

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

深紫外光電材料及奈米低維結構之摻雜活化機制的 X 光吸收
光譜研究(2/2)

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC92-2112-M-009-011-

執行期間：92 年 08 月 01 日至 93 年 07 月 31 日

執行單位：國立交通大學電子物理學系(所)

計畫主持人：陳文雄

報告類型：完整報告

處理方式：本計畫可公開查詢

中 華 民 國 93 年 12 月 8 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

深紫外光電材料及奈米低維結構之摻雜活化機制的 X 光吸收光譜研究(2/2)

計畫編號: NSC-92-2212-M-009-011

執行期間: 92/8/1~93/7/31

主持人：陳文雄 交通大學電子物理系

一、中文摘要

在本期計畫當中，我們藉由 X 光繞射(X-ray Diffraction, XRD)、光激發螢光光譜(Photoluminescence, PL)以及 X 光吸收光譜(X-ray Absorption, XAS)討論不同厚度的氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井(InGaN/GaN SQW)之應力變化。X 光吸收光譜發現顯著的量子能階。另外隨著氮化銦鎵厚度的降低我們量測到應力產生的壓電場由 1.2 MV/cm 減小到 $8.5 \times 10^{-3} \text{ MV/cm}$ 。此計算結果與實驗數據可互相對應。我們相信氮化銦鎵量子井之應力分佈會影響氮化銦鎵/氮化鎵光電元件的光學性質。

二、英文摘要

X-ray absorption spectroscopy (XAS), Photoluminescence (PL) and X-ray Difference (XRD) Spectra of strained single layer InGaN films sandwiched by GaN were performed to study the stain variation in layers of different thickness. The XAS spectrum showed a recognizable quantum confined ground state level of the least strained conduction-band well. In

addition, the strain induced piezoelectric field was seen to relax with increasing InGaN layer thickness. The induced electric field was thus estimated from known InGaN-related peak position, which varied from 1.2 MV/cm for the 4.9 nm sample to $8.5 \times 10^{-3} \text{ MV/cm}$ for the 300 nm film. The results were juxtaposed with the experimental data for comparison. We believe the strain relaxation problem in InGaN quantum wells has to be accounted for in any serious InGaN / GaN light-emitting components as it affects the optical properties of these devices.

三、緣由與目的

氮化鎵及相關三族氮化物薄膜已被廣泛應用在紫外光波長發光元件、光偵測器、高溫元件以及高功率發光元件之上。為了提高元件的工作效率，提高 p 型氮化鎵的電洞濃度以及低維度量子結構的成長是元件發展的兩個關鍵步驟。在本計畫的第一年當中，我們利用 X 光吸收細微結構光譜

(X-ray Absorption Fine Structure, XAFS) 研究一系列不同鎂摻雜濃度的 p 型氮化鎵樣品，在不同的退火活化時間之下發現鎂摻雜的氮化鎵樣品有鍵長增加、整齊度增加以及六方晶相增加的行爲。

除此之外，低維度的量子井或量子點也是增加元件效能的關鍵因素。但是由於氮化鎵和氮化鎵的晶格不匹配，在界面所產生的壓電場會形成發光波長的位移現象[1]，尤其以多層量子井結構最為明顯。為了研究應力在量子井內釋放對於發光機制的影響，我們對於波長在紫外光的氮化鎵鎵/氮化鎵單層量子井進行 X 光吸收光譜以及繞射光譜的研究。

四、實驗步驟

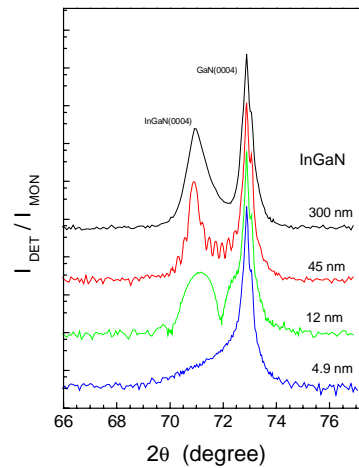
本實驗使用之氮化鎵鎵/氮化鎵單層量子井薄膜樣品是使用低壓有機金屬氣相沈積系統製備 氮化鎵鎵厚度由 4.9 nm 變化至 300 nm，個別的樣品鎵組成皆約為 13 %。

樣品分析方面，我們首先利用本實驗室的光激發螢光光譜(PL)系統量測不同樣品的發光波長。PL 系統的激發源是波長為 325nm 的 Hg-Cd 雷射，工作溫度為 10K。至於 X 光方面的研究則是利用同步輻射中心的 X 光光源進行 X 光繞射(2θ / 掃描)以及鎵原子的 L-edge X 光吸收光譜(XAS)

五、結果與討論

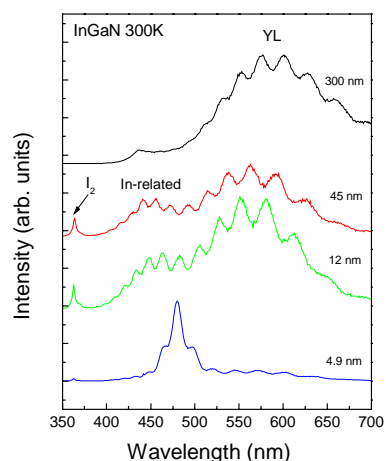
圖一是利用 X 光繞射的結果。我們發現到在氮化鎵(0004)譜峰旁邊可以看到氮化鎵鎵的繞射譜峰，隨著氮化鎵鎵的厚度增加，氮化鎵鎵譜峰的強度也隨之增加 利用 2θ / 掃描的 X 光繞射結果，我們訂出氮化鎵鎵/氮化鎵單層量子井的厚度。成長氮化鎵鎵的時間由 1, 4, 16, 99 分鐘時，對應的氮化鎵鎵厚度由 4.9, 12, 45 增加到

300nm 而氮化鎵鎵的鎵組成濃度大約在 13%左右。



圖一. 不同厚度氮化鎵鎵/氮化鎵單層量子井的 X 光繞射譜圖

除此之外，光激發螢光光譜的結果則發現氮化鎵鎵的發光波長大約分布在 439~480nm 的範圍。如圖二所示，當氮化鎵鎵厚度由 4.9 增加至 12nm 時，PL 光譜的發光波長呈現相當明顯的藍位移(blue-shift)，而當厚度繼續增加時，藍位移的程度逐漸降低，另外則是出現了 550nm 左右的黃光發光 (yellow emission)。



圖二. 不同厚度氮化鎵鎵/氮化鎵單層量子井的 PL 光譜圖

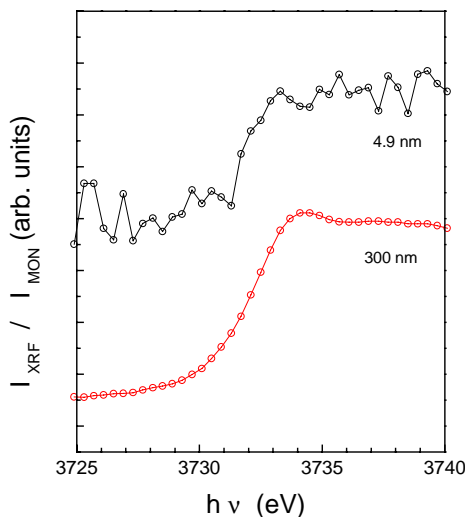
為了確定發光波長的位置，我們另外進行低溫的 PL 光譜量測。由發光

波長和壓電場的關係式[2]：

$$h\nu(T, w) = E_g(T) + E_c(w) + E_h(w) - ewF(w) \quad (1)$$

我們可以得到在氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井之中的應力分布。其中 E_c 以及 E_h 代表電子和電洞在量子井內的量子能階位置，而 $F(w)$ 則是量子井內的壓電場強度。

為了確定氮化銦鎵薄膜的確有量子能階存在，近邊緣 X 光吸收能譜提供了直接的證據。圖三是銦原子的 L-edge X 光吸收光譜圖(Xas)，用以呈現接近表面時銦原子附近的鍵結結構。我們發現當氮化銦鎵厚度降低時，由於銦原子相關的訊號強度降低，因此延伸邊緣精細結構(Extended X-ray Absorption Fine Structure, EXAFS)的光譜分析受到相當大的雜訊影響。另一方面，對於近邊緣的精細結構(X-ray Absorption Near Edge Structure, XANES)由於訊號較強，我們可以在能帶對能帶吸收(Band-to-Band)之外，觀測到明顯的量子能階吸收。

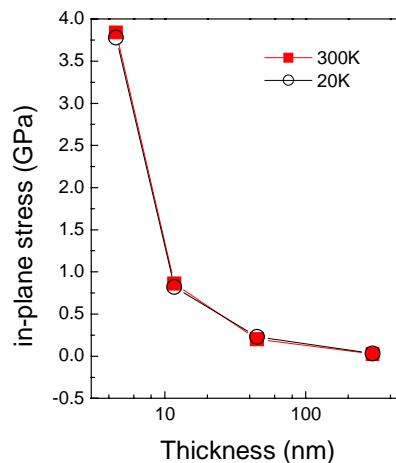


圖三. 不同厚度氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井的 L-edge 近邊緣 X 光吸收譜圖

我們認為利用 X 光吸收光譜研究低維度奈米結構有先天上的困難，

由於奈米結構本身尺寸極小，X 光聚焦的尺寸遠比單一個奈米結構大許多，因此若要研究單一個奈米結構的 X 光吸收光譜，尤其是由延伸結構能譜分析鍵結的鍵長，配位數等等。我們認為若要深入研究奈米結構的 X 光吸收光譜特性，更強的 X 光光源能夠解析銦原子 K-edge 的吸收光譜將是迫切需要的實驗設備。

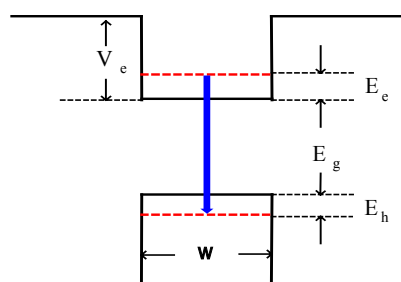
利用近邊緣 X 光吸收光譜確定氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井內的量子能階，因此我們代入 PL 量測的結果到關係式(1)當中，可以得到氮化銦鎵厚度在 4.9, 12, 45, 300nm 時，存在於單層量子井內的壓電場強度分別是 1.1, 0.27, 0.075, 0.001 MV/cm。除此之外，利用 wurtzite 結構的應力張量[3]，我們可以算出這一系列樣品的應力釋放情形。如圖四所示，當氮化銦鎵厚度降低時，由於晶格不匹配所形成的應力還能夠維持在氮化銦鎵薄膜當中，因此壓電場強度最強。相反的當氮化銦鎵厚度增加時，由於應力經由缺陷或錯位的形成而釋放，因而降低單層量子井的壓電場強度。



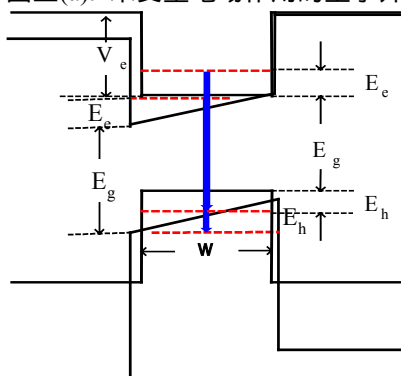
圖四. 不同厚度氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井的應力分布

壓電場強度和氮化銦鎵單層量子井厚度的關係由圖五所示。當壓電場強度增加時，原本的有限位能并能

帶結構將被扭曲，因此電子將由於靜電力的作用，聚集在量子井靠近基版的接面之上。相反的，電洞則是聚集在量子井靠近表面的接面之上。由於電子電洞在受到壓電場作用的情形之下並不是直接複合 (direct recombine)，因而造成發光波長藍位移的現象。



圖五(a). 未受壓電場作用的量子井結構



圖五(b). 受壓電場作用的量子井結構

六、結論

本計畫中，我們藉由 X 光繞射 (X-ray Diffraction, XRD)、光激發螢光光譜 (Photoluminescence, PL) 以及 X 光吸收光譜 (X-ray Absorption, XAS) 討論不同厚度的氮化銦鎵/氮化鎵單層量子井 (InGaN/GaN SQW) 之應力變化。隨著氮化銦鎵厚度的降低我們量測到應力產生的壓電場由 1.2 MV/cm 減小到 $8.5 \times 10^{-3} \text{ MV/cm}$ 。我們相信氮化銦鎵量子井之應力分佈會影響氮化銦鎵/氮化鎵光電元件的光學性質。

參考資料

- [1] T. Takeuchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 1691 (1998)
- [2] H. Teisseyre, *J. Appl. Phys.* **76**, 2429 (1997)
- [3] J. Bai *et al.*, *J. Appl. Phys.* **90**, 1740 (2001)