

Vilniaus universiteto
Fizikos fakulteto
Fotonikos ir nanotechnologijų institutas

Mariamija Nikitina
DEFEKTŲ ĮTAKA InGaN JUNGINIŲ LIUMINESCENCIJOS SAVYBĖMS
MIKROSKOPINIAME MASTELYJE

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Optoelektronikos medžiagų ir technologijų
studijų programa

Studentė

Mariamija Nikitina

Leista ginti

2021-05-20

Darbo vadovas

dr. Žydrūnas Podlipskas

Instituto atstovas

doc. dr. Saulius Nargelas

Vilnius 2021

Turinys

Įvadas.....	3
1. Literatūros apžvalga	4
1.1. III-nitridų grupė	4
1.2. Kristalų poliškumas	4
1.3. Defektai nitriduose.....	7
1.4. InGaN auginimas ir susijusios problemos	7
2. Charakterizavimo metodai	10
2.1. Skenuojanti elektronų mikroskopija	10
2.1.1. Elektronų-medžiagos sąveika	10
2.1.2. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika puslaidininkyje.....	11
2.1.3. Skenuojantis elektronų mikroskopas	14
2.2. Katodoliuminescencija su erdvine ir laikine skyra	14
2.3. Eksperimentinė dalis.....	15
3. Tirti bandiniai.....	16
4. Pagrindiniai rezultatai ir jų analizė.....	18
4.1. Defektų tankio nustatymas poliniuose bandiniuose.....	18
4.2. CL intensyvumo priklausomybė nuo defektų tankio	20
4.2.1. CL intensyvumo priklausomybė nuo <i>v-pits</i> defektų tankio poliniuose InGaN	21
4.2.2. InGaN/GaN supergardelės įtaka liuminescencijai	24
4.2.3. Liuminescencijos gesimo trukmė InGaN junginiuose.....	25
Pagrindiniai rezultatai ir išvados	28
Literatūros sąrašas	29
Summary.....	31

Įvadas

III grupės puslaidininkiai yra patrauklios medžiagos įvairioms elektroninėms ir optoelektroninėms reikmėms. Pavyzdžiui, daugelyje fotoninių prietaisų aktyviąją sritį sudaro InGaN/GaN kvantinės duobės, kurių panaudojimas leidžia pasiekti itin didelės emisijos efektyvumo vertes (pvz., mėlynuose šviestukuose vidinis kvantinis našumas gali siekti net iki 90%) [1].

Komercinio prietaiso gamyboje naudojami InGaN dariniai įprastai yra užauginti ant bazinės c plokštumos, tačiau dėl potencialiai didesnio kvantinio našumo nemažai dėmesio yra skiriama ir dariniams, užaugintiems išilgai nepolinių krypčių — juose silpniau pasireiškia neigiamas vidinių elektrinių laukų poveikis [2]. Sumažėję arba visiškai pašalinti vidiniai elektriniai laukai lemia geresnį nitridinių prietaisų kvantinį našumą, optinį stiprinimą ar krūvininkų pernašą [3]. Nepaisant to, tiek nepoliniai InGaN junginiai, tiek poliniai gali pasižymėti didele defektų (taškinių ir/arba dislokacijų) koncentracija [4, 5]. Nors tam tikrais atvejais defektų aplinkoje gali susidaryti liuminescenciją stiprinantys krūvininkų lokalizacijos centrai, įprastai defektai turi neigiamą įtaką darinio kokybei ir emisijos efektyvumui — jie veikia kaip nespindulinės rekombinacijos centrai [6]. Todėl nitridų industrijoje išlieka poreikis susieti InGaN junginiuose vyraujančių defektų (dislokacijų, *v-pits* tipo defektų ir kt.) ypatumus ir koncentracijos pokyčius su liuminescencijos savybių erdvinėmis fliuktuacijomis mikroskopiniame lygmenyje, turinčiame įtakos makroskopiniams galutinio prietaiso parametrams.

Šio darbo tikslas – katodoliuminescencijos metodu išnagrinėti įvairaus sąstato ir poliškumo InGaN kvantinių darinių liuminescencijos savybes bei nustatyti šias savybes apibūdinančių parametų koreliaciją su struktūrinių defektų tankiu.

Trumpas darbo aprašymas

Šį darbą sudaro keturi skyriai, kuriuose yra aptariama InGaN junginių liuminescencijos ir defektų sąveikos tematika, aprašomos eksperimentinės metodikos, pristatomi gauti rezultatai bei išvados. Pirmajame skyriuje yra glaustai apžvelgiamos temos, susijusios su InGaN junginiais, jų auginimu ir atitinkamomis problemomis; antrajame skyriuje yra aprašomi elektronų mikroskopijos ir kadoliuminescencijos spektroskopijos metodai ir techninė/eksperimentinė darbo dalis; trečiasis skyrius yra skirtas tirtų InGaN bandinių, jų struktūros ir parametrų aprašui; paskutiniame skyriuje yra pristatomi pagrindiniai tyrimo rezultatai, atliekama jų analizė ir pateikiamos išvados.

1. Literatūros apžvalga

1.1. III-nitridų grupė

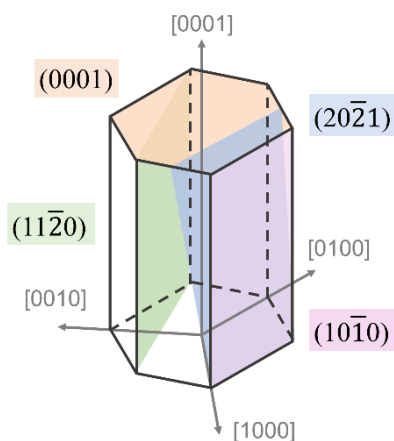
III grupės nitridai ir jų junginiai yra patrauklios medžiagos įvairioms elektroninėms ir optoelektroninėms reikmėms, pavyzdžiui, naudojami kietojo kūno apšvietime ir vaizduoklių technologijose [3]. Šią grupę sudaro tiesiatarpiai puslaidininkiai: galio nitridas (GaN), aliuminio nitridas (AlN), indžio nitridas (InN) ir boro nitridas (BN), kurių draustinės juostos pločiai kinta nuo 0.7 eV indžio nitride iki 3.4 eV galio nitride ir 6 eV aliuminio nitride. Keičiant medžiagų koncentracijos santykius šių elementų sistemose, galima varijuoti draustinės juostos plotį plačiame ruože. Vien InGaN dariniuose keičiant indžio kiekį, galima varijuoti draustinės juostos plotį nuo 0.7 iki 3.4 eV atitinkamai nuo infraraudonosios iki ultravioletinės spektro dalies. [1]

InGaN kietieji tirpalai su skirtingais In kiekiais plačiai naudojami kvantinių duobių (QW) pavidalu, kaip skirtingų nitridinių optoelektroninių įrenginių aktyviosios sritys, pavyzdžiui, LED struktūrose bei lazeriniuose dioduose [1]. Priklausomai nuo specifikos ir poreikio naudojami skirtingo sąstato ir poliškumo InGaN kvantiniai dariniai, siekiant pagerinti prietaisų emisijos efektyvumą. Tačiau InGaN kvantinių duobių liuminescencijos efektyvumą bei erdvinį tolydumą lemia įvairūs veiksniai, tokie kaip erdvinis In kiekio svyravimas, savieji ir struktūriniai defektai, kvantinis Štarko efektas [7].

1.2. Kristalų poliškumas

Galio nitridas ir su juo susiję junginiai gali egzistuoti heksagoninėje viurcito (*angl. wurtzite*) arba cinko žėručio (*angl. zinc blende*) kristalografinėse konfigūracijose. Pirmoji struktūra yra palankesnė auginant III grupės nitridus dėl geresnio šiluminio stabilumo [3]. Viurcito struktūros galio nitride (GaN) kiekvienas N (arba Ga) atomas yra apsuptas keturių Ga (arba N) atomų tetraedrine orientacija. Skirtingose lygiagrečiose plokštumose išilgai [0001] krypties Ga ir N atomų skaičius skiriasi, tad

atsiranda spontaninė gardelės poliarizacija. Tačiau asimetrinėmis kryptimis, kurioms būdingas nuokrypio kampas (θ) bazinės c-plokštumos atžvilgiu, spontaninė poliarizacija yra mažesnė. Taigi plokštumos (kur $0^\circ < \theta < 90^\circ$ arba $90^\circ < \theta < 180^\circ$), kuriose poliarizacija yra sumažinta, bet nėra visiškai pašalinta, vadinamos pusiau polinėmis plokštumomis. Atvejais, kai N ir Ga atomų skaičiaus gretimose lygiagrečiose plokštumose yra vienodas (kai $\theta=90^\circ$), poliarizacijos neatsiranda. Plokštumos išilgai tokių krypčių vadinamos nepolinėmis. GaN viurcito struktūros kristalinė gardelė parodyta 1 paveiksle ir joje pažymėtos polinės (0001), nepolinės (m plokštuma $(10\bar{1}0)$ ir a plokštuma $(11\bar{2}0)$) ir pusiau polinė ($20\bar{2}1$) kristalografinės plokštumos.

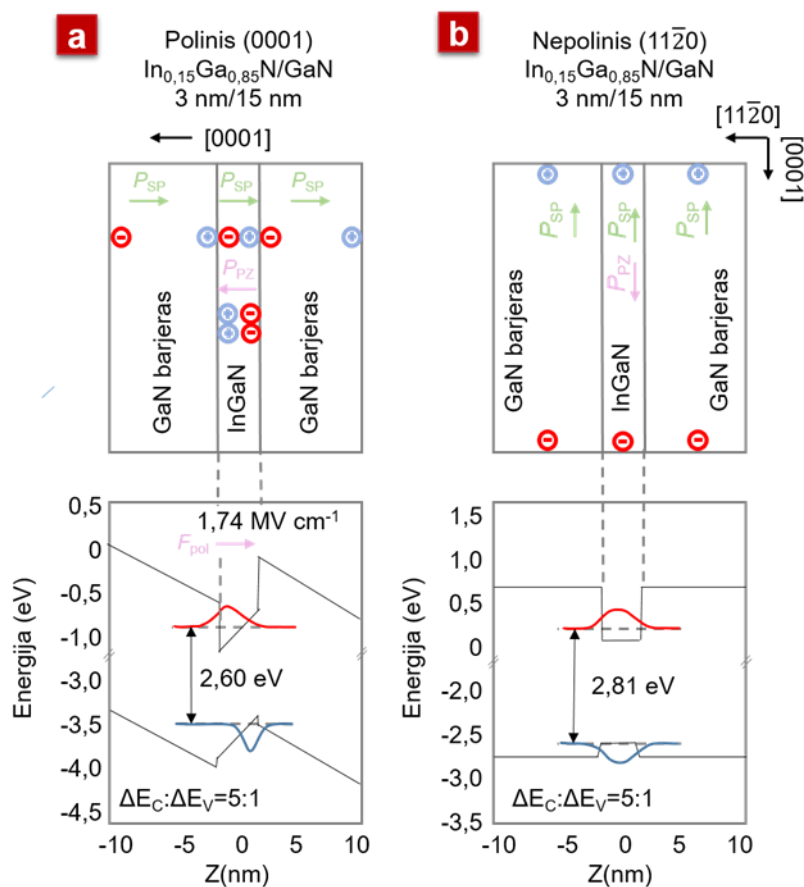


1 pav. GaN kristalografinės plokštumos heksagoninėje struktūroje. Adaptuota pagal [8].

III-nitridų grupės kristalai dažniausiai auginami išilgai c krypties. Tokiuose kristaluose c -plokštumos kryptimi dėka spontaninės poliarizacijos (atsirandančios dėl kristalo simetrijos savybių) tarp metalo ir azoto plokštumų susiformuoja stiprūs vidiniai elektriniai laukai. Be to, atsiranda ir pjezoelektrinės (dėl gardelių konstantų nesutapimo, vidinių įtempimo jėgų) poliarizacijos sukelti laukai [7]. Dėl susidariusių vidinių elektrinių laukų kristale pasireiškia kvantinis Štarko efektas [9]. Poliarizacijos suformuotas vidinis elektrinis laukas dėl Štarko efekto c -plokštumos kryptimi kvantinėse duobėse stipriai iškraipo juostinę struktūrą (išlenkia laidumo ir valentinę juostas), pakeičia lygmenų padėtis kvantinėje duobėje ir statmenai kvantinės duobės plokštumai atskiria skirtingus krūvininkus erdvėje. Reiškinys polinėms ir nepolinėms InGaN/GaN QWs parodytas 2 paveiksle.

Šiame paveiksle pavaizduotos InGaN/GaN kvantinių duobių ir atitinkamos energinių lygmenų schemos. Polinio kristalo atveju (2 pav. a) heterodarinių sluoksnių paviršiuose ir sandūrose dėka spontaninės poliarizacijos susidaro teigiami bei neigiami poliarizaciniai krūviai. Dėl įtempimų atsiranda skirtingo (negu spontaninės poliarizacijos atveju) ženklo pjezoelektrinės poliarizacijos krūviai. Jeigu struktūroje yra didelis gardelės konstantos skirtumas tarp sluoksnių, spontaninė

poliarizacija tik dalinai kompensuoja pjezoelektrinę. Tad suminėje poliarizacijoje dominuoja pjezoelektrinė poliarizacija ir bendras poliarizacinis laukas, F_{pol} , yra nukreiptas nuo prietaiso apatinės plokštumos link viršutinės [7]. Taigi pavaizduotoje energijos juostų diagramoje, polinio kristalo atveju juostos yra iškreiptos, reiškia atsiranda ir kvantinis Štarko efektas, mažinantis draustinių energijų tarpą; tuo tarpu kuo QW plotis didesnis, tuo efektas stipresnis ir turintis didesnę įtaką kvantinių duobių optinėms savybėms.



2 pav. InGaN/GaN kvantinių duobių struktūros bei energinių lygmenų schema polinio (a) ir nepolinio (b) kristalo atvejais. Adaptuota pagal [7].

Štarko efektas keičia kvantinių duobių sugerties ir emisijos spektrus [7]. Nesant vidiniams elektriniams laukams kristale, elektronai ir skylės esantys kvantinėje duobėje gali užimti tam tikrų diskrečių energijų būsenas, taigi sistema gali sugerti ir emituoti tik tam tikrų energijų fotonus. Kai atsiranda elektrinis laukas, elektronų būsenos pasislenka į mažesnių energijų būsenas, o skylių – į didesnių energijų būsenas. Tai sumažina galimas emisijos energijas. Kadangi elektronai ir skylės yra atskiriami erdvėje, sumažėja jų banginių funkcijų persiklojimas, taip kartu mažėja sistemos spindulinės rekombinacijos efektyvumas [10].

Tuo tarpu m-plokštumos kristale bendras poliarizacinis laukas yra nukreiptas lygiagrečiai *c* kryptčiai. Tad nepolinėse struktūrose (2 pav. b) energetiniai lygmenys nėra iškraipomi, krūvininkų banginės funkcijos labiau persikloja ir rekombinacija turi būti efektyvesnė [7, 9].

1.3. Defektai nitriduose

Elementariausi nitriduose pasitaikantys defektai yra taškiniai (PD): vakansijos, kai anijonai ar katijonai, yra „ne savo vietoje“, arba priemaišos, tokios kaip anglies arba deguonies atomai [11, 12]. Pavyzdžiui, InGaN/GaN kantinių šulinių struktūrose, PD atsiranda auginimo metu dėl pradinės GaN padėklo paviršiaus defektų populiacijos (kai InGaN auginamas ant GaN padėklų) ir inkorporuojasi į indžio turinčius sluoksnius. Tokie defektai yra efektyvūs nespindulinės rekombinacijos centrai, kurie yra viena iš priežasčių, lemiančių vidinio kvantinio našumo (IQE) sumažėjimą šviestukuose, lazeriniuose dioduose, saulės celėse [12, 13].

Kita defektų rūšis pasitaikanti nitriduose yra linijiniai defektai, t.y. dislokacijos. Svarbus linijinis defektas yra srieginės dislokacijos (angl. *threading dislocations TDs*), kurios beveik neišvengiamos, kai medžiagos auginimas vyksta ant nesutampančios gardelės padėklo. Tokios dislokacijos atsiranda ties padėklo ir auginamos struktūros sandūra, ir dažniausiai per visą auginamą sluoksnį tęsiasi iki paviršiaus. Paprastai, kvantinių duobių dariniuose dislokacija eina lygiagrečiai *c* kryptčiai ir suformuoja paviršiuje V-formos duobę (angl. *v-pits*) [14, 15]. Tokios duobės turi apverstos heksagoninės piramidės formą ir gerai identifikuojamos SEM arba AFM mikroskopijos metodais. *v-pits* būna skirtingų dydžių, kurie atitinka kelių tipų dislokacijas: kraštines (*edge*), sraigines (*screw*) ir mišrias (*mixed*) [16]. Tiek dislokacijos, tiek taškiniai defektai sukuria įtemptis, todėl dislokacijos traukia taškinius defektus. Tad kartu tai irgi veikia kvantinių darinių liuminescencijos savybes. [15, 17]

Priklausomai nuo auginimo sąlygų, kurios gali skirtis įvairaus sąstato bei poliškumo dariniams, gali skirtis medžiagoje vyraujančių defektų rūšys bei jų koncentracija. Pavyzdžiui, komercijoje naudojamuose *c*-plokštumos InGaN dariniuose tipinis *v-pits* defektų tankis yra nuo 10^7 iki 10^9 cm^{-2} [5].

1.4. InGaN auginimas ir susijusios problemos

Įvairių defektų atsiradimas III grupės nitridų dariniuose glaustai susietas su šių darinių auginimo proceso sąlygomis. Nitridiniai dariniai auginami keliais technologiniais metodais: molekulinio pluošto epitaksija (MBE) arba metalorganikos cheminio nusodinimo iš garų fazės (MOCVD) technologija. MBE auginimas yra tikslesnis ir leidžia gauti geresnės kokybės medžiagas. Tačiau kadangi pats procesas yra brangus ir auginimo laikas yra palyginus ilgas, MBE paprastai naudojamas

gauti bandinius laboratoriniams eksperimentams, kur reikalinga išskirtinai gera kokybė ir labai tikslūs sluoksnių storai. Daug dažniau InGaN kvantiniai dariniai tiek mokslinėse laboratorijose, tiek komerciniams tikslams yra auginami MOCVD technologija.

III grupės nitridų auginime vienas iš svarbiausių parametrų yra temperatūra, kadangi tiek struktūrinė medžiagos kokybė, tiek draustinės juostos tarpas priklauso nuo šito parametro. GaN sluoksnių augimo temperatūra paprastai yra aukštesnė nei 1000 °C [18], tuo tarpu InGaN sluoksniuose ji paprastai būna apie 800 °C arba žemesnė, jeigu auginamos struktūros su didesniu In kiekiu [18]. Taigi GaN barjerų auginimo temperatūra kvantiniuose heterodariniuose yra mažesnė nei optimali siekiant didesnio In kiekio kvantinėse duobėse. Auginant sluoksnius neoptimalioje temperatūroje padidėja defektų formavimosi tikimybė, pavyzdžiui, MOCVD auginimo metu naudojamo amoniako disociacijos greitis sumažėja esant žemesnei temperatūrai, todėl augant GaN ar InGaN susidaro azoto vakansijos [19]. Vadinasi augimo temperatūra turi būti kruopščiai parinkta, norint gauti aukštos kokybės sluoksnius su norimu In kiekiu.

InGaN kvantiniai dariniai dažniausiai auginami ant safyro padėklų dėl prieinamų padėklų dydžių ir kainų. Pagrindinis tokio padėklo trūkumas yra didelis gardelės neatitikimas su GaN gardele. Tai lemia gan prastą auginamų darinių kokybę, su didele dislokacijų koncentracija [20]. Siekiant pagerinti medžiagos kokybę naudojamas buferinis (tarpinis) sluoksnis, neleidžiantis defektams prasiskverbti nuo padėklo į auginamą struktūrą. Literatūroje nurodoma, kad toks metodas sumažina defektų tankį auginant MQWs struktūras bei galimai pagerina jų optines savybes [19, 21]. Dar vienas būdas naudojamas siekiant sumažinti taškinių defektų formavimąsi yra medžiagų legiravimas siliciu: jis padeda dalinai neutralizuoti nespindulinius kanalus bei sumažinti vidinio elektrinio lauko įtaką (kas svarbu poliniuose ir pusiau poliniuose bandiniuose) [22].

Kitas būdas, galintis sumažinti dislokacijų koncentraciją auginant InGaN – geros kokybės ($<10^{-7} \text{ cm}^{-2}$) tūrinio GaN padėklo naudojimas [13], tačiau dėl mažo dydžio ir didelės gamybos kainos, tokie padėklai rečiau naudojami. Be to, ir auginant ant GaN išlieka aktuali gardelių nesuderinamumo problema – InN ir GaN padėklo gardelės nesutapimas siekia ~11% [18]. Tad it tokiuose struktūrose aptinkamas nemažas defektų, veikiančių medžiagos optines savybes, tankis.

Siekiant pagerinti MQWs efektyvumą dariniai yra auginami ant polinių ir pusiau polinių kristalografinių padėklo plokštumų vietoj bazinės c-plokštumos. Kadangi tokiose struktūrose yra maža dislokacijų koncentracija, efektyvumo sumažėjimą jose lemia taškiniai defektai ir jų kompleksai. Auginimo metu nepolinės ir pusiau polinės struktūros inkorporuoja daugiau priemaišų, tokių kaip anglis arba deguonis, lyginant su c-plokštumos dariniais [4]. Ties augimo temperatūra lygia 890°C (tipine MOCVD InGaN auginime) m-plokštumos InGaN junginiuose deguonies priemaišų koncentracija būna eile didesnė nei (0001) plokštumos GaN, ir siekia iki 10^{18} cm^{-3} [4]. Tai gali

paveikti nespindulinės rekombinacijos spartas net ir dariniuose, kurie auginami ant padėklų, turinčių mažą defektų tankį [23].

Padėklo ir InGaN sluoksnių gardelių skirtumas lemia ne tik didesnę defektų koncentraciją, bet ir fazių atskyrimą bei įtempimų relaksaciją [18]. Fazių atskyrimas lemia skirtingus indžio inkorporavimo greičius skirtingose medžiagos vietose. Didesnės In koncentracijos struktūrose tai sukuria didelį defektų, pasižyminčių nespinduline rekombinacija, tankį ir atitinkamai emisijos efektyvumo sumažėjimą [24]. Kita problema yra gardelės įtempimų relaksacijos. Auginant didelio In kiekio kvantines duobes ant nesutampančios gardelės padėklų, sluoksnių storis turėtų būti mažesnis už kritinį storį h_c , siekiant išvengti įtempimų relaksacijos, sukeliančios išplėstinių dislokacijų atsiradimą [25]. Be to, kvantinės duobės kartais daromos plonesnės siekiant sumažinti kvantinio Štarko įtaką InGaN dariniuose.

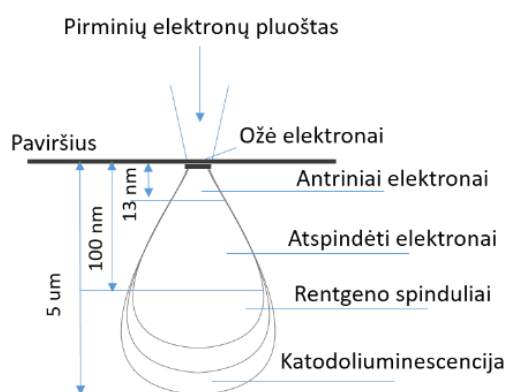
2. Charakterizavimo metodai

2.1. Skenuojanti elektronų mikroskopija

Elektronų mikroskopija (EM) apjungia tyrimo metodus, skirtus įvairių medžiagų paviršiaus morfologiniam ir struktūriniam charakterizavimui, ir pagrįstus įgreitintų elektronų sąveika su tiriamą medžiaga. Šiame skyriuje aprašyti elektronų-medžiagos sąveikos ypatumai, sąveikos metu sugeneruotų nepusiausvyrų krūvininkų dinamika, bei aprašytas skenuojančio elektronų mikroskopo veikimo principas, kadangi šio tipo mikroskopas naudojamas darbe.

2.1.1. Elektronų-medžiagos sąveika

Elektronų mikroskopijos tyrimuose bandinys yra paveikiamas įgreitintų (pirminių) elektronų pluoštu, elektronai prasiskverbia į medžiagą iki kelių mikrometrų, priklausomai nuo tiriamos medžiagos tankio ir pačių elektronų greitinimo įtampos. Kadangi sąveikos metu medžiagoje vyksta sklaidos procesai, susiformuoja taip vadinamas sąveikos tūris (3 pav.). Skirtinguose sąveikos tūrio gyliuose yra generuojamas skirtingas medžiagos atsakas: informacijos apie tiriamą medžiagą galima pasisemti iš įvairių antrinių reiškinių [26].



3 pav. Sąveikos tūris. Adaptuota pagal [26].

Elektronų-medžiagos sąveikos metu, dalelės patiria elastinę ir neelastinę sklaidą. Elastinė sklaida vyksta, kai įgreitinti elektronai susiduria su atomų branduoliais, kuriuos dalinai ekranuoja surišti elektronai. Tokiu būdu elektronas nepraranda energijos, o pakeičia judėjimo kryptį ir gali išlėkti iš medžiagos. Toks elektronas vadinamas atgal išsklaidytu (angl. *backscattered electrons*, BSE). Atgal sklaidomi elektronai naudojami medžiagų analizėje siekiant nustatyti skirtingos cheminės sudėties sritis. [26]

Neelastinės sklaidos metu elektronas praranda dalį energijos. Tokia sklaida apima platų spektrą sąveikų, tačiau galima išskirti kelis pagrindinius mechanizmus: Rentgeno spinduliuotės atsiradimas, antrinių elektronų išspinduliavimas ir elektronų-skylių porų generavimas.

Rentgeno spinduliuotė atsiranda pirminiam elektronui išmušant surištą elektroną iš vidinių atomo lygmenų, kai jo vietą užpildo išorinio lygmens elektronas. Tokiu būdu atomas grįžta į nesusžadintą būseną, taip išspinduliuodamas rentgeno spindulius. Tokios spinduliuotės analizė taikoma analitinėje mikroskopijoje, pvz. rentgeno spindulių energijos dispersinėje spektrometrijoje. [26]

Kitas elektronų-medžiagos sąveikos metu pasireiškiantis mechanizmas yra antrinių elektronų spinduliavimas. Galima išskirti kelis antrinių elektronų tipus: lėti antriniai elektronai, išlėkę iš laidumo ar valentinės juostų su santykinai maža energija (< 50 eV); greiti antriniai elektronai, išlėkę iš vidinių atomo orbitalių su energija siekiančia iki pusės žadinančio elektrono energijos; Ožė elektronai. [26]

Mikroskopiniuose tyrimuose greiti antriniai elektronai dažnai blogina mikroanalizės erdvinę skyrą bei gali tapti nepageidaujamu rentgeno spindulių šaltiniu, o Ožė elektronai jau yra nespindulinės rekombinacijos dalyviai, kurių analizė suteikia išskirtinai paviršiaus cheminę informaciją, tad medžiagos analizėje daugiau informacijos suteikia lėti antriniai elektronai [26]. Tokie elektronai gali ištrūkti iš medžiagos tik įveikdami paviršiaus potencialo barjerą. Kadangi jų energija yra santykinai maža, bandinį gali palikti tik elektronai, esantys ploname paviršiaus sluoksnyje, todėl antrinių elektronų tankis ir kryptis priklauso nuo paviršiaus reljefo. Taip registruojant antrinius elektronus, galima gauti informacijos apie tiriamo bandinio paviršiaus morfologiją.

Dar vienas elektronų-medžiagos sąveikos mechanizmas - nepusiausvirųjų krūvininkų generacija. Elektronų-skylių poros generuojamos tada, kai valentinės juostos elektronas sužadintas į laidumo juostą arba į lygmenis draustinėje juostoje. Tokie nepusiausvirieji krūvininkai gali rekombinuoti emituodami fotoną; jeigu tiriamas objektas pasižymi spinduliavimo savybėmis, tai tokio sužadavimo metu medžiaga skleis matomo spektro šviesą (arba artimojo IR, UV). Šis reiškinys vadinamas katodoluminescencija (CL).

2.1.2. Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamika puslaidininkyje

Kai krūvininkų tankis N medžiagoje nėra lygus pusiausvirajam tankiui N_0 , medžiagoje yra nepusiausvirųjų krūvininkų:

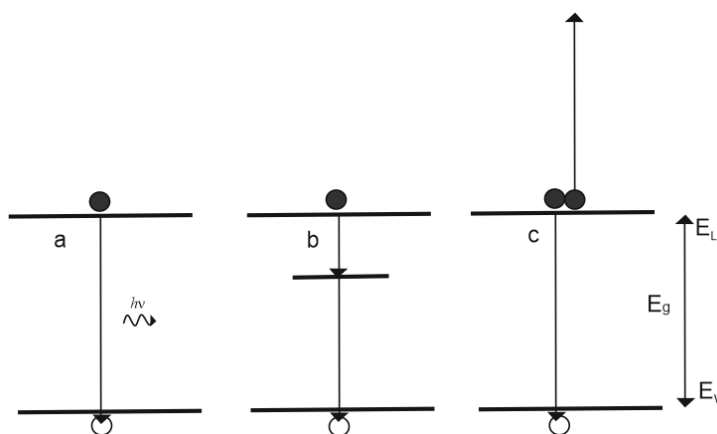
$$\Delta N = N - N_0. \quad (1)$$

Pertekliniai krūvininkai gali atsirasti dėl elektrinių, šiluminių arba optinių sužadimų. Kartu su krūvininkų generacija vyksta ir rekombinacija ir abu procesai apibūdina laisvųjų krūvininkų tankio dinamiką:

$$\frac{dN}{dt} = G + \frac{1}{|e|} \operatorname{div} \mathbf{j} - R, \quad (2)$$

kur N – krūvininkų tankis, j – srovės, tekančios pro medžiagą, tankis, G ir R – generacijos bei rekombinacijos spartos aprašantys nariai, e – elektrono krūvis.

Po generacijos nepusiausvirieji krūvininkai dėl sklaidos praranda dalį energijos ir taip „krenta“ į laidumo juostos dugną, tada įvyksta laisvo elektrono ir skylės anihiliacija, t.y. rekombinacija, kurios metu abu krūvininkai išnyksta. Rekombinacijos mechanizmai yra klasifikuojami pagal rekombinacijos metu išsiskyrusią energiją, kuri yra lygi energijos skirtumui tarp galutinės ir pradinės elektrono būsenų. Rekombinacija būna spindulinė ir nespindulinė. Taigi yra trys rekombinacijos mechanizmai: tarpjuostinė spindulinė rekombinacija, kai emituojami fotonai (4 pav. a); nespindulinė, kai emituojami fononai (4 pav. b); Ožė rekombinacija, kurios metu elektronas su skykle rekombinuoja, o išsiskyrusi energija perduodama trečiam krūvininkui (4 pav. c).



4 pav. Rekombinacijos mechanizmai: a) spindulinė rekombinacija; b) nespindulinė rekombinacija; c) Ožė rekombinacija. Adaptuota pagal [27].

Ketvirtame paveiksle a) yra iliustruotas tarpjuostinės spindulinės (arba bimolekulinės) rekombinacijos procesas. Rekombinacijos metu laidumo juostoje esantis elektronas peršoka į valentinę juostą, kurioje anihiliuoja su skykle, o perteklinė energija, susidariusi proceso metu, išspinduliuojama fotono pavidalu. Spindulinės rekombinacijos sparta aprašoma taip [28]:

$$R = B(np - N_0^2), \quad (1)$$

čia B – bimolekulinės rekombinacijos koeficientas.

Nespindulinės (*Shockley–Read–Hall*, toliau SRH) rekombinacijos metu elektronas, šokantis iš laidumo juostos dugno į valentinę juostą, yra pagaunamas defektinio lygmenis. Taigi SRH rekombinacija vyksta per gaudykles – defektinius arba priemaišinius lygmenis, kurie yra draustinėje juostoje. Paskui, valentinėje juostoje elektronas anihiliuoja su skykle, o perteklinė energija yra išskiriama fonono pavidalu. SRH rekombinacijos sparta yra aprašoma šia lygtimi (jeigu $n=p$) [11]:

$$R_{SRH} = A\Delta N, \quad (2)$$

čia A – rekombinacijos koeficientas, kuris yra apibūdinamas defektų tankiu bei elektronų ir skylių pagavimo skerspjūviais medžiagoje.

Vykstant Ožė rekombinacijai elektronas iš laidumo juostos pereina į valentinę, o išsiskyrusi energija perduodama trečiam elektronui (arba skylei), kas iliustruota 4 (c) paveiksle. Gavęs perteklinės energijos krūvininkas gali užimti aukštesnės energijos lygmenį laidumo juostoje. Ožė rekombinacija yra panaši į spindulinę, tačiau skiriasi tuo, kad tokiam procese dalyvauja trys krūvininkai. Tokios rekombinacijos sparta užrašoma įskaitant dalelių, kurios sugeria perteklinę energiją, tankį [28]:

$$R_{Ožė} = C_e n(np - N_0^2) + C_h p(np - N_0^2), \quad (3)$$

čia C_e ir C_h – Ožė koeficientai elektronams ir skylėms.

Bendrai nepusiausvirųjų krūvininkų rekombinacijos sparta aprašoma „ABC“ modeliu:

$$R = A\Delta N + B(\Delta N)^2 + C(\Delta N)^3, \quad (4)$$

čia A – SRH koeficientas, B – bimolekulinės rekombinacijos koeficientas, C – Ožė koeficientas.

Taigi nepusiausvirieji krūvininkai gali rekombinuoti keliais būdais, iš kurių kiekvienas aprašomas rekombinacijos sparta. Nors dažnai patogiau aprašyti rekombinacijos procesus, panaudojus rekombinacijos trukmę τ :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{nr}} + \frac{1}{\tau_r}, \quad (5)$$

kur τ_{nr} – nespindulinės rekombinacijos trukmė, τ_r – spindulinės.

Medžiagoje be generacijos ir rekombinacijos dar vyksta krūvininkų difuzija. Sugeneruoti nepusiausvirieji krūvininkai pasiskirsto bandinyje nehomogeniškai ir dėl tankio gradiento jie difunduoja iš sužadintos srities į sritį su mažesniu krūvininkų tankiu. Difuzijos procesus apibūdina difuzijos koeficientas D . Kai puslaidininkis yra neišsigimęs, difuzijos koeficientas išreiškiamas Einšteino sąryšiu:

$$D = \frac{kT}{e} \cdot \mu, \quad (6)$$

kur k – Bolcmano konstanta, T – temperatūra, e – elektrono krūvis, μ – judris.

Bendrai nepusiausvirųjų krūvininkų dinamiką puslaidininkyje aprašo trys procesai: generacija, difuzija ir rekombinacija, tad atsižvelgus į šiuos procesus sugeneruotų nepusiausvirųjų krūvininkų tankio dinamika yra aprašoma tokia tolydumo lygtimi:

$$\frac{dN}{dt} = G + \nabla(D\nabla N) - A\Delta N - B(\Delta N)^2 - C(\Delta N)^3, \quad (7)$$

kur difuzija įvertinama su kraštine sąlyga [28]:

$$D \frac{\partial N}{\partial z} = -SN, \quad (8)$$

čia D – bipolinės difuzijos koeficientas, S – paviršinės rekombinacijos greitis.

2.1.3. Skenuojantis elektronų mikroskopas

Elektronų mikroskope yra trys pagrindinės dalys: apšvietimo sistema (vakuumo sistema, elektronų patranka, kondensoriaus lęšiai), pagrindinė mikroskopo dalis (tyrimo objektas, jo laikiklis) ir signalo detektorių sistema.

Apšvietimo sistemoje elektronų patranka yra sugeneruojamas elektronų pluoštelis, kuris nukreipiamas tiriamo objekto link ir sufokusuojamas kondensorių lęšiais į mažo spindulio tašką. Bandinys gali būti taškas po taško skenuojamas tokiu pluoštu; skenavimas realizuojamas kelių ričių pagalba, kurios nukreipia spindulį x ir y ašimis. Galiausiai, spindulys praeina pro paskutinį lęšį, kuriuo sufokusuojamas į tiriamą bandinį. Trečią mikroskopo dalį sudaro signalų detektavimo sistema, kurioje gali būti naudojami įvairūs detektoriai, priklausomai nuo signalo, kurį norima aptikti.

2.2. Katodoluminescencija su erdvine ir laikine skyra

Katodoluminescencijos spektroskopija yra vienas iš elektronų mikroskopijos metodų, pagrįstas medžiagos šviesos emisijos, generuojamos sąveikos su pirminių elektronų srautu metu, tyrimu. CL matavimuose medžiagos sužadinimas didelės energijos elektronais nėra selektyvus – sąveikos metu elektronai gali sukelti įvairius perėjimus į didesnės energijos būsenas, tad šviesa emituojama plačiame energijų ruože. Medžiagos luminescencijos savybėms įtakos turi kristalų struktūra, sąstatas, įtempimai ir defektai. Nors kiti tyrimų metodai, tokie kaip fotoluminescencija, taip pat atskleidžia tokią informaciją apie medžiagą, didesnė CL erdvinė skiriamoji geba leidžia gauti daugiau duomenų, pavyzdžiui, išskirti atskirus defektus, kurie atrodo tamsūs CL vaizde dėl intensyvesnės nespindulinės rekombinacijos [29].

Erdvinė skyra CL matavimuose stipriai priklauso nuo sąveikos tūrio (o sąveikos tūris priklauso nuo elektronų pluošto energijos), nuo sugeneruotų krūvininkų difuzijos nuotolio bei pačios medžiagos (tūrinė, kvantiniai dariniai ir t.t.) [30]. Pavyzdžiui, tiriant kvantinius darinius gali būti pasiekama itin aukšta erdvinė skyra – tuo atveju, kai pasirenkama optimali elektronų greitinimo įtampa, t.y. elektronų pluošto energija.

Impulsinio elektronų srauto naudojimas leidžia ištirti ne tik CL erdvines, bet ir laikines savybes, kas įgalina pasirinktame bandinio taške stebėti sugeneruotų krūvininkų dinamiką. Panaudojus

laikinius CL tyrimus charakterizuojami struktūriniai, įtempimų ir defektų poveikiai krūvininkų dinamikai bei rekombinacijai [31, 32].

2.3. Eksperimentinė dalis

Šiame darbe InGaN kvantinių darinių liuminescencijos savybių tyrimui pasitelkiamas *Attolight* katodoliuminescencijos prietaisas *Chronos* – hibridinis katodoliuminescencijos (CL) ir skenuojantis elektronų mikroskopas (SEM).

Mikroskope įgreitintų elektronų spindulys sugeneruojamas elektronų patranka (*Schottky field emission gun*). Įgreitintų elektronų energiją galima varijuoti 1 keV – 10 keV energijų ruože, o elektronų pluoštelis gali būti sufokusuotas į bandinį 3 nm taške. Matavimų metu naudojome 5 – 10 kV elektronų įgreitinimo įtampą, priklausomai nuo QW spiečių dengiančio apsauginio GaN sluoksnio (*Cap*) storio.

Matavimo metu elektronų pluoštas rastriniu būdu skenuoja užduoto ploto bandinio paviršių; kiekvienoje spindulio pozicijoje bandinys yra lokaliai sužadinamas; liuminescencijos šviesa surenkama optiniais elementais ir fiksuojama *CCD* kamera. To paties matavimo metu detektuojami ir antriniai elektronai, kas suteikia galimybę gauti tiek matuojamo ploto CL signalą, tiek SE paviršiaus vaizdus. Tyrimo metu kiekviename bandinyje atlikome matavimus skirtingų dydžių plotuose (keičiant didinimą), kiekviename iš kurių gavome: panchromatinius ir monochromatinius (tam tikro bangos ilgio) CL intensyvumo žemėlapius, CL spektrus, išmatuotus kiekviename pikselyje, bandinių paviršiaus SEM vaizdus.

Mikroskopas gali veikti tiek nuolatiname, tiek impulsiniame režime. Impulsiniame elektronų emisijos režime patrankos žadinimui naudojamas lazeris, o elektronų pluošto dydis yra lygus 10-15 nm. Matavimai šiame režime vyksta tuo pačiu principu kaip ir nuolatiname, tačiau papildomai pasirinktuose taškuose fiksuojamas liuminescencijos gesimo signalas, kuris išsklaidomas difrakcine gardele ir registruojamas *streak* kamera (diapazone nuo 200 nm iki 850 nm). Matuojant impulsiniame režime pasiekiami maždaug 20 ps laikinė skyra, tačiau kelis kartus sumažėja erdvinė skiriamoji geba.

Gauti duomenys buvo apdorojami *Attomap* programine įranga bei *Python* programavimo kalbos *Hyperspy* biblioteka.

3. Tirti bandiniai

Šiame darbe buvo tirtos trys bandinių grupės. Pirmą grupę sudaro kelios serijos InGaN/GaN kvantinių šulinių, užaugintų VU FNI MOCVD reaktoriumi. Pastarieji kvantiniai dariniai buvo užauginti ant standartinių c-plokštumos GaN/safyro ruošinių arba ant skirtingų tūrinių GaN padėklų, kurių epitaksijai skirti paviršiai sutapo su viena iš kristalografinių GaN plokštumų: m-plokštuma ($10\bar{1}0$), pusiau poline plokštuma ($20\bar{2}1$). Skirtingų serijų auginimo sąlygos buvo varijuojamos siekiant optimizuoti darinių parametrus.

Schematinė bandinių struktūra yra pavaizduota 5 pav. Dalies FNI užaugintų kvantinių darinių aktyviąją sritį sudaro InGaN/GaN supergardelė (SL; kaip tarpinis sluoksnis) ir 5 periodai InGaN kvantinių duobių (3-4 nm) ir GaN barjerų (7-12 nm), tačiau keliuose bandiniuose kaip tarp sluoksnių tarp GaN padėklo ir pavienių (SQW) arba daugybinių kvantinių duobių (MQWs) buvo užaugintas 10 nm storio GaN sluoksnelis. Auginimo metu ant GaN padėklo auginama SL struktūra yra sudaryta iš itin plonų (apie 1 nm) periodiškai pasikartojančių InGaN ir GaN sluoksnių, kurių periodų skaičius – 10. Toliau ant supergardelės paskutinio GaN sluoksnelio buvo užauginta kvantinių duobių ir barjerų struktūra, kuri prasideda nuo InGaN kvantinės duobės. Siekiant apsaugoti struktūrą nuo galimo fizinio pažeidimo ir oksidacijos ant kvantinių duobių taip pat buvo užaugintas ir 20 nm storio GaN sluoksnis (*cap*).



5 pav. Tipinė darbe nagrinėjamų bandinių struktūra.

Antrą bandinių grupę sudaro University of California, Santa Barbara (UCSB) universitete užauginti penki c- ir m-plokštumos InGaN daugialypių kvantinių duobių dariniai (su safyro ir GaN padėklais, atitinkamai) ir du skirtingų storių c-plokštumos InGaN sluoksniai. Tuo tarpu paskutinę grupę sudaro vienas 5 MQWs c-plokštumos InGaN darinys, užaugintas National Taiwan University (NTU). 5 pav. pavaizduota apibendrinta struktūra tinka ir šių grupių bandiniams. Be to, bandiniai tarpusavyje skiriasi ir indžio kiekiu (8 – 20%) bei liuminescencijos bangos ilgiu (380 – 519 nm). Informacija apie tiriamus bandinius yra pateikta 1 lentelėje.

1 lentelė. Tirtų bandinių parametrai.

Bandinio nr.	Struktūra	Auginimo plokštuma	Sluoksnių storis*, nm	In kiekis*, %	CL piko bangos ilgis**, nm
c-MQW1 ^{FNI}	10 SPSL ir 5 MQWs	(0001)			450 (2,76 eV)
semi-MQW1 ^{FNI}		(20 $\bar{2}$ 1)			435 (2,85 eV)
semi-MQW2 ^{FNI}		(20 $\bar{2}$ 1)			430(2,89 eV)
c-MQW2 ^{FNI}		(0001)			448 (2,77 eV)
m-MQW2 ^{FNI}		(10 $\bar{1}$ 0)			380 (3,26 eV)
c-MQW3 ^{FNI}	5 MQWs	(0001)	4,0/11,9	20	508 (2,44 eV)
m-MQW3 ^{FNI}		(10 $\bar{1}$ 0)			390 (3,18 eV)
m-SQW1 ^{FNI}	SQW	(10 $\bar{1}$ 0)	10/ 21	8	387 (3,2 eV)
m-MQW4 ^{FNI}	5 MQWs	(10 $\bar{1}$ 0)	14,5/ 10	9	414 (2,99 eV)
c-MQW2 ^{UCSB}	10 MQWs	(0001)	3/12	9	397 (3,12 eV)
c-MQW3 ^{UCSB}			3/10	10	418 (2,97 eV)
c-L1 ^{UCSB}	45 nm sluoksnis			9,3	406 (3,05 eV)
c-L2 ^{UCSB}	58 nm sluoksnis			10	412 (3,01 eV)
m-MQW1 ^{UCSB}	3 MQWs		(10 $\bar{1}$ 0)	8/9	13
m-MQW2 ^{UCSB}		(10 $\bar{1}$ 0)	8/9	9	448 (2,77 eV)
m-MQW3 ^{UCSB}		(10 $\bar{1}$ 0)	8/15	13	455 (2,73 eV)
c-MQW ^{NTU}	5 MQWs	(0001)			500 (2,48 eV)

*- nurodė tiekėjas;

**- nustatyta iš CL spektrų smailės padėties;

4. Pagrindiniai rezultatai ir jų analizė

Siekiant geriau suprasti InGaN kvantinių duobių liuminescencijos savybių sąsajas su struktūriniais defektais, buvo iškeltos tokios darbo užduotys: (i) panaudojus *Python* programavimo kalbos *Hyperspy* biblioteką sukurti automatinio defektų atpažinimo, ir lokalsios defektų koncentracijos bei liuminescencijos ypatybių gretinimo programinį kodą; (ii) pasitelkiant sukurtą kodą atlikti tiriamų InGaN darinių CL-SEM matavimų metu gautų rezultatų analizę. Taigi šiame skyriuje apžvelgti pagrindiniai darbo rezultatai ir padarytos išvados.

4.1. Defektų tankio nustatymas poliniuose bandiniuose

Kiekviename bandinyje iš SEM vaizdų buvo paskaičiuotas defektų tankis, DD, defektų aptikimui panaudojus *Laplacian of the Gaussian (LoG)* algoritmą [33]. *LoG* yra matematinis metodas, kuris naudojamas skaitmeninio vaizdo apdorojime ir yra pritaikytas aptikti BLOB (*angl. Binary Large Object*) objektus – sritis arba taškus, kurie pastebimai skiriasi nuo periferijos, pvz., ryškesnės sritis tamsiame fone, arba dar kitaip – pikselių verčių grupes, kurios sudaro objektus, išsiskiriančius iš aplinkos. Bendrai šitas algoritmas yra dviejų žingsnių operacija, aprašoma tokia lygtimi [33]:

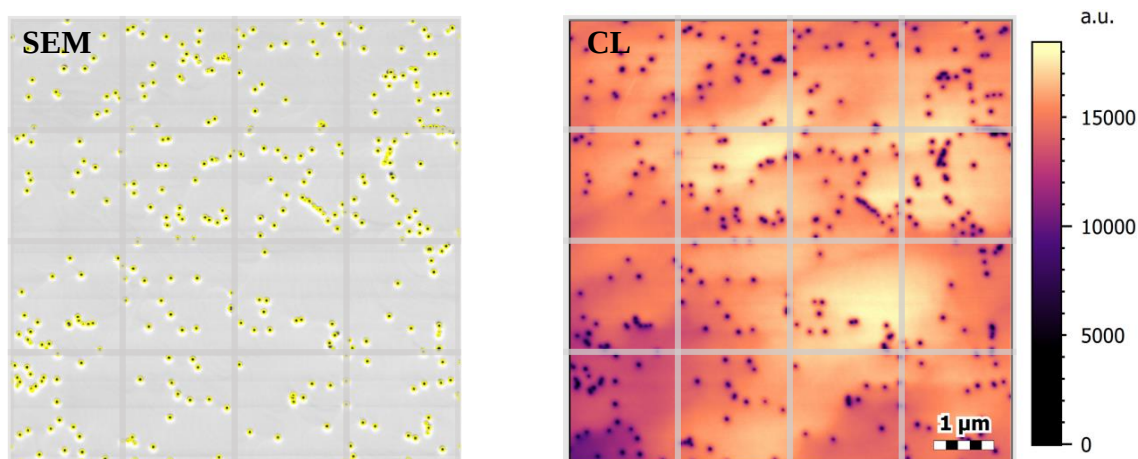
$$L(x, y, \sigma) = g(x, y, \sigma) * I(x, y), \quad (9)$$

kur $L(x, y, \sigma)$ – Laplaso filtras; $g(x, y, \sigma)$ – Gauso filtras; $I(x, y)$ – apdorojamo vaizdo pikselio intensyvumo vertės, σ – Gauso f-jos standartinis nuokrypis. Taigi algoritmas iš pradžių Gauso funkcija nufiltruoja (*angl. pre-smoothing*) apdorojamą vaizdą (mūsų atveju SEM nuotraukas), kad sumažinti triukšmo įtaką, ir pritaikius Laplaso operatorių suranda BLOB objektų ribas pagal Gauso standartiniam nuokrypiui ir pikselio vertei nustatytą slenkstį. Kiekvienam rastam objektui metodas pateikia pikselio koordinatas bei Gauso f-jos standartinį nuokrypį, pagal kurį įvertinamas aptikto objekto spindulys, $r \sim \sqrt{2}\sigma$ [34]. Naudojamas *LoG* algoritmas aptinka tik ryškiai šviečiančias sritis, tad mūsų atveju atliekant skaičiavimus reikėjo invertuoti SEM nuotraukas, kadangi jose defektai matomi kaip juodi taškai. Inversiją dariau atėmus iš maksimalios pikselio vertės realią vertę, pvz., grafiniame formate kiekvieno pikselio maksimali vertė yra 255, tai atėmus realią vertę, monochromatiniame vaizde spalvos apsisvers.

Atskirais atvejais defektų tankis buvo skaičiuojamas ne iš SEM vaizdų, bet iš CL intensyvumo pasiskirstymų (skaičiavimas analogiškas kaip ir SEM vaizdams). Toks metodas pritaikytas tiriamų InGaN sluoksnių bei kelių m-plokštumos kvantinių duobių analizėje, nes ne visų tipų defektus galima aptikti SEM vaizduose, tačiau jie pastebimi CL intensyvumo žemėlapiuose, kadangi veikia kaip nespindulinės rekombinacijos centrai.

Kaip algoritmo pritaikymo pavyzdys, 6 pav. parodytos c-MQW3^{UCSB} bandinio CL bei SE to paties ploto vaizdai. Antrinių elektronų vaizde geltonais apskritimais pažymėti defektai, kuriuos

atpažino *LoG* algoritmas. Kiekvienam iš aptiktų defektų algoritmas priskyrė pikselių koordinatas. Toliau padalinus bendrą plotą į vienodo dydžio sritis (paveiksle pažymėta pilkomis linijomis) dislokacijos nufiltruojamos pagal koordinatas ir nustatomas jų skaičius, N , kiekviename iš plotelių. Padalinus tą skaičių iš srities ploto, S , gaunamas defektų tankis ($DD = N/S$) kiekvienoje srityje. Identiškai į tokio pat dydžio sritis padalinamas ir CL integruoto intensyvumo žemėlapis, kur kiekvienoje srityje paimama vidutinė intensyvumo vertė I . Taigi sugretinant lokalias defektų koncentracijas ir I vertes gautos toliau darbe nagrinėjamos priklausomybės visiems c-plokštumos bandiniams.

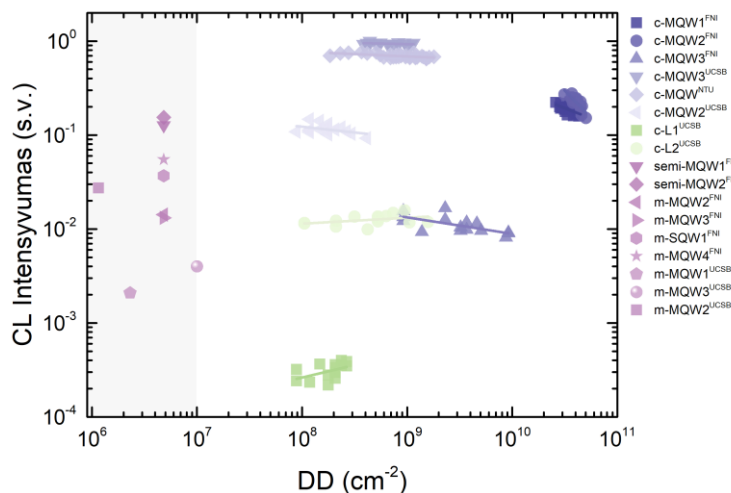


6 pav. c-MQW3^{UCSB} bandinio $7,4 \times 7,4 \mu\text{m}^2$ ploto antrinių elektronų vaizdas ir CL žemėlapis. Geltonais apskritimais pažymėti *LoG* metodu aptikti defektai. Abu vaizdai padalinti į vienodus plotelius, kuriuose buvo paskaičiuoti vidutiniai intensyvumai ir defektų tankiai.

Siekiant parinkti optimalius skaičiavimo parametrus buvo atlikti testiniai defektų paieškos *LoG* algoritmu bandymai. Buvo nustatytos CL intensyvumo nuo DD priklausomybės esant skirtingiems „skenuojančių“ plotelių dydžiams, t.y. dalinant bendrą plotą į vienokio arba kitokio dydžio plotelius, pvz., į 4 didesnius arba 16 mažesnių, kiekviename įvertinant atitinkamas DD ir vidutines intensyvumo vertes. Palyginus CL intensyvumo vs. DD priklausomybes, gautas pasitelkus skirtingo dydžio skenuojančius plotelius, buvo matyti, kad šios priklausomybės ir bendras verčių diapazonas kito tik paklaidų ribose; vadinasi, skenuojančio plotelio dydžio pasirinkimas rezultatams įtakos neturi. Tad analizei buvo pasirinktas optimalus plotelio dydis, kuris leistų: parinkti pakankamai statistinių duomenų; sumažinti duomenų išbarstymą. Be to, daugelyje bandinių defektų paieška buvo atlikta parinkus kiek įmanoma panašesnių parametrų (matuojamo ploto dydžio, elektronų greitinimo įtampos ir kitų mikroskopo nustatymų) nuotraukas, siekiant gauti kuo patikimesnius rezultatus.

4.2. CL intensyvumo priklausomybė nuo defektų tankio

Pritaikius anksčiau pateiktą skaičiavimą kiekviename tirtame bandinyje buvo įvertintas dislokacijų tankis ir liuminescencijos intensyvumas. Taigi 7 paveiksle parodyta tirtų bandinių integruoto InGaN spektro CL intensyvumo priklausomybė nuo dislokacijų/*v-pits* tipo defektų tankio.



7 pav. Tirtų bandinių CL integruoto intensyvumo priklausomybė nuo dislokacijų tankio.

Pastebimi tiek panašumai, tiek skirtumai tarp tirtų bandinių grupių bei grupių viduje. FNI grupės poliniai bandiniai išsiskiria didesniu DD, tuo tarpu UCSB ir NTU bandiniuose aptiktas DD yra tipinis InGaN dariniams ($\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$ [5]). Poliniuose ir nepoliniuose bandiniuose apskaičiuotas DD stipriai skiriasi – daugiau defektų aptikta c-plokštumos InGaN struktūrose ($\text{DD} \sim 10^8\text{-}10^{10} \text{ cm}^{-2}$), tuo tarpu m-plokštumos bei pusiau poliniuose InGaN gautas mažesnis defektų tankis. Svarbu pabrėžti, kad dislokacijų tankį galėjome įvertinti tik keliuose m-plokštumos bandiniuose. DD šiuo atveju paskaičiuotas iš CL intensyvumo žemėlapių ties GaN padėklo emisijos bangos ilgiu, kadangi nepolinių bandinių SEM ir InGaN juostos CL vaizduose dislokacijų nesimato. Tačiau galima aptikti GaN dislokacijas, kurios šiuo atveju atitiktų dislokacijas InGaN duobėse. m-MQW1^{UCSB}, m-MQW2^{UCSB} ir m-MQW3^{UCSB} bandiniuose apskaičiuotos DD vertės sutampa su literatūroje pateiktomis ($\text{DD} < 10^7 \text{ cm}^{-2}$, paklaidų diapazonas grafike pažymėtas pilku fonu)[20, 35]. Tad laikome, kad ir kitų nepolinių bandinių DD yra panašus paklaidų ribose (jiems priskyrėme vidutinę DD vertę tarp mūsų apskaičiuotų).

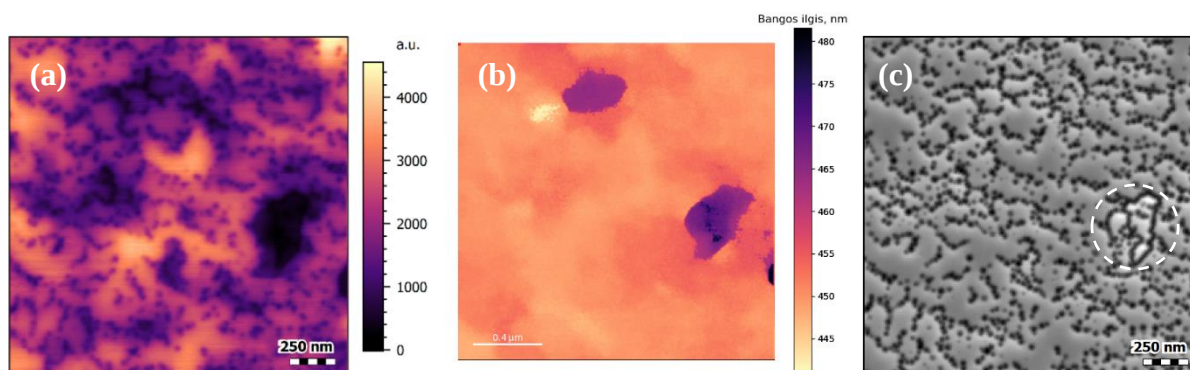
Toliau lyginant 7 pav. pateiktus CL intensyvumus galima pastebėti akivaizdų intensyvumų skirtumą tarp: (i) geriausių bandinių priklausančių skirtingai poliškumo klasei (pvz., c-MQW3^{UCSB} ir m-MQW2^{UCSB}), (ii) to paties poliškumo bandinių su skirtingu DD (pvz., c-plokštumos bandiniai),

(iii) MQWs ir sluoksnių (pvz., c-plokštumos UCSB grupės bandiniai), (iv) skirtingą tarpinį sluoksnį turinčių bandinių (pvz., FNI c-plokštumos bandiniai).

Taigi visi bandiniai skiriasi tiek DD tankiu tiek emisijos intensyvumu. Įdomiausia tai, kad poliniai MQWs bandiniai su dideliu dislokacijų/*v-pits* tankiu pasižymi efektyvesne šviesos emisija nei m-plokštumos ar pusiau poliniai MQWs bei c-plokštumos sluoksniai su mažesniu DD. Tad galima teigti, kad DD nėra pagrindinis InGaN darinių kokybę charakterizuojantis parametras. Toliau, atsižvelgiant į šitą teiginį, bus aptarti keli atskiri 7 paveiksle pastebimi aspektai.

4.2.1. CL intensyvumo priklausomybė nuo *v-pits* defektų tankio poliniuose InGaN

Tarp visų c-plokštumos MQWs intensyvumo ir defektų tankio priklausomybių stebima bendra tendencija - didesnio defektų tankio srityse, intensyvumas sumažėja. Tai susieta su tuo, kad šiuo atveju *v-pits* defektai bandiniuose yra nespindulinės rekombinacijos centrai [6, 29].

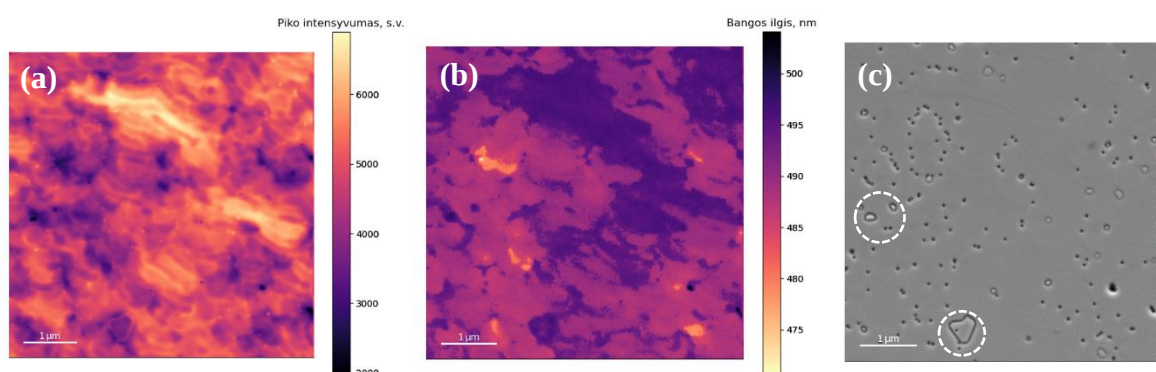


8 pav. c-MQW1^{FNI} c-plokštumos bandinio CL intensyvumo žemėlapis (a), CL spektro piko bangos ilgio žemėlapis (b) bei SEM vaizdas (c) tame pačiame plote ($1,9 \times 1,9 \mu\text{m}^2$). Matuota su 5 kV greitimo įtampa; spindulio laikas vienoje pozicijoje (*dwell time*) 1ms.

Kaip pavyzdys, 8 paveiksle parodyti CL intensyvumo, bangos ilgio pasiskirstymai ir SEM vaizdas gauti c-MQW1^{FNI} poliniame bandinyje. Intensyvumo pasiskirstyme matosi stipriau šviečiančios ir mažiau šviečiančios zonos. Be to, iš bangos ilgio pasiskirstymo matome: vietose su intensyvesne liuminescencija spektro piko bangos ilgis yra pasislinkęs į trumpesnes bangas, tuo tarpu vietose, kur intensyvumas mažesnis, spektro pikas yra pasislinkęs į ilgesnes bangas. Tad indis struktūroje pasiskirstęs netolygiai, nes kuo InGaN junginyje yra daugiau indžio, tuo labiau spektras slenkasi į mažesnes energijas. Dar viena galima erdviųjų CL piko fluktuacijų priežastis yra kintantis duobių plotis [36, 37]. Nepaisant to, bangos ilgio, kaip ir intensyvumo, pasiskirstymui turi įtakos ir struktūriniai defektai, tokie kaip *v*-formos duobės ir kilpiniai defektai, tad CL parametrų netolygumai gali koreliuoti ir su paviršiaus defektų tankiu [6], kaip yra šio bandinio atveju. *v-pit* defektuose vyksta sparti nespindulinė krūvininkų rekombinacija, todėl emisijos iš defekto branduolio (kuriame pasibaigia dislokacija) nėra — CL vaizde juos matome kaip juodus taškus. Kadangi bandinyje didelis

defektų tankis, emisijos savybės jame veikia lokalus defektų pasiskirstymas — pavieniai defektai mažiau veikia emisijos savybes nei jų spiečiai [15]. Be to, vidinio kvantinio našumo priklausomybė nuo defektų tankio parodo, kad našumas staigiai pradeda mažėti medžiagoje pasiekus tam tikrą DD vertę. Pavyzdžiui, [38] darbe GaN apskaičiuota vertė yra $\sim 10^8 \text{ cm}^{-2}$, po kurios IQE staigiai pradeda kristi ir pasiekia minimalias vertes ties $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, analogiška priklausomybė ir AlGaIn MQWs [39]. Tad remiantis panašia priklausomybę c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandiniuose ryškesnis priklausomybės polinkis ($k \sim -0,4$, 7 pav. tamsiai violetinės) yra matomas tikriausiai dėl to, kad pasiektas tas slenkstinis defektų skaičius InGaIn medžiagai, o tokį didelį DD tankį galimai lemia neoptimizuotos auginimo sąlygos. Tuo tarpu kitų tirtų grupių bandiniuose DD yra mažesnis, nors juose gauti analogiški rezultatai – koreliacija tarp CL intensyvumo bei defektų tankio išlieka, tik priklausomybės polinkis ne toks stiprus ($k \sim -0,1$; 7 pav. šviesiai violetinės).

FNI ir NTU bandiniuose pastebėta dar viena defektų rūšis, kuri veikia liuminescencijos savybes – kilpiniai (*angl. trench*) defektai. Bandinių paviršiaus SE vaizde (8 pav.(c) ir 9 pav. (c), pažymėta balta brūkšninė linija) matosi iškilusios virš paviršiaus salos, apjuostos grioviu/įduba – tai būtų kilpiniai defektai. Tokius defektus suformuoja uždaras arba beveik uždaras *v-pits* defektų kontūras, kuris aptveria medžiagos sritį, pasižyminčią kitokiais emisijos ypatumais lyginant su periferija (analogiškos tendencijos yra stebėtos šiuose šaltiniuose [40, 41]).

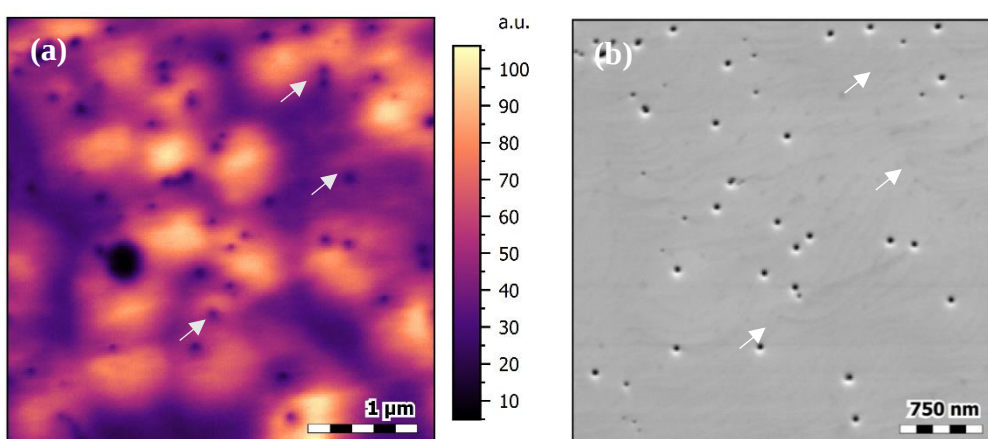


9 pav. NTU c-plokštumos bandinio CL intensyvumo žemėlapis (a), CL spektro piko bangos ilgo žemėlapis (b) bei SEM vaizdas (c) tame pačiame plote ($5,9 \times 5,9 \mu\text{m}^2$). Matuota su greitinimo įtampa 5kV; spindulio laikas vienoje pozicijoje (*dwell time*) - 0,85 ms.

Mūsų atveju, lyginant bandinio paviršiaus SE vaizdą su CL žemėlapiais matosi, kad tokių defektų viduje pasireiškia emisijos poslinkis į mažesnes energijas tiek viename, tiek kitame bandiniuose. Be to, defekto/kontūro viduje žymiai sumažėja CL intensyvumas. Straipsnyje *F.C.-P. Massabuau et al.*[42] liuminescencijos pokyčiai šių defektų apjuostose srityse aiškinami susidariusių įtempimų relaksacijomis. Įtempimų relaksacijos sukelia emisijos spektro poslinkį į mažesnes energijas bei lemia geresnę In inkorporaciją kilpinių defektų srityse. Didesnis In kiekis sąlygotų stipresnius pjezoelektrinius laukus defektų srityse, kas pasireikštų sumažėjusiu liuminescencijos intensyvumu.

Taigi kilpiniai defektai irgi iš dalies veikia liuminescencijos savybes (lemia didesnius CL parametrų nuokrypius) c-plokštumos bandiniuose. NTU bandinio SEM ir CL vaizduose irgi aptiktos tokios defektų kilpos (žr. 9 pav. balti apskritimai), kuriose intensyvumas sumažėja lyginant su periferija, o bangos ilgis pasislenka į mažesnes energijas. Sprendžiant iš vidutinio bangos ilgio standartinio nuokrypio amplitudės, šiame bandinyje pastarasis efektas yra mažiau ryškus lyginant su FNI struktūra: vidutinis bangos ilgis, $\lambda = 491 \pm 3$ nm NTU bandinyje, ir 450 ± 7 FNI struktūroje.

Be kvantinių duobių darinių buvo ištirti ir du sąlyginai stori InGaN sluoksniai. 8 paveiksle (žalios spalvos figūros) matyti, kad tirtų InGaN sluoksnių rezultatai išsiskiria iš MQWs struktūrų: juose stebima tiek žymiai silpnesnė CL emisija, tiek priešingos krypties CL intensyvumo priklausomybė nuo DD. Pažymėtina, kad sluoksnių atveju, defektų tankis buvo paskaičiuotas ne iš SEM paviršiaus vaizdų, bet iš CL intensyvumo žemėlapių, nes pastaruosiuose defektų buvo matyti daugiau (žr. 10 pav., nurodyta rodyklėmis). Taip yra, nes CL vaizdinime užfiksuojamos visos struktūros dislokacijos, kurios skatina nespindulinę krūvininkų rekombinaciją, tuo tarpu SEM vaizde matoma tik paviršiaus nelygumus (kaip MQWs atveju *v-pits* defektus).



10 pav. InGaN sluoksnio (c-L2^{UCSB}) CL integruoto intensyvumo žemėlapis (a) ir SEM paviršiaus vaizdas tame pačiame plote ($4,2 \times 4,2 \mu\text{m}^2$). Matuota su greitinimo įtampa 4 kV; spindulio laikas vienoje pozicijoje (*dwell time*) – 2 ms.

Įdomiausia tai, kad storuose InGaN sluoksniuose prie didesnio defektų tankio stebimas didesnis intensyvumas. Topologiškai, šis intensyvumo padidėjimas pasižymi stipresne liuminescencija artimoje defektui aplinkoje (žr. 10 pav. a), tad daugiau defektų turinčiuose ploteliuose vidutinis CL intensyvumas yra didesnis. Tai galėtų būti susieta su tuo, kad In atomai yra linkę kauptis aplink dislokacijas, kas buvo pastebėta pavienių defektų tyrimuose [17, 36]. Didesnio indžio kiekio sritys, susidarancios aplink defektus, veikia kaip krūvininkų lokalizacijos centrai, taip padidindami liuminescencijos intensyvumą. Nepaisant to, sluoksnių CL intensyvumas yra gerokai mažesnis nei kitų bandinių su panašiu defektų tankiu (kaip 7 pav. MQWs, pažymėti šviesiai violetinėmis

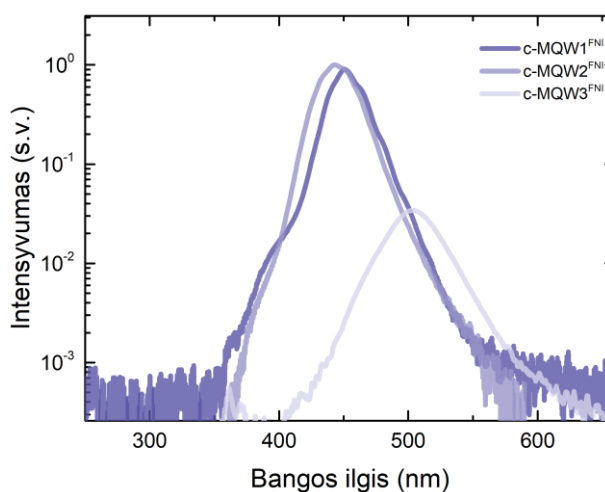
spalvomis). Greičiausiai, tai susiję su didesne taškinių defektų, kurie slopina liuminescenciją, koncentracija sluoksniuose.

4.2.2. InGaN/GaN supergardelės įtaka liuminescencijai

Šiame skyrelyje aptariamas vienas iš aukščiau paminėtų aspektų – intensyvumo skirtumą lemiančios priežastys skirtingą tarpinį sluoksnį turinčiuose bandiniuose.

7 paveiksle (tamsiai violetinės figūros) aiškiai matomas CL intensyvumų skirtumas tarp c-plokštumos FNI grupės bandinių: c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} InGaN MQWs intensyvumas (2200 ± 500 s.v. ir 2560 ± 780 s.v. atitinkamai) bei DD ($\sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) yra labai panašūs, tuo tarpu bandinys c-MQW3^{FNI} šviečia bent eile prasčiau net ir su mažesniu *v-pits* tankiu ($\sim 10^9 \text{ cm}^{-2}$); CL intensyvumų skirtumas yra dar akivaizdesnis žiūrint į šių bandinių erdvėje suvidurkintus spektrus 11 pav.

Šie bandiniai buvo užauginti panašiomis sąlygomis, ir yra panašios 5 periodų InGaN kvantinių duobių struktūros. Anot augintojų, In kiekis c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandiniuose apytiksliai yra 13% (tikslaus In kiekio Rentgeno spindulių difrakcijos matavimais (XRD) įvertinti nepavyko dėl komplikotos SL struktūros interpretacijos XRD signale, tad In dalis buvo įvertinta pagal identiškoms sąlygomis, bet be SL, augintą bandinį); tuo tarpu In kiekis c-MQW3^{FNI} bandinyje turėtų siekti 20 %, o CL bangos ilgis jame yra pasislinkęs į raudonojo sparno pusę (11 pav.). Toks poslinkis, taip pat ir intensyvumo sumažėjimas, gali būti sąlygotas būtent didesniu In kiekiu, nes dariniai su dideliu In kiekiu pasižymi prastu liuminescencijos efektyvumu. Nepaisant to, šios struktūros dar skiriasi ir tarpiniu sluoksniu – c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandiniuose buvo auginama InGaN/GaN SL, o trečiame bandinyje tokio pat storio [kaip SL] GaN sluoksnis. InGaN/GaN SL, kaip tarpinis sluoksnis, irgi galėtų sąlygoti didesnę CL intensyvumą c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandiniuose lyginant su c-MQW3^{FNI}.



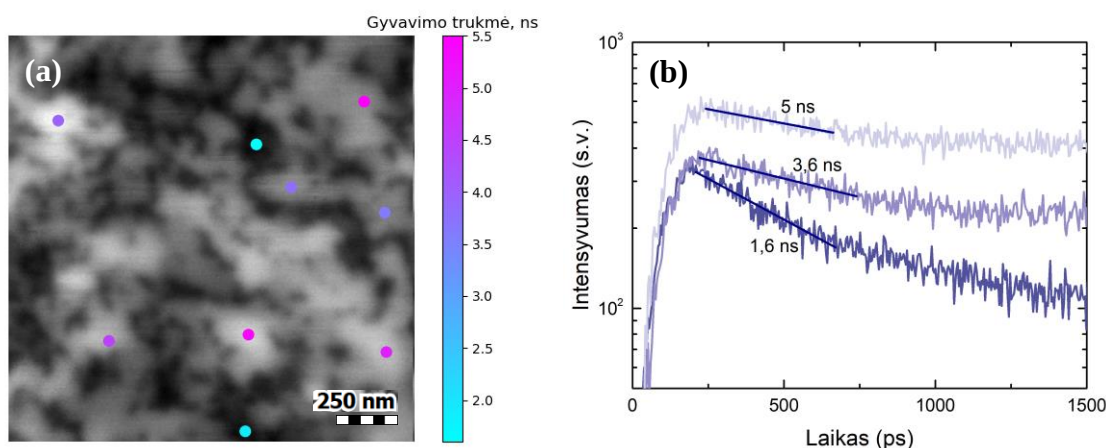
11 pav. c-MQW1^{FNI}, c-MQW2^{FNI} ir c-MQW3^{FNI} c-plokštumos InGaN MQWs erdvėje suvidurkinti CL spektrai.

Literatūroje [19, 35, 43] aprašyta, kad struktūrose su indžio turinčiais tarpiniais sluoksniais (arba InGaN/GaN SL) MQWs liuminescencija yra žymiai efektyvesnė nei bandiniuose su to paties storio ir auginimo temperatūros GaN tarpiniu sluoksniu. Rezultatai, pateikti minėtuose darbuose, parodo, kad GaN paviršiuje susidaro taškiniai defektai, kurie segreguoja augimo metu. Nors šių defektų kilmė ir savybės nėra iki galo išsiaiškinti, kai kuriuose darbuose yra teigiama, kad tokie defektai yra azoto vakansijos, susidarančios aukštos temperatūros GaN auginimo metu [21]. InGaN struktūroje jie reaguoja su indžio atomais ir formuoja nespindulinės rekombinacijos centrus. Kai prieš aktyviąją InGaN/GaN MQWs sritį yra auginamas In turintis tarpinis sluoksnis, pastarieji defektai yra jame pagaunami ir nepraleidžiami, taip pagerinant kvantinių duobių IQE. Be to, supergardelė galimai sumažina QCSE efektą polinėse struktūrose, dėl ko spektrai pasislenka į trumpesnių bangų pusę, o liuminescencijos intensyvumas padidėja [44, 45].

Taigi, mūsų atveju, SL greičiausiai sumažina taškinių defektų, atsirandančių ties GaN tarpinio sluoksnio paviršiumi, prasiskverbimą į InGaN kvantines duobes; to rezultate c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandiniai geriau šviečia. Atsižvelgiant į *v-pits* tankius šios serijos bandiniuose (7 pav. matyti, kad c-MQW1^{FNI} ir c-MQW2^{FNI} bandinių DD $\approx 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, o c-MQW3^{FNI} $\sim 10^9 \text{ cm}^{-2}$) galima teigti, kad supergardelė mažina būtent taškinių defektų tankį, o ne dislokacijų koncentraciją.

4.2.3. Liuminescencijos gesimo trukmė InGaN junginiuose

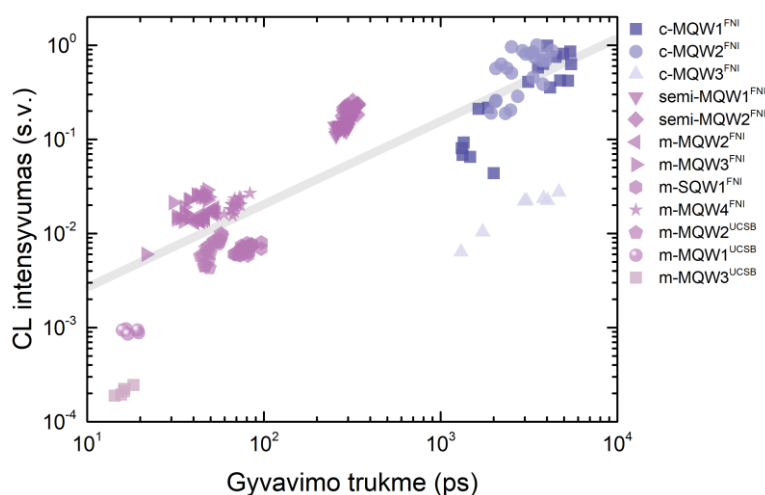
Siekiant gauti papildomos informacijos ir susieti defektų savybes su liuminescencijos parametrų fliuktuacijomis ir krūvininkų dinamika, buvo atlikti CL matavimai su laikine skyra. 12 (a) paveiksle parodytas CL integruoto intensyvumo žemėlapis, ir spalvotais taškais pažymėtos vietos, kur buvo išmatuotos kinetikos.



12 pav. c-MQW1^{FNI} poliniame bandinyje impulsiniame mikroskopo režime išmatuotas CL intensyvumo žemėlapis; krūvininkų gyvavimo trukmės matavimų vietos yra pažymėtos spalvotais taškais (a); CL kinetikos, išmatuotos skirtingose vietose, besiskiriančiose CL intensyvumu (b).

Kinetikos buvo matuojamos skirtingų CL intensyvumų vietose, siekiant nustatyti emisijos efektyvumo priklausomybę nuo krūvininkų gyvavimo trukmių. Krūvininkų gyvavimo trukmių vertės buvo gautos iš eksponentinės aproksimacijos, imant trumpą laiko intervalą CL gesimo kinetiką pradžioje, kaip parodyta 12 (b) paveiksle – jame pavaizduotos kelios kinetikos, išmatuotos skirtingose c-MQW1^{FNI} bandinio vietose. Visos gyvavimo trukmių vertės buvo apskaičiuotos ties centriniu emisijos bangos ilgiu (5 – 10 nm diapazone). Analogiškai, krūvininkų gyvavimo trukmės buvo įvertintos ir likusiems FNI bandiniams bei nepolinėms UCSB struktūroms. Poliniuose UCSB bandiniuose krūvininkų gyvavimo trukmės nebuvo matuojamos, kadangi CL gesimo trukmė juose viršijo laiko tarpą (~12.5 ns) tarp dviejų elektronų impulsų (šūvių dažnis yra lygus 80.7 MHz).

Toliau, krūvininkų gyvavimo trukmės buvo sugretintos su laike integruotomis CL intensyvumo vertėmis atitinkamuose erdvės taškuose skirtinguose bandiniuose, ir nupaišyta CL intensyvumo priklausomybė nuo gyvavimo trukmės (13 pav.). Šioje priklausomybėje matyti, kad visuose bandiniuose egzistuoja bendra tendencija – prie ilgesnių gyvavimo trukmių CL intensyvumas yra stipresnis. c-plokštumos FNI InGaN duobėse tai dalinai gali būti nulemta lokalios *v-pits* defektų koncentracijos pokyčių: šiuose bandiniuose [bent jau vieno bandinio rėmuose] DD stipriai koreliuoja su CL intensyvumu (7 pav. tamsiai violetinės figūros), kuris savo ruožtu koreliuoja su gyvavimo trukme. Trumpesnės CL gesimo trukmės paaikškina nespindulinę rekombinaciją, kuri būtų spartesnė dislokacijose ir/arba taškiniuose defektuose, pritraukiamuose dislokacijų — taškiniai defektai jau yra identifikuoti kaip nespindulinės rekombinacijos centrai nitriduose [17].



13 pav. CL intensyvumo priklausomybė nuo krūvininkų gyvavimo trukmės. Pilka linija parodo bendrą koreliaciją tarp CL intensyvumo ir krūvininkų gyvavimo trukmių tarp visų bandinių.

Be dislokacijų, intensyvumo slopinimą galėtų sąlygoti ir vakansijos, atsirandančios augimo metu. Pavyzdžiui, [11] darbe yra nustatyta, kad didelė Ga vakansijų koncentracija, tokia kaip 10^{16} cm^{-3} (kuri

stipriai priklauso nuo medžiagos draustinių energijų tarpo bei auginimo temperatūros), žalią bei geltoną šviesą emituojančiuose InGaN lemia sparčią nespindulinę rekombinaciją (palyginamą ar net greitesnę už spindulinę), taip slopinant InGaN IQE.

Lyginant skirtingo poliškumo bandinius matyti, kad poliniuose bandiniuose gautos trukmių vertės kito ruože nuo 1 iki 6 ns. Šios krūvininkų gyvavimo trukmės yra ilgesnės nei nepoliniuose ar pusiau ploniuose bandiniuose, kuriuose CL gesimas buvo pikosekundinis: 15-400 ps.

Dideli liuminescencijos intensyvumo skirtumai tarp skirtingų poliškumų InGaN junginių ir, atitinkamai, skirtumai tarp krūvininkų gyvavimo trukmių galimai yra sąlygoti taškinių defektų: ypač didelės jų koncentracijos nepoliniuose dariniuose ir mažos poliniuose [36]. Didelė deguonies priemaišų koncentracija m-plokštumos dariniuose vaidina vyraujantį vaidmenį slopinant liuminescenciją, greičiausiai, formuojant nespindulinės rekombinacijos defektų kompleksus [4, 46]. Nors taškinių defektų koncentracija priklauso ir nuo auginimo temperatūros, skirtingo poliškumo InGaN junginius auginant vienodoje temperatūroje pasireiškia skirtinga taškinių defektų inkorporacija (kuri priklauso dar ir nuo defekto rūšies)[4]. Tokiu būdu būtų galima paaiškinti intensyvumu skirtumą tarp vienodomis sąlygomis užaugintų skirtingo poliškumo struktūrų (FNI bandinių serija: c-MQW1^{FNI}, semi-MQW1^{FNI}, semi-MQW2^{FNI}, m-MQW1^{FNI}). Taigi didelė priemaišų ir vakansijų koncentracija gali veikti kaip liuminescencijos efektyvumo mažinimo šaltinis nepoliniuose InGaN dariniuose.

Pagrindiniai rezultatai ir išvados

1. Darbo metu sukurtas *Python* kalbos kodas, leidžiantis: (i) automatiškai būdu, *LoG* algoritmo pagalba, atpažinti aukšto kontrasto sritis – defektus (dislokacijas/*v-pits*) antrinių elektronų bei katodoliuminescencijos vaizduose; (ii) įvertinti lokalią defektų koncentraciją; (iii) sugretinti defektų tankio pokytį su liuminescencijos fliktuacijomis InGaN ar kituose junginiuose.
2. InGaN/GaN plonų sluoksnių supergardelė – tarpinis sluoksnis tarp QW darinio ir padėklo – sumažina taškinių defektų tankį c-plokštumos InGaN QW struktūrose, bet nesumažina dislokacijų tankio lyginant su pavieniu GaN tarpiniu sluoksniu.
3. InGaN/GaN kvantinių duobių dariniuose katodoliuminescencijos intensyvumas teigiamai koreliuoja su liuminescencijos gesimo trukme, kas polinių junginių atveju yra dalinai nulemta lokalios *v-pits* defektų tankio variacijos, o nepolinių ir pusiau polinių struktūrų atveju – taškinių defektų tankio fliktuacijos.

Literatūros sąrašas

- [1] C. Weisbuch, M. Piccardo, L. Martinelli, J. Iveland, J. Peretti, and J. S. Speck, "The efficiency challenge of nitride light-emitting diodes for lighting," *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.*, vol. 212, no. 5, pp. 899–913, 2015.
- [2] C. Weisbuch, "Review-On The Search for Efficient Solid State Light Emitters: Past, Present, Future."
- [3] M. Monavarian, A. Rashidi, and D. Feezell, "A Decade of Nonpolar and Semipolar III-Nitrides: A Review of Successes and Challenges," *Phys. status solidi*, vol. 216, no. 1, Dec. 2018.
- [4] S. C. Cruz, S. Keller, T. E. Mates, U. K. Mishra, and S. P. Denbaars, "Crystallographic orientation dependence of dopant and impurity incorporation in GaN films grown by metalorganic chemical vapor deposition," 2009.
- [5] M. J. Davies *et al.*, "The effects of varying threading dislocation density on the optical properties of InGaN/GaN quantum wells," *Phys. Status Solidi C 11*, vol. C 11, no. 3–4, pp. 750–753, 2014.
- [6] F. C-P Massabuau *et al.*, "Optical and structural properties of dislocations in InGaN," *J. Appl. Phys.*, vol. 125, no. 165701, 2019.
- [7] H. Masui, S. Nakamura, S. P. DenBaars, and U. K. Mishra, "Nonpolar and semipolar III-nitride light-emitting diodes: Achievements and challenges," *IEEE Trans. Electron Devices*, vol. 57, no. 1, pp. 88–100, 2010.
- [8] H. Zhong, C. Zhang, W. Song, K. Chen, and Y. Sheng, "Surface morphology of polar , semipolar and nonpolar freestanding GaN after chemical etching," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 511, no. September 2019, p. 145524, 2020.
- [9] C. X. Ren, "Polarisation fields in III-nitrides : effects and control," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 0836, no. June, 2016.
- [10] J. Ryou *et al.*, "Control of Quantum-Confined Stark Effect in InGaN-Based Quantum Wells," vol. 15, no. 4, pp. 1080–1091, 2009.
- [11] C. E. Dreyer, A. Alkauskas, J. L. Lyons, J. S. Speck, and C. G. Van De Walle, "Gallium vacancy complexes as a cause of Shockley-Read-Hall recombination in III-nitride light emitters," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 108, no. 14, Apr. 2016.
- [12] S. Marcinkevičius, K. M. Kelchner, S. Nakamura, S. P. Denbaars, and J. S. Speck, "Optical properties and carrier dynamics in m -plane InGaN quantum wells," *Phys. Status Solidi Curr. Top. Solid State Phys.*, vol. 11, no. 3–4, pp. 690–693, 2014.
- [13] T. Weatherley *et al.*, "Imaging non-radiative point defects buried in quantum wells using cathodoluminescence," pp. 1–21, 2021.
- [14] C. Bazioti *et al.*, "Defects, strain relaxation, and compositional grading in high indium content InGaN epilayers grown by molecular beam epitaxy," *J. Appl. Phys.*, vol. 118, no. 15, Oct. 2015.
- [15] C.-P. Massabuau *et al.*, "Carrier localization in the vicinity of dislocations in InGaN," *J. Appl. Phys.*, vol. 121, p. 13104, 2017.
- [16] R. A. Oliver, M. J. Kappers, J. Sumner, R. Datta, and C. J. Humphreys, "Highlighting threading dislocations in MOVPE-grown GaN using an in situ treatment with SiH₄ and NH₃," *J. Cryst. Growth*, vol. 289, no. 2, pp. 506–514, 2006.
- [17] R. Yapparov *et al.*, "Variations of light emission and carrier dynamics around V-defects in InGaN quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol. 128, p. 225703, 2020.
- [18] S. Yamaguchi *et al.*, "Structural properties of InN on GaN grown by metalorganic vapor-phase epitaxy," *J. Appl. Phys.*, vol. 85, no. 11, 1999.
- [19] Y. Chen, C. Haller, W. Liu, Y. Karpov, J.-F. Carlin, and N. Grandjean, "GaN buffer growth temperature and efficiency of InGaN/GaN quantum wells: The critical role of nitrogen vacancies at the GaN surface," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 118, p. 111102, 2021.
- [20] G. Li *et al.*, "GaN-based light-emitting diodes on various substrates: A critical review," *Reports Prog. Phys.*, vol. 79, no. 5, p. 56501, 2016.
- [21] C. Haller *et al.*, "GaN surface as the source of non-radiative defects in InGaN/GaN quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 113, p. 111106, 2018.
- [22] D.-B. Li, T. Katsuno, K. Nakao, M. Aoki, H. Miyake, and K. Hiramatsu, "Influence of Si doping on the optical and structural properties of InGaN films," *J. Cryst. Growth*, vol. 290, pp. 374–378, 2006.
- [23] S. Marcinkevičius, K. M. Kelchner, L. Y. Kuritzky, S. Nakamura, S. P. Denbaars, and J. S. Speck, "Photoexcited carrier recombination in wide m-plane InGaN/GaN quantum wells," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, p. 111107, 2013.
- [24] F. K. Yam and Z. Hassan, "InGaN: An overview of the growth kinetics, physical properties and

- emission mechanisms,” *Superlattices Microstruct.*, vol. 43, no. 1, pp. 1–23, 2008.
- [25] T. K. Uždavinys *et al.*, “Impact of surface morphology on the properties of light emission in InGaN epilayers,” *Appl. Phys. Express* 11, vol. 051004, 2018.
 - [26] B. J. Inkson, *Scanning electron microscopy (SEM) and transmission electron microscopy (TEM) for materials characterization*. Materials Characterization Using Nondestructive Evaluation (NDE) Methods, 2016.
 - [27] P. Grivickas, “Optical Studies of Carrier Transport and Fundamental Absorption in 4H-SiC and Si,” pp. 1–5, 34–43, 68–82, 2004.
 - [28] S. Nargelas, “Nepusiausvirųjų krūvininkų dinamikos tyrimas sužadavimo-zondavimo metodikomis In, InGaN, GaAsBi,” *Daktaro Disert. Vilniaus Univ.*, pp. 17–30, 2012.
 - [29] J. Lähnemann *et al.*, “Carrier diffusion in GaN—a cathodoluminescence study. III: Nature of nonradiative recombination at threading dislocations,” 2020.
 - [30] C. Trager-Cowan *et al.*, “Structural and luminescence imaging and characterisation of semiconductors in the scanning electron microscope,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 35, 2020.
 - [31] T. Zhu *et al.*, “Local carrier recombination and associated dynamics in m-plane InGaN/GaN quantum wells probed by picosecond cathodoluminescence,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 109, p. 232103, 2016.
 - [32] S. F. Chichibu, Y. Ishikawa, K. Hazu, and K. Furusawa, “Spatio-time-resolved cathodoluminescence studies of wide-bandgap group-III nitride semiconductors,” *Japanese J. Appl. Phys. STAP Rev.*, 2020.
 - [33] X. Xiong and B.-J. Choi, “Comparative Analysis of Detection Algorithms for Corner and Blob Features in Image Processing,” *Orig. Artic. Int. J. Fuzzy Log. Intell. Syst.*, vol. 13, no. 4, pp. 284–290, 2013.
 - [34] H. Kong, H. C. Akakin, and S. E. Sarma, “A generalized laplacian of gaussian filter for blob detection and its applications,” *IEEE Trans. Cybern.*, vol. 43, no. 6, pp. 1719–1733, 2013.
 - [35] C. Haller, J.-F. Carlin, G. Jacopin, D. Martin, R. Butté, and N. Grandjean, “Burying non-radiative defects in InGaN underlayer to increase InGaN/GaN quantum well efficiency,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 111, p. 262101, 2017.
 - [36] A. Bansal, J. M. Redwing, and Z. Y. Al Balushi, “Cathodoluminescence spatially resolves optical transitions in thick group-III and N- polar InGaN films,” *J. Appl. Phys.*, vol. 175305, 2020.
 - [37] K. Gelžinyte *et al.*, “High spatial uniformity of photoluminescence spectra in semipolar (202⁻¹) plane InGaN/GaN quantum wells,” *J. Appl. Phys.*, vol. 117, no. 2, 2015.
 - [38] S. Y. Karpov and Y. N. Makarov, “Dislocation effect on light emission efficiency in gallium nitride,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 81, p. 4721, 2002.
 - [39] K. Ban *et al.*, “Internal quantum efficiency of whole-composition-range AlGaIn multiquantum wells,” *Appl. Phys. Express*, vol. 4, no. 5, pp. 16–19, 2011.
 - [40] C.-P. Massabau *et al.*, “Correlations between the morphology and emission properties of trench defects in InGaIn/GaN quantum wells,” *J. Appl. Phys.*, vol. 113, p. 73505, 2013.
 - [41] A. Vaitkevičius *et al.*, “Influence of quantum-confined Stark effect on optical properties within trench defects in InGaIn quantum wells with different indium content,” *J. Appl. Phys.*, vol. 115, no. 21, 2014.
 - [42] F. C.-P. Massabau *et al.*, “Morphological , structural , and emission characterization of trench defects in InGaIn / GaN quantum well structures,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 212107, no. 101, p. 21, 2012.
 - [43] A. M. Armstrong, B. N. Bryant, M. H. Crawford, D. D. Koleske, S. R. Lee, and J. J. Wierer, “Defect-reduction mechanism for improving radiative efficiency in InGaIn/GaN light-emitting diodes using InGaIn underlayers,” *J. Appl. Phys.*, vol. 117, p. 134501, 2015.
 - [44] J. Mickevičius, T. Grinys, A. Kadys, and G. Tamulaitis, “Optimization of growing green-emitting InGaIn/GaN multiple quantum wells on stress-relieving superlattices,” *Opt. Mater. (Amst.)*, vol. 82, no. 71–74, 2018.
 - [45] T. Li *et al.*, “The effect of InGaIn underlayers on the electronic and optical properties of InGaIn/ GaN quantum wells,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 102, p. 41115, 2013.
 - [46] C. Lund, S. Nakamura, S. P. Denbaars, U. K. Mishra, and S. Keller, “Properties of N-polar InGaIn/GaN quantum wells grown with triethyl gallium and triethyl indium as precursors,” *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 34, no. 7, 2019.

Summary

Mariamija Nikitina

The influence of defects on microscopic-scale luminescence properties in InGaN alloys

III-group nitride alloys are widely used in various nitride-based photonics devices, such as light emitting diodes (LEDs), laser diodes (LDs), etc. One of the most common type of active layers in these devices are InGaN/GaN multiple quantum wells (MQWs). Internal quantum efficiency of InGaN/GaN quantum structures can reach as high as 90% (in blue LEDs). Further improvements of light emission efficiency of these devices are currently limited by various factors, such as compositional fluctuations, internal electric fields and threading dislocations. In case of electric fields, the non-polar InGaN MQWs can be used in order to decrease the QCSE. In case of compositional fluctuations, the Indium containing underlayer can be used to reach more homogeneous In distribution. However, most of InGaN structures still suffer from large dislocation and point defect densities, which affect luminescence properties. Thus, this work was dedicated to get a better understanding of defect types and their effect on luminescence properties in InGaN alloys.

The high-resolution Scanning Electron Microscopy (SEM) as well as spatially- and time-resolved Cathodoluminescence (CL) Spectroscopy were employed to investigate the optical and structural properties of three sets of InGaN structures. These three sets contained MQWS and layers of: (i) various polarities; (ii) In content; (iii) different substrates and underlayers.

SEM allowed to evaluate defect density at different sample areas, while CL analysis was convenient to get an insight into material properties, such as bandgap, CL intensity distribution, and carrier dynamics with high spatial and temporal resolutions. So, the microscopic characterization of studied samples let us hypothesize that dislocation densities are not the main factor describing the emission efficiency in InGaN alloys. Study showed that CL intensity of InGaN/GaN MQWs is directly related with luminescence decay time. In case of polar structures this can be attributed to local variations of *v-pits* defects density; in case of non-polar structures luminescence is affected by point defects density fluctuations. Moreover, research results show that InGaN/GaN superlattice used as underlayer can decrease point defects density in QW structures.