

**VILNIAUS UNIVERSITETAS
FIZIKOS FAKULTETAS
PUSLAIDININKIŲ FIZIKOS KATEDRA**

Paulius Mackonis

OPTINĖS LIČIO GALIO OKSIDO SAVYBĖS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

(studijų programa – OPTOELEKTRONIKOS MEDŽIAGOS IR TECHNOLOGIJOS)

Studentas:	Paulius Mackonis
Darbo vadovas:	dr. Saulius Tumėnas
Recenzentas:	prof. Edmundas Kuokštis
Katedros vedėjas:	prof. habil. dr. Gintautas Tamulaitis

Vilnius 2017

Turinys

Įvadas	3
1 Ličio galio oksidas	4
2 Dielektrinė funkcija	7
3 Šviesos poliarizacija	9
3.1 Poliarizacinės būsenos	9
3.2 Jones'o matrica	9
3.3 Stokes'o vektorius	12
4 Eksitoninė sugertis	14
5 Tyrimo metodai	16
5.1 Spektroskopinė elipsometrija	16
5.1.1 Spektroskopinės elipsometrijos principai	16
5.2 Poliarimetrija	19
5.2.1 Fotoelastinis modulatorius (PEM)	19
5.2.2 Linijinis dvilūžis	20
5.2.3 Optinis aktyvumas	21
5.3 Pralaidumo spektroskopija	22
5.4 Atspindžio IR spektroskopija	22
6 Rezultatai ir jų aptarimas	24
6.1 Bandiniai	24
6.2 Poliarizuoto pralaidumo matavimai	25
6.3 Tolimoji infraraudonoji spektro dalis	26
6.4 Matomoji – ultravioletinė spektro dalis	33
6.5 Dvilūžis	36
Pagrindiniai rezultatai ir išvados	40
Literatūros sąrašas	41
Santrauka	43
Summary	44

Įvadas

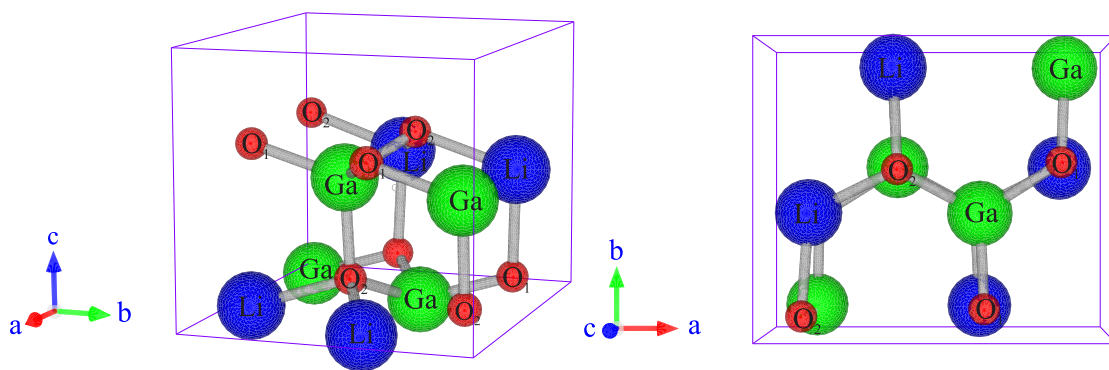
Šiuolaikiniai optoelektronikos prietaisai paremi klasikinėmis puslaidininkinėmis medžiagomis, Si, GaAs ir kitomis. Tačiau kasdien yra ieškoma vis naujų medžiagų, kurios pasižymėtų kompleksinėmis savybėmis ir galėtų konkuruoti su tradicinėmis puslaidininkinėmis medžiagomis. Sparčiai populiarėjantys trečios grupės nitridiniai junginiai reikalauja ne tik naujo požiūrio, bet ir naujų padėklų epitaksiniam jų auginimui. Ličio metagalatas galėtų būti vienas iš jų. Geras gardelių suderinamumas, panašūs šiluminio laidumo koeficientai leidžia auginti kokybiškus epitaksinius sluoksnius. Apart gerų padėklo savybių, ličio metagalatas turi kompleksines optines savybes, kurios galėtų būti pritaikytos kuriant naujos kartos optoelektronikos prietaisus.

Ličio metagalatas (LiGaO_2) yra kietas, skaidrus, bespalvis dielektrikas. Pradėtas tyrinėti dar 1965 metais, jis susilaukė didelio mokslininkų dėmesio kaip aktyvus elementas optoelektroninėse grandinėse ir lazerinėse sistemose. Pastaruoju metu LiGaO_2 yra naudojamas kaip mažiausią gardelės nesuderinamumą turintis padėklas GaN, InN ir ZnO heteroepitaksiniam sluoksniams. Dideli, struktūriškai kokybiški monokristalai, kurių matmenys gali siekti keliolika centimetrų [1], gali būti užauginti Czochralskio metodu ir tai įgalina jo platų panaudojimą. Kristalografinės plokštumos LiGaO_2 yra suderinamos su nepolinėmis GaN, InN ar ZnO plokštumomis. Priklausomai nuo kristalografinės LiGaO_2 plokštumos, galima auginti skirtingas heksagoninių kristalų plokštumas, – [100] plokštumos nesuderinamumas su $[1\bar{1}00]$ GaN yra tik 2 %, o [010] plokštumos su $[11\bar{2}0]$ tik 0,2 %. Ličio metagalato optinių savybių, dielektrinės funkcijos žinojimas yra būtinas pritaikant jį šiuolaikinėse optoelektroninėse sistemose.

Šio darbo tikslas – iširti LiGaO_2 optines savybes infraraudonojoje – ultravioletinėje spektro srityje.

Siekiant darbo tikslo buvo sprendžiami šie uždaviniai:

- išmatuoti LiGaO_2 poliarizuoto pralaidumo ir atspindžio spektrus
- nustatyti optinius ypatumus ir jų prigimtį infraraudonoje ir ultravioletinėje spektro srityje
- naudojantis spektroskopinės elipsometrijos metodika nustatyti LiGaO_2 optines konstantas matomoje – ultravioletinėje spektro srityje.



1 pav. LiGaO_2 kristalinė struktūra. Žaliai ir mėlynai atitinkamai pavaizduoti Ga ir Li, raudonai – dvi neekvivalenčias padėtis užimantys deguonies atomai.

1 Ličio galio oksidas

Ličio metagalatas (LiGaO_2) yra trinaris ličio, galio ir deguonies junginys. Pirmieji LiGaO_2 monokristalai buvo užauginti 1964 metais J. P. Remeika mokslininkų grupės [2]. Metais vėliau detaliai buvo ištirta LiGaO_2 struktūra naudojant Rentgeno spindulių difrakciją [3]. Nustatyta, kad ličio metagalato kristalai yra ortorombinės struktūros, priklausantys $Pna2_1$ erdvinei ir $mm2$ taškinei simetrijos grupėms. Kristalo struktūra pavaizduota 1 pav. Kristalas neturi inversijos centro, turi C_2 sukimo simetrijos ašį, ir dvi simetrijos ašiai lygiagrečias atspindžio plokštumas. Nustatytos gardelės konstantos yra $a = 5,402 \text{ \AA}$, $b = 6,372 \text{ \AA}$ ir $c = 5,007 \text{ \AA}$. Primityvųjį LiGaO_2 kristalo narvelį, kurio tūris $V = 172,9 \text{ \AA}^3$, sudaro keturios molekulės. Kiekvienas deguonies atomas narvelyje yra apsuptas dviejų Li ir dviejų Ga atomų. Atominis apsupimas sudaro tetraedrą, o visa kristalo struktūra susideda iš tetraedrų, turinčių bendras viršūnes. Dėl tetraedrinio apsupimo, ličio metagalato struktūra yra artima viurcitinei struktūrai. Kiekvienas Li ir Ga atomas sudaro jungtis su keturiais deguonies atomais, kurių jungčių ilgiai yra $(\text{Li} - \text{O}) = 1,985 \text{ \AA}$ ir $(\text{Ga} - \text{O}) = 1,848 \text{ \AA}$. Primitiviajame narvelyje deguonis užima dvi neekvivalenčias padėtis O_I ir O_{II} .

Tai skaidrūs, bespalviai ir kieti (kietumas pagal Moh's skalę yra 7,5) monokristalai, kurių lydimosi temperatūra yra apie 1600°C [1], o šiluminio plėtimosi koeficientai a ir c kristalografinėmis kryptimis atitinkamai $6 \times 10^6 \text{ K}^{-1}$ ir $9 \times 10^6 \text{ K}^{-1}$ [4]. Ličio galio oksidas pasižymi stipriomis pjezoelektrinėmis savybėmis ir dideliu kaupinimo koeficientu, todėl taikymas praktikoje, visų pirma, buvo siejamas su kvantine elektronika – buvo naudojamas lazeriniams rezonatoriams, dažnio kartotuvams. Įvaldžius jo legiravimą V^{3+} ar Cr^{4+} priemaišomis, LiGaO_2 buvo naudojamas optoelektroninėse grandinėse. Šiuo metu LiGaO_2 , dėl savo kristalinės struktūros ir atominio apsupimo, praktikoje yra taikomas, visų pirma, kaip padėklas auginant plonus nepolinius puslaidininkinius ZnO [5] ir GaN [6, 7] sluoksnius. Kristalo simetrija rodo, kad LiGaO_2 yra netiesinis kristalas, todėl gali būti panaudotas ne tik kaip padėklas augininti ZnO ar GaN epitaksinius sluoksnius, bet kaip ir terpė mėlynos šviesos konversijai į UV spinduliuotę [8].

Optinės savybės

Ortorombiniai kristalai yra optiškai anizotropiniai (dviašiai kristalai), jų optinės konstantos priklauso nuo kristalografinės krypties. Lenzo grupė dar 1965 metais atliko pirmuosius LiGaO_2 optinio atsako tyrimus [9]. Buvo nustatytos visų trijų, n_x , n_y ir n_z , atitinkančių a , b ir c kristalografinės kryptis, lūžio rodiklių dispersijos 1,9 – 2,6 eV spektrinėje srityje. Nustatyta optinė ašis yra išilgai antros eilės simetrijos ašies (c kryptis). Nustatytos lūžio rodiklių vertės, esant 632 nm bangos ilgiui, yra $n_a = 1,7617$, $n_b = 1,7311$ ir $n_c = 1,7589$. Eksperimentiškai nustatytos lūžio rodiklių vertės leido įvertinti medžiagos dvilūžį, kuris XY plokštumoje yra 0,031 ($n_a - n_b$), o ac plokštumoje yra 0,003 ($n_a - n_c$). Gautos vertės parodė, kad kristalas yra artimas vienašiam kristalui, kurio optinė ašis būtų nukreipta išilgai b krypties. Platesnėje spektrinėje srityje LiGaO_2 optinį atsaką 1970 metais tyrė Miller'io mokslininkų grupė [10]. Jų tyrimuose buvo pasinaudota mažu dvilūžiu ab plokštumoje ir pagrindiniai lūžio rodikliai, 0,4 – 3 eV spektrinėje srityje, nustatyti laikant, kad LiGaO_2 kristalas yra vienašis. Miller'io grupė taip pat tyrinėjo LiGaO_2 netiesines optines savybes ir nustatė netiesnius optinius koeficientus 1064 nm bangos ilgiui. Nustatyti koeficientai fazinio sinchronizavimo sąlygai yra per maži ($1/3 d_{36}$) lyginant su kalio divaldenilio fosfatu (KDP). Priežastys mažų netiesinių koeficientų kol kas yra nežinomos, tačiau iškelta prielaida, kad arti sugerties krašto (dėl draustinių energijų tarpo) jų vertės taps palyginamos su KDP ir LiGaO_2 bus tinkamas antros eilės netiesiniams procesams. 1999 metais Rashkeev ir jo mokslininkų grupei pavyko apskaičiuoti teorines LiGaO_2 lūžio rodiklių vertes [8]. Stebėtas staigus lūžio rodiklių augimas, didesnių (>4 eV) energijų srityje, o ties $\sim 4,7$ eV n_a ir n_c sutampa, vadinasi iš dviašio kristalo LiGaO_2 tampa neigiamu vienašiu, kurio optinė ašis nukreipta išilgai b krypties.

Ličio metagalatas yra plačiatarpis puslaidininkis, matomoje ir artimoje infraraudonoje spektro srityje (0,3 – 6 μm) yra skaidrus. Jo elektroninę – juostinę struktūrą apskaičiavo Johnson'as 2011 metais. Nustatė, kad teorinis LiGaO_2 draustinių energijų tarpas Γ taške yra $E_g = 5.658$ eV [11]. 2014 metais Chen mokslininkų grupei pavyko užauginti didelius ir kokybiškus LiGaO_2 monokristalus. Eksperimentiškai iš pralaidumo ir atspindžio matavimų nustatytas draustinių energijų tarpas $E_g = 5,26$ eV [1].

Kristalai gali turėti $3\sigma - 3$ optinių fononų, kur σ - atomų skaičius elementariajame narvelyje. LiGaO_2 monokristalo elementarųjų narvelį sudaro 16 atomų. Todėl teoriškai, Brillouin'o zonos centre, yra galimi 45 optiniai fononai [12]:

$$\Gamma = 11A_1(c) + 11B_1(a) + 11B_2(b) + 12A_2. \quad (1)$$

čia Γ – pilnutinis fononų skaičius Γ taške. Visos optinių fononų šakos yra aktyvios Ramano sklaidai, tačiau tik trys (A_1 , B_1 ir B_2) iš nurodytų keturių (1) yra aktyvios infraraudonajai spinduliuotei. Siekiant nustatyti visus optinius fononus, reikia atlikti įvairių konfigūracijų Ramano sklaidos matavimus, fiksuojant kritusios ir išsklaidytos lazerio spinduliuotės poliarizacijas. Atlikus įvairių konfigūracijų matavimus, galima atskirti fononų išilginius ir skersinius dažnius. Tačiau eksperimentiškai tai at-

likti yra sudėtinga. Išilginių ir skersinių fononų išskyrimą palengvina IR pralaidumo ir atspindžio spektroskopijos metodikos. Infraraudonoje spektro srityje pralaidumo matavimai galimi tik ploniems bandiniams, kurių storis neviršija $20 \mu m$. Storesniuose bandiniuose pralaidumo geometrijoje šviesa yra pilnai sugerama fononinių virpesių. Tuomet matavimus patogiau atlikti atspindžio geometrijoje. Atspindžio matavimai atliekami apšviečiant medžiagą poliarizuota šviesa ir keičiant matavimų geometriją taip, kad elektromagnetinės bangos vektorius būtų nukreiptas išilgai kiekvienos iš kristalografinių ašų, $\mathbf{E} \parallel a$, $\mathbf{E} \parallel b$ ir $\mathbf{E} \parallel c$. Taip galima nustatyti atskiras fononų šakas. Tačiau A_2 gardelės virpesiai IR spinduoliuotei nėra aktyvus, todėl atspindžio spektruose jų nematyti. Kombinuojant atspindžio spektroskopijos ir Ramano sklaidos matavimus, galima nustatyti ir išskirti visus gardelės optinius svyravimus.

Ličio metagalato gardelės svyravimus tyrė Kabelka ir Kuzmany mokslinė grupė [12]. Jie matavo ir analizavo Ramano sklaidos spektrus 6-700 K temperatūrų intervale. Matavimai atlikti naudojant 250 mW intensyvumo ir $\lambda = 520,8$ nm bangos ilgio lazerį. Tyrimai buvo atlikti 17-oje skirtingų sklaidos geometrijų. Iš Ramano spektrų jiems pavyko nustatyti 43 optinius fononus iš 45 teoriškai galimų. Analizė parodė, kad geriausiai matomi A_1 fononai, kitos šakos išskiriamos silpniau.

Kombinuojant Ramano sklaidos ir atspindžio spektroskopijos metodikas, Knoll ir Kuzmany [13] pavyko nustatyti ir išskirti visus optinius fononus. Ramano sklaidos spektrus jie matavo 50 mW intensyvumo kriptono ir argono lazeriais. Kombinuojant dvi optinio matavimo metodikas Knoll ir Kuzmany pavyko nustatyti visus 45 optinius fononus ir analizuojant atspindžio spektrus, atskirti fononų išilgines (LO) ir skersines (TO) modas. A. Booncuum [14] grupė apskaičiavo teorinius atspindžio spektrus, bei energijos nuostolių funkcijas $\text{Im}(-1/\varepsilon)$ ir nustatė išilginių (LO) ir skersinių (TO) fononų dažnius. Teoriškai apskaičiuotos visų fononų vertės gerai koreliavo su Knoll ir Kuzmany eksperimentinėmis vertėmis.

2 Dielektrinė funkcija

Šviesa yra aprašoma skersine plokščia elektromagnetine banga, kuri yra Maxwell'o lygčių sprendinys. Diferencialinė Maxwell'o sąryšių forma [15]

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, \quad (3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho, \quad (4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \quad (5)$$

kur, \mathbf{E} ir \mathbf{H} atitinkamai yra elektrinio ir magnetinio lauko stipriai, \mathbf{D} yra elektrinė indukcija, \mathbf{B} magnetinė indukcija, o ρ ir J atitinkamai yra elektrinio krūvio tankis ir srovės tankis. Medžiagos savybės įtraukiamos apibrėžiant magnetinės ir elektrinės indukcijos sąryšius

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E}, \quad (6)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mu \mathbf{E}, \quad (7)$$

kur, ε_0 ir μ_0 atitinkamai elektrinė ir magnetinė konstantos, ε ir μ dielektrinė ir magnetinė skvarba. Optiniuose dažniuose μ nesiskiria nuo magnetinės konstantos vakuume [16], todėl optiniuose tyrimuose magnetinė skvarba yra laikoma konstanta $\mu = 1$.

Medžiagos tiesines optines savybes aprašo dielektrinė skvarba, arba kitaip vadinama dielektrine funkcija. Tai tenzorinis dydis

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (8)$$

kur kiekvienas matricos komponentas ε_{ij} yra kompleksinis dydis, priklausantis nuo to, kaip medžiaga reaguoja į išorinį elektrinį lauką. Eksperimentiškai išmatuoti ir nustatyti visus dielektrinės funkcijos komponentus nėra lengvas uždavinys. Siekiant supaprastinti šį uždavinį, paprastai kristalo optinės ašys yra tapatinamos su laboratorinėmis x-, y-, z- ašimis. Tokiu atveju matricoje lieka tik diagonaliniai elementai, o likusieji nediagonaliniai tampa lygūs nuliui

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix}. \quad (9)$$

Jeigu $\varepsilon_x = \varepsilon_y = \varepsilon_z$, tuomet medžiaga vadinama izotropine ir optinis atasakas nepriklauso nuo kristalo orientacijos ar išorinio lauko krypties, priešingu atveju turime anizotropines medžiagas. Anizotropinės

medžiagos gali būti dviejų tipų. Kai $\varepsilon_x \neq \varepsilon_y \neq \varepsilon_z$, tuomet optinis atsakas visomis kryptimis bus skirtingas ir toks kristalas vadinamas dviašiu. Jeigu dvi iš trijų komponenčių yra lygios, tai tomis kryptimis atsakas bus vienodas ir kristalas vadinamas vienašiu.

Bendrai optinis atsakas priklauso nuo išorinio elektrinio lauko dažnio ω . Izotropinių medžiagų optinį atsaką nesudėtingai galima aprašyti skaliarine dielektrinės funkcijos išraiška

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2(\omega), \quad (10)$$

kur, ε_1 yra reali dielektrinės funkcijos dalis, o ε_2 menama. šviesą sugeriančiose medžiagose ši funkcija yra kompleksinis dydis, reali dalis aprašo aplinkos poliarizuojamumą, o menama - sugertį. Kitas būdas aprašyti medžiagos optinį atsaką sąveikaujant su šviesa yra naudojant kompleksinį lūžio rodiklį, kuris apibrėžiamas

$$N = n + i\kappa, \quad (11)$$

kur, n - santykis tarp šviesos greičio vakuume c ir greičio, kuriuo medžiagoje sklinda šviesa s

$$n = c/s. \quad (12)$$

Menamoji dalis, κ , tai ekstinkcijos koeficientas, aprašantis kaip slopsta elektrinis laukas medžiagoje. Laukui sklindant išilgai z -ašies yra eksponentinis elektrinio lauko slopimas

$$E(z) = E_0 e^{-\frac{2\pi\kappa}{\lambda}z}, \quad (13)$$

kur, E_0 elektrinis laukas taške $z=0$.

Kompleksinis lūžio rodiklis su dielektrine funkcija susietas

$$N = \sqrt{\varepsilon}, \quad (14)$$

ir izotropinių medžiagų dielektrinės funkcijos tenzorius gali būti užrašytas

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} N_x^2 & 0 & 0 \\ 0 & N_y^2 & 0 \\ 0 & 0 & N_z^2 \end{pmatrix}, \quad (15)$$

kur, N_x, N_y, N_z lūžio rodikliai pagrindinėmis dviašio kristalo kryptimis.

3 Šviesos poliarizacija

Sklindančios šviesos bangų elektrinio lauko orientacija erdvėje yra vadinama poliarizacija. Kai elektrinis vektorius nukreiptas išilgai šviesos kritimo plokštumos, tuomet vadiname p-poliarizacija, jei vektorius nukreiptas statmenai – s-poliarizacija. Kai šviesos bangos elektrinis laukas sklinda visiškai atsitiktinėmis kryptimis, tai vadinama nepoliarizuota šviesa. Bangoms sklindant ta pačia kryptimi, poliarizacija aprašoma superpozicija visų elektrinių laukų. Norint tiksliai aprašyti šviesos poliarizaciją, būtina atsižvelgti ir į fazių skirtumą, kuris apibrėžia poliarizacijos tipą. Priklausomai nuo to, koks yra fazių skirtumas tarp sklindančių bangų, šviesos poliarizacija gali būti tiesinė, apskritiminė ar elipsinė.

3.1 Poliarizacinės būsenos

Sklindančios šviesos poliarizacija z kryptimi yra aprašoma kaip superpozicija elektrinių laukų, kurių kryptys yra išilgai x ir y ašių. Elektromagnetinė banga sklindanti z kryptimi, bus \mathbf{E}_x ir \mathbf{E}_y elektrinių laukų vektorinė suma:

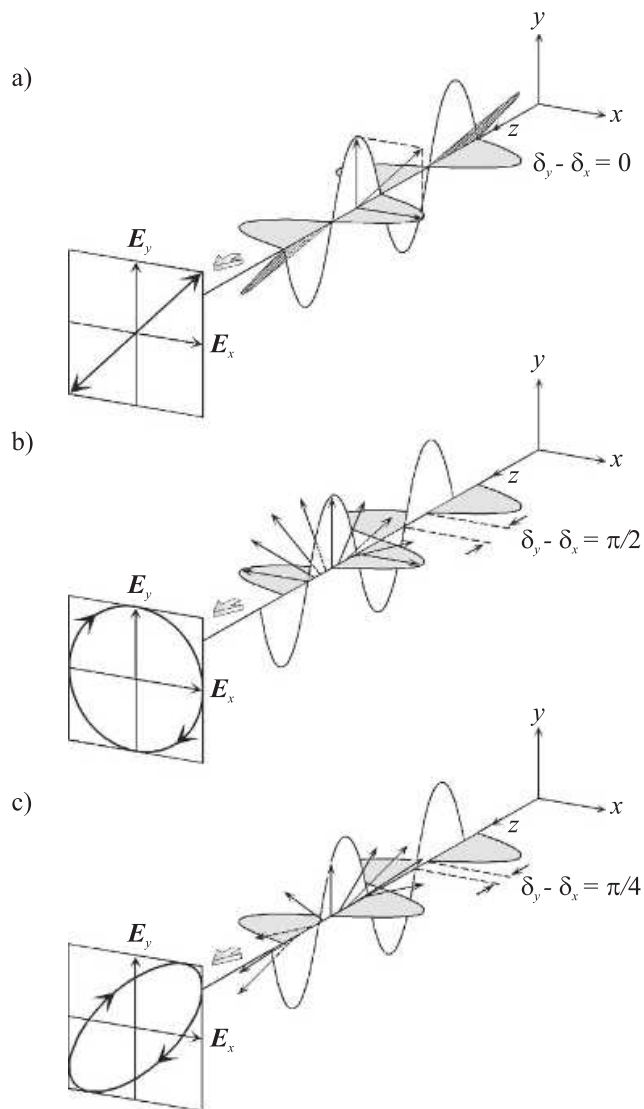
$$E(z, t) = E_x(z, t) + E_y(z, t) = (E_{x0} \exp \{i(\omega t - Kz + \delta_x)\})\mathbf{x} + (E_{y0} \exp \{i(\omega t - Kz + \delta_y)\})\mathbf{y}, \quad (16)$$

kur, \mathbf{x} ir \mathbf{y} vienetiniai vektoriai išilgai koordinačių ašių, E_x , E_y ir δ_x , δ_y yra elektrinio lauko komponentų amplitudės ir fazės. Analizuojant šviesos poliarizaciją svarbus yra fazių pokytis ($\delta_x - \delta_y$), o ne absoliutinės fazės vertės (δ_x , δ_y). Poliarizacijų pavyzdžiai esant įvairiems fazių skirtumams pateikti 2 pav. Kai elektrinio lauko amplitudės E_x , E_y yra vienodos amplitudė ir faze, tai suminis \mathbf{E} laukas yra tiesiškai poliarizuotas ir orientuotas 45° kampas tarp x ir y -ašių (2 pav. a)). Esant fazių skirtumui 90° ($\delta_x - \delta_y = \pi/2$), elektrinio lauko vektorius sukasi x - y koordinačių plokštumoje, turime apskritiminę poliarizaciją 2 pav. b), kai fazių skirtumas yra $\delta_x - \delta_y = \pi/4$ turime elipsinę 2 pav. c). Poliarizacijos yra skirstomos į kairinę ir dešinę, priklausomai nuo to kuria kryptimi erdvėje sukasi elektrinio lauko \mathbf{E} vektorius. Jei \mathbf{E} sukasi pagal laikrodžio rodyklę, tai turėsime dešinę poliarizaciją. Kai vektorius sukasi prieš laikrodžio rodyklę, turime kairinę poliarizaciją. Poliarizacijos priklausomybė nuo fazių skirtumo pateikta paveiksle 3.

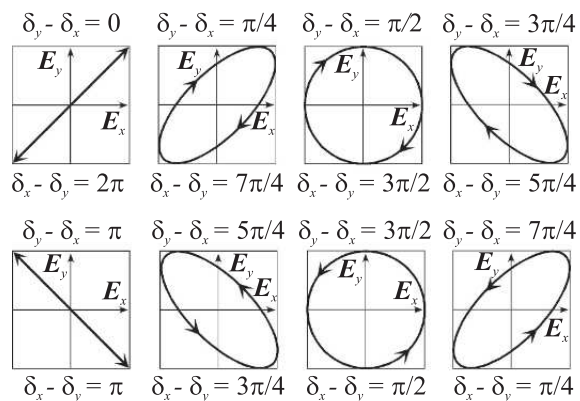
3.2 Jones'o matrica

Jones'o formalizmas yra viena iš matematinių šviesos sąveikos su medžiaga aprašymo būdų. Naudojantis Jones'o matricą, galime įvertinti ir apibūdinti įvairių poliarizacijų šviesą, kaip ji sąveikauja su optiniais elementais, su tiriamu bandiniu matavimo metu.

Jones'o formalizme poliarizaciją aprašant dviejų bangų, virpančių išilgai x ir y ašių, superpozicija apibrėžiama elektrinio lauko vektoriais x ir y kryptimis [17]. Panaudojus (16) formulę, elektrinis vektorius išreiškiamas kaip:



2 pav. Šviesos poliarizacijos. a) tiesinė, b) dešininė-apskritiminė, c) eliptinė. Fazių skirtumai tarp elektrinių laukų išilgai x ir y ašių ($\delta_y - \delta_x$) a) 0, b) $\pi/2$, c) $\pi/4$



3 pav. Šviesos poliarizacijos esant įvairiems fazių skirtumams ($\delta_y - \delta_x$ ir $\delta_x - \delta_y$) ir lygioms bangų amplitudėms ($E_{x0} = E_{y0}$).

$$\mathbf{E}(z, t) = \begin{bmatrix} E_{x0} \exp \{i(\omega t - Kz + \delta_x)\} \\ E_{y0} \exp \{i(\omega t - Kz + \delta_y)\} \end{bmatrix} = \exp \{i(\omega t - Kz)\} \begin{bmatrix} E_{x0} \exp \{i\delta_x\} \\ E_{y0} \exp \{i\delta_y\} \end{bmatrix}, \quad (17)$$

išraišką galime supaprastinti iki šio pavidalo

$$\mathbf{E}(z, t) = \begin{bmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{bmatrix}, \quad (18)$$

kur,

$$E_x = E_{x0} \exp \{i\delta_x\}, E_y = E_{y0} \exp \{i\delta_y\}. \quad (19)$$

Pasinaudojus fazių skirtumu ($\delta_x - \delta_y$), formules (19) perrašome

$$E_x = E_{x0} \exp \{i(\delta_x - \delta_y)\}, E_y = E_{y0}. \quad (20)$$

šviesos intensyvumas bus lygus

$$I = I_x + I_y = E_{x0}^2 + E_{y0}^2. \quad (21)$$

Įprastuose optiniuose matavimuose, įskaitant ir elipsometriją, svarbūs parametrai yra tik elektrinių laukų amplitudžių ir fazių pokyčiai. Todėl bendru atveju elektrinis laukas yra išreiškiamas normuotos šviesos intensyvumui ($I = 1$). Tuomet tiesiškai poliarizuotos šviesos elektrinis vektorius Jones'o formalizme x ir y kryptimis atrodys taip

$$\mathbf{E}_{ties,x} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}, \mathbf{E}_{ties,y} = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}. \quad (22)$$

Jeigu tiesiškai poliarizuota šviesa yra orientuota 45° kampų, tai sunormuoto intensyvumo vektorius bus

$$\mathbf{E}_{+45} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}. \quad (23)$$

Kitu atveju, dešininė-apskritiminė (\mathbf{E}_R) ir kairinė-apskritiminė (\mathbf{E}_L) poliarizacijos bus aprašytos

$$\mathbf{E}_R = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}, \mathbf{E}_L = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}. \quad (24)$$

Kai poliarizuota šviesa patenka į optinę sistemą S , išėjime turime pakitusios poliarizacijos šviesą. Optinę sistemą ir jos sąveiką su šviesa galime matematiškai aprašyti naudodami Jones'o matricą J . Sąryšiai, tarp kritusios ir pro optinę sistemą išėjusios šviesos, formuluojami

$$\begin{aligned} E_{ox'} &= j_{11} + j_{12} E_{ix} \\ E_{oy'} &= j_{21} + j_{22} E_{iy} \end{aligned} \quad (25)$$

kur $E_{ox'}$ ir $E_{oy'}$ - išėjusios šviesos elektrinio lauko projekcijos x ir y kryptimis, E_{ix} ir E_{iy} į optinę sistemą kirtusios šviesos elektrinio lauko projekcijos. Bendru atveju galime užrašyti

$$\mathbf{E}_o = \mathbf{J}\mathbf{E}_i, \quad (26)$$

kur, \mathbf{J} optinės sistemos Jones'o matrica

$$\begin{bmatrix} j_{11} & j_{12} \\ j_{21} & j_{22} \end{bmatrix}. \quad (27)$$

3.3 Stokes'o vektorius

Jones'o matrica leidžia gerai aprašyti pilnai poliarizuotą šviesą ir visą optinę sistemą, tačiau to padaryti negalima, kai šviesa yra dalinai poliarizuota. Kai reikia apibūdinti ir nepoliarizuotą šviesą, naudojami Stokes'o parametrai. Stokes'o vektoriai aprašo elektromagnetinės bangos poliarizacines savybes, esant bet kokiai šviesos poliarizacijai. Stokes'o formalizme naudojame poliarizuotos šviesos intensyvumus, tuomet keturi Stokes'o parametrai aprašomi [18]

$$I = I_x + I_y, \quad (28)$$

$$Q = I_x - I_y, \quad (29)$$

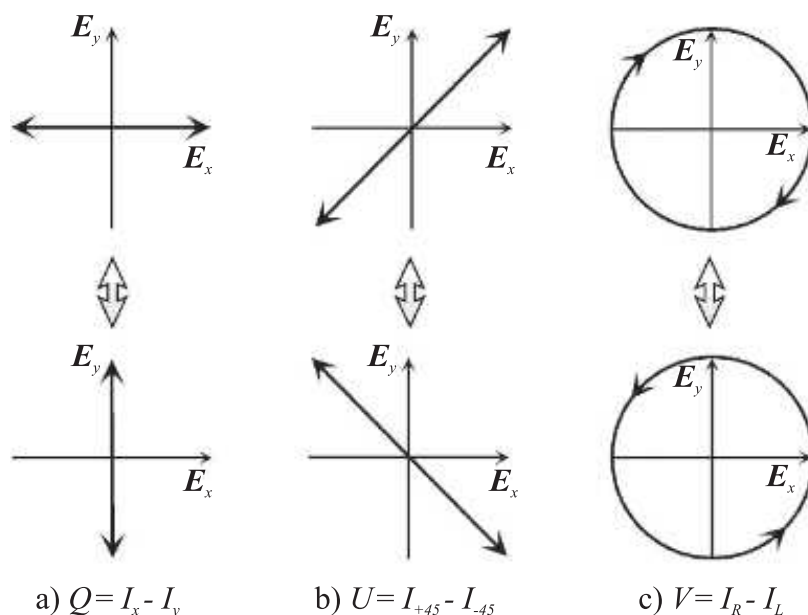
$$U = I_{+45} - I_{-45}, \quad (30)$$

$$V = I_R - I_L, \quad (31)$$

kur, I parametras apibrėžia visą sistemos intensyvumą, Q - tiesinių poliarizacijų y ir x kryptimis intensyvumų skirtumas (4 a)), U - tiesinių poliarizacijų, 45° ir -45° kampu, intensyvumų skirtumas (4 b)). Paskutinis parametras V , tai kairinės ir dešinės apskritiminių poliarizacijų intensyvumų skirtumas (4 c)). Stokes'o parametrai Q , U , ir V atspindi atitinkamus skirtumus tarp šviesos poliarizacijų. Sudėjus visus parametrus į matricą, gaunamas Stokes'o vektorius

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{bmatrix}. \quad (32)$$

Nepoliarizuotoje (natūralioje) šviesoje yra vienodai visų poliarizacijų šviesos, todėl Stokes'o parametrai Q , U ir V bus lygūs nuliui, o Stokes'o vektorius nepoliarizuotai šviesai apibrėžiamas kaip



4 pav. Stokes'o parametrai a) Q , b) U , c) V .

$$\mathbf{S} = I_0 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (33)$$

kur, I_0 bendras intensyvumas. Patogiau yra normuoti Stokes'o parametrus į bendrą intensyvumą, dalinant kiekvieną parametą iš I_0 . Stokes'o parametrai nusako ir poliarizacijos laipsnį, kuris gali kisti nuo nulio (kai šviesa nepoliarizuota) iki vieneto (pilnai poliarizuota šviesa). Jei poliarizacijos laipsnis yra tarp 0 ir 1, tai šviesa iš dalinai poliarizuota. Poliarizacijos laipsnis P suskaičiuojamas naudojantis išraiška

$$P = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I}. \quad (34)$$

4 Eksitoninė sugertis

Sugerties kraštas tiesiatarpiuose puslaidininkiuose aprašomas sugerties koeficiento priklausomybe nuo fotono energijos pagal dėsnį:

$$\alpha(\omega) \propto \sqrt{\hbar\omega - E_g}, \quad (35)$$

kur $\hbar\omega$ – fotono energija, E_g – draustinių energijų tarpas. Eksperimentiškai jis lengviau stebimas siauratarpiuose puslaidininkiuose. Plačiatarpiuose puslaidininkiuose sugerties kraštas yra artimas (35) dėsniai tik esant pakankamai aukštai temperatūrai. Žemoje temperatūroje sugerties koeficiento spektre išryškėja optinis ypatumas, kurį sąlygoja specifinė kietųjų kūnų kvazidalelė – eksitonas.

Tarpjuostinių optinių šuolių metu kristale yra generuojamos, kuriamos dviejų rūšių dalelės – laidumo juostos elektronai ir valentinės juostos skylės. Kadangi elektrono ir skylės krūviai yra priešingų ženklų, elektronas ir skylė sąveikauja tarpusavyje kuloninės traukos dėsnium $-e^2/|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|$, kuris gali surišti elektroną ir slylę į vieną dalelę – eksitoną.

Optinius šuolius, lydimus eksitonų generavimu, galima analizuoti vandenilinio tipo elektrono ir skylės poros rėmuose. Tuomet eksitono ryšio energiją galima apibrezti:

$$E_{ex} = -\frac{E_B}{n^2}, E_B = \frac{\mu e^4}{2\kappa^2 \hbar^2}, \quad (36)$$

kur E_B – Bohr'o energija, eksitono pagrindinis kvantinis skaičius, μ – redukuotoji elektrono ir skylės masė, e – elementarusis krūvis, κ – dielektrinė kristalo skvarba, \hbar – redukuota Plank'o konstanta.

Optinės medžiagos konstantos optinių tarpjuostinių šuolių spektrinėje srityje stipriai priklauso nuo medžiagos elektroninės juostų struktūros. Taigi ir optiniai šuoliai į eksitonų surištasias būsenas, draustinių energijų tarpo aptinkoje, stipriai įtakoja optinį medžiagos spektrą. Kai medžiaga apšviečiama šviesa, kurios fotono energija artima draustinių energijų tarpui E_g , įvyksta eksitoninis šuolis, sugeriamas fotonas, kurio energija $\hbar\omega$ yra lygi:

$$\hbar\omega = E_g - E_n \quad (37)$$

1997 metais, metodą analizuoti dielektrinę funkciją, tiriant eksitoninius šuolius tiesiatarpiuose puslaidininkiuose pirmasis aprašė Adachi [19]. Jis tyrė viurtzito struktūros tiesiatarpį kristalinį ZnO. Adachi eksitoninio tipo sugerties kraštą cinko okside aprašė kaip trijų atskirų dielektrinių funkcijų sumą:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{ib}(\omega) + \varepsilon_{ex}(\omega) + \varepsilon_{cex}(\omega), \quad (38)$$

kur kiekviena funkcija atskirai aprašo tarpjuostinius optinius šuolius $\varepsilon_{ib}(\omega)$, šuolius į eksitonų surištasias $\varepsilon_{ex}(\omega)$ ir kontinuumo $\varepsilon_{cex}(\omega)$ būsenas. Optiniai tarpjuostiniai šuoliai dielektrine funkcija aprašomi:

$$\varepsilon_{ib}(\omega) = \frac{A_0}{E_0^{3/4} x^2} (2 - \sqrt{1-x} - \sqrt{1+x}), \quad (39)$$

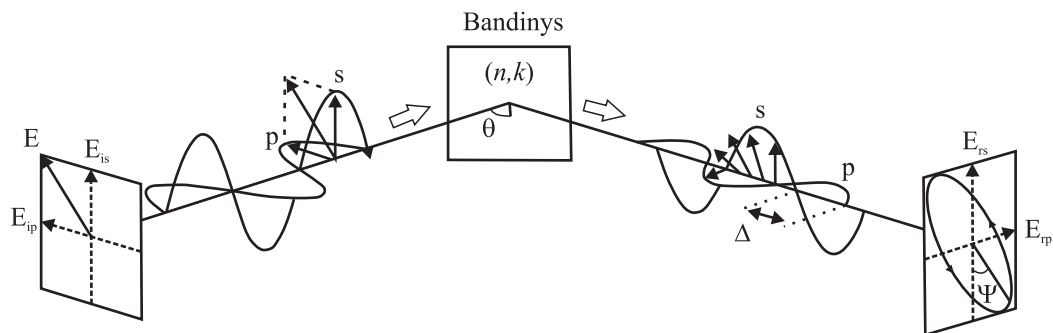
kur $x = (\hbar\omega + i\Gamma_0)/E_0$, A_0 , E_0 ir Γ_0 atitinkamai kritinio taško amplitudė, energija ir išplitimo parametras. Analizuodamas ZnO dielektrinę funkciją $\varepsilon(\omega)$, optinius perėjimus į surištasias eksitonų būsenas Adachi aprašė pasinaudodamas Lorentz'o oscilatoriaus funkcija:

$$\varepsilon_{ex}(\omega) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{A_n}{E_n - \hbar\omega - i\Gamma}, \quad (40)$$

kur A_n – surištosios eksitono būsenos stiprio parametras, E_n – surištosios būsenos energija, Γ – išplitimo parametras, n – pagrindinis kvantinis skaičius, kambario temperatūroje, kai eksitonas yra pagrindinėje būsenoje lygus 1. Tuo tarpu, eksitoninių šuolių į kontinuumo būsenas dielektrinė funkcija bus:

$$\varepsilon_{cex}(\omega) = \frac{A_c E_1}{4E_{ex}(\hbar\omega + i\Gamma_c)} \ln \left(\frac{E_0^2}{E_0^2 - (\hbar\omega + i\Gamma_c)^2} \right), \quad (41)$$

kur A_c ir Γ_c atitinkamai kontinuomo–eksitono būsenos stiprio parametras ir išplitimo parametras, o E_{ex} – eksitono ryšio energija. Tokį eksitoninio tipo sugerties krašto analizės metodą galima pritaikyti ir kities tiesiatarpiais puslaidininkiams, turintiems didelį draustinių energijų tarpą.



5 pav. Principinė spektroskopinės elipsometrijos matavimo schema [20]

5 Tyrimo metodai

5.1 Spektroskopinė elipsometrija

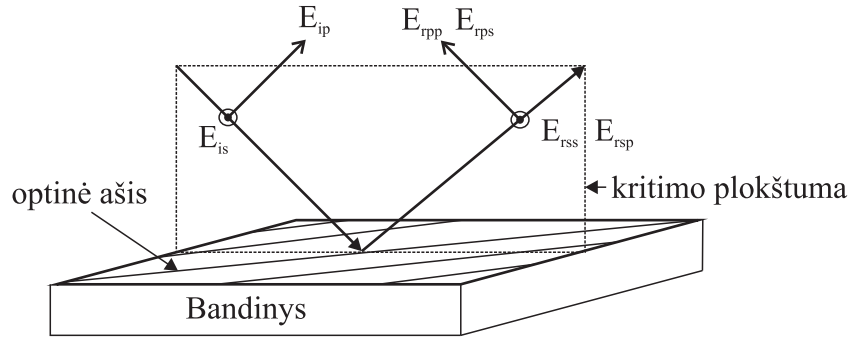
Spektroskopinė elipsometrija – tai viena iš pagrindinių optinių metodikų tiriant medžiagos optines savybes. Elipsometrija paremta šviesos poliarizacijos analize, kuri leidžia tirti tūrinius bandinius, jų paviršius, plonus sluoksnius ar sluoksnių struktūras. Šviesai praėjus pro medžiagą, ar atsispindėjus nuo paviršiaus, keičiasi jos poliarizacinė būsena. Atsiradusį pokytį sąlygoja bandinio optinės konstantos. Poliarizacijos pokyčio analizė leidžia nustatyti medžiagos kompleksinį lūžio rodiklį, plonų sluoksnių storius, bei dielektrinę funkciją.

5.1.1 Spektroskopinės elipsometrijos principai

Principinė spektroskopinės elipsometrijos schema pateikta 5 paveiksle. Elipsometrija tiesiogiai matuoja du dydžius – amplitudžių santykį Ψ ir fazių skirtumą Δ . Amplitudžių santykis Ψ apibrėžiamas kaip elektrinio lauko \mathbf{E} s- ir p- komponentių santykis. Komponentė s- elektrinis laukas statmenas kritimo plokštumai, p - atitinka elektrinį lauką, kuris svyruoja šviesos kritimo plokštumoje. Parametras Δ parodo fazių skirtumą tarp s- ir p- komponentių. Tiesiškai poliarizuota šviesa, orientuota 45° kampu, krenta į bandinį kampu θ , tuomet elektrinio lauko s-, p- komponentės ir jų fazės yra lygios $\mathbf{E}_{ip} = \mathbf{E}_{is}$, $\delta_{ip} - \delta_{is} = 0$. Šviesai atsispindėjus nuo bandinio atsiranda skirtumas tarp komponentių amplitudžių ir jų fazių $\mathbf{E}_{rp} \neq \mathbf{E}_{rs}$, $\delta_{rp} - \delta_{rs} \neq 0$, dėl šviesos sąveikos su medžiaga. Tai sąlygoja skirtingi Fresnel'io amplitudiniai atspindžio koeficientai s- ir p- komponentėms ($r_p \neq r_s$). Eksperimentiškai nustatomus elipsometrinius parametrus Ψ ir Δ su amplitudiniais atspindžio koeficientais r_p , r_s sieja pagrindinės elipsometrines lygtys

$$\rho = \tan \Psi \exp \{i\Delta\} = \frac{r_{pp}}{r_{ss}} \quad (42)$$

$$\tan \Psi = \frac{|r_{pp}|}{|r_{ss}|}, \quad \Delta = \delta_p - \delta_s, \quad (43)$$



6 pav. Šviesos atspindys nuo anizotropinio paviršiaus.

kur ρ kompleksinis atspindys. Išsprendę elipsometrinę lygtį (42) ir pasinaudoję Snell'io dėsnio $N_1 \sin \theta_1 = N_2 \sin \theta_2$ gauname

$$\frac{N_2}{N_1} = \sin \theta \left[1 + \left(\frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \tan^2 \theta \right]^{1/2}, \quad (44)$$

kur, N_1 ir N_2 kompleksiniai lūžio rodikliai. Žinant eksperimento aplinkos kompleksinį lūžio rodiklį N_1 , galima rasti tiriamos medžiagos kompleksinį lūžio rodiklį N_2 . Kompleksinis lūžio rodiklis su dielektrine funkcija siejamas lygtimis

$$\varepsilon_1 = n_2^2 - k_2^2 = n_1^2 \sin^2 \theta \left[1 + \frac{(\tan^2 \theta) \{ \cos^2 2\Psi - (\sin^2 \Delta)(\sin^2 2\Psi) \}}{\{ 1 + (\sin 2\Psi)(\cos \Delta) \}^2} \right] \quad (45)$$

$$\varepsilon_2 = 2n_2 k_2 = \frac{n_1^2 (\sin^2 \theta) (\tan^2 \theta) (\sin 4\Psi) (\sin \Delta)}{\{ 1 + (\sin 2\Psi)(\cos \Delta) \}^2} \quad (46)$$

Lygtys (45) ir (46) pilnai aprašo izotropinės medžiagos optinį atsaką, kai optinės konstantos pagrindinėmis medžiagos simetrijos kryptimis sutampa. Tačiau, jei sistemos dielektrinės konstantos yra skirtingos (anizotropinė medžiaga), tai elipsometrinės lygtys tampa daug sudėtingesnės ir jų sprendimas labiau komplikuoatas. Principinis šviesos atspindys nuo anizotropinės medžiagos paviršiaus pavaizduotas 6 paveiksle. Į bandinį kritusi elektrinio lauko p- komponentė, sąveikos metu su paviršiumi, yra ne tik atspindima, bet ir generuoja s- komponentę. Todėl atsispindėjusioje šviesoje bus dvi elektrinio lauko komponentės \mathbf{E}_{rpp} ir \mathbf{E}_{rps} . Analogiškai vyksta paviršių apšvietus s- komponente. Nuo paviršiaus atsispindės dvi \mathbf{E}_{rss} ir \mathbf{E}_{rsp} komponentės. Jeigu paviršius vienu metu bus apšviestas abiem elektrinio lauko komponentėm, tai atsispindėjusios šviesos p- ir s- komponentės bus

$$E_{rp} = E_{rpp} + E_{rps} = r_{pp} E_{ip} + r_{ps} E_{is} \quad (47)$$

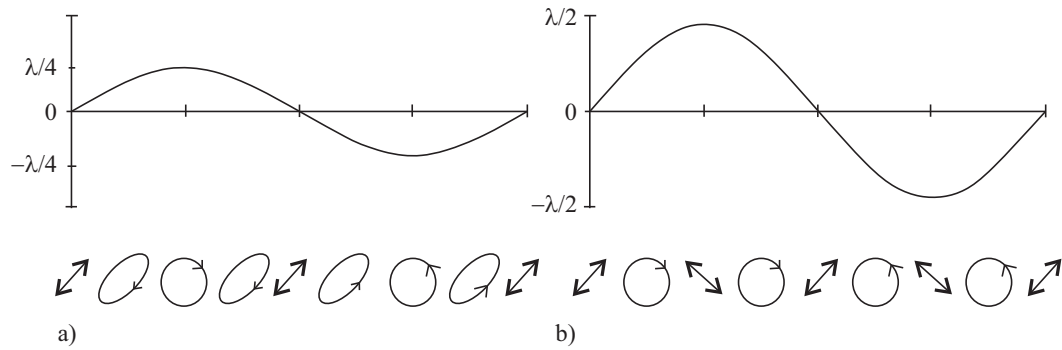
$$E_{rs} = E_{rss} + E_{rsp} = r_{ss} E_{is} + r_{sp} E_{ip}. \quad (48)$$

šias lygtis parašome matriciniu pavidalu

$$\begin{bmatrix} E_{rp} \\ E_{rs} \end{bmatrix} = J \begin{bmatrix} E_{ip} \\ E_{is} \end{bmatrix}, J = \begin{bmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{bmatrix}, \quad (49)$$

J vadinama Jones'o matrica. Izotropinio paviršiaus atvėju p- kompenetė negeneruoja s- komponentės ir atvirkščiai, todėl nediagonaliniai J matricos elementai r_{ps} ir r_{sp} taps lygūs nuliui [21].

Šiame darbe spektroskopinės elipsometrijos matavimai buvo atlikti dviejų besisukančių kompensatorių elipsometru RC2 (J.A. Woollam Co., Inc.), sumontuotu ant automatinio goniometro. Šviesos poliarizacija yra valdoma poliarizatoriumi ir besisukančiu kompensatoriumi. Šviesos šaltinis – halogeninė ir deuterio lempos. Elipsometro detektorius – dvi CCD (*charge-coupled device*) matricos. Viena CCD matrica registruoja 790 spektro taškų intervale nuo 210 iki 1000 nm (1,24 – 5,9 eV), kita – 275 taškus 1000 – 1690 nm spektrinėje srityje (0,73 – 1,24 eV). Visos 1065 spektro vertės yra nuskaitytos vienu metu. 5 – 6,5 eV spektrinėje srityje matavimai atlikti naudojant besisukančio analizatoriaus VASE elipsometrą (J.A. Woolam Co., Inc.)



7 pav. PEM'o poliarizacijos moduliacija maksimaliame a) $\lambda/4$ ir b) $\lambda/2$ fazių vėlinime.

5.2 Poliarimetrija

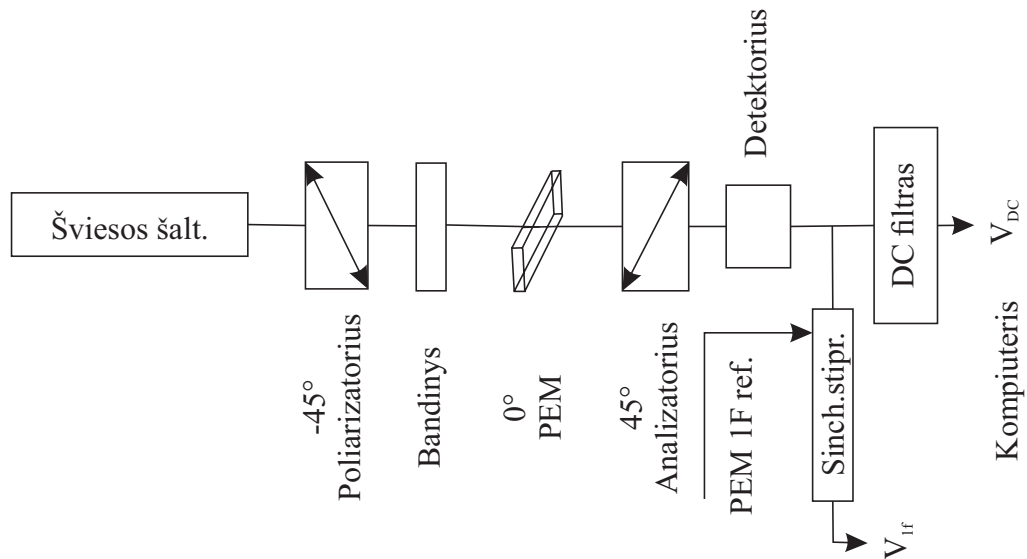
Poliarimetrija matuoja poliarizacinės būsenos pakitimą moduluotai šviesai praėjus pro bandinį. Šviesos poliarizacija moduluojama fotoelastiniu moduliatoriumi (PEM). Moduluotai poliarizacijai sklindant pro bandinį, keičiasi jos amplitudė ir fazė. Poliarimetrija leidžia tirti skirtuminius medžiagos parametrus, tokius kaip dvilūžis, dichrozmas ir optinis aktyvumas.

5.2.1 Fotoelastinis moduliatorius (PEM)

Fotoelastinis moduliatorius – tai optinis prietaisas skirtas moduluoti šlindančios šviesos poliarizacijai. Jo veikimo principas paremtas generuojamu dvilūžiu medžiagoje. Poliarizacija moduluojama keičiant dvilūžį optiniame elemente. Jei optinis elementas nėra veikiamas jokios mechaninės jėgos, tai šviesa pro jį praeis nepakeitusi poliarizacijos. Jei skaidrus kietakūnis elementas tam tikromis kryptimis yra suspaudžiamas arba ištempiamas, jame atsiranda dvilūžis – lūžio rodikliai skirtingomis kryptimis skiriasi. Vadinais ir poliarizuotos šviesos komponentės, atitinkamai lygiagrečiai arba statmenai optinio elemento, terpėje sklinda skirtingais greičiais – atsiranda fazių skirtumas tarp elektromagnetinės bangos vektorių, keičiasi šviesos poliarizacinė būsena.

Pirmoji svarbi sąlyga atsiranda, kai maksimalus fazių vėlinimas pasiekia tiskliai vieną ketvirtąją šviesos bangos ilgio ($\lambda/4$). Kai taip nutinka, fotoelastinis moduliatorius dirba kaip ketvirčio bangos ilgio fazinė plokštelė, poliarizacijos vektorius erdvėje brėžia apskritimą – pasiekama apskritiminė poliarizacija. Poliarizacinės būsenos osciliacijos nuo dešininės iki kairinės apskritiminės pavaizduotos 7 a) paveiksle.

Kita svarbi sąlyga – maksimalus fazių vėlinimas pasiekia vieną antrąją šviesos bangos ilgio ($\lambda/2$). Tuomet fotoelastinio moduliatoriaus darbo režimas atitinka pusės bangos ilgio fazinę plokštelę. Dvigubame fotoelastinio moduliatoriaus darbiname dažnyje ($2f$), poliarizacija yra moduluojama tarp dviejų statmenų tiesinių poliarizacijų. Poliarizacinės būsenos moduliacija $\lambda/2$ režime pateikta 7 b) paveiksle.



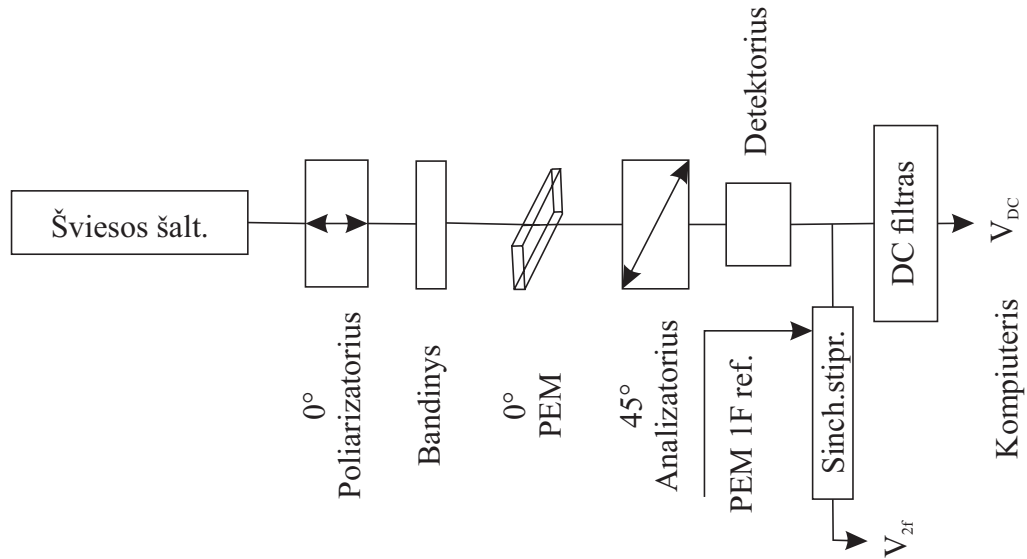
8 pav. Principinė linijinio dvilūžio matavimo schema

5.2.2 Linijinis dvilūžis

Jeigu medžiaga turi linijinį dvilūžį, tai jos lūžio rodikliai ir optinis atsakas dviejų, viena kitai statmenų, poliarizacijų šviesai skirsis. Skirtingi lūžio rodikliai įneš tam tikrą fazių skirtumą tarp abiejų poliarizacinių būsenų šviesos. Naudojant fotoelastinį moduliatorių, bandinys tam tikru pasikartojimų dažniu yra apšviečiamas vis kitos poliarizacijos elektromagnetine banga. Tai leidžia tiesiogiai nustatyti fazių skirtumą (vėlinimą) tarp sklindančių ortogonalinių poliarizacijų. Principinė dvilūžio matavimo schema naudojant fotoelastinį moduliatorių pateikta 8 paveiksle. Matavimo sistemą sudaro šviesos šaltinis, 45° poliarizatorius (PEM atžvilgiu), fotoelastinis moduliatorius 0° kampu matavimo sistemos koordinačių ašies atžvilgiu, bandinys, -45° poliarizatorius (analizatorius), detektorius, sinchroninis stiprintuvas ir nuolatinės įtampos (DC) filtras.

Monochromatinė šviesa keliauja pro pirmąjį poliarizatorių ir patenka į fotoelastinį moduliatorių. Toliau iš PEM'o 50kHz dažniu moduluota šviesa keliauja pro bandinį, analizatorių ir patenka į detektorius. Viena atšaka detektoriaus išėjimo signalas keliauja į sinchroninį stiprintuvą kur nuskaitoma pirmos harmonikos (1f – 50 kHz) kintamos įtampos signalo amplitudė. Kita atšaka signalas patenka į nuolatinės įtampos filtrą. Optimaliam veikimui fotoelastinio moduliatoriaus vėlinimas parenkamas $A=0.383\lambda$ arba 2.405 radianai. Tokiame režime nuolatinės įtampos signalas išlieka pastovus, nepriklauso nuo analizatoriaus padėties ar bandinio orientacijos. Taigi matavimo metu yra registruojami du signalai: 1) kintamos įtampos amplitudinė vertė darbiniam moduliatoriaus dažnyje V_{1f} ir 2) nuolatinės įtampos vertė V_{DC} . Randamas šių dviejų signalų santykis:

$$R_{1f} = \frac{V_{1f}}{V_{DC}}. \quad (50)$$



9 pav. Principinė optinio aktyvumo matavimo schema.

R_{1f} galime susieti su fazių skirtumu sąryšiu [22]:

$$R_{1f} = 2J_1(A) \sin \delta, \delta = \arcsin \left[\frac{R_{1f}}{J_1(A = 2,405)} \right], \quad (51)$$

kur δ – fazių skirtumas tarp dviejų statmenų elektromagnetinės bangos vektorių, J_1 yra fotoelastinio modulatoriaus vėlinimo A Bessel’io funkcija. Žinodami fazių skirtumą δ , nesudėtingai galime suskaičiuoti ir tiriamosios medžiagos linijinį dvilūžį:

$$(n_x - n_y) = \frac{\delta \lambda}{2\pi d}, \quad (52)$$

kur n_x ir n_y lūžio rodikliai kritimo plokštumoje, d – bandinio storis.

5.2.3 Optinis aktyvumas

Jei tiesiškai poliarizuota šviesa praeina pro optiškai aktyvią ar chiralinę medžiagą, dėl tam tikros atomų ar molekulių tolimosios išsidėstymo tvarkos, gali atsirasti šviesos poliarizacinės plokštumos pasukimas. Optinio aktyvumo atsiradimą sąlygoja cirkulinis medžiagos dvilūžis. Cirkulinis dvilūžis – tai skirtumas lūžio rodiklių apskritiminei dešininei ir kairinei šviesos poliarizacijoms. Tiesiškai poliarizuota šviesa gali būti išreikšta kaip tiesinė kombinacija apskritiminės dešinės ir kairinės poliarizacijų. Kai šviesos pluoštas patenka į optiškai aktyvų bandinį, cirkulinis dvilūžis sąlygoja fazių skirtumo atsiradimą tarp priešingų apskritiminės poliarizacijos šviesos komponentų – dešinės ir kairinės poliarizacijų elektromagnetinės bangos medžiagoje sklinda skirtingais greičiais. Suintegruotas bendras fazių skirtumas per visą bandinį, vadinamas cirkuliniu vėlinimu. Šviesai išėjus pro optiškai aktyvų bandinį, cirkulinis medžiagos dvilūžis pasuka šviesos poliarizacinę plokštumą. Optinio aktyvumo (pasukimo) kampas α yra pusė cirkulinio vėlinimo kampo $\alpha = \delta_C/2$.

Principinė optinio aktyvumo matavimo schema pateikta 9 paveiksle. Matavimo sistemą sudaro šviesos šaltinis, 0° poliarizatorius (PEM atžvilgiu), bandinys, fotoelastinis moduliatorius 0° kampu matavimo sistemos koordinatinių ašies atžvilgiu, 45° poliarizatorius (analizatorius), detektorius, sinchroninis stiprintuvas ir nuolatinės įtampos (DC) filtras. Tokioje matavimo sistemos konfigūracijoje, jei nėra bandinio, detektoriuje nebus kintamos įtampos signalo V_{AC} , krintanti šviesa nebus moduluojama. Detektorius registruos tik pastovios įtampos V_{DC} vertę. Kai į sistemą įdedamas bandinys – atsiranda poliarizacinės plokštumos pasukimas, PEM'as pradeda moduluoti dalį į jį patenkančios šviesos. Tuomet detektoriuje jau registruojamas ir antros harmonikos (2f) signalas. Bendras detektoriaus signalas bus [23]:

$$I(t) = \frac{1}{2}[1 - J_0(A) \sin(2\alpha) + 2J_2(A) \cos(2\pi ft) \sin(2\alpha)], \quad (53)$$

kur A – fotoelastinio moduliatoriaus maksimalus fazių vėlinimas, f – PEM'o darbinis dažnis, J_0 ir J_2 yra Bessel'io funkcijos. Pirmasis ir antrasis 53 lygties nariai atitinka V_{DC} ir V_{2f} vertes:

$$V_{DC} = \frac{1}{2}[1 - J_0(A) \sin(2\alpha)], V_{2f} = J_2(A) \sin(2\alpha). \quad (54)$$

Optimaliam veikimui fotoelastinio moduliatoriaus vėlinimas parenkamas $A=0.383\lambda$ arba 2.405 radianai, tuomet $J_0(A) = 0$, o nuolatinės įtampos signalas išlieka pastovus. Išmatuotą kintamos ir nuolatinės įtampų santykį su optiniu pasukimu sieja sąryšis [23]:

$$R_{2f} = \frac{V_{2f}}{V_{DC}} = J_2(A = 2,405) \sin(2\alpha). \quad (55)$$

Iš čia tiesiogiai galime suskaičiuoti ir bandinio poliarizacinės plokštumos pasukimo kampą α (optinį aktyvumą):

$$\alpha(\text{radianai}) = \frac{1}{2} \arcsin \left[\frac{R_{2f}}{J_2(A = 2,405)} \right]. \quad (56)$$

5.3 Pralaidumo spektroskopija

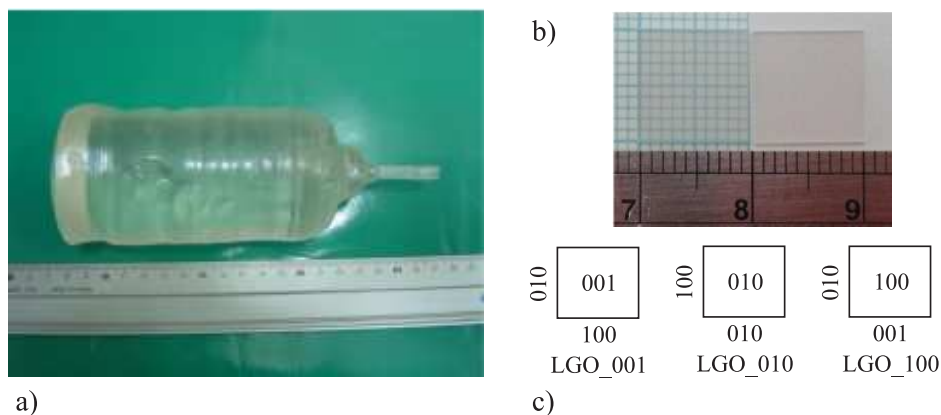
Pralaidumo spektroskopija yra dažniausiai taikomas optinių tyrimų metodas nustatant medžiagos sugerties spektrus. Matavimai plačioje spektrinėje srityje (IR-UV) leidžia nustatyti sugerties prigimtį. Šiame darbe poliarizuoto pralaidumo spektroskopijos matavimai plačioje spektrinėje srityje buvo atlikti naudojant du spektrometrus. Ultravioletinėje – artimojoje infraraudonojoje (UV-NIR) spektrinėje srityje (6,7 – 0,8 eV) buvo naudojamas dviejų spindulių Shimadzu UV-3600 spektrometras. Infraraudonoje srityje (1 – 0,01 eV) buvo naudojamas Bruker Vertex 70v vakuuminis spektrometras.

5.4 Atspindžio IR spektroskopija

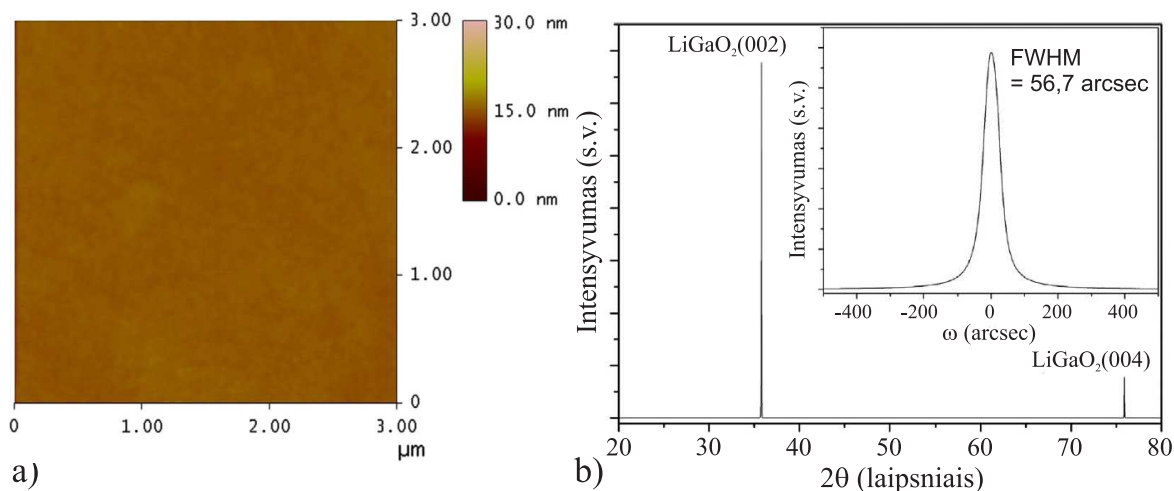
Naudojant Fourier transformacijos (FTIR) spektroskopijos metodą, bandinys yra apšviečiamas ne monochromatine, bet balta, įvairių bangos ilgių, šviesa. Šviesa patenka į Michelson'o interferometrą,

kur periodiškai vienas iš bangos ilgių yra blokuojamas. Taip šviesa, išėjusi iš interferometro, kiekvienu momentu turi skirtingą spektrą. Signalo analizė yra atliekama naudojant Fourier transformacijos algoritmą.

Šiame darbe IR atspindžio spektrai buvo registruojami VERTEX 70v FT-IR spektrometru naudojant KBr ($7500\text{-}370\text{ cm}^{-1}$ spektrinė sritis) ir Si ($600\text{-}50\text{ cm}^{-1}$) kietakūnius šviesos daliklius. Matavimai atlikti $100\text{-}7500\text{ cm}^{-1}$ spektrinėje srityje, naudojant du DLaTGS (deuteriu ir L-alaninu legiruotas triglicino sulfatas) detektorius. Plačiai spektrinei sričiai naudoti DLaTGS su KBr langeliu ($12000\text{ - }250\text{ cm}^{-1}$) ir DLaTGS su PE (polietileno) langeliu ($600\text{-}10\text{ cm}^{-1}$) detektoriai ir SiC šviesos šaltinis, globaras. Spektrai buvo registruojami atliekant 64 skenavimus esant 4 cm^{-1} žingsniu. Kadangi matuotas LiGaO_2 kristalas turi skirtingą optinį atsaką įvairiomis kristalografinėmis kryptimis, matavimai buvo atliekami poliarizuotoje šviesoje, keičiant bandinių orientacijas. Naudoti KRS-5 ($10000\text{ - }250\text{ cm}^{-1}$) ir PE ($330\text{ - }10\text{ cm}^{-1}$) poliarizatoriai. Žinodami tiksliai krintančios šviesos poliarizacijos vektoriaus kryptį ir skirtingai orientuodami bandinį, turime galimybę nustatyti kuri dielektrinės funkcijos komponentė yra atsakinga už registruojamą atspindžio spektrą.



10 pav. a) Užaugintas LiGaO_2 mono-kristalas, b) išpjauti ir nupoliruoti $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ (001) LGO bandiniai, c) LGO bandinių struktūra.

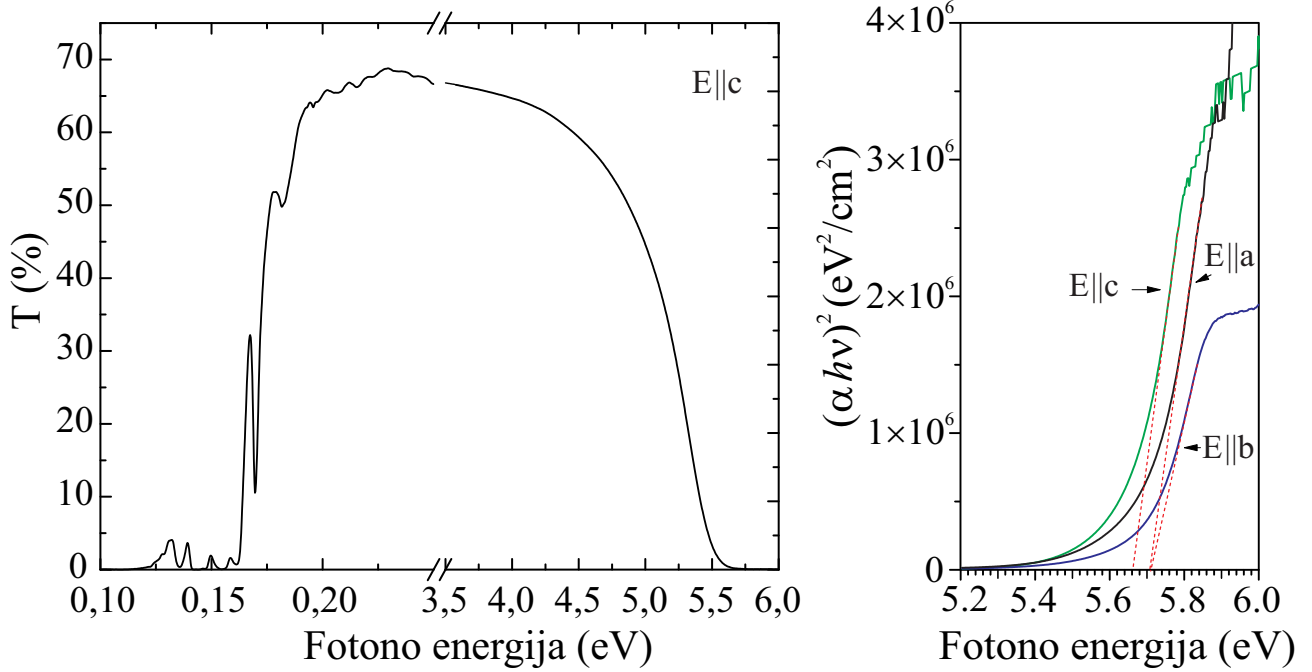


11 pav. a) LGO 001 bandinio AFM paviršiaus mikrografija [1]. b) LGO 001 bandinio $\theta - 2\theta$ difraktograma [1], intarpas – (002) difrakcinio reflekso ω profilis.

6 Rezultatai ir jų aptarimas

6.1 Bandiniai

Ličio metagalato (LiGaO_2) bandiniai buvo užauginti Czochralskio metodu (Chen grupė, [1]). Užaugintas bespalvis ir skaidrus 70 mm skersmens ir 140 mm ilgio LiGaO_2 kristalas 10 pav. a). Iš užauginto monokristalo buvo išpjauti trys $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ ploto ir $0,4 \text{ mm}$ storio bandiniai 10 pav. b). Bandiniai išpjauti taip, kad lygiagrečiai paviršiumi būtų atvertos trys pagrindinės kristalografinės plokštumos: (001), (010) ir (100). Bandiniai, atitinkamai, buvo pavadinti LGO 001, LGO 010, LGO 100 (10 pav. (c)). Bandiniai buvo ruošti epitaksiniam sluoksnių auginimui, todėl ypač svarbus yra tinkamas paviršiaus paruošimas. Optinis paviršius buvo kruopščiai mechaniškai/chemiškai nupoliruotas, o kita bandinio pusė pašiurkštinta, siekiant sumažinti atspindžius nuo antrosios sienelės. Paviršiaus lygumą ir kristalo struktūrinį tobulumą nustatė Chen mokslininkų grupė. Jie atliko LiGaO_2 (AFM)



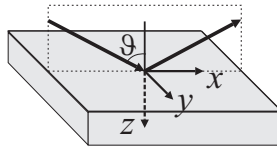
12 pav. a) Eksperimentinis pralaidumo spektras, kai $E||c$. (b) Eksperimentiniai sugerties koeficiento spektrai skirtingomis kristalografinėmis kryptimis.

paviršiaus tyrimus ir išmatavo Rentgeno difraktogramą [1]. 11 paveikslo a) dalyje yra pateikta LGO 001 bandinio paviršiaus AFM nuotrauka. Taigi matome, kad paviršius paruoštas kokybiškai, o kvadratinis nelygumo vidurkis (RMS) yra tik apie 0,28 nm [1]. Kristalo struktūrinis tobulumas nustatytas naudojantis Rentgeno spindulių difrakcija (XRD). Difraktograma, išmatuota $\theta - 2\theta$ metodu nuo LGO 001 bandinio, pateikta 11 pav. (b). Paveiksle matomi tik du (001) šeimos difrakciniai refleksai: (002) ir (004). Nustatytas (002) difrakcinio refleksio pusplotis (FWHM) = 56,7 arcsec, liudija užauginto kristalo struktūrinį tobulumą.

6.2 Poliarizuoto pralaidumo matavimai

Eksperimentiniai poliarizuoto pralaidumo matavimai 0,1 – 6 eV spektrinėje srityje buvo atlikti naudojant du spektrometrus. Ultravioletinėje – artimojoje infraraudonojoje (UV-NIR) spektrinėje srityje (6 – 0,8 eV) buvo naudojamas dviejų spindulių Shimadzu UV – 3600 spektrometras. Infraraudonojoje srityje (1 – 0,01 eV) buvo naudotas Bruker Vertex 70v vakuuminis spektrometras. Matavimai atlikti keičiant bandinių orientacijas 0° ir 90° kampu, elektrinio lauko vektoriaus atžvilgiu. Išmatuotas pralaidumo spektras nuo vieno iš bandinio, kai elektrinis laukas E nukreiptas išilgai c kristalografinės krypties, pateiktas 12 pav. a). Kaip matyti, $\sim 0,2 - 5$ eV intervale bandinys yra skaidrus, pralaidumas $400 \mu\text{m}$ storio bandinio yra apie 70 %.

Mažesnių energijų srityje stebimas pralaidumo kritimas ir tam tikri optiniai ypatumai. Literatūroje randama, kad LiGaO_2 kristalas yra skaidrus 0,1 – 5 eV spektrinėje srityje, maažesnių energijų



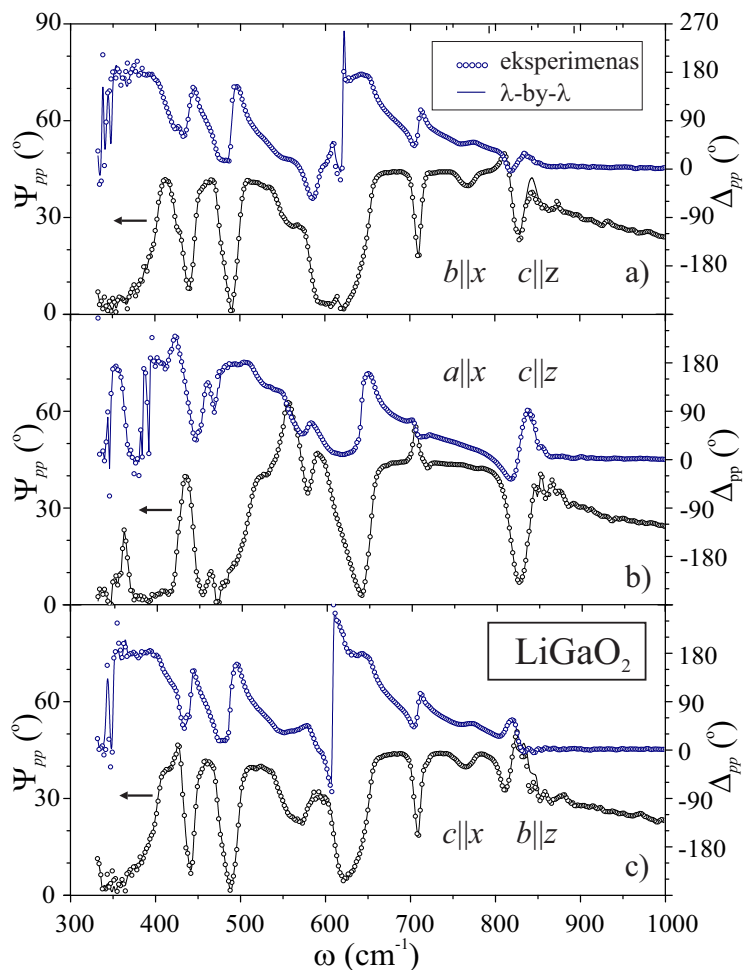
13 pav. Principinė apibentrintosios elipsometrijos ir poliarizuoto pralaidumo/atspindžio matavimo geometrija.

sirtyje prasideda optinių fononų sąlygota sugertis [24]. LiGaO₂ kristale optinių fononų sąlygoti ypatumai stebimi 130 – 780 cm⁻¹ spektrinėje srityje, kuri atitinka 0,016 – 0,097 eV. Mūsų matuotame bandinyje sugertis prasideda daug anksčiau (12 pav. a)). Tam tikri optiniai ypatumai stebimi jau nuo 0,2 eV. Sugertis "skaidrioje" srityje gali būti sąlygota įvairių procesų, daugiafononės sugerties, sugerties priemaišomis, defektais arba paviršinėmis būsenomis. Užauginti LiGaO₂ kristalai pasižymėjo struktūriniu tobulumu, difrakcinių refleksų pusplotis neviršijo 60 arcsec. Todėl defektų įtaką reikėtų atmesti. LiGaO₂, kaip ir dauguma kitų oksidų, yra pasyvus deguonies kohezijai ir atmosferos poveikiui. Todėl paviršinių būsenų įtakota sugertis yra menkai tikėtina. Mūsų nuomone, sugerties ypatumus 1000 – 1500 cm⁻¹ srityje, lemia daugiafononės sugerties procesai. Daugiafononė sugertis buvo stebėta ir ištirta daugelyje tūrinių kristalų [25, 26]. Lyginant daugiafononius literatūrinius ir mūsų LiGaO₂ sugerties spektrus "skaidrioje" srityje, yra matomas bendras panašumas, – spektrai pasižymi aiškiai išreikštais optiniais ypatumais arti liekamųjų spindulių srities ($\omega < 800 \text{ cm}^{-1}$). Visi požymiai rodo, kad stebima sugertis yra sąlygota daugiafononinių procesų. Tačiau atsakyti kokios fononų poros lemia aštrius sugerties maksimumus, reikalinga detali optinių fononų analizė.

Sugerties kraštas tiesiatarpiuose puslaidininkiuose analizuojamas remiantis (35) dėsnium. Sugerties koeficiento spektrai esant ... poliarizacijoms nustatyti išmatavus pralaidumo spektrus. Gauti rezultatai atvaizduoti $(\alpha \cdot \hbar\omega)^2$ priklausomybėmis nuo fotono energijos ir pateikti 12 pav. b) dalyje. Vertės, kuriose tiesinė tokio spektro dalis kerta x ašį, atitinka draustinių energijų tarpo vertę tiesiatarpiuose puslaidininkiuose. Tačiau, kaip matome paveiksle, šaknies dėsniai paklūsta tik dalis kreivės. Kita dalis, 5,4 – 5,7 eV srityje, rodo eksponentinį kitimą, kas gali būti sąlygota kita optinių šuolių prigimtimi. Ribojantis faktorius sugerties koeficiento matavimuose yra bandinio storis, kuris leidžia detaliai tirti tik siauroje sugerties koeficiento 10² – 10⁴ cm⁻¹ srityje. Tirti bandiniai buvo 400 μm storio, todėl krin-tanti šviesa yra sugerama ir mažų šviesos intensyvumų išmatuoti nebeužtenka aparatūros jautrumo. Pralaidumo matavimai neleidžia tiksliai nustatyti draustinių energijų tarpo vertės nežinant sugerties krašto prigimties. Eksperimentiniai spektrai rodo, kad ličio galio okside pasireiškia sugerties krašto anizotropija. Paveiksle 12 pav. b) matome, kad kiekvienoje iš eksperimento geometrijų, sugerties koeficiento dispersijos skiriasi ir nustatytas sugerties kraštas E_a ir E_b kryptimis sutampa ir yra apie 5,7 eV, o E_c kryptimi – apie 5,65 eV.

6.3 Tolimoji infraraudonoji spektro dalis

Gardelės virpesiai, optinių fononų modos šiame darbe buvo tirtos kambario temperatūroje naudojant infraraudonosios (IR) apibentrintosios spektroskopinės elipsometrijos (GSE), poliarizuoto atspind-



14 pav. Elipsometrinių parametų eksperimentiniai (taškai) ir aprašyti pataškiui (ištinės linijos) spektrai. a) c -plokštumos, b) b -plokštumos ir c) a -plokštumos LiGaO_2 bandiniai. Šviesos kritimo kampas $\vartheta=70^\circ$.

džio ir pralaidumo metodikas. IR-elipsometriniai matavimai buvo atlikti besisukančio kompensatoriaus Fourier transformacijos elipsometru (IRSE, J. A. Woollam Co., Inc), $333\text{--}5800\text{ cm}^{-1}$ spektrinėje srityje. Matavimo metu šviesa į bandinius krito 60° ir 70° kampu ϑ , o kiekvienas jų buvo griežtai orientuojamas šviesos kritimo plokštumos atžvilgiu. Principinė matavimo geometrija pavaizduota 13 paveiksle. Bandiniai orientuoti taip, kad kiekvieno eksperimento metu šviesos kritimo plokštuma (x -kryptis) būtų nukreipta lygiagrečiai, statmenai arba 45° kampu pagrindinių medžiagos kristalografinių ašių (a , b ir c) atžvilgiu. Poliarizuoto pralaidumo/atspindžio matavimai atlikti Vertex 70v vakuuminiu spektrometru $100\text{--}1500\text{ cm}^{-1}$ spektrinėje srityje esant 11° šviesos kritimo kampui. Tiesiškai poliarizuotos elektromagnetinės bangos vektorius \mathbf{E} kiekvieno matavimo metu buvo nukreiptas išilgai vis kitos kristalografinės krypties ($\mathbf{E}\parallel a$, $\mathbf{E}\parallel b$ ir $\mathbf{E}\parallel c$). Tokia matavimo geometrija leidžia analizuoti atskiras optinių fononų modas $B_1(a)$, $B_2(b)$ ir $A_1(c)$. Bendra sistemos dielektrinė funkcija, infraraudonojoje spektro dalyje, analizuota remiantis inkaro–lango metodu [27]. Metodas padeda suskaičiuoti atspindžio spektro žemadažnes asimptoės, ieškant mažiausio skirtumo tarp dielektrinės funkcijos $\varepsilon_{KK}(\omega)$, nustatytos iš Kramers-Kronig (KK) sąryšių, ir žinomų dielektrinės funkcijos verčių $\varepsilon(\omega)$.

Apibendrintoji elipsometrija analizuoja amplitudinių atspindžio koeficientų Jones'o matricą:

$$\begin{bmatrix} r_{pp} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{ss} \end{bmatrix} \quad (57)$$

Jeigu į bandinį kritusi elektrinio lauko p- komponentė, sąveikos metu su paviršiumi, negeneruoja s- komponentės ir artvirkščiai, tuomet nediagonaliniai matricos elementai bus lygus nuliui, kitu atveju matrica bus pilnai užpildyta. Apibendrintos elipsometrijos parametrai Ψ_{ij} ir Δ_{ij} ($ij=pp, ps, sp$) tuomet bus išreikšti kaip [28]

$$\frac{r_{pp}}{r_{ss}} = \tan \Psi_{pp} \exp \{i\Delta_{pp}\}, \quad \frac{r_{ps}}{r_{pp}} = \tan \Psi_{ps} \exp \{i\Delta_{ps}\}, \quad \frac{r_{sp}}{r_{ss}} = \tan \Psi_{sp} \exp \{i\Delta_{sp}\} \quad (58)$$

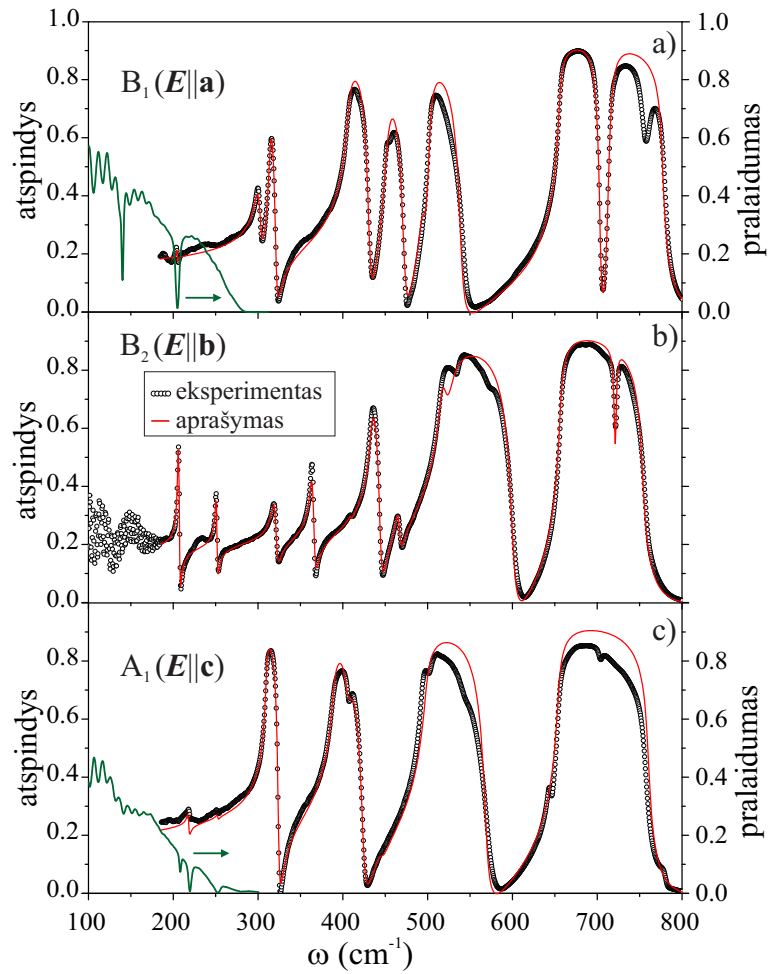
ir priklausys nuo eksperimentinės dielektrinės funkcijos tenzoriaus, šviesos kritimo kampo, optinių ašių orientacijos. Eksperimentiniai SE duomenys analizuoti naudojantis optiniu modeliu, kuris buvo artimas bandinio struktūrai. Modelyje buvo įskaitomas paviršiaus nelygumas, eksperimento konfigūracija ir anizotropija, laikant, kad bandinys yra pusiau begalinis padėklas. Pirmiausiai elipsometri- nių parametrų spektrai buvo aprašomi pataškiui ($\lambda-\lambda$) naudojant WVASE32 programinę įrangą (J. A. Woollam Co., Inc.), o dielektrinės funkcijos reali ir menama dalys ieškotos nepriklausomai viena nuo kitos, atskirai kiekviename bangos ilgyje, neatsižvelgiant į tai, kokia vertė buvo prieš tai, ar bus po to. Visi spektrai, gauti esant įvairiems šviesos kritimo kampams, matavimo konfigūracijoms, analizuoti vienu metu. Analizė leido nustatyti tris diagonalinius dielektrinės funkcijos tenzoriaus elementus $\varepsilon_a(\omega)$, $\varepsilon_b(\omega)$ ir $\varepsilon_c(\omega)$.

Siekiant nustatyti tiriamosios sistemos fizikinius parametrus, $\varepsilon_a(\omega)$, $\varepsilon_b(\omega)$ ir $\varepsilon_c(\omega)$ spektrai suskaičiuotos iš analizės pataškiui buvo palyginti su modelinėmis dielektrinėmis funkcijomis. Infraraudo- nojoje spektro srityje, dielektrinės funkcijos dispersiją galime nustatyti pasinaudoję optinių fononų dažniais. Modelinę dielektrinę funkciją išreiškiame, kaip superpoziciją Lorentz'o osciliatorių funkci- jų, kurios aprašo infraraudonajai spinduliuotei aktyvius optinių fononų modas,

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_i \frac{4\pi A_{TOi}^2 \omega_{TOi}^2}{\omega_{TOi}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_{TOi}}, \quad (59)$$

kur A_{TOi} , ω_{TOi} ir Γ_{TOi} yra i -tojo optinio fonono stipris, rezonansinis dažnis ir išplitimo parametras, ε_∞ – aukštadažnė dielektrinė konstanta.

Eksperimentiniai (taškai) ir aprašyti pataškiui (ištisinės linijos) a -, b - ir c - plokštumų LiGaO₂ bandinių IR-GSE elipsometrinių parametrų Ψ_{ij} ir Δ_{ij} spektrai pateikti 14 paveiksle. Suskaičiuoti spektrai gauti kiekvieną bandinį ir skirtingas eksperimento konfigūracijas apibūdinant Euler'io kampais [29], kurie buvo parinkti priklausomai nuo bandinių kristalografinių ašių orientacijos šviesos kritimo plokš- tumos atžvilgiu. Tikslus kiekvienos eksperimento konfigūracijos aprašymas leidžia visus duomenis analizuoti vienalaikiai. Ψ_{pp} ir Δ_{pp} spektrai 14 paveikslo a) ir b) dalyse gauti orientuojat bandinio



15 pav. Eksperimentiniai ir modeliuoti LiGaO₂ atspindžio spektrai krintant į bandinį poliarizuotai šviesai išilgai pagrindinių kristalografinių kryptių a) $E||c$, b) $E||b$ ir c) $E||a$, kai $\vartheta=11^\circ$. Kairėje a) ir b) (žalia ištiesinė linija), 100–300 cm⁻¹ spektrinėje srityje, poliarizuoto pralaidumo spektrai.

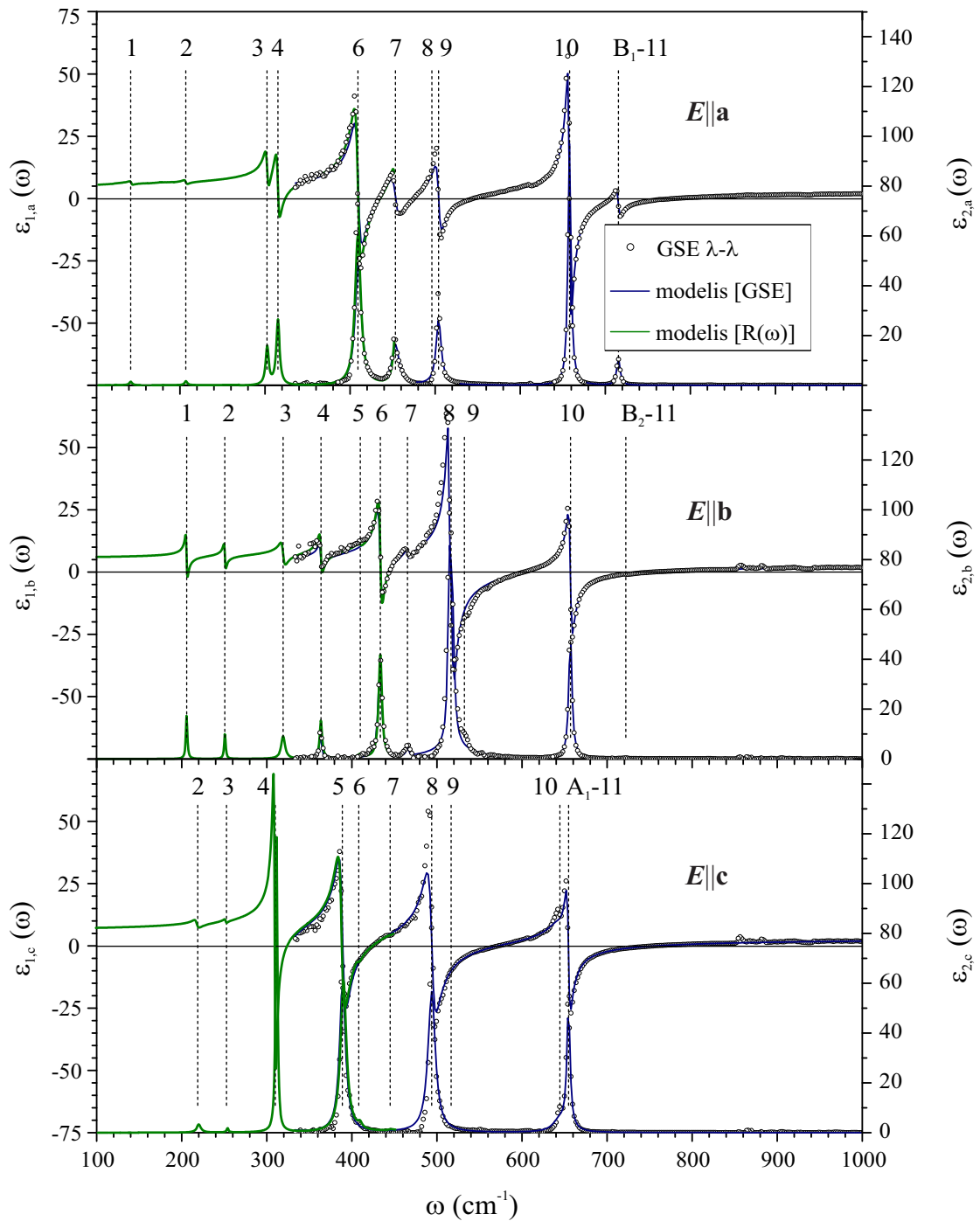
1 lentelė. B_1 , B_2 ir A_1 modų optinių fononų parametrai, nustatyti iš $\varepsilon_a(\omega)$, $\varepsilon_b(\omega)$ ir $\varepsilon_c(\omega)$ dielektrinių funkcijų. Palyginimui pateikti literatūriniai, gauti Ramano sklaidos spektroskopija (* [13]), ir teoriniai (** [14]) duomenys.

B_1 (a)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
ω_{TO} [cm^{-1}]	139.8	205 (1)	300 (1)	313.5 (6)	–	408 (1)	451.3 (8)	494 (1)	502.0 (5)	655.9 (3)	713.5 (2)
γ_{TO} [cm^{-1}]	–	2 (2)	10 (3)	4 (1)	–	9 (2)	10 (2)	2 (1)	7.3 (8)	4.2 (5)	4.5 (3)
ω_{LO} [cm^{-1}]	–	205 (1)	303 (1)	321.4 (6)	–	433 (1)	473.1 (8)	496 (1)	542.9 (5)	704.1 (3)	779.4 (2)
ω_{TO}^* [cm^{-1}]	140.3	204.7	301	314.5	324	406.5	451.5	494	503	656.5	714
ω_{TO}^{**} [cm^{-1}]	130.1	197.4	294	312.5	447.1	476.4	485.6	517.8	564.9	638.7	686.2
B_2 (b)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
ω_{TO} [cm^{-1}]	205.7 (3)	250.4 (7)	318.7 (8)	363 (1)	409 (2)	432.9 (7)	466 (1)	515.6 (8)	526 (2)	656.9 (3)	722 (1)
γ_{TO} [cm^{-1}]	1.5 (5)	3 (1)	5.8 (8)	4 (2)	0.5 (1)	6 (1)	3 (2)	10 (2)	15 (3)	6.9 (7)	3 (1)
ω_{LO} [cm^{-1}]	208.2 (3)	252.7 (7)	322.8 (8)	366 (1)	410 (2)	445.5 (7)	468 (1)	526.3 (8)	602 (2)	721.2 (3)	756 (1)
ω_{TO}^* [cm^{-1}]	205	251	320	364	407	434	504	515.5	536	657.5	723
ω_{TO}^{**} [cm^{-1}]	199.2	235.5	319.6	360	442.2	470.8	481.8	529.3	548.1	639.8	696.2
A_1 (c)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
ω_{TO} [cm^{-1}]	–	219 (3)	252.5 (3)	311.4 (7)	390 (2)	408 (2)	445 (2)	493 (1)	498 (2)	642 (2)	654.1 (5)
γ_{TO} [cm^{-1}]	–	2 (1)	2 (1)	2.4 (7)	7 (2)	3 (2)	0.5 (1)	8 (2)	9 (3)	11 (4)	5 (1)
ω_{LO} [cm^{-1}]	–	219 (3)	252.7 (3)	324.2 (7)	408 (2)	425 (2)	445 (2)	497 (1)	573 (2)	646 (2)	756.8(5)
ω_{TO}^* [cm^{-1}]	129.5	219.5	253	309.5	388.2	408	445	493.2	503.2	644.8	655
ω_{TO}^{**} [cm^{-1}]	119.5	201.7	247.4	295.7	434.4	453	473.8	505.7	514.2	627.6	633.3

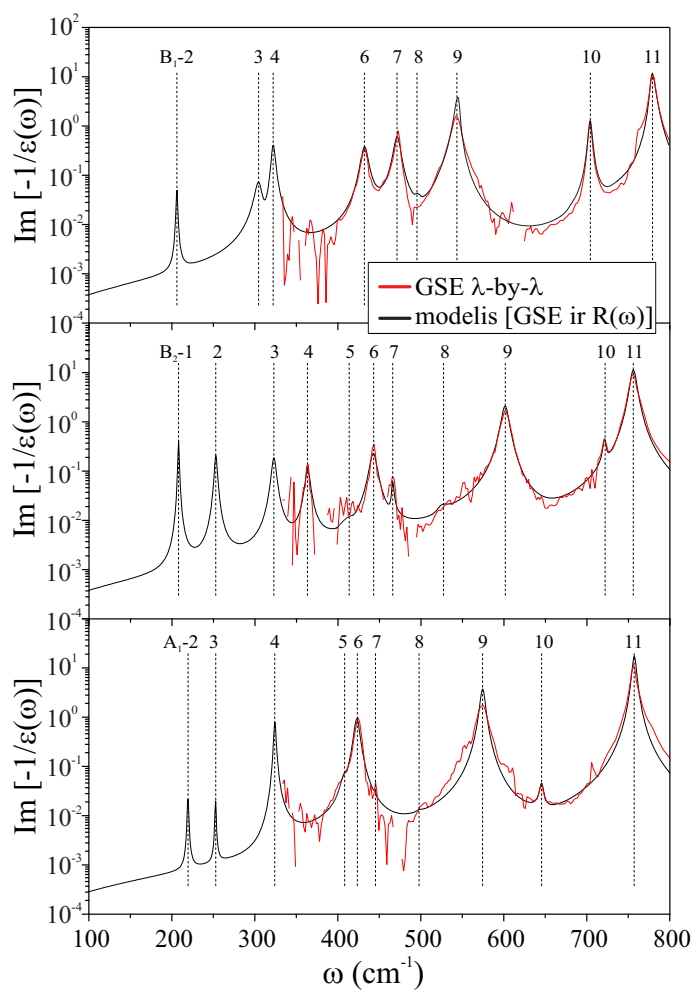
a -kristalografine ašį atitinkamai statmenai ir lygiagrečiai, o c) dalyje lygiagrečiai kritimo plokštumai.

Poliarizuoto atspindžio eksperimentiniai (taškai) ir sumodeliuoti (išsitiesinės linijos) spektrai pavaizduoti 15 paveiksle. Tiesiškai polarizuota krintanti šviesa orientuota išilgai kristalo kristalografinių ašių. Atspindžio spektrai buvo modeliuoti naudojant Lorantz'o osciliatoriaus funkcijas (59) su parametrais, nustatytais analizuojant elipsometrinius duomenis $\omega > 333 \text{ cm}^{-1}$ spektrinėje srityje. Kaip matyti 15 paveiksle, modeliniai spektrai pakankamai artimi eksperimentiniams. Mažų banginių skaičių spektrinėje srityje, $\omega < 333 \text{ cm}^{-1}$, dielektrinės funkcijos parametrai buvo suskaičiuoti iš eksperimentinių atspindžio ir pralaidumo spektrų, taikant tą patį Lorentz'o modelį (59).

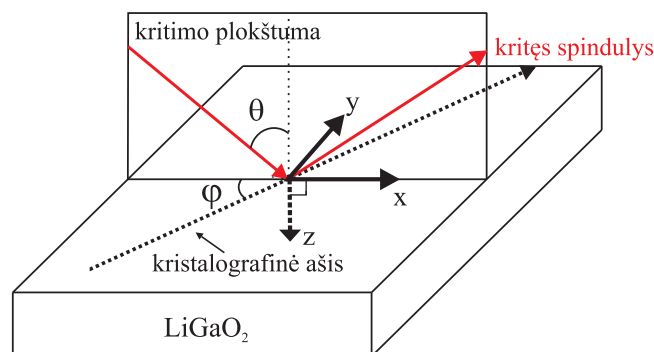
Tolimosios infraraudonosios spektro srities LiGaO_2 dielektrinės funkcijos $\varepsilon_a(\omega)$, $\varepsilon_b(\omega)$ ir $\varepsilon_c(\omega)$ nustatytos analizuojant eksperimentinius elipsometrijos ir pralaidumo/atspindžio spektrus, pateiktos 16 paveiksle. Taškais pažymėti duomenys, gauti iš GSE duomenų analizės pataškiui, išsitiesinės kreivės, $\omega > 333 \text{ cm}^{-1}$ ir $\omega < 333 \text{ cm}^{-1}$ spektrinėje srityje, atitinka dielektrines funkcijas suskaičiuotas iš elipsometrinių parametrų ir $R(\omega)$ spektrų. Nustatytos dielektrinės funkcijos tenkina KK sąryšius, nes Lorentz'o modelis atitinka KK–transformacijos reikalavimus. Gauti optinių fononų parametrai pateikti 6.3 lentelėje. Eksperimentiniai matavimai mums leido nustatyti 31-os skersinių optinių fononų (TO) modos dažnius iš visų 33-jų infraraudonajai spinduliutei aktyvių (1). Rasti TO fononų dažniai atitinka, 10 B_1 , 11 B_2 ir 10 A_1 modų simetrijas ir vertikaliomis linijomis pažymėti 16 paveiksle. Išilginių optinių (LO) fononų dažniai (1 lentelė) nustatyti iš energijos nuostolių funkcijos $\text{Im}[-1/\varepsilon(\omega)]$ (17 paveikslas). Palyginimui 6.3 lentelėje pateikti ir literatūriniai duomenys. Knoll ir Kuzmany [13] eksperimentiškai nustatyti fononų dažniai naudojant Ramano sklaidos spektroskopiją ir teorinės vertės apskaičiuotos Boonchun ir Lambrecht [14].



16 pav. Reali $\varepsilon_1(\omega)$ ir menama $\varepsilon_2(\omega)$ LiGaO₂ dielektrinės funkcijos dalys. Šviesos poliarizacija nukreipta išilgai a , b ir c kristalografinių ašių. Taškais žymimi duomenys gauti iš apibendrintosios elipsometrijos analizės pataškui (λ -by- λ). Ištinės kreivės – modelinės dielektrinės funkcijos nustatytos iš eksperimentinių elipsometrijos ($\omega > 333 \text{ cm}^{-1}$) ir atspindžio/pralaidumo ($\omega < 333 \text{ cm}^{-1}$) spektrų. Vertikalios linijos žymi TO optinių fononų B_1 , B_2 ir A_1 modų dažnius.



17 pav. LiGaO₂ energijos nuostolių funkcijos $\text{Im}[-1/\varepsilon(\omega)]$ spektrai išilgai pagrindinių a , b ir c kristalografinių ašių. Raudonomis kreivėmis žymimi spektrai gauti iš apibendrintosios elipsometrijos analizės pataškiui (λ -by- λ), juodos ištisinės kreivės – modelinės dielektrinės funkcijos nustatytos iš eksperimentinių elipsometrijos ($\omega > 333 \text{ cm}^{-1}$) ir atspindžio/pralaidumo ($\omega < 333 \text{ cm}^{-1}$) spektrų. Vertikalios linijos žymi LO optinių fononų B_1 , B_2 ir A_1 modų dažnius.



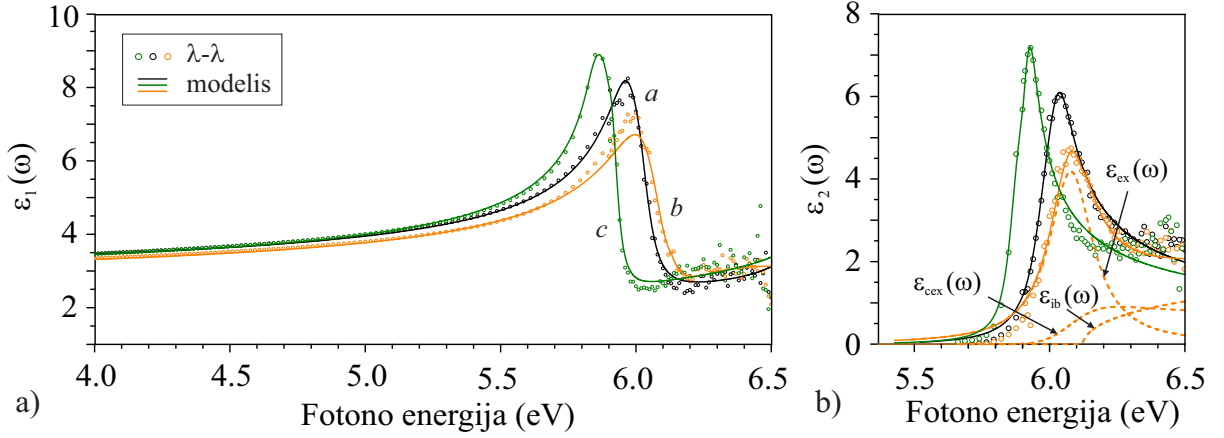
18 pav. Principinė elipsometrinių matavimų schema. θ – šviesos kritimo kampas. φ – kampas tarp bandinio kristalografinės ašies ir šviesos kritimo plokštumos. x , y ir z – eksperimento koordinatinių ašys.

6.4 Matomoji – ultravioletinė spektro dalis

Matomoje - ultravioletinėje šviesos spektro dalyje (0,73 – 5,9 eV) daugiakampės spektroskopinės elipsometrijos matavimai atlikti dviejų besisukančių kompensatorių elipsometru RC2 (J.A. Woollam Co., Inc.). Principinė matavimo schema pateikta 18 paveiksle. Šviesos kritimo kampas θ eksperimento metu buvo 50° , 60° ir 70° . Bendru atveju, neatsižvelgiant į bandinio orientaciją ir esant vis kitam šviesos kritimo kampui, išmatuojamas šešių elipsometrinių parametrų Ψ_{pp} , Δ_{pp} , Ψ_{sp} , Δ_{sp} , Ψ_{ps} ir Δ_{ps} duomenų paketas. Jeigu tiriamoji medžiaga yra optiškai anizotropinė, jos optinis atsakas visomis kryptimis yra skirtingas, o elipsometrinių parametrų analizė ir optinių konstantų nustatymas tampa sudėtingu uždaviniu. Tirtas LiGaO_2 – dviašis kristalas, kurio optinis atsakas ir optinės konstantos priklauso nuo kristalografinės krypties. Siekiant supaprastinti eksperimentinių duomenų analizę, buvo matuoti visi trys turimi bandiniai (10 pav. c)). Kiekvieno matavimo metu kristalografinės ašys a , b ir c buvo orientuojamos taip, kad sutaptų su laboratorine x , y ir z koordinatinių sistema. Kiekvienas bandinys buvo išmatuotas pasukant jį paviršiaus normalės atžvilgiu 0° , 45° ir 90° kampais. 0° ir 90° azimutiniai kampai leidžia mums eliminuoti Jones'o matricoje esančius nediagonalinius elementus, kurie tampa lygūs 0, lieka tik diagonaliniai elementai. Esant 45° azimutiniam kampui nediagonaliniai elementai tampa palyginami su diagonaliniais elementais Jones'o matricoje. Tokia matavimo geometrija leidžia supaprastinti analizę ir ieškomas dielektrinės funkcijos tenzorius yra

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix}. \quad (60)$$

Eksperimentiniai SE duomenys, matomoje - ultravioletinėje šviesos spektro dalyje, analizuoti naudojantis optiniu modeliu, kuris buvo artimas bandinio struktūrai. Modelyje buvo įskaitomas paviršiaus nelygumas, eksperimento konfigūracija ir anizotropija, laikant, kad bandinys yra begalinis plokščias. Sukurtas modelis leido vienu metu analizuoti visus išmatuotus spektrus. Eksperimentiškai išmatuoti elipsometriniai parametrai Ψ_{pp} , Ψ_{ps} , Ψ_{sp} , Δ_{pp} , Δ_{ps} , Δ_{sp} pirmiausiai buvo aprašomi pataš-

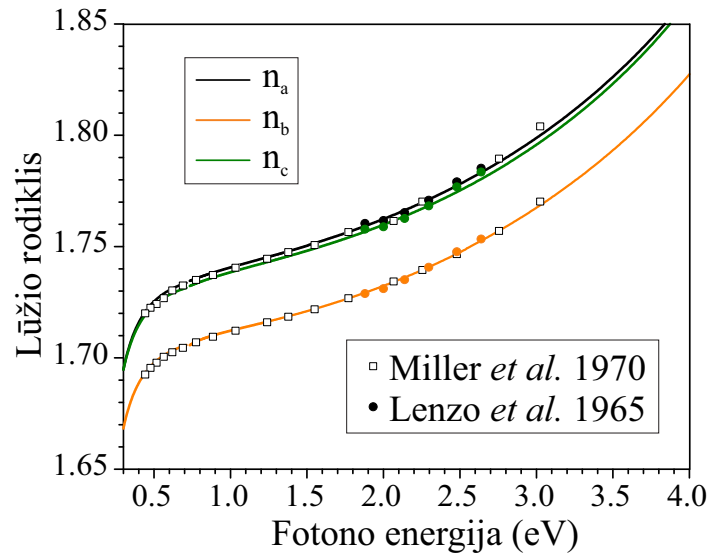


19 pav. LiGaO₂ dielektrinės funkcijos išilgai *a*, *b* ir *c* kristalografinių ašių, matomoje – ultravioletinėje šviesos spektro dalyje. Taškais žymimi duomenys gauti iš analizės pataškiui ($\lambda - by - \lambda$), ištisinės kreivės – modelinės dielektrinės funkcijos. $\varepsilon_{ib}(\omega)$, $\varepsilon_{ex}(\omega)$ ir $\varepsilon_{ceex}(\omega)$ atitinkamai dielektrinės funkcijos aprašančios tarpjuostinius optinius šuolius, šuolius į eksitonų surištasias ir kontinuumo būsenas.

kiui ($\lambda - by - \lambda$). Iš eksperimentinių pataškiui analizuotų spektrų gauta dielektrinė funkcija, jos reali ε_1 ir menama ε_2 dalys pateiktos taškais 19 paveiksle. Iš menamos dielektrinės funkcijos, kuri aprašo sugertį, matome, kad sugerties kraštas prasideda maždaug nuo 5,7 eV, kas artima ir vertei gautai iš pralaidumo matavimų 12 pav. b). Tačiau funkcijai pasiekus maksimalią padėtį, stebimas kritimas didesnių energijų srityje, kas byloja, kad sugerties kraštas yra sąlygotas ne vien tarpjuostinių optinių šuolių per draustinių energijų tarpą, kaip buvo manyta iki šiol. Staigus dielektrinės funkcijos kritimas rodo, kad sugerties kraštas prasideda šuoliais į eksitonines būsenas. Detalesnei sugerties krašto analizei, eksperimentinė pataškiui gauta dielektrinė funkcija aproksimuota modeliuota funkcija (38), įtraukiant optinius tarpjuostinius šuolius ir šuolius į eksitonų surištasias ir kontinuumo būsenas. Optinės konstantos nustatomos kuo geriau sutapatiniant modelinę dielektrinę funkciją su eksperimentiniais pataškiui gautų dielektrinių funkcijų spektrais. Ieškoma mažiausia kvadratinė nuokrypa MSE [30]:

$$MSE = \frac{1}{N - M} \sum \left(\frac{y_i - y_i(\vec{x}, \vec{a})}{\sigma_i} \right)^2, \quad (61)$$

kur, y_i - eksperimentiniai duomenys *i*-jame taške, $y_i(\vec{x}, \vec{a})$ - modeliniai duomenys, \vec{x} ir \vec{a} - fiksuoti ir varijuojami modelio parametrai, σ_i - standartinė nuokrypa *i*-jame taške. Nustatytos modelinės LiGaO₂ dielektrinės funkcijos išilgai skirtingų kristalografinių ašių, pateiktos 19 paveiksle ištisinėmis kreivėmis. Matome, kad rezultatai gauti abiem būdais yra labai artimi. Dielektrinės funkcijos atskirai aprašančios tarpjuostinius optinius šuolius ε_{ib} , šuolius į eksitonų surištasias būsenas ε_{ex} ir šuolius į eksitonų kontinuumo būsenas ε_{ceex} , buvo pritaikytos visiems spektrams. 19 paveiksle punktyrinėmis linijomis atvaiztuotos šios funkcijos matavimo geometrijai esant $\mathbf{E} \parallel b$. Toks eksperimentinių dielektrinių funkcijų aprašymas leido nustatyti E_1 energiją (40), kuri lygi draustinio energijų tarpo E_0 ir eksitono ryšio energijos E_{ex} skirtumui. Nustatytos E_1 vertės $6,033 \pm 0,003$ eV, $6,067 \pm 0,002$ eV ir $5,931 \pm 0,001$ eV atitinkamai $\mathbf{E} \parallel a$, $\mathbf{E} \parallel b$ ir $\mathbf{E} \parallel c$ poliarizacijoms. Naudojantis ε_{ib} funkcija (39) nustatyta draustinių



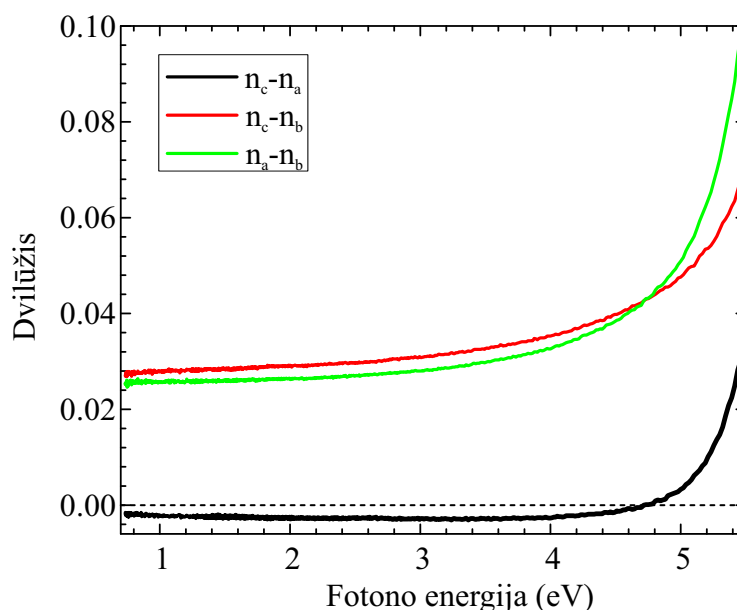
20 pav. Eksperimentiškai nustatyti LiGaO₂ lūžio rodiklių spektrai, išsilgai a , b ir c kristalografinių ašių, pateikti ištisinėmis linijomis. Palyginimui taškais žymimi literatūriniai duomenys Lenzo *et al.* [9] ir Miller *et al.* [10].

energijų tarpo anizotropija ir vertės $E_0 \sim 6,08$ eV, $6,12$ eV, $5,98$ eV atitinkamai $\mathbf{E}\parallel a$, $\mathbf{E}\parallel b$ ir $\mathbf{E}\parallel c$ poliarizacijoms. Gautos E_0 vertės šiek tiek didesnės nei literatūroje minimos ($5,3 - 5,8$ eV) [1, 11], būtent dėl įskaičiuotų eksitoninių šuolių. Tai rodo, optinis sugerties kraštas ličios galio okside, visų pirma, yra sąlygotas optinių šuolių į surištasias eksitonų būsenas, o ne tarpjuostinių optinių šuolių, kas buvo manyta iki šiol. Įvertinta eksitono ryšio energija E_{ex} yra apie 50 meV.

Optoelektronikoje dažniausiai naudojamos lūžio rodiklių vertės, matomoje spektro dalyje. Todėl iš eksperimentinių matavimų buvo suskaičiuotos ir ličio galio oksido lūžio rodiklių dispersijos. Eksperimentiniai elipsometriniai parametrai, skaidrioje srityje ($1 - 4$ eV) buvo aprašyti Cauchy funkcija, iš kurios tiesiogiai nustatome lūžio rodiklį:

$$n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4}, \quad (62)$$

kur A , B ir C varijuojami Cauchy parametrai, λ – bangos ilgis. Gautos parametų vertės A , $B(\mu\text{m}^2)$, $C(\mu\text{m}^4)=(1,74, 0,008, 0,00037)$, $(1,712, 0,0078, 0,00032)$ ir $(1,737, 0,008, 0,00038)$ atitinkamai $\mathbf{E}\parallel a$, $\mathbf{E}\parallel b$ ir $\mathbf{E}\parallel c$ poliarizacijoms. Lūžio rodiklių n_a , n_b ir n_c spektrai pateikti 20 paveiksle ištisinėmis linijomis. Taškais paveiksle palyginimui pateikti ir literatūriniai duomenys. Spektuose matome, kad visi trys lūžio rodikliai yra skirtingi, kas būdinga anizotropiniams kristalams. Matomos šviesos srityje, kur LiGaO₂ yra skaidrus, lūžio rodiklių vertės monotoniškai auga didėjant apšviečiančio fotono energijai. Mažiausios vertės yra n_b lūžio rodiklio, kuris yra išilgai b , kristalografinės krypties, turinčios didžiausią gardelės konstantą. Nustatytos lūžio rodiklių vertės yra $n_a = 1,761$, $n_b = 1,732$, $n_c = 1,759$, esant $\lambda = 632$ nm bangos ilgiui.

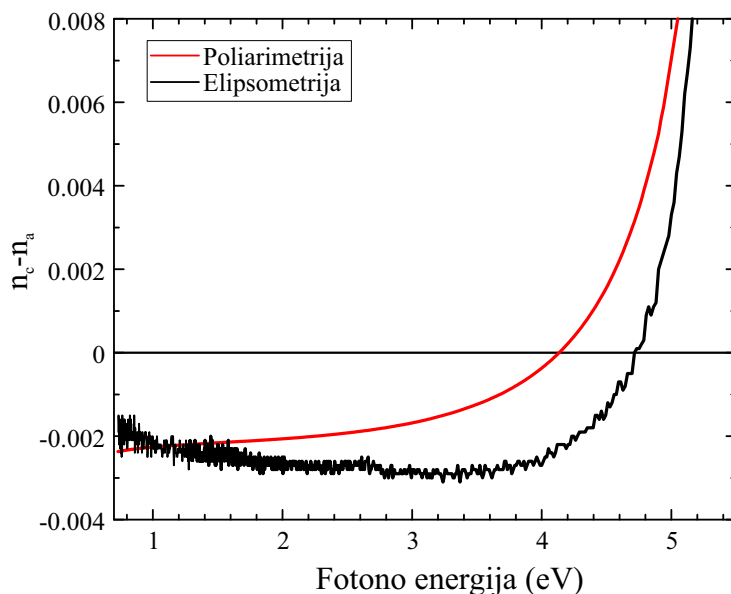


21 pav. LiGaO₂ dvilūžio dispersijos suskaičiuotos tiesiogiai iš spektroskopinės elipsometrijos matavimų *a*, *b* ir *c* kristalografinėmis kryptimis.

6.5 Dvilūžis

Tiesinėje optikoje dažniausiai naudojamos absoliutinės lūžio rodiklių vertės. Tačiau ne visada pakanka tikslumo, kuris dėl tam tikrų eksperimentinių matavimo specifikų, leidžia nustatyti vertes tūkstantosiomis skaičiaus dalimis. Todėl ne retai, o ypač netiesinėje optikoje, kur reikia didelio tikslumo, dažniausiai matuojamas dvilūžis (lūžio rodiklių skirtumas). Tiesioginis dvilūžio matavimas leidžia nustatyti lūžio rodiklių skirtumą 10^{-7} tikslumu. Šiame darbe dvilūžis buvo nustatytas dviem būdais. Pirmuoju atveju jis buvo apskaičiuotas tiesiogiai iš lūžio rodiklių, nustatytų naudojant optinį modelį. Antru atveju - išmatuotas tiesiogiai pralaidumo geometrijoje naudojant poliarimetrijos metodiką. LiGaO₂ dvilūžio spektrai, suskaičiuoti tiesiogiai iš spektroskopinės elipsometrijos matavimų, pateikti 21 paveiksle. Spektuose matyti, kad dvilūžis $n_a - n_c$ yra labai mažas, ko galima buvo ir tikėtis, nes gardelės konstatntos šiomis kryptimis yra labai artimos. Ties 632,8 nm $n_a - n_c = 0.003$, o ties 262 nm (4,72 eV) dvilūžis tampa lygus nuliui - iš dviašio kristalo LiGaO₂ tampa vienašiu. Tai matyti $n_a - n_b$ ir $n_c - n_b$ spektuose, kurie kertasi ties ta pačia fotono energija ir slenkantis į didesnių energijų sritį n_c lūžio rodiklis tampa didesnis už n_a .

Kadangi įvertinus ličio galio oksido linijinį dvilūžį buvo nustatyta, kad $n_a - n_c$ iš tiesų mažas (10^{-3} eilės), o norint patikslinti jo vertes buvo atlikti poliarimetrijos matavimai. Metodika leidžia tiesiogiai matuoti tik mažus medžiagos dvilūžius $10^{-3} - 10^{-7}$ intervale, todėl matavimai buvo atlikti tik *a-c* plokštumoje. Į bandinį liedžiant dvi, 50 kHz dažniu moduluotas ir viena kitai statmenas šviesos poliarizacijas, registruojame optinio atsako skirtumą dviem statmenomis kryptimis. Stebime atsiradusį fazių skirtumą tarp krintančios šviesos poliarizacijų, kas leidžia tiesiogiai nusatyti medžiagos dvilūžį (52). Išmatuotas $n_c - n_a$ spektras pateiktas 22 peveiksle raudona kreive. Palyginimui atidėtos ir

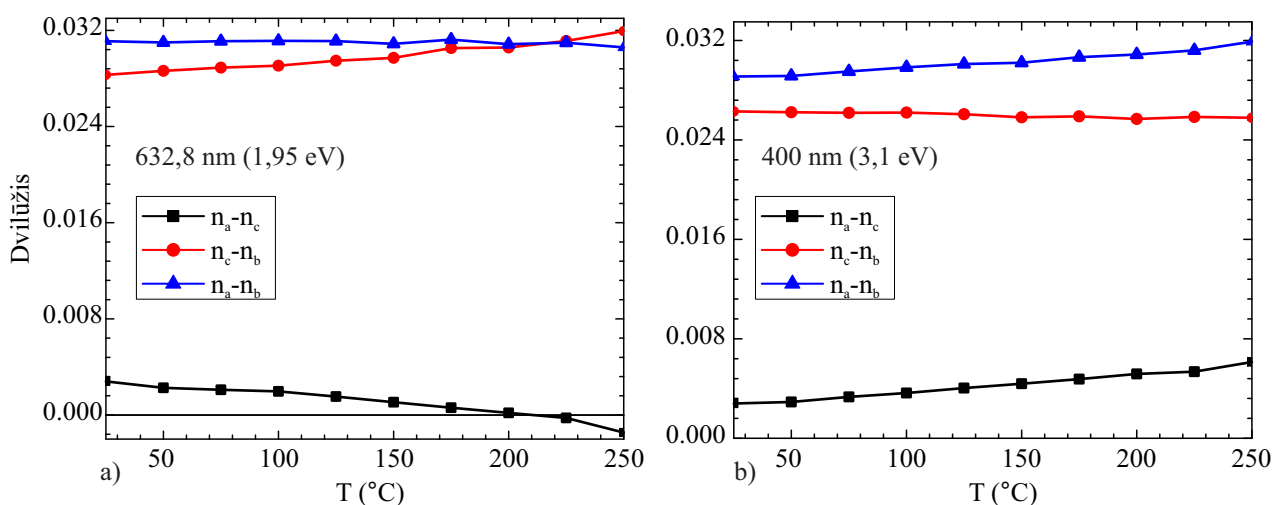


22 pav. LiGaO₂ dvilūžio $n_c - n_a$ dispersija. Juoda kreivė – dvilūžis suskaičiuotas tiesiogiai iš spektroskopinės elipsometrijos matavimų, raudona kreivė – tiesiogiai išmatuotas dvilūžis naudojant poliarimetrijos metodiką.

dvilūžio vertės nustatytos iš elipsometrijos matavimų – juoda kreivė. Metome, kad abi dvilūžio dispersijos turi panašią formą. Mažesnių energijų srityje artėja prie pastovaus dydžio, didesnių energijų srityje dvilūžis pradeda mažėti, pasiekia nulį, o artėjant prie optinės sugerties krašto staigiai auga. Tačiau dvilūžio dispersija $\sim 1,5 - 4$ eV spektrinėje srityje, gauta iš tiesioginių poliarimetrijos matavimų (raudona kreivė), mažėti pradeta šiek tiek anksčiau ir nulį kerta ties 4,13 eV, kai tuo tarpu juoda kreivė ties 4,72 eV. Dispersijų, išmatuotų skirtingais metodais, skirtumą gali lemti tam tikri optiniai efektai. Vienas iš tokių yra optinis aktyvumas, poliarizacinės plokštumos pasukimas. Poliarimetrija leidžia atsiriboti nuo tokių efektų ir matuoti dvilūžį tiesiogiai. Tuo tarpu, taikant optinį modelį, tokių efektų išskirti negalime.

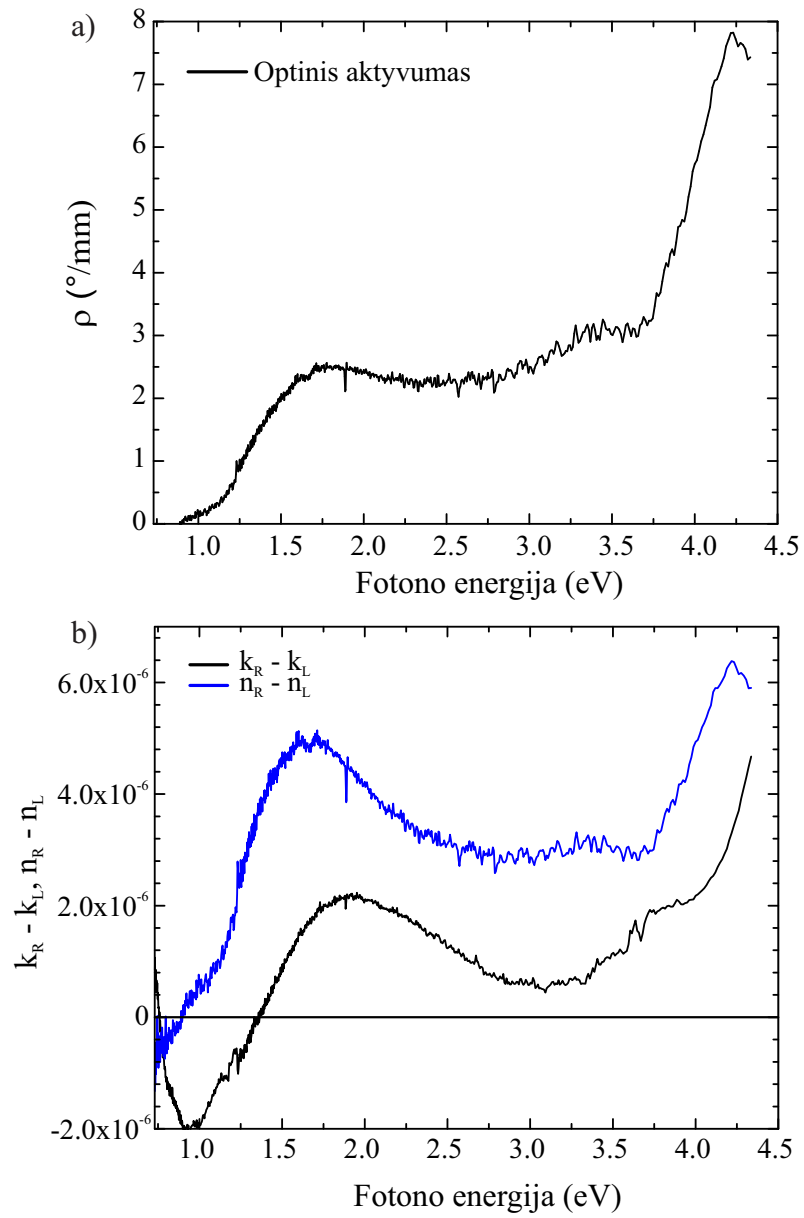
LiGaO₂ - netiesinis kristalas, todėl apšvietus didelio intensyvumo šviesa (pvz. lazerio spinduliuote), įmanoma antros harmonikos generacija. Pavyzdžiui mėlynos šviesos konvertavimas į UV spinduliuotę. Tokiu atveju svarbu įgyvendinti fazinio sinchronizavimo sąlygą. Netiesiniuose kristaluose, kuriuose lūžio rodiklis turi stiprią temperatūrinę priklausomybę, gali būti patenkinama temperatūrinė sinchronizavimo sąlyga. Šiame darbe buvo išmatuotos LiGaO₂ dvilūžio priklausomybės nuo temperatūros He-Ne (632 nm) ir GaN (400 nm) lazerių bangos ilgiuose. Matavimai atlikti 25 - 250 °C temperatūrų intervale. Priklausomybės pateiktos 23 paveiksle. 400 nm bangos ligyje, didinant kristalo temperatūrą, $n_a - n_b$ ir $n_a - n_c$ didėja, kai tuo tarpu, $n_c - n_b$ išlieka praktiškai pastovus. Tačiau 632,8 nm bangos ilgyje priklausomybės šiek tiek skiriasi, pastovus išlieka $n_a - n_b$ dvilūžis, $n_c - n_b$ didėja kylant temperatūrai, o $n_a - n_a$ mažėja ir galiausiai pasiekia 0. 632,8 nm bangos ilgyje maždaug ties 215 °C LiGaO₂ kristalas iš dviašio tampa vienašiu. Nustatyta dvilūžio temperatūrinė kitimo sparta, $k_{a,(632,8nm)} = 1,32 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, ir $k_{c,(400nm)} = 1,61 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$.

Kadangi deguonies atomai LiGaO₂ gardelėje užima dvi neekvivalenčias padėtis, tai tolimojoje



23 pav. LiGaO₂ dvilūžio priklausomybė nuo temperatūros a) 632,8 nm, b) 400 nm bangos ilgyje.

kristalo struktūroje deguonis sudaro chiralinės grandinės, susisukusias tam tikra kryptimi. Toks chiraliskumas ličio galio okside stebima *b* kryptimi. Vadinas optinis atsakas, leidžiant dvi priešingas apskritimines (dešininę ir kairinę) poliarizacijas šia kryptimi, bus nevienodas. Medžiagos lūžio rodikliai tokioms poliarizacijos skirtis $n_L \neq n_R$. Atlikus poliarimetrijos matavimus (detaliau 5.2.3 skyriuje) buvo įvertintas ir ličio galio oksido optinis aktyvumas, poliarizacinės plokštumos pasukimas ρ , *a-c* plokštumoje. Išmatuota dispersija pateikta 24 a). Poliarizacinės plokštumos pasukimas nuo 0 iki 8 °/mm didėja 1 – 4,2 eV spektrinėje srityje. Tačiau spektre matome ir keletą optinių ypatumų ties ~ 1,7 ir 4,2 eV, kurie sąlygoja optinio aktyvumo padidėjimą. 24 paveikslo b) dalyje pateikti cirkulinio dvilūžio $n_R - n_L$ (mėlyna kreivė) ir cirkulinio dichroizmo $k_R - k_L$ (juoda kreivė) spektrai *a-c* plokštumoje. Dispersijose taip pat matome optinius ypatumus ties tomis pačiomis fotono energijomis. Fotoliuminiscencijos matavimuose [31] buvo stebėta defektų emisija labai artimose energijose. Todėl manome, kad optinio aktyvumo padidėjimai, galėtų būti įtakoti atsiradusių deguonies vakancijų, kurios šiek tiek suardo chiralinę struktūrą ir skirtingai reaguoja į kairinę ir dešininę šviesos poliarizacijas.



24 pav. a) Ličio galio oksido optinio aktyvumo (polarizacinės plokštumos pasukimo) spektras a - c plokštumoje
 b) LiGaO_2 cirkulio dvilūžio $n_R - n_L$ ir cirkulinio dichroizmo $k_R - k_L$ spektrai a - c plokštumoje.

Pagrindiniai rezultatai ir išvados

- Nustatyti optinių fononų ypatumai Γ taške.
- Sugerties kraštą LiGaO_2 , visų pirma, sąlygoja optiniai šuoliai į surišąsias eksitonines būsenas.
- Nustatyta draustinių energijų tarpo anizotropija, $E_0 = 6,08$ eV, $6,12$ eV ir $5,98$ eV, atitinkamai $E\|a$, $E\|b$ ir $E\|c$.
- Įsisavinta poliarimetrijos metodika, leidžianti matuoti itin mažas dvilūžio ir dichroizmo vertes.

Rezultatų sklaida

- Rezultatai pristatyti 7-oje tarptautinėje spektroskopinės elipsometrijos konferencijoje (ICSE 7), Optical properties of lithium gallium oxide, S. Tumėnas, P. Mackonis, R. Nedzinskas, L. Trinkler, B. Berzina, L. Chang, M. M. Chou, (Berlin, 2016 06 6-10) Conference Program and Abstracts, p. 271.
- Rezultatai publikuoti Applied Surface Science žurnale, S. Tumėnas, P. Mackonis, R. Nedzinskas, L. Trinkler, B. Berzina, V. Korsaks, L. Chang, M. M. Chou, Optical properties of lithium gallium oxide, App. Surf. Sci., (2017), DOI:10.1016/j.apsusc.2017.01.098.

Literatūros sąrašas

- [1] C. Chen, C.-A. Li, S.-H. Yu, M. M. Chou, Growth and characterization of β -LiGaO₂ single crystal, *J. Cryst. Growth* **402**, 325–329 (2014).
- [2] J. P. Remeika, A. A. Ballman, Flux growth, czochlaski growth, and hydrothermal synthesis of lithium metagallate single crystals, *Appl. Phys. Lett.* **17**, 180–181 (1964).
- [3] M. Marezio, The crystal structure of LiGaO₂, *Acta Cryst.* **18**, 481–484 (1965).
- [4] J. T. Wolan, G. B. Hoflund, Chemical alteration of the oxide layer on LiGaO₂(001) by exposure to hyperthermal atomic hydrogen, *J. Vac. Sci. Technol. A* **16**, 3414–3419 (1998).
- [5] T. Huang, S. Zhou, H. Teng, H. Lin, J. Wang, P. Han, R. Zhang, Growth and characterization of ZnO films on (001), (100) and (010) LiGaO₂ substrates, *J. Cryst. Growth* **310**, 3144–3148 (2008).
- [6] S. Seo, K. Lee, S. Kang, S. Huang, W. Doolittle, N. Jokerst, A. Brown, GaN metal-semiconductor-metal photodetectors grown on lithium gallate substrates by molecular-beam epitaxy, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1372–1374 (2001).
- [7] M. Chou, C. Chen, D. Hang, W. Yang, Growth of nonpolar m-plane GaN epitaxial films on lattice-matched (100) β -LiGaO₂ substrate by chemical vapor deposition, *Thin Solid Films* **519**, 5066–5069 (2010).
- [8] S. N. Rashkeev, S. Limpijumnong, W. R. L. Lambrecht, Theoretical evaluation of LiGaO₂ for frequency upconversion to ultraviolet, *Opt. Soc. Am* **16**, 2217–2222 (1999).
- [9] P. V. Lenzo, E. G. Spencer, J. P. Remeika, Some optical properties of lithium gallium oxide, *Appl. Opt* **4**, 1036–1037 (1965).
- [10] R. Miller, W. Nordland, E. Kolb, W. Bond, Nonlinear optical properties of lithium gallium oxide, *J. Appl. Phys* **41**(7), 3008–3011 (1970).
- [11] N. W. Johnson, J. A. McLeod, A. Moewes, The electronic structure of lithium matagallate, *Condens Matter* **23**, 1–6 (2011).
- [12] H. Keibelka, H. Kuzmany, P. Krempf, Raman scattering of LiGaO₂, *Solid State Commun.* **27**, 1159–1162 (1978).
- [13] P. Knoll, H. Kuzmany, Nonlinear-optical properties and signs of the Raman tensor for LiGaO₂, *Phys. Rev. B* **29**, 2221–2226 (1984).
- [14] A. Boonchun, W. R. L. Lambrecht, First-principles study of the elasticity, piezoelectricity, and vibrational modes in LiGaO₂ compared with ZnO and GaN, *Phys. Rev* **81**, 1–12 (2010).

- [15] D. Cheng, *Field and Wave Electromagnetics* (Addison-Wesley, Mass, 1989), 2 edition.
- [16] J.D.Jackson, *Classical Electrodynamics* (Willey, New York, 1998), 3 edition.
- [17] R. Jones, A new calculus for the treatment of optical systems: I. description and discussion of the calculus, *J. Opt. Soc. Am.* **31**, 488–493 (1941).
- [18] D. Goldstein, *Polarized Light* (CRC Press, Florida, 2010), 3 edition.
- [19] H. Yoshikawa, S. Adachi, Optical constants of ZnO, *Jpn. J. Appl. Phys* **36**, 6237–6243 (1997).
- [20] H. Fujiwara, *Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications* (Wiley, England, 2007).
- [21] H. G. Tompkins, W. A. McGaha, *Spectroscopic Ellipsometry and Reflectometry* (John Wiley and Sons, New York, 1999).
- [22] T. C. Oakberg, Measurement of low-level strain birefringence in optical elements using a photo-elastic modulator, *SPIE Proceedings* **2873**, 17–20 (1996).
- [23] J. C. Kemp, *Polarized Light and Its Interaction With Modulation Devices* (HINDS International, Hillsboro, 1987).
- [24] J. T. Wolan, G. B. Honflund, Chemical alteration of the native oxide layer on LiGaO₂ (001) by exposure to hyperthermal atomic hydrogen, *J. Vac. Sci. Technol. A* **16**, 3414–3419 (1998).
- [25] L. L. Boyer, J. A. Harrington, M. Hass, H. B. Rosenstock, Multiphonon absorption in ionic crystals, *Phys. Rev* **11**, 1665–1680 (1975).
- [26] B. Bendow, C.-S. Ting, Theory of multiphonon absorption in crystals: The wings of internal vibrational modes of molecular impurities, *Phys. Rev* **12**, 695–705 (1975).
- [27] S. Tumenas, I. Kašalynas, V. Karpus, H. Arwin, Infrared reflectance kramers-kroning analysis by anchor-window technique, *Acta. Phys. Pol. A* **119**, 140–142 (2011).
- [28] R. M. A. Azzam, N. M. Bashara, *Ellipsometry and polarized light* (North-Holland, Amsterdam, 1987).
- [29] H. Fujiwara, *Spectroscopic Ellipsometry: Principles and Applications* (Wiley, 2007), 215 – 217.
- [30] G. Jellison, Data analysis for spectroscopic ellipsometry, *Thin Solid Films* **234**, 416–422 (1993).
- [31] L. Trinkler, A. Trukhin, B. Berzina, V. Korsaks, P. Ščajev, R. Nedzinskas, S. Tumenas, M. Chou, L. Chang, C.-A. Li, Luminescence properties of LiGaO₂ crystal, *Opt. Mater.* 1–11 (2016).

Santrauka

OPTINĖS LIČIO GALIO OKSIDO SAVYBĖS

Paulius Mackonis

Ličio galio oksidas, tai skaidrus ir bespalvis, platų draustinių energijų tarpą turintis kristalas. Šiandieniniame moksle susidomėjimo sulaukia kaip mažiausią gardelės nesuderinamumą turintis padėklas GaN, InN ir ZnO heteropitaksiniam sluoksniams auginti. LiGaO₂ yra ortorombinės struktūros kristalas, turintis anisotropinės optinės savybes, kurios priklauso nuo kristalografinės kristalo krypties. Šio darbo tikslas buvo kombinuojant įvairias optines tyrimo metodikas iširti LiGaO₂ optinį atsaką plačioje spektrinėje srityje.

Didelis ličio metagalato monokristalas buvo užaugintas Czochralsk'io metodu. Kristalinė ir paviršiaus morfologija iširta daudojant Rentgeno spindulių difrakciją (XRD) ir atominių jėgų mikroskopiją (AFM). Iš monokristalo išpjautos trys bandinių serijos, lygiagriačiai paviršiui atveriant tris pagrindines kristalografinės plokštumas. Optiniai tyrimai atlikti poliarizuotoje šviesoje skirtingomis kristalografinės kryptimis. Pralaidumo spektrai parodė, kad LiGaO₂ yra skaidrus 0,2 – 5 eV spektrinėje srityje. Mažų energijų srityje stebima optinių fononų sąlygota sugertis, o didesnių energijų srityje sugertį sąlygoja tiesiatarpiai tarpjuostiniai optiniai šuoliai. FIR spektrinėje srityje dielektrinė ličio galio oksido funkcija nustatyta naudojant poliarizuoto pralaidumo/atspindžio ir spektroskopinės elipsometrijos metodikas. Nustatyti optinių fononų skersiniai, išilginiai dažniai ir išplitimo parametras. Matomos – ultravioletinės sferkto srities dielektrinė funkcija parodė sugerties krašto anizotropiją, o ji, visų pirma sąlygoja, tarpjuostiniai eksitoniniai šuoliai. Įvertintas draustinių energijų tarpas $E_0 = 6,08$ eV, 6,12 eV ir 5,98 eV, atitinkamai $E||a$, $E||b$ ir $E||c$ poliarizacijoms. Iš ekperimentinių elipsometrijos matavimų nustatytos visos trys pagrindinės ličio galio oksido lūžio rodiklių ir dvilūžių dispersijos plačioje spektrinėje srityje.

Summary

OPTICAL PROPERTIES OF LITHIUM GALLIUM OXIDE

Paulius Mackonis

Lithium gallium oxide (LiGaO_2) is transparent and colorless wide-bandgap crystal. In modern science has attracted great interest due to the fact that is the most closely lattice-matched substrate for ZnO and GaN, InN semiconductors growing. LiGaO_2 is orthorhombic crystal that has anisotropic optical properties, which depends on the direction of propagation of the light. The objective of this research was using a combination of various optical techniques to determine lithium gallium oxide optical properties in wide spectral range.

Substrates of LiGaO_2 was grown using the Czochralski pulling method. The crystallinity and surface morphology of substrates were studied by X-ray diffraction (XRD) and atomic force microscopy (AFM). Three different substrates were oriented to all main crystallographic planes. Optical measurements were carried out in different crystallographic directions at linear polarized light. Measured transmittance spectra showed that LiGaO_2 is transparent from 0.2 to 5 eV in all three directions. At high-frequency range transmittance falls because of phonon and multi-phonon absorption, and at low-frequency range absorption leads to direct interband optical transitions. In FIR spectral range dielectric function was determined from the experimental polarized transmittance/reflectance, spectroscopic ellipsometry spectra analysis. The parameters of optical phonons, high-frequency and low-frequency dielectric constants were deduced. The VIS-UV dielectric function showed that the LiGaO_2 has absorption edge anisotropy and starts with excitonic transitions. The energy band gap E_0 was estimated to be 6,08 eV, 6,12 eV and 5,98 eV, for $E\parallel a$, $E\parallel b$ or $E\parallel c$ polarizations, respectively. Using spectroscopic ellipsometry technique all three refractive indices and birefringences of LiGaO_2 was determined in wide spectral range.

MACKONIS, Paulius. *Optinės ličio galio oksido savybės*: Optoelektronikos medžiagos ir technologijos magistrantūros studijų baigiamasis darbas. Darbo vadovas dr. Saulius Tumėnas. Vilnius: Vilniaus universitetas Fizikos fakultetas, 2017, 45 p.

Darbe tirtos LiGaO_2 monokristalo optinės savybės. Tyrimams naudotos poliarizuoto pralaidumo/atspindžio, spektroskopinės elipsometrijos, poliarimetrijos metodikos. Nustatyti optinių fononų ypatumai Γ taške. Atskleista, kad optinį ličio galio oksido sugerties kraštą, visų pirma, sąlygoja optiniai šuoliai į surištasias eksitonines būsenas. Nustatyta draustinių energijų tarpo anizotropija ir jo vertės pagrindinėmis kristalografinėmis kryptimis.