

# 行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

## 寬能隙半導體材料及其結構之時域解析光譜之研究

### Time-Resolved Photoluminescence Studies of Wide-Band Gap Semiconductor Material and Structure

計畫編號：NSC89-2112-M009-013

執行期限：88年8月1日至89年10月31日

主持人：陳文雄 執行機構及單位名稱：國立交通大學電子物理系

#### 一、中文摘要

我們從時域解析與時間累積冷激光光譜，探討氮化鎵經砷元素同電子性摻雜後光學特性，發現砷元素對激子復合過程有很重大的影響，並會形成一侷限能態。當 As 元素摻雜入薄膜後，很明顯的，缺陷能階與施子-受子對的躍遷減少了。由激子復合過程可觀察到此侷限能態在溫度 75K 以下時開始影響放光機制，與氮化鎵本身的受束縛激子躍遷隨溫度的 1.5 次方相關明顯的不同。藉由 SRH 理論，我們可以很完整的描素這些現象。

**關鍵詞：**時域解析之冷激光光譜、氮化鎵、同電子性摻雜、載子輻射與非輻射復合

#### Abstract

We have studied the As doping effects on the optical characteristics of GaN films by time integrated photoluminescence and time resolved photoluminescence. When As is incorporated into the film, the localized defect levels and donor-acceptor pair transition become less resolved. The recombination lifetime of neutral donor bound exciton ( $I_2$ ) transition in undoped GaN increases with temperature as  $T^{1.5}$ . However, the  $I_2$

recombination lifetime in As-doped GaN first decreases exponentially from 98 to 41 ps between 12 and 75 K, then increases gradually to 72 ps at 250 K. Such a difference is related to the isoelectronic As impurities itself in GaN, which generate near-by shallow levels that dominate the recombination process.

**Keywords:** time-resolved photoluminescence, GaN, isoelectronic doping, radiative and nonradiative recombination

#### 二、計畫緣由與目的

近年三五族氮化物之半導體發光二極體製作技術日益千里，已有非常好的產品問市；但對於光學儲存、光纖通訊與光學辨識方面，仍須高功率的紫光雷射，連帶著三五族氮化物之半導體雷射亦需求孔切[1], [2], [3]。

在本計畫中，我們延續了去年在時域解析之冷激光光譜的研究心得[4], [5], [6]，更深入、精密地研究同電子性摻雜氮化鎵(GaN)的激子能階躍遷之動態行為，以了解材料元件中之雜質或缺陷的種類和形成原因。我們擬利用紫外光範圍的低溫時域解析之冷激光光譜量測系統(Low-temperature Time resolved Photoluminescence)，此系統將

toluminescence), 此系統將可用於量測三五族氮化物的紫光雷射元件之發光量子效應, 可瞭解結構缺陷與雜質多寡; 另外, 將尋找砷元素同電子性摻雜的光學特性。藉此量測, 我們預期可以得到砷元素如何影響氮化鎵的束縛激子和載子的弛緩過程, 以及觀察載子輻射或非輻射的復合或非復合機制與生命週期 (lifetime)。

### 三、結果與討論

為了更進一步的探討關於同電子性摻雜對於光學躍遷的影響, 例如能隙躍遷, 我們使用時間解析激發光譜來研究載子的動力過程。圖 1 為溫度 12K 下有無同電子性摻雜 GaN 薄膜的時間累積冷激光光譜, 很明顯的, 缺陷能階與施子-受子對的躍遷減少了。考慮束縛激子的運動過程, 如圖 2 所示, 對於是否有同電子性摻雜的樣品其復合時間有很明顯的不同; 未摻雜 As 的 GaN 薄膜的復合時間約為 142ps, 而有摻雜 As 的復合時間為 43ps。令人感興趣的是, 當我們改變測量溫度由 250K 降至 12K 時, 未摻雜 As 的 GaN 的復合時間由 185ps 下降至 127ps。另外, 一種不尋常的輻射過程於摻雜 As 的 GaN 樣品被觀察到; 它的復合時間在 75K 時有極大的變化, 相關的結果如圖 3 所示。非常特別地, 當溫度由 12K 昇至 75K, 復合時間與溫度呈現指數遞減, 由 98 ps 降至 41 ps。非常值得注意的是此種現象基本上與同電子摻雜有關, 並且根據已知的現象, 是未曾出現在其它半導體材料。

從觀察到的復合時間與溫度變化的

行為, 我們認為或許有量子井的結構存在 As 摻雜的 GaN 中, 並且其主導了光輻射過程[7], [8], [9], [10]。就我們所知, 零維量子井結構的光輻射過程對於溫度的變化非常敏感。當 As 加入薄膜中, 量子井的結構非常可能形成。然而, 若是存有量子井結構, 應該會出現因量子井的尺寸擾動效應而產生能隙躍遷的藍移與半高寬變寬的現象, 但是我們沒有觀察到這些現象。另一種解釋為當 As 加入薄膜中, 它會填補 N 原子的空缺, 因為 As 原子比 N 原子重且大, 故自旋-軌道作用會於價帶邊緣上造成能階劈裂, 形成一吸引電洞的新能階[11], [12], [13]。這種效應造成 As 原子於 GaN 中作用如淺階受子, 並使復合時間隨溫度成指數關係變化。由 SRH 理論, 束縛激子的生命週期為[14], [15], [16], [17],

$$\tau = \frac{1}{\sigma v_{th} N_t}$$

其中 $\sigma$ 為激子碰撞截面積,  $v_{th}$ 為電子熱速度,  $N_t$ 為缺陷濃度。由 $\sigma$ 、 $N_t$ 與溫度

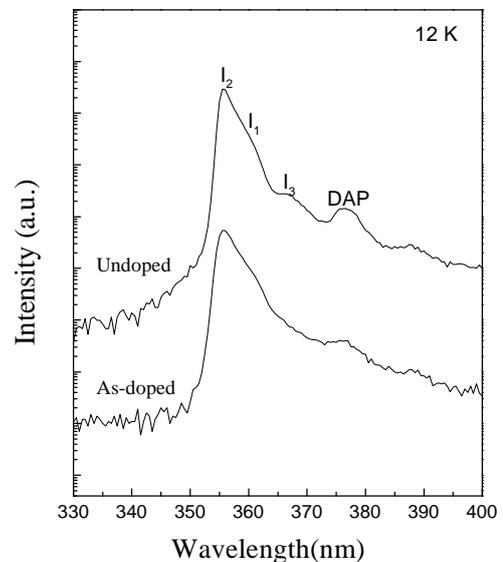


圖 1 TIPL spectra of As doping in GaN samples show less resolved  $I_3$ , DAP.

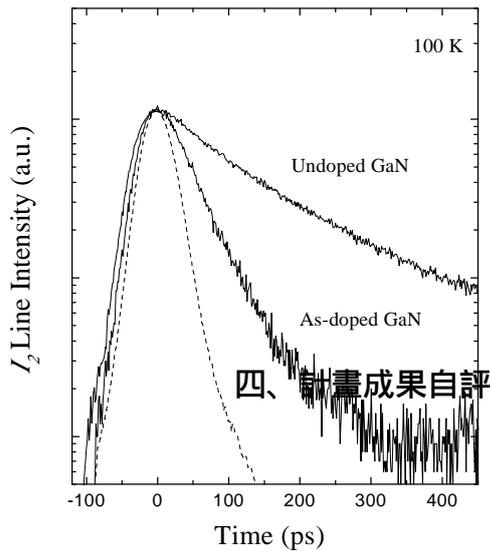


圖 2 Temporal evolution of the  $I_2$  emission for both undoped and As-doped

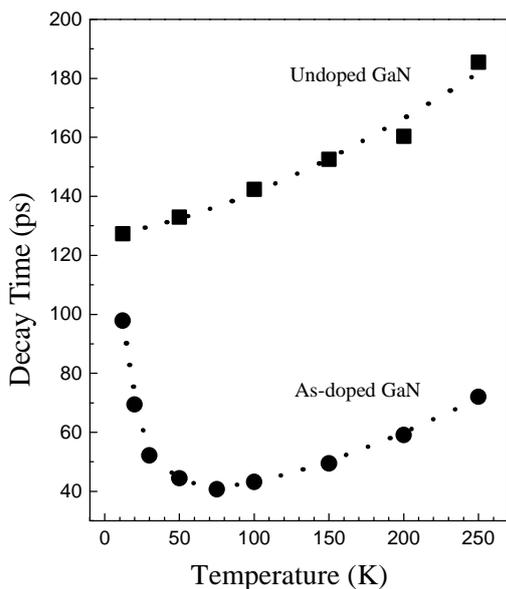


圖 3 The recombination lifetimes of undoped and As-doped GaN measured from 12 to 250K. The dotted lines are the curve fitting of  $\tau^{1.5}$  dependence for undoped sample and including exponential dependence below 75 K for As-doped sample.

的關係，我們得到 $\tau$ 與溫度成 1.5 次方相關，但對於 As 摻雜所造成的淺階受子，其主導了發光過程，由於此 As 相關能階密度為

$$N_r = N_v \exp\left(\frac{-\Delta E}{kT}\right),$$

由 $\tau$ 、 $N_r$ 與溫度的關係，我們得到 $\tau$ 與溫度成指數相關，與實驗結果相符合。

#### 四、計畫成果自評

我們成功的使用時域解析與時間累積冷激光光譜，探討同電子性摻雜對於氮化鎵光學特性的影響，並已發表於 Appl. Phys. Lett. **77**, 2819 (2000)。我們預期將這一套量測設備更進一步運用在 LD, LED 量子井、量子點結構上面，以瞭解其發光的機制。

#### 五、參考資料

- <sup>1</sup> S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, Jpn. J. Appl. Phys., Part 2 **34**, L797 (1995)
- <sup>2</sup> M. Harada, Nikkei Electronics Asia, New/Focus, Dec. 30 (1997)
- <sup>3</sup> C. K. Shu, J. Ou, H. C. Lin, W. K. Chen, and M. C. Lee, Appl. Phys. Lett. **73**, 641 (1998)
- <sup>4</sup> H. Kumano, K. - I. Koshi, S. Tanaka, I. Suemune, X. - Q. Shen, P. Riblet, P. Ramvall, and Y. Aoyagi, Appl. Phys. Lett. **75**, 2879 (1999)
- <sup>5</sup> H. Y. Huang, C. K. Shu, W. C. Lin, C. H. Chuang, M. C. Lee, W. K. Chen, and Y. Y. Lee, Appl. Phys. Lett. **76**, 3224 (2000)
- <sup>6</sup> L. J. Guido, P. Mitev, M. Gherasimova, and B. Gaffey, Appl. Phys. Lett. **72**, 2005 (1998)
- <sup>7</sup> X. Li, S. Kim, E. E. Reuter, S. G. Bishop, and J. J. Coleman, Phys. Lett. **72**, 1990 (1998)
- <sup>8</sup> J. I. Pankove and J. A. Hutchby, J. Appl. Phys. **47**, 5387 (1976)

- <sup>9</sup> C. Wetzel, S. Fischer, J. Kruger, E. E. Haller, R. J. Molnar, T. D. Mous-takas, E. N. Mckhov, and P. G. Baranov, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2556 (1996)
- <sup>10</sup> G. D. Chen, M. Smith, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, *J. Appl. Phys.* **79**, 2675 (1996)
- <sup>11</sup> C. I. Harris, B. Monemar, H. Amano and I. Akasaki, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 840 (1995)
- <sup>12</sup> W. Shan, X. C. Xie and J. J. Song, *Appl. Phys. Lett* **67**, 2512 (1995)
- <sup>13</sup> Y. Narukawa, S. Saijou, Y. Kawakami, and S. Fujita, *Appl. Phys. Lett* **74**, 558 (1999)
- <sup>14</sup> R. Klann, O. Brandt, H. T. Grahn, K. Ploog, and A. Trampert, *Phys. Rev. B* **52**, R11615 (1995)
- <sup>15</sup> J. I. Pankove, *Optical Processes in Semiconductors* (Dover, New York, 1971) Chaps. 6 and 7
- <sup>16</sup> C. G. Van de Walle and J. Neugebauer, *Appl. Phys. Lett* **76**, 1009 (2000)
- <sup>17</sup> J. W. Allen, and *J. Phys. C: Solid St. Phys*, vol **4**, 1936 (1971)
- <sup>18</sup> T. Mattila and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **58**, 1367 (1998)
- <sup>19</sup> D. K. Schroder, *Semiconductor Material and Device Characterization* (John Wiley & Sons, New York, 1998) Chaps. 5 and 7