

行政院原子能委員會
委託研究計畫研究報告

以光譜研究矽基板上的 III-V 族材料與元件特性
**Studies of material properties and devices in III-V semiconductors
on Si substrates by spectroscopy**

計畫編號：1042001INER010

受委託機關(構)：中原大學

計畫主持人：沈志霖

聯絡電話：(03)2653249

E-mail address：jlshen@cycu.edu.tw

核研所聯絡人員：林育徵

報告日期：104 年 12 月 15 日

目 錄

目錄.....	I
中文摘要.....	1
英文摘要.....	2
壹、計畫緣起與目的.....	3
貳、研究方法與過程.....	9
一、光激螢光光譜量測系統.....	9
二、時間解析光激螢光光譜量測系統.....	12
參、主要發現與結論.....	14
一、主要發現.....	14
(一)隨溫度變化下砷化鎵在矽基板之光學特性	14
(二)利用石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜之光學特性研究	18
二、結論.....	25
肆、參考文獻.....	26

中文摘要

III-V 族多接面太陽能電池最近受到相當的關注，因為它的轉換效率可達到 40% 以上。為了減少成本，結合高轉換效率的 III-V 族太陽能電池與便宜的矽基板，將是一個理想的組合。然而，大的晶格不匹配與大的熱膨脹系數使得 III-V 族化合物半導體材料長在矽基板具有挑戰性。本計畫將利用非破壞性的光譜來研究砷化鎵薄膜在矽基板的材料特性。更進一步利用雷射消融法合成之石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜表面，我們發現到塗佈後之砷化鎵薄膜光激螢光強度會隨之提升，當石墨烯量子點濃度為 0.84 mg ml^{-1} 時，其提升效率約 2.8 倍。我們更證實砷化鎵薄膜螢光強度提升之主要原因為兩者功函數的差異，使得石墨烯量子點之載子可進行轉移至砷化鎵薄膜。

關鍵字：砷化鎵、石墨烯量子點、光激螢光

Abstract

Recently the III-V multi-junction solar cells have received considerable attention owing to their high efficiency of energy conversion (more than 40 %). To reduce the cost of the III-V multi-junction solar cells it is desirable to integrate the III-V semiconductor materials on the silicon substrate. However, lattice- mismatch and thermal mismatch make the growth of III-V semiconductor on the silicon substrate challenging. This project will study the GaAs epilayers on the silicon substrates by the photoluminescence spectroscopy. Further, a green and one-step synthesis of graphene quantum dots (GQDs) has been implemented by using pulsed laser ablation from the aqueous graphene. The synthesized GQDs are able to enhance the photoluminescence (PL) of GaAs epilayers after depositing them on the GaAs surface. An enhancement of PL intensity with of factor of 2.3 has been reached at the GQD concentration of 0.84 mg/ml. On the basis of the time-resolved PL analysis, the PL enhancement in GaAs is interpreted by the carrier transfer from GQDs to GaAs due to the work function difference between them.

Keyword: Gallium arsenide, graphene quantum dots, photoluminescence

壹、計畫緣起與目的

由於石油日益短缺，在加上人類過度的依賴化石能源以至於排放的二氧化碳造成溫室效應，成為地球溫度持續升高的元兇。近年來由於原油價格持續上漲，使得尋找替代能源或節約能源的方法，已經到刻不容緩的地步。在替代能源方案中，如像風力、水力、地熱、生質柴油及太陽能電池等，都是相當受矚目的綠色能源，當中以太陽能電池因為轉換效率較高且技術發展較為成熟，所以最被看好。太陽是所有生命的根源，人類的生存不能沒有太陽，並且太陽光能源是屬於環保的綠色能源。太陽在一天中所產生的能源是足夠讓目前地球的人口使用長達 27 年之久，所以如何將太陽光能源轉變成為可以使用的能源是很重要的課題。發展太陽能電池主要的目的是可提供穩定可靠的本土能源，它不受石油產業的制約、維護成本低、模組化且可擴展性高。它是目前唯一可滿足全球長期能源需求，而不排放溫室氣體的技術。隨著太陽能電池性能與價格的改進，未來將可普遍應用在手機、筆記型電腦與汽車上。

太陽能電池由半導體 p-n 介面所組成。利用光照射 p-n 介面產生光伏效應(Photovoltaic effect)，因此把太陽光能量轉換成電能即為太陽能電池(solar cell)。太陽能電池的種類繁多，依材料的種類來區分，可分為 IV 族：單晶矽(single crystal silicon)、多晶矽(polycrystal silicon)、非晶矽(amorphous silicon)，III-V 族：砷化鎵(GaAs)、磷化銦(InP)、磷化鎵銦(InGaP)，II-VI 族：碲化鎘(CdTe)，III-VI 族：碲化銦銅(CuInSe₂)、等。這些材料有較高的載子遷移率與載子生命期且能隙吻合一部分太陽能光譜，可適用於光伏能量轉換(photovoltaic energy conversion)。然而，實際上較常用的太陽能電池材料是矽

(Si)，矽在地表上容易取得且價格便宜無毒，但轉換效率頂多只有 20%。近年來以 III-V 族化合物半導體為主，如砷化鎵(GaAs)、磷化銦鎵(InGaP)等、III-V 族太陽能電池轉換效率比矽太陽能電池高很多，是因為 III-V 族太陽能電池多為直接能隙(direct bandgap)，單接面太陽能電池其能量轉換效率最多只能達到 27%。而多接面太陽能電池 InGaP/GaAs/Ge 由不同能隙接面的半導體組成，各接面分別吸收不同波段的太陽光，有效利用太陽光全光譜以提高光電轉換效率，它的轉換效率可達到 40% 以上 [1]。這種太陽能電池壽命長、性能穩定而且的應用很廣泛，可用於人造衛星與太空船的長期電源，也可用於發電來供應儀器設備或民生家電等。逐漸成為現今發展的趨勢。如圖 1 所示，可看出至 2015 年所有種類太陽能電池的光電轉換效率演進圖。然而， III-V 族太陽能電池通常長在砷化鎵或鍺(Ge) 的基板上，因此製造成本較高，不容易普及。近年來，很多學者研究將 III-V 族太陽能電池的材料長在矽(Si)基板上，希望結合高轉換效率的 III-V 族太陽能電池與便宜又大尺寸的矽基板，成為一個具有多項優點的組合 [2-7]。要將 III-V 族太陽能電池長在矽基板上將有以下的困難:(1) III-V 族化合物半導體材料與矽基板有大的晶格不匹配，例如，砷化鎵/矽異質接面有 4.1% 的晶格不匹配；(2) III-V 族化合物半導體材料與矽基板有大的熱膨脹系數的差異，例如，砷化鎵/矽異質接面有 56% 的熱膨脹系數差異 [8-9]。上述兩種異質結構效應將產生高密度的線狀差排，如線狀差排 $> 10^6 \text{ cm}^{-2}$ 會進而大幅度地減低載子生命期和螢光強度。這些特性會嚴重地影響磊晶層的品質，進而影響太陽能電池的轉換效率。最近已有人提出用粗糙矽緩衝層[3]、矽鍺緩衝層[5]、銦砷化鎵中間層在矽(111)基板[10]、

改變基板溫度[11]等各種方法來減少線狀差排與其他缺陷，並改善磊晶層的品質，來提昇 III-V 族太陽能電池長在矽基板上的轉換效率。為了確定磊晶層與太陽能電池的品質，對於磊晶層材料與元件結構做更進一步光學量測與分析是必要的。利用改變溫度量測磊晶層材料的光激螢光光譜，從改變溫度下之光譜變化進而得知螢光峰值隨溫度變化，也可以由光激螢光中尖峰的半高寬來得知矽基板的磊晶層品質。

2004 年 Andre Geim 和 Konstantin Novoselov 利用膠帶以機械剝離法將石墨烯由石墨晶體上分離，並以光學顯微鏡觀察，此發現引發科學界對此材料的興趣且使石墨烯的研究呈現爆炸性的成長，從而也發現了石墨烯許多傑出的性質。如單層的石墨烯具有極高的光學透明度達 97.7 %、高電子遷移率達到 $200,000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 、高的熱傳導性達 $5,000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 、高的表面積 $2,630 \text{ m}^2/\text{g}$ ，以及高的斷裂強度 42 N/m 。與此二維石墨烯相比，零維的石墨烯量子點由於其尺寸在 10 nm 以下，表現出強烈的量子侷限效應與邊界效應，因此在許多領域如太陽能光電元件、生物醫藥、發光二極體與感測器等，有著更加誘人的應用前景。儘管石墨烯量子點的發展還處於起步的階段，合成也只是近兩三年才開始研究，其合成法可分為主要兩類，分別為上至下合成法(Top-down)與由下而上合成法(Bottom-up)，如圖 2 所示[12]。上至下合成法是指透過物理的方法將大尺寸的薄片切割為小尺寸的石墨烯量子點，其方法包含雷射消融法、超音波法與機械剝離碳纖維法等。自下而上合成法則是指以小分子做為前驅物透過一系列的化學合成步驟製備石墨烯量子點，其方法包括溶液化學法、微波法與電化學法。

本計畫將以光激螢光光譜與時間解析光激螢光光譜來了解 III-V 族半導體在矽基板的磊晶層材料，這些量測一方面可以瞭解材料的磊晶品質的好壞，另一方面，此結果分析也將對磊晶成長提供有用的訊息。另一部份，更利用石墨烯量子點塗佈於 III-V 族半導體在矽基板的磊晶層材料表面，並進行光學量測與結果分析，期許石墨烯量子點可以大大改善 III-V 族半導體在矽基板的光學特性。

Best Research-Cell Efficiencies

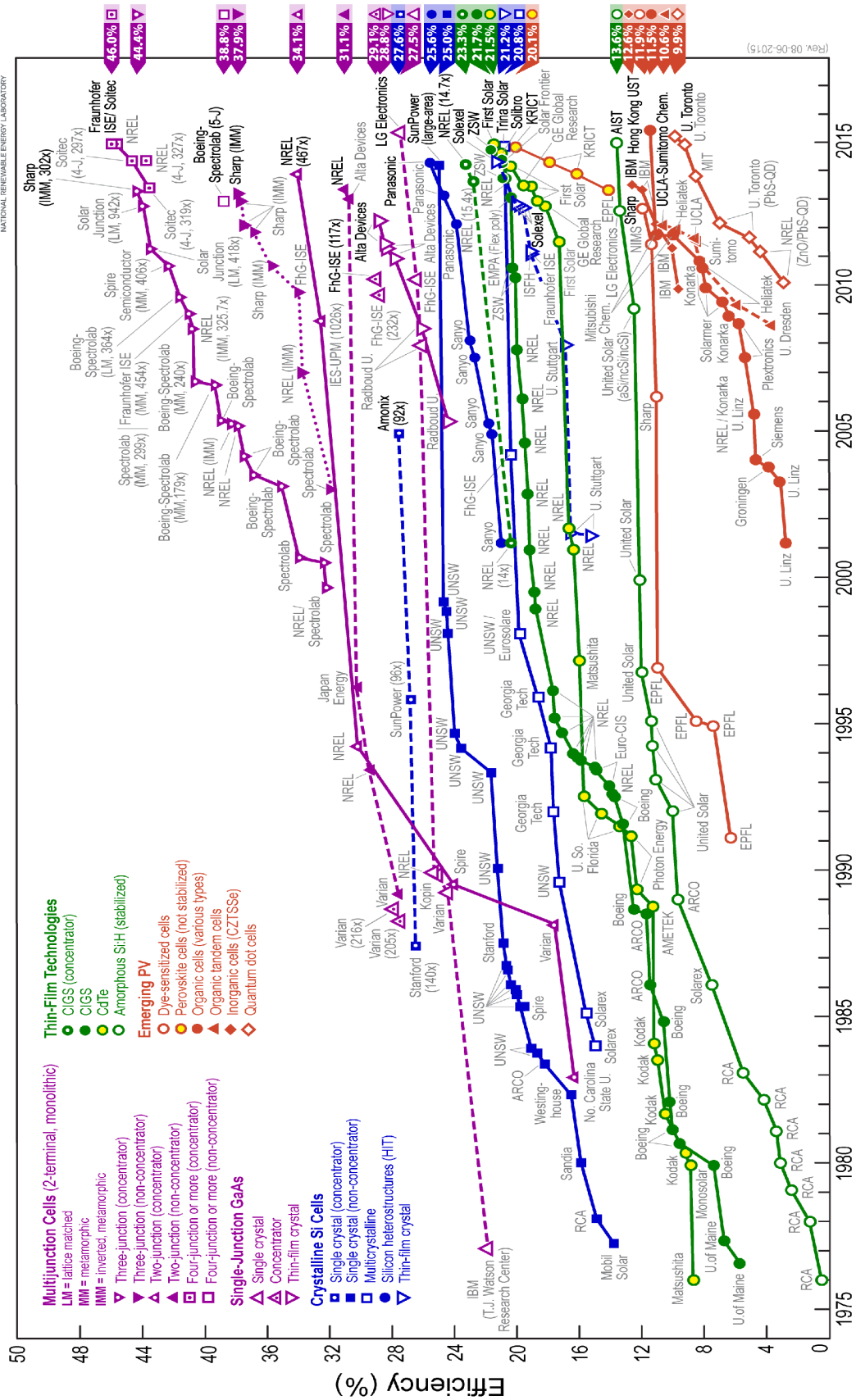


圖 1. 各種材料的太陽電池效率演進圖

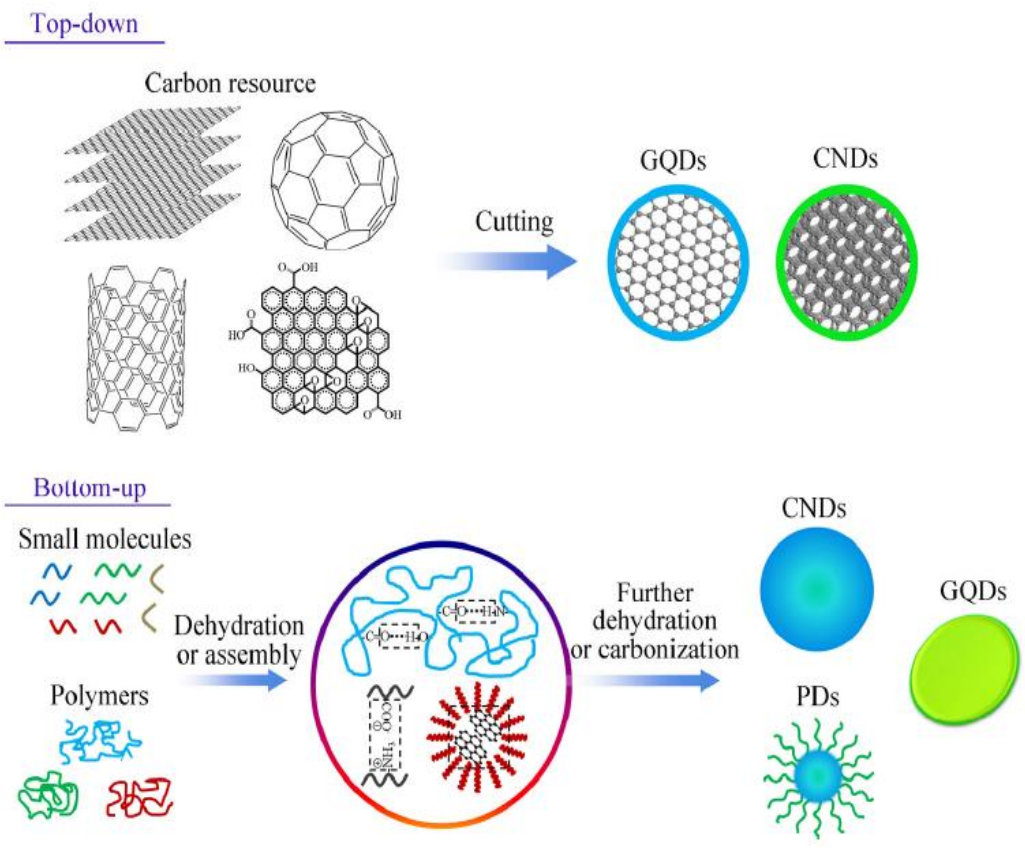


圖 2. 石墨烯量子點合成法示意圖[12]

貳、研究方法與過程

一、光激螢光光譜量測系統

光激螢光對於檢測發光材料為一種非破壞性的技術，藉由分析光激螢光光譜，可從其特徵得知材料能帶結構、載子躍遷等資訊。其原理是以激發光源如單一波長的雷射光照射在材料上，光子能量需大於材料的能隙(band gap)，使樣品價帶上的電子吸收激發光之光子能量，由價帶(valence band)躍遷至導帶(conduction band)，經過鬆弛的過程，電子與電洞在導帶與價帶邊緣形成電子-電洞對(electron-hole pair)，而吸收過多能量的激發電子，以非輻射的內在鬆弛作用，或藉由與原子振動來釋放聲子(phonon)等過程釋放能量至導帶的最低能量邊緣，使其處於最低能量態，最後電子-電洞對再結合釋放出能量放出螢光，此稱為輻射復合(radiative recombination)，如圖 3 所示。更進一步來說，電子-電洞具有幾種可能復合的機制，當電子和電洞被束縛在一起時，可以將想像成是激子。假如這些是自由載子，之後激子可以穿過材料遷移而被稱為自由激子，如果這些載子被庫倫力束縛成缺陷，則這些激子稱為束縛激子，激子是無法幫助導電，但對於激發機制與輻射復合而言可幫助發光，如圖 4 所示。

(一)導帶電子與共價帶電洞再結合躍遷。(圖 4. (a)所示)

(二)形成自由激子。也就是藉由庫倫作用力，電子和電洞束縛在一起。(圖 4. (b)所示)

(三)電子-電洞伴隨著聲子的自由激子再結合躍遷。(圖 4. (c)所示)

(四)施子電子與價帶電洞再結合躍遷。(圖 4. (d)所示)

(五)導帶電子與受子電洞再結合躍遷。(圖 4. (e)所示)

(六)施子的電子與受子的電洞再結合躍遷。(圖 4. (f)所示)

本研究光激螢光光譜實驗利用半導體雷射(波長 532 nm)當入射光源。如圖 5 所示，光束經由透鏡聚焦至樣品上。避開反射光，利用透鏡收集螢光，調至平行光再經由另一透鏡聚焦至光譜儀(Jobin Yvon Triax550)。光經光柵分光後，由偵測器接收，將單色光轉為電流訊號，電流經過 SAQ2 彙整後轉為數位訊號傳送至電腦，再由電腦繪製成光譜圖。將樣品座罩上真空腔蓋，可抽真空至 15 mtorr，並利用氦壓縮機可降溫至 15 K 進行變溫之量測。

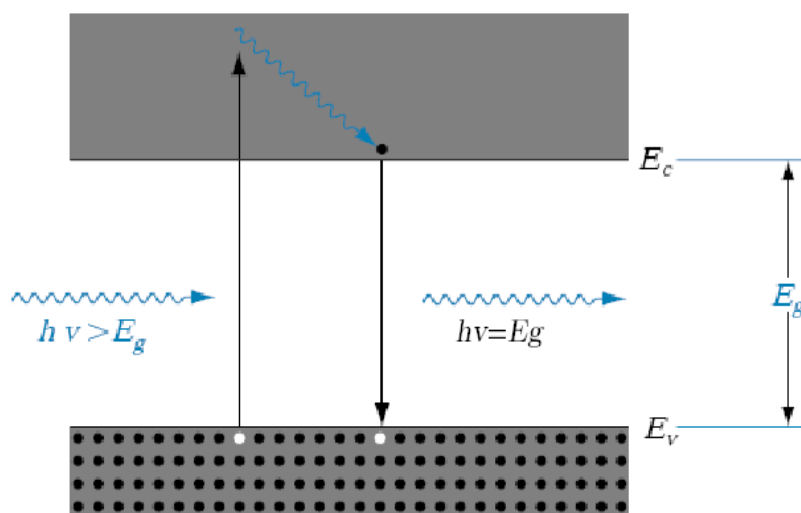


圖 3. 半導體光激螢光原理示意圖

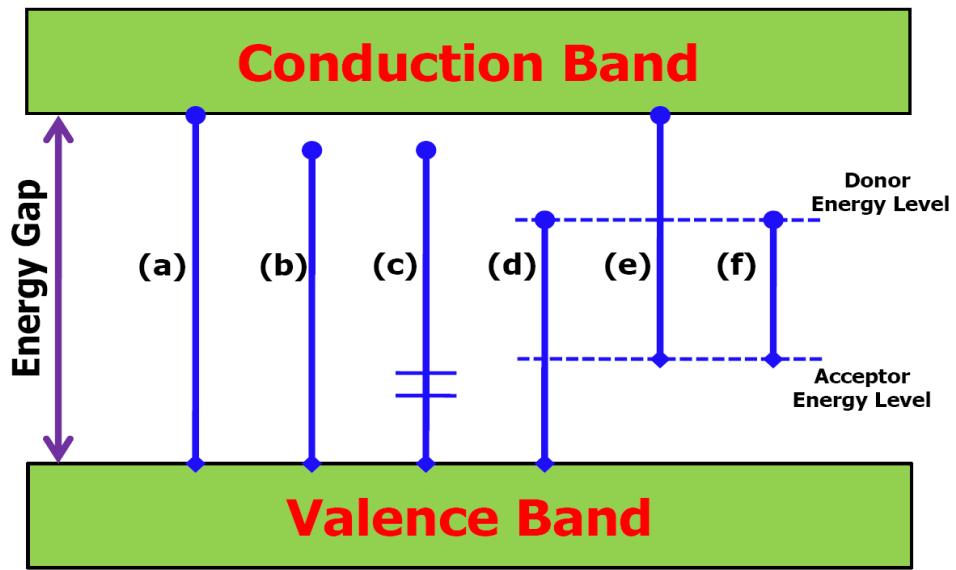


圖 4. 能帶邊緣光激發螢光復合過程

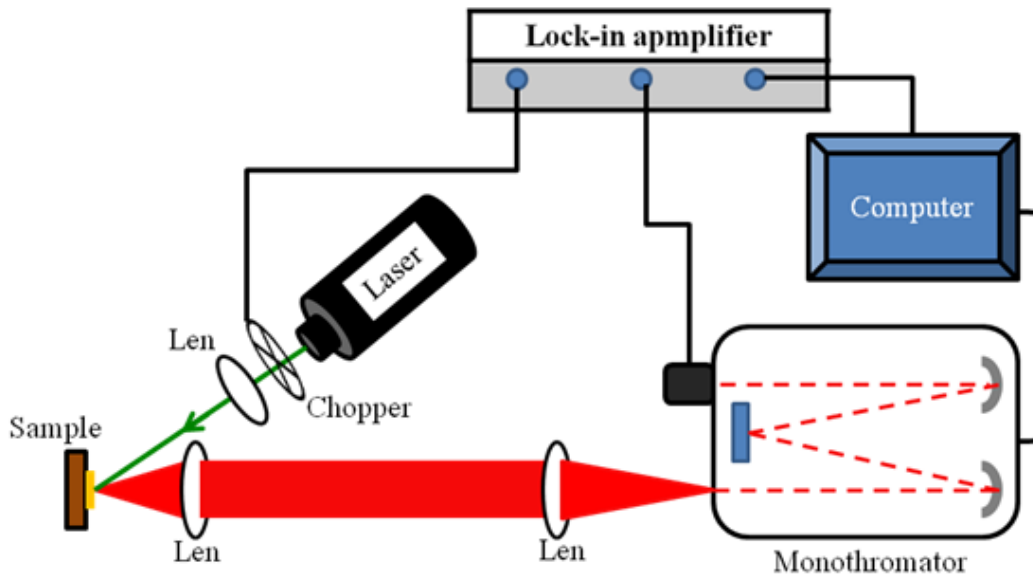


圖 5. 光激發螢光量測系統架設圖

二、時間解析光激螢光光譜量測系統

目前在各式材料的螢光光譜研究已經相當普遍，然而對於研究材料的品質、純度、摻雜程度...等螢光性質，亦要更瞭解材料中的載子在真實空間與K空間的分佈、載子鬆弛與輻射復合程序...等。這些都與螢光載子生命期性質有關，藉由時間解析光激螢光光譜量測，來了解載子生命期，進而辨別螢光的不同物理機制來源。特別是對於瞭解發光材料或元件在背光激發之後所經歷的激發狀態與衰變過程，甚至可得到分子層面的資訊。而量測螢光載子生命期的方法雖然很多，卻都需要使用脈衝式雷射(Pulse Laser)來激發樣品，所以基本上對時間的解析度是受限於雷射脈衝波的寬度。本研究所使用的是時間相關之單光子記數系統(Time-correlated single photon counting system)，如圖6所示。基本原理是利用脈衝雷射光，激發樣品產生螢光，記錄選定的特定光子能量作為光譜偵測位置，將每單顆光子在激發螢光出現時間與從雷射光產生激發脈衝之間的時間間距偵測出來，經過多次累積計數後，測得螢光光子出現的機率分布 $P(t)$ ，此 $P(t)$ 曲線就相當於激發停止後螢光強度隨時間衰的 $I(t)$ 曲線。為了使每次脈衝激發的是一個光子或是沒有光子，需要時可衰減激發雷射光源，使樣品強度達到單一脈衝對應單一光子的條件，因為若同時激發多於一個光子時，會使測得的衰減時間變短而產生誤差。事實上，若達到單光子條件時，許多脈衝是沒有伴隨任何光子被激發的。

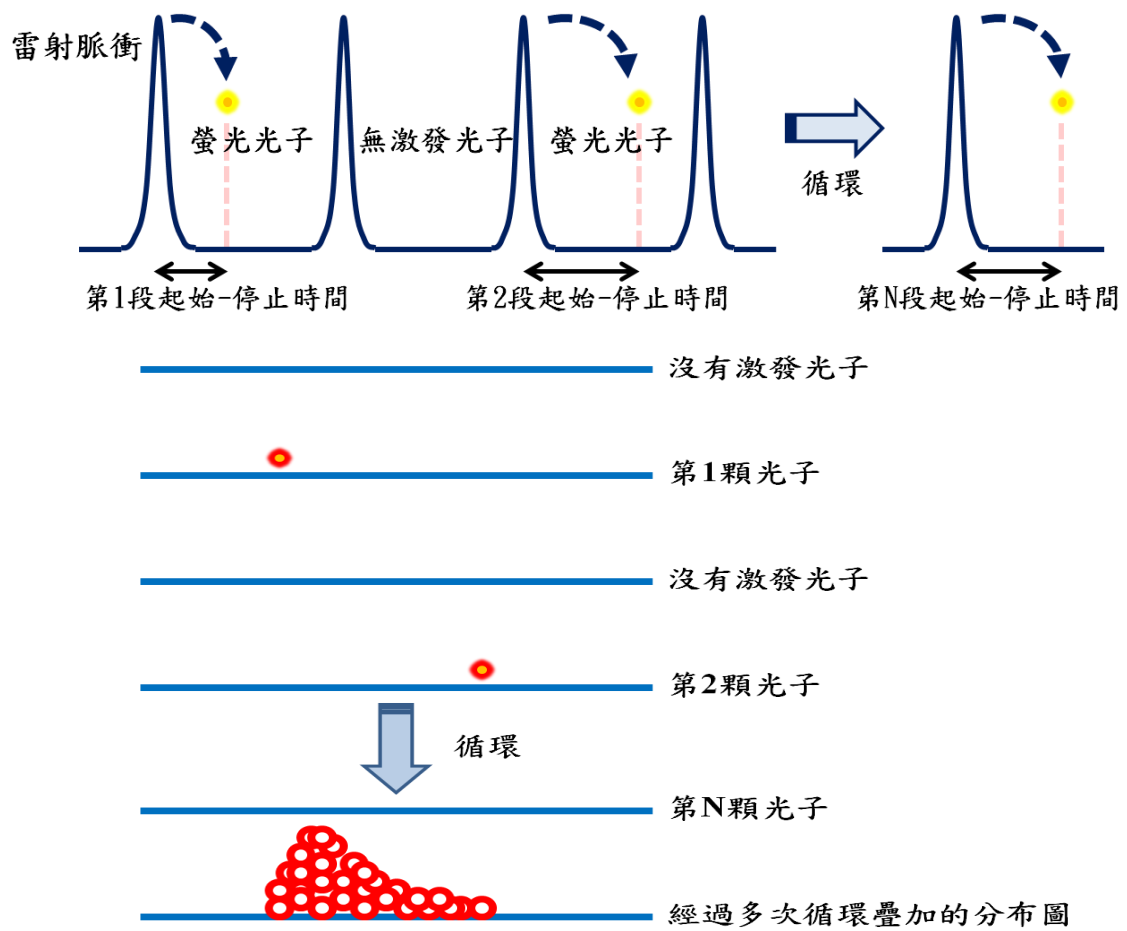


圖 6. 時間相關單光子計數系統示意圖

參、主要發現與結論

一、主要發現

本研究主要分成兩大部份來探討。第一部份利用光激螢光光譜來分析 III-V 族半導體在矽基板的磊晶層材料之光學特性。第二部份則利用石墨烯量子點塗佈於 III-V 族半導體在矽基板表面上的螢光提升機制探討。

(一)隨溫度變化下砷化鎵在矽基板之光學特性：

我們選了三種不同厚度之砷化鎵薄膜來進行室溫下光激螢光光譜量測，其厚度分別為 $2\ \mu\text{m}$ (#246)、 $4\ \mu\text{m}$ (#244)與 $6\ \mu\text{m}$ (#245)，如圖 7 所示。激發雷射波長為 $532\ \text{nm}$ ，在室溫 $300\ \text{K}$ 下其光譜圖之結果如圖 8 所示。我們可以清楚看到三種厚度之砷化鎵薄膜其螢光峰值約在 $878\ \text{nm}$ ，並不隨著磊晶厚度增加或減少而產生位移現象，此外成長厚度為 $4\ \mu\text{m}$ 之砷化鎵薄膜其光學特性表現最佳。更進一步將此三塊樣品降至低溫 $15\ \text{K}$ 下量測樣品峰值之時間解析螢光光譜，其結果如圖 9 所示。我們利用兩段衰減指數來擬合實驗數據，公式如下所示：

$$I(t) = A_l e^{-\frac{t}{\tau_l}} + A_s e^{-\frac{t}{\tau_s}}$$

其中 A_l 與 A_s 為長時間與短時間之常數， τ_l 與 τ_s 為長與短載子生命期，擬合結果為圖 9 之紅色實線。三塊樣品之擬和參數整理於下列表格 1 中。我們由表格中擬合之結果可知，三塊樣品長載子生命期並不隨磊晶厚度改變而變化，而短載子生命期中為螢光強度最佳之樣品，具有較長之載子復合時間。

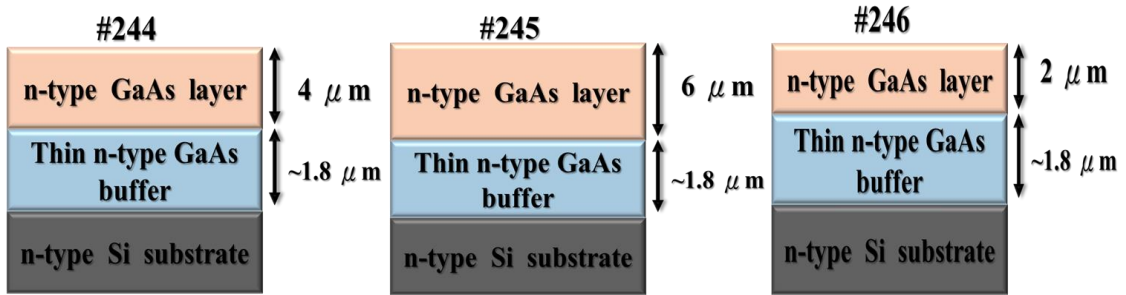


圖 7. 不同厚度之砷化鎵薄膜樣品圖

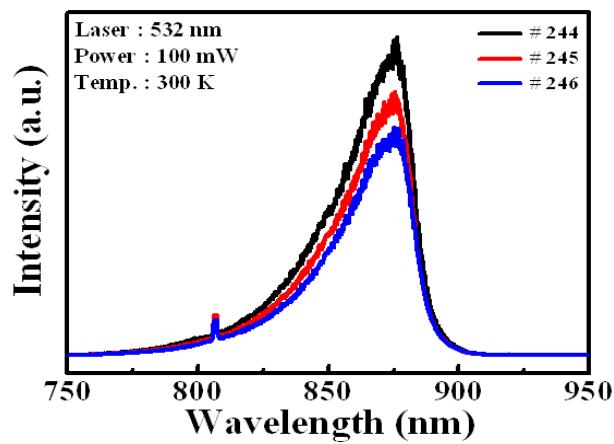


圖 8. 不同厚度之砷化鎵薄膜室溫下光激螢光光譜圖

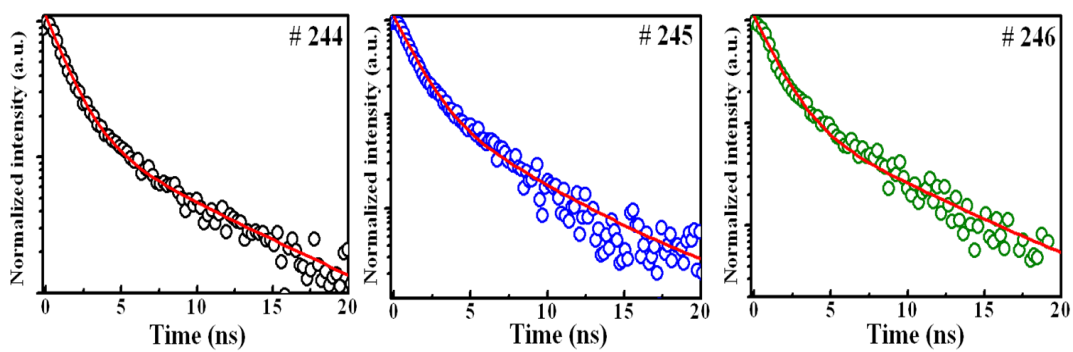


圖 9. 不同厚度之砷化鎵薄膜低溫下時間解析光激螢光光譜圖(紅色線為理論擬合)

	# 244	# 245	# 246
τ_l	1.35 ns	1.31 ns	1.28 ns
τ_s	7.87 ns	4.66 ns	5.95 ns

表格 1. 不同厚度之砷化鎵薄膜時間解析螢光光譜擬合結果

接著我們選擇厚度為4 μm (#244)之砷化鎵薄膜來進行溫度變化光激螢光光譜量測。其結果如圖10所示，從15 K 至300 K之光激螢光光譜，我們首先發現樣品的螢光強度一路從15 K衰減至300 K，然而從光譜中發現到樣品在低溫下(15 K)之螢光峰值約在832 nm，紅位移到室溫下(300 K)之螢光峰值約在858 nm。更進一步，我們將變溫度之砷化鎵薄膜光激螢光光譜曲線以一個高斯波包進行擬合。經由高斯波包擬合可以得到兩個隨溫度變化的參數，分別為峰值位置(圖11所示)與螢光強度(圖12所示)。隨著溫度的增加，螢光能量強度有著特殊行為的表現，因此我們代入活化能來探討螢光能量強度的行為。活化能為電子躍遷(克服障壁)所需能量，可以利用光激螢光光譜隨各溫度時螢光強度變化進行擬合所得，因此我們針對實驗數據所擬合得螢光能量強度，以下列公式進行擬合，其中 $I_{PL}(T)$ 為溫度 T 時的螢光能量強度， $I(0)$ 為0 K 時的螢光強度， A 為比例常數， Ea 為活化能， K 為波茲曼常數。

$$I_{PL}(T) = \frac{I(0)}{1 + Ae^{(-Ea/KT)}}$$

擬合結果為圖12紅線所示，在圖12為螢光能量強度之活化能擬合，
結果 $E_a = 82.4 \text{ meV}$ 。

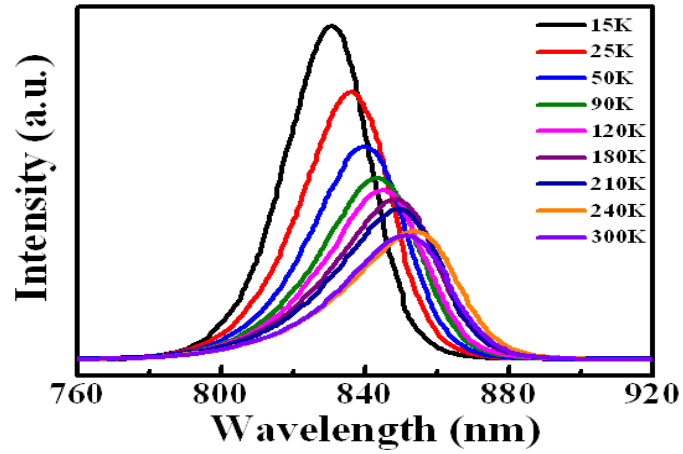


圖 10. 砷化鎵薄膜隨溫度變化之光激螢光光譜圖

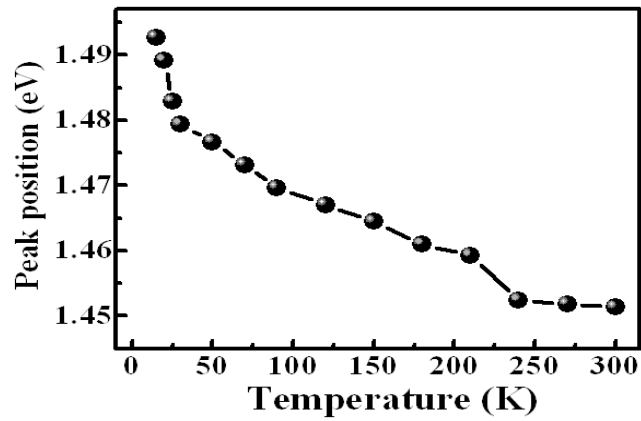


圖 11. 砷化鎵薄膜隨溫度變化之螢光峰值位置趨勢圖

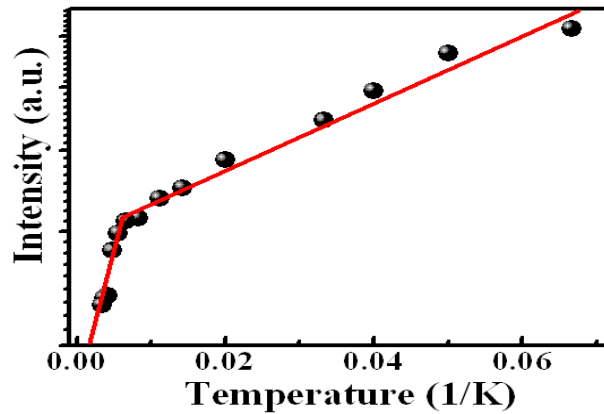


圖 12. 砷化鎵薄膜螢光能量強度隨溫度變化之關係圖

(二)利用石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜之光學特性研究：

本研究所使用之石墨烯量子點是藉由雷射消融所製備而成，其實驗架設如圖13所示。主要是使用光學參數震盪雷射(Optical parametric oscillator Laser)為製程氧化石墨烯量子點之改質光源，其選定波長為415 nm，脈衝頻率為10 Hz 雷射強度為48 mJ (2.58 J/cm^{-2})。取1.5 mg之石墨烯粉末與600 μl 去離子水混合攪拌均勻後，置於容量為2 ml透明玻璃瓶裡。如實驗架構圖上我們將調配好之石墨烯水溶液固定於設定旋轉參數80 rpm之旋轉平台上，主要是為了避免雷射過度聚焦於樣品瓶上以免毀損瓶身，且可藉由旋轉讓雷射可均勻照射石墨烯水溶液，達到較好的改質效果。再來我們選定透鏡為23.5公分將雷射光聚焦於瓶身中央，設定調控照射時間為5分鐘後，再將液體抽出置換於離心管內進行離心1小時，最後使用孔徑大小為0.22 μm 之分子篩過濾樣品後，即可得到本研究中所使用之石墨烯量子點。

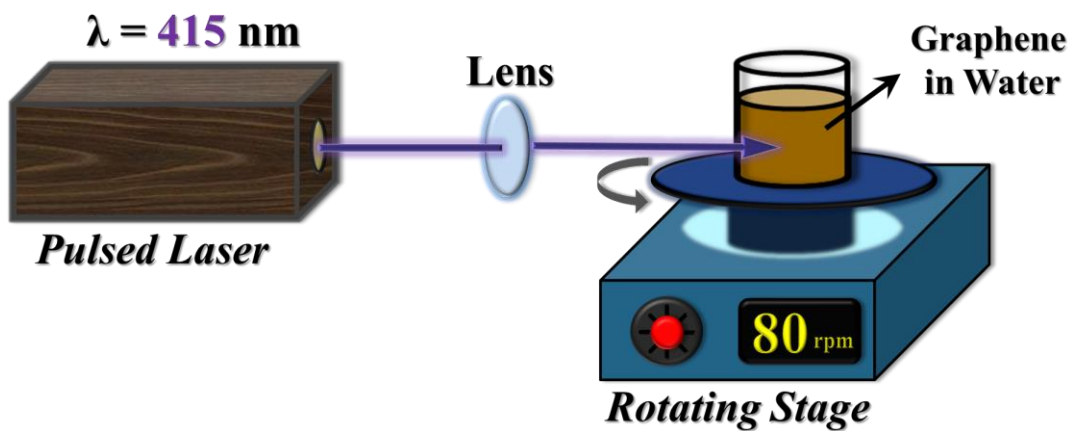


圖 13. 雷射消融法製備石墨烯量子點儀器架設示意圖

經雷射消融法改質 5 分鐘後，為確定是否有形成石墨烯量子點，我們即利用穿透式電子顯微鏡進行觀測，其結果如圖 14 所示。由圖 14 中可以清楚看出石墨烯量子點其粒徑分佈約在 7-12 nm 左右，平均粒徑約 8 nm。更進一步使用高解析穿透式電子顯微鏡來分析，其結果如圖 15 所示，我們可以知道其晶格結構的晶面間距為 0.212 nm，由文獻上得知，此晶面間距為石墨烯(102)的晶格面[13]。接著我們也利用 X 光光電子能譜儀來做鑑定，其結果如圖 16 所示。我們選定 C1s 軌域對石墨烯量子點進行量測，其電子束縛能約在 284 eV，接著我們對實驗數據進行分峰擬合如圖 16 綠線所示，所得三個子峰其電子束縛能分別為 284.4 eV (C=C)、286.3 eV (C-O)與 287.7 eV (C=O)，相對於結構上來說，分別為石墨烯 sp² 軌域之苯環芳香族、環氧基群與碳醯基群之電子束縛能，與文獻上石墨烯量子點來比較是非常相相似的[14]。再來我們使用拉曼光譜對石墨烯量子點做分析，其結果如圖 17 所示。由拉曼光譜我們可以清楚看見兩個散射峰值，分別約為 1351 cm⁻¹ (D band)與 1589 cm⁻¹ (G band)，主要是因為石墨烯量子點表面邊緣缺陷與 E_{2g} 光學聲子在布里淵中心區振盪所造成[13]。最後我們利用光激螢光光譜來觀測石墨烯量子點，其結果如圖 18 所示。由光激螢光光譜我們可以清楚看見石墨烯量子點具有寬廣的發光範圍，其螢光峰值約在 485 nm，與文獻上也十分符合[15,16]。

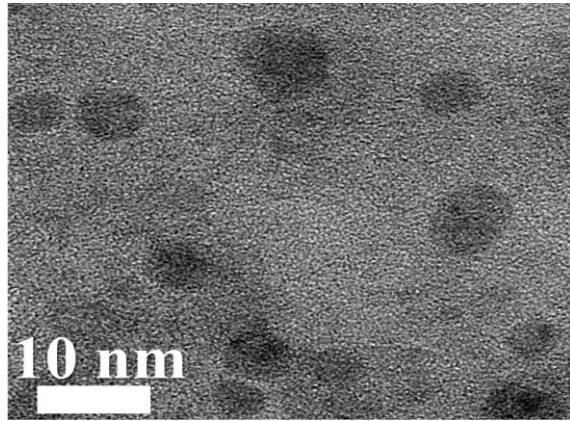


圖 14. 石墨烯量子點之穿透式電子顯微鏡影像

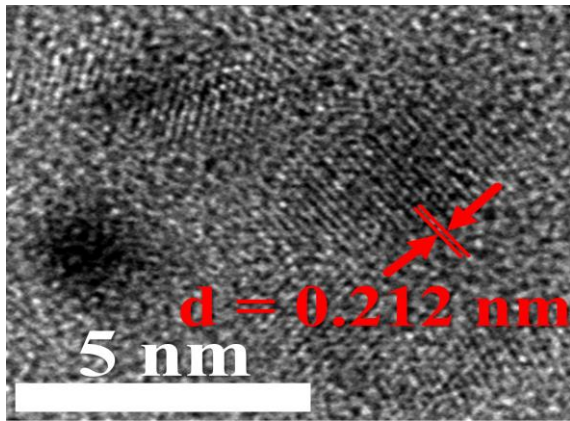


圖 15. 石墨烯量子點之高解析穿透式電子顯微鏡影像

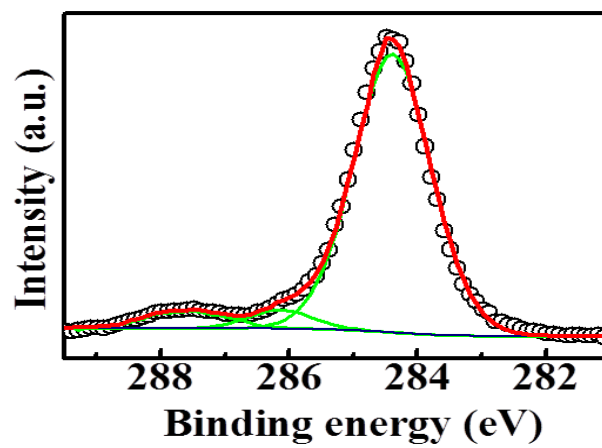


圖 16. 石墨烯量子點之 X 光光電子能譜儀結果

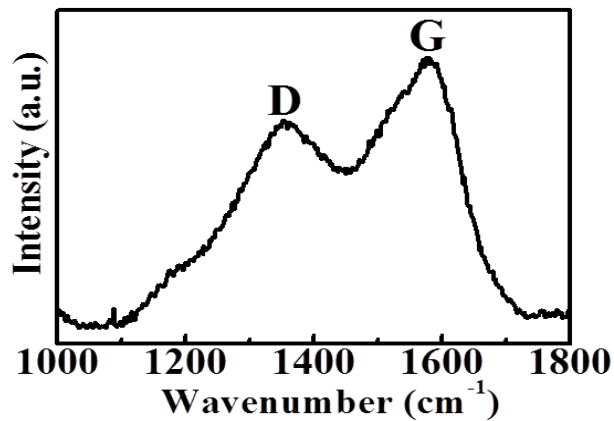


圖 17. 石墨烯量子點之拉曼光譜結果

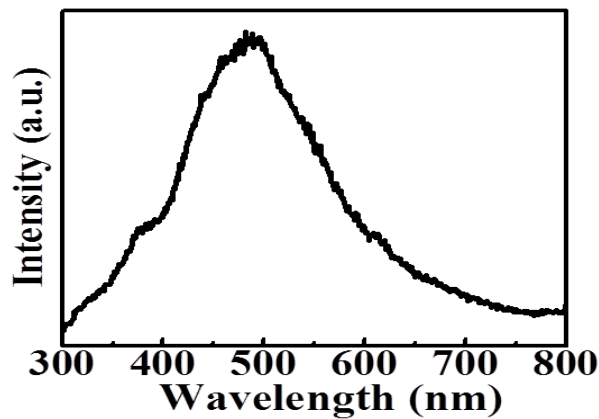


圖 18. 石墨烯量子點之光激螢光光譜結果

接著我們選擇厚度為 $4\ \mu\text{m}$ (#244) 之砷化鎵薄膜，利用石墨烯量子點塗佈於表面後做光學特性分析探討。如圖 19 所示，黑色圈圈為原始未塗佈石墨烯量子點於表面時的光激螢光表現，紅色正方形於藍色三角形分別塗佈石墨烯量子點濃度為 0.28 與 $0.84\ \text{mg ml}^{-1}$ 的螢光光譜表現，我們可以發現當提高塗佈石墨烯量子點濃度時，砷化鎵薄膜的螢光強度也隨之提升。如圖 20 所示，我們依序增加塗佈石墨烯量子點濃度，並量測砷化鎵薄膜的螢光強度變化，進一步定義 I_0 為原始砷化鎵薄膜螢光強度值， ΔI 為塗佈石墨烯量子點前後砷化

鎘薄膜螢光強度之差值，我們可以發現到當塗佈濃度為 0.84 mg ml^{-1} 時，砷化鎘薄膜的螢光表現提升了 2.8 倍。

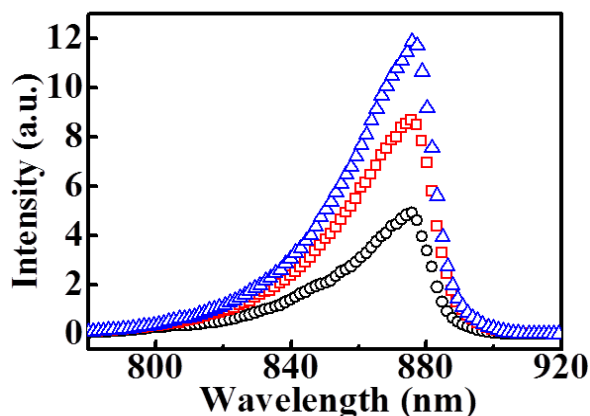


圖 19. 塗佈石墨烯量子點前後之砷化鎘薄膜光激螢光光譜圖

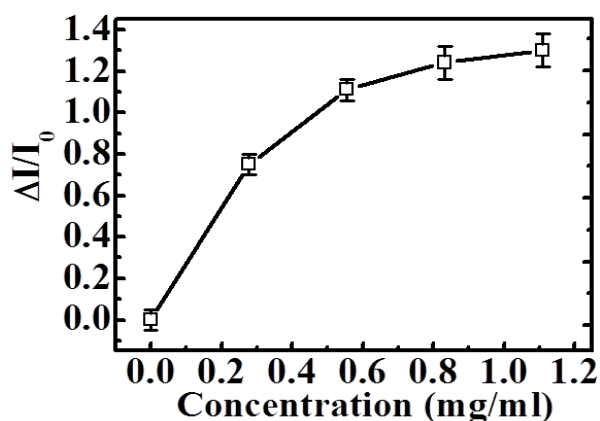


圖 20. 砷化鎘薄膜螢光提升與塗佈石墨烯量子點濃度關係圖

為了找出塗佈石墨烯量子點後砷化鎘薄膜螢光強度為何提升之原因，我們利用時間解析螢光光譜來驗證。首先，我們先量測單純石墨烯量子點塗佈於玻璃片上之載子生命期，再量測塗佈於砷化鎘薄膜上之石墨烯量子點的載子生命期，如圖 21 所示。我們可以清楚看到，黑色圈圈為玻璃片上石墨烯量子點的時間解析螢光光譜，藍

色正方形與綠色三角形分別為塗佈於砷化鎵薄膜表面上之不同濃度石墨烯量子點的載子生命期，發現到隨著塗佈濃度的增加，石墨烯量子點載子生命期也隨之減短。更進一步，我們利用延展型指數衰減函數如下列所示：

$$n(t) = n(0)e^{-(kt)^\beta}$$

來擬合實驗之結果，其中 $n(t)$ 為單位時間內載子密度， k 為載子復合速率， β 為發散常數，擬合結果如圖 21 紅線所示。其擬合參數如下表格 2 所列。由此結果，我們可以知道砷化鎵薄膜螢光強度提升的原因，可能來自於石墨烯量子點大量載子轉移所造成，因為石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜表面上，使得石墨烯量子點載子可以簡單的轉移至砷化鎵薄膜，讓砷化鎵薄膜的螢光強度隨著塗佈的濃度增加而增強。

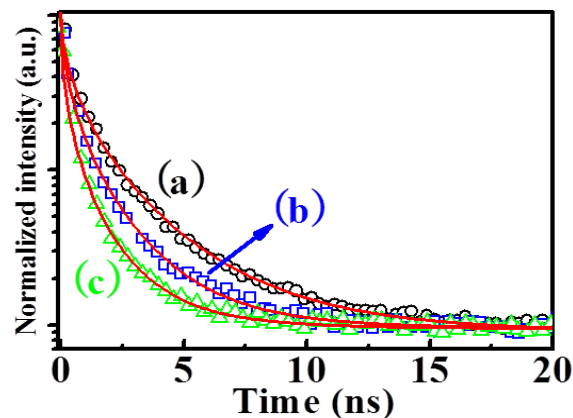


圖 21. 石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜前後之時間解析螢光光譜

Concentration (mg/ml)	β	k (ns ⁻¹)	$\langle \tau \rangle$ (ns)
0	0.52	2.22	0.81
0.28	0.52	3.57	0.52
0.56	0.51	4.76	0.41
0.84	0.48	7.14	0.32
1.12	0.46	7.69	0.31

表格 2. 不同濃度的石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜之擬合參數

為了更證明我們所提出石墨烯量子點載子轉移，使得砷化鎵薄膜螢光強度提升的機制，我們必需瞭解到砷化鎵薄膜與石墨烯量子點兩者間能階匹配程度，是否載子能夠從石墨烯量子點轉移至砷化鎵薄膜。我們利用凱文探針量測儀，針對本研究中兩塊樣品進行其功函數的量測，量測結果砷化鎵薄膜為 4.46 eV 而石墨烯量子點則為 4.82 eV，此量測結果皆與文獻上非常相似[17,18]。因此我們提出載子轉移機制如圖 22 所示，石墨烯量子點之載子可以轉移至砷化鎵薄膜，進而讓砷化鎵薄膜螢光強度大大提升。

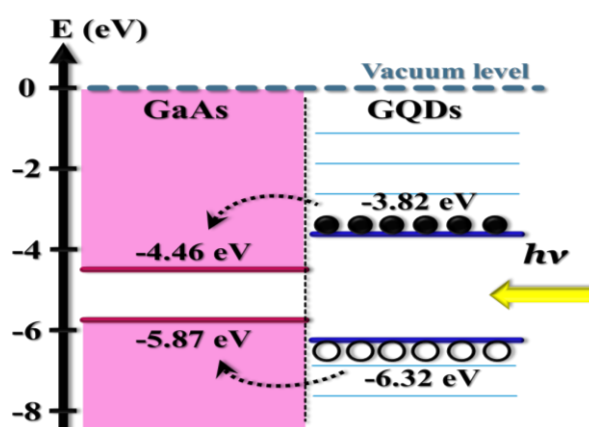


圖 22. 載子轉移機制圖

二、結論

本年度計畫主要是利用光激螢光光譜來研究砷化鎵薄膜在矽基板上的光學特性。知道改變不同厚度之砷化鎵薄膜其光學特性不會有太大之差異。當選擇 $4\ \mu\text{m}$ (#244) 之砷化鎵薄膜來進行溫度變化光激螢光光譜量測時，可得到此樣品的活化能約為 $82.4\ \text{meV}$ 。另一部份，我們利用雷射削融法合成之石墨烯量子點塗佈於砷化鎵薄膜表面，我們發現到塗佈後之砷化鎵薄膜光激螢光強度會隨之提升，當石墨烯量子點濃度為 $0.84\ \text{mg ml}^{-1}$ 時，其提升效率約 2.8 倍。我們利用凱文探針量測儀之量測結果，更證實砷化鎵薄膜螢光強度提升之主要原因為兩者功函數的差異，使得石墨烯量子點之載子可進行轉移至砷化鎵薄膜。

肆、參考文獻

- [1] S. Kurtz and J. Geisz *Opt. Express* **18** (2010) A73.
- [2] Martínez, H. Angulo, M. Avella, M. A. González, L. F. Sanz, J. Jiménez, B. Gérard, and E. Gil-Lafon *Superlatt. and Microstru.* **45** (2009) 214.
- [3] B. Azeza, M. Ezzedini, Z. Zaaboub, R. M'ghaieth, L. Sfaxi, F. Hassen, and H. Maaref *Curr. Appl. Phys.* **12** (2012) 1256.
- [4] J. P. Connolly, D. Mencaraglia, C. Renard, and D. Bouchier *Prog. Photovolt. Res. Appl.* **22** (2014) 810.
- [5] J. Faucher, A. Gerger, S. Tomasulo, C. Ebert, A. Lochtefeld, A. Barnett, and M. L. Lee *Appl. Phys. Lett.* **103** (2013) 191901.
- [6] E. García-Tabarés and I. Rey-Stolle, *Sol. Energ. Sol. Cells* **124** (2014) 17.
- [7] N. Jain and M. K. Hudait *IEEE J. Photov.* **4** (2014) 1683.
- [8] P. Demeester, A. Ackaert, G. Coudenys, I. Moerman, L. Buydens, I. Pollentier, and P. Van Daele *Prog. Crys. Grow. Character. Mater.* **22** (1991) 53.
- [9] T. W. Kang, Y. T. Oh, J. Y. Leem, and T. W. Kim *J. Mater. Sci. Lett.* **11** (1992) 392.
- [10] L. Wen, F. Gao, X. Zhang, S. Zhang, J. Li, Y. Guan, W. Wang, S.

- Zhou, Z. Lin and G. Li *J. Appl. Phys.* **116** (2014) 193508.
- [11]H. Usui, H. Yasuda, and H. Mori *Physica E*, **40** (2008) 836.
- [12]S. Zhu, Y. Song, X. Zhao, J. Shao, J. Zhang, and B. Yang *Nano Res.* **8** (2015) 355.
- [13]T. N. Lin, K. H. Chih, C. T. Yuan, C. C. Yang, J. L. Shen, C. A. J. Lin, and W. R. Liu *Nanoscale*, **7** (2015) 2708.
- [14]K. P. Loh, Q. Bao, G. Eda, and M. Chhowalla *Nat. Chem.* **2** (2010) 1015.
- [15]W. Chen, F. Li, C. Wu, and T. Guo *Appl. Phys. Lett.* **104** (2014) 063109.
- [16]S. Zhu, J. Zhang, S. Tang, C. Qiao, L. Wang, H. Wang, X. Liu, B. Li, Y. Li, W. Yu, X. Wang, H. Sun, and B. Yang *Adv. Fun. Mater.* **22** (2012) 4732.
- [17]S. Tongay, M. Lemaitre, X. Miao, B. Gila, B. R. Appleton, and A. F. Hebard *Phys. Rev. X*, **2** (2012) 011002.
- [18]V. Gupta, N. Chaudhary, R. Srivastava, G. D. Sharma, R. Bhardwaj, and S. Chand *J. Am. Chem. Soc.* **133** (2011) 99603.