

InN 的光学性质*

孙 苑[†] 王 辉 王 莉莉 刘文宝 江德生 杨 辉

(中国科学院半导体研究所 集成光电子国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 对采用 MOCVD (metalorganic chemical vapor phase deposition) 技术生长在 GaN/Sapphire 衬底上的 InN 薄膜进行了 Hall、吸收谱以及低温光致发光 (photoluminescence, PL) 谱的测量和分析. Hall 测量发现, 样品的载流子浓度分布在 $10^{18} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. 在 10K 温度下进行 PL 测量, 并对其线形进行分析, 得到 InN 的带隙在 0.7eV 左右. 综合 Hall、吸收谱及 PL 谱的结果发现, 吸收边以及 PL 谱的峰值能量都随载流子浓度的增加而蓝移. 此外, 我们还讨论了由吸收谱计算 InN 带隙的存在的不确定性.

关键词: InN; MOCVD; Hall 效应; 吸收谱; PL 谱

PACC: 7850G; 6855; 7865

中图分类号: TN304.2*3

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0088-03

1 引言

InN 是 III 族氮化物中的重要一员, 是直接带隙半导体. 其禁带宽度一直有争论, 目前的研究主要有两种结果: 1.89 和 0.7eV. Tansley 等人^[1] 测得用反应溅射方法生长的 InN 膜的基本吸收边在 1.89eV. 随着 MBE (molecular beam epitaxy) 和 MOCVD (metalorganic chemical vapor phase deposition) 等外延技术的发展, 使用这些技术生长的高质量 InN 薄膜^[2~4] 的光致发光 (photoluminescence, PL) 谱以及光吸收边在 0.7eV 左右. 这也可由 InGaN 的 In 组分变化时外推得到 InN 带宽来支持^[5]. Davydov 等人^[4] 认为, 造成 1.89eV 带隙的可能原因是磁控溅射中氧杂质的引入, 当氧的含量达到 20% 的时候, InN 的带隙接近 2eV. 因为通过吸收曲线确定带宽所使用的方法不一样, 而且 PL 发光峰的峰值并不是准确的带宽位置, 所以 InN 的带宽到现在还没有得到确切值.

我们对 GaN/Sapphire 衬底上生长的 InN 薄膜吸收谱以及 PL 谱进行了测量, 并对 PL 线型进行了分析. 分析得到的 InN 的带隙在 0.7eV 左右, 发现吸收边以及 PL 谱的峰值能量都随载流子浓度的增加而蓝移.

2 实验

用于测量的 InN 薄膜是用水平腔 MOCVD 在

常压下生长在 GaN/Sapphire 衬底上的. InN 层的生长温度为 450~500°C, 其电学性质由 Van de Pauw 方法测量得到, 电子迁移率为 $397 \sim 924 \text{ cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{s})$, 其载流子浓度为 $7.97 \times 10^{18} \sim 4.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (参看表 1). 测量 InN 的 PL 谱所用的仪器为 Nicolet FTIR 760 型傅里叶变换光谱仪; 使用的激发光源为 He-Ne 激光器 (632.8nm), 激发光功率为 10mW, 测试温度为 10K; 测量吸收谱的仪器与测量 PL 所用仪器相同, 光源为碘钨灯 (0.6~5 μm), 在室温下进行测量. 傅里叶变换光谱仪中, 选用 CaF_2 作分光板, 用 InSb 探测器来探测 InN 的光信号.

3 结果与讨论

3.1 吸收谱

测量 InN 的透射谱, 利用以下公式计算吸收谱:

$$\alpha = -\frac{\ln T}{d} + C$$

其中 d 为薄膜厚度; α 是吸收系数; C 为常数; T 为透射率. 非故意掺杂的 InN 的载流子浓度很高, 在 $10^{18} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 数量级. 重掺杂情况下, 电子气是简并态的, E_F 深入导带. 在低温时, E_F 以下基本上所有的导带态都已经被电子填满. 光入射到重掺杂半导体上, 其吸收过程只能在价带态和 E_F 附近及以上的导带空态之间发生^[6]. 所以测量 InN 的吸收谱得到的能量截距是 $E_g + E_F$ (以价带最大值作为

* 国家自然科学基金资助项目 (批准号: 60506001, 60576003)

[†] 通信作者. Email: xiansun@semi.ac.cn

2006-11-27 收到, 2006-12-15 定稿

零点)而不是 E_g . 上述效应即 Burstein-Moss 效应(简称 B-M 效应或 B-M 移动), 见图 1(a). 所以载流子浓度越大, 电子费米能级就越深入导带, E_F 也就越大.

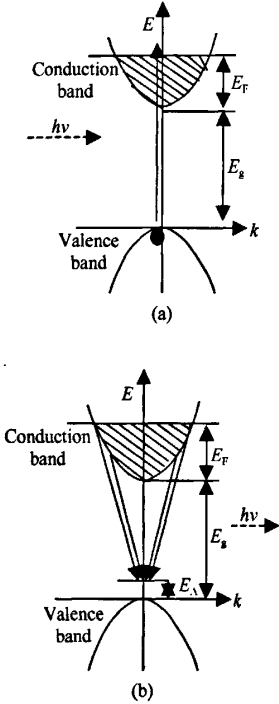


图 1 (a) InN 薄膜光吸收过程能带结构图; (b) InN 薄膜发光过程能带结构图

Fig. 1 (a) Energy band diagram for absorption process of InN films; (b) Energy band diagram for radiative transition process of InN films

对应于直接允许跃迁^[7], 在抛物线形能带情况下, 吸收系数有如下的表达式:

$$\alpha(\omega) \propto \frac{1}{\omega} (\hbar\omega - E_g)^{1/2} \quad (1)$$

所以我们选用 $\alpha^2 E^2 - E$ 作图来确定带边. 对于 InN 的 $\alpha^2 E^2 - E$ 作图法, 其吸收区在横轴上的截距为 $E_{ab} = E_g + E_F$. 因一个电子从价带跃迁到导带引起的吸收, 其吸收系数在 $10^4 \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$, 所以取 10^4 cm^{-1} 数量级的吸收谱曲线来确定 E_g . 由此得到的 $E_g + E_F$ 值列于表 1 中, 大约在 $0.69 \sim 0.94 \text{ eV}$ 之间. 因实验上测到的吸收谱的 $\alpha^2 E^2 - E$ 曲线(如图 2)的线性关系不好, 这就给精确测量 InN 的吸收边带来不便. 吸收边不陡峭的原因有带尾的影响, 同时也可能有薄膜表面较粗糙的影响.

3.2 低温 PL 谱

InN 的 PL 谱是在 10K 温度下进行测试的, 观

察到 PL 峰均在 0.7 eV 附近(见图 2), 在 1.89 eV 附近没有发现 PL 峰. 由光致发光的原理以及 InN 的简并特性, 得到如图 1(b)所示的发光过程能带图. 由图 2 可以看到, PL 峰是不对称的, 且以峰值为界可分为较陡的高能翼以及较缓的低能翼. 因为 InN 薄膜材料是简并的, 所以其电子态应服从费米-狄拉克分布.

$$f(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E - E_F}{k_B T}\right)} \quad (2)$$

这一点在 PL 峰的高能翼表现得非常明显. 如果 InN 的发光主要是由导带到受主态的跃迁^[8]引起的, 则低能翼的起始边缘可能对应于价带带尾的发光. 价带上方的受主能级或带尾态能量用 E_A 表示. 如图 1(b)所示, 与光吸收过程遵守 k 守恒定则不同, 发光过程中电子和受主施主中心的散射破坏了 k 守恒定则.

由 B-M 移动引起的吸收边的增加(即高出带边的 E_F)和载流子浓度的关系为:

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} (3\pi^2 n)^{2/3} = \frac{\hbar^2}{8m_e^*} \left(\frac{3n}{\pi}\right)^{2/3} \quad (3)$$

其中 n 为载流子浓度; m_e^* 是电子有效质量. 使用 Wu 等人^[9]根据导带非抛物线性修正得到的 InN 中不同载流子浓度下 m_e^*/m_0 的值计算 E_F , 所得结果见表 1. 由表 1, 由 PL 以及吸收谱得到 InN 的禁带宽度在 0.7 eV 附近. 无论是 PL 谱峰值能量还是吸收边都随载流子浓度的增加而蓝移.

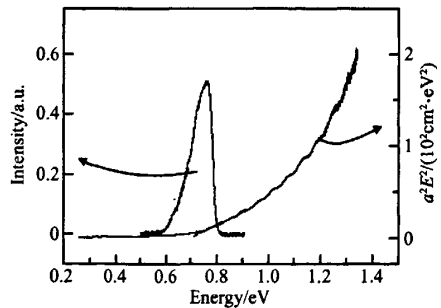


图 2 InN 的 PL 谱 ($T = 10 \text{ K}$) 以及吸收谱 (室温)

Fig. 2 PL spectrum ($T = 10 \text{ K}$) and absorption spectrum (room temperature) of InN films

4 结论

本文通过对生长在 GaN/Sapphire 衬底上的 InN 薄膜吸收谱以及 PL 谱的测量, 分析了 PL 峰的线形, 得到 InN 的带隙在 0.7 eV 左右. 吸收边以及 PL 谱的峰值能量都随载流子浓度的增加而蓝移, 有明显的 B-M 移动.

表 1 样品的生长温度以及吸收谱、PL 谱和 Hall 测量的结果

Table 1 Growth temperature, absorption spectra, PL and Hall measurement results

Sample	Growth temperature / $^{\circ}\text{C}$	$\alpha^2 E^2 - E$ E_{abs}/eV	PL Peak energy /eV	E_F/eV Calculated from Eq. (3)	m_e/m_0	n/cm^{-3}	Mobility /($\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$)
1	450	0.915	0.884	0.334	0.14	4.6×10^{19}	398
2	500	0.723	0.783	0.164	0.11	1.1×10^{19}	924
3	500	0.704	0.76	0.162	0.09	7.97×10^{18}	852

参考文献

- [1] Tansley T L, Foley C P. Optical band gap of indium nitride. *J Appl Phys*, 1986, 59, 3241
- [2] Davydov V Y, Klochikhin A A, Seisyan R P, et al. Absorption and emission of hexagonal InN; evidence of narrow fundamental band gap. *Phys Status Solidi B*, 2002, 229, R1
- [3] Matsuoka T, Okamoto H, Nakao M, et al. Optical bandgap energy of wurtzite InN. *Appl Phys Lett*, 2002, 81, 1246
- [4] Davydov V Y, Klochikhin A A, Emtsev V V, et al. Band gap of hexagonal InN and InGaN alloys. *Phys Status Solidi B*, 2002, 234, 787
- [5] Hori M, Kano K, Yamaguchi T, et al. Optical properties of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ with entire alloy composition on InN buffer layer grown by RF-MBE. *Phys Status Solidi B*, 2002, 234, 750
- [6] Shen Xuechu. Semiconductor spectra and optical properties. Beijing: Science Press, 2003 (in Chinese) [沈学础. 半导体光谱和光学性质. 北京: 科学出版社, 2003]
- [7] Li Mingfu. Semiconductor physics. Beijing: Science Press, 2000 (in Chinese) [李名复. 半导体物理学. 北京: 科学出版社, 2000]
- [8] Jiang D S, Makita Y, Ploog K, et al. Electrical properties and photoluminescence of Te-doped GaAs grown by molecular beam epitaxy. *J Appl Phys*, 1982, 53(2), 999
- [9] Wu J, Walukiewicz W, Shan W, et al. Effects of the narrow band gap on the properties of InN. *Phys Rev B*, 2002, 66, 201403

Optical Properties of InN*

Sun Xian[†], Wang Hui, Wang Lili, Liu Wenbao, Jiang Desheng, and Yang Hui

(State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: InN thin films are grown on GaN/sapphire substrate by metalorganic chemical vapor deposition. The electrical and optical properties of the InN films are investigated by means of Hall, absorption spectra and low-temperature (10K) photoluminescence (PL) measurements. It is shown that the carrier concentration ranges from 10^{18} to 10^{19}cm^{-3} . The absorption spectra, low-temperature PL measurements and PL peak shape analyses indicate that the band gap of InN is about 0.7 eV. From the results of Hall, absorption spectra and PL measurements an obvious blue-shift of the absorption edge and PL peak energy is observed with increasing the carrier concentration. In addition, the uncertainty of the InN band gap making an inference from absorption spectra is discussed.

Key words: InN; metalorganic chemical vapor deposition; Hall; absorption spectra; photoluminescence

PACC: 7850G; 6855; 7865

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0088-03

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Nos. 60506001, 60576003)

[†] Corresponding author. Email: xiansun@semi.ac.cn

Received 27 November 2006, revised manuscript received 15 December 2006