiagas ant skirtingos kristalinės gardelės konstantos padėklo ir/ar buferinio sluoksnio svarbu įvertinti, ar auginamas sluoksnis patiria tempimą, ar suspaudimą. Pirmuoju atveju struktūra yra "ištempiama", to pasekoje formuojantis dislokacijoms. [17]

Taigi, buferinis sluoksnis leidžia ekonomiškai, tačiau efektyviai užtikrinti auginamos medžiagos kokybę. Buferį įprastai sudaro labai plonas (apie 50 nm siekiantis) GaN sluoksnis (konkrečiai InGaN). Buferinis sluoksnis savo kristaline gardele labiau atitinka InGaN kristalinę gardelę bei sumažina įtempimus medžiagos viduje. Kiti svarbūs parametrai, kurie nulemia bandinio kokybę auginimo metu yra temperatūra, slėgis, dujinių šaltinių srautas, atskirų sluoksnių auginimo laikas, impulsų, kuriais į reaktorių paduodami šaltiniai trukmė. [16] Formuojant InGaN nanostruktūras, tokias kaip kvantinės duobės, kyla problema ir dėl stipraus pjezoelektrinio reiškinio, kuris riboja InGaN šviestukų efektyvumą. Pjezoelektrinio reiškinio stiprumas priklauso nuo kristalinės gardelės nesutapimo sukeltų įtempimų kiekio – kuo jų daugiau, tuo efektas stipresnis. Vidinio elektrinio lauko nulemtas pjezoelektrinis reiškinys yra nepageidaujamas, todėl didėjant indžio kiekiui (taip pat didėjant dislokacijų kiekiui bei kristalinų gardelių konstantų skirtumui) ši problema tampa vis aktualesnė. Elektrinis laukas gali pakeisti kvantinių duobių juostinę struktūrą, o to pasekoje siaurėja draustinis tarpas ir atsiskiria elektrono ir skylių banginės funkcijos, sukeldamos Štarko efektą, kuris kvantinėse duobėse apibūdinamas kaip iškreipiantis kvantinių duobių formą ir potencialą. [17][18]

1.4 V tipo defektai InGaN

InGaN/GaN kvantinių duobių heterostruktūros taikomos kaip aktyvūs emisijos sluoksniai GaN pagrindu gaminamuose LED šviestukuose. Tokio tipo struktūros taikomos dėl galimybės keisti ir kontroliuoti optines savybes – draustinių energijų tarpo inžinerija gali būti atliekama plačiame spektro ruože nuo regimosios šviesos bangos ilgių iki ultravioletinės srities. Tai atliekama keičiant In kiekį medžiagoje ir kitas modifikacijas.



1 pav. V defektų schema. Adaptuota pagal [6].

Didelis dislokacijų tankis nitriduose pasireiškia dėl jau minėtų kristalinės gardelės nesutapimų ir kitų su auginimu susijusių parametrų nestabilumo. Dėl dislokacijų medžiagoje pasireiškianti nespindulinė rekombinacija gali tapti žemo našumo priežastimi InGaN/GaN struktūrose. Visgi, dislokacijų vietose besiformuojantys V (angl. V-pits, *V*-defects) geometrijos defektai tapo aktualūs dėl išskirtinai išaugusio liuminescencijos intensyvumo juose ir defektu aplinkoje. [4] Defektai būdingi ne tik InGaN, tačiau ir kitiems trečios – penktos grupės junginiams. V defektais šie defektai vadinami dėl jų geometrijos, kadangi atvaizduoja trikampio formos struktūra junginio skerspiųvyje. V defektų struktūra pavaizduota 1 pav. Nepaisant didelio struktūrinių dislokacijų tankio, medžiagos turinčios V defektų struktūrą pasižymi stebėtinai dideliu našumu. Šie defektai susidaro esant tam tikromis augimo sąlygomis - įprastai esant temperatūros kontrastams, dideliam dislokacijų tankiui medžiagoje. V defekto nukleacija prasideda dislokacijos centre, kuri defektui pilnai susiformavus yra "uždaroma" defekto tūryje - šonines sienas dengia kvantinių duobių struktūros (KD), kurios išsidėsto pusiau polinėje (1011) orientacijos plokštumoje, kai tuo tarpu bandinio kristalografinė plokštuma yra c orientacijos (polinė, 0001). [2],[4]



2 pav. V defektai InGaN paviršiuje, skenuojančios elektronų mikroskopijos (SEM) vaizdas. Adaptuota pagal [6].

Dėl silpnesnės In atomų difuzijos į defektus stebimi potencialiniai barjerai, susiformuojantys aplink V defektą. Dėl mažesnio In atomų kiekio V defektuose lyginant su periferija egzistuoja potencialiniai barjerai, didesni nei kitur defekto aplinkoje, kadangi mažesnė indžio koncentracija InGaN KD nulemia draustinių energijų tarpo padidėjimą V defekto viduje. Tai nėra vienalypis reiškinys – potencialo, susiformuojančio V defekto aplinkoje dydis koreliuoja ir su paties defekto matmenimis. Įprastai teigiama, jog didesni V defektai gali slopinti nespindulinius procesus didelį dislokacijų tankį turinčiuose nitriduose, tuo tarpu mažesnio dydžio defektai gali turėti neigiamos įtakos bendram struktūros liuminescencijos profiliui dėl didesnės tikimybės krūvininkų difuzijai į defektą ir dislokaciją, kuri yra jo centre. [6][10] Vėlesniuose skyriuose detaliai tiriamos šių defektų savybės liuminescencijos erdviniams ir laikiniams parametrams, vieną iš rodiklių parenkant defekto dydį.

2. Tyrimo metodika

Katodoliuminescencijos spektroskopija su erdvine skyra yra metodas, pagrįstas medžiagos sužadinimu elektronų srautu. Katodoliuminescencijos metu medžiagos sužadinimas didelės energijos elektronais yra neselektyvus. Pagrindinis katodoliuminescencijos privalumas – didelė skiriamoji geba, lyginant su fotoliuminescencija. Tai leidžia detaliau stebėti medžiagos struktūrą, išskirti defektus, dislokacijas, geriau pažinti tiriamą medžiagą.

Erdvinė skyra katodoliuminescencijos spektroskopijos metu priklauso nuo elektronų pluošto sąveikos su medžiaga, difuzijos nuotolio ir medžiagos erdvinių savybių. Jei parenkami atitinkami tyrimo parametrai, tokie kaip elektronų greitinimo įtampa, galima išgauti itin didelės erdvinės skyros matavimus, ypač svarbius tiriant įvairius kvantinius darinius, smulkias struktūras ar defektus. Svarbi yra ir laikinė matavimų dalis, kadangi galima stebėti, kaip medžiagoje esančios struktūros daro įtaką krūvininkų rekombinacijai.



3 pav. AttolightChronos mikroskopo principinė schema

Katodoliuminescencijos su erdvine ir laikine skyra matavimai atlikti Vilniaus universiteto fotonikos ir nanotechnologijų institute esančiu AttolightChronos hibridiniu optiniu ir skenuojančiu elektroniniu mikroskopu, turinčiu elektronų patranką ir veikiančiu stacionariame ir impulsiniame režime. Mikroskopo schema pavaizduota 3 pav. Šotkio lauko emisijos (angl. Schottky field emission) patranka generuoja elektronų pluoštą (stacionariame režime terminė emisija, impulsiniame – fotoelektrinė), kuris sklidimo metu yra pagreitinamas (greitinimo įtampa nuo 1 iki 10 kV) bei sufokusuojamas (iki 3 nm stacionariame režime, 10 nm impulsiniame) konkrečiame taške pasirinktame bandinio plote. Matavimų tikslumas pasiekiamas bandinį laikant vakuumo kameroje, tam, kad elektronų pluoštas sklisdamas iki jo neprarastų savo energijos. Elektronų pluoštui pasiekus bandinio paviršių, kiekvienoje spindulio pozicijoje bandinys yra sužadinamas ir įvykus krūvininkų rekombinacijai išspinduliuoja fotonus, kuriuos surenka sistema sudaryta iš aplaninio/achromatinio lęšio su 300 µm matymo lauku, spektrometro turinčio skirtingą difrakcinę gardelę skirtingiems spektro ruožams (viso trys difrakcinės gardelės), UV-VIS CCD kameros bei UV-VIS streak kameros. Matavimo metu detektuojami ir antriniai elektronai yra esminis mechanizmas, leidžiantis vienu metu gauti tiek katodoliuminescencijos (CL) signalą, tiek skenuojančios elektronų mikroskopijos vaizdą (SEM).

Impulsiniame režime gaunamas katodoliuminescencijos intensyvumo spektras, o kartu ir laikinės šviesos intensyvumo gesimo priklausomybės iš pasirinkto bandinio taško. Įprastai prie šių duomenų užfiksuojamas ir pats bandinio paviršius bei jo struktūra, tad mikroskopas veikia ir kaip elektroninis mikroskopas. Impulsiniame režime elektronų patrankos sužadinimui reikalingas lazeris, o fiksuojamas liuminescencijos gesimo signalas išsklaidomas difrakcinės gardelės ir registruojamas *streak* kamera. Pagrindinis impulsinės veikos režimo privalumas – pasiekiama apie 100 ps laikinė skyra, tačiau erdvinė skiriamoji geba suprastėja lyginant su stacionariu režimu.

3. Tyrimo objektai

Katodoliuminescencijos spektroskopijos su erdvine ir laikine skyra metodu buvo išmatuoti keturi skirtingos kompozicijos InGaN bandiniai S1, S2, S3, S4. Struktūros užaugintos metalorganinio cheminio nusodinimo iš garų fazės (angl. *metalorganic chemical vapor deposition*, MOCVD) metodu. Struktūra S1 užauginta Vilniaus universiteto fotonikos ir nanotechnologijų institute (FNI), S2 ir S3 – Kalifornijos universitete (*University of California, Santa Barbara*, UCSB, JAV), S4 - Kembridžo universitete (*University of Cambridge*, CU, Jungtinė Karalystė).

Nr.	Struktūra	Plokštuma	Sluoksnių storis (nm)***	In kiekis (%)*	λ (nm)**	Tiekėjas
S1	5 KD/KB/S G 10	c-0001	3/8	10+	448	FNI
S2	10 KD/10 KB	c-0001	3/12	9	393	UCSB
S3	9 KD/GaN	c-0001	3/5	10	417	UCSB
S4	10 KD/KB	c-0001	2.6/7.1	18	444	CU

1 lentelė. InGaN auginimo parametrai

*Nurodyta tiekėjo;

**Nustatyta iš išmatuotos spektrinės smailės padėties

*** Kvantinių duobių storis/kvantinių barjerų storis

Bandinių sąrašas pateiktas 1 lentelėje su pagrindiniais auginimo parametrais. Struktūros buvo užaugintos impulsiniu ir neimpulsiniu auginimo metodais, su skirtingomis kvantinių duobių (KD) ir barjerų (KB) savybėmis. Šiame skyrelyje aptariama kiekviena struktūra ir esminiai jos parametrai.

S1 (FNI) struktūra suformuota impulsiniu auginimo būdu, GaN sluoksnius auginant aukštesnėje (810 °C) nei InGaN (780 °C) temperatūroje periodiniais intervalais. Aktyviąją sritį sudaro InGaN/GaN supergardelė (SG) ir 5 periodiškai išdėstyti InGaN kvantinių duobių (3 nm) ir GaN barjerų (8 nm) sluoksniai. Supergardelės struktūra auginimo metu auginama ant GaN padėklo ir yra sudaroma iš plonų, tik kelis nanometrus siekiančių InGaN ir GaN sluoksnių, tai

pakartojama 10 kartų. Ant supergardelės paskutinio GaN sluoksnio augintos kvantinės duobės ir barjerai.

S2, S3 (UCSB) struktūros susidaro iš buferinio GaN (angl. UID – *unintentionally doped*) sluoksnio, 3 nm kvantinių duobių struktūrų, kurios periodiškai augintos 9/10 kartų atitinkamai S3/S2. Ant kvantinių duobių suformuoti kvantiniai barjerai, struktūros viršus bandinyje S2 padengtas 5 nm storio GaN sluoksniu.

S4 (CU) struktūra pasižymi išskirtine savybe – "skylėtomis" kvantinėmis duobėmis. Tokia struktūra susidaro iš susisiekiančių barjerų sluoksnių, nulemtų itin mažo jų storio (2.6 nm) ir spartaus temperatūros pakėlimo tarp sluoksnių nutraukus medžiagų tiekimą reaktoriuje (temperatūra pakeliama po InGaN sluoksnio, be apsauginio barjero). Tokiu būdu prarandama dalis In (vyksta garavimas) ir susidaro fluktuacijos kvantinių duobių struktūroje ir storyje. [10][14].



4 pav. Skenuojančios elektronų mikroskopijos (SEM) nuotraukos – a) S1; b) S2; c) S3; d) S4. Matavimai atlikti stacionariame režime, ~7,3×7,3 μm² plote.

Kiekvienam iš bandinių būdingi V tipo defektai, kilpiniai defektai, pasiskirstę bandinio paviršiuje ir matomi skenuojančios elektronu mikroskopijos vaizduose bei katodoliuminescencijos žemėlapiuose. SEM (skenuojančios elektronų mikroskopijos) vaizdai, išmatuoti stacionariu režimu pateikti 4 pav. visiems serijos bandiniams. Visuose bandiniuose stebimi skirtingo dydžio V tipo defektai, kuriuos galima išskirti į tris vyraujančias matmenų kategorijas kaip mažiausi, vidutiniai ir mažiausią dalį sudarantys, didžiausio skersmens defektai. V defektai paviršiuje matomi kaip kontrastingi skirtingų dydžių objektai, daliai didžiausio skersmens defektų aiškiai matoma būdinga šešiakampė geometrija. Defektų pasiskirstymas paviršiuje visuose tirtuose bandiniuose išlieka sąlyginai homogeniškas.

Nr.	Ν	IQE	d (nm)	λ (nm)
<i>S1</i>	1.0E+17	3.4	39.1	448 (2.77eV)
<i>S2</i>	9.5E+17	1.8	55.2	393 (3.14eV)
<i>S3</i>	3.6E+17	9.0	40.6	417 (2.97eV)
<i>S4</i>	1.1E+17	11.0	33.1	444 (2.79eV)

2 lentelė. InGaN parametrai

Visų serijos bandinių parametrai pateikti 2 lentelėje. Pateikiamas kiekvieno iš bandinių spektro smailės padėties bangos ilgis λ , išmatuotų V tipo defektų skersmens vidurkis d, vidinis kvantinis našumas (IQE) ir krūvininkų koncentracija N, ties kuria nustatyta vidinio kvantinio našumo vertė. Vidinis kvantinis našumas (IQE) apibrėžiamas kaip santykis tarp spindulinės ir suminės visų rekombinacijos mechanizmų spartų. Šis dydis nustatytas optiškai, makroskopiniame mastelyje Light Conversion Pharos lazerio impulsais selektyviai žadinant kvantinių duobių struktūras. IQE matavimus atliko dr. Kazimieras Nomeika (FNI). 2 lentelėje nurodytos vertės ties specifine 10¹⁷-10¹⁸ krūvininkų koncentracija geriausiai atspindi matavimų metu buvusią koncentraciją (krūvininkų kiekis skiriasi priklausomai nuo to, kokiu režimu atliekami matavimai, tad ši vertė geriausiai atitinka impulsinio režimo sąlygas).

4. Rezultatai

4.1 Tyrimo eiga

Pirmiausia matavimai atlikti nuolatinės veikos režimu dėl aukštesnės skiriamosios gebos matuojant SEM vaizdus norint nustatyti paviršiaus struktūrą ir įvertinti V tipo bei kitų defektų pasiskirstymą ant paviršiaus. Likusi tyrimo dalis atlikta impulsinės veikos režime esant skirtingoms elektronų greitinimo įtampoms (4 - 5 kV) ir apertūros parametrams priklausomai nuo bandinio liuminescencijos savybių bei signalo intensyvumo. CL ir SEM signalai šiuo metodu detektuojami sinchroniškai, todėl galima itin tiksliai gretinti paviršiaus morfologiją ir stacionarių bei laikinių liuminescencijos ypatybių erdvinį pasiskirstymą.

Tyrimo impulsinės veikos metodu metu nustatyta serijos bandinių liuminescencijos dinamika. Kiekviename iš InGaN junginių pasirinkti kontrastingi, skirtingų dydžių (kurie priskirti vidutinio skersmens defektų grupei) defektai skirtingose bandinio vietose. Kiekvienoje iš pasirinktų zonų visuose bandiniuose išmatuotas vienas ar keli V defektai, dvejuose iš

bandinių (S1 ir S4) - ir kilpiniai defektai. Matavimo schema, pavaizduota 5 pav. nurodo, jog matavimai buvo atliekami profiliuojant (kryptingai skenuojant pasirinktą defektą). Po liuminescencijos žemėlapio pasirinktame plote fiksavimo (toks žemėlapis sudaromas elektronų pluoštu žadinant visą parinktą plotą pikselis po pikselio) buvo išmatuotos liuminescencijos gesimo kinetikos pasirinktuose taškuose. Skenavimas pradėtas periferijoje – V defektais nepasižyminčioje bandinio vietoje ir ties kiekvienu tašku artėjama prie plote esančio V defekto. Tokiu būdu fiksuotas liuminescencijos gesimo signalas už defekto, defekto aplinkoje, šlaite ir centre.



5 pav. Pavyzdinė defekto skenavimo schema: a) V defektas (S3); b) Kilpinis defektas (S1). Profiliavimo kryptis pavaizduota ant erdvinio CL žemėlapio.

Duomenys, gauti matavimų metu buvo apdoroti *Attomap* programine įranga ir *Python* programiniu kodu kartu su *Hyperspy* biblioteka. Analizės metu gauti liuminescencijos erdvinio pasiskirstymo žemėlapiai kiekviename iš matuotų plotų, SEM vaizdai, liuminescencijos spektrai ir kinetikos. Šių duomenų pagrindu sukonstruoti liuminescencijos dinamikos bandiniuose profiliai, atlikta lyginamoji laikinių charakteristikų analizė norint nustatyti defektų įtaką InGaN junginių liuminescencijos savybėms, kurios aptariamos kitame skyriuje.

4.2 InGaN laike integruotos liuminescencijos savybės

Iš duomenų, gautų matuojant erdvinius katodoliuminescencijos intensyvumo žemėlapius nustatytos liuminescencinės bandinių savybės. 6 pav. a) Pavaizduota normalizuota katodoliuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo bangos ilgio. Spektre matyti, jog spektrinės smailės bangos ilgis visuose bandiniuose svyruoja ribose 390 - 459 nm, tai atitinka violetinės/mėlynos spalvos InGaN emisijos bangos ilgį. Smailės padėtis spektre keičiasi dėl skirtingos struktūros, In kiekio kvantinėse duobėse, supergardelės buvimo ir kitų auginimo parametrų bei defektų įtakos. [7][9] Šios priklausomybės apibūdina liuminescenciją visame pasirinktame plote ($0.8 \times 0.8 \ \mu m^2$), kurio SEM vaizdas kiekvienam iš bandinių atskirai pavaizduotas 7 pav. Vėlesniuose skyreliuose pateikti liuminescencijos bangos ilgio svyravimai kilpiniuose defektuose nurodo spektro smailės padėtį konkrečiame ploto taške, priešingai nei 3 pav. Minėtuose plotuose vėliau atlikti katodoliuminescencijos gesimo kinetikų matavimai.



6 pav. Katodoliuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo bangos ilgio (normalizuota) tiesinėje skalėje visuose bandiniuose (a)); b) logaritminėje skalėje visuose bandiniuose.

Spektrinės smailės bangos ilgis tiesiogiai priklauso nuo In kiekio medžiagoje (S2 bangos ilgis 393 nm, In kiekis – 9%, S4 444 nm, In kiekis – 18%), todėl patvirtina literatūroje aprašomas tendencijas, jog didėjant indžio kiekiui struktūroje bangos ilgis slenkasi į ilgesnių bangų pusę, t.y pastebimas raudonasis poslinkis (angl. *red-shift*). Kadangi S1 bandinio In koncentracija nėra žinoma, galima daryti išvadą, jog siekia apie 10% ir daugiau ir yra artima bandinio S4 koncentracija.



7 pav. Skenuojanti elektronų mikroskopija (SEM) – V defektai; a) S1; b) S2; c) S3; d) S4. Matavimai atlikti impulsiniame režime, 0,8×0,8 μm² plote.

6 pav. b) pavaizduota liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo bangos ilgio logaritminėje skalėje nurodo, jog S1 struktūros emisija sudaryta iš dviejų spektrinių smailių, kurios pavaizduotos ties 448 nm ir 459 nm. Pirmoji, kyla iš supergardelės sluoksnių (SG), tuo tarpu antroji, pasislinkusi į dešinę spektrinio lango pusę – iš kvantinių duobių struktūros. [6] [9]

Kituose skyreliuose nagrinėjamos V ir kilpinių defektų liuminescencijos erdvinės ir laikinės savybės, kurių duomenys gauti matavimus atliekant impulsinės veikos režimu su erdvine ir laikine skyra.

4.3 InGaN V defektų liuminescencijos laikinės savybės

8 pav. pavaizduotos liuminescencijos gesimo InGaN struktūrose kinetikos. Šios priklausomybės buvo gautos defekto profiliavimo eigoje ir yra matuotos periferijoje netoli defekto. Kiekvieno defekto profiliavimo metu gaunama po kinetiką kiekvienam pasirinktam spindulio padėties taškui (pavyzdys pateiktas 5 pav.), todėl šios kinetikos atvaizduoja bendrą bandiniams būdingą formą ir yra išmatuotos defektų periferijoje skirtinguose bandiniuose. Iš šių, bei kiekviename bandinyje gautų kinetikų matyti, jog spartesnis liuminescencijos gesimas pasireiškia bandiniuose S3 ir S4. Tam, kad būtų galima apskaičiuoti katodoliuminescencijos gesimo trukmes, kinetikos aproksimuojamos laikinio lango pradžioje, norint užtikrinti, jog

skaičiavimai atlikti jų pagrindu geriau atitinka eksperimento sąlygas (esamų krūvininkų skaičius mažiausiai kinta kinetikos pradžioje, kadangi kinetikų relaksavimo eigoje skirtingose kinetikose krūvininkų tankis gali varijuoti daugiau).



8 pav. Normalizuoto katodoliuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo laiko bandiniuose S1-S4.

Toliau S1 - S4 bandiniuose atlikti liuminescencijos gesimo kinetikų matavimai profiliuojant selektyviai parinktą V tipo defektą. Šių matavimų rezultatai atvaizduojami kaip krūvininkų gyvavimo trukmės τ ir liuminescencijos intensyvumo priklausomybės nuo padėties pasirinktame plote, atskaitos tašku parenkant defekto centrą.



9 pav. Krūvininkų gyvavimo trukmės ir katodoliuminescencijos laike integruoto intensyvumo pokyčio nustatymo aiškinamoji schema. Dydžiai nustatyti ties vyraujančių defektų bandinyje skersmens d daugikliu (2d).

Minėtos priklausomybės – profiliai nurodo kaip liuminescencijos laikinės ir erdvinės savybės kinta V defektų aplinkoje. Profiliavimas per defektą atliktas horizontalia, vertikalia ar įstrižainės kryptimi per defekto centrą, nustatytą iš SEM-CL vaizdo (7 pav.) tame plote. Profilio sudarymo principinė schema pateikta 9 pav. Schemoje vaizduojamas pavyzdinė profilio kreivė viename iš bandinių, kurioje padėties atskaitos tašku laikomas defekto centras. Duomenų analizės metu naudojant Python programinį kodą liuminescencijos gesimo kinetikos fiksuotos kiekviename taške buvo suskirstytos pagal koordinates pikseliais, vėliau lygintos su esama SEM-CL vaizde nurodyta spindulio fokusavimo pasirinktame taške padėtimi. Koordinačių ir SEM-CL vaizdų pagalba nustatytas defekto centras, todėl profilyje matomos vertės kinta nuo taško, esančio toliausiai V defekto iki jo centro ir į priešingą pusę. Kiekvienas iš 10 – 11 pav. pavaizduotų liuminescencijos profilių buvo sudarytas vidurkinant visų toje struktūroje matuotų defektų duomenis.

Tolimesniems duomenų analizės žingsniams buvo nustaytos profilio gylio vertės liuminescencijos gesimo trukmėms τ_p/τ_c ir intensyvumui I_p/I_c. Tai atlikta apskaičiuojant šių parametrų vertes ties dviguba vyraujančių defektų dydžio verte 2d kiekviename iš bandinių. Tokia vertė pasirinkta norint išlaikyti profilių analizės pastovumą, kadangi profilio kreivės forma yra nepastovi kiekviename iš bandinių, taip pat remiantis literatūroje nurodytais duomenimis teigiama, jog V defekto dydis turi tiesioginę įtaką ir yra surištas su liuminescencijos laikinėmis ir erdvinėmis savybėms.



10 pav. Vidutinis katodoliuminescencijos intensyvumo ir krūvininkų gyvavimo trukmės profilis V defekto aplinkoje; a) S2, b) S1.



11 pav. Vidutinis katodoliuminescencijos intensyvumo ir krūvininkų gyvavimo trukmės profilis V defekto aplinkoje; a) S3, b) S4.

10 ir 11 pav a), b) pavaizduoti liuminescencijos profiliai V defektų aplinkoje visiems bandiniams. Visais atvejais stebimas liuminescencijos gesimo trukmės ir intensyvumo kritimas artėjant prie V defekto centro, nurodantis V defekto aplinkos įtaką struktūros liuminescencijos savybėms. Liuminescencijos gesimo trukmės ir intensyvumo kritimas defekto aplinkoje stebimas kiekviename iš matuotų defektų ir sutampa su defekto centru. Gesimo trukmės kritimas nulemtas spartesnės nespindulinės rekombinacijos, kuri ima vykti sparčiau ir vyrauja V defekto centre kai krūvininkai pasiekia jame esančią dislokaciją. Didžiausias liuminescencijos intensyvumas stebimas S4 bandinyje (11 pav b)), kuris pasižymi "skylėta" kvantinių duobių struktūra, aprašyta ankstesniame skyriuje. Toks strateginis formavimo būdas gali lemti didesnį vidinį kvantinį našumą, ypač esant žemesnėms nei $\sim 10^{19}$ cm⁻³ nepusiaus viruju krūvininkų koncentracijoms lyginant su bandiniais, kuriuose temperatūra nebuvo sparčiai keičiama tarp sluoksnių. [14] Šiame darbe vertinami vidinio kvantinio našumo dydžiai (nurodyti 2 lentelėje) yra išmatuoti esant ~ $10^{17}/10^{18}$ krūvininkų koncentracijoms, todėl atitinka literatūroje aprašytą tendenciją. Toks kvantinio našumo išaugimas aiškinamas stipresne krūvininkų lokalizacija kvantinėse duobėse, kuri kyla iš kvantinių duobių storio fluktuacijų atsiradusių dėl "skylėtos" struktūros. Minėta struktūra nulemia efektyvesnę krūvininkų sklaidą, mažina difuzijos koeficientą, taigi mažėja tikimybė krūvininkų patekimui į dislokacijas ir kitus defektus. [14] Medžiagose, kurios pasižymi dideliu defektų tankiu krūvininkų lokalizacija yra esminis mechanizmas, leidžiantis pasiekti aukštas vidinio kvantinio našumo vertes. Vėlesniuose skyreliuose aptariama, kaip krūvininkų gesimo trukmės InGaN V defektuose ir jų aplinkoje priklauso nuo vidinio kvantinio našumo ir kokią įtaką daro bendram medžiagos liuminescencijos profiliui. [6][14][13]

Lyginant visų bandinių liuminescencijos intensyvumo profilį defekto aplinkoje taip pat pastebima ir skirtinga profilio kreivės forma – S1 ir S2 profilis plačiau išplitęs, o S3 ir S4 liuminescencijos gesimo trukmės ir intensyvumas defekto viduje krinta sparčiau (S1 - S2 I_p/I_c ~ 1.17; S3 - S4 I_p/I_c ~ 1.23). Tai gali būti paaiškinta mažesniu V defektų dydžiu (ypač S4) bei didesniu In kiekiu struktūrų auginimo metu. Įprastai mažesnio skersmens V defektai auginimo metu formuojasi esant aukštesnėms temperatūroms (artimesnėms GaN sluoksnių temperatūroms). [14] In atomų judris tuo tarpu aukštesnėje temperatūroje taip pat yra didesnis, todėl kvantinės duobės aktyvioje terpėje susiformuoja platesnės ir turinčios didesnę In atomų koncentraciją dėl geresnės In atomų inkorporacijos. [5][11] Didesnio storio kvantinių duobių struktūrose storio fluktuacijos, kurios būdingos InGaN struktūrų auginime MOCVD epitaksijos būdu, turi mažesnę įtaką krūvininkų lokalizacijai – KD storis svyruoja mažiau, krūvininkai patekę į V defektą nėra lokalizuojami ir patenka į dislokaciją, esančią defekto centre. 11 pav. a) ir b) pavaizduotų liuminescencijos profilių bandiniams S3 ir S4 (ypač S4, kurio vyraujančių defektų skersmuo šioje serijoje mažiausias) atveju profilio gylis galimai yra didesnis dėl šių priežasčių. [6]

Taigi, krūvininkų lokalizacija galimai yra aktyvesnė bandinių S1 ir S2 (didesnio skersmens) V defektuose, kur kvantinių duobių storis galimai yra mažesnis. Plonesnėse kvantinėse duobėse didesnę įtaką turi anksčiau minėtos kvantinių duobių storio fluktuacijos. Šiuo atveju, kadangi V defekto vidines sieneles dengia kvantinių duobių struktūros, šios duobių storio fluktuacijos gali veikti kaip krūvininkų lokalizacijos centrai, iš kurių krūvininkai negali patekti į V defekto centre esančią dislokaciją ir rekombinuoti nespinduliniu būdu. [6][7][14]



12 pav. Krūvininkų gyvavimo trukmės pokyčio defekto aplinkoje priklausomybė nuo a) vyraujančių defektų skersmens; b) vidinio kvantinio našumo (IQE).

Remiantis liuminescencijos profiliais, pavaizduotais 10,11 pav. ir anksčiau aprašyta procedūra buvo nustatytos profilio gylio vertės liuminescencijos gesimo trukmėms τ_p/τ_c lyginant vertes periferijoje ir defekto centre. Profilio gylio priklausomybė nuo vyraujančių defektų skersmens ir vidinio kvantinio našumo pavaizduota 12 pav. a), b) atitinkamai. Iš priklausomybės 12 pav. a) matyti, jog mažesniuose defektuose liuminescencijos gesimo trukmės krenta intensyviau, t.y profilio gylis didėja. Tai patvirtina, jog žadinant defekto centra krūvininkų lokalizacija kvantinėse duobėse galimai pasireiškia silpniau, didesnė dalis krūvininkų dalyvauja nespindulinėje rekombinacijoje. [7] 12 pav b) pavaizduota profilio gylio santykio τ_p/τ_c priklausomybė nuo vidinio kvantinio našumo (IQE). Iš priklausomybės matyti, jog profilio gylis tiesiškai priklauso nuo bandinių vidinio kvantinio našumo. Nurodyti priklausomybės kryptį ir stiprį buvo apskaičiuotas Pearson'o koreliacijos koeficientas. Tai rodiklis, nurodantis koreliacijos tarp dviejų kintamųjų stiprumą ir kryptį ribose tarp [-1 ir 1], laikant nulinę jo vertę koreliacijos nebuvimu. Apskaičiuotas Pearson'o koeficientas liuminescencijos profilio gylio priklausomybei nuo vidinio kvantinio našumo (12 pav. b)) lygus ~ 0.4, tuo tarpu 12 pav. a) pavaizduotai profilio gylio priklausomybei nuo defektu skersmens – apie 0.76, nurodant, jog IQE nebūtinai nulemia liuminescencijos gesimo profilio gylį. Šios vertės yra orientacinės ir lyginamos lokaliai dėl sąlyginai mažos statistinės imties. [8][7]

4.4 InGaN kilpinių defektų savybės

Kiti, InGaN junginiams būdingi defektai vadinami kilpiniais (angl. *trench*) defektais. Kilpiniai defektai, kaip specifinis V defektų atvejis yra tiriami šiame darbe. [13] Tokie defektai stebimi rečiau nei V defektai, tačiau jų formavimasis bandinio paviršiuje prasideda nuo ankstesniuose skyreliuose aptartų V defektų, kurių kilpa juosia kilpinio defekto perimetrą. Pastarųjų metų moksliniuose tyrimuose ir literatūroje V defektų ir didesnių, iš V defektų sudaromų struktūrų savybės tiriamos kartu, todėl šiame skyriuje aprašomos stebėtų kilpinių defektų savybės ir priklausomybės.



13 pav. Erdvinis katodoliuminescencijos intensyvumo pasiskirstymas a) S1; c) S4.
Skenuojanti elektronų mikroskopija (SEM) – kilpiniai defektai b) S1; d) S4. Matavimai atlikti impulsiniame režime, 0,8×0,8 μm² plote.

Kilpinių defektų CL intensyvumo žemėlapiai ir SEM nuotraukos pavaizduotos 13 pav. Kilpiniai defektai buvo tirti pusėje serijos bandinių – S1 ir S4. Matavimai atlikti impulsiniame režime profilio sudarymo būdu, profiliavimo kryptis pavaizduota 5 pav. a). SEM nuotraukose matyti, jog aplink kilpinį defektą išsidėstę pavieniai V defektai. Toks išsidėstymas būdingas visam bandinio plotui, kadangi V defektų tankis kiekviename iš bandinių yra ženkliai didesnis.

Erdviniai liuminescencijos intensyvumo žemėlapiai (13 pav.) atvaizduoja liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymą visame matuotame plote. Matyti, jog S1 kilpinio defekto atveju intensyvumas krenta ties defekto šlaitu ir išlieka ženkliai mažesnis visame defekto plote, nei periferijoje. Kilpinio defekto atveju S1 stebimas analogiškas signalo kitimas kaip ir pavieniuose, šalia esančiuose V defektuose. S4 bandinyje išmatuoto kilpinio defekto CL žemėlapyje stebimas kiek kitoks liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymas – intensyvumas ženkliai sumažėja tik defekto šlaite – V defektų juostos vietoje.

Intensyvumo kitimas kilpinio defekto centre nėra gerai ištirtas reiškinys, tačiau gali būti susietas su defekto matmenimis. Didesnių V ir kilpinių defektų nukleacija įprastai prasideda ankstesniuose auginimo etapuose, todėl defektas užauga didesnis, perdengdamas didžiąją dalį kvantinių duobių. Jei dislokacija, esanti defektų centre yra arčiau paviršiaus ir įsiterpusi į kvantinių duobių struktūrą, dalis krūvininkų, patenkančių į defektą gali pasiekti dislokaciją ir rekombinuoti nespinduliniu būdu, todėl intensyvumas sumažėja. [1][5] Norint įsitinkinti defekto dydžio įtaka liuminescencijos intensyvumui kilpinio defekto viduje buvo apskaičiuoti tirtų defektų plotai, aproksimuojant jų geometriją elipse. Nustatyta, jog kilpinio defekto, stebimo bandinyje S4 (13 pav. d)) plotas apytiksliai lygus 0.56 μ m², tuo tarpu bandinyje S1 (13 pav. b)) – 0.26 μ m². Šiuo atveju galima teigti, jog pakankamai didelis defektų plotas, stebimas S4 yra indikatorius, jog defektas ir defektą juosianti V defektų kilpa pradėjo formuotis giliau InGaN struktūros tūryje ir dislokacija, esanti jo centre yra kvantinių duobių struktūros

ištakose. [12] [13] Svarbu paminėti, jog įtakos kilpinio defekto formavimuisi ir padėčiai turi ne tik efektyvus jo dydis, tačiau ir V defektų, juosiančių kilpinį defektą dydis, todėl žinant šį dydį būtų galima tiksliau nurodyti stebimų tendencijų kilmę. [13]

Kaip ir V defektams, iš erdvinių ir laikinių kilpinių defektų duomenų sudaryti liuminescencijos intensyvumo ir jo kitimo laike profiliai. Toks profilis **S4** bandinyje tirtam defektui pavaizduotas 14 pav. Kilpiniame defekte, priešingai nei V defektuose stebimas dviejų zonų liuminescencijos profilis. Taip yra dėl to, jog defektą sudaro V defektų juosta, kuriuose, kaip buvo matyti 10, 11 pav. intensyvumas ir liuminescencijos gesimo trukmės krenta defekto centre. Taigi kertant V defektus dukart profiliavimo eigoje, šis procesas taip pat stebimas du kartus. Intensyvumas ir krūvininkų gyvavimo trukmės defekto viduje nepasiekia pradinės periferijos vertės, nurodant bendrai panašią įtaką krūvininkų rekombinacijai peržengus kilpinio defekto šlaitą, kurį dengia V defektai.



14 pav. Vidutinis katodoliuminescencijos intensyvumo ir krūvininkų gyvavimo trukmės profilis kilpinių defektų aplinkoje S4.

Kilpiniai defektai pasižymi keliais struktūriniais ypatumais – bazinės, t.y horizontalios plokštumos neatitikimas (BSF, angl. *basal plane stacking fault*) ir vertikalios plokštumos neatitikimas (SMB, angl. *vertical stacking mismatch boundary*). Būtent dėl šių struktūroje atsiradusių trūkių į paviršių pradeda augti V defektų kilpa, kuri "uždaro" kilpinio defekto perimetrą. To pasekoje, kilpinis defektas gali pasižymėti skirtingomis liuminescencijos savybėmis. [12]

Literatūroje minima, jog skirtinguose kilpiniuose defektuose gali pasireikšti arba didesnis, arba mažesnis katodoliuminescencijos intensyvumas. Teigiama, jog tai priklauso nuo padėties, kurioje susidaro minėti struktūriniai trūkiai. Taip pat minima, jog kilpinio defekto šlaite esantys V defektai gali keisti auginimo metu tiekiamų trečios grupės elementų patekimą į defekto perimetrą. Stebimas spektro smailės padėties poslinkis į ilgabangę spektrinę dalį **S1** (16 pav. b)) galimai nurodo, jog In kiekis defekto viduje yra kiek didesnis, nei išorėje ar V defektų kilpoje. 16 pav. a) pavaizduotame daliniame katodoliuminescencijos gesimo ir intensyvumo S1 kilpinio defekto profilyje matyti, jog defekto viduje krenta ne tik intensyvumas, bet ir katodoliuminescencijos gesimo trukmės. Tai paaiškinama kvantinių duobių struktūros įtempimų relaksacija defekto viduje. [13]



16 pav. Dalinis katodoliuminescencijos intensyvumo ir krūvininkų gyvavimo trukmės profilis kilpinio defekto aplinkoje S4 (a)); liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo padėties defekto aplinkoje S1 (b)).

Išvados

- 1. V defektų aplinkoje katodoliuminescencijos profilio gylis τ_p/τ_c ir I_p/I_c tiesiogiai koreliuoja ir nurodo spartesnę nespindulinę rekombinaciją defekto centre.
- Artėjant prie V defekto centro krūvininkų gyvavimo trukmės profilio gylis didėja mažesnio skersmens V defektuose. Tokią tendenciją paaiškina silpnesnė krūvininkų lokalizacija kvantinėse duobėse dėl mažiau žymių storio fluktuacijų, susidarančių auginimo metu.
- Kilpiniuose defektuose S4 nustatytas katodoliuminescencijos intensyvumo kilimas defekto viduje gali būti surištas su ankstyva V defektų kilpos nukleakcija InGaN kvantinių duobių struktūroje. S1 stebėtas bangos ilgio poslinkis į ilgabangę spektro sritį nurodo galimas In kiekio fluktuacijas defekto viduje.

Literatūros sąrašas

[1] Hangleiter, A., Hitzel, F., Netzel, C., Fuhrmann, D., Rossow, U., Ade, G., &Hinze, P. (2005). Suppression of non radiative recombination by V-shaped pits in GaInN/GaN quantum wells produces a large increase in the lightemission efficiency. *Physical Review Letters*, *95*(12). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.127402

[2] Yong, A. M., Soh, C. B., Zhang, X. H., Chow, S. Y., &Chua, S. J. (2007). Investigation of V-defects formation in InGaN/GaN multiple quantum well grown on sapphire. *Thin Solid Films*, *515*(10), 4496–4500. <u>https://doi.org/10.1016/j.tsf.2006.07.181</u>

[3] Sheen, M. H., Kim, S. D., Lee, J. H., Shim, J. I., &Kim, Y. W. (2015). V-pits as Barriers to Diffusion of Carriers in InGaN/GaN Quantum Wells. *Journal of Electronic Materials*, 44(11), 4134–4138. https://doi.org/10.1007/s11664-015-3994-z

[4] Quan, Z. J., Liu, J. L., Fang, F., Wang, G. X., &Jiang, F. Y. (2016). Effect of V-shaped Pit area ratio on quantum efficiency of blue InGaN/GaN multiple – quantum well light-emitting diodes. *Opticaland Quantum Electronics*, 48(3), 1–8. https://doi.org/10.1007/s11082-016-0464-7

[5] Massabuau, F. C. P., Rhode, S. L., Horton, M. K., O'Hanlon, T. J., Kovács, A., Zielinski, M. S., Kappers, M. J., Dunin-Borkowski, R. E., Humphreys, C. J., &Oliver, R. A. (2017). DislocationsinAlGaN: Corestructure, atomsegregation, and optical properties. *Nano Letters*, *17*(8), 4846–4852. https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b01697

[6] Kim, M. K., Choi, S., Lee, J. H., Park, C. H., Chung, T. H., Baek, J. H., & Cho, Y. H. (2017). Investigating carrier localization and transfering InGaN/GaN quantum wells with V-pits using near-field scanning optical microscopy and correlation analysis. *Scientific Reports*, 7. <u>https://doi.org/10.1038/srep42221</u>

[7] Ewing, J., Lynsky, C., Zhang, J., Shapturenka, P., Wong, M., Smith, J., Iza, M., Speck, J. S., &DenBaars, S. P. (2022). Influence of Superlattice Structure on V-Defect Distribution, External Quantum Efficiency and Electroluminescence for Red InGaN Based μLEDs on Silicon. *Crystals*, *12*(9). <u>https://doi.org/10.3390/cryst12091216</u>

[8] Nomeika, K., Podlipskas, Ž., Nikitina, M., Nargelas, S., Tamulaitis, G., & Aleksiejūnas, R. (2022). Impact of carrier diffusion on the internal quantum efficiency of InGaN quantum well structures. *Journal of Materials Chemistry C*, *10*(5), 1735–1745. https://doi.org/10.1039/d1tc04760d

[9] Marcinkevičius, S., Ewing, J., Yapparov, R., Wu, F., Nakamura, S., &Speck, J. S. (2023). Experimental evidence of hole injection through V-defects in long wavelength GaN-based LEDs. *AppliedPhysicsLetters*, *123*(20). <u>https://doi.org/10.1063/5.0179513</u>

[10] Wu, F., Ewing, J., Lynsky, C., Iza, M., Nakamura, S., Denbaars, S. P., &Speck, J. S. (2023). Structure of V-defects in long wavelength GaN-based light emitting diodes. *Journal of Applied Physics*, *133*(3). <u>https://doi.org/10.1063/5.0135278</u>

[11] Ewing, J. J., Lynsky, C., Wong, M. S., Wu, F., Chow, Y. C., Shapturenka, P., Iza, M., Nakamura, S., Denbaars, S. P., &Speck, J. S. (2023). Highexternalquantumefficiency (6.5%) InGaN V-defectLEDs at 600 nm on patterned sapphire substrates. *Optics Express*, *31*(25), 41351. https://doi.org/10.1364/oe.503732

[12] Massabuau, F. C. P., Trinh-Xuan, L., Lodié, D., Sahonta, S. L., Rhode, S., Thrush, E. J., Oehler, F., Kappers, M. J., Humphreys, C. J., & Oliver, R. A. (2013). Towards a better understanding of trench defects in InGaN/GaN quantum wells. *Journal of Physics: Conference Series*, 471(1). https://doi.org/10.1088/1742-6596/471/1/012042

[13] Kusch, G., Comish, E. J., Loeto, K., Hammersley, S., Kappers, M. J., Dawson, P., Oliver, R. A., & Massabuau, F. C. P. (2022). Carrier dynamics at trench defects in InGaN/GaN quantum wells revealed by time-resolved cathodoluminescence. *Nanoscale*, *14*(2), 402–409. https://doi.org/10.1039/d1nr06088k

[14] Nomeika, K. (2019). Novel ways of improving quantum efficiency of InGaN LED active layers by controlling carrier diffusivity.

[16] Dobrovolskas, D., Mickevičius, J., Kuokštis, E., Tamulaitis, G., Shur, M., Shatalov, M., Yang, J., & Gaska, R. (2011). Confocal spectroscopy of InGaN LED structures. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 44(13). https://doi.org/10.1088/0022-3727/44/13/135104

[17] Jain, S. C., Willander, M., Narayan, J., & van Overstraeten, R. (1999). IIInitirdes review (1) (2). *Journal of Applied Physics*, 87(3), 965–1006.

[18] Pearton, S. (2012). GAN and ZNO-based materials and devices. *Springer Series in Materials Science*, 156(1). https://doi.org/10.1007/978-3-642-23521-4

Summary

Gabija Soltanaitė

Transient cathodoluminescence in ingan v-defects

Group III semiconductors have been relevant for applications in electronics and optoelectronics for several decades, with many devices already realized and in production. InGaN, which was the basis for the creation of one of the first high-efficiency blue LEDs, remains one of the most promising compounds for future technologies. However, due to the inherent defects in the material and their high density, the optical properties do not meet the standards required for modern applications. The influence of defects on the InGaN/GaN active medium negatively affects quantum well structure emission and transient times. Defects often act as non-radiative recombination centers, so as their quantity increases, the number of carriers participating in non-radiative recombination also increases. This work investigates the spatial and temporal cathodoluminescence properties of InGaN's characteristic V-type and trench defects, their environment and overall properties while profiling transient times and cathodoluminescence intensity in retrospective to defect size, which is believed to be a crucial parameter affecting the listed properties.