

Vilniaus universitetas  
Fizikos fakultetas  
Puslaidininkų fizikos katedra

Donatas Dargis

NEPUSIAUSVIRŪJŲ KRŪVININKŲ DINAMIKA InGaN ŠVIESTUKŲ AKTYVIOJOJE  
SRITYJE SU NETOLYGIAUS PLOČIO KVANTINĖMIS DUOBĖMIS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas  
(Studijų programa - Optoelektronikos medžiagos ir technologijos)

Studentas  
Darbo vadovas  
Recenzentas  
Katedros vedėjas

D. Dargis  
dr. S. Nargelas  
dr. J. Mickevičius  
prof. habil. dr. G. Tamulaitis

Vilnius 2016

## Turinys

1. Įvadas .....	3
2. Literatūros apžvalga .....	5
2.1. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika.....	5
2.2. GaN ir InGaN junginiai .....	8
2.3. Aktyviosios srities auginimo temperatūros įtaka.....	9
2.4. Tiriamų bandinių apžvalga .....	11
3. Krūvininkų dinamikos tyrimų metodikos .....	14
3.1. Skirtuminio pralaidumo metodika .....	14
3.2. Dinaminių difracinių gardelių metodika.....	15
3.1. Laike integruota fotoluminescencija.....	19
3.2. Laikinės skyros fotoluminescencija.....	19
4. Rezultatai.....	21
4.1. Bandiniai .....	21
4.2. Pagrindiniai rezultatai ir jų aptarimas .....	22
Išvados.....	38
Literatūra .....	39
Santrauka .....	42
Summary.....	43

## 1. Įvadas

Per pastarąjį dešimtmetį pagerėjusios InGaN šviesą skleidžiančių diodų (LED) charakteristikos leido šviestukams skverbtis į lauko ir vidaus apšvietimo rinkas. Šviestukų privalumai: ekonomiškumas ir ilgaamžiškumas. Teoriškai, keičiant tokiose medžiagose In ir Ga santykį, galima išgauti iš šviestukų visą matomos šviesos spektrą, bei artimąjį ultravioletinę spinduliuotę. Deja, kyla nemažai problemų auginant kristalus ant padėklų su skirtinga gardelės konstanta. Siekiant padidinti InGaN šviestukų vidinį kvantinį našumą, reikalingas aktyviosios srities auginimo optimizavimas, kurio tikslas - padidinti spindulinės rekombinacijos tikimybę kvantiniame šulinyje ir sumažinti nespindulinės rekombinacijos indėlį, lokalizuojant elektriškai injektuotus ar optiškai generuotus krūvininkus kvantiniuose šuliniuose. Pagrindinis sunkumas auginant InGaN/GaN heterosandaras – tai lokalizaciją lemiančio In įterpimas. Indžio pasiskirstymas aktyviojoje srityje, tuo pačiu ir optinės savybės, labai priklauso nuo auginimo temperatūros [1].

Siekiant geriau suprasti InGaN/GaN kvantinėse struktūrose vykstančius procesus, šiame darbe fotoluminescencijos ir krūvininkų dinamikos ypatumai tiriama keturių InGaN/GaN sandarų rinkinyje, kuris buvo tirtas ankstesniuose darbuose [2], [3]. Dviejų bandinių kvantinių struktūrų barjerai buvo užauginti žemesnėje temperatūroje nei optimali ir dviejuose bandiniuose padidinta indžio kiekio fliktuacija dėl staigaus temperatūros pakėlimo barjero auginimo metu. Skirtingos auginimo sąlygos pasirinktos tam, kad atskirti dviejų efektų įtaką [2]: defektų koncentraciją barjeruose ir indžio koncentracijos fliktuaciją kvantinėse duobėse. Skirtingi barjero auginimo režimai lėmė netolygaus storio kvantinių duobių susidarymą, kuriose buvo matomi ir GaN intarpai. Struktūriniai skirtumai įtakoja ir optines savybes: atlikti elektroluminescencijos ir fotoluminescencijos tyrimai parodė, kad sandarose su blogesne kvantinių duobių struktūra emisijos efektyvumas nuostovaus optinio žadinimo bei elektrinės injekcijos sąlygomis buvo daugiau nei du kartus didesnis lyginant su standartiškai užaugintomis sandaromis. Gilesniam supratimui apie aktyviojoje srityje vykstančius procesus reikalinga plačiau patyrinėti nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką: krūvininkų rekombinacijos trukmės, krūvininkų difuziją, aktyvacijos energijas.

Puslaidininkinių medžiagų fotoelektriniams parametrų tirti dažnai naudojami netiesiniai optiniai reiškiniai, tokie kaip optinio sužadinimo sukelti sugerties pokyčiai, liuminescencija, difrakcija. Šių metodikų pranašumas tas, kad norint nustatyti elektrines ir optines puslaidininkio charakteristikas, tokias kaip nepusiausvirųjų krūvininkų gyvavimo trukmė ar difuzijos koeficiento vertė, nereikia kontaktų, neardoma tiriamoji medžiaga.

Šiuo darbu siekiama optiniais tyrimų metodais iširti optiškai sužadintų nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką InGaN šviestukų aktyviojoje srityje ir įvertinti, kokią įtaką aktyviosios srities

optinēms ir fotoelektrinēms savybēms daro tehnologiniai parametrai: GaN barjero auginimo temperatūra, temperatūrinis auginimo režimas, In koncentracijos fliktuacijas kvantinėje duobėje.

## 2. Literatūros apžvalga

### 2.1. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika

Jeigu krūvininkų tankis  $n$  yra nepusiausvirasis (nelygus pusiausvyrajam  $n_0$ ), turime perteklinius krūvininkus, kurių tankis yra:

$$\Delta n = n - n_0 \quad (1)$$

Perteklinių krūvininkų sukūrimas vadinamas generacija, o anhiliavimas – rekombinacija. Į krūvininkų tolydumo lygtį įvedame generacijos ir rekombinacijos spartos narius  $G$  ir  $R$ . Tada nepusiausvirųjų krūvininkų tankio lygtis bus tokia:

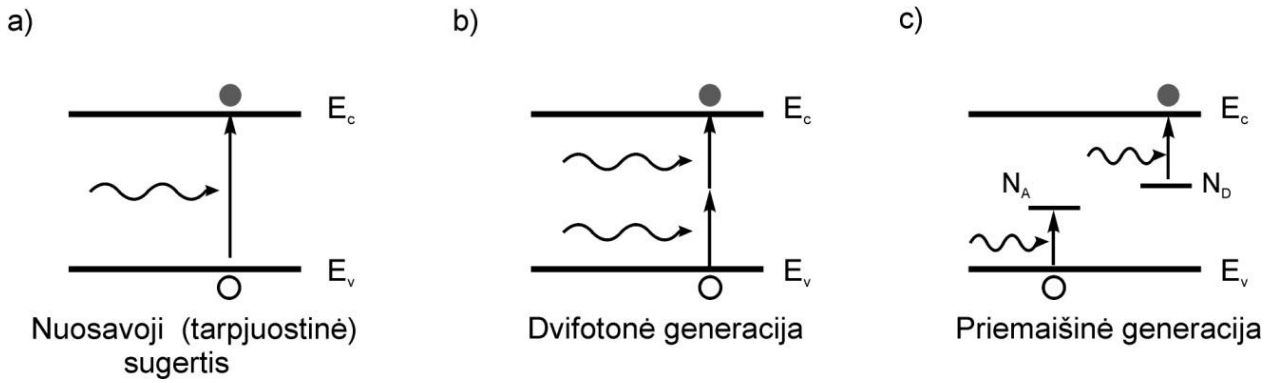
$$\frac{\partial n}{\partial t} = G - \frac{1}{e} \operatorname{div} \mathbf{j} - R \quad (2)$$

Krūvininkai puslaidininkyje gali būti sužadinti dėl šiluminių, elektrinių ir optinių reiškinių, o generacijos sparta priklauso nuo žadinimo būdo. Tirtu metodu krūvininkus generuojame lazeriu, todėl daugiausia krūvininkų sugeneruojama optiniu žadinimu. Nepusiausvirieji krūvininkai puslaidininkinėje medžiagoje optiškai generuojami, kai sąveikaujant puslaidininkinei medžiagai su šviesos kvantu, generuojami krūvininkai – elektronų ir skylių poros. Tačiau galimi skirtingi nepusiausvirųjų krūvininkų generacijos šviesa mechanizmai puslaidininkyje.

Jeigu šviesos kvanto energija yra didesnė už draustinės juostos plotį ( $h\nu > E_g$ ), tada vyksta tarpjuostinė sugertis ir elektronas „peršoka“ iš valentinės juostos į laidumo.

Jei fotono energija yra mažesnė už  $E_g$ , bet yra lygi arba didesnė už  $E_g/2$ , gali prasidėti dvifotonė sugertis. Jos metu sugeriami du šviesos kvantai, kad sukurtų elektrono – skylės porą. Šis procesas labai priklauso nuo šviesos intensyvumo.

Nepusiausvirieji krūvininkai taip pat gali būti generuojami per priemaišinius arba defektinius lygmenis. Ši generacija daugiapakopinė: vienas fotonas jonizuoja arba užpildo priemaišinį lygmenį, o kitas „permeta“ elektroną (skylę) į laidumo (valentinę) juostą.



**1 pav.** Nepusiausvirujų krūvininkų generacijos šviesa mechanizmai puslaidininkyje.

Nepusiausvirujų krūvininkų rekombinacija yra atvirkščias procesas generacijai: jos metu išnyksta elektronų – skylių poros. Pagrindiniai tarpjuostinės rekombinacijos mechanizmai: tarpjuostinė (spindulinė) rekombinacija, krūvininkų rekombinacija per defektinius arba priemaišinius lygmenis ir Ožė rekombinacija [4].

Tarpjuostinės rekombinacijos metu išnyksta elektrono – skylės pora ir yra išspinduliuojamas fotonas, kurio energija lygi laisvųjų krūvininkų energijų sumai. Tarpjuostinės rekombinacijos sparta tiesiogiai priklauso nuo laisvųjų elektronų ir skylių tankio:

$$R = Bnp \quad (3)$$

Čia  $B$  – bimolekulinės rekombinacijos koeficientas,  $n$  – elektronų tankis,  $p$  – skylių tankis.

Rekombinacija per defektinius lygmenis dar kitaip vadinama Šoklio – Rydo – Holo (SRH). Rekombinacija vyksta per priemaišinius arba defektinius lygmenis. Pirmiausia laisvasis krūvininkas užima defektinį lygmenį, vėliau šis lygmuo pagauna priešingo ženklo krūvininką. Taigi, šio proceso metu išnyksta elektrono – skylės pora.

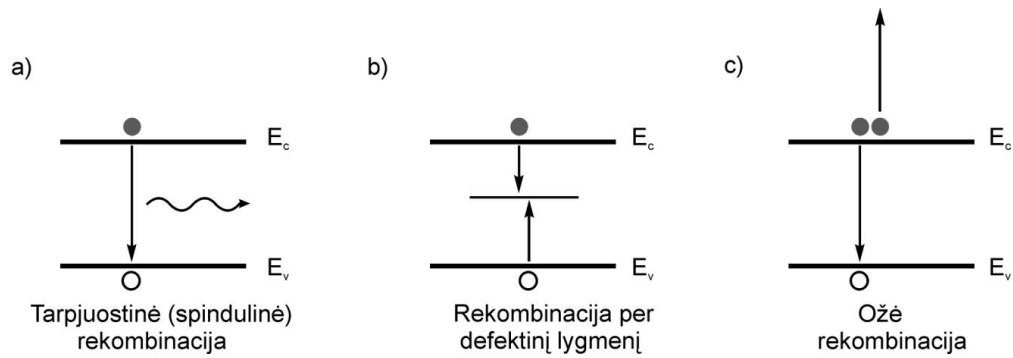
$$R_{SRH} = \frac{pn - n_i^2}{p + n + 2n_i^2 \cosh\left(\frac{E_T - E_F}{k_B T}\right)} N_T v_{th} \sigma \quad (4)$$

Čia  $E_T$  ir  $E_F$  defekto ir Fermi lygmenų energijos,  $v_{th}$  – šiluminio judėjimo greitis,  $\sigma$  – krūvininkų pagavimo į defektą skerspjūvis,  $N_T$  – aktyvių defektų tankis.

Ožė rekombinacija – tai procesas, panašus į tarpjuostinę rekombinaciją, tačiau išnykus elektrono – skylės porai, energijos perteklius perduodamas trečiam krūvininkui. Ožė rekombinacijos sparta proporcinga nepusiausvirujų krūvininkų tankiui:

$$R_{Ožė} = C_1 n^2 p + C_2 p^2 n \quad (5)$$

Čia  $C_1$  ir  $C_2$  yra Ožė koeficientai elektronams ir skylėms.



**2 pav.** Nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos mechanizmai puslaidininkyje.

Bendra rekombinacijos sparta aprašoma modeliu:

$$R = A\Delta n + B(\Delta n)^2 + C(\Delta n)^3 \quad (6)$$

$A$  – Šoklio – Rydo – Holo koeficientas,  $B$  – bimolekulinės rekombinacijos koeficientas,  $C$  – Ožė koeficientas,  $\Delta n$  - nepusiausvirųjų krūvininkų tankis.

Labai svarbus parametras nagrinėjant nepusiausvirųjų krūvininkų pernašą yra difuzijos koeficientas  $D$ . Difuzija atsiranda, kai nehomogeniškai pasiskirsto nepusiausvirieji krūvininkai, todėl susikuria krūvininkų koncentracijos gradientas. Difuzijos koeficientą ir krūvininkų judrį sieja Einšteino sąryšis:

$$D = \frac{k_B T}{e} \mu \quad (7)$$

Čia  $T$  – temperatūra,  $e$  – elektrono krūvis,  $\mu$  – krūvininkų judris. Judris yra lygus:

$$\mu = \frac{e}{m^*} \langle \tau \rangle \quad (8)$$

Čia  $m^*$  - elektrono arba skylės efektinė masė,  $\langle \tau \rangle$  vidutinė nepusiausvirųjų krūvininkų judesio momento relaksacijos trukmė. Šis dydis priklauso nuo sklaidos mechanizmų. Pagrindiniai sklaidos būdai: sklaida fononais, sklaida krūvininkais, sklaida priemaišomis ir defektais.

Kadangi generuojant šviesa susidaro abiejų ženklų nepusiausvirieji krūvininkai, vyksta ambipolinė difuzija. Ambipolinis difuzijos koeficientas  $D_a$  yra sąlygojamas vidinio elektrinio lauko tarp elektronų ir skylių.

$$D_a = \frac{n_0 + \Delta N_n + p_0 + \Delta N_p}{\frac{(n_0 + \Delta N_n)}{D_p} + \frac{(p_0 + \Delta N_p)}{D_n}} \quad (9)$$

Čia  $n_0$  ir  $p_0$  pusiausvirųjų krūvininkų tankiai,  $\Delta N_n$  ir  $\Delta N_p$  nepusiausvirųjų krūvininkų tankiai,  $D_n$  ir  $D_p$  elektronų ir skylių difuzija.

Tuo atveju  $n_o$  ir  $p_o$  daug mažesni už  $\Delta N_n$  ir  $\Delta N_p$ , o  $\Delta N_n = \Delta N_p$ , galima parašyti:

$$D_a = \frac{2D_n D_p}{(D_n + D_p)} \quad (10)$$

Daugelyje puslaidininkių galioja nelygybė  $D_n \gg D_p$ , nes skylių efektinė masė daug didesnė už elektronų, todėl  $D_a \approx 2D_p$ . Žemų sužadinių atveju ( $\Delta N_0 < p_0, n_0$ )  $D_a \approx D_n$  p-tipe ir  $D_a \approx D_p$  n-tipe.

$L_D$ , kuris apibūdina vidutinį atstumą, kurį nukeliauja nepusiausvirieji krūvininkai prieš jiems rekombinuojant ir nesant išoriniam elektriniam laukui.

$$L = \sqrt{D\tau_R} \quad (11)$$

Čia  $\tau_R$  krūvininkų gyvavimo trukmė.

Atsižvelgiant į difuziją, gauname nepusiausvirųjų krūvininkų tankio dinamikos tolydumo lygtį:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = G + D\nabla^2 n - A\Delta n - B(\Delta n)^2 - C(\Delta n)^3 \quad (12)$$

Puslaidininkinės medžiagos paviršius sutrikdo kristalinės gardelės periodiškumą, kas sąlygoja leistinų būsenų atsiradimą draustinių energijų tarpe. Paviršiaus absorbuoti priemaišiniai atomai ir molekulės taip pat gali sukurti leistinas būsenas. Būsenų atsiradimas sąlygoja nespindulinės rekombinacijos suaktyvėjimą. Rekombinacijos sparta ties paviršiumi proporcinga nepusiausvirųjų krūvininkų tankiui. Proporcingumo koeficientas vadinamas paviršinės rekombinacijos greičiu. Sulyginus rekombinacijos spartą ir krūvininkų difuzijos spartą link paviršiaus, gauname kraštines sąlygas krūvininkų difuzijos lygčiai (13).

$$D \frac{\partial n}{\partial z} = -Sn \quad (13)$$

Čia  $S$  – paviršinės rekombinacijos greitis,  $D$  – ambipolinis difuzijos koeficientas.

## 2.2. GaN ir InGaN junginiai

GaN yra binarinis junginys, sudarytas iš III/V grupių elementų. Tai tiesiatarpė puslaidininkinė medžiaga, paprastai naudojama šviestukams. GaN yra labai kieta medžiaga, turinti žėručio struktūrą (angl. Wurtzite). Draustinių energijų tarpas yra 3,4 eV, todėl jis labai tinkamas



optoelektronikai, didelių galių ir dažnių prietaisams [4, 5]. Tačiau žėručio gardele turinčiose medžiagose (InN, GaN ir AlN) dėl vienu atomų judėjimo kitų atžvilgiu, kristalas gali savaime poliarizuotis. Be to, tokiose medžiagose poliarizacija ir vidiniai laukai gali atsirasti ir dėl įtempimų, heterosandūrą sudarančių sluoksnių riboje [7].

Dėl didelio dislokacijų tankio ( $10^8 - 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ) InGaN ilgai nebuvo laikoma perspektyvia medžiaga. Proveržis įvyko, kai Shuji Nakamura pasiūlė prieš auginant GaN ir InGaN epitaksinius sluoksnius ant padėklo žemesnėje temperatūroje užauginti GaN ar AlN buferinius sluoksnius [8].

Svarbiausia nitridų technologijos problema yra tinkamų padėklų nebuvimas. Paprastai nitridai yra auginami ant safyro ar SiC padėklų pirma nusodinant GaN buferinį sluoksnį. Be to, lydiniams, kurių sudėtyje yra In, būdingas segregacijos reiškinys – indis yra linkęs lydinyje sudaryti klasterius.

Siekiant išvengti nespindulinės rekombinacijos nuostolių dėl didelio defektų skaičiaus, naudojami šviestukai su kvantinėmis sandaromis. Erdvinėse kristalo vietose, kuriuose In kiekis yra didesnis, draustinis juostos tarpas  $E_g$  yra mažesnis, todėl susikuria potencinės duobės sritys, kuriose kaupiasi krūvininkai taip didindami spindulinės rekombinacijos efektyvumą.

### 2.3. Aktyviosios srities auginimo temperatūros įtaka

Siekiant padidinti mėlynų ir žalių InGaN šviestukų vidinį kvantinį našumą, reikalingas aktyviosios srities auginimo optimizavimas, kurio tikslas - padidinti spindulinę rekombinacijos tikimybę kvantiniame šulinyje ir sumažinti nespindulinės rekombinacijos indėlį, lokalizuojant elektriškai injektuotus ar optiškai generuotus krūvininkus kvantiniuose šuliniuose. Pagrindinis sunkumas auginant InGaN/GaN heterosandaras – tai lokalizaciją lemiančio In įterpimas. Indžio pasiskirstymas aktyviojoje srityje, tuo pačiu ir optinės savybės, labai priklauso nuo auginimo temperatūros [1]. Optimali temperatūra InGaN sluoksnio auginimui ( $\sim 760^\circ\text{C}$ ) yra žemesnė nei GaN barjero ( $\sim 890^\circ\text{C}$ ), todėl barjerinio sluoksnio auginimo sąlygos turi stiprų poveikį heterosandūros optinėms savybėms [9]. Auginant GaN barjerą tokioje pat temperatūroje, kaip ir InGaN, kenčia kvantinės sandaros kokybė, nes padidėja struktūros defektų koncentracija (TD - threading dislocations) barjere bei šulinyje. Taigi, siekiant geresnės barjerinio sluoksnio kokybės, reikia auginti jį optimalioje (aukštesnėje) temperatūroje.

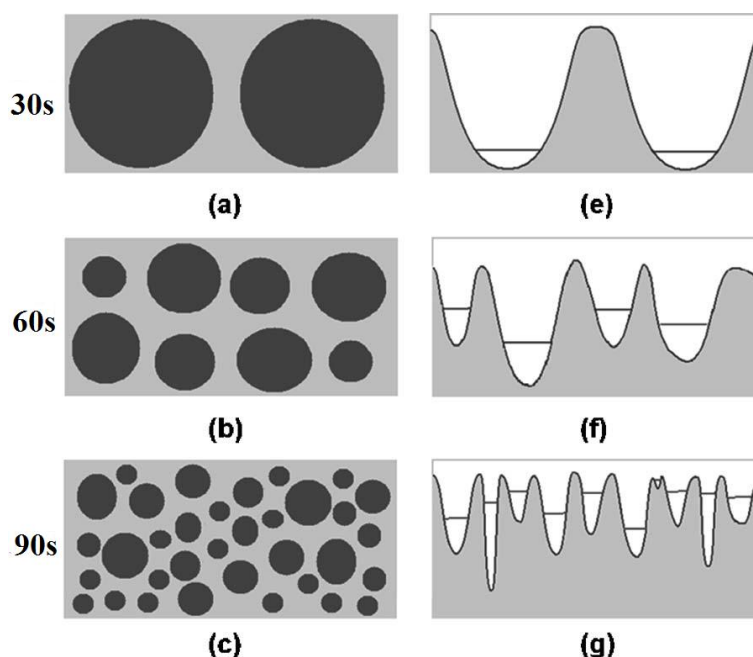
Siekiant optimizuoti InGaN ir GaN sluoksnių auginimo temperatūras, atlikta daugybė tyrimų [1-2, 9-11]. Buvo tiriama, kaip priklauso heterosandūros optinės savybės keičiant GaN auginimo temperatūrą nuo 740 K (InGaN auginimo temperatūra) iki 892 K [9]. Didėjant barjero auginimo temperatūrai stebimas PL spektro smailės slinkimas į trumpesnių bangų pusę. Šis slinkimas aiškinamas In koncentracijos sumažėjimu dėl indžio desorbcijos iš kvantinės duobės. Pastebėtas indžio frakcijos sumažėjimas nuo 10% iki 7% didėjant auginimo temperatūrai. Didėja ir

liuminescencijos intensyvumas, nes barjerinio GaN sluoksnio auginimo metu susidaro mažiau defektų, užauginama kokybiškesnė aktyvioji sritis. Taip pat stebėtas PL spektro platėjimas, kuris paaiškinamas didesnėmis indžio koncentracijos fliuktuacijomis.

Taigi norint padidinti emisijos iš InGaN sluoksnio efektyvumą, reikia barjerą auginti aukštesnėje temperatūroje nei InGaN kvantinę duobę. Tačiau temperatūros šuolio metu vyksta In desorbcija iš kvantinės duobės. Šio efekto galima išvengti, užauginant ploną, kelių nanometrų storio, buferinį GaN sluoksnį InGaN auginimo temperatūroje, o po to, pakėlus temperatūrą, pabaigti auginti barjerinį sluoksnį [1]. Buvo tiriama, kaip priklauso heterosandūros optinės savybės nuo plono GaN buferinio sluoksnio, kai jo storis buvo keičiamas nuo 0 iki 3 nm. Pastebėtas PL spektro smailės slinkimas į ilgesnių bangų pusę didėjant buferinio sluoksnio storiui yra aiškinamas sumažėjusia In desorbcija, tačiau padidėja defektų koncentracija barjeriniame sluoksnyje, nes GaN auginamas neoptimalioje temperatūroje.

Kiti tyrimai parodė [10], kad aktyviosios srities optinės savybės įtakoja ne tik barjero auginimo temperatūra, bet ir nuo temperatūros pakėlimo spartos iki jos optimalios vertės barjerui auginti. Buvo stebima fotoluminescencijos parametrų priklausomybė nuo temperatūros pakėlimo greičio. Kilimo trukmė buvo keičiama nuo 30 s iki 90 s. Pastebėta, kad lėtinant temperatūros kilimo greitį, PL spektro smailės padėtis slenka į trumpesnių bangų pusę, o spektro plotis didėja, nors In koncentracija ir kvantinės duobės plotis visuose bandiniuose vienodas. Yra žinoma, kad išspinduliuoto fotono bangos ilgis priklauso ne tik nuo vidutinės In koncentracijos kvantinėje duobėje, bet ir nuo In sudėties fliuktuacijų [11]. Iš temperatūrinių liuminescencijos intensyvumo matavimų buvo nustatyta lokalizacijos koeficiento vertė, kuri mažėja lėtinant temperatūros kilimo greitį [10]. Manoma, kad taip yra dėl indžio persiskirstymo temperatūros kėlimo metu: kuo ilgiau keliama temperatūra, tuo labiau indis persiskirsto aktyviojoje srityje. Iš pradžių In sudaro didelius klasterius, sukurdamas didelius lokalizacijos centrus, o po iškaitinimo lokalizacijos centrai sumažėja (2 pav.) . Šiuo efektu gali būti aiškinamas PL spektro smailės slinkimas į trumpesnių bangų pusę. Didžiausias PL intensyvumas stebėtas, kai temperatūra pakeliama per 90 s, o tai parodo didžiausią lokalizacijos centrų tankį.

Taigi In koncentracijos fliuktuacijų ypatumai lemia krūvininkų lokalizaciją, didindami tankį centrų, kuriuose krūvininkai išvengia defektų įtakos ir tokiu būdu pasiekiami didesnė spindulinės rekombinacijos tikimybė aktyvioje kvantinės sandaros srityje.



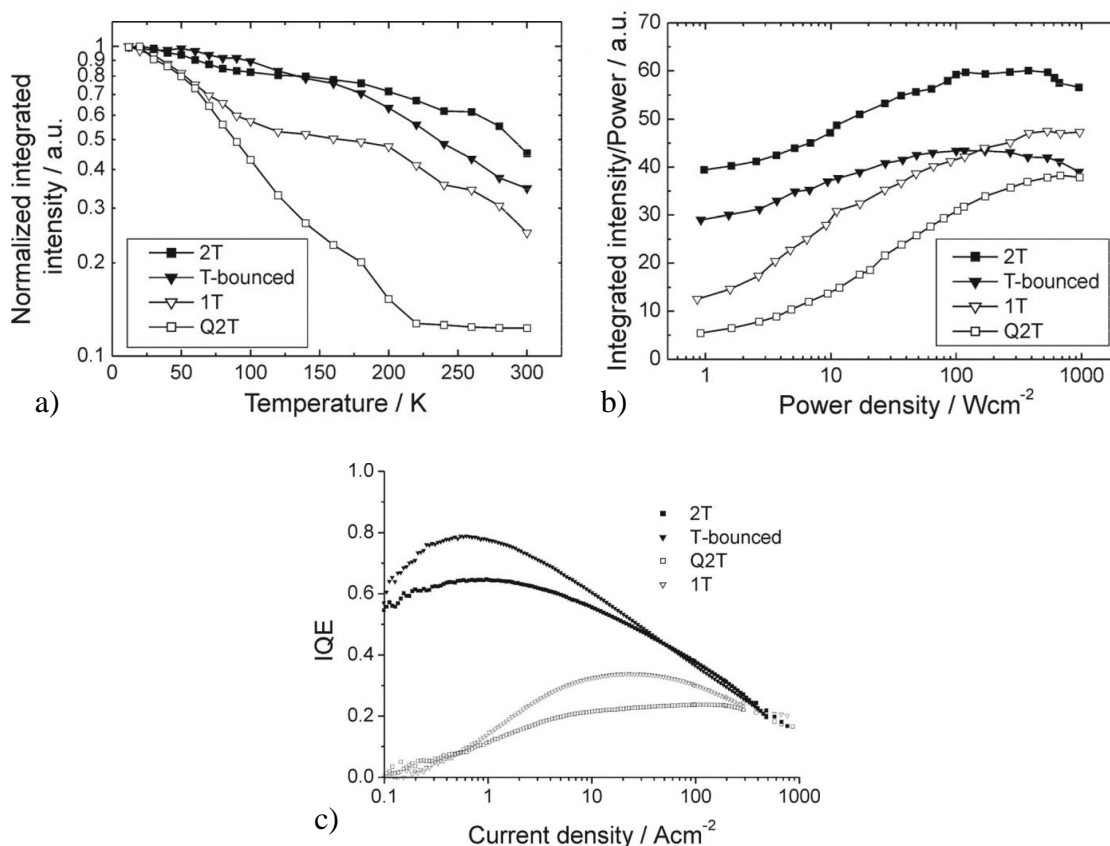
**2 pav.** Schematinis In klasterių modelis InGaN kvantinėse duobėse (a, b, c) bei energijos lygmenys (e, f, g) [10]

Tačiau buvo paskelbti tyrimai, kurie parodė, kad sandaros su neoptimaliai užaugintas barjeriais turi gana gerus elektroluminescencijos efektyvumus mažos injekcijos sąlygomis, netgi geresnius nei sandarose su optimaliai užaugintais GaN barjeriais [2]. Šioje publikacijoje, siekiant geriau suprasti vykstančius procesus InGaN/GaN kvatinėse struktūrose ir pagerinti šviestukų optines savybes, buvo bandoma atskirti dviejų efektų įtaką [2]: defektų koncentraciją barjeruose ir indžio koncentracijos fliuktuaciją kvantinėse duobėse. Užaugintas keturių bandinių rinkinys: dviejų bandinių barjerai buvo užauginti žemesnėje temperatūroje nei optimali ir dviejuose bandiniuose padidinta indžio kiekio fliuktuacija dėl staigaus temperatūros pakėlimo. Šio darbo matavimų rezultatai parodė, jog didesnę įtaką InGaN/GaN aktyviosios srities optinių savybių pagerėjimui turi indžio fliuktuacijų didinimas nei defektų tankio barjeruose mažinimas.

## 2.4. Tiriamų bandinių apžvalga

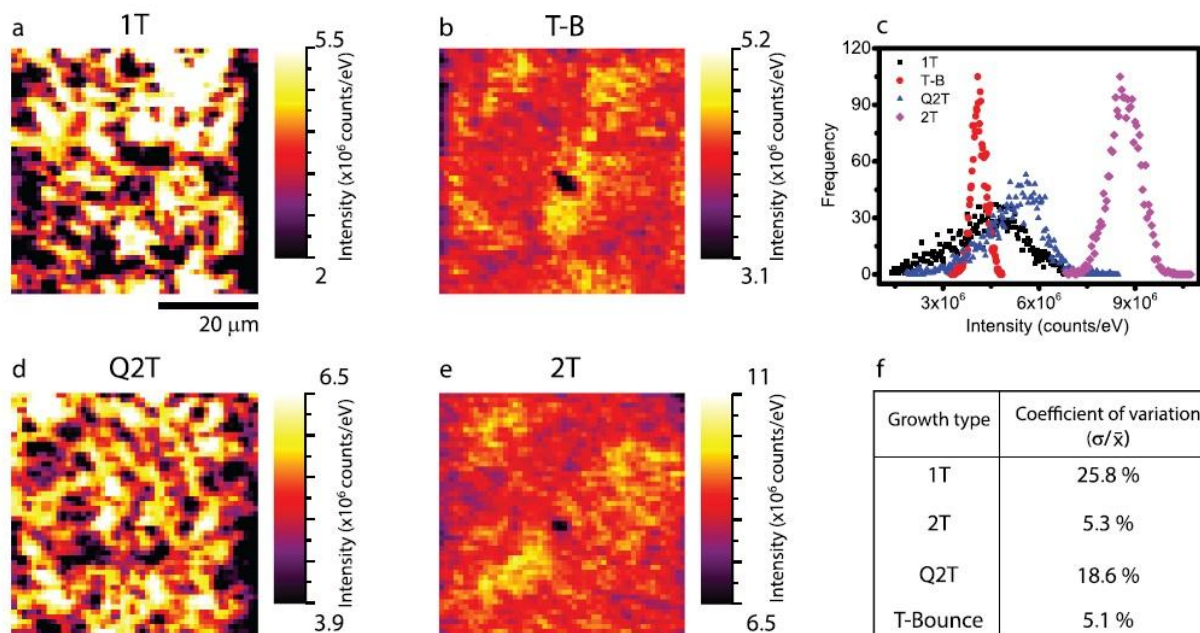
Analizuojami bandiniai yra tirti ir paskelbti kitų autorių publikacijose [2][3]. 3(a) pav. matyti liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo temperatūros, kai žadinimo galios tankis buvo  $6 \text{ W/cm}^2$ . Liuminescencijos intensyvumų santykis prie žemos temperatūros (šiuo atveju prie 6K) ir kambario temperatūros (300K) gali būti laikomas kaip liuminescencijos vidinės kvantinės išeigos vertė [12]. Didžiausia vidinės kvantinės išeigos vertė pasižymėjo **2T** bandinys su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis, tuo tarpu mažiausia – **Q2T** (bandinys su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis). Liuminescencijos efektyvumo priklausomybė nuo žadinimo galios tankio parodė (3(b) pav.), kad bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis (**2T** ir **T-B**) mažuose žadinimo

galios tankiuose pasižymi didesnėmis efektyvumo vertėmis lyginant su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis. Tačiau **2T** ir **T-B** bandiniuose buvo pastebėtas „droop“ efektas, kai **1T** ir **Q2T** efektyvumas didėjo visame žadinimų intervale. 3(c) pav. parodyta fotoluminescencijos vidinės kvantinės išieigos priklausomybė nuo srovės tankio. IQE vertės gautos pasinaudojus *Matioli* ir *Weisbluch* metodu [13]. Mažų srovės tankių srityje kvantinės išieigos didesnės bandiniuose su netolygaus storio kvantinėmis duobėmis. Tačiau visuose bandiniuose pastebėtas kvantinės išieigos mažėjimas didėjant srovės tankiui, o prie didžiausių srovės tankių ( $\sim 500 \text{ A/cm}^2$ ) visuose bandiniuose kvantinės išieigos vertės buvo panašios. Padarytos išvados, kad GaN barjero auginimo temperatūra neturi didesnės įtakos struktūros kvantinei išieigai ir bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis sumažina nespindulinės rekombinacijos įtaką dėl atsiradusio papildomo barjero, trukdančio krūvininkams difuzijos būdu pasiekti nespindulinius rekombinacijos centrus. Šie tyrimai [2] darbe buvo atlikti mažos injekcijos kvazistacionaraus sužadavimo sąlygomis, kai dominuoja dalinis lokalizacijos centrų užpildymas ir laike integruotos liuminescencijos signalą lemia patys lėčiausi rekombinacijos vyksmai.



**3 pav.** Liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo temperatūros, nepusiausvirosius krūvininkus generuojant 6 W/cm<sup>2</sup> galios tankio, 325 nm bangos ilgio lazerine spinduliuote (a), liuminescencijos efektyvumo priklausomybė nuo žadinimo galios tankio kambario temperatūroje (b) ir elektroluminescencijos vidinės kvantinės išieigos priklausomybė nuo srovės tankio kambario temperatūroje (c) [2].

Iš atliktų liuminescencijos intensyvumo žemėlapių matavimų [3] (4 pav.) matyti, kad bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis (**2T** ir **T-B**) pasižymi tolygesniu liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymu ir juose yra mažiau defektų. Teigiama, kad mažesnė defektų koncentracija yra dėl temperatūrų šuolio auginant šiuos bandinius, kurio metu buvo iškaitinti defektai InGaN sluoksnyje.



**4 pav.** Liuminescencijos intensyvumo žemėlapis skirtingiems bandiniams [3]

Tačiau kitų autorių publikacijose nebuvo detaliau nagrinėtos kvantinės išeigos „droop“o“ priežastys, nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika: difuzijos koeficientas, rekombinacijos trukmės. Šiame magistrantūros studijų baigiamajame darbe siekiama geriau suvokti optiškai sugeneruotų nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos procesus, o geresnis suvokimas padeda optimizuoti kvantinių struktūrų auginimo procesą siekiant pagaminti kuo našesnius LED šviestukus.

### 3. Krūvininkų dinamikos tyrimų metodikos

#### 3.1. Skirtuminio pralaidumo metodika

Skirtuminio pralaidumo metodika naudojama nustatyti krūvininkų gyvavimo trukmes  $\tau_R$ , prie skirtingų nepusiausvirujų krūvininkų tankių  $\Delta N_0$ . Ši metodika remiasi tuo, kad didelės energijos šviesos pluoštelis, kurio  $h\nu_{zad} > E_g$ , sugeneruoja labai didelius elektronų ir skylių plazmos tankius (iki  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) ir gali stipriai pakeisti puslaidininkio dielektrinę skvarbą  $\varepsilon(\omega)$ .

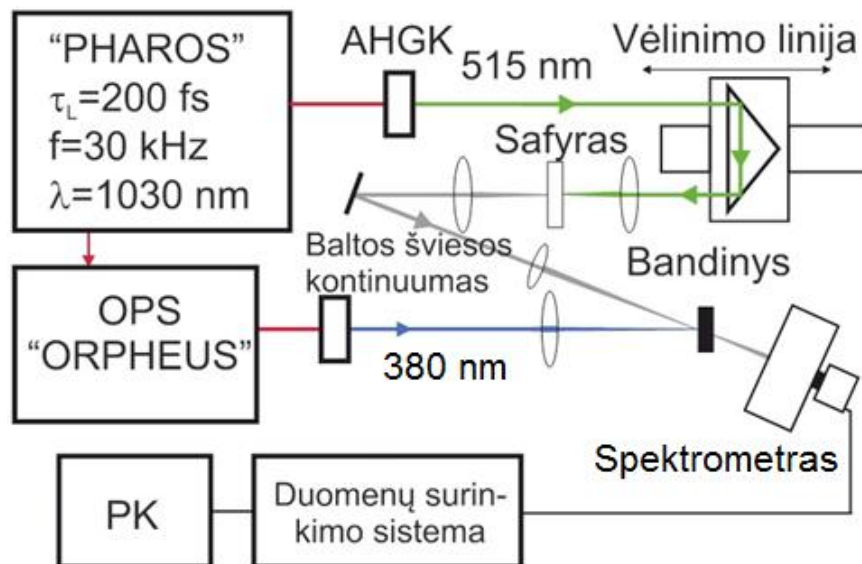
Skirtuminio pralaidumo metodas dar kitaip vadinamas žadinimo – zondavimo metodu. Bandinys yra sužadinamas trumpu šviesos (lazerio) impulsu. Šiame darbe buvo naudojami 340 ir 380 nm bangos ilgio pluošteliai (neselektyviems ir selektyviems žadinimams atlikti). Plataus spektro pluoštelis buvo naudojamas kaip zondas, kas leidžia spektriškai atskirti pralaidumo pokyčius.

Sužadinus bandinį, elektronai ir skylės užpildo atitinkamas būsenas laidumo ir valentinėje juostose, taigi zonduojant plataus spektro pluošteliumi, dėl būsenų užpildos matysime sugerties sumažėjimą (angl. "*absorption bleaching*"). Krūvininkams rekombinuojant, bandinio pralaidumas tokiems zondo fotonams mažėja, todėl vėlinant zondą galima stebėti nepusiausvirujų krūvininkų kinetikas įvairios energijos būsenoms arba pralaidumo spektrus skirtingais laiko momentais.

Skirtuminio pralaidumo matavimų duomenys pateikiami kaip jo priklausomybės nuo zondo vėlinimo laiko  $t$ :

$$OD(t) = -\log\left(\frac{T(t)}{T_0}\right), \quad (14)$$

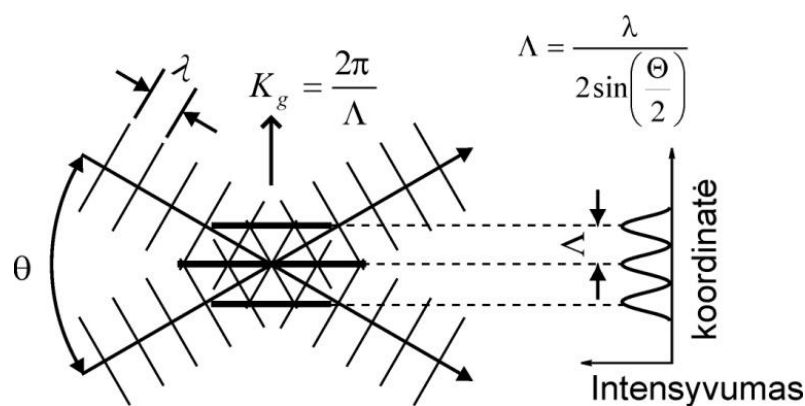
Čia  $T$  – pralaidumas sužadinus,  $T_0$  – pralaidumas, kai nėra žadinimo,  $OD$ - optinis tankis (angl. "*optical density*").



**5 pav.** Skirtuminio pralaidumo metodikos principinė schema su optiškai užlaikytu plataus spektro zondų [14].

### 3.2. Dinaminių difrakcinių gardelių metodika

Dinaminės difrakcinės gardelės eksperimente tiriamasis bandinys yra apšviečiamas erdviškai modulioto intensyvumo šviesos pluošteliu. Tuo šis metodas ir skiriasi nuo skirtuminio pralaidumo metodo, kuriame bandinys yra žadinamas apytiksliai vienalyčio intensyvumo pluošteliu. Erdviškai moduluotas šviesos pluošteliu gaunamas kampų  $\theta$  suvedant du koherentinius lazerio pluošteliu, kurie tarpusavyje interferuoja 6 pav.



**6 pav.** Dviejų koherentinių spindulių, susikertančių kampų  $\theta$ , interferencijos schema [15].

Tokio interferencinio lauko šviesos intensyvumas erdvėje kinta harmoniniu dėsniu:

$$I(x) = I_0 \left( 1 + m \cos \left( \frac{2\pi}{\Lambda} x \right) \right) \quad (15)$$

Čia  $I_0 = I_1 + I_2$  - bendras dviejų krentančių pluoštelių intensyvumas,  $\left(m = \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{I_1 + I_2}\right)$  yra interferencinio lauko moduliacijos gylis ir  $\Lambda$  - interferencinio lauko periodas. Šis periodas priklauso nuo interferuojančių spindulių bangos ilgio ir kampo tarp jų:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin\left(\frac{\Theta}{2}\right)} \quad (16)$$

Atitinkamai yra moduluotas ir krūvininkų tankis bandinyje, kuris sukuria lūžio rodiklio moduliaciją, taip sukurdami dinaminę difrakcinę gardelę. Praėjęs pro bandinį zondojuojantis spindulys difraguoja susidariusioje dinaminėje difrakcinėje gardelėje.

Pradiniu laiko momentu nepusiausvirųjų krūvininkų erdvinis pasiskirstymas tiksliai sutampa su šviesos lauko pasiskirstymu:

$$N(x, z) = \frac{\alpha I_0 \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right)\right)}{h\nu} \exp(-\alpha z) = N_0 \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right)\right) \exp(-\alpha z) \quad (17)$$

Čia  $\alpha$  - šviesos sugerties koeficientas,  $x$  - koordinatės gardelės vektorius kryptimi,  $z$  - koordinatė bandinio paviršiaus normalės kryptimi,  $\Delta N_0 = \frac{\alpha I_0}{h\nu}$  - nepusiausvirųjų elektronų - skylių porų tankis iškart po sužadinimo. Paskutinis formulės (17) narys parodo, kaip nepusiausvirųjų krūvininkų tankis kinta dėl šviesos sugerties einant gilyn į bandinį.

Dinaminę difrakcinę gardelę kiekybiškai apibūdina difrakcijos efektyvumas  $\eta$  - tai yra difragavusio  $I_{dif}$  ir praėjusio  $I_{pr}$  zondo dalių energijos santykis. Bendru atveju  $\eta$  aprašomas pirmos eilės Beselio funkcija [16]:

$$\eta = \left(J_1\left(\frac{2\pi\Delta\tilde{n}d}{\lambda}\right)\right)^2 \quad (18)$$

Čia  $J_1$  - pirmos eilės Beselio funkcija,  $\tilde{n}$  - kompleksinis lūžio rodiklis,  $d$  - gardelės storis. Eksperimento metu tiriama difrakcija labai silpna, kai  $\eta \ll 1$ , be to, atsižvelgus į tai, kad krūvininkai generuojami tik labai ploname paviršiniame bandinio sluoksnyje (maždaug  $1/\alpha$  storio). Tada yra teisinga apytikslių lygybė:

$$\eta \approx \left(\frac{2\pi\Delta nd}{\lambda}\right)^2 \quad (19)$$



Atsižvelgus į  $\Delta n = n_{np}\Delta N_{np}$  [4] lygybę, galime užrašyti:

$$\eta(t) = \left( \frac{\pi n_{np}}{\lambda} \int_0^d \Delta N(t, z) dz \right)^2 \propto \Delta N^2(t) \quad (20)$$

Stebėdami, difrakcijos efektyvumo mažėjimą, bus matomas ir nepusiausvirųjų krūvininkų tankio kitimas laike, nes pagal (19) lygtį, difrakcijos efektyvumas proporcingas krūvininkų tankio kvadratui.

Bendru atveju nepusiausvirųjų krūvininkų tankio dinamikos tolydumo lygties (12) analitinis sprendinys, kai krūvininkai generuojami Dirako delta laikiniu impulsu:

$$N(x) = N_0 \left[ 1 + \exp\left(-\frac{t}{\tau_D}\right) \cos\left(\frac{2\pi x}{\Lambda}\right) \right] \exp\left(-\frac{t}{\tau_R}\right) \quad (21)$$

Čia  $\tau_D$  difuzinė gardelės irimo trukmė.

$$\tau_D = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 D} \quad (22)$$

Matome, kad nepusiausvirųjų krūvininkų tankis mažėja eksponentiniu dėsniu su trukme:

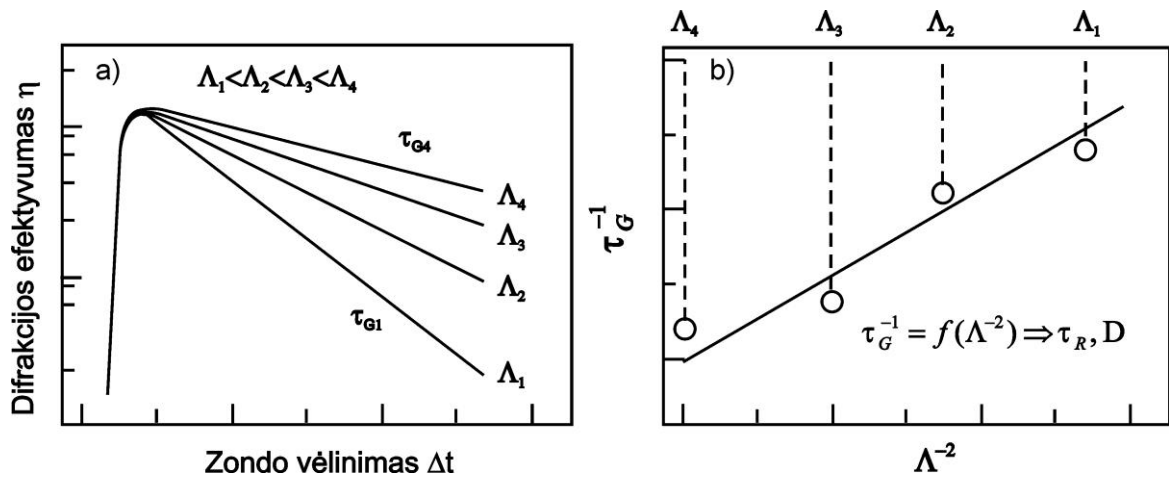
$$\frac{1}{\tau_G} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_D} = \frac{1}{\tau_R} + \frac{4\pi^2 D}{\Lambda^2} \quad (23)$$

Čia  $\tau_G$  vadinama krūvininkų gardelės irimo trukme. Kadangi  $\eta(t) \propto \Delta N^2(t)$ , todėl

$$\eta(t) \propto \exp\left(-\frac{2t}{\tau_G}\right) \quad (24)$$

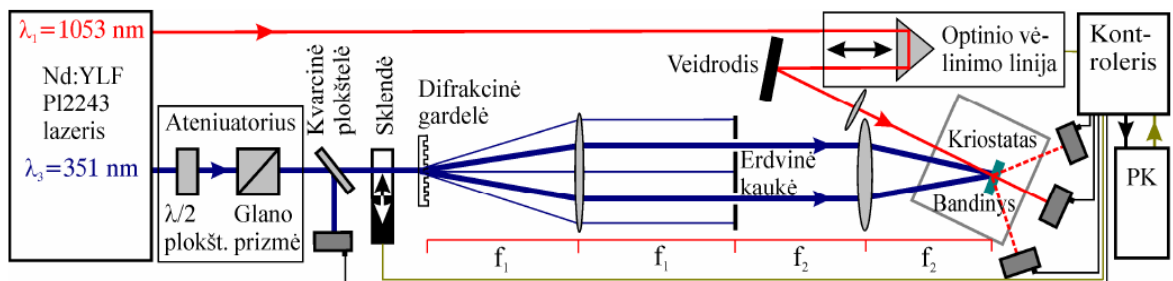
Taigi,  $\tau_G$  yra laikas, per kurį difrakcijos efektyvumas  $\eta$  sumažėja  $e^2$  kartų.

Eksperimento metu matuojama difrakcijos efektyvumo priklausomybė nuo zonduojančio spindulio vėlinimo laiko. Iš šios priklausomybės nustatoma gardelės irimo trukmė  $\tau_G$ . Iš (23) matyti, kad  $\tau_G$  priklauso ir nuo rekombinacinės  $\tau_R$  ir nuo difuzinės  $\tau_D$  gardelės irimo trukmės, tačiau  $\tau_D$  priklauso nuo gardelės periodo  $\Lambda$ , o  $\tau_R$  - ne, todėl galime atskirti šių procesų įtaką. Išmatuojamos dinaminės gardelės irimo trukmės prie skirtingų gardelės periodų. Nubrėžus priklausomybę  $\frac{1}{\tau_G} = f\left(\frac{4\pi^2}{\Lambda^2}\right)$  ir aproksimavus ją tiesę, polinkio koeficientas bus lygus difuzijos koeficientui  $D$ . Žinant  $D$  galime susiskaičiuoti  $\tau_R$  iš (23) lygties.



7 pav. Difuzijos koeficiento  $D$  ir rekombinacijos trukmės  $\tau_R$  radimas naudojant dinaminės difrakcinės gardelės metodą [15].

Eksperimento matavimo schema pavaizduota 8 pav. Dinaminė difrakcinė gardelė bandinyje kuriama 8 ps impulso trukmės sinchronizuotų modų 10 Hz dažnio Nd:YLF (fundamentinė harmonika 1053 nm) lazerio pluoštais, kurie praeidavo  $f_1$  ir  $f_2$  židinio lęšius ir sudarydavo bandinyje interferencinį lauką. Neselektyviems nepusiausvirųjų krūvininkų žadinimams naudojama 351 nm bangos ilgio spinduliuotė. Dinaminė gardelė zondojuojama pirmos harmonikos 1053 nm impulsais. Žadinančio spindulio skersmuo yra kelis kartus didesnis negu zondojuančio. Žadinančiojo spindulio intensyvumas reguliuojamas su  $\lambda/2$  plokštele, kuri yra prieš Glano prizmę.



8 pav. Dinaminės difrakcinės gardelės metodo eksperimentinė schema[15]

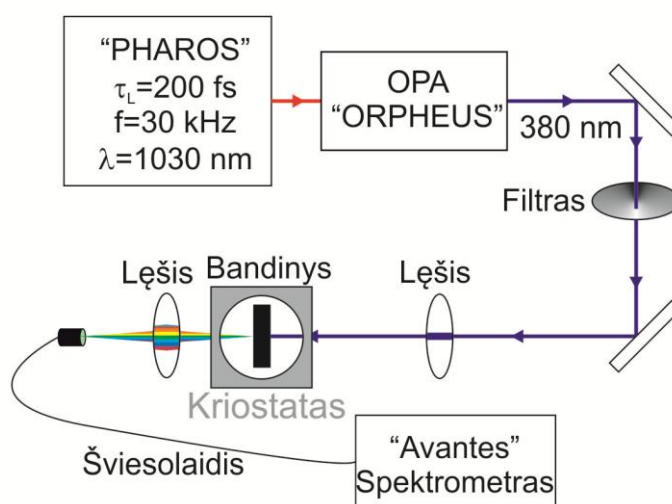
Du koherentiniai lazerio šviesos pluošteliai gaunami, kai lazerio pluoštas praeina pro difrakcinę gardelę, o erdvinė kaukė užblokuoja visas išskyrus  $-1$  ir  $1$  difrakcijos eiles, kurių intensyvumas didžiausias. Keičiant dinamines gardeles, keičiamas kampas  $\theta$ , o kartu ir  $\Lambda$ .

### 3.1. Laike integruota fotoluminescencija

Fotoluminescencija – tai procesas, kurio metu medžiaga spinduliuoja šviesos kvantus (fotonus) vykstant optiškai sužadintų elektrono – skylės porų spindulinei rekombinacijai.

Optiškai sužadinti nepusiausvirieji krūvininkai rekombinuoja nespinduliniu (SRH arba Ožė rekombinacija) arba spinduliniu būdu, kai rekombinacijos metu išspinduliuojami fotonai (bimolekulinė rekombinacija). Šie fotonai yra registruojami spektrometru.

Eksperimento metu nepusiausvirieji krūvininkai kuriami impulsinės ir nuolatinės veikos lazeriais. Impulsiniam žadinimui buvo naudojamas lazeris „Pharos“ ir optinis parametrinis stiprintuvas (OPA) „Orpheus“. Krūvininkai buvo gereruojami 340, 380 ir 390 nm bangos ilgio spinduliuotėmis. Nuolatinės veikos spinduliuotei generuoti buvo naudojami He-Cd (325 nm) ir puslaidininkinis InGaN (405 nm) lazeriai. Išspinduliuotų fotonų detekcijai buvo naudojamas „Avantes“ spektrometras. Laike integruotos liuminescencijos eksperimento principinė schema pavaizduota 9 pav.



9 pav. Laike integruotos liuminescencijos eksperimento principinė schema.

### 3.2. Laikinės skyros fotoluminescencija

Laikinės skyros fotoluminescencija (LSFL) (angl. "time resolved photoluminescence", TRPL) yra bekontaktinė metodika, skirta tirti nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos procesus medžiagose. LSFL eksperimento metu matuojamas nepusiausvirųjų krūvininkų liuminescencijos intensyvumo kitimas laike. Momentinis spektre integruotas liuminescencijos intensyvumas aukštos

optinės injekcijos atveju yra proporcingas momentiniams nepusiausvirųjų elektronų  $N$  ir skylių  $P$  tankiams taip:

$$I(t) \propto N(t)P(t);$$

(25)

Eksperimento metu nepusiausvirieji krūvininkai buvo kuriami naudojant femtosekundinį „Pharos“ lazerį ir optinį parametrinį stiprintuvą (OPA) „Orpheus“. Neselektyviam ir selektyviam nepusiausvirųjų krūvininkų generavimui buvo naudojamos atitinkamai 340 nm ir 380 nm bangos ilgio spinduliuotės. Laikinės skyros realizavimui šiame darbe naudota *Hamamatsu C10267* STREAK kamera ir ACTON SP2300 monochromatorius (sistemos laikinė skyra 20 ps).

## 4. Rezultatai

### 4.1. Bandiniai

Šiame darbe tiriami keturi InGaN/GaN bandiniai, užauginti metalorganinių garų fazės epitaksijos būdu. (MOVPE). Visi bandiniai auginti ant GaN pseudo – padėklo, kuriame dislokacijų tankis buvo  $5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ . Aktyviosios srities auginimo metu buvo keičiamos barjerinio GaN sluoksnio auginimo sąlygos: dviejų bandinių barjerai buvo užauginti žemesnėje temperatūroje nei optimali ir dviejuose bandiniuose padidinta indžio kiekio fliktuacija dėl staigaus temperatūros pakėlimo. Skirtingos auginimo sąlygos pasirinktos tam, kad būtų galima atskirti dviejų efektų daromą įtaką optinėms savybėms: defektų koncentraciją barjeruose ir indžio koncentracijos fliktuaciją kvantinėse duobėse.

Siekiant išlaikyti PL spektro smailės padėtį ties  $442 \pm 1 \text{ nm}$  bangos ilgiu, InGaN sluoksnio auginimo temperatūra buvo keičiama nuo  $742$  iki  $757 \text{ }^\circ\text{C}$ , taip kompensuojant In kiekio sumažėjimus dėl temperatūros šuolių.

Bandinių auginimo sąlygos:

**1T** bandinio barjerai buvo auginami tokioje pačioje temperatūroje kaip ir InGaN sluoksnis, taigi In desorbcija iš kvantinės duobės yra minimalizuojama, tačiau barjero auginimo temperatūra yra neoptimali.

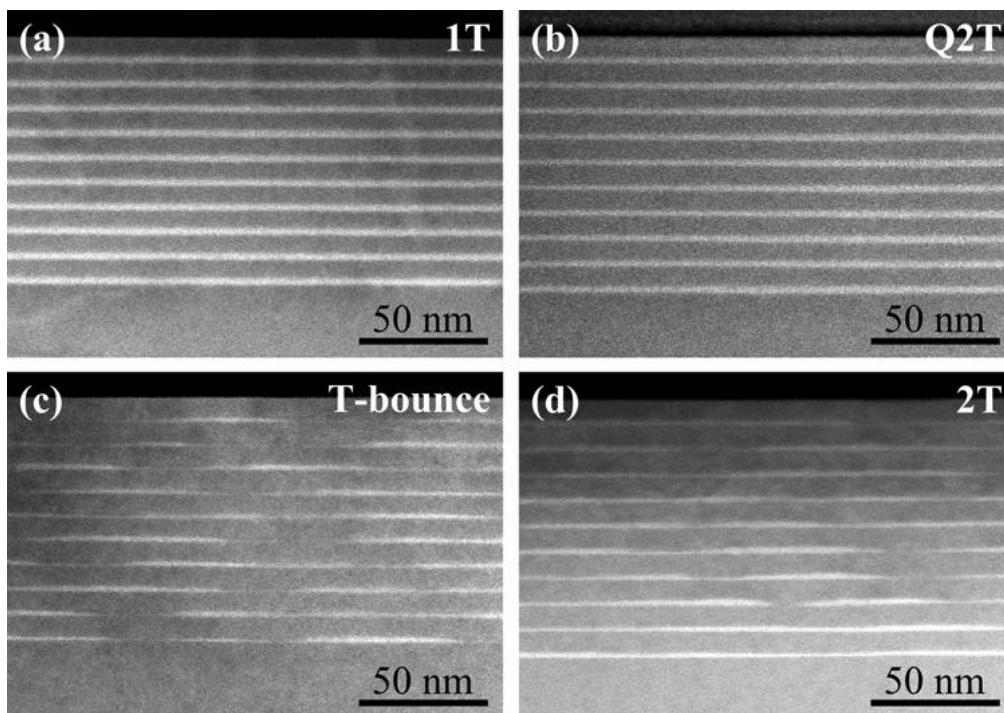
**2T** bandinio kvantinės duobės ir barjerai buvo auginami skirtingose temperatūrose: užauginus InGaN sluoksnį, temperatūra per  $90 \text{ s}$  pakeliama iki  $846 \text{ }^\circ\text{C}$  ir auginant GaN sluoksnį temperatūra toliau keliama iki  $880 \text{ }^\circ\text{C}$ . Temperatūros pakėlimo metu dėl In desorbcijos gaunamos kvantinės duobės pločio fliktuacijos, tačiau barjerai užauginami optimalioje temperatūroje.

**Q2T** aktyviosios srities auginimo metu po kiekvieno užauginto InGaN sluoksnio buvo užauginamas  $1 \text{ nm}$  storio GaN buferinis sluoksnelis (InGaN auginimo temperatūroje), kad sumažinti In desorbciją. Toliau auginant GaN barjerinį sluoksnį, temperatūra per  $90 \text{ s}$  pakeliama iki  $846 \text{ }^\circ\text{C}$ . Taigi buferinis  $1 \text{ nm}$  GaN sluoksnis leidžia didžiąją dalį GaN barjero užauginti optimalioje temperatūroje išvengiant kvantinių duobių storio fliktuacijų.

**T-B** aktyviosios srities auginimo metu, užauginus InGaN sluoksnį, temperatūra per  $90 \text{ s}$  pakeliama iki  $803 \text{ }^\circ\text{C}$ , po to temperatūra vėl sumažinama iki InGaN sluoksnio auginimo temperatūros ir tada auginamas GaN barjerinis sluoksnis. Taip užaugintas bandinys pasižymi kvantinių duobių pločio fliktuacijomis.

**1T** ir **Q2T** bandinių barjeriniai GaN sluoksnų pločiai atitinkamai lygūs  $7,1$  ir  $7,4 \text{ nm}$ ,  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  kvantinių duobių pločiai –  $2,6$  ir  $2,4 \text{ nm}$ , o In frakcijos dalis atitinkamai lygi  $x=0,189$  ir  $x=0,174$ . Tačiau **2T** ir **T-B** bandiniuose struktūrinių parametrų nebuvo galima nustatyti dėl didelių

kvantinės duobės pločio fliuktuacijų. Pavyko nustatyti tik kvantinės struktūros periodą, kuris atitinkamai lygūs 9,5 nm ir 9,4 nm [2]. Bandinių STEM nuotraukos pavaizduotos 10 pav.



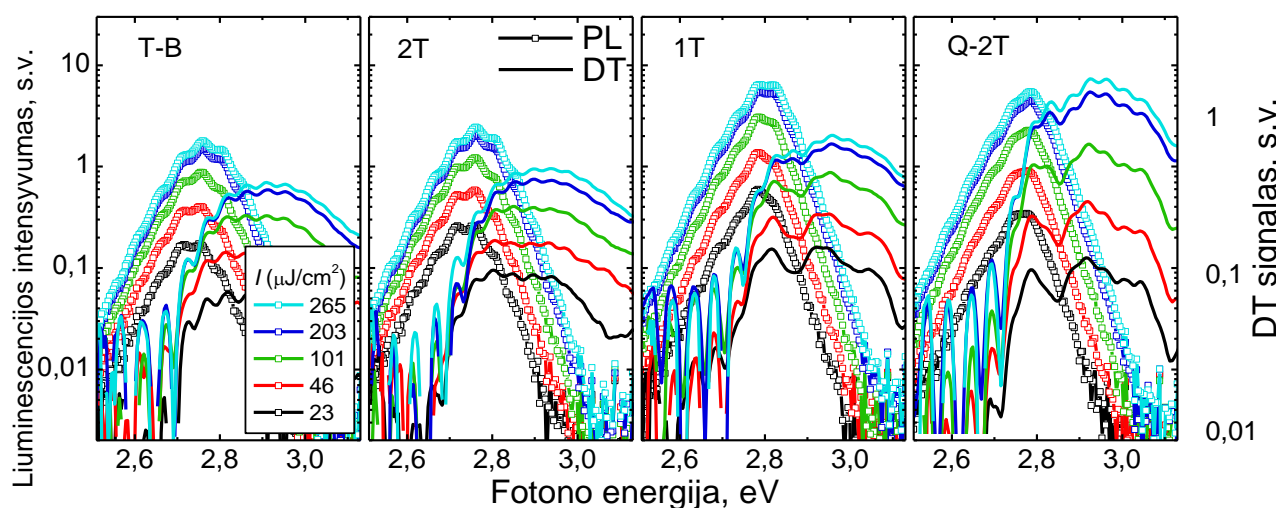
**10 pav.** Kvantinių struktūrų STEM nuotraukos: a) 1T, b) Q2T, c) T-B, d) 2T [2].

## 4.2. Pagrindiniai rezultatai ir jų aptarimas

Bandiniai buvo tiriama laikinės skyros (LSFL) ir laike integruotos fotoluminescencijos (FL), skirtuminio pralaidumo (SP) ir dinaminių difrakcinių gardelių (DDG) metodikomis. Nepusiausvirieji krūvininkai buvo žadinami skirtingo bangos ilgio lazerio pluoštais. Skirtuminio pralaidumo ir laike integruotos fotoluminescencijos tyrimai atlikti su 340, 380 ir 390 nm (krūvininkus generuojant impulsinės veikos lazeriu) bangos ilgio spinduliuote, o dinaminių difrakcinių gardelių metodu matavimams atlikti buvo naudojama 351 nm bangos ilgio spinduliuotė. Laike integruotos liuminescencijos eksperimentas taip pat atliktas krūvininkų generavimui naudojant nuolatinės veikos lazerius: He – Cd (325 nm) ir puslaidininkiniu InGaN (405 nm)

Skirtingi bangos ilgiai buvo naudojami selektyviems (380, 390 bei 405 nm) ir neselektyviems (325, 340 ir 351 nm) žadinimams atlikti, kai selektyvaus žadinamo metu skylės – elektrono pora generuojama kvantinėse duobėse, o neselektyvaus žadinimo metu krūvininkai generuojami visoje aktyviojoje srityje (duobėse ir barjeruose).

Skirtuminio pralaidumo ir laike integruotos fotoluminescencijos spektrai pateikti 11 pav. Matome, kad bandiniuose su netolygaus storio kvantinėmis duobėmis (**T-B** ir **2T**) tiek liuminescencijos, tiek skirtuminio pralaidumo signalas yra mažesnis nei bandiniuose su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis (**1T** ir **Q2T**). Skirtuminio pralaidumo signalas mažesnis dėl kvantinių duobių storio fliktuacijų: bendras duobių storis **2T** ir **T-B** bandiniuose mažesnis negu tolygaus storio kvantinėse duobėse (10 pav.). Kuo didesnis bendras InGaN sluoksnių suminis tūris, tuo daugiau sugerama fotonų, todėl ir skirtuminio pralaidumo signalas didesnis. Laike integruotos liuminescencijos signalas koreliuoja su skirtuminio pralaidumo signalo dydžiu: bandinių su tolygaus storio kvantinėmis duobėmis liuminescencijos intensyvumas taip pat didesnis. Kuo daugiau sugerama fotonų, tuo daugiau sugeneruojama elektrono – skylės porų, tuo daugiau išspinduliuojama šviesos.



**11 pav.** Skirtuminio pralaidumo ir laike integruotos liuminescencijos spektrai selektyvaus žadinimo atveju. Krūvininkai generuojami impulsine 380 nm bangos ilgio spinduliuote.

Siekiant palyginti tiriamus bandinius išspinduliuotos šviesos atžvilgiu, šviesą integruojančia sfera, buvo išmatuotos bandinių kvantinės išėigos [17]. Kvantinės išėigos matavimuose krūvininkai buvo generuojami impulsinės ir nuostovios veikos lazerine spinduliuote, neselektyvaus (impulsine – 340 nm, nuolatinė – 325 nm) ir selektyvaus (impulsine – 380 nm, nuolatinė – 405 nm) žadinimo atvejais, kai neselektyvaus žadinimo atveju krūvininkai sužadinami tiek InGaN kvantinėj duobėj, tiek GaN barjere, o selektyvaus žadinimo atveju krūvininkai sužadinami tik InGaN sluoksniuose. Išmatuotos kvantinės išėigos vertės pateiktos 1 lentelėje.

**1 lent.** Šviesą integruojančia sfera išmatuotos kvantinės išieigos.

	Žadinančios spinduliuotės bangos ilgis	Žadinimo intensyvumas	<b>1T</b> Tolygaus storio kvantinės duobės	<b>Q2T</b> Tolygaus storio kvantinės duobės	<b>2T</b> Kintamo storio kvantinės duobės	<b>T-B</b> Kintamo storio kvantinės duobės
Impulsinė lezerio veika	340 nm	0,3 mJ/cm <sup>2</sup>	19 %	15,4%	11,8%	10,5%
	380 nm	1 mJ/cm <sup>2</sup>	19,1%	13,4%	14,2%	10 %
Nuostovi lazerio veika	325 nm	96 W/cm <sup>2</sup>	18,9 %	13 %	27 %	34,3 %
	405 nm	4080 W/cm <sup>2</sup>	19 %	14,9 %	21,9 %	19,4 %

Didžiausia kvantinės išieigos vertė nepusiausvirosius krūvininkus generuojant impulsinės veikos lazeriu buvo stebima **1T** bandinyje (selektyvaus ir neselektyvaus žadinimo atvejais), o mažiausia - **T-B**. Krūvininkus žadinant nuostovios veikos lazerine spinduliuote, didesnės kvantinės išieigos vertės buvo bandiniuose su kintamo storio kvantinėmis duobėmis (**2T** ir **T-B**). Su integruojančia sfera atlikti matavimai parodo kvantines išieigas tik prie tam tikro žadinimo intensyvumo. Tačiau vien iš šių verčių sunku detaliau nagrinėti krūvininkų dinamiką bandiniuose. Detalesniam supratimui buvo išmatuotos bandinių liuminescencijos efektyvumo priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo. Sukalibravus išmatuotas liuminescencijos efektyvumo vertes, pagal kvantinės išieigos vertes, išmatuotas naudojant šviesą integruojančią sferą, gautos kvantinių išieigų priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo, krūvininkus generuojant impulsinės (12 pav.) ir nuolatinės veikos (13 pav.) lazerine spinduliuote.

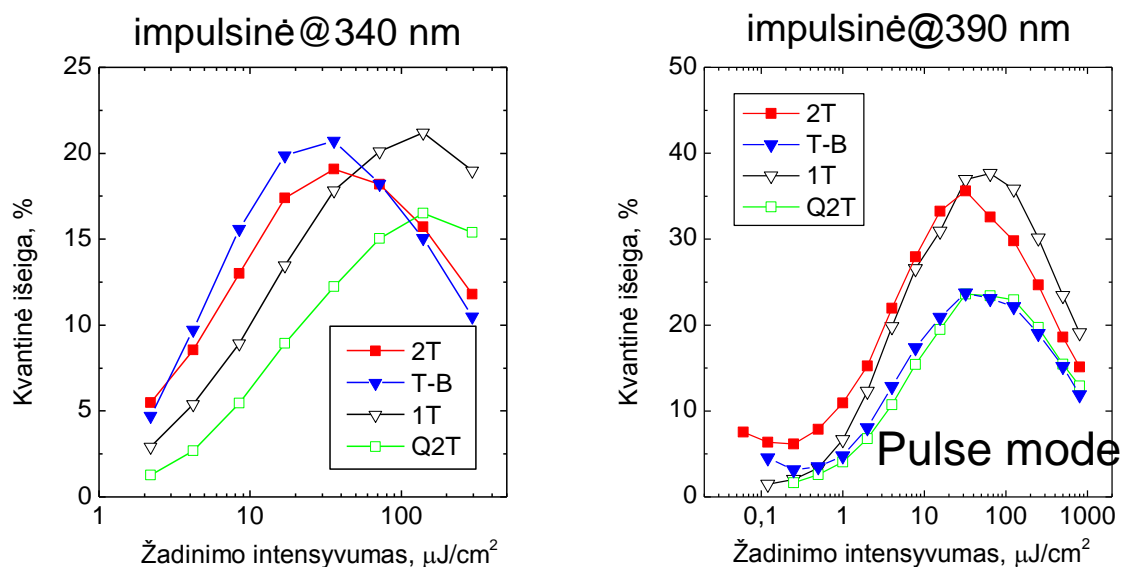
Neselektyvaus žadinimo atveju (žadinama impulsinės veikos lazeriu, su 340 nm bangos ilgio pluošteliumi) žemuose žadinimo intensyvumuose (iki 36  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ ) didesniu efektyvumu pasižymėjo bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis. Tačiau šiuose bandiniuose efektyvumas įsisotina ir toliau didinant intensyvumą ima mažėti (pasireiškia kvantinės išieigos droop'o efektas). Didesniuose intensyvumuose geriau šviečia **1T** bandinys, o **1T** ir **Q2T** bandinių kvantinės išieigos kreivės įsisotina prie didesnių žadinimo intensyvumų (140  $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ ). Neselektyvaus žadinimo atveju krūvininkai generuojami ne tik kvantinėje duobėje, bet ir GaN barjeruose. Dalis nepusiausvirųjų krūvininkų iš GaN barjero „sukrenta“ į mažesnės energijos būsenas InGaN kvantinėse duobėse, to pasekoje nepusiausvirųjų krūvininkų tankis duobėse didėja. Kaip jau minėta, bandiniuose su netolygaus storio kvantinėmis duobėmis suminis InGaN tūris mažesnis, todėl nepusiausvirieji krūvininkai „sukritę“ iš GaN barjerų daro didesnę įtaką kvantinei išieigai (didesnis nepusiausvirųjų krūvininkų tankis duobėse).

Žadinant krūvininkus nuostovios veikos lazeriu, kurio bangos ilgis 325 nm, vėlgi didesne kvantine išieiga pasižymėjo bandiniai su netolygaus storio kvantinėmis duobėmis. **2T** ir **T-B** bandinių kvantinės išieigos kreivės įsisotino prie didžiausio žadinimo intensyvumo ( $\sim 380 \text{ W}/\text{cm}^2$ ),

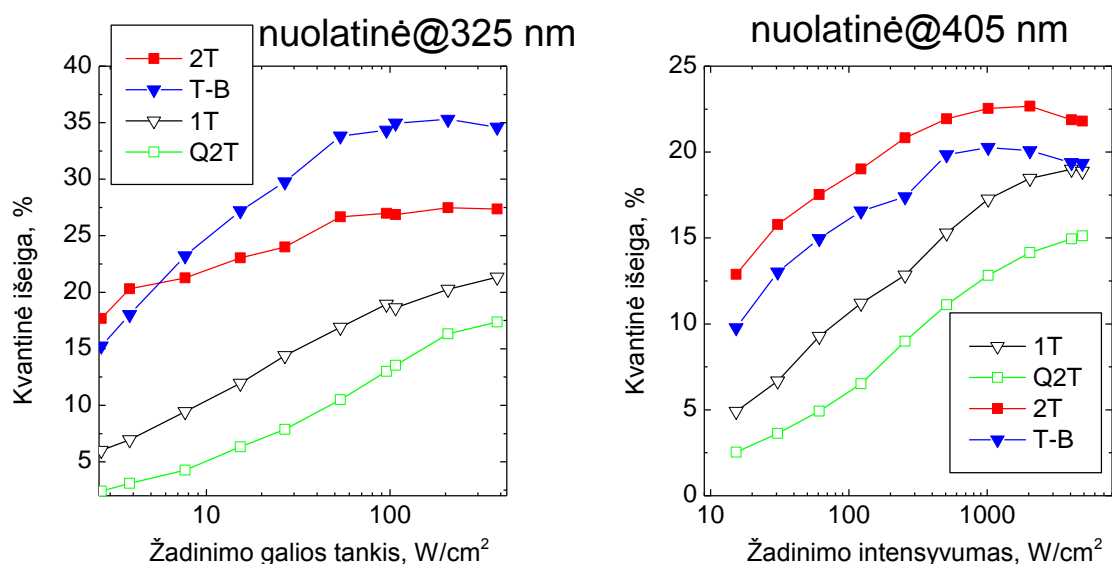


kai **1T** ir **Q2T** kvantinė išeiga didėjo visame tirtame žadinimų intensyvumų intervale (nebuvo pasiektas kvantinės išeigos droop'as), dėl per mažo maksimalaus žadinimo intensyvumo.

Selektyvaus žadinimo atveju (žadinama su 390 nm bangos ilgio lazerine spinduliuote) didžiausia kvantinės išeigos vartė buvo **1T** bandinyje su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis. Žadinant selektyviai, krūvininkai generuojami tik kvantinėje duobėje, todėl krūvininkų tankiai tiek tolygaus, tiek netolygaus pločio kvantinėse duobėse turėtų būti lygūs. To pasekoje matome, kad didžiausią kvantinę išeigą bandiniai pasiekia prie panašių žadinimo intensyvumų.



**12 pav.** Kvantinės išeigos priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo neselektyvaus (a) ir selektyvaus (b) žadinimo atveju. Krūvininkai generuojami impulsiniu PHAROS lazeriu.

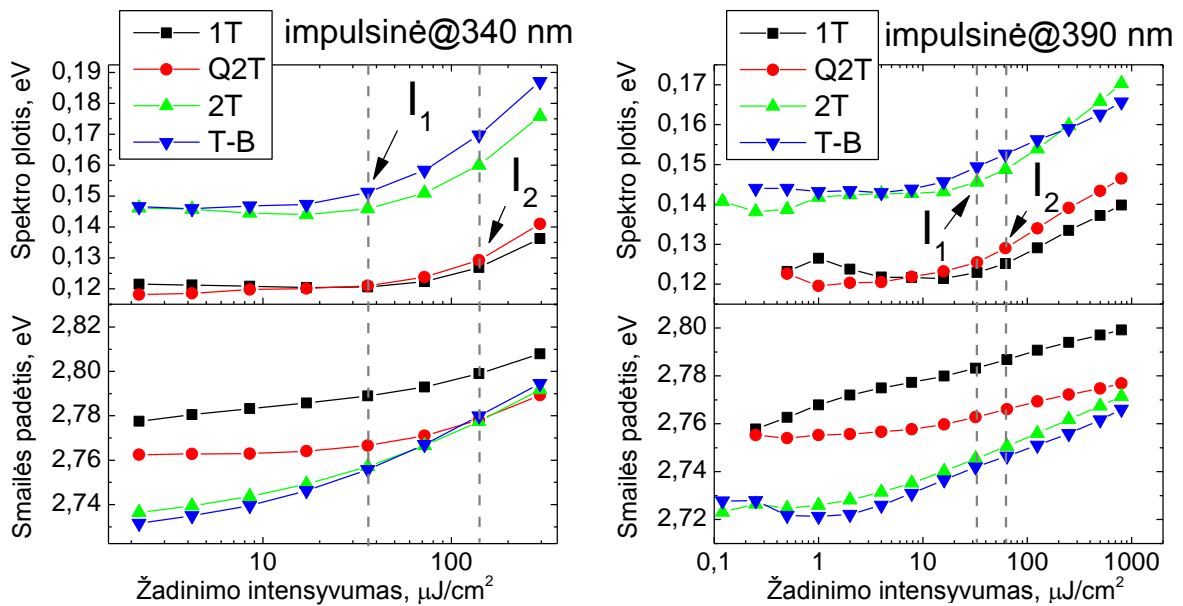


**13 pav.** Kvantinės išeigos priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo neselektyvaus (a) ir selektyvaus (b) žadinimo atveju. Krūvininkai generuojami nuostovios veikos lazeriais: He-Cd (325 nm) ir puslaidininkiniu InGaN (405 nm).

Laike integruotų liuminescencijos spektrų pločiai ir smailės padėties priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo pateiktos 14 pav. Didėjant žadinimo intensyvumui matomas liuminescencijos spektro smailės padėties slinkimas į didesnių energijų pusę (ang. *blueshift*). Jis atsiranda dėl dviejų efektų įtakos: vidinių elektrinių laukų ekranavimo bandiniuose ir juostų lygmenų pildymo. Dėl kvantinės sąspraudos Štarko efekto atsirandantys įtempimai yra ekranuojami nepusiausvirųjų krūvininkų, to pasekoje spektro smailės padėtis slenkasi į didesnių energijų pusę, o spektro plotis mažėja. Antras efektas, tai lokalizacijos būsenų užpildymas. Dėl netolygaus indžio pasiskirstymo aktyviojoje InGaN srityje atsiranda draustinės energijos juostos potencialo svyravimai [18][19]. Didėjant žadinimo intensyvumui, užpildomos mažiausios energijos būsenos ir pildomos aukštesnės energijos būsenos, kas lemia, jog spektras slenkasi į aukštesnių energijų pusę. Dėl šio proceso spektro plotis didėja[20]. Tą matome ir atliktų eksperimentų rezultatuose.

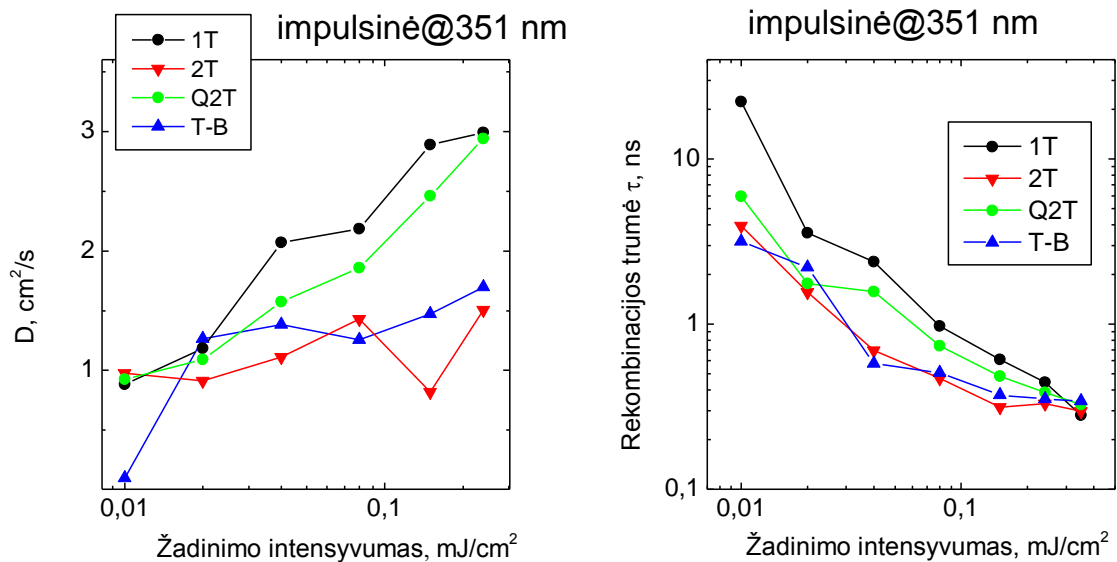
Bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis pasižymėjo didesniu liuminescencijos spektro pločiu (~140 meV), lyginant su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis (~120 meV) Didesnis liuminescencijos spektro plotis paaiškinamas didesnėmis indžio koncentracijos fliuktuacijomis.

14 pav. pavaizduotos punktyrinės linijos parodo žadinimo intensyvumus  $I_1$  ir  $I_2$ , prie kurių pasiekama didžiausia kvantinė išeiga. Bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis pasiekia šia vertę prie žadinimo intensyvumo  $I_1$ , o tolygaus -  $I_2$  ( $I_1 < I_2$ ). Neselektyvaus žadinimo atveju  $I_1=36 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ,  $I_2=140\mu\text{J}/\text{cm}^2$ , o selektyvaus žadinimo atveju  $I_1=32 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ,  $I_2=64\mu\text{J}/\text{cm}^2$ . Galime teigti, kad „droop“ efektas šiuose bandiniuose atsiranda dėl lokalizacijos centrų užpildymo. Panašios išvados daromos ir kitų autorių darbuose [21]. Kai kvantinė išeiga pasiekia didžiausią vertę liuminescencijos spektras pradeda platėti ir toliau didėjant žadinimo intensyvumui kvantinė išeiga mažėja. Šis efektas stebimas abiem žadinimo atvejais (neselektyvaus ir selektyvaus). Neselektyvaus žadinimo atveju netolygaus pločio kvantinėse duobėse lokalizacijos centrai užpildomi prie mažesnių žadinimo intensyvumų dėl didesnės, iš GaN barjero „sukrentančių“, nepusiausvirųjų krūvininkų įtakos.



**14 pav.** Liuminescencijos spektro smailės padėties priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo neselektyvaus (a) ir selektyvaus (b) žadinimo atveju. Krūvininkai generuojami impulsiniu PHAROS lazeriu.

Dinaminių difracinių gardelių metodu išmatuotos difuzijos koeficiento  $D$  vertės kvantinių duobių plokštumose pavaizduotos 15 pav. Nepusiausvirieji krūvininkai buvo generuojami neselektyviai, su 351 nm bangos ilgio spinduliuote. Didesnės difuzijos koeficiento vertės matomos bandiniuose su tolygaus storio kvantinėmis duobėmis. Difuzijos koeficiento vertės didėjant žadinimo intensyvumui didėjo nuo 1 iki 3  $\text{cm}^2/\text{s}$ . **2T** ir **T-B** bandiniai pasižymi mažesne difuzijos priklausomybe nuo žadinimo intensyvumo (prie didžiausio žadinimo intensyvumo difuzijos koeficiento vertė lygi 1,7  $\text{cm}^2/\text{s}$ ). Mažesnės difuzijos koeficiento vertės bandiniuose su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis parodo stipresnę krūvininkų lokalizaciją šiuose bandiniuose. Be to, šiuose bandiniuose išmatuotos krūvininkų rekombinacijos trukmės trumpesnės lyginant su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis. Tačiau mažesnėms difuzijos koeficiento vertėms įtakos gali turėti skirtinga struktūrų morfologija: šiuose bandiniuose į InGaN sluoksnį yra įsiterpę GaN intarpai, dėl to krūvininkams sudaromos kliūtys laisvai judėti kvantinės duobės plokštumoje. Matoma atvirkštinė koreliacija tarp difuzijos koeficiento ir krūvininkų gyvavimo trukmės gali būti aiškinama padidėjusia krūvininkų pernaša į nespindulinės rekombinacinius centrus [22].

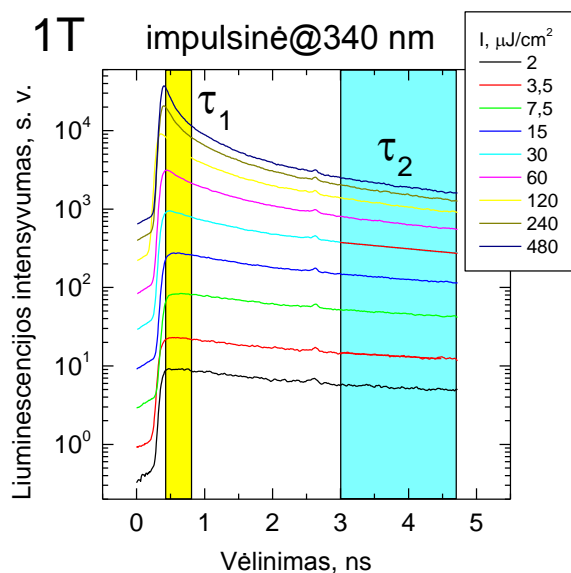


**15 pav.** Nepusiausvirųjų krūvininkų difuzijos koeficiento (a) bei rekombinacijos trukmės (b) priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo. Krūvininkai žadinami 351 nm bangos ilgio spinduliuote.

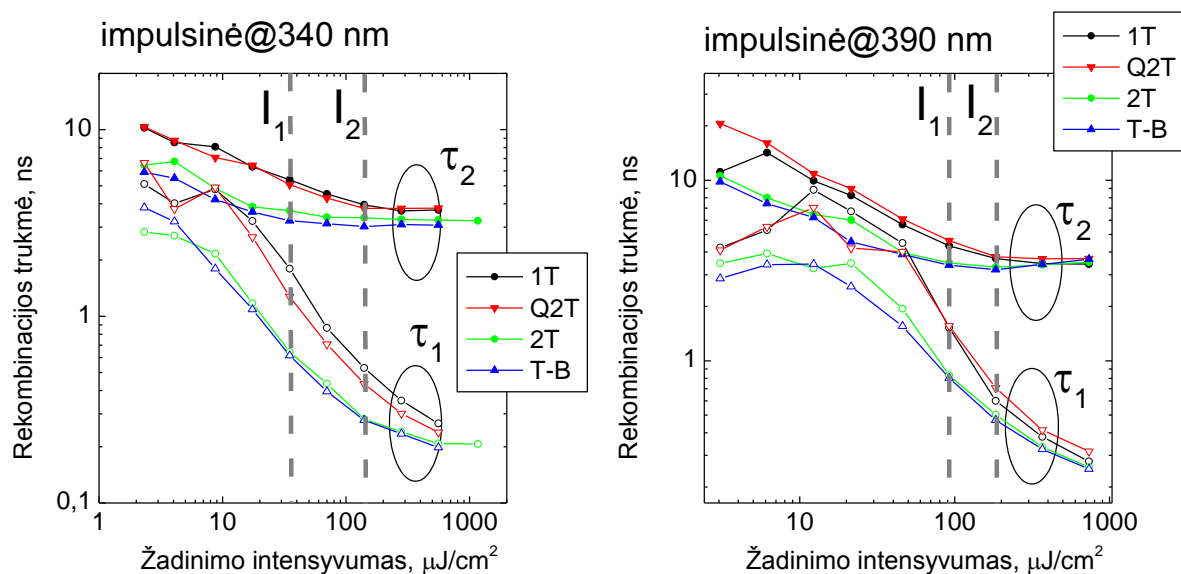
Liuminescencijos signalo gesimo kinetikos tirtuose bandiniuose buvo išmatuotos laikinės skyros fotoluminescencijos metodu (ang. TRPL – Time-resolved photo-luminescence). Šie matavimai leidžia matyti ne tik liuminescencijos spektrą, bet ir liuminescencijos signalo gesimo spartą. Spektre integruotos liuminescencijos kinetikų priklausomybės nuo žadinimo pavaizduotos 16 pav. Didėjant žadinimo intensyvumui, matoma greitėjanti pradinė kinetikos dalis.

17 pav. pavaizduotos krūvininkų rekombinacijos trukmės  $\tau_1$  ir  $\tau_2$  nuo žadinimo intensyvumo neselektyvaus ir selektyvaus žadinimo atvejais. Iš priklausomybių matyti, kad nepriklausomai nuo žadinančiojo spindulio bangos ilgio, spartesne rekombinacija visame tirtame žadinimo intensyvumų intervale pasižymi bandiniai su netolygaus storio kvantinėmis duobėmis (**2T** ir **T-B**). Barjerų auginimo temperatūros įtaka krūvininkų rekombinacijos trukmėms nebuvo stebėta.

Punktyrinės linijos žymi žadinimo intensyvumą, prie kurio bandinių kvantinės išeigos didžiausios: bandinių **2T** ir **T-B** maksimali kvantinė išeiga prie  $I_1$  žadinimo intensyvumo, **1T** ir **Q2T** prie  $I_2$ . Neselektyvaus žadinimo atveju  $I_1=36 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ,  $I_2=140 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , o selektyvaus žadinimo atveju  $I_1=32 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ,  $I_2=64 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ . Pastebėta, kad pasiekus šiuos slenkstinius žadinimo intensyvumus, krūvininkų rekombinacijos trukmė  $\tau_2$  įsisotina ir jos beveik sutampa neselektyvaus ir selektyvaus žadinimo atveju (vertės pateiktos 2 lentelėje).



**16 pav.** Bandinio su tolygaus storio kvantinėmis duobėmis (1T) liūmescencijos kinetikos prie skirtingo žadinimo intensyvumo. Nepusiausvirieji krūvininkai generuojami impulsiskai 340 nm bangos ilgio spinduliuote.

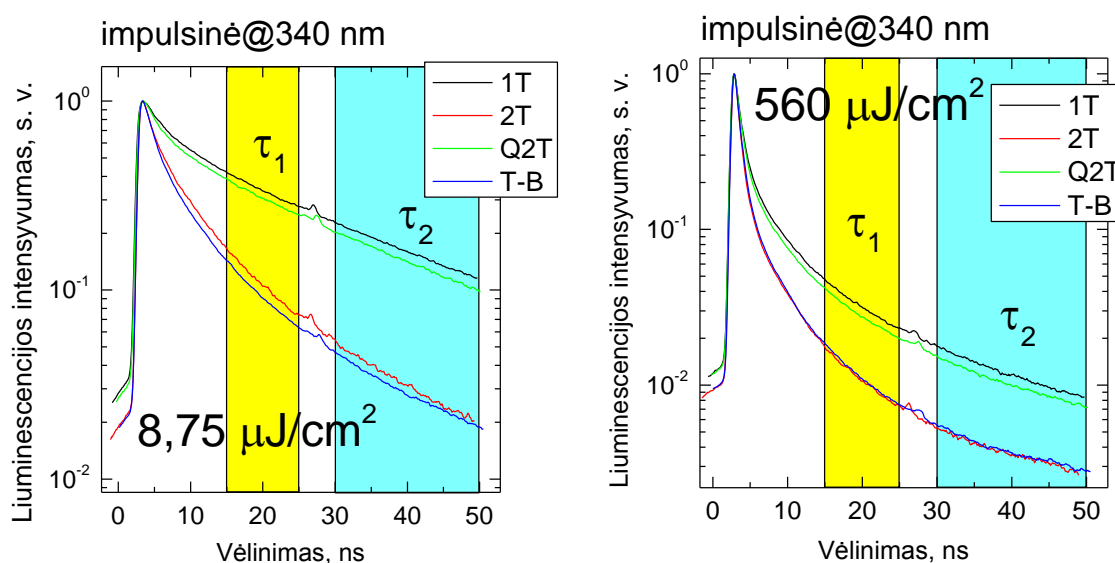


**17 pav.** Laikinės skyros liūmescencijos krūvininkų rekombinacijos trukmės priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo neselektyvaus ir selektyvaus žadinimo atvejais.

**2 lent.** Krūvininkų rekombinacijos trukmės ( $\tau_2$ ), kai žadinimo intensyvumai didesni už slenkstinį (didžiausios kvantinės išeigos).

Žadinančios spinduliuotės bangos ilgis	<b>1T</b> Tolygaus storio kvantinės duobės	<b>Q2T</b> Tolygaus storio kvantinės duobės	<b>2T</b> Kintamo storio kvantinės duobės	<b>T-B</b> Kintamo storio kvantinės duobės
340 nm	3,8 ns	3,8 ns	3,3 ns	3,1 ns
380 nm	3,5 ns	3,7 ns	3,4 ns	3,3 ns

Taip pat buvo išmatuotos laikinės skyros liuminescencijos kinetikos su ilgesniu šviesos rinkimo langu (50 ns) lėtesniems liuminescencijos procesams stebėti (18 pav.) Kaip ir spartesniuose procesuose, trumpesnėmis krūvininkų gyvavimo trukmėmis pasižymi bandiniai su kintamo storio kvantinėmis duobėmis. Išmatuotos krūvininkų gyvavimo trukmės pavaizduotos 3 lentelėje. Bandiniuose su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis matomas didelis rekombinacijos trukmės  $\tau_1$  pokytis stipraus ir silpno žadinimo intensyvumo atvejais (neselektyvaus žadinimo atveju **1T** bandinyje  $\tau_1 = 13$  ns, kai žadinimo intensyvumas lygus  $560 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  ir  $\tau_1 = 23$  ns, kai žadinimo intensyvumas  $8,75 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ), tuo tarpu bandiniuose su kintamo storio kvantinėmis duobėmis rekombinacijos trukmė  $\tau_1$  kito nedaug (**2T**  $\tau_1 = 9,9$  ns, prie  $560 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  ir  $\tau_1 = 11,4$  ns prie  $8,75 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ). **1T** ir **Q2T** bandiniuose ilgesni rekombinacijos laikai mažų žadinimų srityje gali būti paaiškinti kvantinės sąspraudos Štarko efektu. Kvantinės sąspraudos Štarko efektas stipriau pasireiškia bandiniuose su platesnėmis kvantinėmis duobėmis (**1T** ir **Q2T** bandiniuose kvantinių duobių pločiai – 2,6 ir 2,4 nm, kai tuo tarpu **2T** ir **T-B** bandiniuose struktūrinių parametrų nebuvo galima nustatyti dėl didelių kvantinės duobės pločio fliktuacijų) [23].

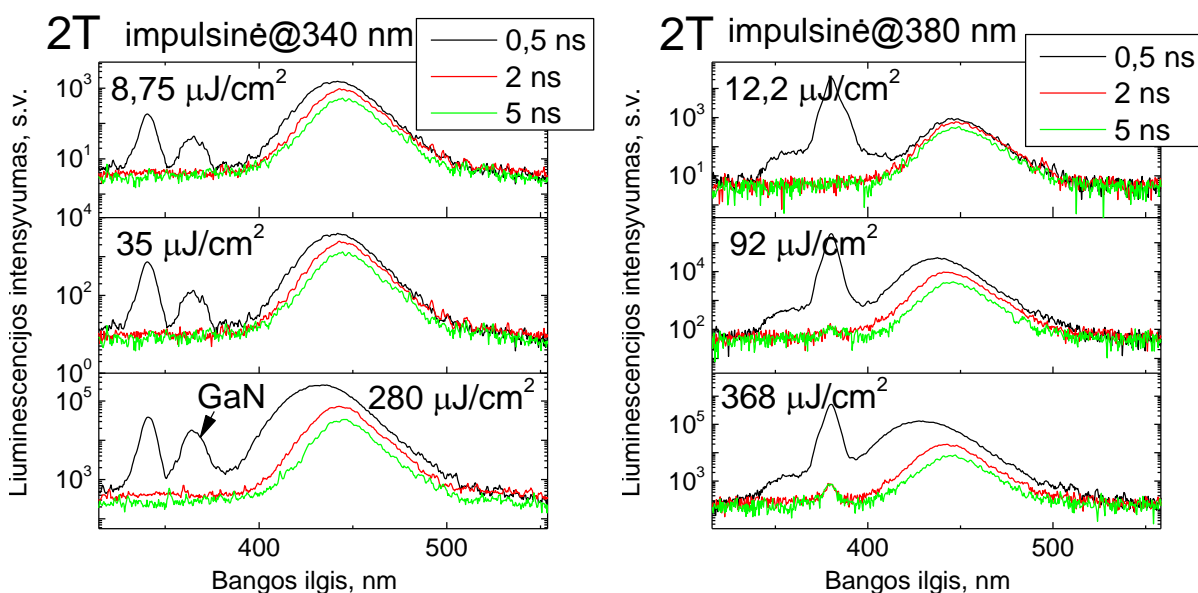


**18 pav.** Laikinės skyros fotoluminescencijos kinetikos prie skirtingų žadinimo intensyvumų. Krūvininkai generuojami neselektyviai, su 340 nm bangos ilgio spinduliuote

**3 lent.** Laikinės skyros fotoluminescencijos gyvavimo trukmės  $\tau_1$  ir  $\tau_2$ . Šviesos rinkimo langas 50 ns.

Žadinančios spinduliuotės bangos ilgis		Žadinimo intensyvumas	<b>1T</b>	<b>Q2T</b>	<b>2T</b>	<b>T-B</b>
			Tolygaus storio kvantinės duobės	Tolygaus storio kvantinės duobės	Kintamo storio kvantinės duobės	Kintamo storio kvantinės duobės
340 nm	$\tau_1$	560 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	13 ns	13 ns	9,9 ns	10,7 ns
		8,75 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	23 ns	22,6 ns	11,4 ns	12 ns
	$\tau_2$	560 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	25,5 ns	26,5 ns	28,2 ns	29,8 ns
		8,75 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	28,8 ns	27,5 ns	19,2 ns	21,6 ns
380 nm	$\tau_1$	368 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	13,8 ns	13,6 ns	11,4 ns	11,8 ns
		12,2 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	21,4 ns	21,8 ns	13,5 ns	14 ns
	$\tau_2$	368 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	28,8 ns	27,5 ns	37,8 ns	28,9 ns
		12,2 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	27,6 ns	27 ns	24 ns	24 ns

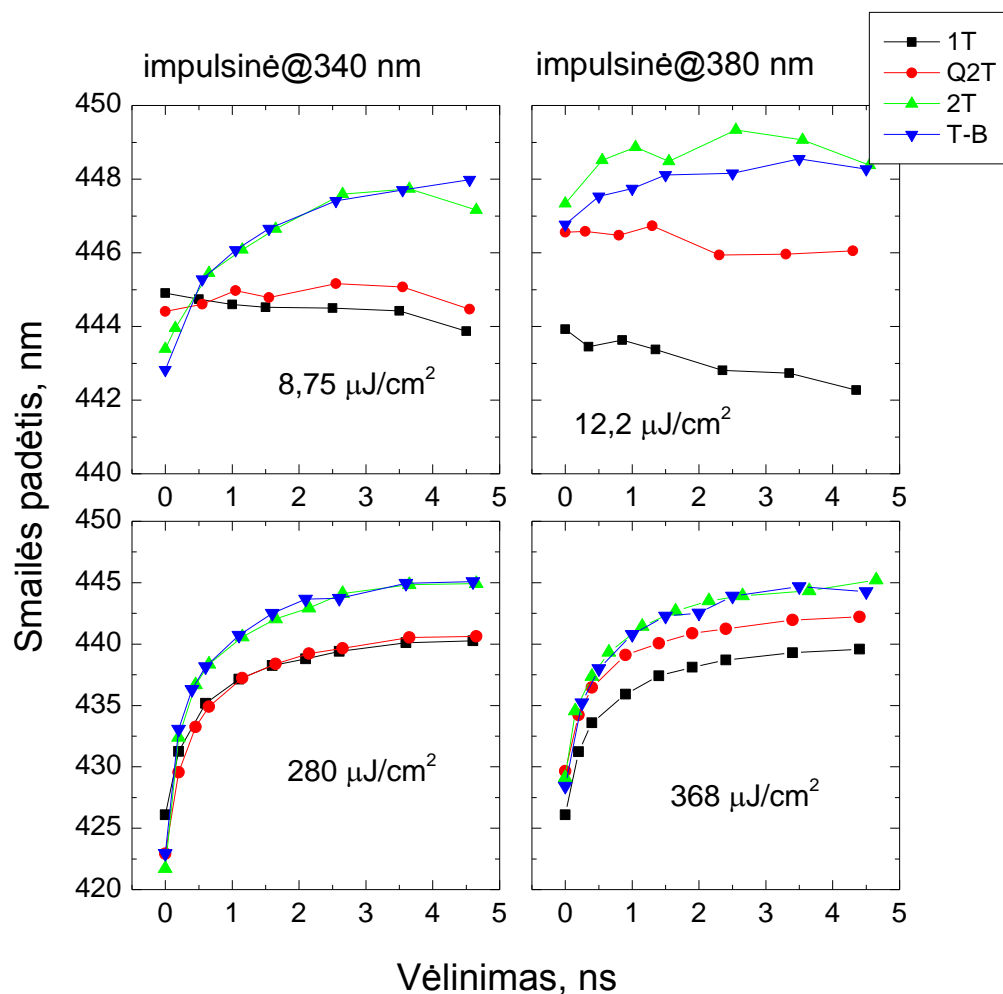
Laikinės skyros fotoluminescencijos matavimai leidžia stebėti, kaip atrodo liuminescencijos spektras skirtingais laiko momentais po sužadavimo. 19 pav. matoma, kaip atrodo liuminescencijos spektrai iškart po sužadavimo ir praėjus 5 ns. Iškart po sužadavimo, spektrai pasislinkę į trumpesnių bangų pusę ir jie yra išplitę. Kuo žadinimo intensyvumas stipresnis, tuo poslinkis ir išplitimas didesnis. 19 pav. matyti spektro smailės padėties priklausomybė nuo laiko po sužadavimo.



**19 pav.** Laikinės skyros fotoluminescencijos spektrai skirtingais laiko momentais po sužadavimo, prie skirtingų žadinimo intensyvumų. Krūvininkai generuojami 340 nm ir 380 nm bangos ilgio spinduliuotėmis.

Mažuose žadinimų intensyvumuose (neselektyvaus žadinimo atveju  $8,75 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , selektyvaus –  $12,2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ) bandinių su tolygaus storio kvantinėmis duobėmis liuminescencijos spektrų smailės poslinkis buvo mažas (iki 1 nm) ir jis buvo į trumpesnių bangų pusę. Bandiniuose su kintamo storio kvantinėmis duobėmis matomas liuminescencijos spektro poslinkis į ilgesnių bangų pusę (neselektyvaus žadinimo atveju poslinkis 5 nm, o selektyvaus apie 1 nm). Didesnis spektro smailės poslinkis neselektyvaus žadinimo atveju galėtų būti paaikškinimas didesniais nepusiausvirųjų krūvininkų tankiais, nes krūvininkai generuojami ne tik kvantinėse duobėse, bet ir barjeruose, iš kurių vėliau krūvininkai „sukrenta“ į kvantines duobes.

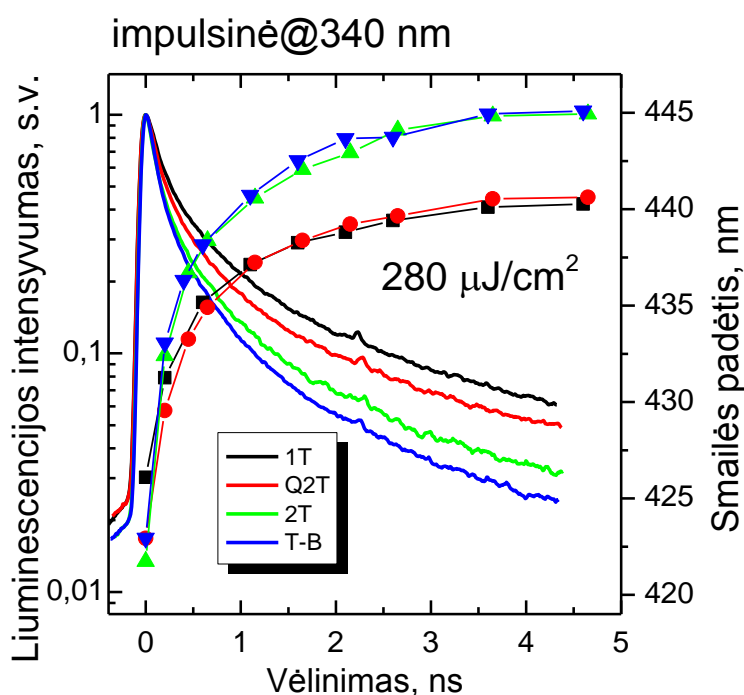
Dideliuose žadinimo intensyvumuose (neselektyvaus žadinimo atveju  $280 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ , selektyvaus –  $368 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ), didesniuose už slenkstinius intensyvumus (kuriuose didžiausia kvantinė išeiga), matomas didelis liuminescencijos smailės spektro poslinkis į ilgesnių bangų pusę per pirmąją nanosekundę po sužadavimo. Vėliau smailės slinkimosi greitis sumažėja. Šis poslinkis atsiranda dėl užpildomų lokalizuotų būsenų.



20 pav. Bandinių liuminescencijos spektro smailės padėtys skirtingais laiko momentais po sužadavimo.



Pastebėta koreliacija tarp laikinės skyros liuminescencijos intensyvumo kinetikos ir smailės spektro padėties tam tikrais momentais po sužadavimo 21 pav. Iškart po sužadavimo matomi spartūs rekombinacijos procesai, tuo pačiu ir didelis liuminescencijos smailės poslinkis į ilgesnių bangų pusę. Ilgėjant rekombinacijos trukmėms, smailės slinkimas į ilgesnių bangų pusę lėtėja. Toks ryškus smailės poslinkis iškart po sužadavimo atsiranda dėl būsenų užpildymo, kai užpildomos apatinės, mažiausios energijos būsenos, ir toliau pildomos aukštesnės energijos būsenos. Iš koreliacijos galima teigti, jog krūvininkų gyvavimo trukmės aukštesnėse energetinėse būsenose trumpesnės negu žemų energijų būsenose. Bandiniai su kintamo storio kvantinėmis duobėmis pasižymi spartesnėmis rekombinacijos trukmėmis ir didesniu liuminescencijos spektro smailės poslinkiu po sužadavimo



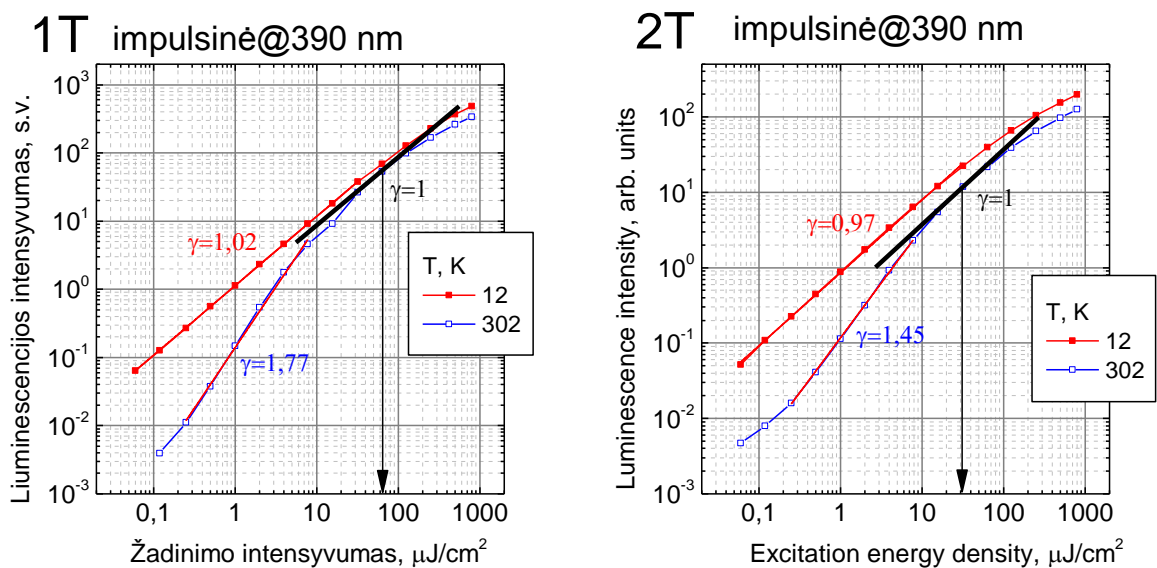
**21 pav.** Laikinės skyros liuminescencijos kinetikos ir liuminescencijos spektro smailės padėtys skirtingais laiko momentais po sužadavimo

Siekiant geriau suvokti nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką InGaN/GaN šviestukų aktyviojoje srityje atlikti laike integruotos liuminescencijos matavimai temperatūros intervale nuo 12 K iki 302 K. Nepusiausvirieji krūvininkai buvo generuojami 390 nm bangos ilgio spinduliuote. Liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo pateikta 22 pav.

Laikydami, kad liuminescencijos intensyvumas laipsniškai priklauso nuo žadinimo intensyvumo  $L_{PL} \propto I_{zad}^\gamma$  [20][24], galime nustatyti, koks yra vyraujantis rekombinacijos procesas. Kai  $\gamma=2$  vyrauja nespindulinė rekombinacija (*Shockley – Read – Hall* rekombinacija). Kai  $\gamma = 1$ ,

dominuoja spindulinė rekombinacija, nes  $\tau_{spind}(N) \propto 1/BN$ , kur B yra bimolekulinės rekombinacijos koeficientas, o N nepusiausvirųjų krūvininkų tankis [25]. Didelių žadinimo intensyvumų srityje,  $\gamma < 1$  ir tai yra išaugusios nespindulinės rekombinacijos pasekmė.

Žemoje temperatūroje (12K), visuose bandiniuose  $\gamma = 1$ , vadinasi dominuoja spindulinė krūvininkų rekombinacija. 302 K temperatūroje  $\gamma > 1$ . Bandiniuose, su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis  $\gamma$  koeficientai lygus 1,45 ir 1,55 (atitinkamai **2T** ir **T-B** bandiniuose), o bandiniuose su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis  $\gamma$  koeficientai lygus 1,77 ir 1,62 (atitinkamai **1T** ir **Q2T** bandiniuose). Mažesnės  $\gamma$  koeficiento **2T** ir **T-B** vertės parodo mažesnę nespindulinės rekombinacijos indelį šiuose bandiniuose lyginant su **1T** ir **Q2T**. Didėjant žadinimo intensyvumui, liuminescencijos intensyvumo kreivės polinkio koeficientas  $\gamma$  mažėja. Kai  $\gamma = 1$ , laikome, kad visi nespindulinės rekombinacijos centrai išotinti. Iš 22 pav. matome, kad **1T** ir **Q2T** bandiniuose nespinduliniai rekombinacijos centrai yra išotinami prie didesnių žadinimo intensyvumų lyginant su **2T** ir **T-B** bandiniais, vadinasi bandiniuose su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis yra mažesnė nespindulinių rekombinacijos centrų koncentracija.



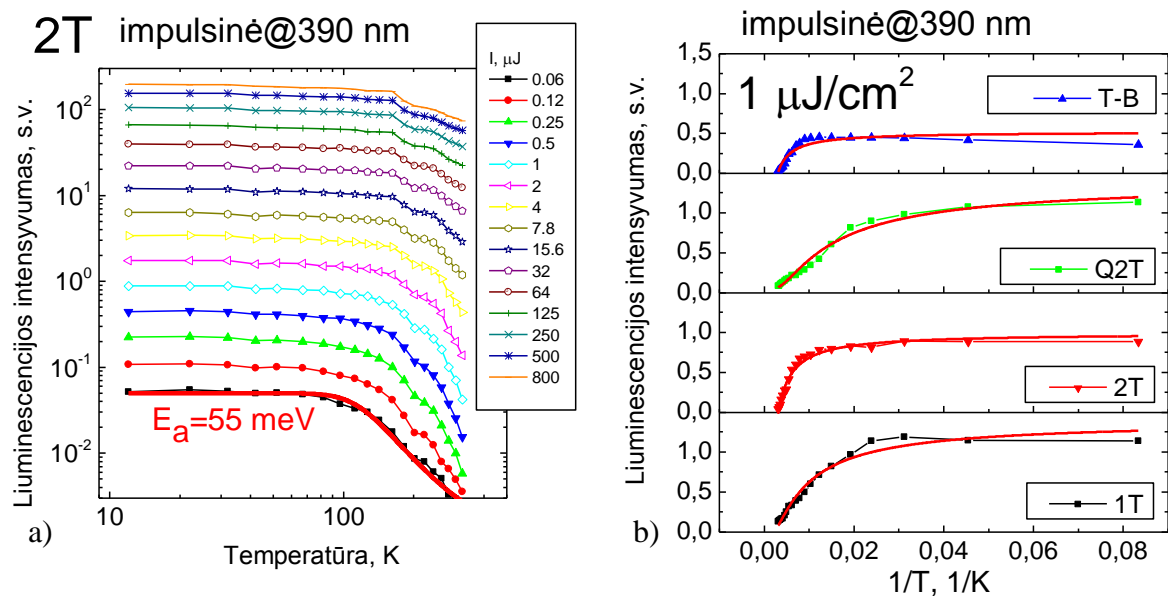
**22pav.** Liuminescencijos intensyvumų priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo prie skirtingų temperatūrų bandiniuose su tolygaus (**1T**) ir netolygaus (**2T**) pločio kvantinėmis duobėmis.

Iš liuminescencijos intensyvumo priklausomybės nuo temperatūros (23 pav.) galima nustatyti aktyvacijos energiją naudojant Arenijaus funkciją [26]:

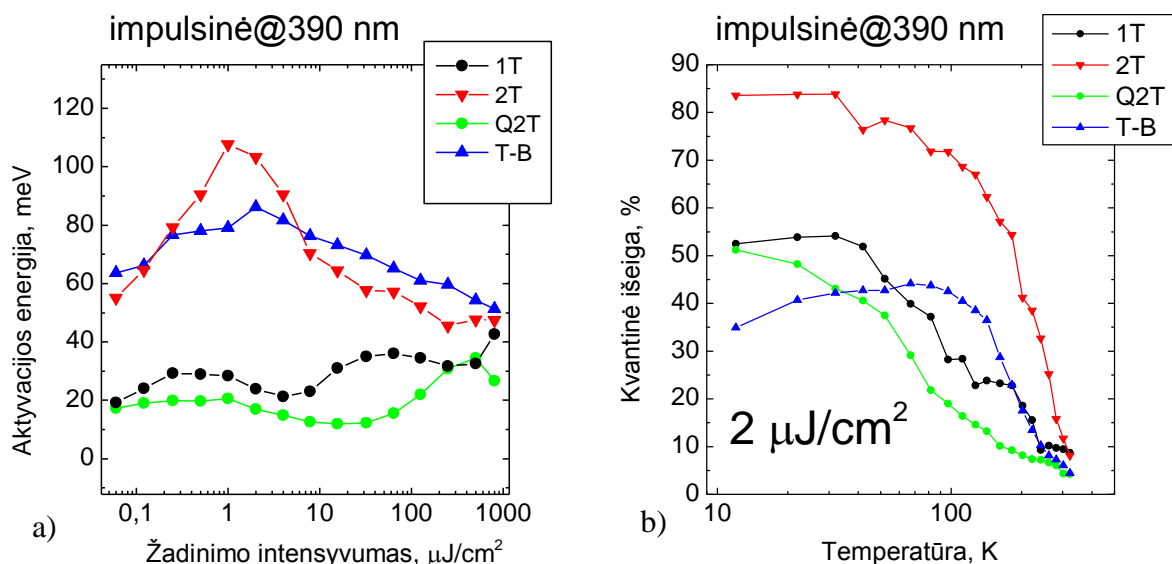
$$I(T) = \frac{I_0}{1 + c \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right)}$$

(26)

Aktyvacijos energijos vertė parodo, kiek nepusiausviriesiems krūvininkams reikia energijos, kad jie būtų delokalizuojami. **2T** ir **T-B** bandiniuose aktyvacijos energija priklausomai nuo žadinimo kito intervale nuo 45 iki 108 meV ir buvo didesnė nei **1T** ir **Q2T** bandiniuose, kuriuose aktyvacijos energija kito nuo 15 iki 42 meV. Galima daryti išvadą, kad netolygaus storio kvantinėse duobėse lokalizacijos centrai gilesni negu tolygaus storio duobėse.

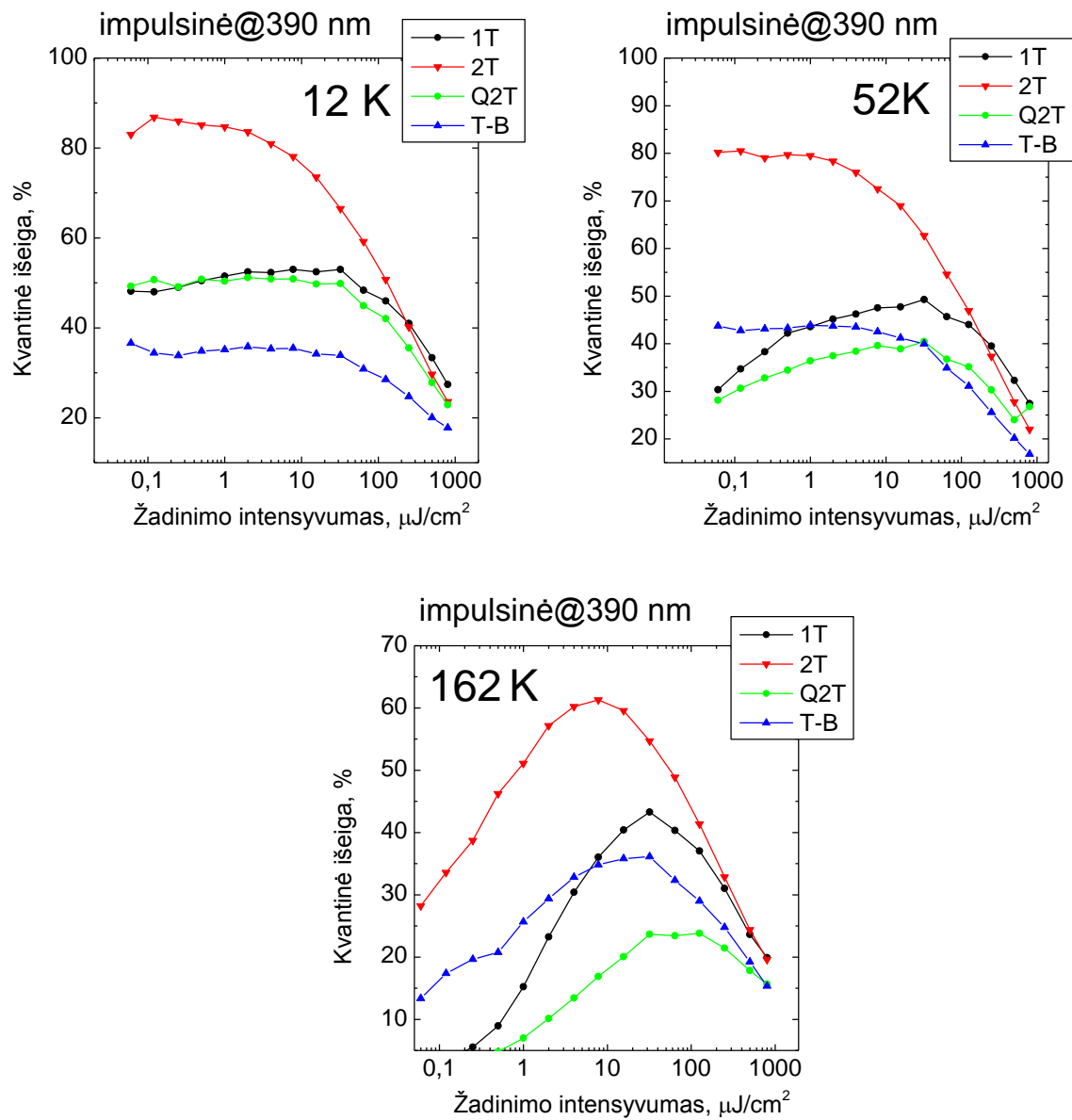


**23 pav.** 2T bandinio laike integruotos liuminescencijos intensyvumo priklausomybė nuo temperatūros prie skirtingo žadinimo intensyvumo (a), skirtingiems bandiniams, kai žadinimo intensyvumas  $1 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  (b).



**24 pav.** Aktyvacijos energijos priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo (a) ir bandinių kvantinės išieigos priklausomybė nuo temperatūros žadinant su  $2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  (b).

Išmatavus bandinių liuminescencijos efektyvumus prie 12K, 52K ir 162 K, gautos kvantinės išeigos priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo (25 pav.). Matome, kad didžiausia kvantine išeiga pasižymi **2T** bandinys su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis. Prieš tai aptarta, kad kvantinę išeigą prie didelių žadinimo intensyvumų riboja lokalizuotų būsenų užpildymas, o mažų sužadinių srityje nespinduliniai centrai. 12 K temperatūroje matyti, kad mažose žadinimų intensyvumuose vyrauja spindulinė rekombinacija. Tačiau didėjant temperatūrai, didėja termiškai aktyvuotų nespindulinių rekombinacijos centrų koncentracija. 52K temperatūroje matyti, kad bandiniuose su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis (**2T** ir **T-B**) šių centrų įtaka dar nepasireiškia, kai tuo tarpu **1T** ir **Q2T** bandiniuose jau matoma nespindulinės rekombinacijos įtaka. 162 K temperatūroje, **2T** ir **T-B** nespindulinė rekombinacija taip pat mažiau įtakoja kvantinę išeigą, todėl galima teigti, kad šiuose bandiniuose mažesnis nespindulinių rekombinacijos centrų tankis. Panaši išvada buvo padaryta ir kitų autorių darbuose [3].



**25 pav.** Kvantinės išieigos priklausomybė nuo žadinimo intensyvumo prie skirtingų temperatūrų (12, 52 ir 162 K)

## Išvados

1. InGaN struktūrose su kintamo pločio kvantinėmis duobėmis difuzijos koeficiento  $D$  vertės yra mažesnės. Mažesnes  $D$  vertes nulemia stipresnė krūvininkų lokalizacija ir kvantinių duobių trūkiai (GaN intarpai InGaN sluoksnyje), kurie apriboja nepusiausvirujų krūvininkų judėjimą kvantinės duobės plokštumoje.
2. Kvantinės išeigos ir liuminescencijos spektro pločio priklausomybės nuo sužadavimo energijos tankio koreliuoja visuose tirtuose bandiniuose. Pradėjus platėti liuminescencijos spektrui, stebimas kvantinės išeigos sumažėjimo efektas, kurį lemia lokalizuotų būsenų užpildymas ir spartesnė krūvininkų pernaša į nespindulinės rekombinacijos centrus.
3. Netolygaus pločio kvantinėse duobėse susidaro gilesni krūvininkų lokalizacijos centrai negu tolygaus pločio duobėse. Tai rodo didesnės krūvininkų aktyvacijos energijos vertės **2T** ir **T-B** bandiniuose.
4. Neselektyvaus žadinimo atveju bandiniai su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis pasiekia didžiausią kvantinės išeigos vertę prie mažesnių žadinimo intensyvumų lyginant su tolygaus pločio kvantinėmis duobėmis dėl didesnės krūvininkų „sukrentančių“ iš GaN barjerų įtakos.

## Literatūra

- [1] S. T. Pendlebury, P. J. Parbrook, D. J. Mowbray, D. a. Wood, and K. B. Lee, “InGaN/GaN quantum wells with low growth temperature GaN cap layers,” *J. Cryst. Growth*, vol. 307, no. 2, pp. 363–366, 2007.
- [2] R. A. Oliver, F. C.-P. Massabuau, M. J. Kappers, W. A. Phillips, E. J. Thrush, C. C. Tartan, W. E. Blenkhorn, T. J. Badcock, P. Dawson, M. A. Hopkins, D. W. E. Allsopp, and C. J. Humphreys, “The impact of gross well width fluctuations on the efficiency of GaN-based light emitting diodes,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 14, p. 141114, 2013.
- [3] M. J. Wallace, P. R. Edwards, M. J. Kappers, M. A. Hopkins, F. Oehler, S. Sivaraya, R. A. Oliver, C. J. Humphreys, D. W. E. Allsopp, and R. W. Martin, “Effect of the barrier growth mode on the luminescence and conductivity micron scale uniformity of InGaN light emitting diodes,” *J. Appl. Phys.*, vol. 117, no. 11, p. 115705, 2015.
- [4] J. Linnros, “Carrier lifetime measurements using free carrier absorption transients. I. Principle and injection dependence,” *J. Appl. Phys.*, vol. 84, no. 1, p. 275, 1998.
- [5] a. Di Carlo, “Tuning optical properties of GaN-based nanostructures by charge screening,” *Phys. Status Solidi Appl. Res.*, vol. 183, no. 1, pp. 81–85, 2001.
- [6] Y. Arakawa, “Progress in GaN-based quantum dots for optoelectronics applications,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 8, no. 4, pp. 823–832, 2002.
- [7] A. Krotkus, *Puslaidininkų optoelektronikos sistemos ir prietaisai*. Vilnius: Progetus, 2008.
- [8] G. Tamulaitis and G. Juška, *Energiją taupančios puslaidininkinės technologijos*. Progetus, 2008.
- [9] S. M. Olaizola, S. T. Pendlebury, J. P. O’Neill, D. J. Mowbray, a G. Cullis, M. S. Skolnick, P. J. Parbrook, and a M. Fox, “Influence of GaN barrier growth temperature on the photoluminescence of InGaN/GaN heterostructures,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 35, pp. 599–603, 2002.
- [10] Y. Wang, X. J. Pei, Z. G. Xing, L. W. Guo, H. Q. Jia, H. Chen, and J. M. Zhou, “Effects of barrier growth temperature ramp-up time on the photoluminescence of InGaN/GaN quantum wells,” *J. Appl. Phys.*, vol. 101, no. 3, p. 033509, 2007.

- [11] R. W. Martin, P. G. Middleton, K. P. O. Donnell, and W. Van Der Stricht, “Exciton localization and the Stokes’ shift in InGaN epilayers,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, no. 2, p. 263, 1999.
- [12] D. M. Graham, P. Dawson, M. J. Godfrey, M. J. Kappers, P. M. F. J. Costa, M. E. Vickers, R. Datta, C. J. Humphreys, and E. J. Thrush, “High quantum efficiency InGaN/GaN structures emitting at 540 nm,” *Phys. Status Solidi Curr. Top. Solid State Phys.*, vol. 3, no. 6, pp. 1970–1973, 2006.
- [13] E. Matioli and C. Weisbuch, “Direct measurement of internal quantum efficiency in light emitting diodes under electrical injection,” *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 7, pp. 0–14, 2011.
- [14] K. Nomeika, “KRŪVININKŲ REKOMBINACIJOS IR DIFUZIJOS PROCESŲ TYRIMAS OPTINIAIS METODAIS (IN,GA)N ŠVIESTUKŲ AKTYVIOJOJE SRITYJE,” 2014.
- [15] K. Jarašiūnas, *Šiuolaikinių puslaidininkinių darinių optinė diagnostika*. ProgreTus, 2008.
- [16] H. J. Eichler, P. Günter, and D. W. Pohl, *Laser-induced dynamic gratings*. Springer-Verlag.
- [17] S. Leyre, E. Coutino-Gonzalez, J. J. Joos, J. Ryckaert, Y. Meuret, D. Poelman, P. F. Smet, G. Durinck, J. Hofkens, G. Deconinck, and P. Hanselaer, “Absolute determination of photoluminescence quantum efficiency using an integrating sphere setup,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 12, 2014.
- [18] S. Chichibu, “Exciton localization in InGaN quantum well devices,” *J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct.*, vol. 16, no. 4, p. 2204, Jul. 1998.
- [19] T. Wang, D. Nakagawa, M. Lachab, T. Sugahara, and S. Sakai, “Optical investigation of InGaN/GaN multiple quantum wells,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, no. 21, p. 3128, 1999.
- [20] Y. J. Lee, C. H. Chiu, C. C. Ke, P. C. Lin, T. C. Lu, H. C. Kuo, and S. C. Wang, “Study of the excitation power dependent internal quantum efficiency in InGaN/GaN LEDs grown on patterned sapphire substrate,” *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, vol. 15, no. 4, pp. 1137–1143, 2009.
- [21] S. Hammersley, D. Watson-Parris, P. Dawson, M. J. Godfrey, T. J. Badcock, M. J. Kappers, C. McAleese, R. A. Oliver, and C. J. Humphreys, “The consequences of high injected carrier densities on carrier localization and efficiency droop in InGaN/GaN quantum well structures,” *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 8, p. 083512, 2012.
- [22] R. Aleksiejunas, K. Gelžinyte, S. Nargelas, K. Jarašiūnas, M. Vengris, E. a. Armour, D. P.



- Byrnes, R. a. Arif, S. M. Lee, and G. D. Papasouliotis, "Diffusion-driven and excitation-dependent recombination rate in blue InGaN/GaN quantum well structures," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 104, no. 2, pp. 0–4, 2014.
- [23] T. Kuroda and A. Tackeuchi, "Influence of free carrier screening on the luminescence energy shift and carrier lifetime of InGaN quantum wells Influence of free carrier screening on the luminescence energy shift and carrier lifetime of InGaN quantum wells," vol. 3071, no. May 2016, pp. 3–7, 2013.
- [24] E. Redondo and A. Ojeda, "Influence of defects on the electrical and optical characteristics of blue light-emitting diodes based on III – V nitrides," *J. Appl. Phys.*, vol. 81, no. 5, pp. 2442–2444, 2001.
- [25] X. Li, S. Okur, F. Zhang, S. a. Hafiz, V. Avrutin, Ü. Özgür, H. Morko, and K. Jaraiunas, "Improved quantum efficiency in InGaN light emitting diodes with multi-double-heterostructure active regions," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, no. 4, 2012.
- [26] J. Mickevičius, G. Tamulaitis, J. Jurkevičius, M. S. Shur, M. Shatalov, J. Yang, and R. Gaska, "Efficiency droop and carrier transport in AlGaIn epilayers and heterostructures," *Phys. Status Solidi*, vol. 252, no. 5, pp. 961–964, 2015.

## Santrauka

Per pastarąjį dešimtmetį pagerėjusios InGaN šviesą skleidžiančių diodų (LED) charakteristikos leido šviestukams skverbtis į lauko ir vidaus apšvietimo rinkas. Pagrindinis sunkumas auginant InGaN/GaN heterosandaras – tai lokalizaciją lemiančio In įterpimas. Šiame darbe tiriama keturių InGaN/GaN sandarų rinkinys: dviejų kvantinių bandinių barjerai buvo užauginti žemesnėje temperatūroje nei optimali ir dviejuose bandiniuose padidinta indžio kiekio fliuktuacija dėl staigaus temperatūros pakėlimo barjero auginimo metu. Skirtingos auginimo sąlygos pasirinktos tam, kad atskirti dviejų efektų įtaką: defektų koncentraciją barjeruose ir indžio koncentracijos fliuktuaciją kvantinėse duobėse. Bandiniai buvo tiriami laikinės skyros (LSFL) ir laike integruotos fotoluminescencijos (FL), skirtuminio pralaidumo (SP) ir dinaminių difrakcinių gardelių (DDG) metodikomis.

Pastebėta, kad dėl skirtingos struktūros morfologijos, bandiniai su kintamo storio kvantinėmis duobėmis pasižymi mažesnėmis difuzijos koeficiento vertėmis negu tolygaus storio kvantinėmis duobėmis. Šiuose bandiniuose į InGaN sluoksnį yra įsiterpę GaN intarpai, to todėl krūvininkams sudaromos kliūtys judėti. Išmatuotos aktyvacijos energijos parodė, kad kintamo storio kvantinėse duobėse lokalizacijos centrai gilesni negu tolygaus storio duobėse. Luminescencijos spektro pločio ir kvantinės išeigos priklausomybės nuo žadinimo intensyvumo parodė, kad lokalizacijos centrų užpildymas lemia kvantinės išeigos „droop“ efektą. Luminescencijos intensyvumo priklausomybę nuo žadinimo intensyvumo galima užrašyti proporcija:  $I_{PL} \propto I_{zad}^{\gamma}$ . Mažesnės polinkio koeficiento  $\gamma$  vertės parodo, kad bandiniuose su netolygaus pločio kvantinėmis duobėmis yra mažesnės nespindulių rekombinacijos centrų įtaka.

## Summary

Donatas Dargis

### CARRIER DYNAMICS IN InGaN QUANTUM WELLS WITH GROSS WELL WIDTH FLUCTUATIONS

Over the last decade, performance of InGaN-based light emitting diodes (LEDs) has improved considerably to the point where they are now penetrating the outdoor and indoor general lighting. One of the key issues in the manufacture of - high efficiency nitride-based heterostructures is the control of the In-composition in the  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  quantum wells (QWs). One common approach is to grow the GaN barriers between the QWs at a higher temperature than the InGaN QWs themselves. This high temperature barrier growth has two potential impacts: reducing the density of defects in the barrier material and altering the morphology or composition distribution of the InGaN QW itself. In this work, there was investigated a matrix of four samples, which was designed to separate the two effects: quality of GaN barrier and gross well-width fluctuations. Samples were measured by the following methods: photoluminescence (PL), time resolved photoluminescence (TRPL), differential transmission (DT) and light-induced transient gratings (LITG).

It was noticed, that the lower coefficient of diffusion for samples with gross well-width fluctuations can be explained by the width of the QW reducing to zero in several places, leaving a “gap” which is filled with GaN. The higher activation energy  $E_a$  indicates the deeper localization states in samples with gross well-width fluctuations. Dependence of luminescence intensity can be written as a proportion:  $L_{PL} \propto I_{\text{exc}}^\gamma$ , and lower  $\gamma$  value in samples with gross well-width fluctuations shows, that lower density of non-radiative recombination centres exist in this region. Internal quantum efficiency and FWHM of luminescence spectra dependence on excitation intensity show, that saturation of localized states has influence on luminescence efficiency droop.

Dėkoju magistrantūros studijų baigiamojo darbo vadovui dr. Sauliui Nargelui už suteiktas vertingas pastabas ir patarimus. Dėkoju prof. habil. dr. Kęstučiui Jarašiūnui, Kazimierui Nomeikai už didelę pagalbą atliekant eksperimentą, pastabas, patarimus, bei konsultacijas sprendžiant iškilusias problemas. Taip pat dėkoju Pauliui Baronui už TRPL matavimus.