

國立臺灣大學電機資訊學院電子工程學研究所

碩士論文

Graduate Institute of Electronics Engineering
College of Electrical Engineering & Computer Science

National Taiwan University

Master Thesis

砷化鋁鎵光學特性

Optical Properties of AlGaAs



林宗澤

Tsung-Tse Lin

指導教授：林浩雄 博士

Advisor: Hao-Hsiung Lin, Ph.D.

中華民國 100 年 7 月

July 2011

致謝

在本篇論文順利完成的同時，也為我的學生生涯暫時畫下了句點。首先要感謝的是我的指導教授林浩雄博士，在這兩年裡從老師身上學到的不只是嚴謹且具邏輯性的研究精神，更學得許多處事的態度以及寶貴的經驗與歷程，由衷的感謝老師的付出與教誨。接著要感謝任職於全新光電的金宇中學長，您不僅提供許多研究題材與資源，更不厭其煩的教導我許多學術上以及實務上的學識與經驗，有幸與學長一同進行研究與討論實在是一個難能可貴的經驗。此外，感謝全新光電黃朝興總經理、台大電機系毛明華教授、交大電物系鄭舜仁教授以及中原物理系王智祥教授在口試時給予我許多重要的指導與意見，幫助我修正了本論文許多不足的地方。

感謝實驗室的林衍廷學長、吳承潤學長、陳奕任學長、陳偉傑學長以及胡哲寧學長幫助我解決許多實驗上的問題與困惑。此外也要感謝已畢業的黃沛愉學姐、曾健順學長以及羅世為學長在我碩一的時候帶給我許多生活上以及研究上的幫助與關懷。至於同屆的季伶(兔子)與洪廖更是與我一起編織了許多關於實驗室的酸甜記憶，真的很開心可以成為你們的同學。還有學弟們蔡漢聲、吳健生、陳冠達與陳立興，與你們在一起的日子總是讓我感到輕鬆愉悅，謝謝你們。衷心祝福實

驗室的各位都能一切順心如意。

感謝生我育我的父母親，您們總是為了我無條件的付出，讓我可以無後顧之憂的專心於學業上。是您們滴下了許多辛勤的汗水，才得以讓我順利完成我的學業，辛苦您們了。此外我要感謝特別疼我的爺爺奶奶，從小到大對我的呵護與關愛，總是讓我倍感溫暖。還有我的弟弟以及妹妹，謝謝你們一直以來的陪伴與包容。

最後，謹以此篇論文獻給我在天上的爺爺，希望能跟遙遠的您分享我這份小小的成就。



中文摘要

本論文以低溫光激發螢光(PL)、變光激發強度 PL 以及拉曼散射研究 AlGaAs 塊材的光學特性，這些 AlGaAs 樣品係以有機金屬化學氣相沉積法成長並已應用於現今的商用微波假晶式高電子遷移率電晶體 (pHEMT) 晶片中。

從低溫 PL 頻譜可以觀察到各樣品皆存在四個波峰，其中兩個來自於 AlGaAs，其餘則為 GaAs 緩衝層之信號。AlGaAs 的低能量波峰其 PL 峰值能量為 1.810 ± 0.001 eV，我們判斷其為施體至受體 (donor-to-acceptor, DA) 的放光所致；而除了樣品 I 以外，其餘樣品的高能 PL 峰值能量皆在 1.828 ~ 1.829 eV 的範圍內，我們認為這是來自於束縛激子 (bound exciton, BE) 的放光。而樣品 I 高能量波峰峰值能量僅有 1.824 eV，其半高寬值為 6.3 meV 也大於其餘樣品 (3.3 ~ 4.5 meV)，因此我們推測樣品 I 的高能波峰為帶尾侷限化束縛激子放光 (band-tail localized bound exciton, LE) 所造成。對於變光激發強度 PL 頻譜的分析，我們透過整體 PL 強度對光激發強度之線性變化關係瞭解到，樣品 I 的載子復合主要都發生在 AlGaAs 磊晶層，顯示此樣品較深的激子束縛限制了激子的移動。而對比樣品的 AlGaAs 信號在高光激發強度時會出現飽和現象且 GaAs 緩衝層 PL 強度較強，後者並與光激發強度成線

性關係，這些結果顯示對比樣品 AlGaAs 用以束縛激子的雜質濃度較低，大部分的激子都擴散到 GaAs 緩衝層放光。此外我們也利用速率方程針對上述現象加以驗證。在拉曼頻譜分析的部份，我們以空間相關模型(spatial correlation model)來擬合 AlAs-like LO 模態的半寬，其中樣品 I 擬合之相關長度(correlation length)為 4.7 nm 小於其他樣品之值(約 5 nm)，顯示其合金成份波動程度最大，此結果與 PL 相符。

由上述實驗結果顯示：樣品 I 的合金成份波動最為嚴重，其原因可能來自於較低的成長溫度以及較高的五族與三族比例。



Abstract

In this thesis, we use low-temperature photoluminescence (PL), power-dependent PL and Raman scattering spectroscopy to investigate the optical properties of high purity AlGaAs bulk layer grown by MOCVD. These AlGaAs samples have been applied to pHEMT switches for commercial mobile phones.

From low-temperature PL, we observed four bands for each sample. Two of them were the signals of AlGaAs, while the rest came from GaAs buffer layer. We attribute the low-energy band at 1.809 ± 0.001 eV to donor-to-acceptor (DA) transition. For all the samples except sample I, grown at the lowest temperature with the highest V/III ratio, we ascribe the high-energy band at $1.828 \sim 1.829$ eV to bound exciton (BE) transition. In contrast, the high-energy band of sample I is assigned to band-tail localized bound exciton (LE) transition because of its lower peak energy (1.824 eV) and larger linewidth (6.3 meV). By analyzing the power-dependent PL of sample I, we found that the PL integral intensity of its AlGaAs bands is a linear function of excitation level, suggesting that carrier recombination mainly takes place in AlGaAs layer because the excitons are trapped in the tail states resulting from alloy potential fluctuation. For the contrastive samples, the PL intensity of AlGaAs saturate at high excitation intensity and the PL intensity of GaAs bands is strong and proportional to excitation intensity, indicating that the density of the impurity binding the excitons is low in the AlGaAs

layer. As a result, most excitons diffuse to GaAs buffer layer and recombine there. In addition, we also utilize rate equation to verify these phenomena. In Raman spectra analysis, we used spatial correlation model to fit the AlAs-like LO band, and found that sample I has the shortest correlation length (4.7 nm), suggesting its strong alloy potential fluctuation.

Finally, on the ground of aforementioned observations, we conclude that sample I has the most serious alloy potential fluctuation which could result from its low temperature and high V/III ratio growth condition.



目 錄

致謝.....	I
中文摘要.....	III
Abstract.....	V
目 錄.....	VII
附表索引.....	IX
附圖索引.....	X
第一章 序論	1
第二章 實驗架構與量測方法	3
2.1 樣品的成長與結構.....	3
2.2 X光繞射(XRD)量測.....	3
2.3 光激發螢光(PL)量測.....	4
2.4 拉曼(RS)散射.....	6
第三章 結果與討論	13
3.1 XRD 譜分析.....	13
3.2 PL 頻譜分析.....	14
3.3 拉曼頻譜分析.....	21
第四章 結論	49

參考文獻.....51



附表索引

表 2.1 樣品成長溫度以及五族與三族元素的比例.....	8
表 3.1 各樣品 XRD 相關數值.....	25
表 3.2 PL 強度對應光激發強度變化之斜率關係集團.....	25
表 3.3 LO 聲子頻散關係之相關參數.....	25



附圖索引

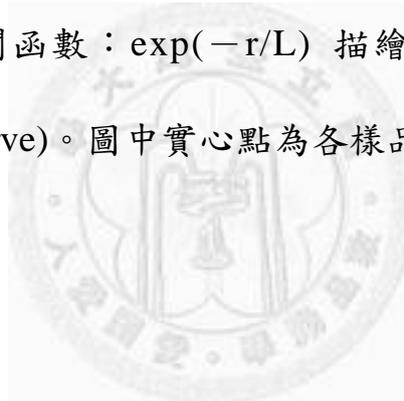
圖 2.1	PL 量測系統示意圖.....	9
圖 2.2	InGaP 與 GaAs PL 半高寬值對應狹縫寬度變化圖，本圖可區分為兩部份：虛線右邊半高寬值為狹縫相依部份；左邊則為樣品相依部份。圖中空心點為本實驗低溫 PL 的量測結果.....	10
圖 2.3	物體與光子作用下產生的彈性散射與非彈性散射示意圖(非彈性散射包含史塔克散射及反史塔克散射).....	11
圖 2.4	拉曼散射量測系統示意圖.....	12
圖 3.1	各樣品 XRD (004)光譜.....	26
圖 3.2	各樣品低溫 PL 頻譜。其中高能量波峰係於狹縫寬度為 0.2mm 時量得；低能量波峰則於狹縫寬度為 0.5mm 時量得.....	27
圖 3.3	各樣品 AlGaAs 束縛激子之半高寬值.....	28
圖 3.4	各樣品變光激發強度 PL 頻譜.....	29
圖 3.5	各樣品 PL 強度對應光激發強度變化關係圖.....	31
圖 3.6	樣品 I 整體 PL 強度對應光激發強度變化關係圖.....	33
圖 3.7	樣品 I AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻譜.....	34
圖 3.8	樣品 V AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻	

譜.....	35
圖 3.9 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻譜.....	36
圖 3.10 樣品 I AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 峰值能量對應光激發強度變化關係圖.....	37
圖 3.11 樣品 V AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 峰值能量對應光激發強度變化關係圖.....	38
圖 3.12 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 峰值能量對應光激發強度變化關係圖.....	39
圖 3.13 樣品 V AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 強度對應光激發強度變化關係圖.....	40
圖 3.14 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 強度對應光激發強度變化關係圖.....	41
圖 3.15 施體至受體轉換示意圖。圖中 e_n 與 c_n 分別代表施體能階與導帶間電子的發射率與捕捉率； e_p 與 c_p 則分別代表受體能階與價帶間電洞的發射率與捕捉率.....	42
圖 3.16 樣品 VII、樣品 V 與樣品 I 室溫 PL 頻譜.....	43
圖 3.17 各樣品拉曼頻譜.....	44
圖 3.18 實空間與波向量空間轉換關係示意圖。對完美晶體而言，聲子	

佈於實空間(real space)的函數為無限擴展，轉換至波向量空間 (q-space)中會準確對應到 $\vec{q}=0$ 的位置；存在合金位能波動時，佈於實空間的函數為有限(L_1 、 L_2)，對應的波向量空間分佈存在 Δq (即 $\vec{q} \neq 0$)，且當聲子被侷限在越小的實空間中，其對應到的 Δq 越大。.....46

圖 3.19 利用空間相關函數： $\exp(-2r^2/L^2)$ 描繪出之 GaAs 與 AlAs 的頻散曲線(dispersion curve)。圖中實心點為各樣品的實驗結果.....47

圖 3.20 利用空間相關函數： $\exp(-r/L)$ 描繪出的 GaAs 頻散曲線 (dispersion curve)。圖中實心點為各樣品的實驗結果.....48



第一章 序論

AlGaAs 是一種相當重要且被廣泛研究的三五族化合物半導體材料。由於其材料性質與 GaAs 有許多相似之處，尤其是晶格常數相近使其容易被成長在 GaAs 基板上[1]，因此早期許多物理現象的發現以及元件的實現都是源於 AlGaAs 與 GaAs 搭配之系統。在現今商業應用方面，AlGaAs 主要運用於異質接面雙載子電晶體以及高電子遷移率電晶體[2]，其中又以假晶式高電子遷移率電晶體(pHEMT)為主流應用，如近幾年來蓬勃發展的智慧型手機，其當中即包含許多由 AlGaAs/InGaAs pHEMT 製作的射頻開關。當 AlGaAs 之鋁成份大於 0.3 時，將容易產生許多 DX 中心(DX center) [3];但鋁成份太低又會使得 AlGaAs/InGaAs 形成之量子井不夠深以致於不易將電子侷限在其中，因此目前商用主流為使用 $\text{Al}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}/\text{InGaAs}$ 的 pHEMT，而本實驗即為研究此一成份比例的 AlGaAs 之光學特性。

在先前的研究之中，J. Shah 等人於 1972 年利用低溫 PL 的量測結果辨識出 AlGaAs 的束縛激子(bound exciton, BE)放光以及施體至受體(donor-to-acceptor, DA)的復合轉換[4]。M. Miyashita 等人則在 1998 年利用低溫 PL 的量測結果說明了在利用有機金屬化學氣相沉積(MOCVD)系統成長過程中，碳雜質的濃度將隨著成長溫度的下降以及

五族對三族元素比例的增加而減少[5]。相反的，在分子束磊晶法(MBE)的成長系統中，碳雜質的濃度則隨著成長溫度的上升而減少[6]。關於變光激發強度 PL 量測的部份，J.E. Cunningham 等人的量測結果顯示，BE 放光的 PL 強度對應光激發強度的變化為一線性關係且無飽和現象發生[7]，此現象與本實驗結果有所出入。在本論文中將詳加說明線性關係之形成，並加以解釋本實驗觀察到之飽和現象的原因。而在本研究中我們感興趣的是，在何種成長條件下可以得到高品質的 AlGaAs？因此我們將針對 MOCVD 系統，在不同成長條件下所成長出的 AlGaAs 塊材進行其光學特性的研究，並在研究過程中得到判讀 AlGaAs 晶體品質的方法。有別於以往探討 AlGaAs 中的雜質種類與濃度[8-9]，本研究將主要探討 AlGaAs 中的合金位能波動(alloy potential fluctuation)對晶體品質的影響。

本篇論文中的第二章，我們將介紹實驗樣品的成長與結構，以及欲進行之光學實驗的原理與系統架構。第三章的部份，我們將針對所得到的量測結果進行一系列的討論與驗證。第四章則為本篇論文的整體結論。

第二章 實驗架構與量測方法

2.1 樣品的成長與結構

本論文中 AlGaAs 塊材樣品皆是以 Aixtron 2600G3 有機金屬化學氣相沉積系統所成長，所採用的基板則為(001)半絕緣之四吋砷化鎵基板。在成長的過程中，我們利用三甲基鎵(TMg)與三甲基鋁(TMAI)當作有機金屬來源；利用砷化氫當作氫化物來源。如表 2.1 所示，本實驗之樣品根據成長溫度以及五族與三族元素的比例之差別共可分為八片樣品，其餘成長條件則固定不變。關於樣品的結構，我們先在基板上成長 200 nm 未摻雜之 GaAs 緩衝層，之後再成長 1 μm 未摻雜之 AlGaAs 磊晶層於緩衝層之上。最後我們透過 XRD 繞射量測其磊晶訊號與基板訊號偏移之秒角差，並搭配 Vegard's law 進行磊晶層平均成份之推算。

2.2 X 光繞射(XRD)量測

當 X 光以 θ_B 角度入射樣品時，若其波長 λ 與樣品晶格間距 d 滿足布拉格定律 $2d\sin\theta_B = n\lambda$ 時，會產生繞射。因此利用調整 X 光入射角度並量測其繞射角度可以得知樣品的晶格常數。當基板晶格常數與磊晶層晶格常數不匹配時，繞射角度會產生偏差。由於基板晶格常數已知，磊晶層晶格常數可由訊號角度差配合布拉格繞射公式求得，進而得知

晶片不匹配程度(lattice mismatch)與應變大小。本實驗利用 Panalytical 雙晶體 X 光繞射分析儀對所成長之磊晶樣品做 X 光繞射分析。

2.3 光激發螢光(PL)量測

光激發螢光(Photoluminescence, PL)分析是一種可以快速而可靠獲得材料中的能階結構以及載子躍遷行為之分析方法，並且是一種無破壞性的分析技術。其基本原理是藉由一激發能量大於樣品能隙的入射光源，經材料吸收入射光源，將位於價帶的電子激發到導帶上，而受激發之電子會以極短的時間藉由非輻射(non-radiative)的方式釋放能量到導帶底部，再經由輻射性復合(radiation recombination)的方式釋放出光子。釋放出來的光子將經由單光儀分光產生光譜，透過分析光譜中的特徵即可以得知材料摻雜雜質的種類、能隙大小、化合物的組成成份、載子傳輸路徑等重要訊息，所以我們可以利用光激發螢光結果做為材料結構、成份與品質的判斷依據。

圖 2.1 為本實驗室 PL 量測系統的示意圖，系統所使用的激發光源為二極體幫浦固態雷射(Diode-pumped solid state laser, DPSS)，其主要波長為 532 nm，雷射平均輸出功率為 100 mW。雷射光束穿越一個頻率 1 kHz 的截波器(chopper)，再經由一個焦距為 20 公分之透鏡，斜向聚焦到樣品上，若要進行低溫量測則將樣品放置杜爾瓶(Dewar)中，利

用一個封閉式的氮氣冷卻器使樣品降溫到 10 K，樣品被激發出的螢光藉由 CaF_2 與 BK7 兩透鏡收光，並將光聚焦進入單光儀。收光所使用的單光儀內含三種光柵，其每毫米上的條紋密度分別為 1200、600 以及 300 條，由於條紋密度為 1200 條的光柵較適合本次實驗材料的量測範圍，所以我們以條紋密度 1200 條的光柵進行量測。為避免雷射直接入射到單光儀中造成干擾，我們在單光儀入光口處放置一長波長可通過之濾鏡(long pass filter)，將波長為 590 nm 以下的光濾除掉，而單光儀的出光口處則放置一矽光偵測器並搭配鎖相放大器進行收光。在實驗過程中，入光口與出光口處的狹縫(slit)寬度越寬，會使系統解析度下降；但狹縫寬度太窄，則會導致訊雜比表現不好以致於無法分析。如圖 2.2 所示，磷化銦鎵與砷化鎵的半高寬值將隨狹縫寬度變窄而縮小，直到狹縫寬度為 0.2 mm 時達到穩定。根據上述情形我們利用虛線將圖 2.2 分成兩部分：虛線右邊的半高寬值將隨狹縫寬度改變，主要由狹縫寬度決定；而虛線左邊之半高寬值則趨於穩定，主要由樣品本身決定。從圖中可以發現本實驗各樣品低溫 PL 之量測結果(空心點)皆落在虛線左邊的部份。

2.4 拉曼散射(RS)量測

拉曼散射量測的原理為當有一單頻光入射某一固態晶體時，其可能會產生彈性瑞利散射或非彈性拉曼散射。如圖 2.3 所示，當入射光子未與聲子作用而又以原能量大小放光即為瑞利散射 (Raleigh scattering)；當入射光子與聲子產生交互作用時又可分為兩種情況：「入射光子吸收一個聲子能量，為反史塔克散射(anti-Stokes scattering)」以及「入射光子失去一個聲子能量，為史塔克散射(Stokes scattering)」。

一般而言，史塔克散射的強度比起反史塔克散射來的強，故我們主要是量測史塔克散射的頻譜。當光子與聲子產生交互作用時，其符合能量及動量守恆的情況則如下式所示：

$$h\omega_s = h\omega_i \pm h\Omega \quad (2.1)$$

$$k_s = k_i \pm q \quad (2.2)$$

其中 ω_s 和 ω_i 分別為入射光頻率和散射光頻率， k_s 和 k_i 分別為入射光子與散射光子的波向量， Ω 和 q 則為聲子頻率和聲子的波向量。由於光子的波向量比聲子的波向量來的小，因此由公式(2.2)可知 q 必須為一個非常小的值，故只有在布里淵區中心($q=0$)附近的光聲子可以參與第一階拉曼散射，而第一階拉曼散射必須要遵守拉曼選擇律。

圖 2.4 為拉曼散射量測系統的示意圖。本實驗係利用 HORIBA Jobin-Yvon T64000 的系統，系統所使用的激發光源為 Verdi V10 二極體幫浦固態雷射，其主要波長與平均輸出功率分別為 532 nm 以及 100

mW，雷射光束再透過 100X 的顯微物鏡垂直聚焦到樣品上，其聚焦光點直徑約 1 μm 。來自樣品的背向散射光束將經由分光鏡收集進入三階單光儀(由 premonochromator 與 spectromator 組成)，其中包含前兩階的 premonochromator 主要負責濾掉雷射光與雜散光；而內含每毫米 1800 條光柵的 spectromator 則針對非彈性拉曼散射光進行分光。最後訊號由液氮溫度下的電荷耦合元件偵測器(Charge-coupled device, CCD)收集傳送到電腦。



表 2.1 樣品成長溫度以及五族與三族元素的比例

Sample number	Growth temperature(°C)	V/III ratio
I	530	180
II	590	110
III	590	75
IV	640	110
V	640	75
VI	640	40
VII	690	110
VIII	690	75

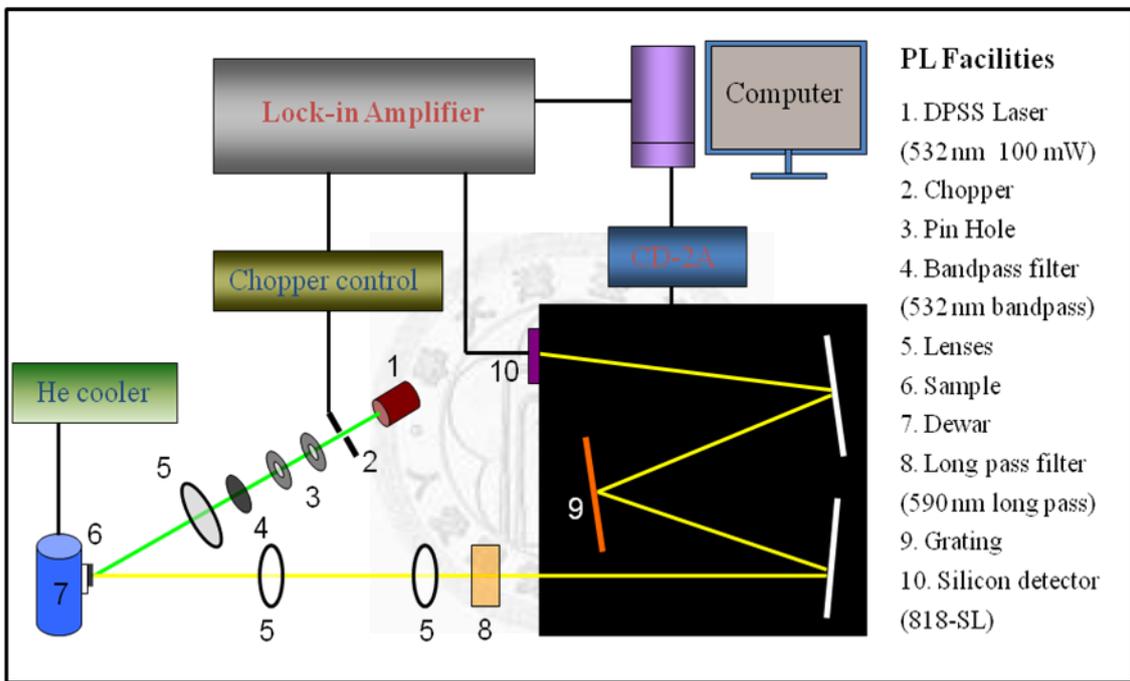


圖 2.1 PL 量測系統示意圖。

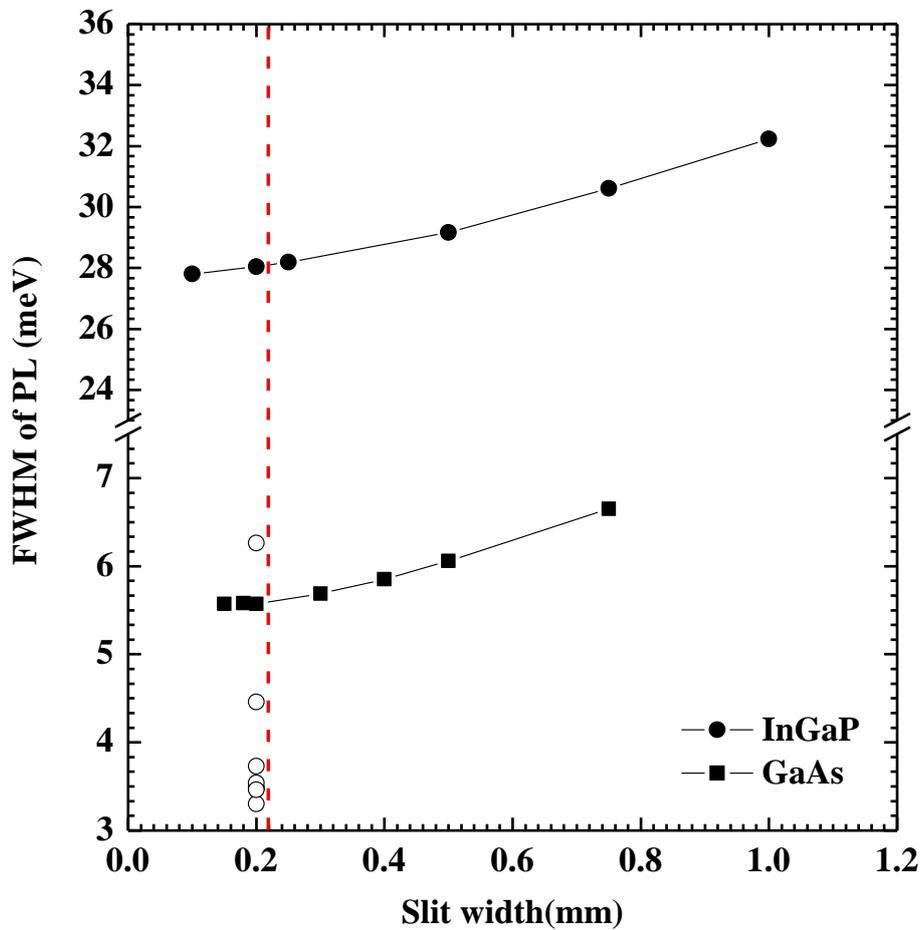


圖 2.2 InGaP 與 GaAs PL 半高寬值對應狹縫寬度變化圖，本圖可區分為兩部份：虛線右邊半高寬值為狹縫相依部份；左邊則為樣品相依部份。圖中空心點為本實驗低溫 PL 的量測結果。

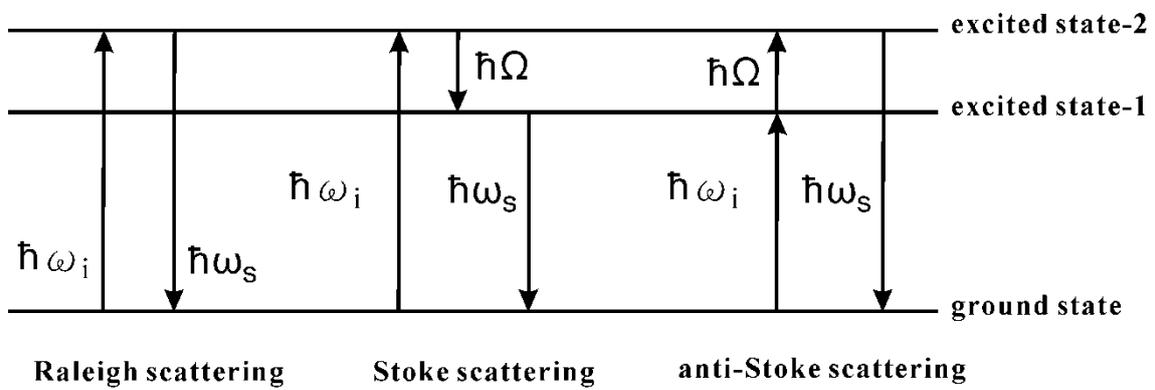


圖 2.3 物體與光子作用下產生的彈性散射與非彈性散射示意圖

(非彈性散射包含史塔克散射及反史塔克散射)。

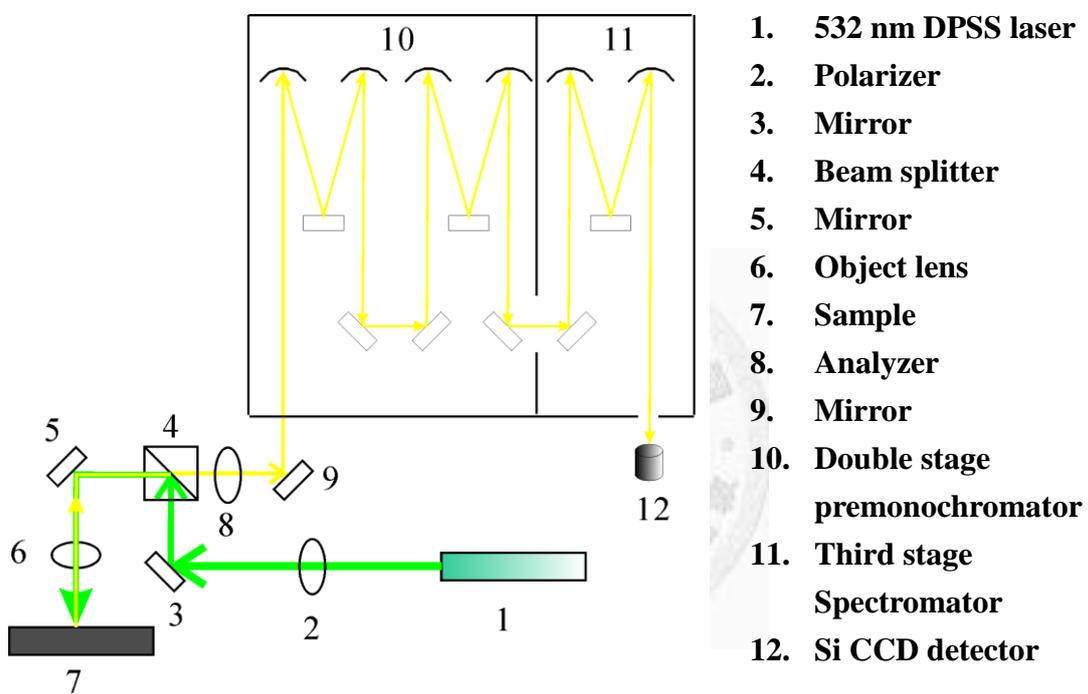


圖 2.4 拉曼散射量測系統示意圖。

第三章 結果與討論

3.1 XRD 光譜分析

圖 3.1 為各樣品 XRD (004) 的量測結果。我們將觀察到的磊晶層訊號與基板訊號之秒角差列於表 3.1。我們利用公式(3.1)計算出垂直方向晶格不匹配程度[10]。

$$\left(\frac{\Delta a}{a}\right)_{\perp} = \frac{a_z - a_s}{a_s} = \frac{-\Delta\theta}{\tan\theta_B} \quad (3.1)$$

其中 a_z 為磊晶層垂直方向的晶格常數， a_s 為 GaAs 基板的晶格常數 5.6532\AA [11]， θ_B 則為基板(004)的布拉格角。在符合一致成長(coherent growth)的假設下，我們藉由公式(3.1)求得的 $a_z - a_s$ 並配合下列公式將可計算出磊晶層晶格常數[12]。

$$a_f = \frac{1 - \nu}{1 + \nu} (a_z - a_s) + a_s \quad (3.2)$$

其中 ν 是由 GaAs 與 AlAs 線性內差求得之 Poisson's ratio[13]。接著我們利用公式(3.2)求得之 a_f 以及下列的 Vegard's law 即可求得各樣品的平均鋁成份並列於表 3.1[14]。

$$a_f = x a_{\text{AlAs}} + (1 - x) a_{\text{GaAs}} \quad (3.3)$$

其中 a_{AlAs} 的值為 5.6611\AA [11]。表 3.1 的結果顯示樣品 II 的鋁成份為 0.242 與其它樣品差異較大，而其餘樣品的鋁成份為 0.249~0.253，各樣品間最大成份差為 0.004。在下個小節中，我們根據低溫 PL 推算而得

各樣品間最大成份差為 0.002，其成份精確程度優於 XRD 的推算結果。我們認為 XRD 的成份精確程度主要受限於掃描間聚(scan interval)的大小，而樣品 II 與其它樣品的成份差異較大主要是由於其掃描間距為 3.6 arcsec 不同於其他的 0.72 arcsec 所致。此外在下個小節中，我們也將詳細說明，XRD 推算的成份精確程度將不足以判斷低溫 PL 頻譜中不同的高能量波峰是來自於成份上的差異或是存在其它的放光機制。

3.2 PL 頻譜分析

本小節將分成兩個部份進行討論，分別是：低溫以及變光激發強度兩種 PL 頻譜的分析。

低溫 PL 頻譜分析

圖 3.2 為各樣品砷化鋁鎵的低溫 PL 頻譜，從圖中我們可以觀察到各樣品皆有兩個波峰，在進行量測的過程中，為獲得高能量波峰本身的半高寬值，故將狹縫寬度設定為 0.2 mm，而低能量波峰部份則設定為 0.5 mm 以獲得較強的訊號。除了樣品 I 以外，其餘樣品的高能 PL 峰值能量皆在 1.828~1.829 eV 的範圍內，我們認為這是來自於束縛激子(BE)的放光。此外，在利用 MOCVD 磊晶的過程中，碳元素為主要的殘餘雜質，因此我們認為這些高能量波峰應為與碳相關之 BE 放光 [6]。而低能量波峰其 PL 峰值能量為 1.810 ± 0.001 eV，我們判斷其為施

體至受體(DA)的放光所致。圖 3.3 為各樣品束縛激子的半高寬值，由圖中可知樣品 I 的半高寬值比其他樣品大上許多，我們初步認為此樣品應為晶體品質最差者。就整體而言，其半高寬值大致呈現的趨勢為：當成長溫度越高，五族與三族元素的比例越低時，將可得到較佳的晶體品質。此外，本實驗中得到的最佳半高寬值為 3.3 meV，此結果與樣品成份類似之研究中的最佳半高寬值相近[15]。

從圖 3.2 中我們還可以發現：相較於其他的樣品，樣品 I 的束縛激子波峰存在明顯的紅移(約 4~5 meV)。從上述情形我們認為，樣品 I 的波峰主要來自於帶尾侷限化束縛激子(band-tail localized bound exciton, LE)放光。由於合金成份不均導致的合金位能波動使得導帶下方產生了帶尾能階(band-tail state)，這也使得原本的束縛激子放光產生紅移，形成了帶尾侷限化束縛激子放光[16]。而這個現象也呼應了前段樣品 I 為晶體品質最差者的預測。

本部份最後將討論 BE 與 DA 峰值能量與鋁成份誤差的關係。由於 DA 的峰值能量主要與 AlGaAs 隨鋁成份改變之能隙大小相關，故其峰值能量變化對應的鋁成份變化相似於 BE 的情況。因此我們可以利用公式(3.4)幫助我們推得 DA 峰值能量差對應的鋁成份差。

$$E_x = 1.512 + 1.245x \quad (3.4)$$

其中 E_x 為 BE 的 PL 峰值能量， x 則代表平均鋁成份[17]。推得之結果

顯示，各樣品之間鋁成份差不超過 0.002，其對應的 BE 峰值能量誤差小於 2.5 meV。將上述結果與圖 3.2 中樣品 I 與其餘樣品高能波峰之差距(約 4~5 meV)相較之下，可以幫助我們進一步確認，樣品 I 較小的高能波峰峰值能量係來自於 LE 放光而非成份差別所致。這裡我們也利用公式(3.4)以及 XRD 求得之各樣品平均鋁成份進行其 BE 的 PL 峰值能量推算，並將結果列於表 3.1。表 3.1 顯示除了樣品 II 以外，其餘樣品 BE 峰值能量為 1.822~1.827 eV，各樣品間最大能量差為 5 meV。根據上述結果不足以分辨圖 3.2 中樣品 I 較小的高能波峰峰值能量是否為 LE 放光所致。我們進一步推測，如果可以讓掃描間距小於 0.36 arcsec，將可使對應的能量誤差小於 2.5 meV。

變光激發強度 PL 頻譜分析

以下所有變光激發強度 PL 量測皆在 12K 的溫度下進行，而圖 3.4 為所有八片實驗樣品的變光激發強度 PL 頻譜。首先我們就圖 3.4 的量測結果整理出 PL 強度對應光激發強度之變化關係圖，如圖 3.5 所示，在圖中我們也列出了 BE(或 LE)與 DA 放光強度對光激發強度變化的斜率。從變化的斜率關係我們可以歸結出三個集團。如表 3.2 所示，第一集團：樣品 I (LE 斜率 >1 ，DA 斜率 >0.5)；第二集團：樣品 II、III、IV、V (BE 斜率 <1 ，DA 斜率 <0.5)；第三集團：樣品 VI、VII、VIII (BE 斜率 $=1$ ，DA 斜率 $=0.5$)。接著我們將利用速率方程(rate equation)來解釋這

些斜率關係。速率方程主要是用來描述載子隨時間產生與消滅的情形，當達到平衡態時可寫成下列的形式[18]：

$$G = An + Bn^2 + Cn^3 \quad (3.5)$$

其中等號左邊代表載子產生速率，右邊為載子消滅速率， n 則為載子濃度。根據上述情形，我們將樣品 I 的 PL 整體強度對應光激發強度變化整理成圖 3.6，並得到其斜率關係趨近於 1 的結果，代表其產生速率大約等於消耗速率。這樣的結果說明了由光子激發出來的電子電洞主要都在 AlGaAs 磊晶層即被消耗殆盡，其原因應如前述樣品 I 的 AlGaAs 磊晶層合金位能波動最為嚴重，使得載子大部分都陷在磊晶層並復合消滅。為了深入了解各集團載子產生與消滅之間的關係，我們分別從各集團中挑選一片樣品同時進行 AlGaAs 磊晶層以及 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 量測，樣品分別為：樣品 I (第一集團)、樣品 V (第二集團)、樣品 VII (第三集團)。

圖 3.7、圖 3.8、圖 3.9 分別為樣品 I、樣品 V、樣品 VII AlGaAs 磊晶層以及 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻譜。首先我們就各樣品 PL 峰值能量對應光激發強度的變化進行整理，其結果如圖 3.10、圖 3.11、圖 3.12 所示，我們將針對四個波峰一一進行討論。關於 GaAs 激子放光的部份，樣品 I 與樣品 V 的波峰皆來自於束縛激子放光，而樣品 VII 的波峰則為自由激子 (free exciton, FE) 放光所致。再來是 GaAs BA 放光

的部份，我們可以明確的觀察到三片樣品其 BA 放光的波峰位置都不隨光激發強度增加而改變。上述 GaAs BE、FE、BA 放光之波峰位置皆與先前研究一致[19]。而 AlGaAs BE 與 LE 放光的部份已於低溫 PL 頻譜分析討論過，在此不多做贅述。最後是 AlGaAs DA 放光的部份，我們可以觀察到隨著光激發強度增加，三片樣品皆存在些微的藍移現象(約 3~4 meV)，這樣的情況與 GaAs 的 BA 放光有所出入。公式(3.6)為 DA 放光能量的表示式[4]：

$$h\nu = E_g - E_A - E_D + \frac{e^2}{\epsilon r} \quad (3.6)$$

其中 $e^2 / \epsilon r$ 項代表施體離子與受體離子間的庫倫作用力。當光激發強度增加時，將使得其距離 r 變小，並造成 DA 放光能量變大而產生藍移。因此，這裡觀察到的藍移現象即印證了我們當初推測其為 DA 放光的假設。

接著我們針對樣品 V 與樣品 VII AlGaAs 磊晶層以及 GaAs 緩衝層分別整理出 PL 強度對應光激發強度變化關係圖，如圖 3.13、圖 3.14 所示。從圖 3.13(a)與圖 3.14(a)可發現其 AlGaAs BE 以及 DA 的斜率皆存在飽和的現象，以下我們將透過推導 BE 與 DA 的速率方程來解釋此飽和現象。關於 BE 的部份，首先我們將達到穩態之自由激子與束縛激子的速率方程表示如下：

$$\frac{\partial N_{FE}}{\partial t} = B_1 np - B_2 N_{FE}(N_A - N_{BE}) - A_1 N_{FE} = 0 \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial N_{BE}}{\partial t} = B_2 N_{FE} (N_A - N_{BE}) - A_2 N_{BE} = 0 \quad (3.8)$$

其中 N_{FE} 為自由激子的濃度， N_A 為受體濃度， N_{BE} 則為束縛激子的濃度(亦為 BE 放光光子濃度)。此外 $(N_A - N_{BE})$ 代表受體無法重複參與形成束縛激子，且 N_{BE} 必須小於 N_A 。根據上述的式子與假設，再透過一些數學計算與推導之後，我們可以把 n 很小(低光激發強度)以及 n 很大(高光激發強度)時的束縛激子濃度分別表示成公式(3.9)與公式(3.10)：

$$N_{BE} \cong \frac{B_1 B_2 N_A}{A_1 A_2 + A_2 B_2 N_A} n^2 \quad (3.9)$$

$$N_{BE} \cong N_A \quad (3.10)$$

從公式(3.9)可以得知在低光激發強度時，BE 放光光子的濃度與 n^2 成正比，此時 PL 強度對應光激發強度變化之斜率關係為 1(即消耗速率=產生速率 $\propto n^2$)。而從公式(3.10)則可得知當達到高光激發強度時，BE 放光光子濃度為一定值(N_A)，而這也就是其斜率關係存在飽和現象的原因。至於 DA 的部份，我們將施體濃度與受體濃度分成中性與離子化的部份，其表示式如下：

$$N_D = N_D^0 + N_D^- \quad (3.11)$$

$$N_A = N_A^0 + N_A^- \quad (3.12)$$

首先我們將透過圖 3.15 的示意圖針對中性受體濃度進行討論。當能階的電離能(ionization energy)越大時，其發射率(emission rate)越小[20]。

一般而言，受體電離能都比施體電離能來得大，也就是說圖 3.15 中的 e_p 將遠小於 e_n ，如此將使得受體能階中充滿由電洞與離子化受體結合

而成的中性受體。從上述情況可以得知，不論光激發強度高或低，中性受體濃度皆與受體濃度相近，如下式所示：

$$N_A^0 \cong N_A \quad (3.13)$$

接著我們將達到穩態之中性施體(neutral donor)濃度與中性受體(neutral acceptor)濃度的速率方程表示如下：

$$\frac{\partial N_D^0}{\partial t} = B_3(N_D - N_D^0)n - B_5 N_D^0 N_A^0 = 0 \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial N_A^0}{\partial t} = B_4(N_A - N_A^0)p - B_5 N_D^0 N_A^0 = 0 \quad (3.15)$$

根據上述式子以及經過一些推導與計算之後，我們可以將中性施體濃度在 n 很小(低光激發強度)以及 n 很大(高光激發強度)時的情況分別表示成公式(3.16)與公式(3.17)：

$$N_D^0 \cong \frac{B_3 B_4 N_D}{B_4 B_5 N_A - B_3 B_5 N_D} n \quad (3.16)$$

$$N_D^0 \cong N_D \quad (3.17)$$

從公式(3.13)與公式(3.16)可以得知在低光激發強度時，DA 放光光子的濃度(即 $N_D^0 \times N_A^0$)與 n 成正比，此時 PL 強度對應光激發強度變化之斜率關係為 0.5(即消耗速率 $\propto n$ ，產生速率 $\propto n^2$)。而從公式(3.13)與公式(3.17)則可得知當達到高光激發強度時，DA 放光光子濃度為一定值($N_D \times N_A$)，此即意味其斜率關係將存在飽和的現象。從上述的結論可知飽和現象的原因來自於，樣品 V 與樣品 VII 其 AlGaAs 用以束縛激子的雜質濃度較低，大部分的激子得以擴散到 GaAs 緩衝層放光。此外從圖 3.13(a)與圖 3.14(a)中也可以發現樣品 V 比樣品 VII 較早進入飽和的階

段，而這也就是為何樣品 V 其 AlGaAs BE 以及 DA 的斜率小於 1 與 0.5 的原因。我們認為量得的樣品 V AlGaAs BE 以及 DA 的斜率是已經進入飽和階段的部分，因此我們推測若可量得光激發強度更弱的 PL 頻譜，將可得到與樣品 VII 相近的結果。至於樣品 V 比樣品 VII 較早進入飽和階段的原因，主要是由於樣品 V 的雜質濃度(N_A 或者 $N_D \times N_A$)較小所致。而從圖 3.13(b)與圖 3.14(b)可得知其 GaAs BE 與 FE 的斜率皆約等於 1。由這樣的情形我們認為，樣品 V 與樣品 VII AlGaAs 磊晶層的合金位能波動皆小到了某種程度，使得受到光激發的電子電洞不會完全陷在磊晶層而有機會跑到 GaAs 緩衝層再進行復合放光。

最後從圖 3.16 的室溫 PL 頻譜可以清楚觀察到，由於樣品 I 合金位能波動程度最為嚴重，使得其電子電洞都在 AlGaAs 磊晶層復合放光；至於樣品 V 與樣品 VII 的合金位能波動則小到了一定的程度，致使其電子電洞得以擴散到 GaAs 緩衝層再行復合放光。而樣品 VII 的 GaAs PL 放光強度較強於樣品 V 的原因，我們認為主要是因為樣品 VII 的合金位能波動程度更小於樣品 V 所致。總結來說，就合金位能波動程度而言：樣品 I 最為嚴重，樣品 V 次之，樣品 VII 最小。

3.3 拉曼頻譜分析

圖 3.17 為所有八片實驗樣品的拉曼頻譜。從圖中我們可以看到在

268 cm^{-1} ，286 cm^{-1} 以及 375 cm^{-1} 附近的位置分別為 GaAs-like TO，GaAs-like LO 以及 AlAs-like LO 聲子模態，而在 200 cm^{-1} 附近的波包則為 DALA (disorder-activated longitudinal-acoustic) 結構所致[21]。在拉曼散射的量測過程中，其掃描間距為 0.59 cm^{-1} ，從先前研究聲子模態位置隨鋁成份變化的關係中可以求得[21]，其對應到的鋁成份與 BE 峰值能量誤差分別為 0.014 以及 9 meV，與圖 3.2 相較之下可知，上述的能量誤差將無法用以分辨樣品 I 較小的高能波峰峰值能量是否為 LE 放光所致。我們進一步推測，如果可以讓掃描間距小於 0.16 cm^{-1} ，將可使對應的能量誤差小於 2.5 meV。

此外從圖中我們也可以觀察到 GaAs-like LO 以及 AlAs-like LO 聲子模態的頻譜並非一個完全對稱的譜型。如圖 3.17(b)所示，我們把一個頻譜的半高寬區分為兩部份，低能量的部份為 Γ_a ，而高能量的部份則為 Γ_b ，上述現象主要是由於合金位能波動所導致。當晶體存在合金位能波動時，其頻散關係在 $\vec{q}=0$ 的位置將對應到最大的頻率，此時不論 \vec{q} 大於或小於零，其對應到的頻率皆會往低頻率部份分佈，因而形成一個不對稱的譜型。此外，對於完美的晶體而言，其聲子佈於實空間(real space)的函數是無限擴展的，故聲子的特徵狀態是平面波的形式，也就是在波向量空間(q-space)中會準確對應到 $\vec{q}=0$ 的位置；而合金位能波動會使得佈於空間的函數變成有限的狀況，造成在波向量空間分佈上會

有 Δq 的存在(即 $\vec{q} \neq 0$)，且當聲子被侷限在越小的實空間中，其對應到的 Δq 越大，其示意圖如圖 3.18 所示。接著我們將利用高斯空間相關函數(Gaussian spatial correlation function, $\exp(-2r^2/L^2)$)模擬聲子於波向量空間的分佈，並將其隨頻率(ω)變化的拉曼強度表示如下式：

$$I(\omega) \propto \int_0^1 \exp\left(\frac{-q^2 L^2}{4}\right) \times \frac{d^3 q}{[\omega - \omega(q)]^2 + (1.5)^2} \quad (3.5)$$

其中 q 為聲子的波向量， L 為相關長度(correlation length)，此外 L 也代表著聲子在實空間中被侷限的範圍。至於 $\omega(q)$ 則為頻散關係(dispersion relation)，關於 LO 聲子的頻散關係可表示如下[22]：

$$\omega^2(q) = A + \{A^2 - B[1 - \cos(\pi q)]\}^{1/2} \quad (3.6)$$

不同的化合物會對應到不同的頻散關係，我們將 GaAs 與 AlAs 各自對應的 A 、 B 值整理於表 3.3。從上述的過程中我們將可得到左右半高寬比例(Γ_a / Γ_b)、半高寬值($\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_b$)以及相關長度(L)三者之間的關係，並可分別描繪出 GaAs 以及 AlAs 的頻散曲線(dispersion curve)如圖 3.19 所示，圖中的實心點為本實驗各樣品之結果。首先我們可以從圖中 AlAs 的部份觀察到，樣品 I 對應到的相關長度最短，此結果顯示其合金位能波動程度最為嚴重，使得其聲子被侷限在較小的範圍內。至於 GaAs 的部份，我們利用另一種空間相關函數($\exp(-r/L)$) 模擬其聲子於波向量空間的分佈，並得到較佳的擬合結果如圖 3.20 所示。從圖中可以發現到有兩個集團的存在，分別是成長溫度較高的一群(樣品 V、VI、VII、

VIII)以及成長溫度較低的一群(樣品 I、II、III、IV)，其中前者對應到的相關長度較長，而後者則相對較短。這樣的結果說明了當成長溫度較高時，其合金位能波動程度將相對較小。上述拉曼散射的結論與 PL 的結果是一致的。



表 3.1 各樣品 XRD 相關數值

Sample number	$\Delta\theta(\text{arcsec})$	Aluminum composition (x)	PL peak energy of BE (eV)
I	-88.56 ± 0.72	0.249 ± 0.002	1.822 ± 0.0025
II	-86.4 ± 3.6	0.242 ± 0.01	1.813 ± 0.012
III	-90 ± 0.72	0.253 ± 0.002	1.827 ± 0.0025
IV	-90 ± 1.44	0.253 ± 0.004	1.827 ± 0.006
V	-89.28 ± 0.72	0.251 ± 0.002	1.824 ± 0.0025
VI	-89.28 ± 0.72	0.251 ± 0.002	1.824 ± 0.0025
VII	-89.28 ± 0.72	0.251 ± 0.002	1.824 ± 0.0025
VIII	-90 ± 1.44	0.253 ± 0.004	1.827 ± 0.006

表 3.2 PL 強度對應光激發強度變化之斜率關係集團

Group	Samples
1st group ($\text{slope}_{\text{LE}} > 1, \text{slope}_{\text{DA}} > 0.5$)	I
2nd group ($\text{slope}_{\text{BE}} < 1, \text{slope}_{\text{DA}} < 0.5$)	II、III、IV、V
3rd group ($\text{slope}_{\text{BE}} = 1, \text{slope}_{\text{DA}} = 0.5$)	VI、VII、VIII

表 3.3 LO 聲子頻散關係之相關參數[21]

Parameter	GaAs	AlAs
$A(\text{cm}^{-2})$	4.26×10^4	8.20×10^4
$B(\text{cm}^{-4})$	7.11×10^8	2.23×10^9

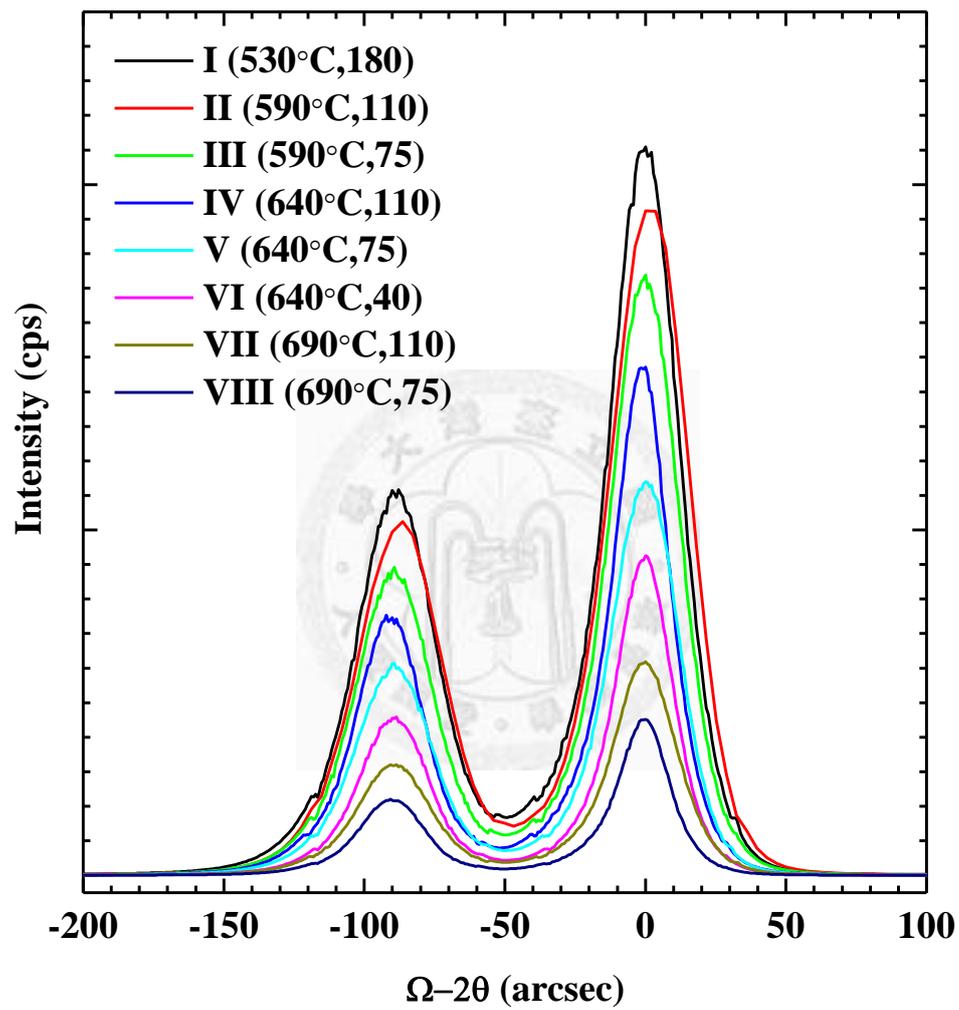


圖 3.1 各樣品 XRD (004)光譜。

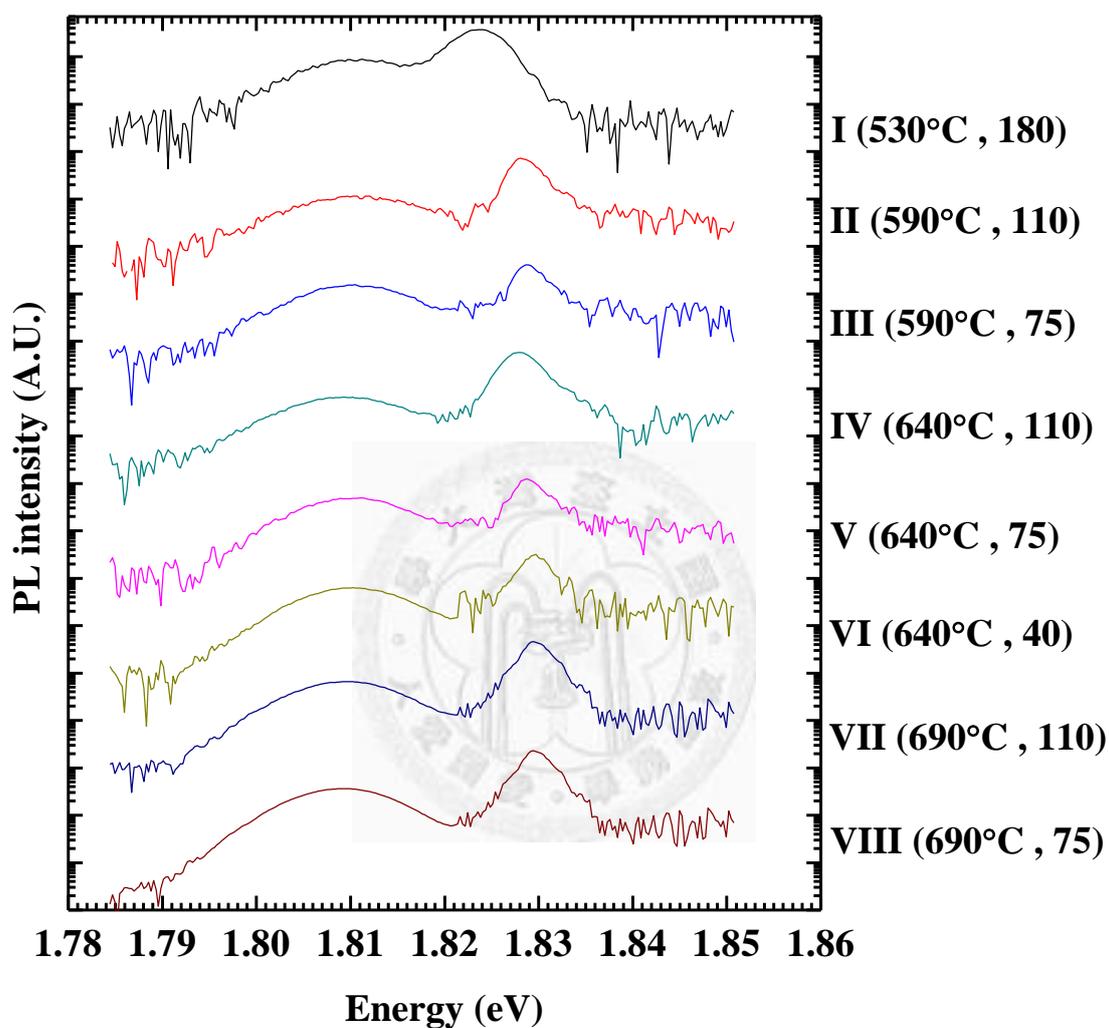


圖 3.2 各樣品低溫 PL 頻譜。其中高能量波峰係於狹縫寬度為 0.2mm 時量得；低能量波峰則於狹縫寬度為 0.5mm 時量得。

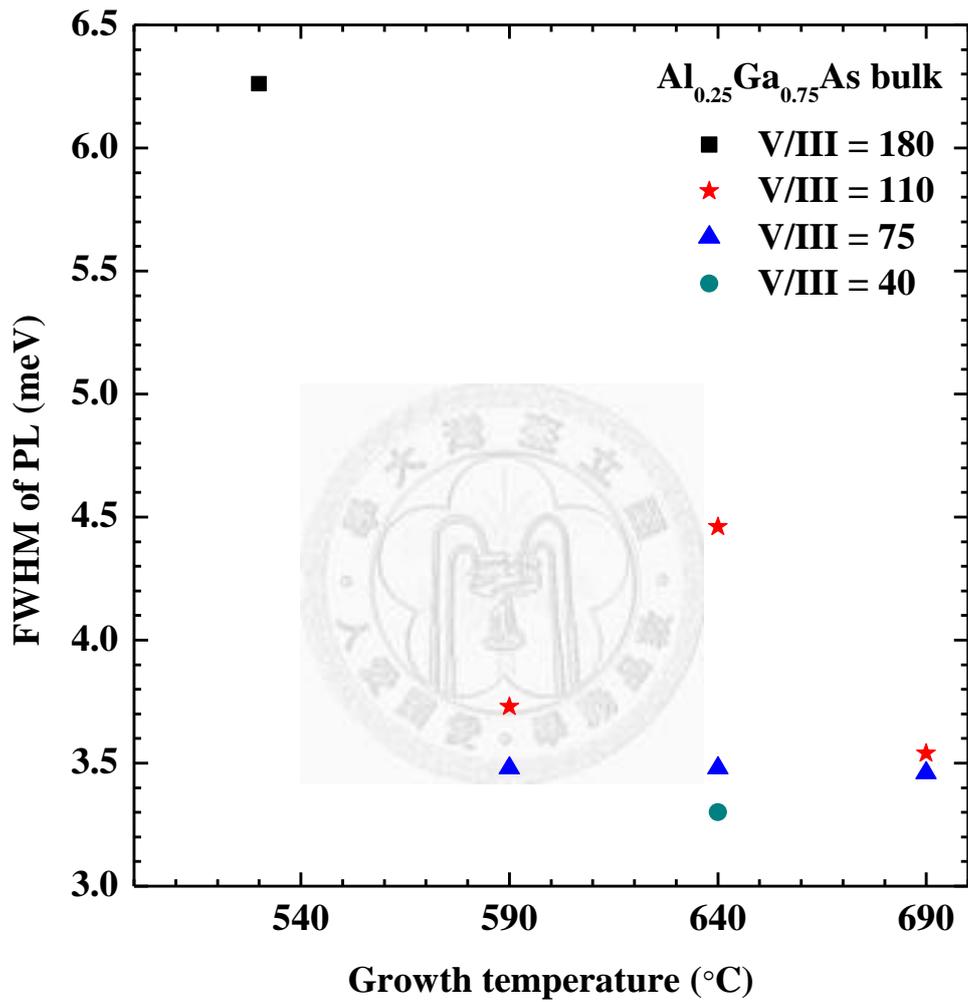
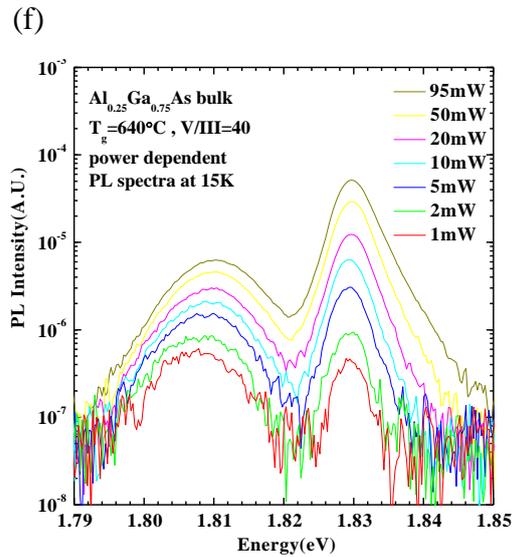
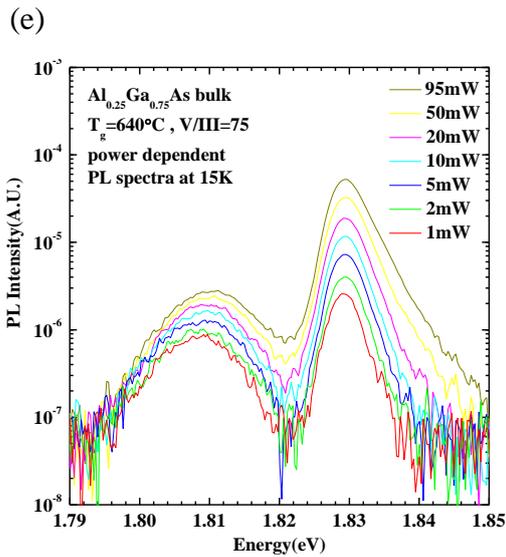
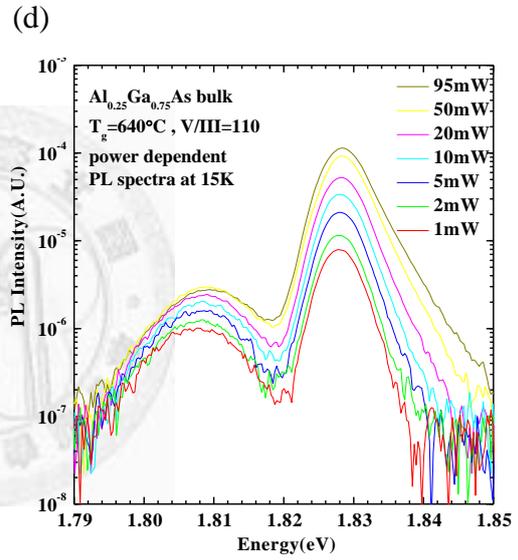
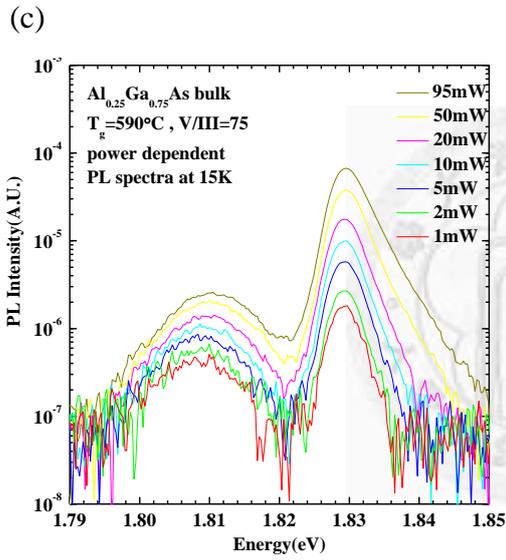
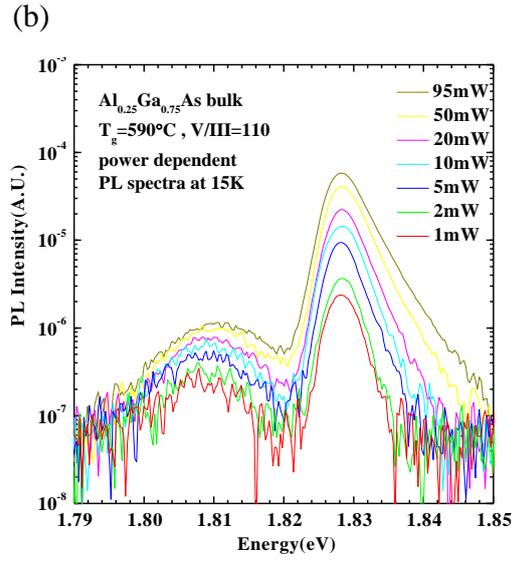
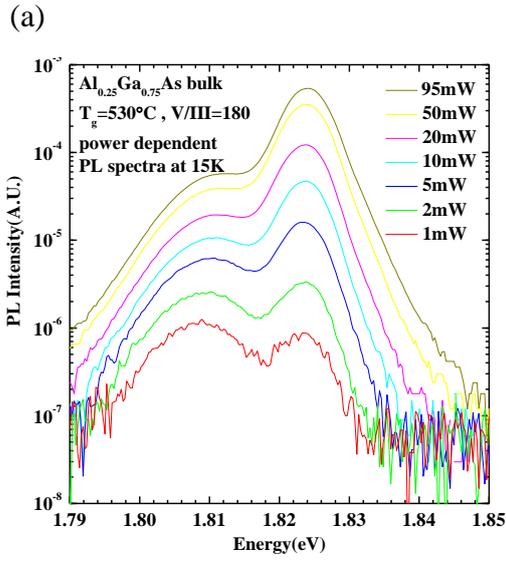


圖 3.3 各樣品 AlGaAs 束縛激子之半高寬值。



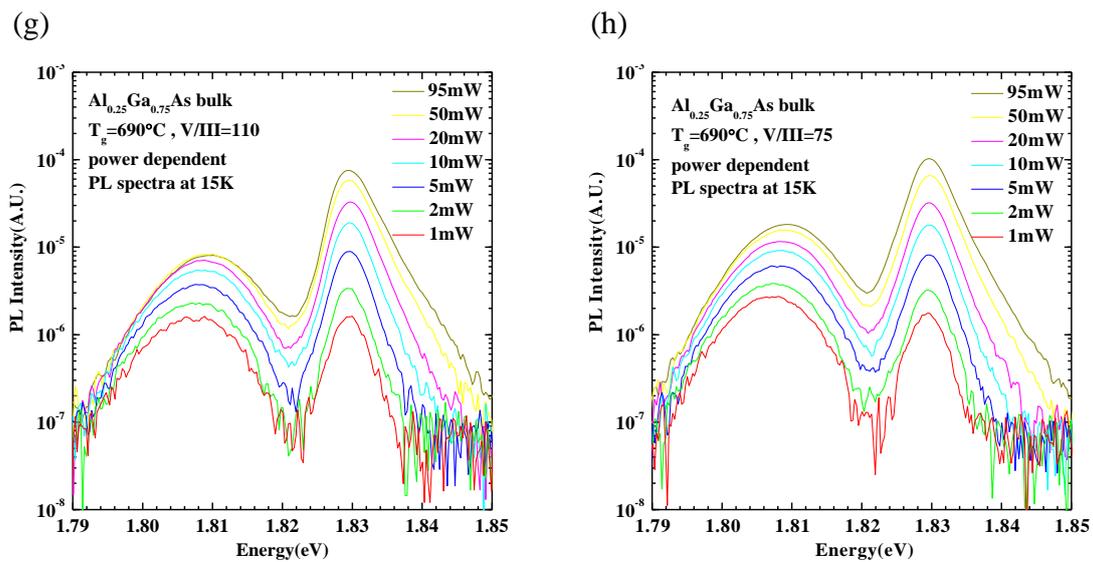
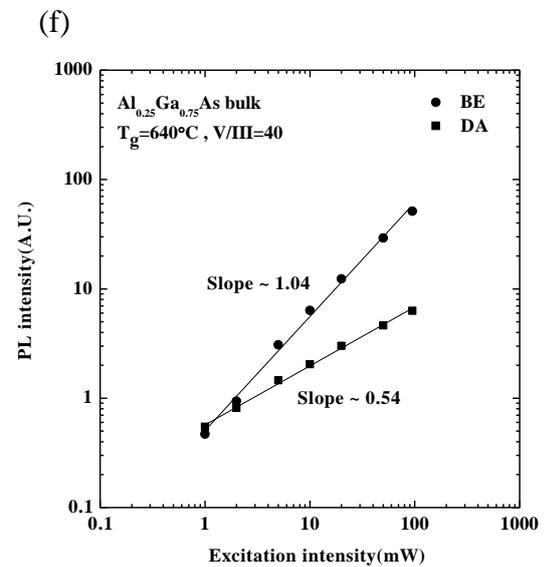
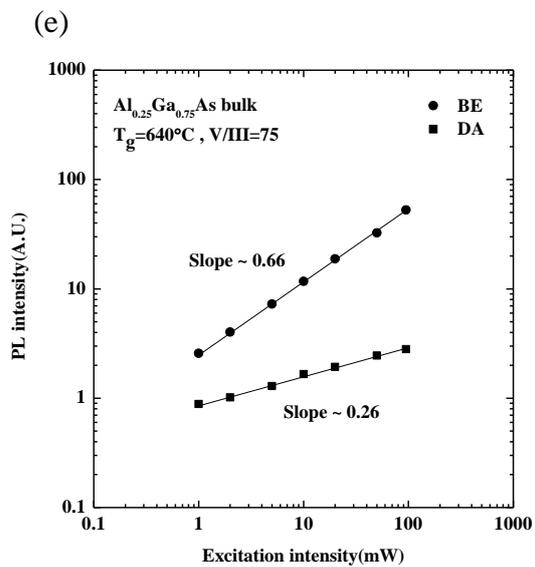
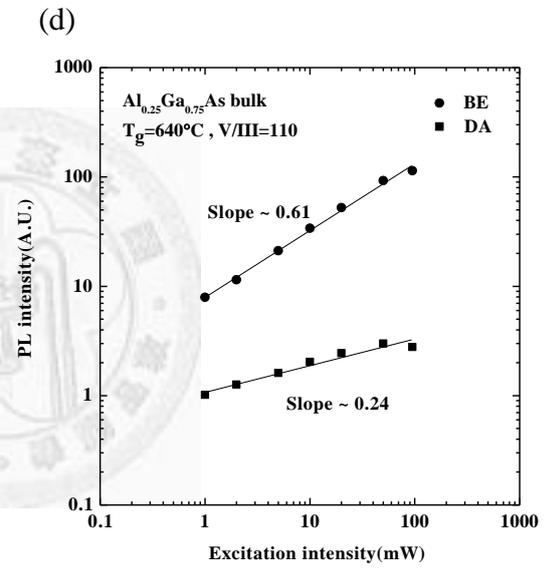
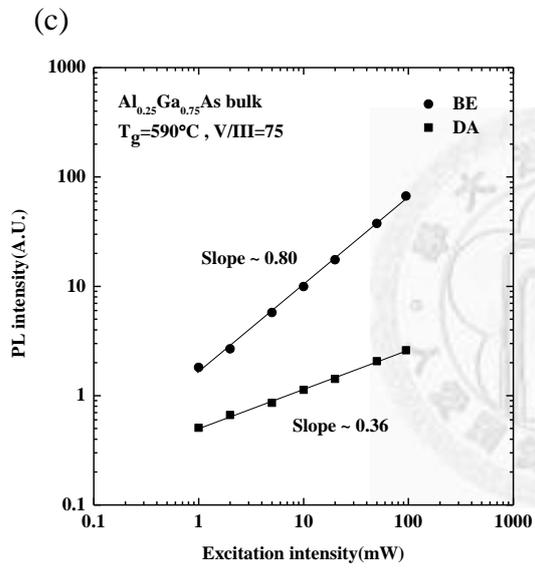
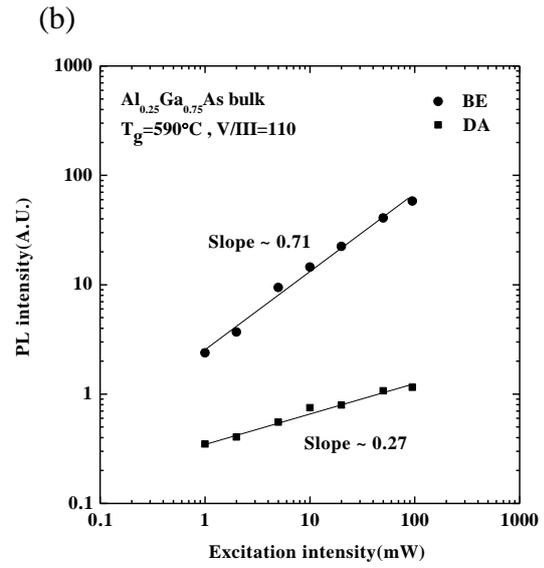
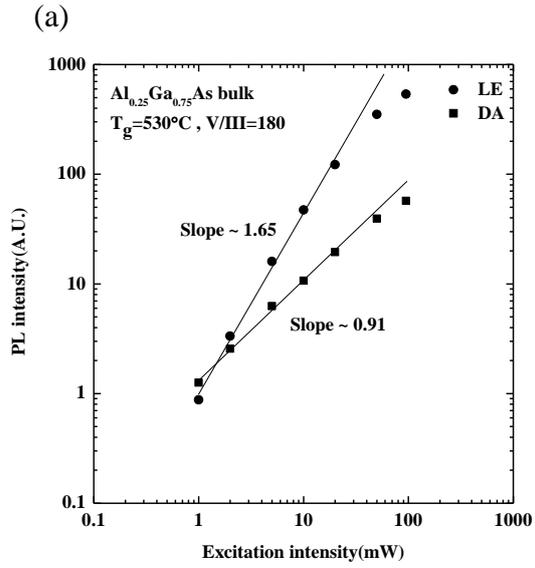


圖 3.4 各樣品變光激發強度 PL 頻譜。





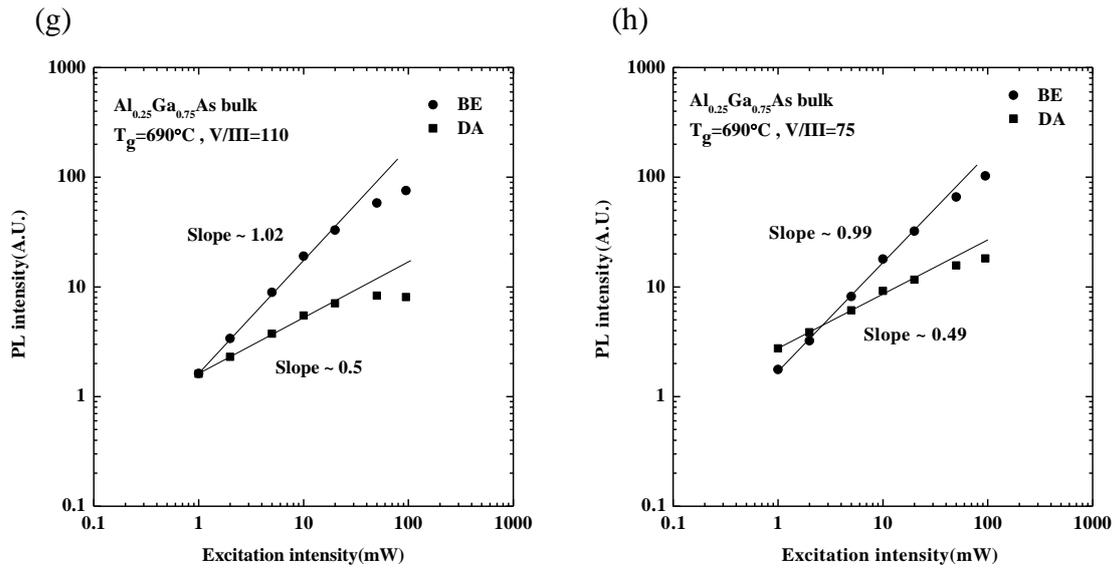


圖 3.5 各樣品 PL 強度對應光激發強度變化關係圖。



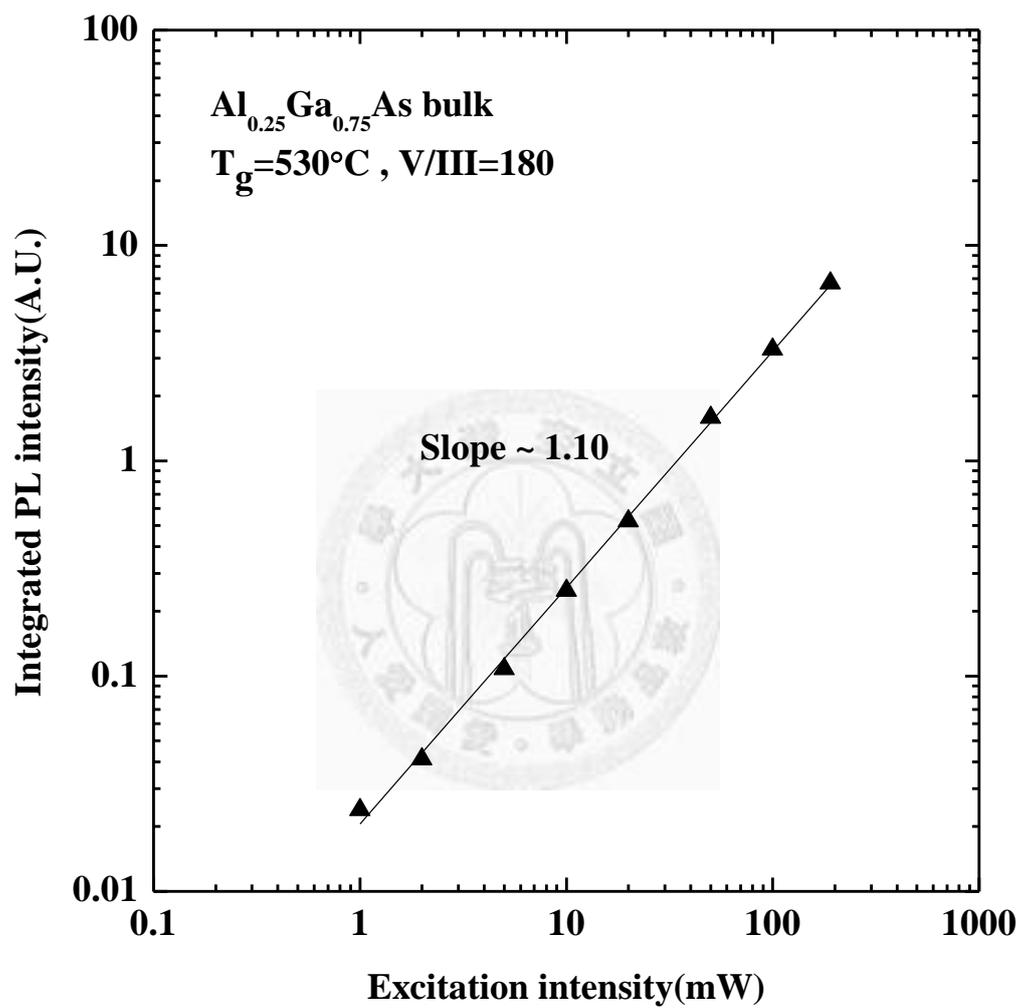


圖 3.6 樣品 I 整體 PL 強度對應光激發強度變化關係圖。

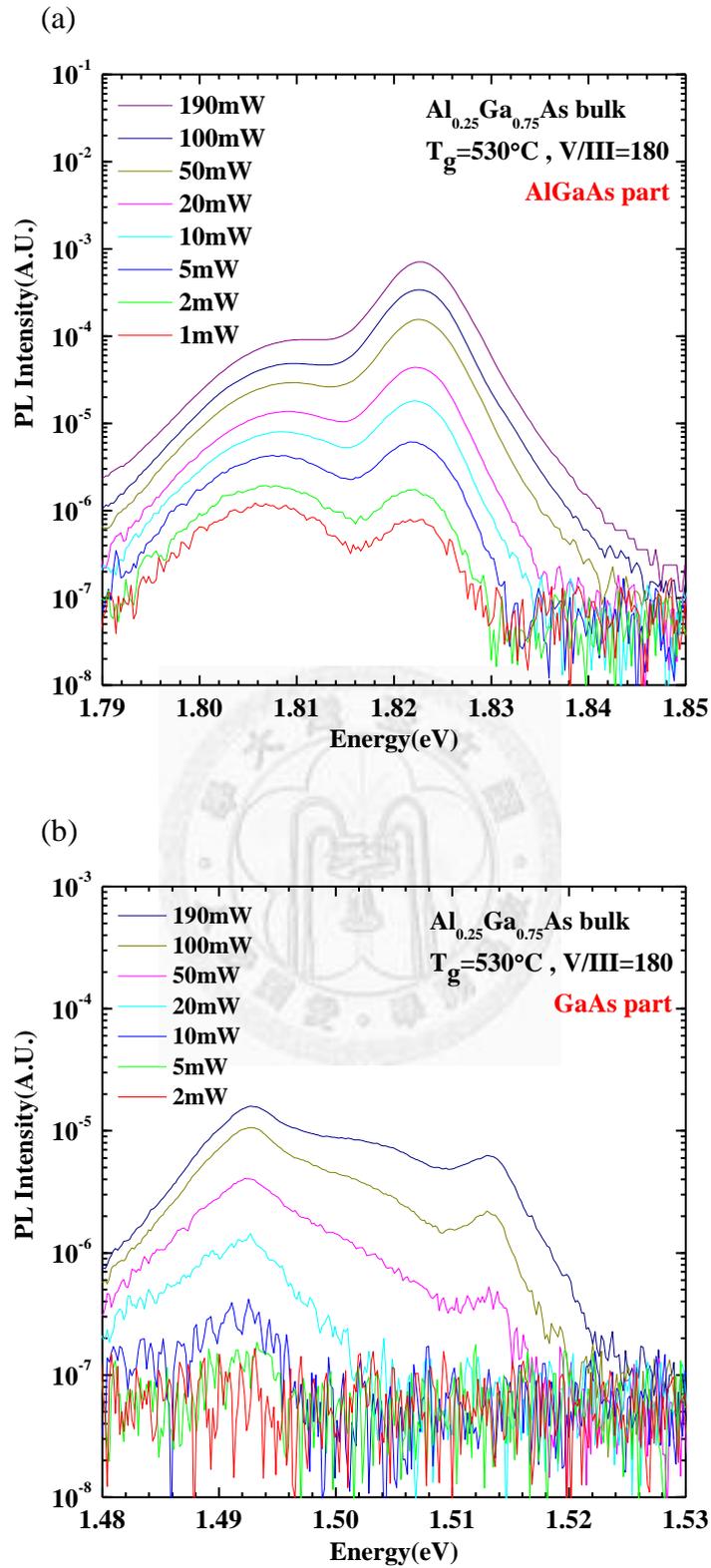


圖 3.7 樣品 I AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻譜。

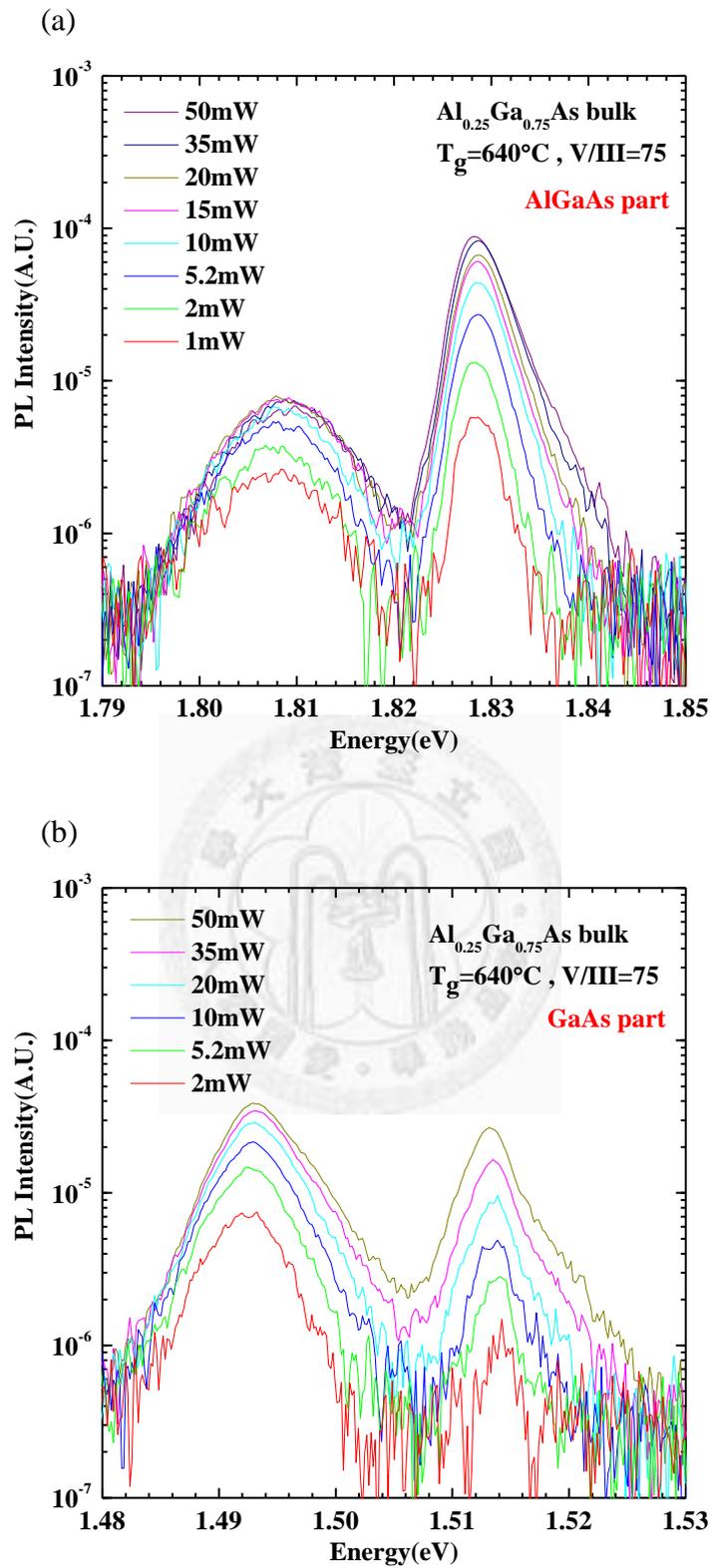


圖 3.8 樣品 V AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻譜。

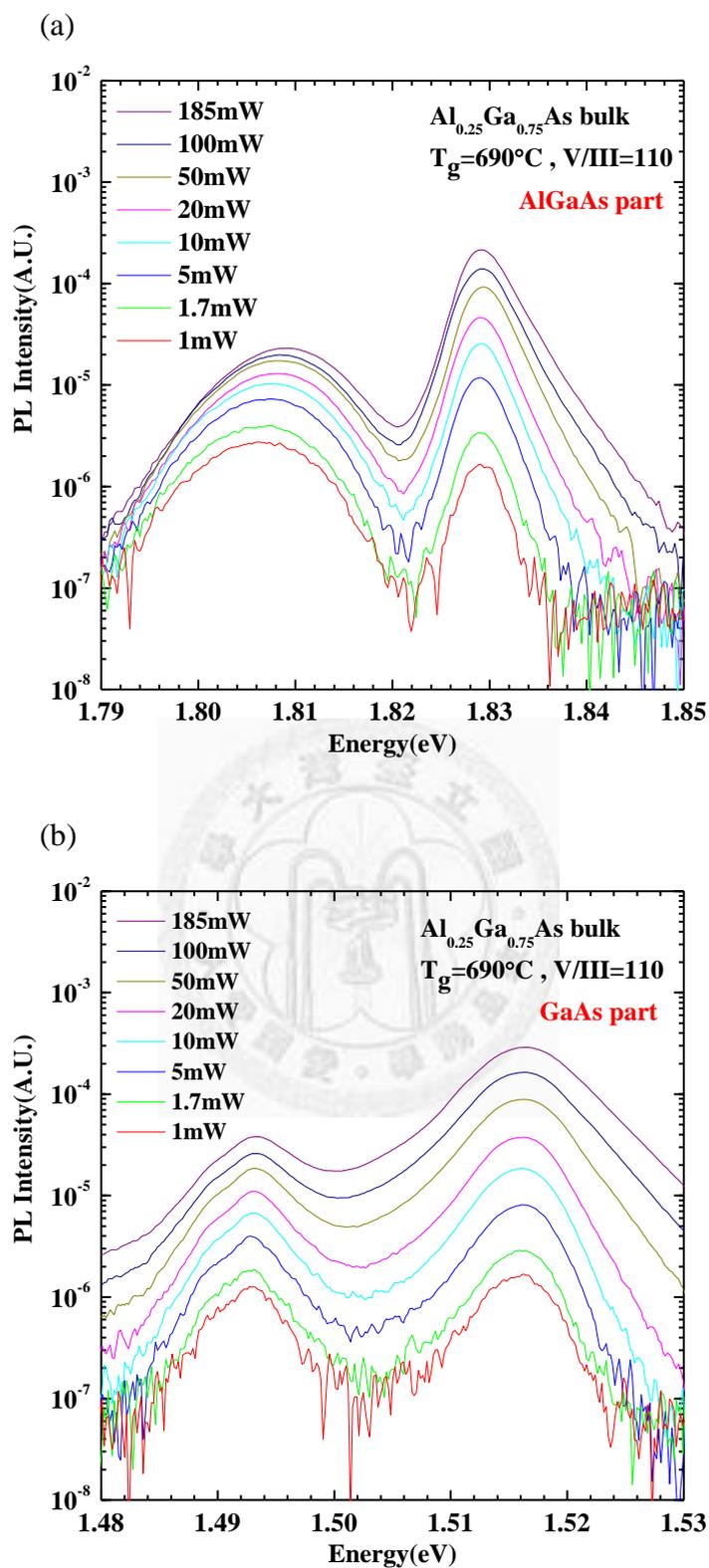


圖 3.9 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層的變光激發強度 PL 頻

譜。

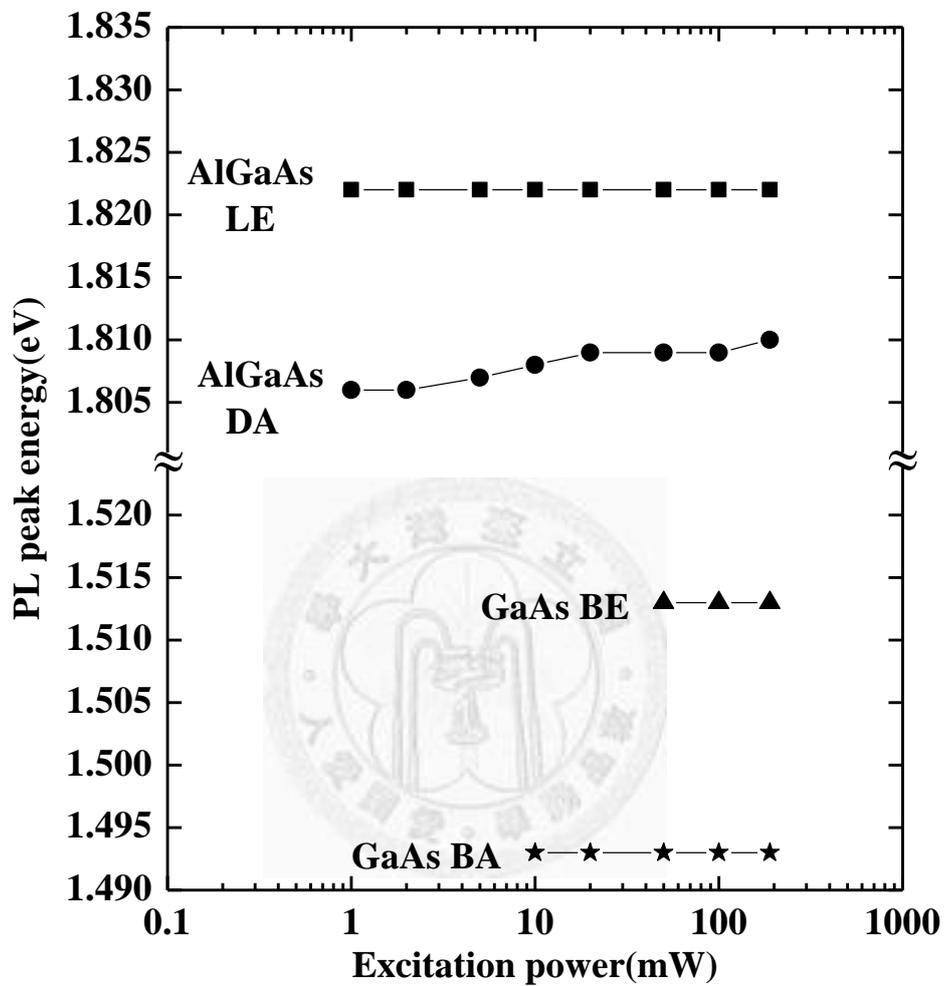


圖 3.10 樣品 I AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 峰值能量對應光激發度變化關係圖。

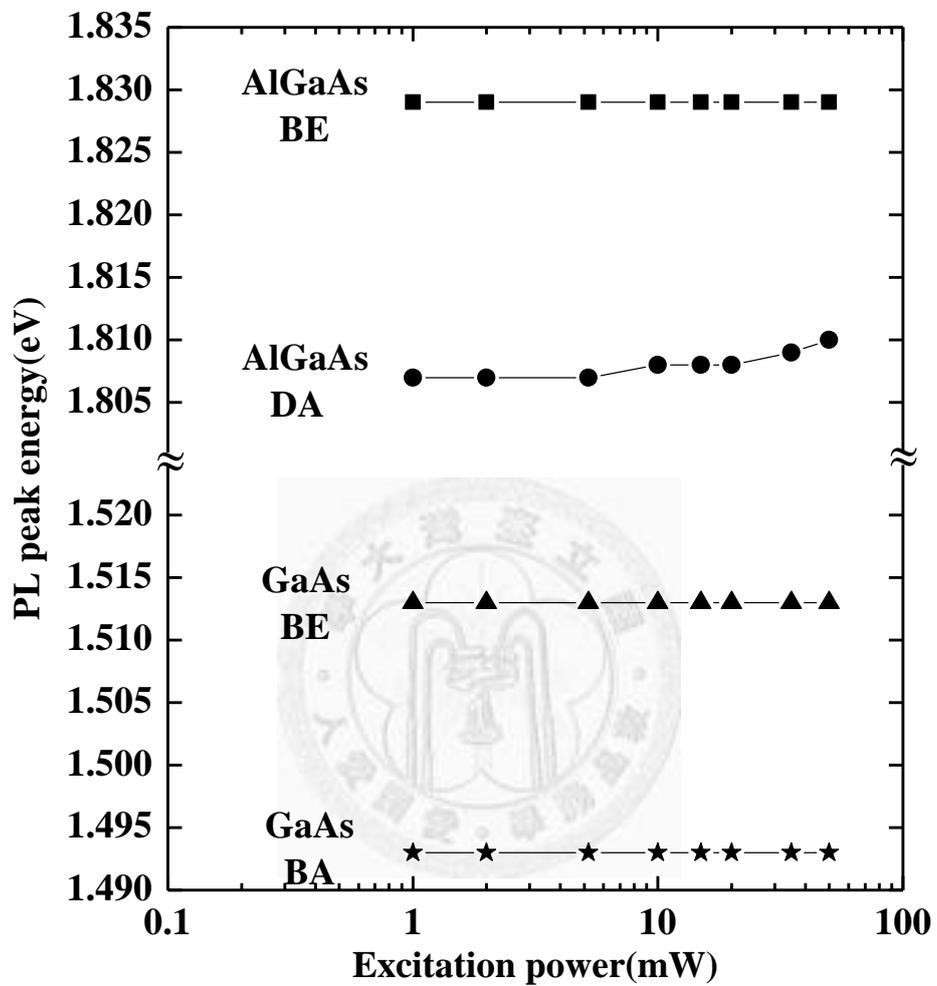


圖 3.11 樣品 V AlGaAs 磊晶層與砷化鎵緩衝層 PL 峰值能量對應光激發強度變化關係圖。

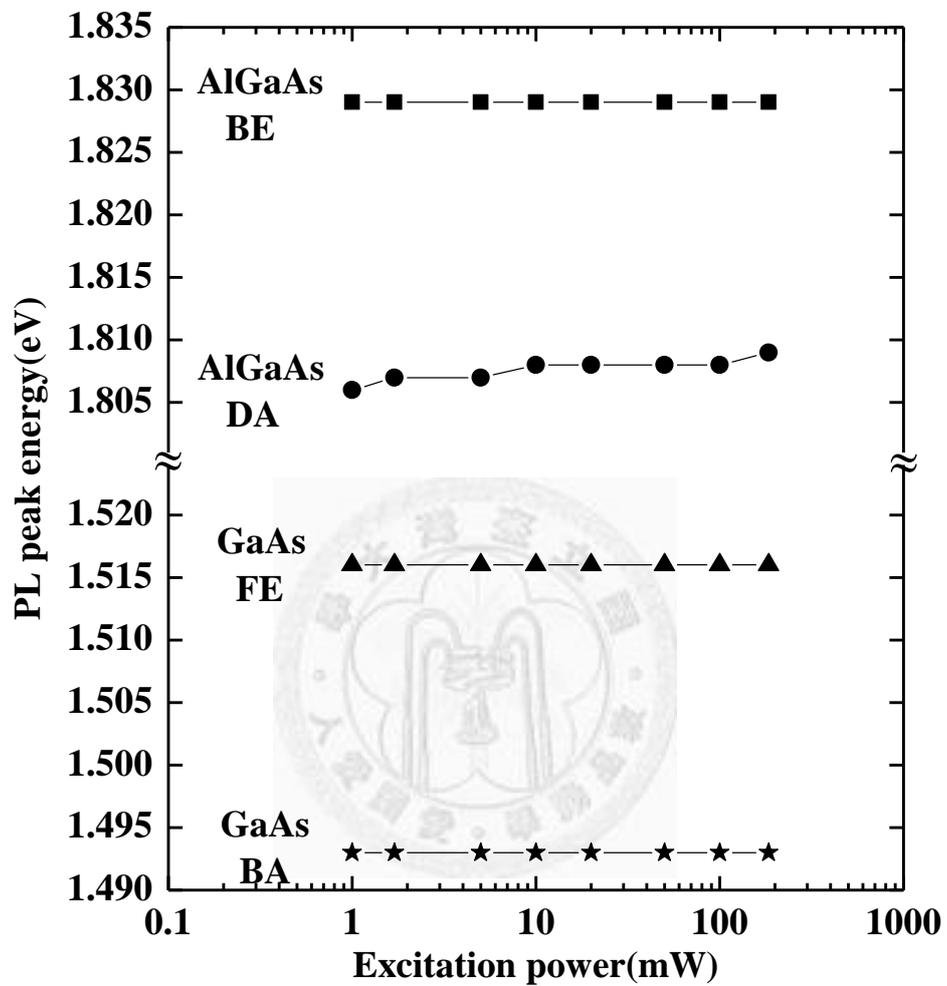


圖 3.12 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 峰值能量對應光
激發強度變化關係圖。

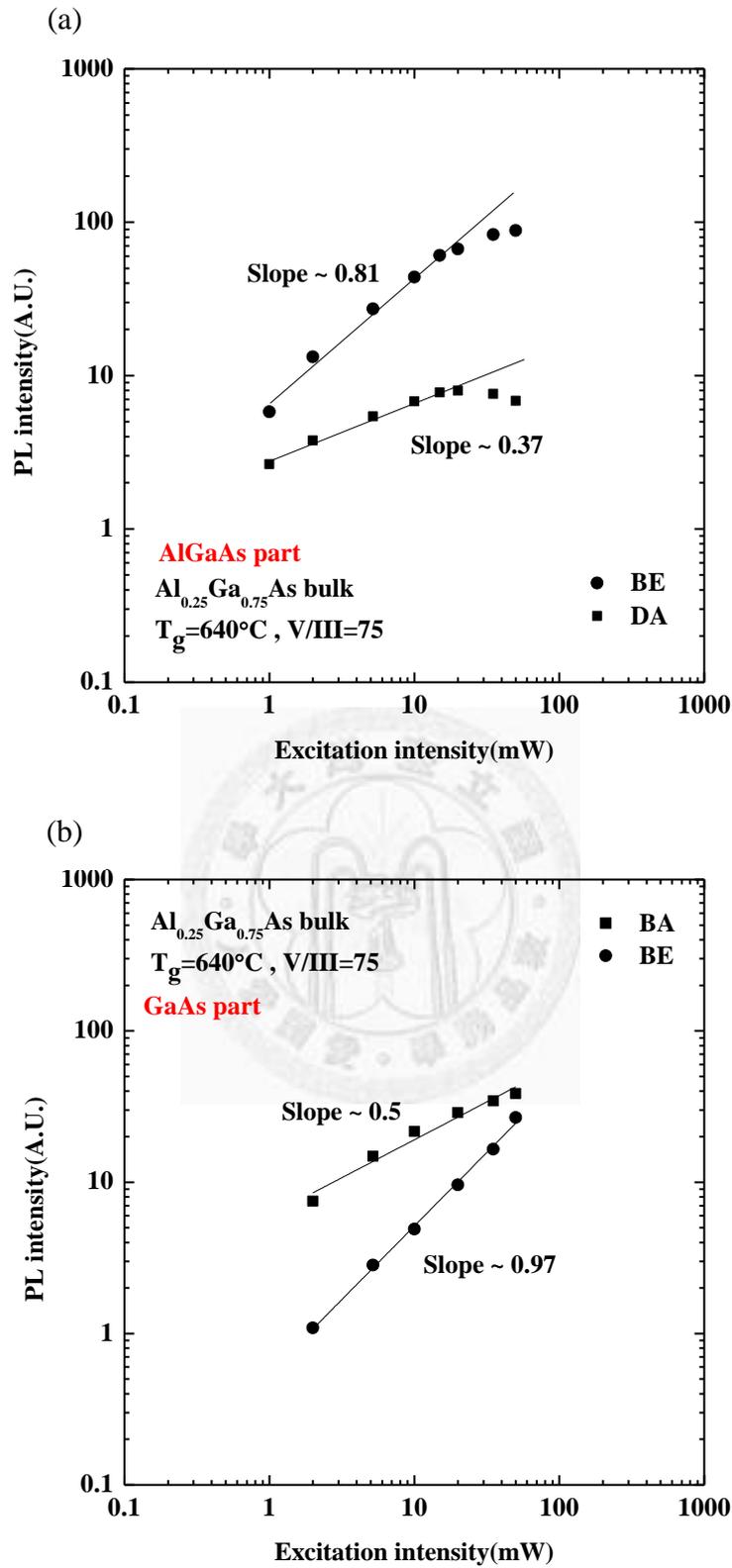


圖 3.13 樣品 V AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 強度對應光激發強度變化關係圖。

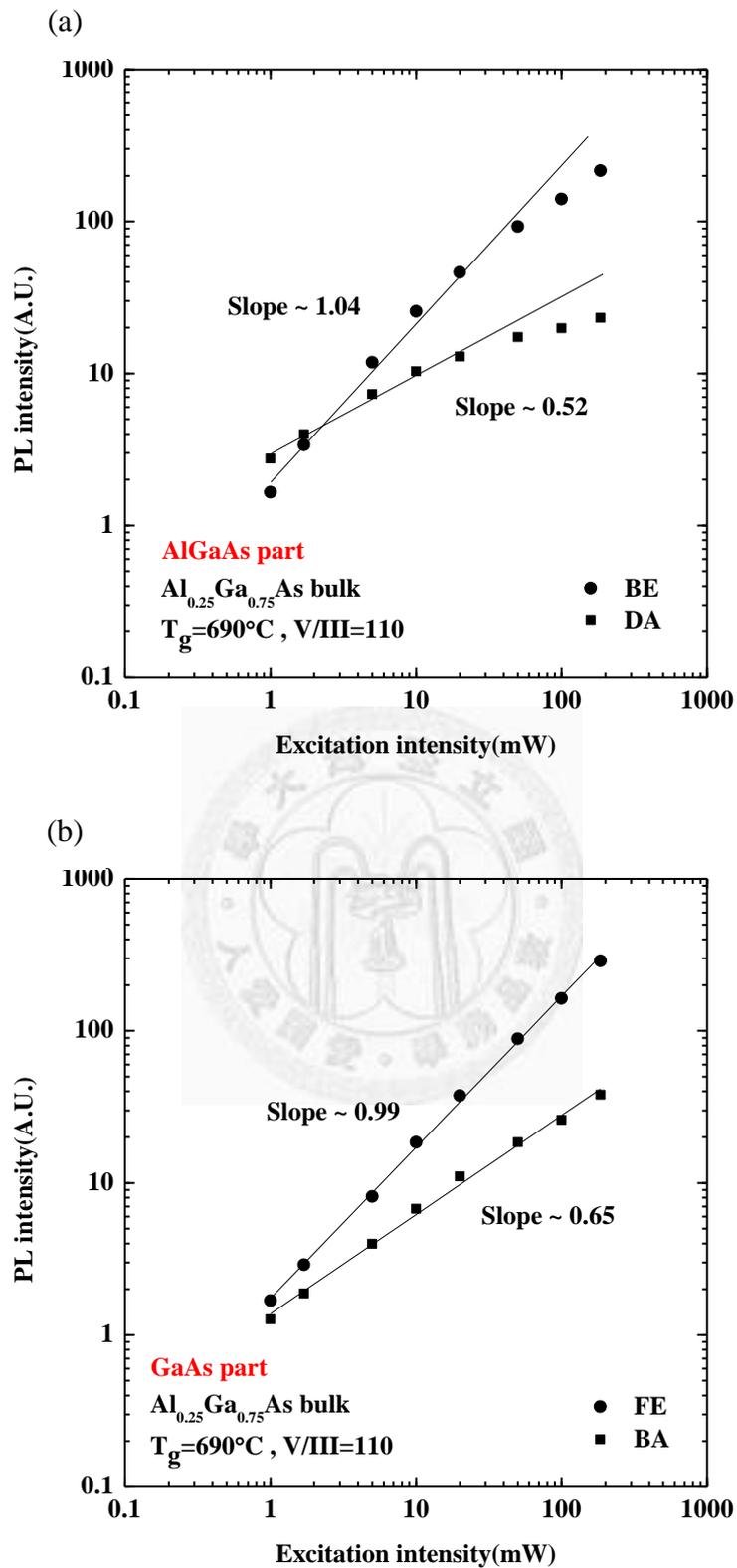


圖 3.14 樣品 VII AlGaAs 磊晶層與 GaAs 緩衝層 PL 強度對應光激發

強度變化關係圖。

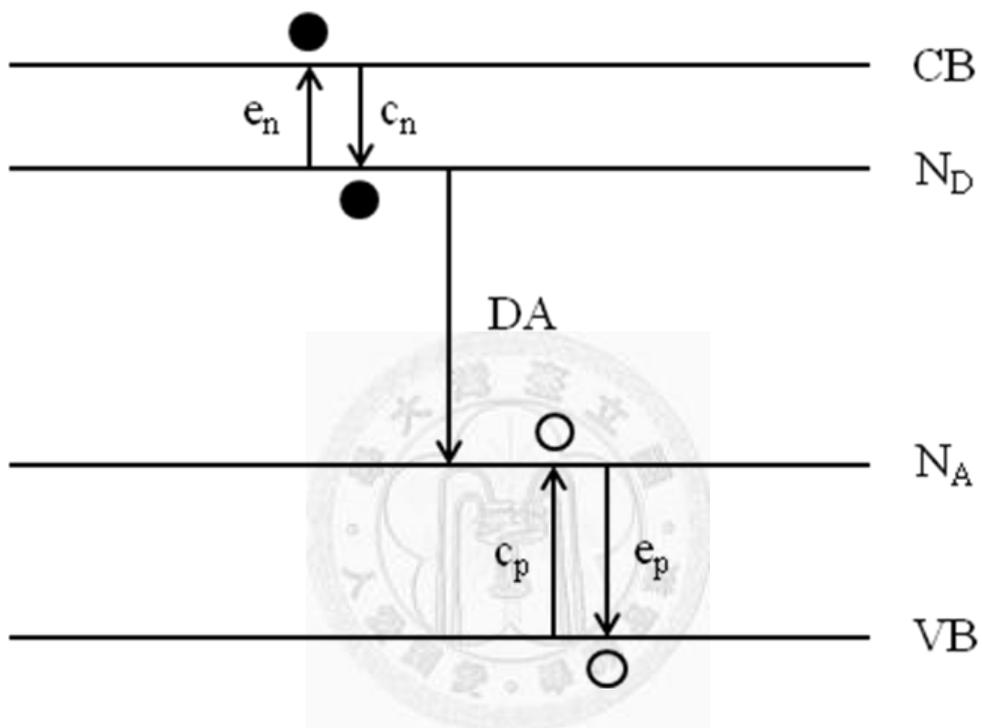


圖 3.15 施體至受體(DA)轉換示意圖。圖中 e_n 與 c_n 分別代表施體能階與導帶間電子的發射率與捕捉率； e_p 與 c_p 則分別代表受體能階與價帶間電洞的發射率與捕捉率。

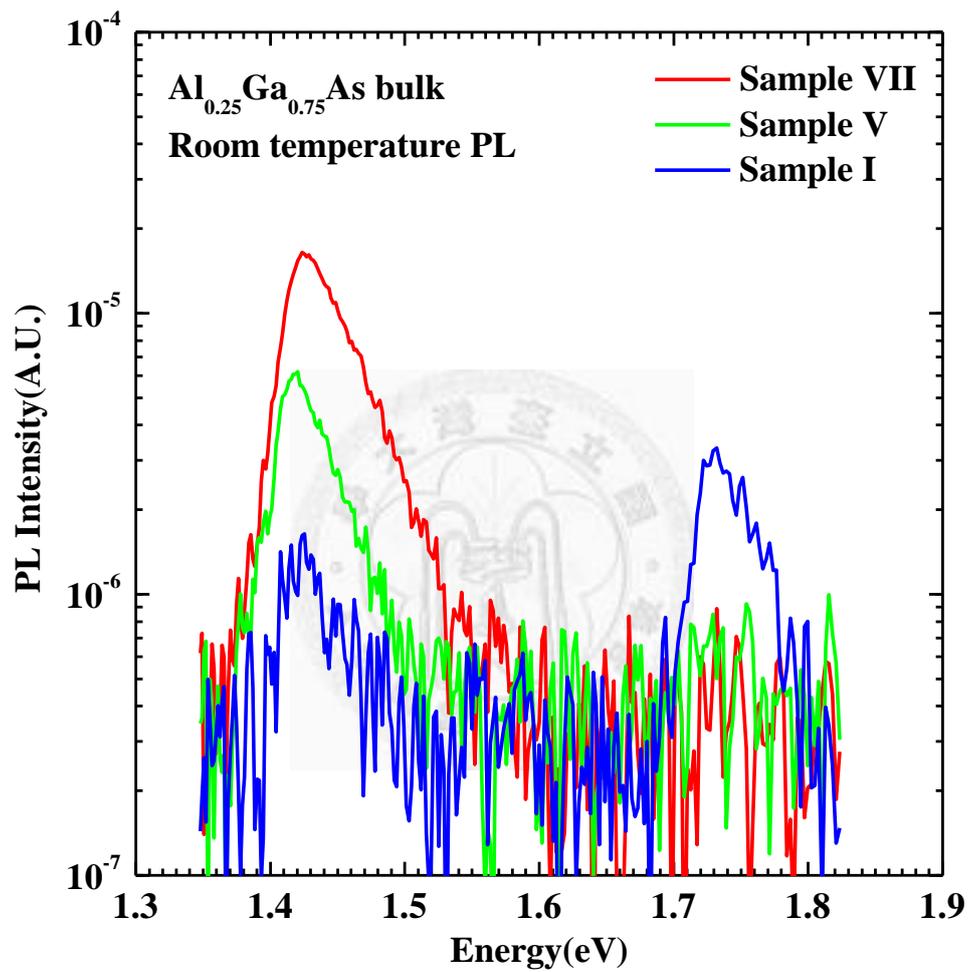
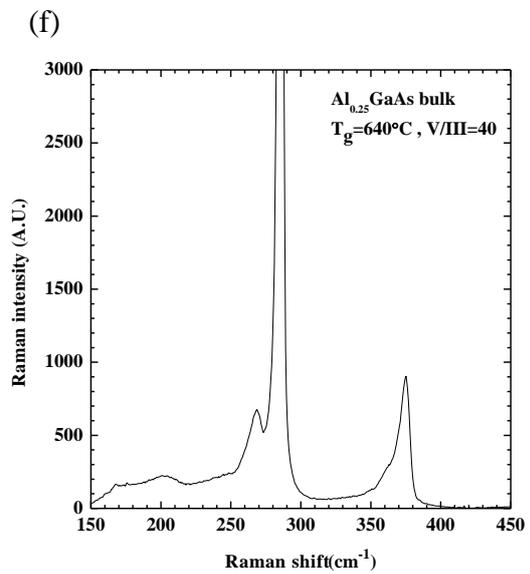
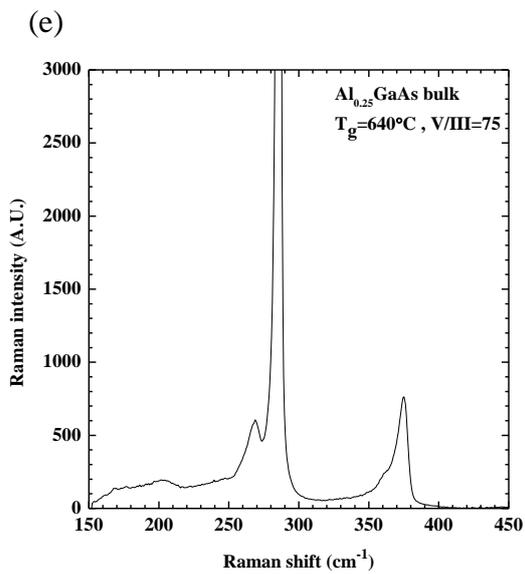
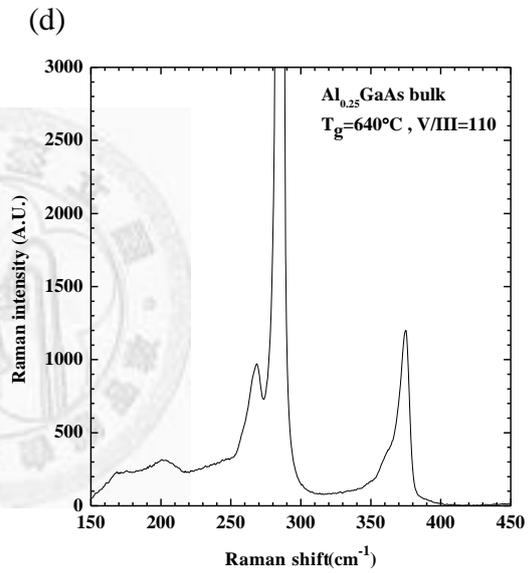
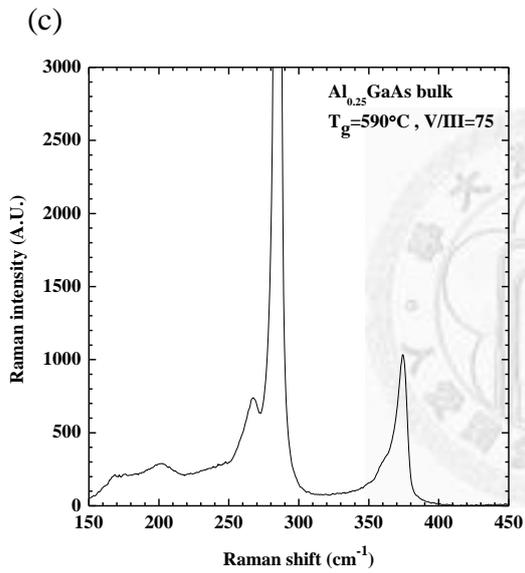
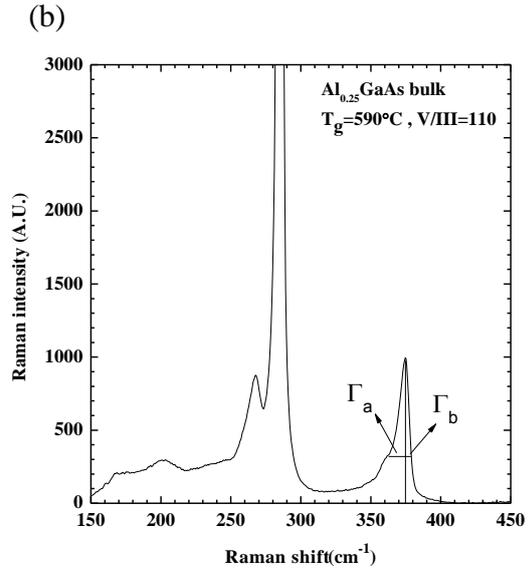
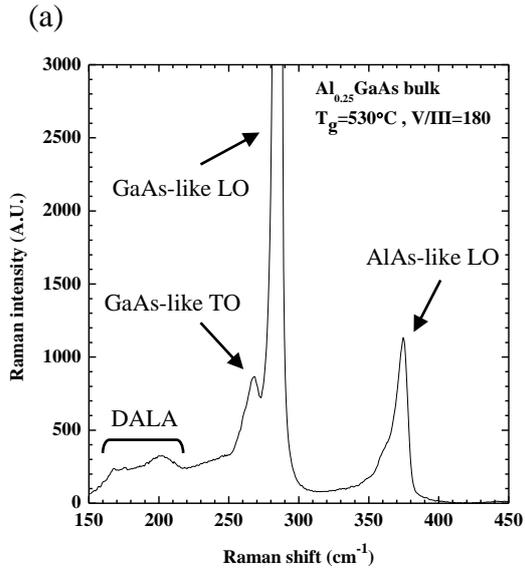


圖 3.16 樣品 VII、樣品 V 與樣品 I 室溫 PL 頻譜。



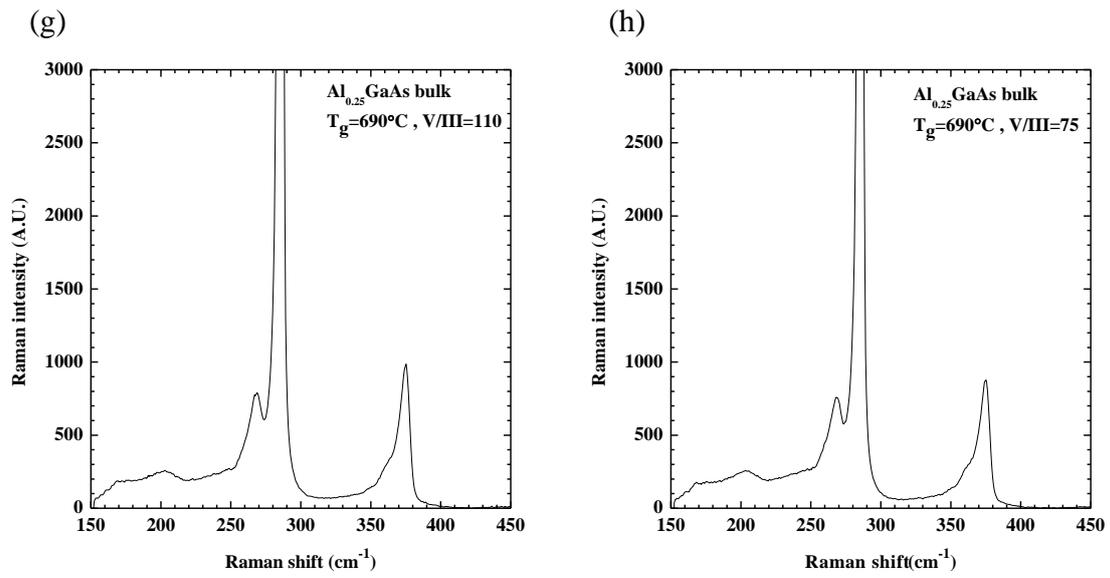
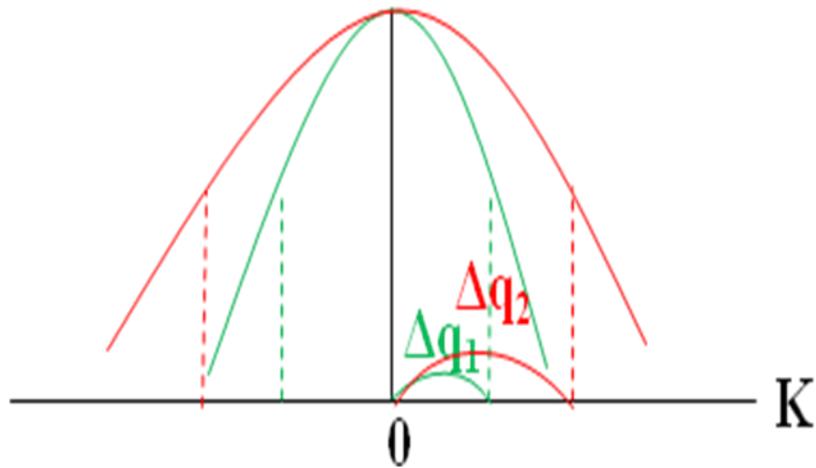


圖 3.17 各樣品拉曼頻譜。





L (Real space)	q (q-space)
∞	0
L_1	Δq_1
L_2	Δq_2

※ $L_1 > L_2$

圖 3.18 實空間與波向量空間轉換關係示意圖。對完美晶體而言，聲子佈於實空間(real space)的函數為無限擴展，轉換至波向量空間(q-space)中會準確對應到 $\vec{q}=0$ 的位置；存在合金位能波動時，佈於實空間的函數為有限(L_1 、 L_2)，對應的波向量空間分佈存在 Δq (即 $\vec{q} \neq 0$)，且當聲子被侷限在越小的實空間中，其對應到的 Δq 越大。

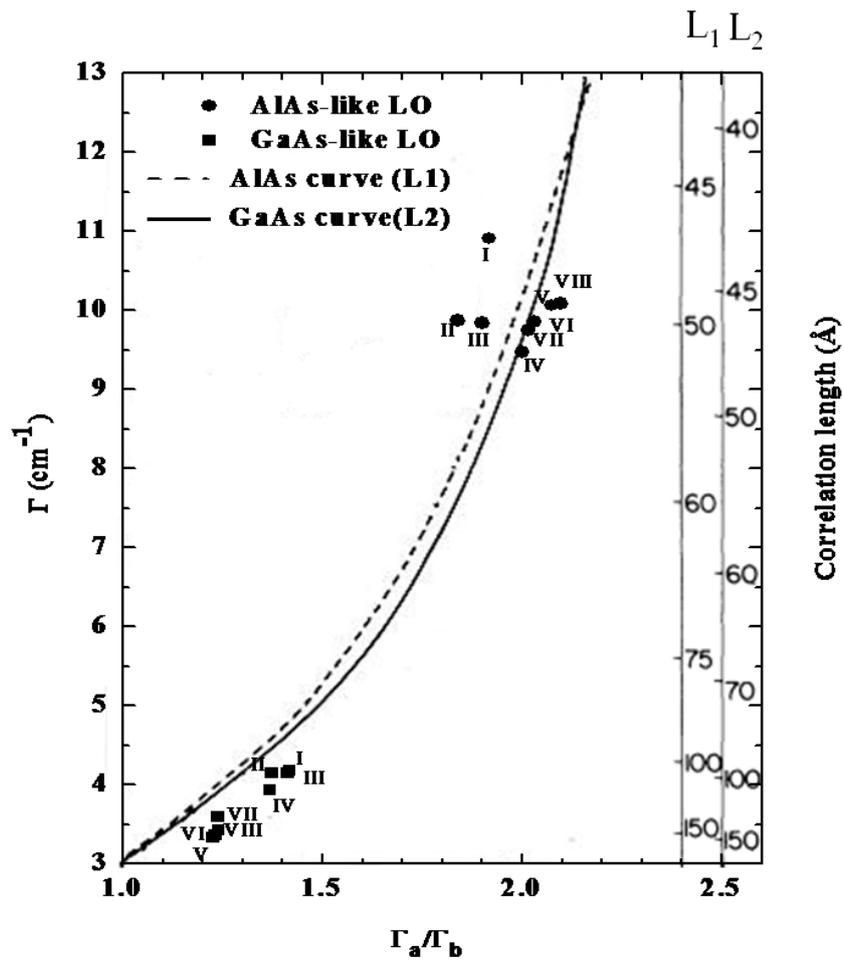


圖 3.19 利用空間相關函數： $\exp(-2r^2/L^2)$ 描繪出之 GaAs 與 AlAs 的頻散曲線(dispersion curve)。圖中實心點為各樣品的實驗結果。

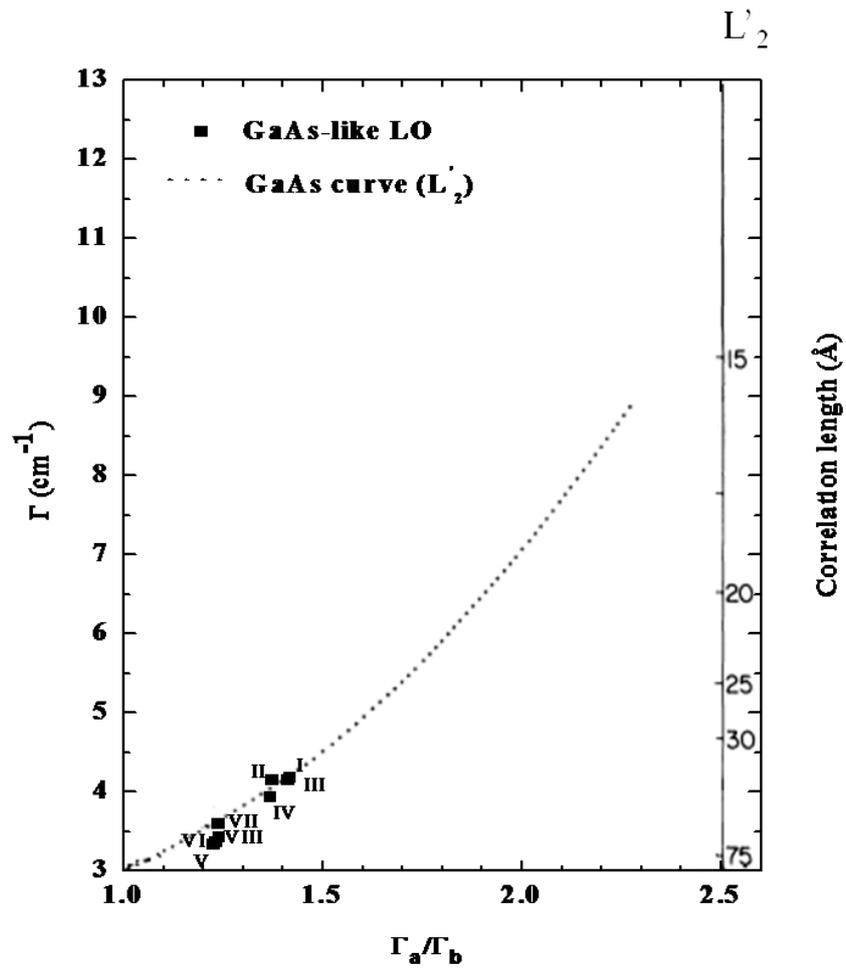


圖 3.20 利用空間相關函數： $\exp(-r/L)$ 描繪出的 GaAs 頻散曲線 (dispersion curve)。圖中實心點為各樣品的實驗結果。

第四章 結論

綜觀本篇論文，我們係利用低溫 PL、變光激發強度 PL 以及拉曼散射研究 AlGaAs 塊材的光學特性，這些 AlGaAs 樣品係以有機金屬化學氣相沉積法成長並已應用於現今的商用微波 pHEMT 晶片中。本實驗之樣品根據成長溫度以及五族與三族元素的比例之差別共可分為八片樣品，其餘成長條件則固定不變。

首先我們從 XRD、低溫 PL 以及拉曼散射的量測結果求得平均鋁成份約為 0.25 並分別進行平均鋁成份誤差之估算，結果顯示由低溫 PL 估算之精確度最高，其鋁成份誤差小於 0.002 優於 XRD(0.004)與拉曼散射(0.014)之估算。從低溫 PL 頻譜可以觀察到各樣品皆存在四個波峰，其中兩個來自於 AlGaAs，其餘則為 GaAs 緩衝層之信號。AlGaAs 的低能量波峰其 PL 峰值能量為 1.810 ± 0.001 eV，我們判斷其為 DA 放光所致；而除了樣品 I 以外，其餘樣品的高能 PL 峰值能量皆在 1.828 ~ 1.829 eV 的範圍內，我們認為這是來自於 BE 放光。而樣品 I 高能量波峰峰值能量僅有 1.824 eV，其半高寬值為 6.3 meV 也大於其餘樣品(3.3 ~ 4.5 meV)，因此我們推測樣品 I 的高能波峰為 LE 放光所造成。對於變光激發強度 PL 頻譜的分析，我們透過整體 PL 強度對光激發強度之線性變化關係瞭解到，樣品 I 的載子復合主要都發生在 AlGaAs 磊晶

層，顯示此樣品較深的激子束縛限制了激子的移動。而對比樣品的 AlGaAs 信號在高光激發強度時會出現飽和現象且 GaAs 緩衝層 PL 強度較強，後者並與光激發強度成線性關係，這些結果顯示對比樣品 AlGaAs 用以束縛激子的雜質濃度較低，大部分的激子都擴散到 GaAs 緩衝層放光。此外我們也利用速率方程針對上述現象加以驗證。在拉曼頻譜分析的部份，我們以空間相關模型(spatial correlation model)來擬合 AlAs-like LO 模態的半寬，其中樣品 I 擬合之相關長度為 4.7 nm 小於其他樣品之值(約 5 nm)，顯示其合金成份波動程度最大。此外我們也擬合了 GaAs-like LO 模態的半高寬，擬合結果顯示成長溫度較低樣品(樣品 I、II、III、IV)之相關長度約 5 nm 小於成長溫度較高樣品(樣品 V、VI、VII、VIII)之值(約 7 nm)，說明了當成長溫度越高，其合金成份波動程度越小。

由上述實驗結果顯示：樣品 I 的合金成份波動最為嚴重，其原因可能來自於較低的成長溫度以及較高的五族與三族比例。而其餘樣品則呈現成長溫度越高，合金成份波動程度越小的分佈。

參考文獻

- [1] Yu.A. Goldberg and N.M. Schmidt, “*Handbook Series on Semiconductor Parameters*,” (eds. M. Levinshtein, S. Rumyantsev and M. Shur), London; World Scientific, vol. 2, pp. 1-36, 1999.
- [2] D. Ridsdale, R. Stevenson and S. Westwater (eds.), “*Compound Semiconductor*,” Watford; Angel Business Communications, vol. 16, no. 7 pp. 29, 55-56, 2010.
- [3] D.V. Lang, “DX Centers in III-V Alloys,” Chap. 7 in *Deep Centers in Semiconductors*, (ed. S.T. Pantelides), New York; Gordon and Breach, 1986.
- [4] J. Shah, B.I. Miller, and A.E. DiGiovanni, “Photoluminescence of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$,” *J. Appl. Phys.*, vol. 43, pp. 3436-3441, 1972.
- [5] M. Miyashita, H. Kizuki, M. Tsugami, N. Fujii, Y. Mihashi, and S. Takamiya, “Metalorganic chemical vapor deposition growth of high-quality AlGaAs using dimethylethylamine alane and triethylgallium-dimethylethylamine adduct,” *J. Crystal Growth*, vol. 192, pp. 79-83, 1998.
- [6] E.F. Schubert, E.O. Göbel, Y. Horikoshi, K. Ploog, and H.J. Queisser, “Alloy broadening in photoluminescence spectra of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$,” *Phys. Rev. B*, vol. 30, pp. 813-820, 1984.
- [7] J.E. Cunningham, W.T. Tsang, T.H. Chiu, and E.F. Schubert, “Molecular beam epitaxial growth of high-purity AlGaAs,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 50, pp. 769-771, 1987.

- [8] S. Takagishi, H. Mori, K. Kimura, K. Kamon, and M. Ishii, "Epitaxial growth of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ by low-pressure MOCVD," *J. Crystal Growth*, vol. 75, pp. 545-550, 1986.
- [9] X.H. Tang, J.Y. Zhu, and Y.C. Chan, "Photoluminescence of AlGaAs alloy grown by LP-MOVPE at different temperatures using TBA in N_2 ambient," *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 4, pp. 651-654, 2001.
- [10] V. Swaminathan and A. T. Macrander, *Materials Aspects of GaAs and InP Based Structures*, New Jersey; Prentice Hall, pp. 186, 1991.
- [11] I. Vurgaftman and J.R. Meyer, "Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys," *J. Appl. Phys.*, vol. 89, pp. 5815-5875, 2001.
- [12] J. Hornstra and W.J. Bartels, "Determination of the lattice constant of epitaxial layers of III-V compounds," *J. Crystal Growth*, vol. 44, pp. 513-517, 1978.
- [13] V. Swaminathan and A. T. Macrander, *Materials Aspects of GaAs and InP Based Structures*, New Jersey; Prentice Hall, pp. 22-23, 1991.
- [14] L. Vegard, "The constitution of mixed crystals and filling the space of atoms," *Phys. Rev.*, vol. 5, pp. 17-26, 1921.
- [15] J.M. Langer, R. Buczko, and A.M. Stoneham, "Alloy broadening of the near-gap luminescence and the natural band offset in semiconductor alloys," *Semi. Scien. Tech.*, vol. 7, pp. 547-551, 1992.
- [16] A. Ait-Ouali, R. Y.-F. Yip, J. L. Brebner, and R. A. Masut, "Strain relaxation and exciton localization effects on the Stokes shift in $\text{InAs}_x\text{P}_{1-x}/\text{InP}$ multiple quantum wells," *J. Appl. Phys.*, vol.83, pp. 3153-3160, 1998.
- [17] R. Dingle, R.A. Logan, and J.R. Arthur Jr., in "GaAs and Related

Compounds 1976,” Inst. Phys. Conf., Ser. 33a, pp. 210, 1977.

- [18] L.A. Coldren, S.W. Corzine, *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*, New Jersey; Prentice Hall, pp. 30, 1995.
- [19] Lorenzo Pavesi and Mario Guzzi, “Photoluminescence of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ alloys,” *J. Appl. Phys.*, vol. 75, pp. 4779-4842, 1994.
- [20] V. Swaminathan and A. T. Macrander, *Materials Aspects of GaAs and InP Based Structures*, New Jersey; Prentice Hall, pp. 240, 1991.
- [21] B. Jusserand and J. Sapriel, “Raman investigation of anharmonicity and disorder-induced effects in $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ epitaxial layers,” *Phys. Rev. B.*, vol. 24, pp. 7194-7205 ,1981.
- [22] P. Parayanthal and Fred H. Pollak, “Raman scattering in alloy semiconductors: “spatial correlation” model,” *Phys. Rev. B.*, vol. 52, pp. 1822-1825 ,1984.

