Çok-Segmentli Nano Heteroyapı Tabanlı Tam Renkli Ayarlanabilir Işık Yayıcılar

Full Color Tunable Light Emitters based on Multisegment Nano Heterostructures

Sunay Turkdogan[1], Fan Fan[2], Zhicheng Liu[2], Cun-Zheng Ning[2]

[1]Enerji Sistemleri Mühendisliği, Elektronik ve Haberleşme Mühendisliği
Yalova Üniversitesi
sunayturkdogan@hotmail.com

[2]Elektrik Mühendisliği
Arizona State Üniversitesi
fan.fan.2@asu.edu, zhicheng.liu@asu.edu, cning@asu.edu

Özet

Bu çalışmada çok segmentli ZnCdSSe nano heteroyapıların kolay bir CVD rotası kullanılarak benzersiz bir büyütme yöntemi ile büyütülmesi ve ışık yayıcı uygulamaları anlatılmaktadır. Ortaya çıkan ürünler geniş bir yelpazede, yakın-kızılötesinden yakın-ultraviyoleye kadar, tüm görünür spektrumu kapsayan ışınlar yayabilir. Her segmentin kimyasal kompozisyonunu ayarlayarak üç ana rengi eş zamanlı yayan yekpare yapılar büyütebiliriz. Herbir segmentin pompalama gücünü ayarlayarak tam renkli ayarlanabilir ışık yayıcılar bu çalışma ile gösterilmiştir. Buna ek olarak, her segmentin düzgün tanımlanmış kavitesi uyarılmış emisyonu desteklediğinden ve yekpare yapılardaki birbirine paralel kavite düzenlemesi sayesinde beyaz ve tam renkli ayarlanabilir Lazer uygulamaları gösterilmiştir. Katı hal aydınlatmasının arzulanan karakteristikleri olan yekpare, fosforsuz ve tek materyal sistemi ile büyütülen beyaz ışık aydınlatıcılarının tüm özellikliklerini kapsayan bu çalışmamız katı hal aydınlatmasının yanı sıra diğer uygulamalar (display, LiFi, vb.) için de oldukça iddialıdır.

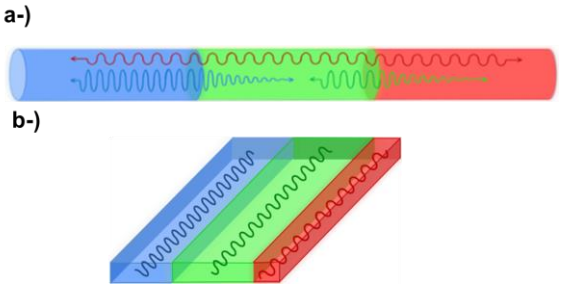
Abstract

We report the growth of multisegment ZnCdSSe nano heterostructures realized by a unique growth method using a facile CVD route and their light emitter applications. The resulting products are able to emit light in a wide range from near-IR to near-UV covering the whole visible spectrum. By tuning the composition of each segment we can grow such monolithic structures emitting three elementary colors simultaneously. By changing the relative pumping power of each segment we demonstrate full color tunabe light emitters. In addition, well defined cavity of each segment supports the stimulated emission and side by side cavity arrangement of the structures makes it possible to demonstrate full color tunable including white lasing under high enough pumping power. Our work is very promosing for solid state ligting applications as it demonstrates the growth of monolithic phosphor-free white light emitters from a single material system which are the desired characteristics of the solid state lighting. Our work is also very promising for display, Li-Fi, and etc. technologies.

1. Giriş

Kompozisyon kademeli nano heteroyapılar son yıllarda önemli derecede ilgi odağı haline gelmiştir ve bu yapılar kullanılarak çeşitli uygulamalar gerçekleştirilmiştir [1-3]. Yapılan bu çalışmalarda fotonik uygulamalar için özellikle lazer uygulamalarında en uygun morfolojinin nanolevha (nanosheet) olduğu açığa kavuşturulmuştur [2]. Ancak bu yapıların özellikle geniş bant aralığına sahip olanların (ZnS, ZnSe gibi) nanolevha formunda büyütülmesi klasik CVD yöntemi kullanılarak mümkün değildir. Bunun en büyük nedeni geniş bant aralığına sahip kaynak materyallerin düşük buhar basıncına sahip olması [4] ve bundan dolayı nano malzemelerde, büyüme işlemini başlattıran katalist malzemenin yüksek süpersaturasyona ulaşamamasıdır. Bu tür düşük buhar basıncına sahip malzemeler genellikle nanotel (nanowire) formunda büyümektedir. Ancak bizim amacımız olan çok renkli ışık yayıcılar (Lazer ve/veya LED) nanotel veya nanokemer (nanobelt) gibi morfolojilere sahip yapılar kullanılarak gerçekleştirilememektedir. Bunun nedeni, eksenel bir şekilde büyütülen segmentlerden açığa çıkan ışık emisyonunun daha düşük enerjili komşu segmentler tarafından soğrulması ve bunun sonucunda büyük oranda düşük enerjili fotonların yayılmasıdır (Şekil 1). Lazer uygulamaları açısından eksenel heteroyapılar herhangi bir manipülasyon yapılmaksızın kesinlikle kullanılamamaktadır [3]. Bu tip uygulamalarda fotonların kavite içerisinde ileri geri hareket ederek (geribesleme mekanizması) bir üst seviyedeki elektronları uyarıp aynı fazda, aynı dalga boyunda ve aynı yönde yeni fotonların oluşması sağlanmalıdır. Tüm bu gereksinimleri göz önüne aldığımızda ZnCdSSe' ün tüm alaşımlarını kontrollü bir şekilde büyüterek çok segmentli

nanoyapıların paralel segmentler halinde nanolevha yapısı içinde büyütülmesi geliştirmiş olduğumuz eşsiz büyütme yöntemi ile mümkün kılınmaktadır.



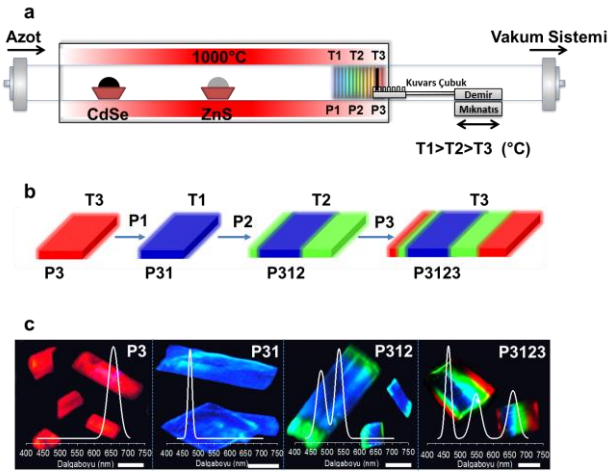
Şekil 1. Eksenel ve paralel segmentli nano heteroyapıların şematik gösterimi ve herbir segmentte üretilen fotonların osilasyonu. Nanoteldeki (a) yüksek enerjili fotonlar daha düşük bant aralığı enerjisine sahip komşu segmentler tarafından absorbe edilir. Nanolevhada (b) ise segmentlerin büyüme yönü ile fotonların osilasyon yönü birbirine dik olduğundan benzer durum söz konusu değildir.

Geliştirmiş olduğumuz büyütme yöntemi herhangi bir kesintiye mahal vermeden aynı CVD prosesi içerisinde iki aşamadan oluşmaktadır [1]. İlk aşamada ZnCdSSe' ün Nanolevha formunda büyütülebilecek kompozisyonu büyütülüp ikinci aşama için şablon olarak kullanılmaktadır. İkinci aşamada, istenilen morfoloji elde edildikten sonra yüksek sıcaklıkta eş zamanlı anyon ve katyon tepkimesi gerçekleştirilerek nanolevhayı oluşturan kompozisyonun arzu edilen kompozisyona (geniş bant aralığına sahip) dönüştürülmesi sağlanmaktadır. Bahsi geçen aşamalardaki ZnCdSSe dörtlü alaşım kompozisyonu birinci ve ikinci aşamalar için sırasıyla CdSe ve ZnS/Se' dür. Daha önce yapılmış olan çalışmalarda büyütülen nanoyapıların morfolojilerinin nanotel' den nanokemer' e ve son olarak nanolevha' ya dönüştüğü ZnCdSSe kompozisyonunun ZnS' den CdSe' e kaymasıyla görülmektedir [1]. Bu eşsiz büyütme yöntemi sonucu kalınlığı 60-350nm ve yanal boyutları 40µm x 60µm' ye kadar olan çok segmentli yekpare nanolevhalar (Şekil 1b' deki gibi) büyütülmüştür.

Büyütülen bu nano heteroyapılar kullanılarak optik pompalanmış çok renkli LED ve Lazer uygulamaları gerçekleştirilmiştir. Tam görünür spektruma yayılmış lazerler, özellikle kırmızı, yeşil ve mavi (RGB) ışınım yapanlar, lazer aydınlatması, diplayler, tam renk lazer görüntüleme, biyolojik ve kimyasal algılama, vb. uygulamalarda kullanılabilmektedir. Aydınlatma kaynağı olarak lazerler diğer geleneksel ve beyaz LEDlere oranla daha yüksek enerji dönüşüm verimliliği ve güç sunmaktadır. Lazer aydınlatıcılar ideal olarak üç veya daha fazla tek dalga boyunda ışınım yapan kaynaklardan oluşmaktadır ve dolayısı ile renk kalitesinin (CRI) çok yüksek olması beklenmemektedir. Ancak, yakın zamanda yapılan bir çalışmada dört monokromatik lazer ışınının insan gözü tarafından görülen sürekli spektrumlu beyaz bir referans aydınlatıcısına görsel olarak eşdeğer olduğu gösterilmiştir [5]. Bunun yanı sıra monokromatik tabanlı ışık kaynakları konvansiyonel display teknolojilerindeki rakiplerine oranla daha fazla renk skalası (İnsan gözünün algılayabileceği renklerin yaklaşık %90' ı elde edilebilir), daha yüksek kontrast ve daha canlı renkler sunmaktadır. Bu denli öneme sahip olan çok renkli yekpare lazer teknolojisi birçok girişime rağmen yarıiletken malzemeler kullanılarak gösterilememiştir. Bunun en büyük nedenlerinden bir tanesi farklı örgü sabitine sahip değişik kompozisyondaki malzemelerin geleneksel epitaksi yöntemi ile büyütülememesidir. Ancak bizim çalışmamızda nanoteknolojiden yararlanılarak örgü uyuşmazlığı %10' a kadar olan malzemeler yekpare bir yapı içinde büyütülmüş olup eşsiz büyütme yöntemi sonucunda elde edilen paralel segmentli nanolevhalar sayesinde çok renkli lazer ve LED uygulamaları gerçekleştirilmiştir.

2. Çok-Segmentli ZnCdSSe Nano Heteroyapıların Büyütülmesi ve Karakterizasyonu

ZnCdSSe dörtlü alaşımın farklı kompozisyonlarının büyütülmesi için CdSe ve ZnS toz malzemeleri kullanılmış ve sıcaklık bağlantılı kompozisyon çökmesi yönteminden [6-9] yaralanılmıştır. Büyütme sıcaklığı düştükçe ZnCdSSe yapıların kompozisyonu ZnS zengininden CdSe zenginine doğru kaymakta ve morfolojileride sırasıyla nanotelden nanolevhaya doğru kademeli bir şekilde değişmektedir [1]. Şekil 2 büyütme kurulumunu, işlem adımlarını ve açığa çıkan nanoyapıların şematik ve optik pompalama altında fotolüminesans görüntülerini göstermektedir.



Şekil 2. (a) ZnCdSSe dörtlü alaşım CVD büyütme düzeneği ve (b) farklı prosesler sonucu büyütülen ürünlerin şematik gösterimi, (c) fotoluminesans görüntüleri ve emisyon spektrumları. Ölçekler 15µm' dir.

İlk olarak Cd ve Se zengini ZnCdSSe nanolevhalar 640°C' de (P3, T3) büyütülmüştür. Daha sonra alttaş, sıcaklığın 780°C olduğu bölgeye (P1, T1) mıknatıs ile sürülen çubuk vasıtasıyla taşınmış ve bu yüksek sıcaklık değeri altında iyon difüzyonu hızlandırılmıştır. Bu proses bir önceki aşamada büyütülen CdSe-zengini ZnCdSSe' ün herhangi bir morfoloji değişimi olmadan ZnS/Se zengini nanolevhalara dönüşmesini sağlamıştır. Bu değişim sonrasında Şekil 2'de görüldüğü gibi kırmızı ışık yayan nanolevhalar mavi ışık yaymaya başlamışlardır. Bu değişim işlemi sırasında eşzamanlı anyon ve katyon değişim tepkimeleri olmuştur ve bildiğimiz kadarıyla bu gösterim literatürde bir ilktir. Daha önce tek bir büyütme işlemi sırasında sadece katyon veya anyon değişim tepkimeleri gösterilmiş olup [10-13] kullanmış olduğumuz eşsiz metot türünün ilk örneğidir ve farklı malzemelerin de istenilen morfolojilerde elde edilmesi için imkân sunmaktadır. İkinci aşamadan sonra, alttaş 740°C' ye (P2, T2) çekilmiş ve burada daha fazla Cd ve Se iyonunun katılmasıyla yeşil ışık

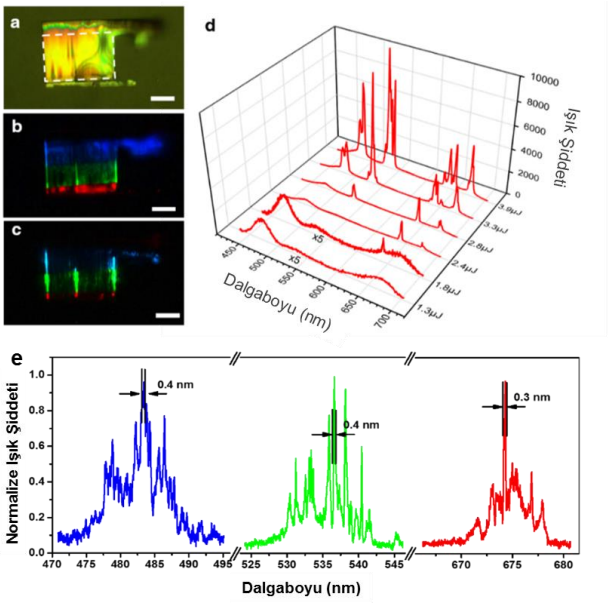
emisyonu veren ikinci segment büyütülmüştür. Son olarak alttaş ilk başlangıç pozisyonuna yani 640°C' ye (P3, T3) çekilmiş olup burada CdSe-zengini ZnCdSSe alaşımının üçüncü segment olarak büyütülmesi sağlanmıştır. Sonuç olarak bu dört aşamalı kesintisiz büyütme işlemi sonucunda birbirine paralel segmentler yekpare nanolevha morfolojisinde toplanmış olup herbir segmenti oluşturan ZnCdSSe' ün farklı kompozisyonları (bant aralıkları) sayesinde üç temel renk olan kırmızı, yeşil ve mavi ışıkların eşzamanlı emisyonları dolayısıyla beyaz ışık emisyonu elde edilmiş oldu. Üçüncü ve dördüncü aşamalardaki düşük alttaş (büyüme) sıcaklığı iyon değişiminin teşvik edildiği ikinci aşamadan farklı olarak iyonların taşınımını (transportunu) desteklemekte ve bu nedenle yeni segmentlerin büyümesini sağlamaktadır.

Büyütülen bu nanolevhaların yapısal karakterizasyonları elektron mikroskopları ile tayin edilmiş olup herbir segmentin wurtzite tek kristalli yapıya sahip olduğu ve aşikâr kusurların olmadığı saptanmıştır. Yapısal analiz sonuçlarına göre nanomalzemeler iki aşamalı bir büyüme işlemine tabidir. İlk olarak nanomalzemelerin (010) yönünde büyüdüğü ve bir süre sonra, fırın sıcaklığı belli bir değerin üzerine ulaştığında, büyümenin (001) yönünde olduğu analizler sonucunda ortaya konmuştur [1]. Gerek geçirimli gerekse taramalı elektron mikroskop incelemelerine göre büyütülen malzemeler kalınlık olarak 60-350nm aralığında ve yanal boyut olarak 40µm x 60µm civarlarındadır.

Şekil 2b ve c'de görüldüğü gibi mavi ışık emisyonuna sahip segmentin iki karşılıklı kenarlarında büyütülen segmentlerin genişliği birbirinden farklıdır. Bunun nedeni bir tarafın katyonlarla (pozitif iyonlarla) diğer tarafın ise anyonlarla (negatif iyonlarla) sonlandırılmış olmasıdır. Katyonlarla sonlandırılmış kenar termodinamik ve kimyasal açıdan daha aktif olurken burada büyütülen yeni katmanların anyonlarla sonlandırılmış kenara oranla çok daha hızlı büyüme hızına sahip olması beklenir [11]. Aynı zamanda katyonların metal olmasından dolayı katalitik olarak ta bir katkı sağlanmaktadır.

3. Tam Renkli Ayarlanabilir Yekpare Işık Yayıcı Uygulamalarının Gösterimi

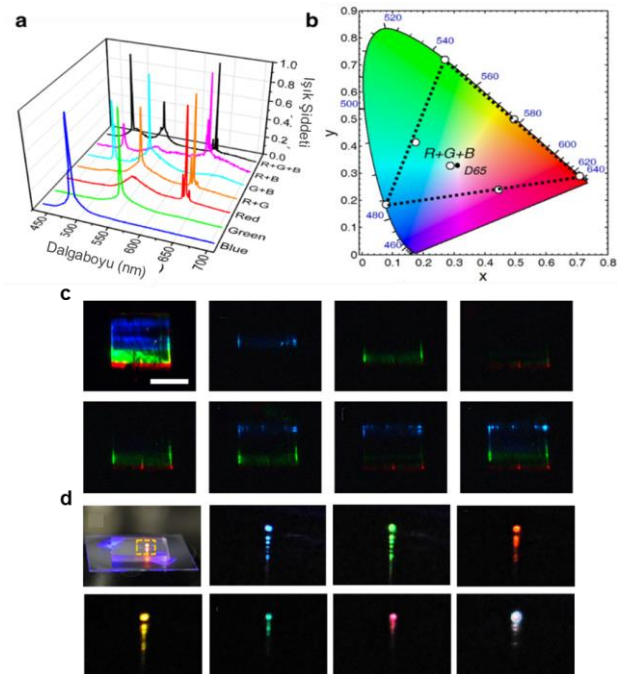
Gerek herbir segmentin uygun geometrisinden gerekse büyütme yöntemi kaynaklı segment dizilişlerinden dolayı yüksek enerjili optik pompalama altında kendiliğinden ve uyarılmış ışınımların gösterimi sağlanmıştır. Önceki paragraflarda da bahsedildiği gibi yarıiletken tabanlı geniş dalga boyu aralığını kaplayabilecek malzemelerin tek bir yapı içinde büyütülmesi bu güne kadar mümkün olmamıştır. Geliştirmiş olduğumuz yöntem sayesinde birbirine paralel olarak konumlanmış farklı kompozisyondaki segmentlerin aynı yapı içerisinde büyütülmesi mümkün kılınmış ve bu yapılar kullanılarak tüm görünür spektrumu kaplayan ışık yayıcı uygulamaları gerçekleştirilmiştir. Işınım testleri ve optik karakterizasyon için büyütülmüş nano yapılar başka bir alttaş üzerine transfer edilmiş olup ev yapımı inceltilmiş fiber ile boş bir MgF_2 alttaş üzerine taşınmıştır [14]. MgF_2 üzerinde bulunan bağımsız yapılar gerek LED gerekse Lazer uygulamaları için farklı pompalama güçleri altında test edilmiştir. Şekil 3 bu tür bir nano yapının kendiliğinden emisyondan uyarılmış emisyona nasıl geçtiğini ve herbir lazer ışınımının karakteristik özelliklerini göstermektedir. Şekil 3b 1.2µJ enerjili tek bir darbe ile pompalama sonucu elde edilen fotoluminesans görüntüsünü göstermektedir. Eş dağılımlı kendiliğinden emisyona sahip bu yapıda görülen saçılmalar nano yapıların transferi sırasında meydana gelen bükülmeler veya kırılmalardan kaynaklanmaktadır. Şekil 3c 3µJ darbe enerjili pompalama altındaki fotoluminesans görüntüsüdür. Burada açıkça görüldüğü üzere kendiliğinden emisyon azalmış olup nano levhayı oluşturan herbir segmentin kavite uçlarında uyarılmış emisyon belirginleşmiştir. Kavite uçlarındaki bu parlak ışınım lazer emisyonunun gerçekleşmeye başladığının kanıtıdır. Ancak daha detaylı analiz için pompalama gücüne bağlı fotoluminesans spektrumları alınmış ve Şekil 3d' de gösterilmiştir. Şekil 3d' deki spektrum evriminde görüldüğü gibi pompalama lazerinin darbe enerjisi 1.3µJ' den 1.8µJ' e çıktığında kendiliğinden emisyon kırmızı renk yayan segment güçlendirilmiş kendiliğinden emisyona geçmiştir. Bir sonraki 2.4µJ' luk pompalama ile aynı emisyon uyarılmış emisyona geçmiş olup lazer ışınımı bu segment için başlamıştır. Pompalama lazerinin enerjisi 2.4µJ' den 2.8µJ' e çıktığında ise yeşil ışık saçan segmentin emisyonu güçlendirilmiş kendiliğinden emisyona ve bir sonraki 3.3µJ' lük pompalama enerjisi ile uyarılmış emisyona geçiş yapmıştır. Yeşil ışık yayan segmentin lazer ışınımına geçtiği sırada mavi ışık yayan segment te güçlendirilmiş kendiliğinde emisyona sahip olmuş ve pompalama enerjisinin daha da arttırılmasıyla 3.9µJ' de tüm segmentlerden lazer ışıması elde edilmiştir. Görüldüğü gibi herbir rengin lazer ışıma eşik değeri farklıdır ve bu değer dalga boyu kısaldıkça artmaktadır. Bunun nedenleri şu şekilde sıralanabilir. Yüksek enerjiye sahip fotonlar düşük bant aralığı enerjisine sahip komşu segmentler tarafından absorbe edilir ve ayrıca geniş bant aralığına sahip segmentlerdeki uyarılmış taşıyıcılar bant hizalamasından dolayı düşük bant aralığına sahip diğer segmentlere transfer olabilmektedir. Bu nedenlerden dolayı lazer eşikdeğerleri kırmızıdan maviye doğru kaydıkça artmaktadır.



Şekil 3. (a) Çok segmentli nanolevhanın karanlık alan optik mikroskop görüntüsü. Optik pompalama altından (b) kendiliğinden ve (c) uyarılmış fotoluminesans görüntüleri. (d) Pompalama enerjisi ile emisyon spektrumunun evrimsel değişimi. (e) Herbir segmentten açığa çıkan lazer ışınımına ait yüksek çözünürlüklü fotoluminesans spektrumları. Ölçü 10µm' dir.

Şekil 3d' de görülen lazer ışımalarının standart lazer ışınım tanımının aksine geniş bir spektruma vakıf olduğu açıkça görülmektedir. Bunun en temel nedeni herbir segmentin boyutsal olarak büyük olması ve birden fazla modu desteklemesidir. Şekil3d' de görülen keskin spektrumlar aslında çok modlu bir lazer ışımasıdır ve bu yüzden standart lazer tanımının aksine daha geniş bir spektrumu kaplamaktadır. Çok modlu ışınımı oluşturan modların spektrum genişliğini bulmak için yüksek çozünürlüklü fotoluminesans spektrumları Şekil 3e' de gösterildiği gibi alınmıştır. Bu şekilde görüldüğü gibi herbir modun spektrum genişliği mavi, yeşil ve kırmızı ışınımlar için sırasıyla 0.4nm, 0.4nm ve 0.3nm' dir. Bu değerler kullanmış olduğumuz spektrometrenin çözünürlük limiti ile sınırlı olup gerçek değerlerin daha küçük olması muhtemeldir.

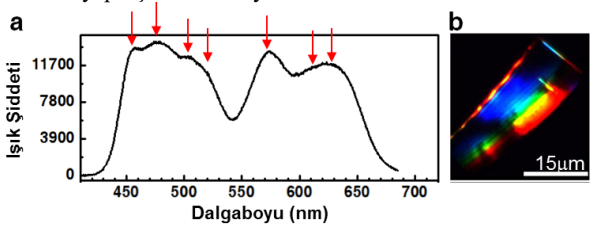
Büyütmüş olduğumuz bu nanoyapıların eşsiz potansiyelini göstermek amacıyla ana renklerin belirli oranlarda karıştırılması ile dinamik renk kontrolü ve özellikle beyaz ışık yayan lazer uygulamaları keşfedildi. Bunu gerçekleştirmek için birbirine paralel dar ve uzun lazer şeritleri (lazer kaynağından çıkan ışın, ışın bölücüler ve silindirik aynalar kullanılarak üç'e ayrıldı) kullanılarak herhangi bir segment diğerlerinden bağımsız olarak istenilen enerji seviyesinde pompalandı. Şekil 4 segmentlerin farklı oranlarda pompalanması sonucu açığa çıkan ışınımların spektrumunu, CIE kromatik diyagramdaki yerini, yakın görüş ve uzak görüş fotoluminesans görüntülerini göstermektedir. Herbir ana renk istenilen oranda pompalanabildiği için açığa çıkan lazer ışınımı kontrol edilebilmektedir. Üç ana rengin farklı ışınım oranlarında karıştırılmasıyla Şekil 4b' deki üçgen içerinde kalan renklerden herhangi biri elde edilebilmektedir. Ancak bu çalışmada üç ana ve dört ara rengin elde edilmesine bakacağız. Öncelikle Şekil 4c' nin üst sütunundaki ilk resimde çok segmentli bir nanolevhanın düşük pompalama enerjisi altındaki fotoluminesans görüntüsü görülmektedir. Pompalama lazerinin enerjisi arttırıldığı takdirde ışınım türü kendiliğinden emisyondan uyarılmış emisyona geçmektedir. Birbirine paralel üç dar ve uzun lazer ışınları kullanılarak mavi, yeşil, kırmızı, sarı, cam göbeği (cyan), magenta ve beyaz renkli lazer ışınımı gösterilmiştir. Her bir segment ayrı olarak pompalandığında ana renkler yani mavi, yeşil ve kırmızı ışık emisyonları elde edilmiştir. Herhangi iki segment aynı anda pompalandığı takdirde kırmızı ve yeşil karışımından sarı, yeşil ve mavi karışımından cyan ve son olarak mavi ve kırmızı karışımında magenta renkli ışınım yapan lazerler elde edilmiş oldu. Herbir segmentin aynı anda pompalanması sonucu ise beyaz renkli lazer emisyonu elde edilmiş oldu ve beyaz lazer spektrumunun CIE kromatik diyagram koordinatının standart D65 [15]' e çok yakın olduğu gösterilmiştir. Şekil 4c' de herbir duruma karşılık gelen fotoluminesans görüntüleri görülmektedir. Buradaki görüntüler mikroskop altında alındığından herbir segmentin verdiği ışık rengi ayırt edilebilmektedir. Ancak uzak alan görüntülerinde yani insan gözünün herhangi bir araç kullanmadan görebileceği görüntülerde bu renklerin karışımları olan ara renkler yani sarı, cyan, magenta ve beyaz Şekil 4d' deki gibi görülebilmektedir. İncelediğimiz bu nanolevha sayesinde Şekil 3b' de görüldüğü gibi insan gözünün algılayabileceği renklerin yaklaşık %70' i elde edilebilmektedir. Bu değerin dahada genişletilebilmesi kullanmış olduğumuz büyütme yöntemi ile mümkün olup tek yapılması gereken büyütme aşamlarındaki alttaş pozisyonunu uygun bir şekilde ayarlayarak daha geniş bir üçgen elde edecek bant aralığı değerlerini elde etmektir. Bu örneği baz aldığımızda büyütmenin 3. aşamasındaki alttaş pozisyonu (eşzamanlı anyon katyon tepkimesi sonrası) fırın merkezine daha yakın bir bölgede yani daha yüksek bir sıcaklık pozisyonunda tutulsa idi yeşil renk emisyonu 545nm değilde 520nm olabilir ve elde edilebilecek renkler önemli ölçüde arttırabilirdi.



Şekil 4. RGB emisyonu yayan üç segmentli bir nano yapının herbir segmentinin ayrı ve farklı kombinasyonlarda pompalanması sonucu açığa çıkan tam renkli ayarlanabilir ve beyaz Lazer ışımaları. (a) Üç ana ve dört ara rengi temsil eden fotoluminesans spektrumları. (b) Elde edilen tüm renklerin CIE kromatik diyagram konumlarının gösterimi. (c) Yedi farklı rengin elde edildiğini gösterir optik mikroskop altındaki yakın-alan fotoluminesans görüntüleri. (d) c' deki durumlara karşılık gelen renklerin uzak-alan'a ait standart fotoğraf makinası ile çekilmiş ışıma görüntüleri.

Büyütme yönteminin çok yönlülüğünü ve kullanışlılığını göstermek amacıyla farklı alttaş pozisyonlarının ve ekstra adımların kullanıldığı deneyler yapılmıştır. Bu deneyler sonucu açığa çıkan nanolevhalardan bir tanesinin fotoluminesans görüntüsü ve spektrumu Şekil 5' te gösterilmiştir. Büyütme yöntemimizdeki en önemli parametre alttaş pozisyonu ve herbir pozisyonda alttaşın ne kadar süreyle tutulacağı, yani her bir segmentin büyüme süresidir. Alttaş pozisyonu ZnCdSSe dörtlü alaşımın kompozisyonunu ayarlarken büyütme süresi büyütülen segmentin genişliğini yani dolayısıyla segmentten aşığa çıkacak olan emisyonun şiddetini belirlemektedir. Şekil 5' te görüldüğü gibi farklı alttaş pozisyonlarının ve ekstra adımların kullanılması ile sadece RGB emisyonu değil neredeyse tüm görünür bölgedeki renk emisyonlarını verecek segmentler büyütülmüştür. Bu deneylerde çok fazla adım kullanıldığı için herbir adımda kullanılan büyütme zamanı kısa tutulmuştur (kaynak malzeme tükenimini engellemek için) ve bu nedenle özellikle Şekil 5b' deki segmentler dar görülmektedir. Bu deneylerden anlaşılacağı gibi eşsiz büyütme yöntemimizi kullanarak

istenilen dalga boyundaki ışığı yayacak segmentlerin yekpare bir nano yapı içerisinde büyütülmesi mümkündür.



Şekil 5. Yedi farklı alttaş pozisyonu kullanılarak büyütülmüş nanoyapının fotoluminesans (a) spektrumu ve (b) görüntüsü.

4. Sonuçlar

ZnCdSSe çok segmentli nano heteroyapılar kullanılarak eşzamanlı RGB (dolayısıyla beyaz) lazer ışıması ilk kez yekpare, fosforsuz ve tek materyal sisteminin barındırıldığı bir yapı ile gösterilmiş oldu. Farklı segmentlerin değişik oranlarda pompalanması sonucu tüm görünür bölgede ayarlanabilir tam renkli ve beyaz lazerler elde edildi. Bu yapıların büyütülmesindeki en önemli adım ilk defa bu çalışma ile gösterilen eş zamanlı anyon ve katyon değişim tepkimeleridir. Bu proses tam ve beyaz renkli lazerlerin keşfedilmesinde anahtar bir rol oynamaktadır. Bu özgün yöntem sayesinde istenilen morfoloji ve kompozisyon ikilisi indirekt bir şekilde elde edilmiştir. ZnCdSSe' ün yanı sıra istenilen kompozisyon ve morfoloji kombinasyonunu direkt olarak sağlayamayan diğer ikili, üçlü ve dörtlü alaşımlarda da bu özgün yöntem kullanılarak yeni fotonik uygulamaların keşfedilmesine katkı sağlanacaktır. Elde ettiğimiz bu sonuçlar yeni ve önemli birçok optoelektronik-fotonik cihazların ortaya çıkmasına önayak olacak olup yeni teknolojilerin de keşfedilmesine katkı sağlayacaktır.

5. Kaynaklar

[1] Fan, F., Turkdogan, S., Liu, Z., Shelhammer, D., ve Ning, C.Z., "A monolithic white laser", Nature nanotechnology, 10., 796-803, 2015

[2] Fan, F., Liu, Z., Yin, L., Nichols, P., Ning, H., Turkdogan, S. ve Ning, C.Z., "Simultaneous two-color lasing in a single CdSSe heterostructure nanosheet", *Semiconductor Science and Technology*, 28(6), p.065005. 2013.

[3] Liu, Z., Yin, L., Ning, H., Yang, Z., Tong, L. ve Ning, C.Z., "Dynamical Color-Controllable Lasing with Extremely Wide Tuning Range from Red to Green in a Single Alloy Nanowire Using Nanoscale Manipulation", *Nano Letters*, 13(10), 4945-4950, 2013.

[4] Thin Film Evaporation Guide. (Lebow Corporation and Vacuum Engineering & Materials Inc.: Santa Clara, CA, 2008.

[5] Neumann, A., Wierer, J., Davis, W., Ohno, Y., Brueck, S. ve Tsao, J., "Four-color laser white illuminant demonstrating high color-rendering quality", *Opt. Express*, 19(S4), A982, 2011.

[6] Yang, Z., Xu, J., Wang, P., Zhuang, X., Pan, A. ve Tong, L., "On-Nanowire Spatial Band Gap Design for White Light Emission", *Nano Letters*, 11(11), 5085-5089, 2011.

[7] Liu, Y., Zapien, J., Shan, Y., Geng, C., Lee, C. ve Lee, S., "Wavelength-Controlled Lasing in ZnxCd1-xS Single-Crystal Nanoribbons", *Adv. Mater.*, 17(11), 1372-1377, 2005.

[8] Pan, A., Liu, R., Sun, M. ve Ning, C., "Quaternary Alloy Semiconductor Nanobelts with Bandgap Spanning the Entire Visible Spectrum", *J. Am. Chem. Soc.*, 131(27), 9502-9503, 2009.

[9] Pan, A., Zhou, W., Leong, E., Liu, R., Chin, A., Zou, B. ve Ning, C., "Continuous Alloy-Composition Spatial Grading and Superbroad Wavelength-Tunable Nanowire Lasers on a Single Chip", *Nano Letters*, 9(2), 784-788, 2009.

[10] Dloczik, L. ve Konenkamp, R, "Nanostructure iyonfer in semiconductors by ion exchange", Nano Lett., 3, 651-653, 2003.

[11] Son, D., Hughes, S., Yin, Y. ve Alivisatos, A., "Cation Exchange Reactions in Ionic Nanocrystals", *Science*, 1009, 2004.

[12] Moon, G., Ko, S., Min, Y., Zeng, J., Xia, Y. ve Jeong, U., "Chemical transformations of nanostructured materials", *Nano Today*, 6(2), 186-203, 2011.

[13] Wang, Y., Liu, M., Ling, T., Tang, C., Zhi, C. ve Du, X., "Gas-phase anion exchange towards ZnO/ZnSe heterostructures with intensive visible light emission", *Journal of Materials Chemistry C*, 2(15), 2793, 2014.

[14] Turkdogan, S., "Growth and Characterization of Multisegment Chalcogenide Alloy Nanostructures for Photonic Applications in a Wide Spectral Range", *Arizona State University*, 2015.

[15] International Commission on Illumination. CIE 15: Colorimetry Technical Report, 3rd Edition. US Gov. Doc. 2004

Ek A

Büyütme Parametreleri

Büyütme işlemi Lindberg/Blue M tek zonlu tüp fırın, akış ölçerler, manometre ve ayaralanabilir basınç valflerinden oluşan ev yapımı bir CVD sistem ile gerçekleştirilmiştir. Tüm deneylerde fırın merkez sıcaklığı 1000°C, N_2 taşıyıcı gaz akış miktarı 10sscm ve sistem basıncı 10Torr olarak kullanılmıştır.

Optik ve Yapısal Analiz Bilgileri

Optik pompalama 355nm Nd: YAG lazer (Spectra Physics) (tekrarlama frekansı: 10Hz, darbe genişliği: 9ns) kaynağı ile gerçekleşmiş olup ışınım spektrumları Olympus karanlık alan mikroskopu ve Si dizi dedektörlü Horiba Triax320 Spektrometre içeren ev yapımı bir fotoluminesans düzeneği ile alınmıştır. Yapısal karakterizasyonlar JEOL 2010 taramalı geçirimli elektron mikroskopu (STEM) ve XL-Pro taramalı elektron mikroskopunun (SEM) 200kV ve 15kV' ta sürülmesi ile gerçekleştirilmiştir. Kimyasal kompozisyon analizleri elektron mikroskoplarında gömülü olan enerji dağılımlı spektroskopi (EDS) dedektörleri sayesinde yapılmıştır.

Daha detaylı analiz ve uygulama sonuçları için Kay.[1]' e bakılması önerilir.