

# 國立交通大學

電子工程學系電子研究所碩士班

## 碩士論文

在砷化鎵基板上成長應變之銻砷化鎵與其對表面砷化銾奈米結構的影響之研究

Growth of strained GaAsSb on GaAs and its influence on the surface InAs nanostructure

研究生：林岳民

指導教授：李建平博士

中華民國九十七年六月

在砷化鎵基板上成長應變之銻砷化鎵與其對表面砷化  
銾奈米結構的影響之研究

Growth of strained GaAsSb on GaAs and its influence on  
the surface InAs nanostructure

研 究 生： 林岳民

Student : Yue-Min Lin

指 導 教 授： 李建平 博士

Advisor : Dr. Chien-Ping Lee



A Thesis

Submitted to Department of Electronics Engineering & Institute of Electronics

College of Electrical and Computer Engineering

National Chiao Tung University

in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master

in

Electronics Engineering

June 2008

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十七年六月

# 在砷化鎵基板上成長應變之銻砷化鎵與其對表面砷化 銻奈米結構的影響之研究

學生：林岳民

指導教授：李建平 博士

國立交通大學

電子工程學系 電子研究所碩士班

## 摘要

本實驗是將 3 ML InAs 奈米結構成長在緩衝層 GaAsSb / GaAs 上，主要研究緩衝層 GaAsSb 隨著厚度的變化，其應變與組成成分的變化，並觀察其上的 InAs 奈米結構的表面型態。

因此，首先，由倒空間圖譜 (RSM) 的分析，使我們知道隨著緩衝層 GaAsSb 厚度的增加，其鬆弛程度與銻的峰值含量也隨之增加。再者，由拉塞福回向散射 (RBS) 分析，使我們發現緩衝層 GaAsSb 的銻含量是呈現出漸增式 (grading) 的分佈。甚至，由離子溝道效應 (Ion Channeling Effect) 分析，讓我們了解到在樣品中不同位置的元素，如表面的銻與深層的銻，其所受的應力也不同，如深層的銻大於表面的銻。最後，由原子力顯微鏡 (AFM) 分析，讓我們觀察到樣品表面的 InAs 奈米結構的分佈型態：(1) 隨機分佈，(2) 在田埂狀 (cross-hatching) 的表面上選擇性的成長，(3) 奈米結構漸漸地消失，最後僅剩田埂狀的表面型態。

# Growth of strained GaAsSb on GaAs and its influence on the surface InAs nanostructure

Student : Yue-Min Lin

advisor : Dr. Chien-Ping Lee

Department of Electronics Engineering & Institute of Electronics  
National Chiao Tung University

## Abstract

In this experiment, 3 monolayers of InAs is grown on top of a GaAsSb buffer layer on the GaAs substrate. We investigate the changes of strain and composition of the GaAsSb buffer layers with various thicknesses. The surface morphology of the InAs nanostructure is also studied.

Reciprocal space mapping (RSM) shows that the relaxation degree and the peak Sb composition of the GaAsSb layer increase with increasing the GaAsSb thickness. Rutherford backscattering spectrometry (RBS) further reveals the grading profile of the Sb content in the GaAsSb layer. Ion channeling effect provides the information that the elements located at different vertical positions in the GaAsSb layer are subject to different stresses, for example, the stress for the Sb deep in the bulk being stronger than near the surface. Atomic force microscopy (AFM) is used to examine the surface morphology of the 3-monolayer InAs. It's found that the evolution of surface morphology with increasing the GaAsSb thickness can be classified into 3 stages: random distribution of InAs quantum dots, space-selective growth of InAs quantum dots on cross-hatching surface, and purely cross-hatching surface.

## 致謝

兩年的碩士生涯終於要畫上了句點，心中最感謝的是我的指導教授—李建平 博士，謝謝老師讓我進入這個充滿活力、熱情與溫暖的實驗室，也謝謝老師平時的身教與言教，讓我感染到老師對研究的執著、嚴謹與熱情，使我具有良好的研究態度。

第二要感謝的是國立彰化師範大學電子所—吳正信 博士。吳正信老師具有靈敏的思維與豐富的實作經驗，與他合作期間，除了要感謝他在我對研究最無助的時候，適時給予我實質上的幫助之外，更讓我從與他相處的過程中，體認到做一個年輕的學者應該要有的態度與熱忱。此外，還要感謝林聖迪老師與林國瑞老師，他們除了對我在研究上的指導之外，也很樂意對我在生活與課業上的輔導，讓我更能夠快速地銜接碩士班的軌道。

再來要感謝王興燁學長、羅明城學長、凌鴻緒學長、林大鈞學長與鄭旭傑學長。尤其感謝羅明城學長與凌鴻緒學長，身為學長的他們除了以身作則之外，絲毫不吝嗇地且不厭其煩地教導我們 MBE 的維護與磊晶的技術，讓我可以更快地應用於我的實驗上，對我在研究的路上真是莫大的幫助，在這裡衷心的謝謝你們並祝福你們早日獲取學位。當然，也要感謝清華大學加速器實驗室的牛震 博士與陳建旭學長，在我研究的中後時期，除了提供精良的加速器設備之外，還從旁地協助我走入加速器的世界裡，讓我看到另一個領域的美，在此由衷的感謝你們。另外，感謝建宏、聖凱、柏智、朝陽、健中、英哲、晟宇、順祥、文長學長與耕宜學姐，很榮幸跟你們一起做研究，也從你們身上學到很多，雖然碩士班短短的兩年，但朋友是一輩子的，祝福你們擁有自己的一片天空。對於學弟妹群：威良、品維、俊豪、依珊、

宜靜、家豪、仕偉、韋智、皓玲、俊仁與曉微，我們實驗室有相當好的設備與學識淵博的教授與學長，相信你們一定能有相當好的成績，明年就該你們上場了，要趕快加油喔!!

最後要感謝我的父母：沒有你們無私的奉獻與栽培就沒有今日的我。擁有一個認真負責樂觀的處事態度，是你們留給我最大的資產，將來我會更加的努力，讓你們以我為榮。



# 目錄

第一章	序論	1
第二章	磊晶成長	2
第三章	X 光繞射倒空間圖譜	5
3.1	高解析度 X 光繞射儀	5
3.2	基本原理	6
3.2.1	布拉格繞射	6
3.2.2	倒晶格	7
3.2.3	愛華德球面	9
3.3	倒空間圖譜	9
第四章	拉塞福回向散射	14
4.1	量測系統	14
4.2	基本原理與機制	15
4.2.1	運動因子	15
4.2.2	散射截面	16
4.2.3	阻擋本領	16
4.3	溝道效應	18
4.3.1	量測系統	18
4.3.2	連續模型	20
4.3.3	橫向能量	21
4.3.4	臨界角	22
4.3.5	最小產額	23
4.3.6	Dip 曲線	23
第五章	實驗結果與討論	32
5.1	銻砷化鎵之應變與組成成分	32
5.1.1	倒空間圖譜 (RSM) 分析	32
5.1.2	拉賽福回向散射能譜 (RBS) 分析	35
5.1.3	離子溝道效應 (Ion Channeling Effect) 分析	36
5.2	砷化銦奈米結構之表面型態	38
第六章	結論	39
	參考文獻 (Reference)	53

## 圖目錄

圖 2-1	薄膜磊晶成長模式 (a) 層接式；(b) 島嶼式；(c) 層接而後島嶼式-----	3
圖 2-2	分子束磊晶系統 (MBE)-----	3
圖 2-3	樣品結構圖-----	4
圖 3-1-1	高解析度 X 光繞射儀-----	10
圖 3-2-1	實空間產生 X 光繞射條件-----	10
圖 3-2-2	倒晶格與原晶格之關係-----	11
圖 3-2-3	愛華德球面與倒晶格點-----	11
圖 3-3-1	倒空間圖譜-----	12
圖 3-3-2	倒空間圖譜之有效量測面積-----	12
圖 3-3-3	鬆弛層-----	13
圖 3-3-4	應變層-----	13
圖 4-1-1	拉賽福回向散射基本裝置圖-----	25
圖 4-2-1	彈性碰撞示意圖-----	25
圖 4-2-2	散射截面示意圖-----	26
圖 4-2-3	阻擋本領：入射粒子經過 $\Delta x$ 的距離，能量減少 $\Delta E$ -----	26
圖 4-3-1	9SDH-2 加速器系統-----	27
圖 4-3-2	SNICS 示意圖-----	27
圖 4-3-3	正高壓產生系統-----	28
圖 4-3-4	溝道效應基本裝置圖-----	28
圖 4-3-5	連續位能與原子位能-----	29
圖 4-3-6	離子在連續位能作用下的行為-----	29
圖 4-3-7	入射離子在溝道中的橫向與縱向動量-----	30



圖 4-3-8	最小產額之簡單模型-----	30
圖 4-3-9	dip 曲線-----	31
圖 5-1-1	鬆弛層與應變層之[004]與[224]的倒空間圖譜-----	40
圖 5-1-3	在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖 譜-----	41
圖 5-1-4	在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖 譜-----	41
圖 5-1-5	在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖 譜-----	42
圖 5-1-6	在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖 譜-----	42
圖 5-1-7	在銻砷化鎵厚度為 200nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖 譜-----	43
圖 5-1-8	銻砷化鎵的鬆弛程度對其厚度的關係圖-----	43
圖 5-1-9	銻砷化鎵的峰值銻含量對其厚度的關係圖-----	44
圖 5-1-10	在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的拉賽福回向散射能譜圖----	44
圖 5-1-11	在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的拉賽福回向散射能譜圖----	45
圖 5-1-12	在銻砷化鎵厚度為 200nm 時的拉賽福回向散射能譜圖--	45
圖 5-1-13	輕離子射入於不同厚度的銻砷化鎵其銻含量對深度的關 係圖-----	46
圖 5-1-14	RBS 與 RSM 的峰值銻含量對不同厚度的銻砷化鎵的比較 圖-----	46
圖 5-1-15	在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的重離子溝道效應能譜圖----	47
圖 5-1-16	在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的重離子溝道效應能譜圖----	47
圖 5-1-17	在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的重離子溝道效應能譜圖----	48

圖 5-1-18	在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的重離子溝道效應能譜圖	----48
圖 5-1-19	重離子射入於不同厚度的銻砷化鎵其銻含量對深度的關係圖	-----49
圖 5-1-20	在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的[001]方向 dip 曲線	-----49
圖 5-1-21	在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的[001]方向 dip 曲線	-----50
圖 5-1-22	在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的[001]方向 dip 曲線	-----50
圖 5-1-23	在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的[001]方向 dip 曲線	-----51
圖 5-2-1	在銻砷化鎵厚度為 (a) 0nm ; (b) 10nm ; (c) 30nm ; (d) 40nm ; (e) 60nm ; (f) 200nm 時的 $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ AFM 圖	-----52



# 第一章 序論

近年來光電科技的發展非常迅速，光電科技在資訊的傳輸、處理、顯示、儲存以及高效率照明都具有不可取代的重要性。所以，隨著光電科技日益進步，它對於人們日常生活的影響力將會持續且擴大。

與十年前的電子科技一樣，光電科技的產品也將趨向於微小化與積體化。同樣地，隨著奈米科技的進步，尺寸更小的奈米光學及光電技術更將迅速發展。所以，應用於光纖通訊領域中的長波段半導體雷射，將成為重要的課題之一。

由於磊晶技術持續進步，成長於砷化鎵基板上的主動層材料都相繼有明顯的突破，如氮砷化鎵銻 (InGaAsN) <sup>[1][2]</sup> 或是砷化銻量子點 (InAs QDs) 上覆蓋砷化鎵銻 (InGaAs) 的主動層結構 <sup>[3][4]</sup>，皆有將雷射放光波長推向 1.3 $\mu\text{m}$  的潛力。但因含氮材料與量子點結構在磊晶成長上的困難，不易成長品質良好的主動層。另外，如含銻(Sb)材料本身具有較小的能隙，且可以和砷化鎵形成第二型量子井的主動結構，同時其放光機制有助於延長雷射元件的波長到 1.3 $\mu\text{m}$ ，因此也吸引不少研究人員的重視 <sup>[5][6][7][8]</sup>。

本論文便是以砷化銻 (InAs) / 銻砷化鎵 (GaAsSb) / 砷化鎵 (GaAs) 的磊晶結構為主做各種材料分析 <sup>[9]</sup>，了解其本身的機制，進而將它做出長波長的元件，應用於光通訊技術上。

## 第二章 磊晶成長

薄膜磊晶成長的模式有三種<sup>[10]</sup>。(1) Frank-van der Merwe mode (層接式)：當磊晶層的表面能 (surface energy) 相當於或小於基底材料的表面能時，以 2D layer-by-layer 的形式成長，如圖 2-1(a)所示。(2) Volmer-Weber mode (島嶼式)：發生於薄膜表面能遠大於基底材料時，以 3D 島嶼的形式成長，如圖 2-1(b)所示。(3) Stranski-Krastanow (SK) mode (層接而後島嶼式)：在磊晶初期，薄膜表面能小於基板的表面能則以 2D 的型態成長，而當磊晶厚度持續增加，應力也逐漸增加，表面能漸漸大於基板，當達到一定程度時，晶格會藉由晶格的鬆弛來降低應變，此時便以 3D 島嶼形態繼續成長，如圖 2-1(c)所示。

此處樣品的成長是採用分子束磊晶系統 (molecular beam epitaxy; MBE，如圖 2-2 所示)，主要乃分子束磊晶系統可以精確地成長異質結構 (heterostructure)。成長過程中，首先在沿著[001]的砷化鎵 (GaAs) 基板上成長約 200nm 的緩衝層 (buffer layer)，而溫度控制在約 580°C，目的在於使磊晶的表面層平坦且減少基板表面的缺陷。接著成長不同厚度 (10、20、30、40、60、90、200nm) 的銻砷化鎵 (GaAsSb)，而溫度控制在約 505°C 且五族各自元素與三族元素的流量比值約 20。最後，採用 SK mode 成長約 3ML (mono-layer) 砷化銦 (InAs) 量子點在 GaAsSb 上面，而溫度也是控制在約 505°C，如圖 2-3 所示。

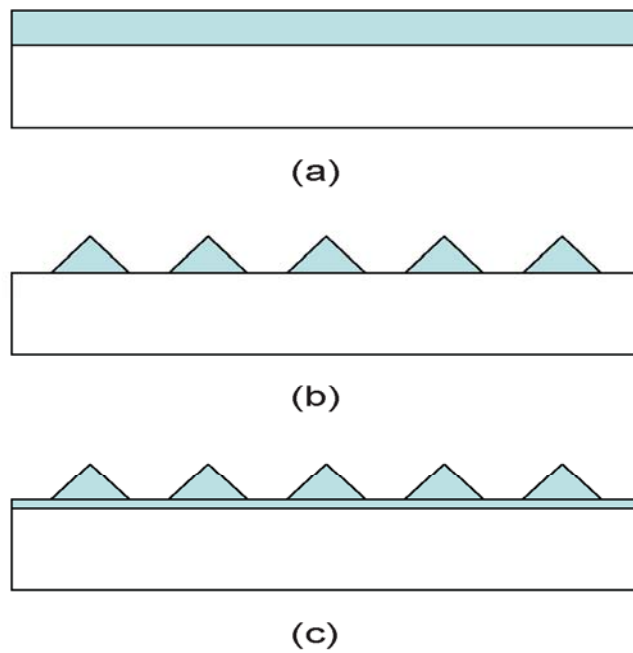


圖 2-1 薄膜磊晶成長模式 (a) 層接式；(b) 島嶼式；(c) 層接而後島嶼式

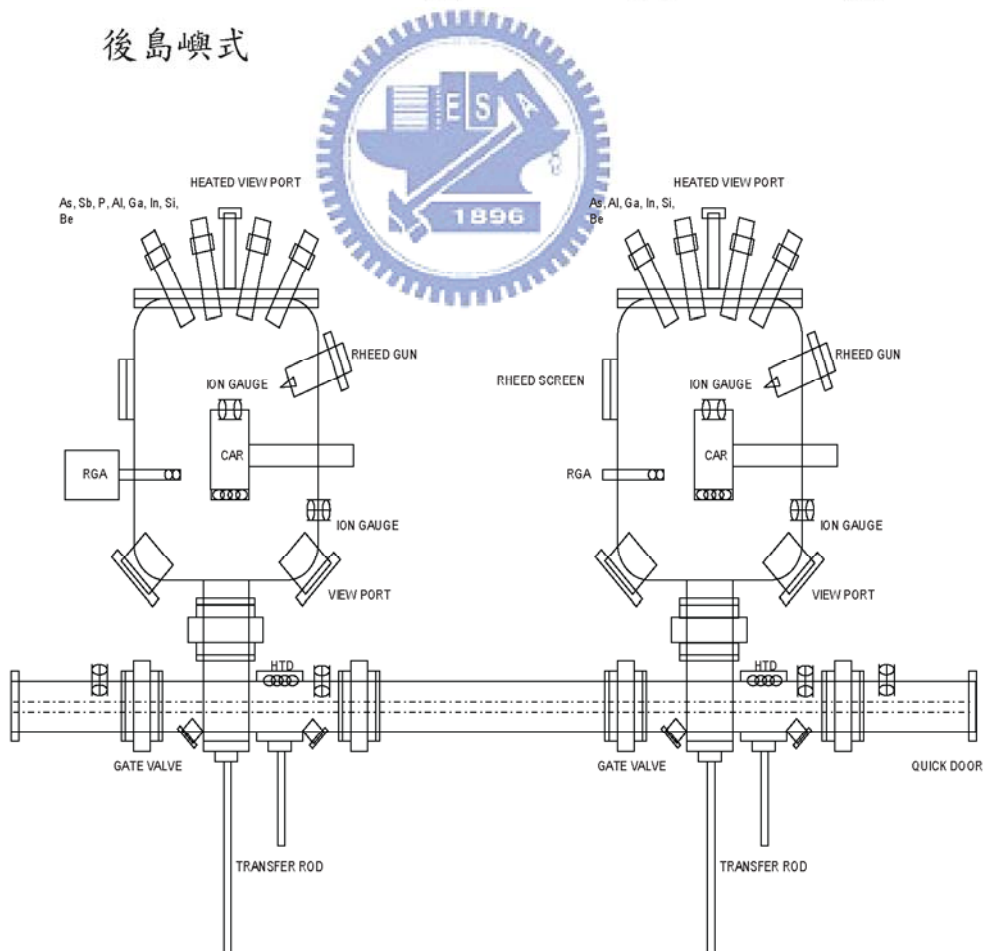


圖 2-2 分子束磊晶系統 (MBE)

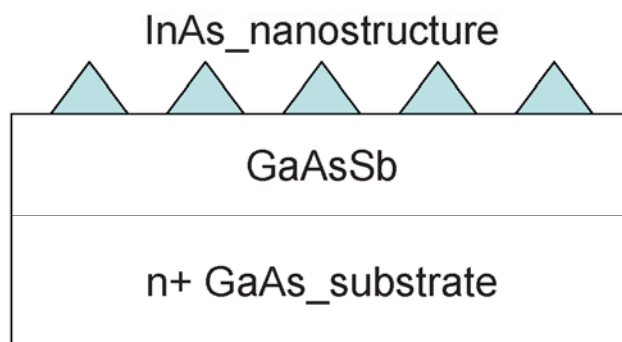


圖 2-3 樣品結構圖

### 第三章 X 光繞射倒空間圖譜

在分析材料結構時，可以依照入射粒子的不同，概分為三大類：(1) X 光、(2) 離子束、(3) 電子束。而本實驗是針對 X 光、離子束與待測物質作用來進行各種探討。因此，將兩種不同的入射粒子個別分開來加以說明。

#### 3.1 高解析度 X 光繞射儀 (high-resolution x-ray diffractometer ; HRXRD )

自從 X 光被發現會與材料晶體中規則排列的原子產生繞射，X 光繞射就一直被普遍應用來了解材料的晶體結構特性。且近幾年來，繞射儀與分析軟體不斷的改良，都使得材料結構分析的時間大幅縮短與便利性提高。而材料發展趨向輕、薄、短、小之際，薄膜繞射技術也被廣泛應用在分析薄膜材料之膜層與界面結構，且經由 X 光入射樣品深度的控制，能有效的分析薄膜結晶與深度之間的變化情形。X 光繞射不論是研究或應用，在各種領域上皆有日漸重要的趨勢，而材料跨入奈米領域，X 光繞射更是能帶領我們在微小尺寸世界一探究竟。

使用高解析度 X 光繞射儀 (high-resolution x-ray diffractometer ; HRXRD) 量測方法與分析有：搖擺曲線 (rocking curve)、 $\omega$ - $2\theta$  scan 繞射、倒置空間圖譜 (reciprocal space mapping ; RSM) 等。可以從這些方法與分析，可瞭解晶體結構差異、晶格常數變化、元素種類不同、晶界及差排缺陷等，都會因為原子排列不同，在 X 光繞射實驗中被反應出來。其中 RSM 對於材料晶格的相關特性，能提供有效且非破壞性的量測。利用 HRXRD 對材料結構的對稱面與非對稱面進行 RSM

測量，可以推算材料的晶格常數 (lattice constant)、晶格不匹配 (lattice mismatch)、鬆弛 (relaxation) 及元素含量，並進一步求出殘餘應變 (residual strain)。但其也有量測極限，因 X 光是一種短波長的電磁輻射，其波長約為 1Å 左右，由於如此波長之電磁波是無法以透鏡聚焦，使得僅能用來分析一較大區域，而獲得一整體平均的結果，然而也因如此，其為提供一非破壞性的分析方式，甚至可在不同的分析條件，如高溫、低溫、真空、高壓……等特殊環境下進行分析工作。如此不但試樣製作容易，也比較能獲得接近其原製造環境或使用狀況下的結果。

國立彰化師範大學電子工程學系所擁有的 HRXRD，型號為 D5000<sup>[11]</sup>。其內部架構有 X 光管 (X-ray tube)、三菱鏡 (Gobel mirror)、Channel-cut monochromators、樣品座及感測器 (detector)。HRXRD 動作原理：當 X 光管產生 X 光，經三菱鏡反射進入 Channel-cut monochromators，Channel-cut monochromators 會提高解析度，但 X 光強度會衰減，X 光入射樣品產生布拉格繞射，繞射光經由感測器接收，此訊號由電腦螢幕呈現出，如圖 3-1-1 所示。

## 3.2 基本原理

### 3.2.1 布拉格繞射原理

西元 1912 年時，勞厄 (M. von Laue) 於德國慕尼黑以實驗證實觀察到 X 光繞射現象，也就是 X 光進入晶體後會因為建設性干涉而產生繞射光，隔年，英國布拉格 (W. L. Bragg) 就寫下了著名的布拉格定理 (Bragg Law)：

$$2 d_{hkl} \sin\theta = n \lambda \quad (3-1)$$



其中  $d_{hkl}$  為晶面間距， $\theta$  為入射光與晶面的夾角， $n$  為整數， $\lambda$  為入射光的波長。利用特性 X 光入射到結晶材料，在某些入射角，其中材料之相鄰結晶面的散射波彼此相位相同，且光程差為波長的整數倍，因此發生建設性干涉，滿足此條件便可產生繞射，稱為布拉格定律 (Bragg Law)，幾何關係如圖 3-2-1 所示。再者根據不同的晶體結構，其晶面間距不同，繞射角度也會不同，除了必須滿足布拉格定律之外，當單位晶胞內所含的原子數目不只一個時，這些原子的對稱關係會抑制一些繞射的發生，稱為消光條件 (extinction condition)。

所以當材料晶體的晶胞形狀、大小、對稱性以及晶胞內組成原子不同時，所造成的繞射位置與繞射強度都會有所不同，這也是為什麼利用 X 光繞射可以決定晶體結構的理由。

### 3.2.2 倒晶格 (reciprocal lattice)

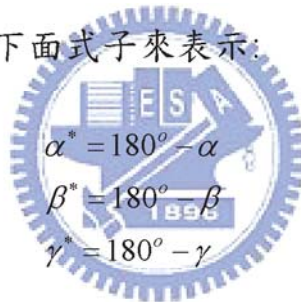
上述所提的布拉格方程式雖然可以簡單、清楚的解釋大部分的繞射分析問題，但是方程式並沒有告訴我們不滿足時會發生什麼事情。為了更一般化的描述問題，德國物理學家 P. P. Ewald 在 1913 年提出了倒晶格空間的觀念，並在 1921 年完成了倒晶格空間的理論。

由於 X 光繞射牽涉到晶格面(hkl)，而晶格面與晶格面之間的關係，是比較難說清楚，所以我們用一點來代表一組晶格面，這樣晶格面與晶格面間的關係，就比較容易看出，這種以一點代表面的觀點，稱為倒晶格。至於，倒晶格與原(真實)晶格之間的關係，是以倒晶格原點 O 來代表入射 X 光，然後由原點做垂線垂直於各組晶格面(hkl)，垂直線的長度為  $1/d_{hkl}$ ， $d_{hkl}$  為原晶格的面與面間距，而垂直線的端點就是晶格面(hkl)的倒晶格點，如圖 3-2-2 所示。

倒晶格向量  $d_{hkl}^*$  的表示和長度與倒晶格三個軸  $a^*$ ,  $b^*$ ,  $c^*$ , 可以用下面式子表示:

$$\begin{aligned} \left| \vec{d}_{hkl}^* \right| &= 1/d_{hkl} \\ \vec{d}_{hkl}^* &= h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* \\ \left| \vec{a}^* \right| &= \left| \vec{d}_{100}^* \right| = \frac{1}{d_{100}} \\ \left| \vec{b}^* \right| &= \left| \vec{d}_{010}^* \right| = \frac{1}{d_{010}} \\ \left| \vec{c}^* \right| &= \left| \vec{d}_{001}^* \right| = \frac{1}{d_{001}} \end{aligned}$$

而倒晶格三個軸的夾角  $\alpha^*$ ,  $\beta^*$ ,  $\gamma^*$  與原來晶格三個軸的夾角  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  的關係式, 可以用下面式子來表示:



$$\begin{aligned} \alpha^* &= 180^\circ - \alpha \\ \beta^* &= 180^\circ - \beta \\ \gamma^* &= 180^\circ - \gamma \end{aligned}$$

倒晶格三個軸  $a^*$ ,  $b^*$ ,  $c^*$ , 也可以用下面式子表示,  $V$  是原來晶格的體積:

$$\begin{aligned} \vec{a}^* &= \frac{1}{V}(\vec{b} \times \vec{c}) \\ \vec{b}^* &= \frac{1}{V}(\vec{c} \times \vec{a}) \\ \vec{c}^* &= \frac{1}{V}(\vec{a} \times \vec{b}) \\ V &= \vec{a} \cdot (\vec{b} \times \vec{c}) \end{aligned}$$

### 3.2.3 愛華德球面 (Ewald's Sphere)

如圖 3-2-3 所示，將入射光與繞射光轉換到倒晶格空間以後，便可以定義出倒晶格空間之原子面(hkl)的法向量  $d^*_{hkl}(=kf - ki)$ ，其中  $kf$  為繞射光的波向量， $ki$  為入射光的波向量。當倒晶格空間之原子面的法向量與某組晶面轉換得到的倒晶格點重合時，即滿足布拉格方程式，且此時以待測晶體為中心， $1/\lambda$  為半徑畫一圓球表面，此球面必與產生繞射的倒晶格點相交，稱球面為愛華德球面 (Ewald's Sphere)。

### 3.3 倒空間圖譜 (reciprocal space mapping ; RSM)

晶體材料本身有很多的晶格面，因此比較複雜且不易分析，所以將真實空間的晶格面轉換成倒空間的倒晶格點，而倒空間圖譜即是這些倒晶格點所組成，從倒空間圖譜可以更有效瞭解材料結構相關特性，如圖 3-3-1 所示。

HRXRD 並不是可以量測所有的倒晶格點，像入射角  $\omega < 0^\circ$  與  $\omega > 2\theta$  所產生的繞射，皆受到樣品的阻隔，因此無法接收到訊號，並且受限  $2\theta$  角度的關係，故有效量測範圍為圖 3-3-2 著色區域。

上面所描述的皆是簡易的倒空間圖譜，現在若考慮在基板上成長不同型態的層，例如：鬆弛層 (relaxed layer) 或是應變層 (strained layer)，將呈現出不同的倒空間圖譜。其中鬆弛層之水平方向的晶格常數( $a_L$ )不受基板之水平方向的晶格常數( $a_S$ )所限制，因此從倒空間圖譜觀察可知，這些鬆弛層的倒晶格點皆落在倒晶格點向量上，如圖 3-3-3 所示。至於，應變層之水平方向的晶格常數( $a_L$ )卻受基板之水平方向的晶格常數( $a_S$ )所限制  $a_L = a_S$ ，使得應變層之垂直方向的晶格常數( $c_L$ )因受應力而變大，因此從倒空間圖譜觀察可知，這些應變層的倒晶格點與基板的倒晶格點之平行方向相等( $q_{//}$ )，如圖 3-3-4 所示。

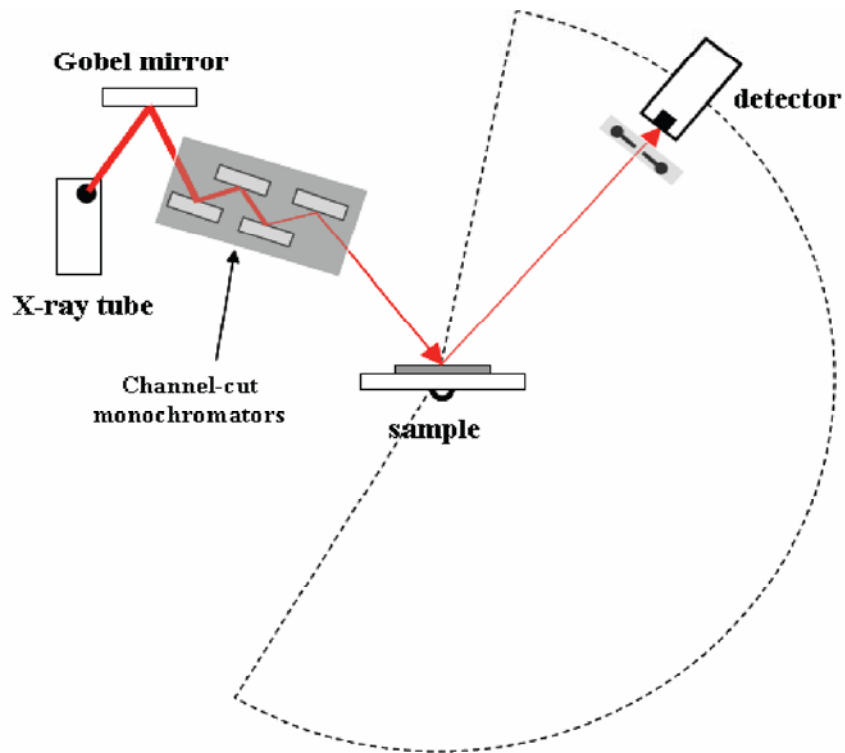


圖 3-1-1 高解析度 X 光繞射儀

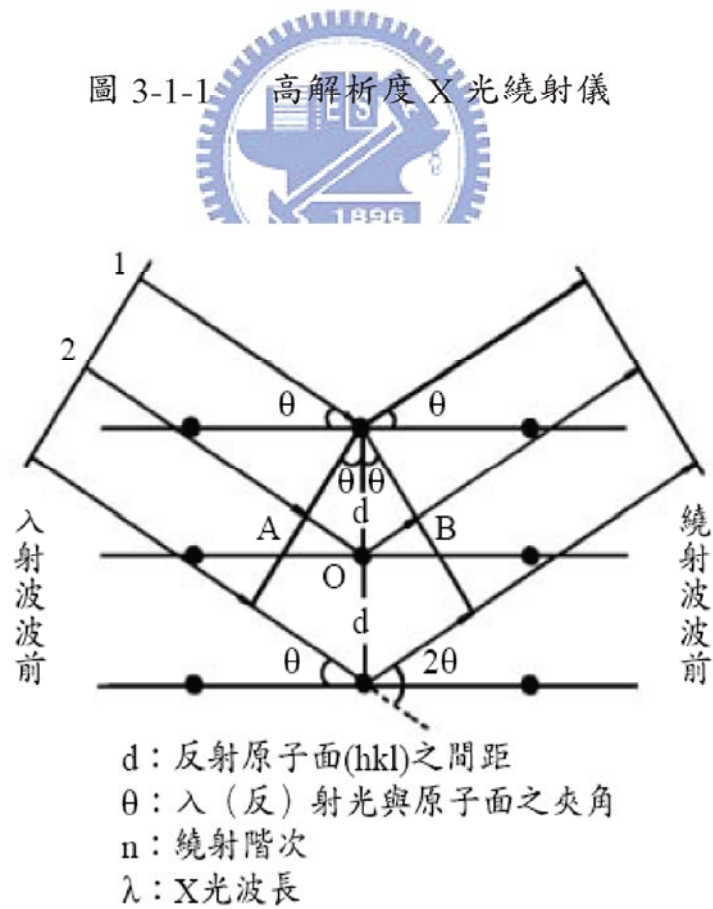


圖 3-2-1 實空間產生 X 光繞射條件

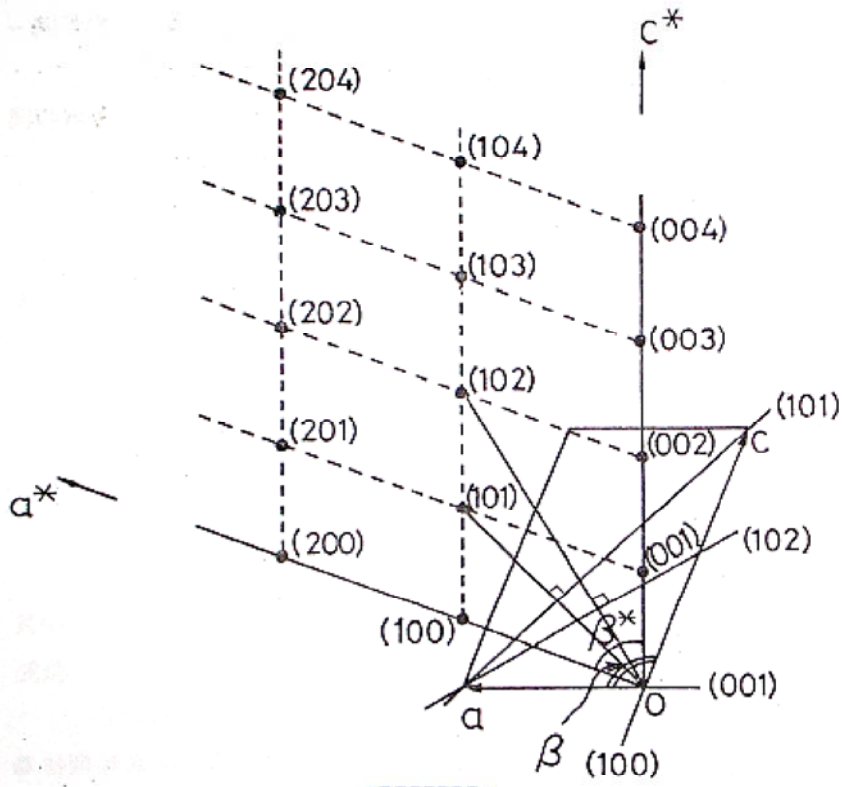


圖 3-2-2 倒晶格與原晶格之關係

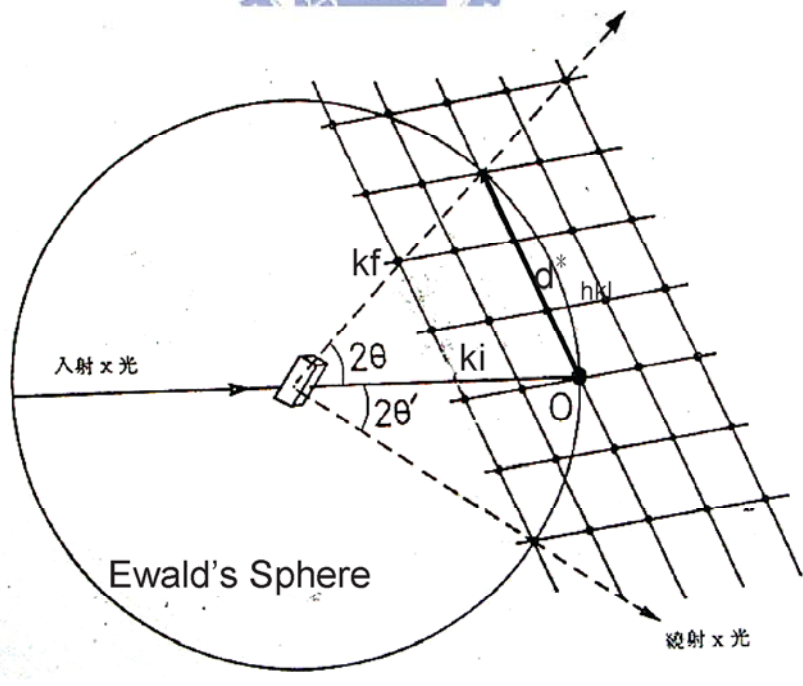


圖 3-2-3 愛華德球面與倒晶格點

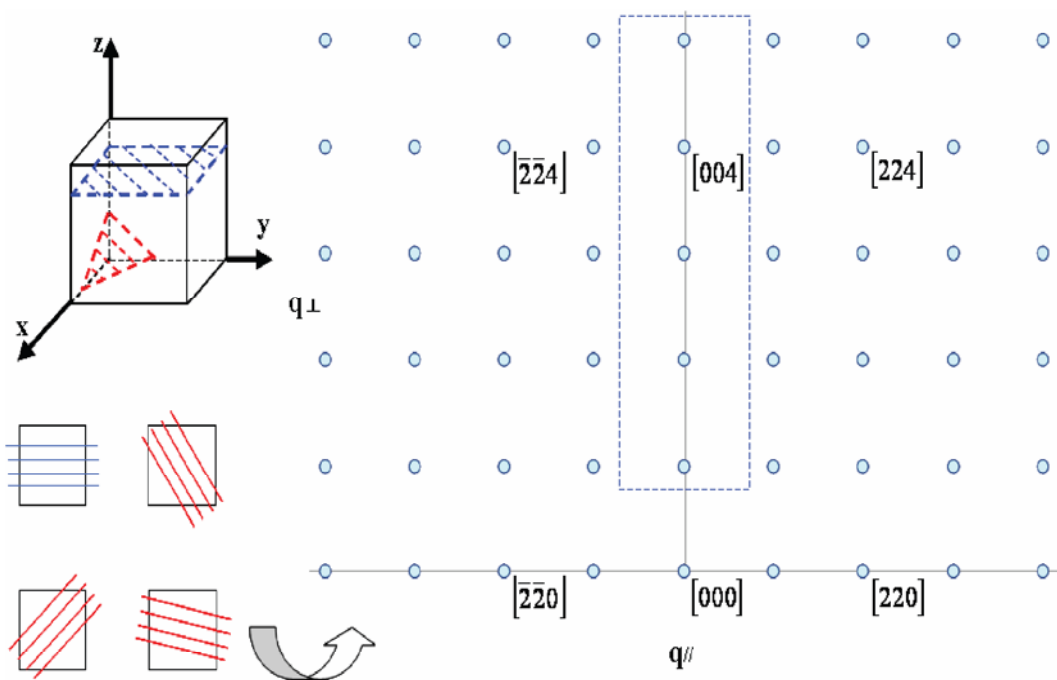


圖 3-3-1 倒空間圖譜

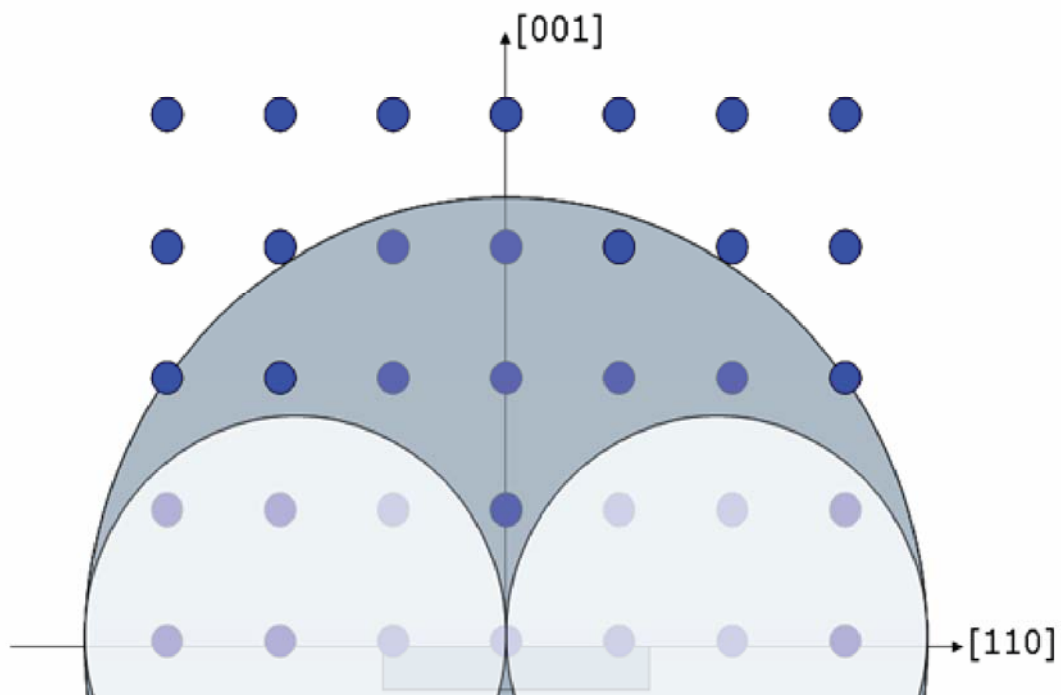


圖 3-3-2 倒空間圖譜之有效量測面積

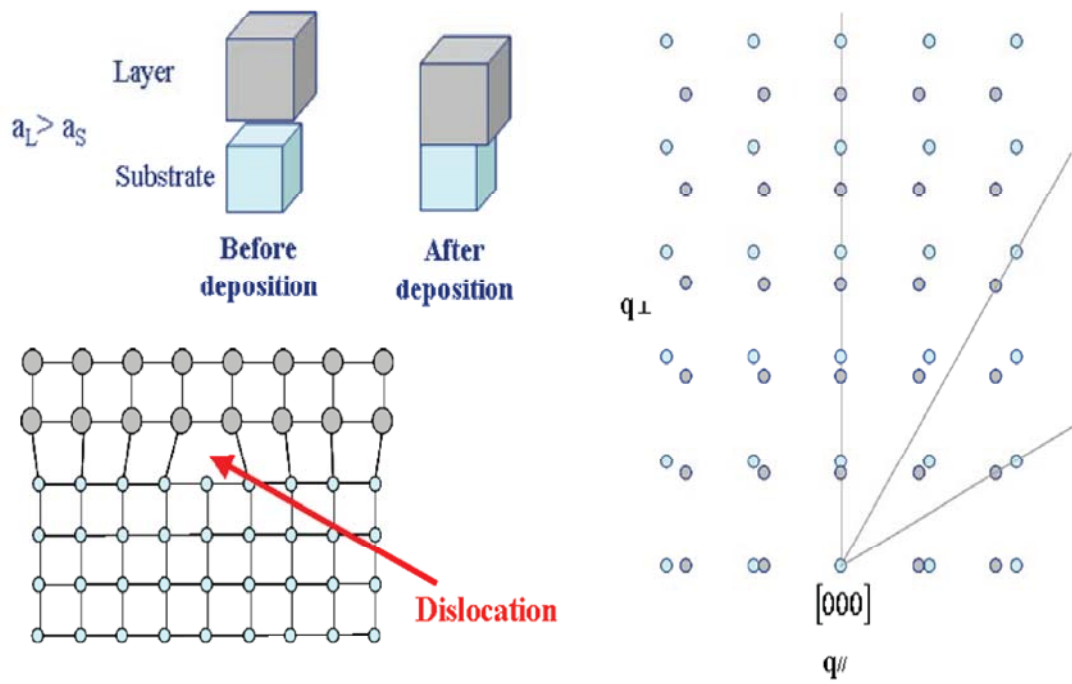


圖 3-3-3 鬆弛層

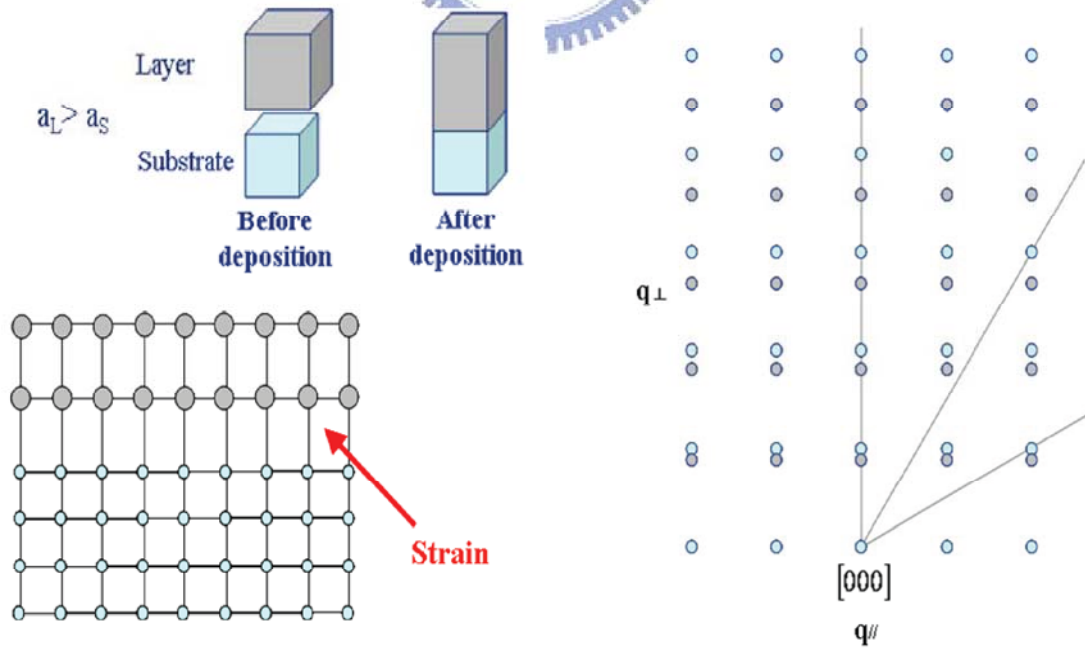


圖 3-3-4 應變層

## 第四章 拉賽福回向散射

1912年E. Rutherford以人工提煉之 $^{210}\text{Po}$ 所放出的 $\alpha$ -粒子撞擊金箔，觀察在各個方向散射的 $\alpha$ -粒子，實驗結果證實原子的中心為體積很小的原子核，其質量佔原子的99.5%；電子在原子外圍的軌道上運行。這項實驗奠定了今日原子模型的雛形，而拉塞福也因此開啟了RBS材料分析技術之門。1970年左右，華裔物理學家朱偉幹博士與加州理工學院的Mayer和Nicolet兩位教授合作，以拉塞福散射的原理發展出回向散射分析術(RBS)，從此RBS成為材料分析的一項利器 [12]。

拉塞福回向散射儀是一個分析回向散射 $\alpha$ -粒子能量的儀器，而回向散射 $\alpha$ -粒子的能量，是由待測靶材內的特定原子的質量與該原子在其內的位置或深度所決定的，因此，便可以藉由分析回向散射 $\alpha$ -粒子的能量來決定待測靶材內的元素種類、組成和縱深分佈。

### 4.1 量測系統

拉塞福回向散射分析儀主要分為四部份：離子源、加速器、偵測器、以及真空裝置，如圖4-1-1所示。國立清華大學原科中心的加速器實驗室擁有三部加速器，而以 $\text{He}^+$ 為離子源的拉塞福回向散射分析儀是位於其中的單段式高壓KN型范式加速器系統中。在拉塞福回向散射分析中，是以一束能量為2MeV的 $\alpha$ -粒子射入一個真空度維持在 $10^{-6}$  torr以下的真空腔中，轟擊置於真空腔中央的待測樣品，且實驗進行時不需要破壞真空，便可以直接更換待測樣品，而在實驗室角度 $160^\circ$ 附近安裝表面勢壘偵測器(surface barrier detector)，收集由待測樣品所散射的 $\alpha$ -粒子，然後再將訊號傳送至放大器(amplifier)、多



頻分析儀 (multiple channel analyzer)、個人電腦進行分析處理。

## 4.2 基本原理與機制

RBS 的原理，一般分為：(一)運動因子 (kinematic factor)、(二)散射截面 (scattering cross section)、(三)阻擋本領 (stopping power)。三個部分來討論：

### 4.2.1 (一) 運動因子 (kinematic factor)：

如圖 4-2-1 所示，質量為  $M_1$ ，初始動能為  $E_0$  的離子，入射到質量為  $M_2$  的靶材原子上。經彈性碰撞後，散射離子行進的方向與原入射方向之間所夾的角度稱為散射角 (scattering angle,  $\theta$ )；靶材原子回跳後所行進的方向與離子原入射方向之間的夾角則稱為回跳角 (recoiling angle,  $\phi$ )。

經過彈性碰撞後，入射離子的散射動能  $E_1$  與入射動能  $E_0$  之間的關係式可表示如下：

$$E_1 = E_0 \left( \frac{M_1 \cos \theta \pm \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right)^2 \quad (4-1)$$

運動因子 (kinematic factor,  $K_\theta$ ) 為入射離子被靶材原子回向散射後之末動能與入射動能的比值：

$$K_\theta = \frac{E_1}{E_0} = \left( \frac{M_1 \cos \theta \pm \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right)^2 \quad (4-2)$$

由上式可以看出  $K_\theta$  是  $M_1$ 、 $M_2$  與  $\theta$  的函數，不同的待測物種會對應到不同的  $K_\theta$  值，我們只要固定入射離子種類  $M_1$  及偵檢器的角度  $\theta$ ，就可以由各種元素所對應的  $K_\theta$  值來判定待測元素  $M_2$  的種類。

### 4.2.2 (二) 散射截面 (scattering cross section) :

拉賽福回向散射是因為入射離子與靶材原子核間的庫倫作用力所引起的，作用位能為：

$$U = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \quad (4-3)$$

其中  $Z_1$  為入射離子的原子序， $Z_2$  為靶材原子的原子序， $e$  為電子電量， $r$  為入射離子與靶材原子之間的距離。由於庫倫作用力所造成的散射截面，稱為庫倫截面或拉塞福截面 (Rutherford Cross Section)，如圖 4-2-2 所示。其可用量子力學或是古典力學的方法去計算，得到的結果為：

$$\sigma_{\theta} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_0} \right)^2 \left[ \sin^{-4} \frac{\theta}{2} - 2 \left( \frac{M_1}{M_2} \right)^2 + \dots \right] \quad (4-4)$$

而散射截面的物理意義為入射離子與靶材原子碰撞時，在單位時間內散射到單位立體角內的機率，因此，散射截面的大小直接影響到測得回射離子的多寡。所以，散射離子的產率  $Y$  為：

$$Y = I \cdot Nt \cdot \sigma_{\theta} \cdot d\Omega \quad (4-5)$$

其中  $I$  是入射離子束的電流大小， $Nt$  是單位面積內待測原子的數目 ( $\text{atom}/\text{cm}^2$ )， $d\Omega$  是偵檢器所張的立體角 ( $\text{msr}$ )。

### 4.2.3 (三) 阻擋本領 (stopping power)

入射離子在進入靶材之後，會與靶材原子產生一連串的碰撞，因而損失能量。損失的能量可分為兩部分：(1)當入射離子與靶材外層電子碰撞時，會損失能量，是為電子能失 (electric energy loss)，但因為電子的質量遠小於入射離子，每次的能量損失很小，所以入射離子的方向可視為不偏折；(2)當入射離子與靶材原子核碰撞時，才會引起較大角度散射，此時的能量損失稱為核子能失 (nuclear energy

loss)。合併兩者稱為阻擋本領 (stopping power)，定義為離子經過單位距離所損失的能量：

$$S = -\frac{dE}{dx} \quad (4-6)$$

其中  $dE$  為能量損失， $dx$  為離子穿透的距離，如圖 4-2-3 所示。

若拉塞福回向散射發生在靶材表面，入射離子在入射前的能量為  $E_0$ ，則偵檢器偵測到的能量為  $K_\theta E_0$  值；若在靶材表面下  $x$  的深度發生拉塞福回向散射，則偵檢器偵測到的能量為  $E'$ ，偵測器的角度位置為  $\theta$ ，它們之間的關係如下：

$$E' = K_\theta \left[ E_0 - \left( \frac{dE}{dx} \right)_{in} x \right] - \left( \frac{dE}{dx} \right)_{out} \frac{x}{|\cos \theta|} \quad (4-7)$$

其中  $(dE/dx)_{in}$  與  $(dE/dx)_{out}$  分別表示對應於入射能量與散射後能量的  $dE/dx$ 。而表面散射離子的能量為  $K_\theta E_0$ ，與深度  $x$  的散射離子能量為  $E'$  之間相差  $\Delta E$  為：

$$\Delta E = K_\theta E_0 - E' = x \left[ K_\theta \left( \frac{dE}{dx} \right)_{in} + \frac{1}{|\cos \theta|} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{out} \right] \quad (4-8)$$

由能量差  $\Delta E$ ，可以知道靶材的深度  $x$ 。

### 4.3 溝道效應 ( channeling effect )

在對準單晶樣品的晶軸或是晶面時，所觀測的物理量會隨著對稱性的提高而產生的變化稱為溝道效應 (channeling effect)。離子溝道效應 (ion channeling effect) 是指使用離子束去觀察溝道效應的實驗方法，它是利用加速後的離子去撞擊單晶 (single crystal) 樣品，當入射離子與單晶樣品其中對稱性高的晶軸平行時，所量測到回向散射的機率會大量減少<sup>[13]</sup>。而溝道效應的構想早在 1912 年由 Stark 提出，1960~1965 年間實驗上的結果才被証實。隨後許多人藉著實驗與模擬，嘗試去研究解釋溝道效應，其中以 Lindhard 在 1965 年所提出的連續模型 (continuum model) 解釋得最成功。

離子溝道效應是利用高速離子去撞擊樣品後偵測因入射離子所造成的溝道效應來分析晶格損傷、雜質位置、或是表面薄膜的技術。同時，也因離子溝道效應的理論是以晶格的對稱性作為基礎的技術，所以利用離子溝道效應亦可以很容易找到晶格的變化。本篇論文是利用拉塞福回向散射來進行溝道效應的實驗。

#### 4.3.1 量測系統

國立清華大學原子科學技術發展中心的加速器實驗室目前擁有三部加速器，之前提過一台：單段式高壓 KN 型范式加速器，現在要介紹另一台加速器：NEC 9SDH-2 串級加速器，如圖 4-3-1 所示。

9SDH-2 離子源為銫離子濺射負離子源 (source of negative ions by cesium sputtering；SNICS，如圖 4-3-2 所示)，利用銫離子 (cesium ion) 轟擊固體靶，把固體靶中的物質濺射出來，濺射出來為中性或是帶正電的粒子，再將濺射出來的粒子經過一層緻密的銫原子氣層形成帶負電的離子 (真空約為  $10^{-8}$  torr)，然後再用萃取器 (extractor) 將

負離子萃取出來，由離子源出來的負離子經過 30° 磁鐵篩選後送入加速器。以這種方法產生的離子源有許多優點，不僅離子束的散射角小，均勻性高，而且可產生的離子源種類多。

9SDH-2 加速器的本體基本上為一加速管，其高壓產生原理如圖 4-3-3 所示。在加速器的本體中間利用金屬鏈條來加上正高壓，兩端接地，最高的加速電壓為 3MV，所加速離子之能量可達  $3 \times (q+1)$  MeV，其中  $q$  為剝離電子後陽離子的電荷數。當離子進入加速管後，因其帶負電，而加速管的中間為正高壓，此時負離子會被加速一次。當負離子通過加速管中間時，會經過電荷剝離器 (stripper)，通過後的離子會帶正電，因帶正電的離子與正高壓同性相斥，所以離子又被加速一次，是為二次加速，串級加速器的名稱亦由此而來。

從 SNICS 引出來的離子電荷數並非單一種類離子，這是因為在離子源產生的固體靶內必定有混合物或是雜質參雜其中，因此經 SINCS 萃取出來的負離子就不是單一離子 (以 C 為例，離子源可能會產生  $C^-$ ,  $C^{-2}$ ,  $C_2^-$ ,  $C_2^{-2}$  等等)，當然，負離子在經過電荷剝離器後，最後所帶的價數也不一定相同。為了消除不純物質以及能量的干擾，我們必須使用篩選器來選擇所需要的離子，而分析磁鐵 (analyzing magnet) 就可以擔任此功能。分析磁鐵是一個扇型的 90° 磁鐵，由於帶電離子在磁場中運動受羅倫茲力作用，整理可得其動量與磁場間的關係為：

$$p = mv = ZeBR \quad (4-9)$$

其中， $p$  為帶電離子的動量， $m$  為帶電離子的質量， $v$  為帶電離子的速度， $Z$  為帶電離子的電荷數， $e$  為電子電量， $B$  為磁場強度， $R$  為磁場曲率半徑。因此，控制磁場的強度大小，就可以藉篩選出所需要

的離子質量和離子電荷數。

加速器實驗室的 9SDH-2 加速器系統上，總共有四條射束線 (如圖 4-3-1 所示)，其中負  $40^\circ$  射束線，則是用於重離子 ( $C^{2+}$ ) 拉塞福回向散射與溝道效應實驗。而溝道效應系統包括一套四極磁鐵、兩組二極磁鐵 (steering magnet)、兩組狹縫、真空抽氣設備、射束末端實驗區的真空腔與電子偵測系統，如概略圖 4-3-4 所示。

## 基本原理

當離子束與晶軸方向平行時，深層靶原子被表面靶原子覆蓋，入射離子被靶原子的散射機率會大量降低。所以改變靶材的方向，當晶軸與入射離子方向接近於平行時，散射離子數目會驟減；當晶軸與入射離子方向完全平行時，散射離子數目降到最低。

### 4.3.2 連續模型

連續模型是 1965 年由 Lindhard 所提出的，Lindhard 是把晶格原子的位能取平均值作為連續模型的位能，如圖 4-3-5 所示。離子在連續位能作用下的行為，如圖 4-3-6 所示。離子的軌跡被一連串的晶格原子所影響，在二元模型 (圖 4-3-6(a)) 中，離子的軌跡是因為與晶格中的原子核做散射後而改變其軌跡，是一連串不連續的改變。Lindhard 的連續位能模型 (圖 4-3-6(b)) 是對其位能取平均值後，離子的運動軌跡可視為連續變化，在軸方向 (定義為  $z$  方向) 的位能可以寫為：

$$U_a(r) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{z^2 + r^2}) dz \quad (4-10)$$

其中  $d$  為晶格原子的間距， $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ 。將  $v(r)$  以 Moliere potential 近似然後積分可得軸方向的連續位能：

$$U_a(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d} \ln \left[ \left( \frac{Ca}{r} \right)^2 + 1 \right] \quad (4-11)$$

其中  $C$  為歐以拉常數， $C \approx \sqrt{3}$ ， $a$  為屏蔽長度 (screening length)。

### 4.3.3 橫向能量 (transverse energy)

入射離子在進入溝道後，為了公式推導的方便，將入射離子的能量分為橫向能量 (與  $z$  軸垂直) 與縱向能量 (longitudinal energy，與  $z$  軸平行)，並依能量守恆寫下離子的總能量  $E$ ：

$$E = U(r) + \frac{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}{2M} \quad (4-12)$$

其中  $p_i$  ( $i=x, y, z$ ) 是  $i$  方向的動量， $M$  是入射離子的質量， $U(r)$  是溝道中晶格原子列(面)的位能總合， $r$  為入射離子距離晶格原子列(面)的距離。如圖 4-3-7 所示，根據分量的守恆定律，可以找出下列關係式：

$$\frac{p_z^2}{2M} = \frac{p_{//}^2}{2M} \quad (4-13)$$

$$U(r) + \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M} = E_{\perp} \quad (4-14)$$

$$E_{\perp} + \frac{p_{//}^2}{2M} = E \quad (4-15)$$

由於  $U(r)$  只和入射離子與晶格原子列(面)的距離有關，故縱向能量 (即入射離子前進的方向) 是固定的，並且由畢氏定理得知  $p_{//} = p \cos \Psi$ ，在小角度近似時 ( $\cos \Psi = 1$ ,  $\sin \Psi = \Psi$ ,  $\Psi \leq 1^\circ$ ) 整理公式後可以得到橫向能量：

$$E_{\perp} = E\Psi^2 + U(r) \quad E\Psi^2 = \frac{P_x^2 + P_y^2}{2M} \quad (4-16)$$

#### 4.3.4 臨界角

臨界角  $\psi_c$  定義為入射離子的軌跡與列原子 (或面原子) 仍然可以保持溝道效應的最大入射角。當入射離子以臨界角入射時，離子的橫向能量是  $E\Psi_c^2$ ；當入射離子行進過程中最接近原子列時，橫向動能等於零，此時入射離子對原子列有最大的位能勢，利用此關係式可以得出臨界角的關係式：

$$\Psi_c = \sqrt{\frac{U(r_{\min})}{E}} \quad (4-17)$$

其中  $U(r_{\min})$  是入射離子與原子列之間最大的位能勢， $E$  是入射離子的能量。

晶格原子因為溫度所產生的熱振動，會減少溝道的空間。我們假設熱振動的位移均方根值為  $\rho$ ，帶入公式(4.11)式可以得到：

$$\Psi_c(\rho) = \frac{\Psi_1}{\sqrt{2}} \left[ \left( \frac{C a}{\rho} \right)^2 + 1 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4-18)$$

其中  $\Psi_1$  稱為特性角 (characteristic angle)，其表示式為：

$$\Psi_1 = \sqrt{\frac{2 Z_1 Z_2 e^2}{E d}} \quad (4-19)$$

其中  $d$  為晶格原子間距， $Z_1$ ， $Z_2$  分別是入射離子與靶材原子的原子序。當原子列的連續位能約為 100eV，入射離子能量是 MeV 級時，其臨界角約是  $1^\circ$ 。



### 4.3.5 最小產額

在將要對準晶軸時，回向散射的離子會急遽減少，直到對準晶軸後，回向散射的離子數會有一最小值，此一最小值稱為最小產額 ( $\chi_{\min}$ )。最小產額是因為以平行離子束入射單晶樣品時，表面原子會屏蔽同一原子列上的其它原子，以至於在同一原子列上，入射離子只會與前面幾層原子碰撞而發生回向散射。如圖 4-3-8 所示，做為一簡單的模型，假設入射離子進入非晶形的樣品時，其全部的入射離子都會以大於  $90^\circ$  的夾角回向散射；只有在對準晶軸時，小於  $r_{\min}$  會發生回向散射。最小產額的比例大約是：

$$\frac{\chi_{\min}}{\chi_{\max}} = \frac{\pi \rho^2}{\pi r_0^2} \quad (4-20)$$

其中， $\pi r_0^2 = \frac{1}{N d}$ ， $N$  為原子體密度， $d$  為晶格原子間距。

如果考慮原子因熱擾動所引起的振幅修正  $r_{\min} = \rho$ ，則最小產額可修正為：

$$\chi_{\min}(\rho) = N \cdot d \cdot \pi \cdot \rho^2 \quad (4-21)$$

在這個近似式的最小產額與入射離子的  $Z_1$ 、入射離子的能量  $E$  和樣品元素的  $Z_2$  都無關。

### 4.3.6 Dip 曲線 (dip curve)

在對準晶軸後，重新以 RBS 能譜選取對應於樣品內固定深度的幾層原子層的訊號作圖，可以得到 dip 曲線，如圖 4-3-9 所示。

其中  $\chi_{\min}$  為最小產額， $\chi_{\max}$  最大散射值， $\psi_{1/2}$  為產額降為  $\chi_{\max}$  之半的半高全寬半角。 $\psi_{1/2}$  與  $\psi_1$  對應的關係為：

$$\Psi_1 = \alpha \cdot \Psi_{1/2} \quad (4-22)$$

$\alpha$  約為 1。Dip 曲線可以用幾何近似得到簡單的回向散射量對角度分佈函數  $P_{ce}$  公式，如下所示：

$$\frac{r}{r_{min}} = e^{2\Psi^2 / \Psi_1^2}, \quad r < r_0 \quad (4-23)$$

$$P_{ce}(\Psi) = \frac{\pi r^2}{\pi r_0^2} = \chi_{min} e^{2\Psi^2 / \Psi_1^2}, \quad \Psi < \Psi_1 \ln \frac{r_0}{r_{min}} \quad (4-24)$$

$$P_{ce}(\Psi) = 1, \quad \Psi > \Psi_1 \ln \frac{r_0}{r_{min}}$$



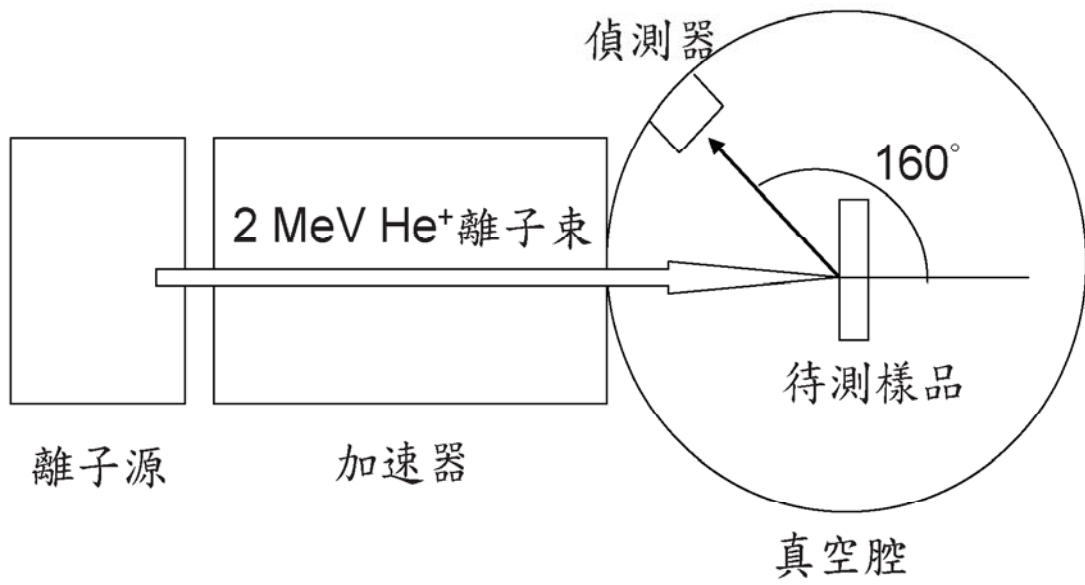


圖 4-1-1 拉賽福回向散射基本裝置圖

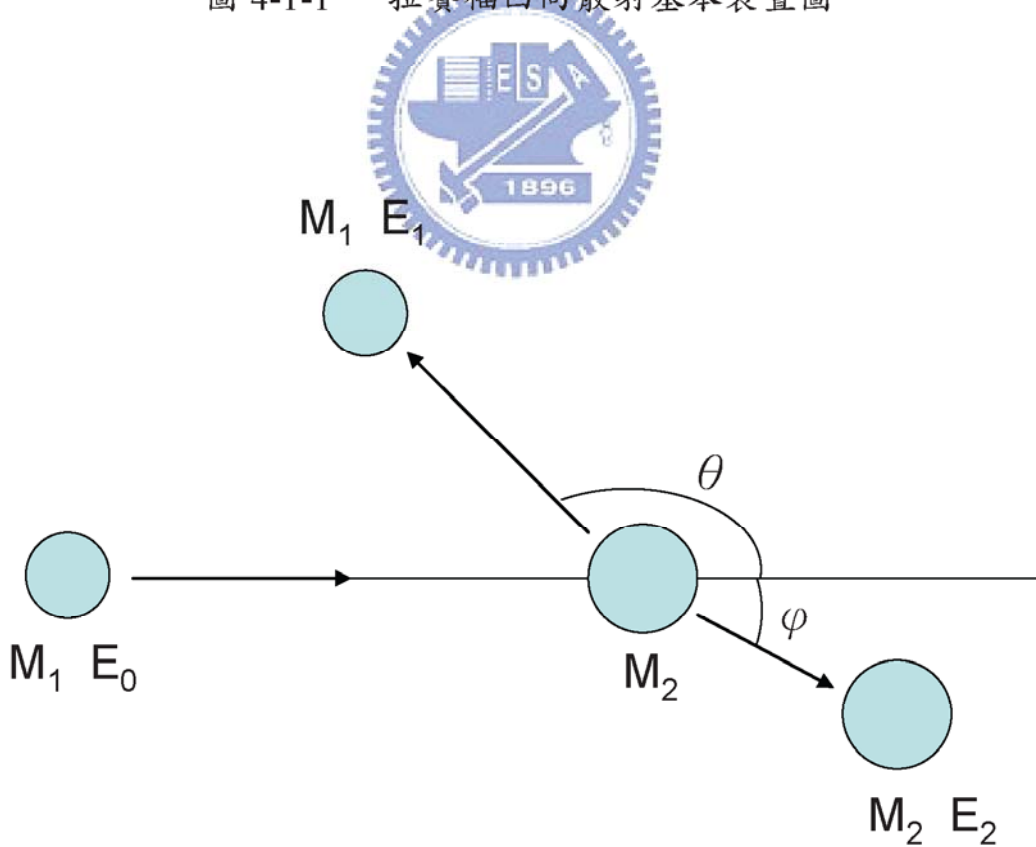


圖 4-2-1 彈性碰撞示意圖

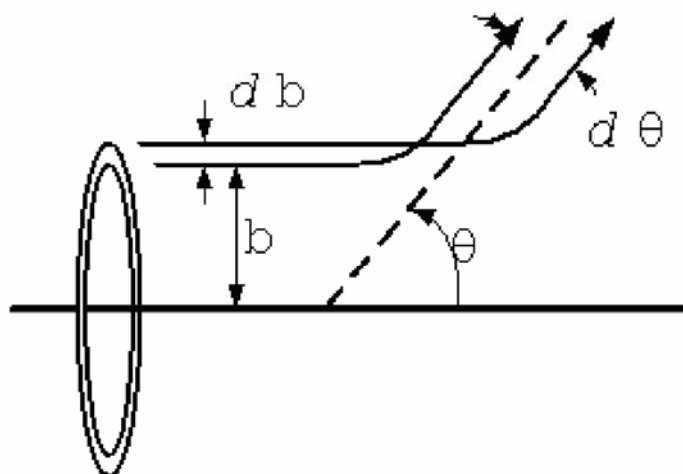


圖 4-2-2 散射截面示意圖

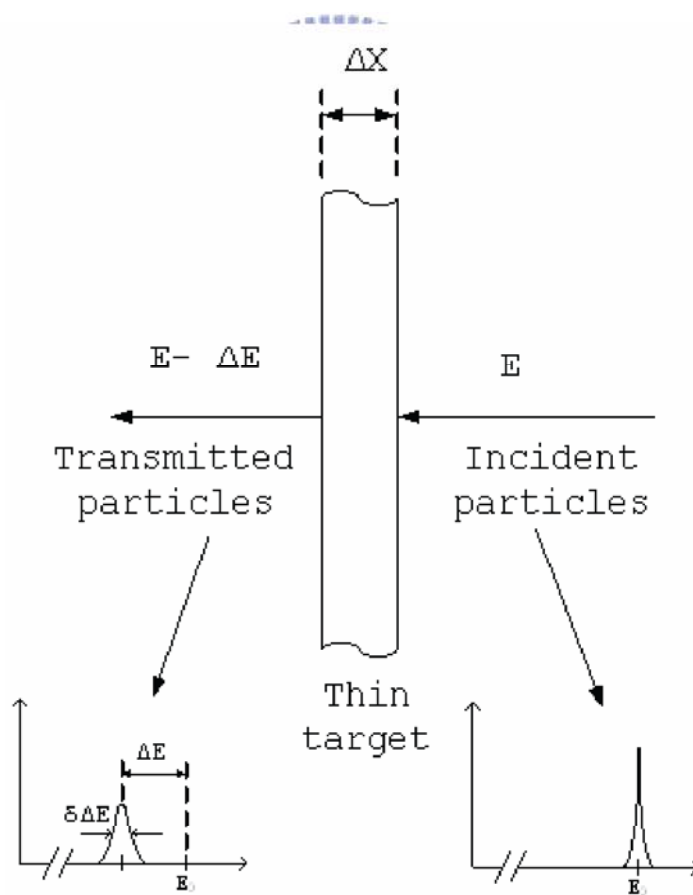


圖 4-2-3 阻擋本領：入射粒子經過  $\Delta x$  的距離，能量減少  $\Delta E$

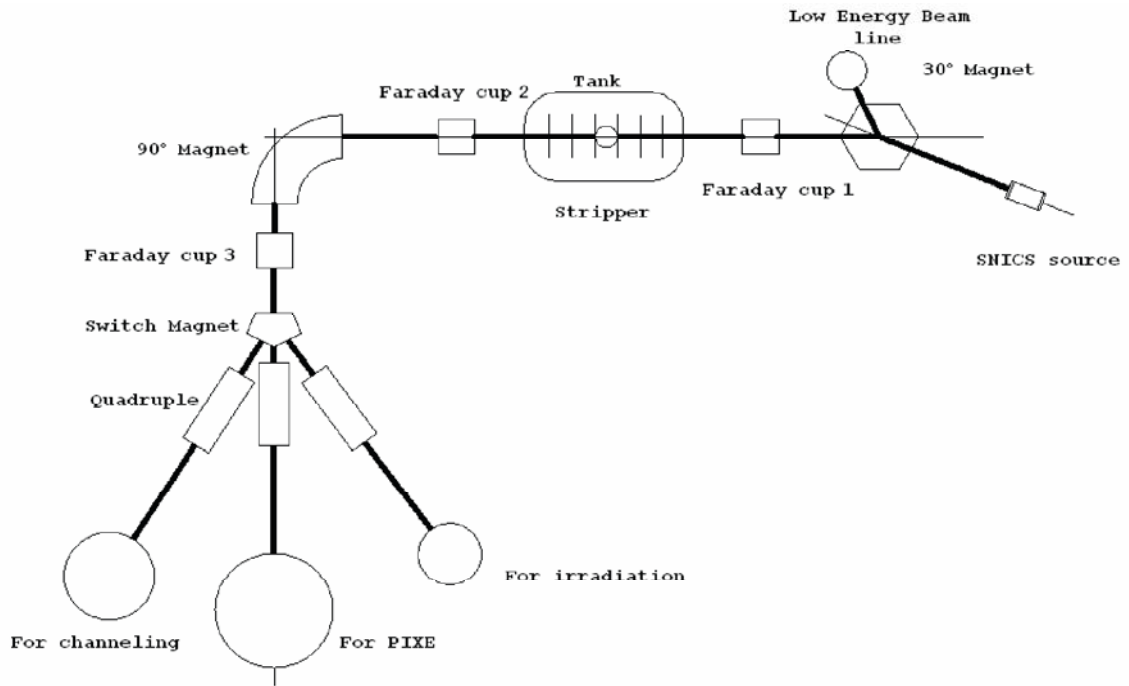


圖 4-3-1 9SDH-2 加速器系統

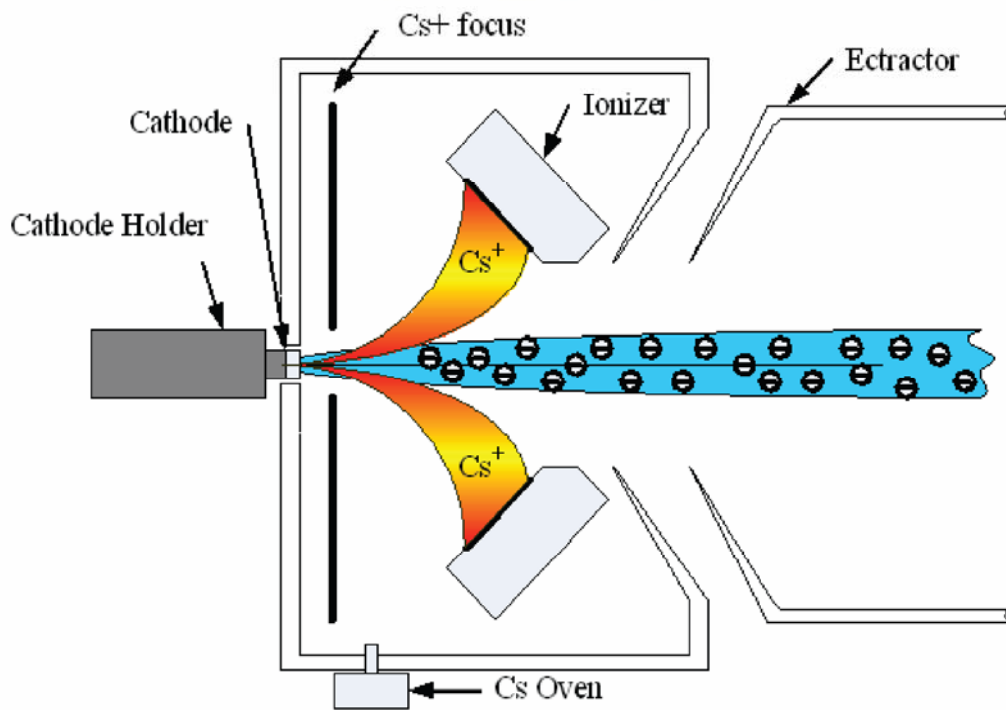


圖 4-3-2 SNICS 示意圖

Pelletron Charging System  
( Positive Configuration )

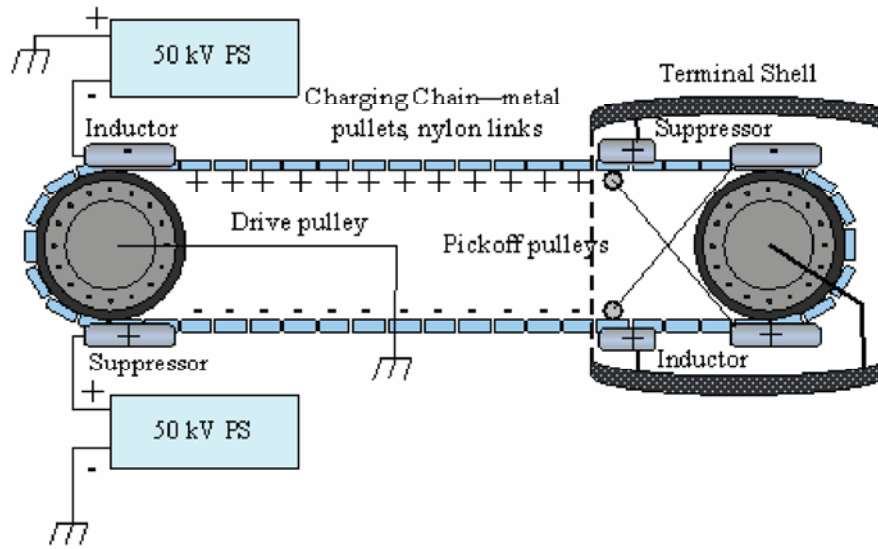


圖 4-3-3 正高壓產生系統

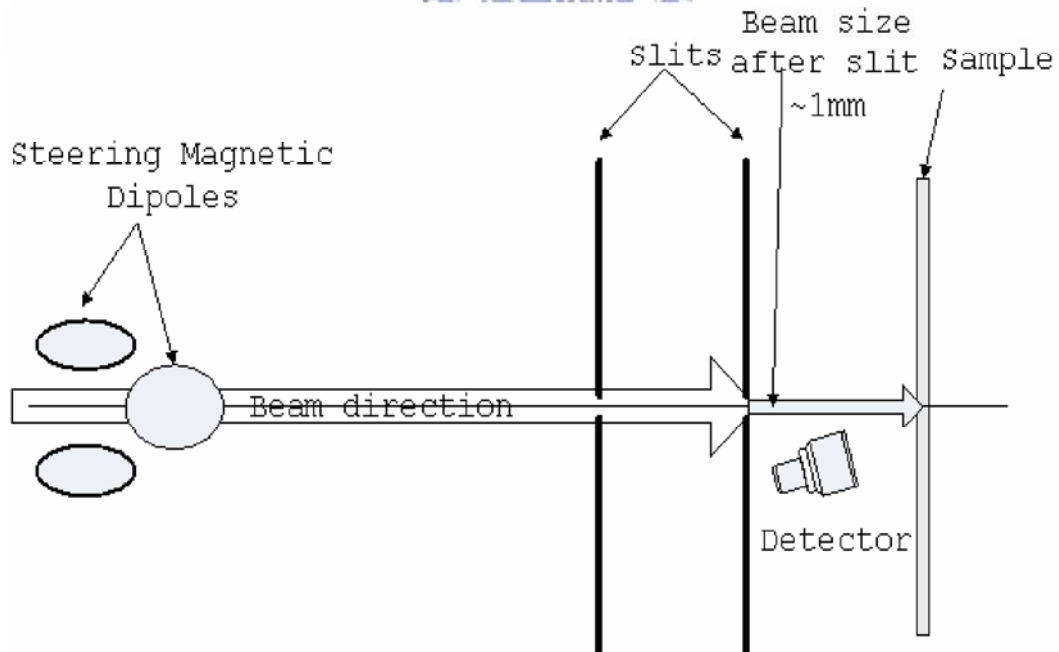


圖 4-3-4 溝道效應基本裝置圖

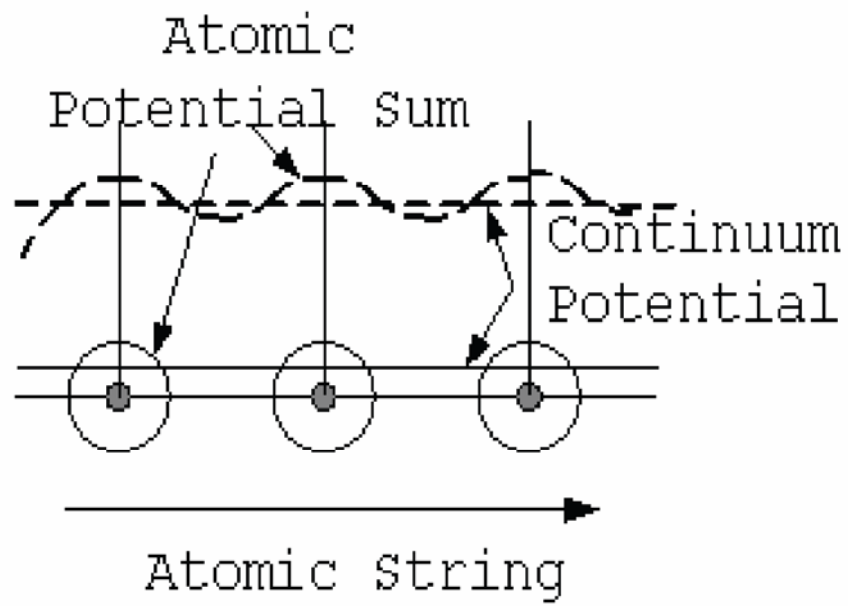


圖 4-3-5 連續位能與原子位能

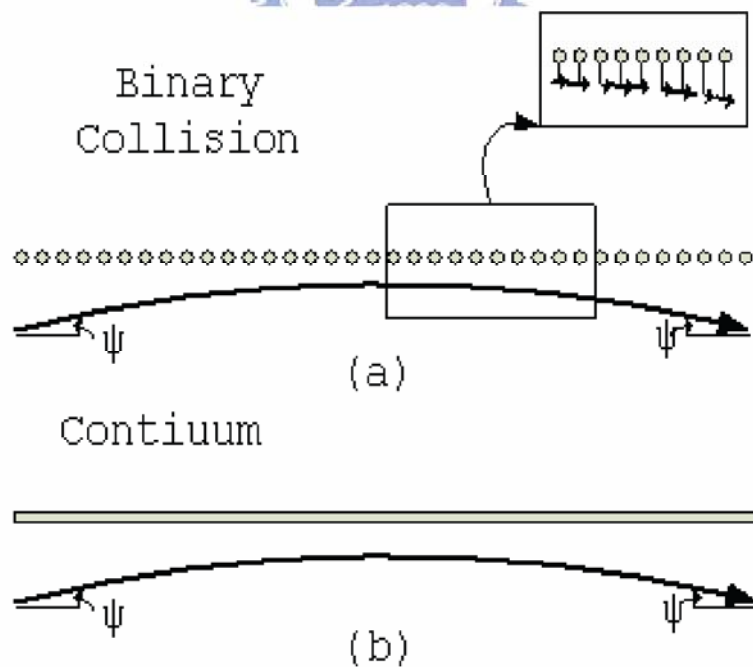


圖 4-3-6 離子在連續位能作用下的行為

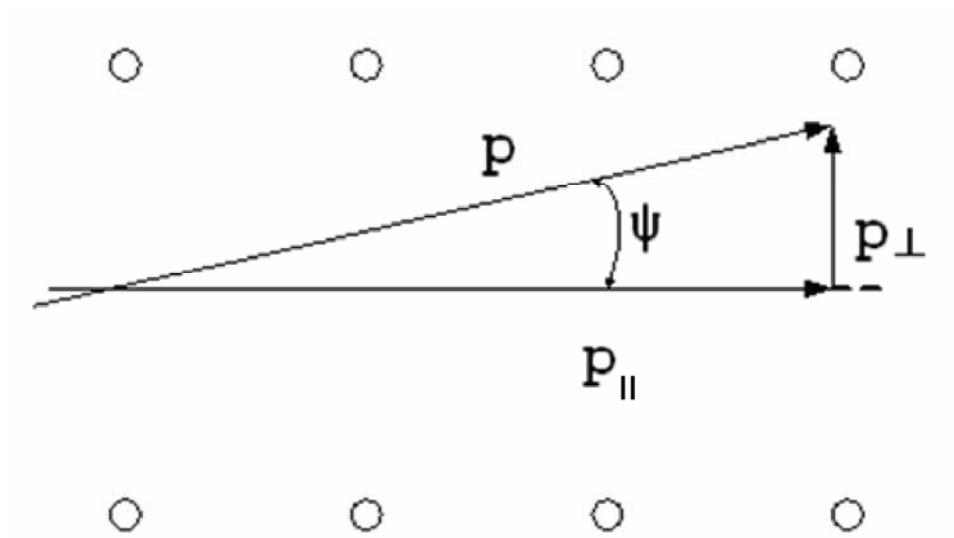


圖 4-3-7 入射離子在溝道中的橫向與縱向動量

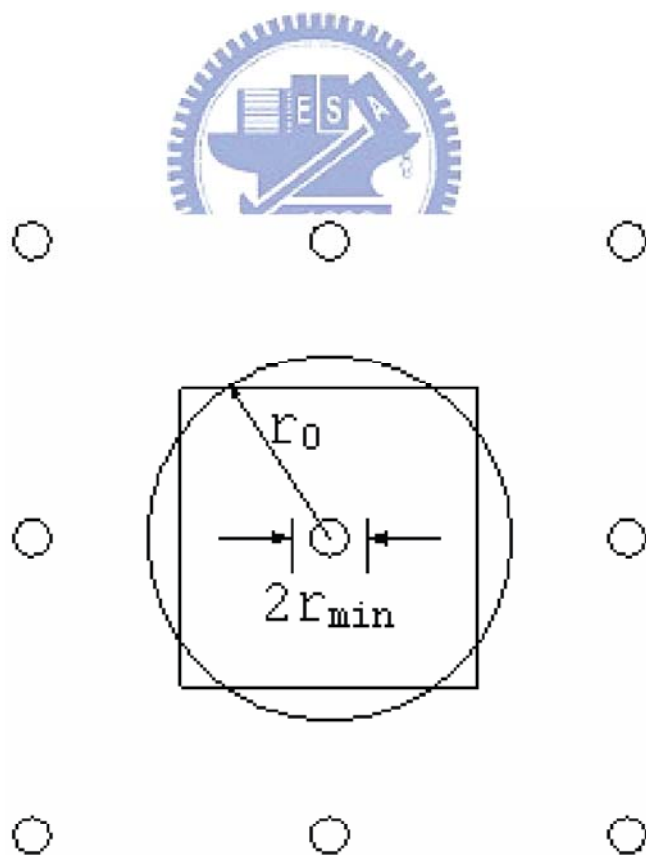


圖 4-3-8 最小產額之簡單模型



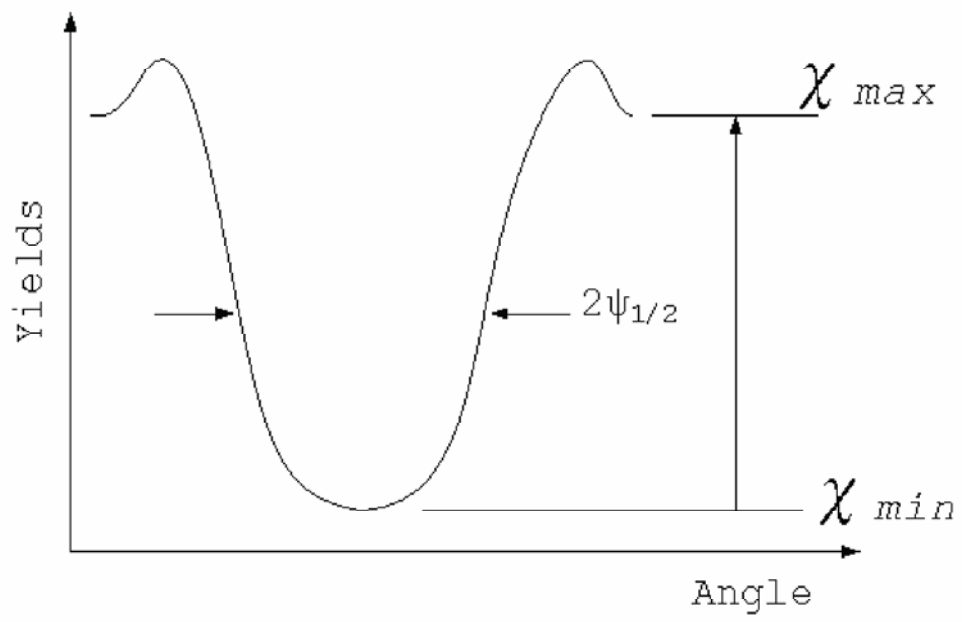
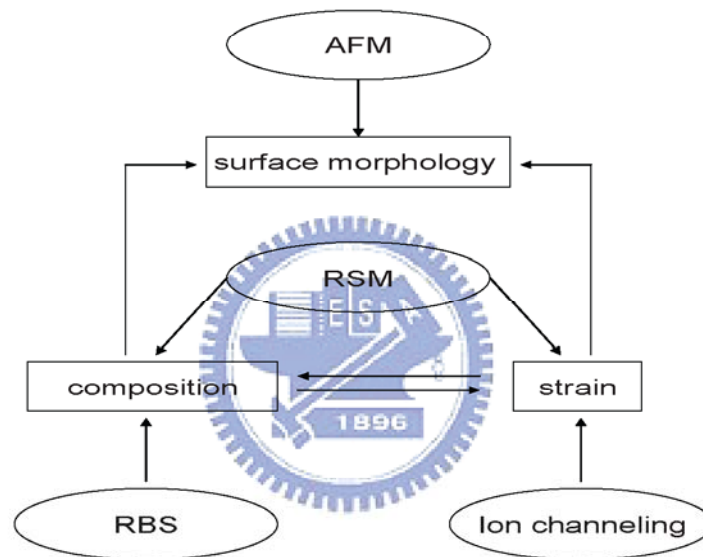


圖 4-3-9 dip 曲線

## 第五章 實驗結果與討論

本論文主要是針對砷化銦 (InAs) / 銻砷化鎵 (GaAsSb) / 砷化鎵 (GaAs) 的磊晶結構來進行研究，其量測分析可分為四大部分：(一) 倒空間圖譜 (RSM) 分析、(二) 拉塞福回向散射 (RBS) 分析、(三) 離子溝道效應 (Ion Channeling Effect) 分析以及(四) 原子力顯微鏡 (AFM) 分析，而彼此關聯性之概略圖如下所示。



### 5.1 銻砷化鎵之應變與組成成分

#### 5.1.1 倒空間圖譜 (RSM) 分析

關於 X 光繞射的所有分析中，針對晶格原子彼此間的關係，是以倒空間圖譜 (RSM) 分析為最有效也是最有力的分析技術。在第三章節中，我們了解到與 X 光繞射相關的基本原理，其中 RSM 分析以 [004] 與 [224] 的倒空間圖譜為主，尤其以 [224] RSM 更為重要。根據固態物理的原子形成因子 (atomic form factor) 可知，立體結構在 [004] 與 [224] 強度最強，故取 [004] 與 [224] 的 RSM，如圖 5-1-1 所示，圖中

分別標示完全鬆弛層 (fully relaxed layer)、部份鬆弛層 (partially relaxed layer)、完全應變層 (fully strained layer) 和[004]與[224]向量夾角  $\varphi$  為  $35.2643^\circ$ 。

圖 2-3 為樣品結構，經由 HRXRD 量測所得的對稱面[004]與非對稱面[224]的 RSM，其中從[224] RSM 可知 GaAsSb 的倒空間垂直向量  $q_{\perp L}$ 、水平向量  $q_{//L}$  與 GaAs 基板的倒空間垂直向量  $q_{\perp S}$ 、水平向量  $q_{//S}$ ，而倒空間的垂直(水平)向量大小  $q_{\perp}$  ( $q_{//}$ ) 與真實空間的垂直(水平)方向的晶格常數  $c$  ( $a$ ) 關係式如下：

$$c = \frac{4}{q_{\perp}}, \quad a = \frac{2\sqrt{2}}{q_{//}} \quad (5.1)$$

由(5.1)式可計算出 GaAsSb 的垂直(水平)方向晶格常數與 GaAs 基板的晶格常數。

銻(Sb)的含量( $x$ )及  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  的鬆弛程度 (relaxation degree)，可從非對稱面[224] RSM 作推算。而關係式由應變與波森比 (Poisson ratio,  $\nu$ ) 推導如下：

$$\begin{aligned} a_L^R &= c_L^R \\ c_L &= -\frac{2\nu}{1-\nu}(a_L - a_L^R) + a_L^R \\ \nu &= \nu_{\text{GaSb}} x + (1-x)\nu_{\text{GaAs}} \\ a_L^R &= a_{\text{GaSb}} x + (1-x)a_{\text{GaAs}} \end{aligned} \quad (5.2)$$

$$\text{Relaxation degree} = \frac{a_L - a_S}{a_L^R - a_S} \quad (5.3)$$

其中上標 R 表示為完全鬆弛，下標 L 表示為 GaAsSb，下標 S 表示為

GaAs 基板，a 表示為水平方向的晶格常數，c 表示為垂直方向的晶格常數。

由 HRXRD 量測所得的非對稱面[224] RSM 的樣品，經其分析整理如下表(5-1-2)所示：

	GaAs <sub>1-x</sub> Sb <sub>x</sub>	a <sub>L</sub> (nm)	c <sub>L</sub> (nm)	a <sub>s</sub> (nm)	x (%)	Relaxation (%)
Rn0474	10nm	0.56530	0.58276	0.5653	20.7	0
Rn0515	20nm	0.56572	0.58519	0.5653	24.0	3.95
Rn0475	30nm	0.56614	0.58276	0.5653	21.6	8.8
Rn0516	40nm	0.56792	0.58346	0.5653	24.33	24.30
Rn0517	60nm	0.57036	0.58279	0.5653	26.16	43.67
Rn0514	90nm	0.57393	0.58250	0.5653	29.64	65.73
Rn0476	200nm	0.57437	0.58144	0.5653	28.86	70.97

其中非對稱面[224]的倒空間圖譜，如圖(5-1-3~7)所示。

從分析結果可知：在相同狀況下所成長的樣品，GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的銻含量與其鬆弛程度會隨著 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的厚度增加而增加。這是因為 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 與 GaAs 的水平方向的晶格常數不同，所以當 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 成長在 GaAs 基板上時，一開始 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 會受到下面 GaAs 基板所貢獻的一份壓縮應力影響，而以彼此晶格常數相匹配的方式繼續成長，當成長了稍許時間之後，GaAs 基板對上層 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 所貢獻的那份壓縮應力，已經不足以完全限制 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的成長行為，而此時上層的 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 則是以慢慢釋放應力的方式繼續成長。因此，當 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的厚度持續增加，其銻含量與鬆弛程度也會隨之增加。圖(5-1-8)為 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的鬆弛程度 (relaxation degree) 對其厚度的關係圖<sup>[14]</sup>、圖(5-1-9)為 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的銻含量與其厚度的關係圖<sup>[15]</sup>。

### 5.1.2 拉塞福回向散射能譜 (RBS) 分析

從對稱面[004]、非對稱面[224]的倒空間圖譜與[004]XRD 的圖形可知，上層的  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  的銻含量在結構中似乎有些改變。因此，為了更深入了解元素種類、組成與縱深分佈，於是將所有樣品都進行拉塞福回向散射實驗。

圖(5-1-10)、(5-1-11)與(5-1-12)分別為 Rn0475、Rn0517 與 Rn0476 的拉塞福回向散射能譜。當一束能量為 2MeV 的入射離子 ( $\text{He}^+$ ) 射入 Rn0475、Rn0517 與 Rn0476 樣品中，因為樣品中的三個元素鎡 (Ga)、砷(As)與銻(Sb)的原子量分別為 69.72、74.92 與 121.76，所以經與任一元素碰撞後的散射離子能量皆不同。在第四章節中，我們知道拉塞福回向散射原理的運動因子( $K_\theta$ )值越大，散射離子的能量也就越大。因此，樣品中的三元素以 Sb 的運動因子最大，Ga 的運動因子最小，所以可知與元素 Sb 碰撞後的散射離子能量最大，而與元素 Ga 碰撞後的散射離子能量最小。由圖(5-1-10)、(5-1-11)與(5-1-12)可知散射離子能量大的部分為元素 Sb 的訊號，而能量其次的部份則為元素 Ga 和 As 一起貢獻的訊號。

先針對圖(5-1-10)、(5-1-11)與(5-1-12)的散射離子能量大的部分(即為元素 Sb 的訊號)加以分析，我們知道右側的半高點位置對應於入射離子與表面的 Sb 元素散射後的離子能量，而左側的半高點位置則對應於入射離子穿透靶材與最裡層的 Sb 元素產生散射後的離子能量。兩者之差稱為半高寬 (full-width at half-maximum, FWHM)，代表靶材的厚度，至於能量的差異主要是因為當入射離子射入靶材之後，會與靶材原子產生一連串的碰撞，因而損失能量。

同理，圖形中能量次之的部份(即為元素 Ga 和 As 共同的訊號)，其右側半高點的位置對應於入射離子與表面的 Ga 和 As 元素共

同散射後的離子能量，至於低能量的部份則為基板的 Ga 和 As 元素所一起貢獻的訊號。再者，我們也發現了拉塞福回向散射能譜的左邊比右邊高，是因為 RBS 的散射截面 (scattering cross section) 與入射能量的平方成反比。因此，在拉塞福回向散射能譜上，較低能量的散射離子對應於具有較大的散射截面，同時也相當於具有較大的散射產率。

最後，將 RBS 的實驗結果進行模擬分析，我們發現上層  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  的銻含量是作漸增式 (grading) 的分佈，換言之上層  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  的銻(Sb)有著隔離 (segregation) 的現象，如圖(5-1-13)所示。且銻含量的主要峰值訊號也與表(5-1-2)的銻含量趨勢是相吻合的，如圖(5-1-14)所示。

### 5.1.3 離子溝道效應 (Ion Channeling Effect) 分析

從 5.1.1 RSM 分析與 5.1.2 RBS 分析中，我們可以了解在相同狀況下成長的  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$ ，其銻含量是呈現出漸增式的分佈，並且可以知道其鋒值的鬆弛程度。為了更深入了解縱深的應力分布，我們進行離子溝道效應 (ion channeling effect) 實驗<sup>[16][17]</sup>。

圖(5-1-15)、(5-1-16)、(5-1-17)與(5-1-18)分別為 Rn0474、Rn0475、Rn0517 與 Rn0514 的重離子拉塞福回向散射 / 離子溝道效應能譜。在一束能量為 4.1MeV 的入射重離子 ( $\text{C}^{2+}$ ) 射入 Rn0474、Rn0475、Rn0517 與 Rn0514 四個樣品中，當入射重離子與晶軸方向偏移一小角度時，重離子散射行為猶如 RBS；若當入射重離子與晶軸方向完全平行時，回向散射的重離子達到最小值，即大部分的重離子都穿梭在樣品內部進行探測，此稱為離子溝道效應。

將重離子 RBS 的實驗結果進行模擬分析，我們發現上層的

GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 的銻含量對其深度的關係，仍然是作漸增式 (grading) 的分佈，如圖(5-1-19)所示。與先前的輕 (He<sup>+</sup>) 離子 RBS 比較，發現重離子 (C<sup>2+</sup>) RBS 有較高的鑑別率，其原因是根據(4-2)式，當散射角越大時，不同的靶材元素之間越容易分辨。不過，限於實驗入射離子的方向，偵測器不可能擺在 180° 處。因此，為了提高對不同靶材元素的鑑別率，唯有提高入射離子能量與採用較高質量的入射離子。

圖(5-1-20)、(5-1-21)、(5-1-22)與(5-1-23)分別為 Rn0474、Rn0475、Rn0517 與 Rn0514 在[001]方向的 Dip 曲線。在軸溝道效應下，我們知道[001]方向的 Dip 曲線的半高寬 (FWHM) 正比於(4-19)式子，即正比於晶格原子間距的倒數再開平方根。至於，曲線中的最小產額大小可以讓我們了解到在不同位置下回向散射的離子數有多寡。因此，由圖(5-1-20)顯示 GaAs 基板與上層的 GaAsSb 的半高寬約略相等，所以我們可以知道 10nm GaAsSb 與 GaAs 基板的晶格常數相同 (lattice match)，表示上層 GaAsSb 受下層的 GaAs 基板一壓縮應力。其次，由圖(5-1-21)顯示 GaAs 基板與上層的 GaAsSb 的半高寬稍許不相等，因此我們可以知道 30nm GaAsSb 與 GaAs 基板的晶格常數稍許不相同，表示上層 GaAsSb 已經開始釋放應力。至於，Ga + As (含 GaAs 基板) 的最小產額大小，由圖中顯示越深層最小產額越大，其主要原因是入射離子在溝道中行進的路程越長，與周圍的晶格原子碰撞的機會就越高，回向散射的機率也就越大。再者，由圖(5-1-22)與(5-1-23)顯示 GaAs 基板與上層的 GaAsSb 的半高寬明顯不相等，因此我們可以知道 60nm、90nm 的 GaAsSb 分別與 GaAs 基板的晶格常數不相同 (lattice mismatch)，表示上層 GaAsSb 分別已經有某種程度上的鬆弛。最後，由圖(5-1-22)顯示表面銻與深層銻的半高寬明顯不相等，所以我們知道不同位置的銻，晶格常數不相同，其所受的應力程度也

不同，如深層的銻大於表面的銻。

## 5.2 砷化銻奈米結構之表面型態

原子力顯微鏡 (atomic force microscope ; AFM) 是一種可以偵測奈米尺度的工具。根據 AFM 所觀察到樣品外觀的物理結構，我們可以確定樣品本身的量子點結構，另外也可以獲得其他重要參數，如量子點的密度、高度、寬度、均勻度等等。本實驗利用 AFM 觀察砷化銻 (InAs) 奈米結構成長在不同厚度的銻砷化鎵 (GaAsSb) 緩衝層上，發現隨著 GaAsSb 厚度的增加，樣品表面的 InAs 奈米結構會呈現出三種不同的分佈型態：(1) InAs 奈米結構在 GaAsSb 緩衝層上隨機 (random) 分佈<sup>[18]</sup>、(2) 其奈米結構在田埂狀 (cross-hatching) 的表面上選擇性的成長、(3) 其奈米結構漸漸地消失，最後僅剩田埂狀的表面型態，如圖(5-2-1)所示。此結果我們認為可能與隨著 GaAsSb 厚度的增加，其鬆弛程度隨之增加有關係。



## 第六章 結論

本實驗是將 3 ML InAs 奈米結構成長在緩衝層 GaAsSb / GaAs 上，主要研究緩衝層 GaAsSb 隨著厚度的變化，其應變與組成成分的變化，並觀察其上的 InAs 奈米結構的表面型態。

因此，首先，由倒空間圖譜 (RSM) 的分析，使我們知道隨著緩衝層 GaAsSb 厚度的增加，其鬆弛程度與銻的峰值含量也隨之增加，而主要原因是上下兩層晶格不匹配造成 GaAsSb 厚度增加導致其釋放應力的結果。再者，由拉塞福回向散射 (RBS) 分析，使我們發現緩衝層 GaAsSb 的銻含量是呈現出漸增式 (grading) 的分佈，其原因我們推測是應力誘發銻元素有著隔離 (segregation) 的現象，且此含量分佈與 RSM 的結果有著相同的趨勢。甚至，由離子溝道效應 (Ion Channeling Effect) 分析，讓我們了解到在樣品中不同位置的元素，如表面的銻與深層的銻，其所受的應力也不同，如深層的銻大於表面的銻。

最後，由原子力顯微鏡 (AFM) 分析，讓我們觀察到樣品表面的 InAs 奈米結構的分佈型態：(1) 隨機分佈，(2) 在田埂狀 (cross-hatching) 的表面上選擇性的成長，(3) 奈米結構漸漸地消失，最後僅剩田埂狀的表面型態。此結果我們認為可能與隨著 GaAsSb 厚度的增加，其鬆弛程度隨之增加有關係。

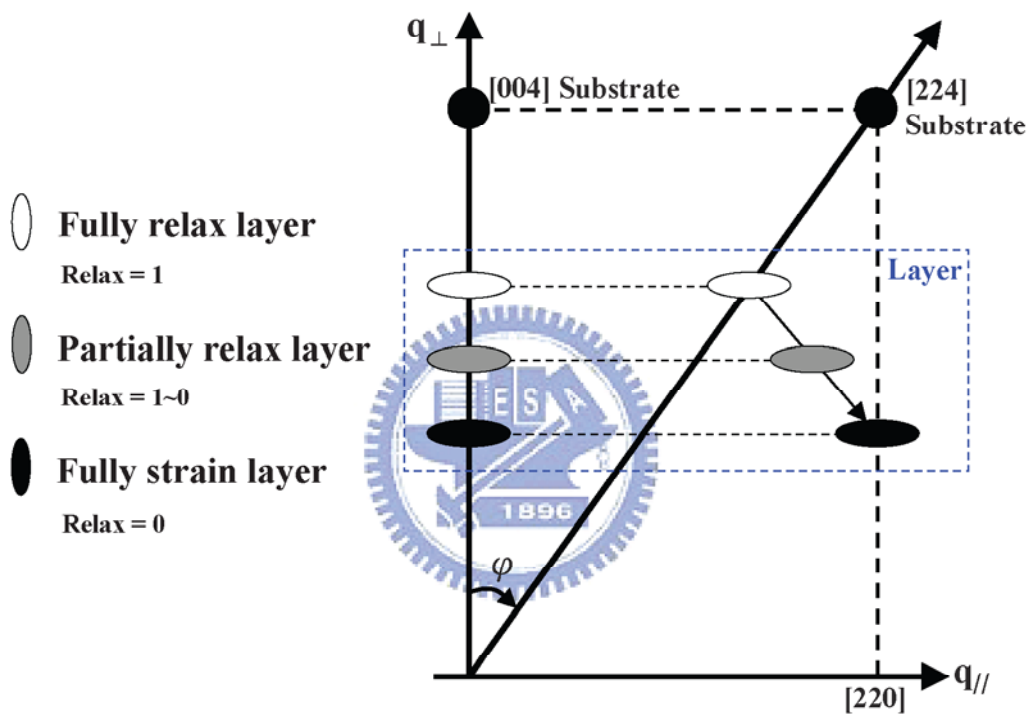


圖 5-1-1 鬆弛層與應變層之[004]與[224]的倒空間圖譜

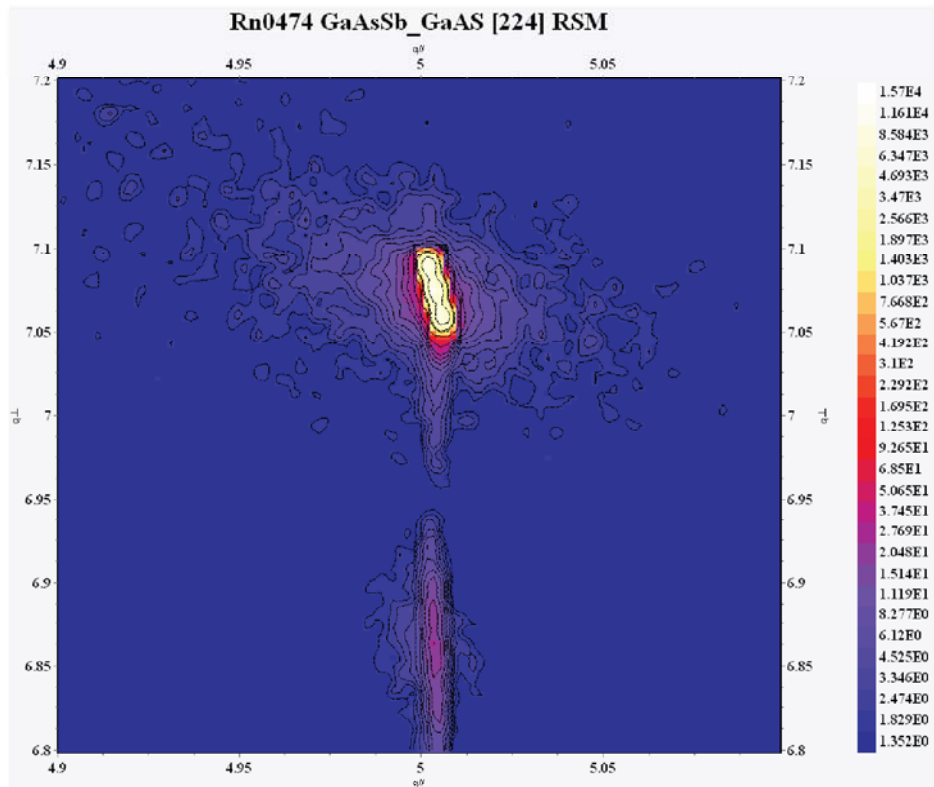


圖 5-1-3 在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖譜

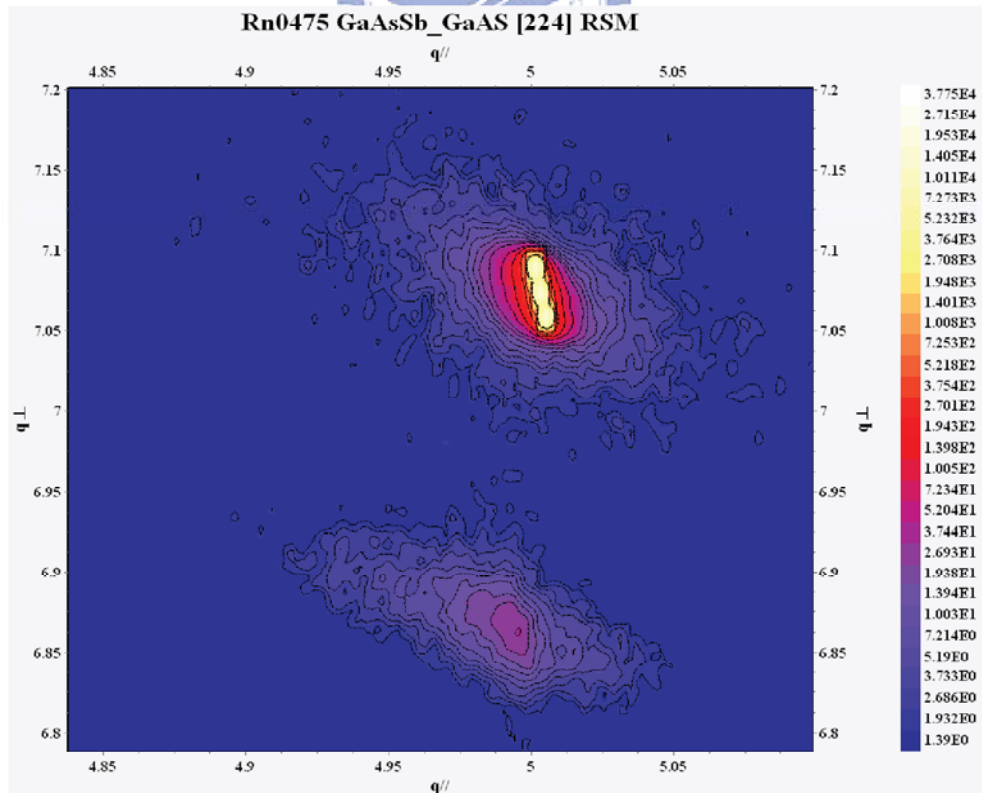


圖 5-1-4 在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖譜

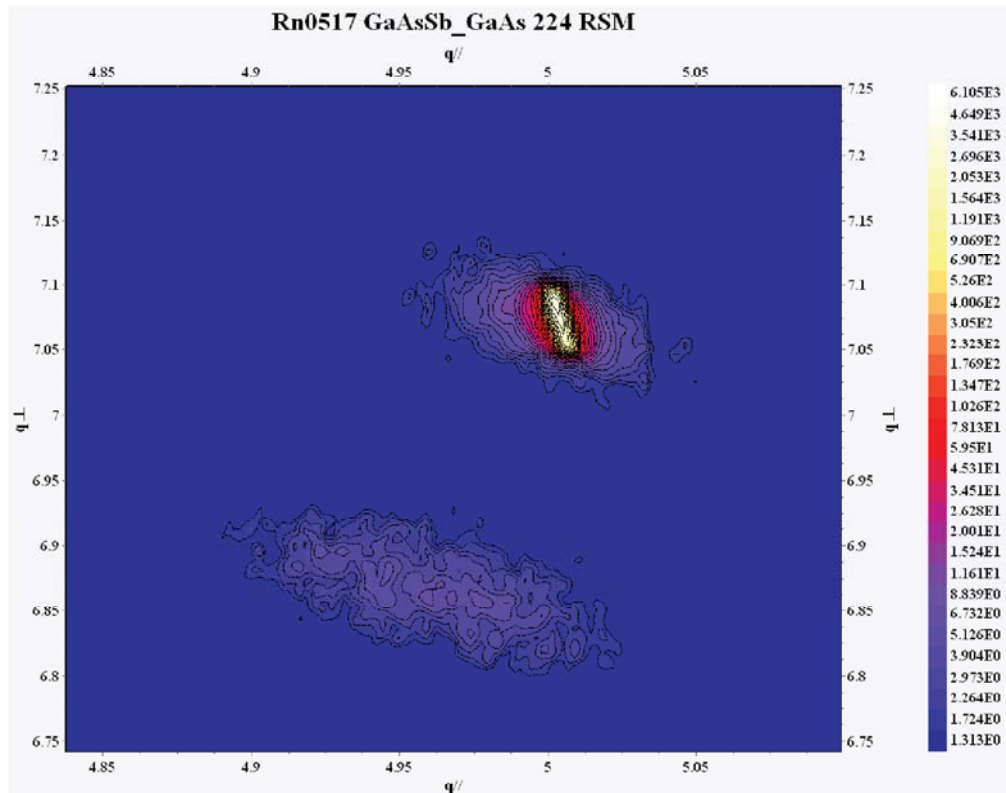


圖 5-1-5 在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖譜

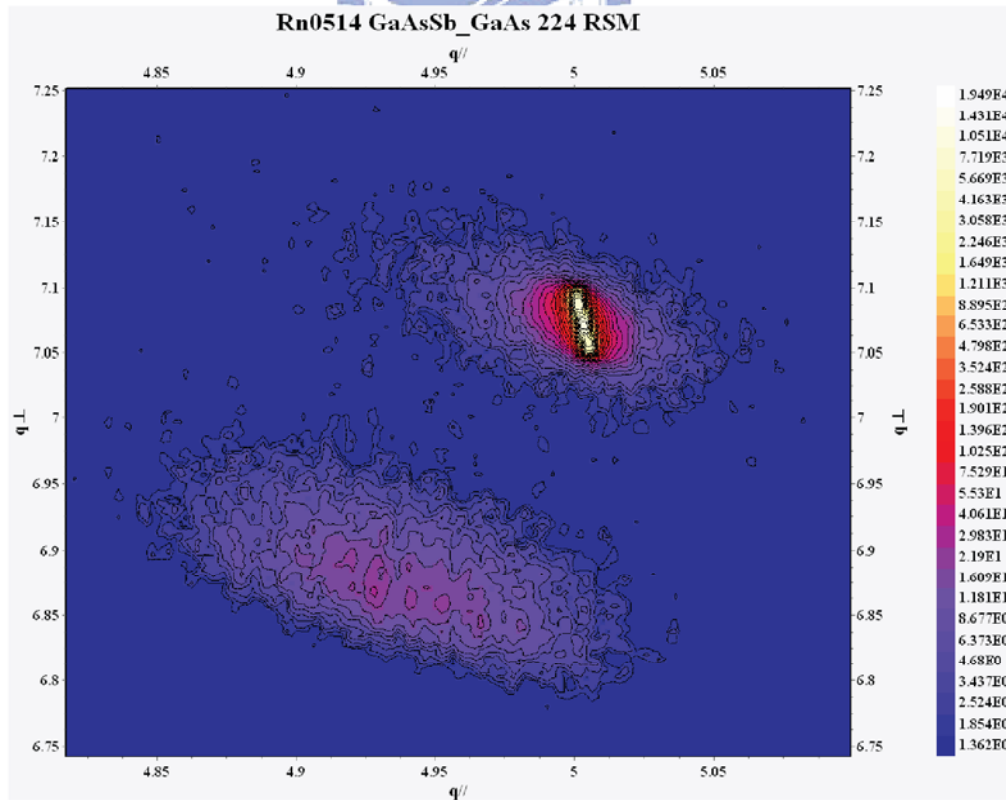


圖 5-1-6 在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖譜

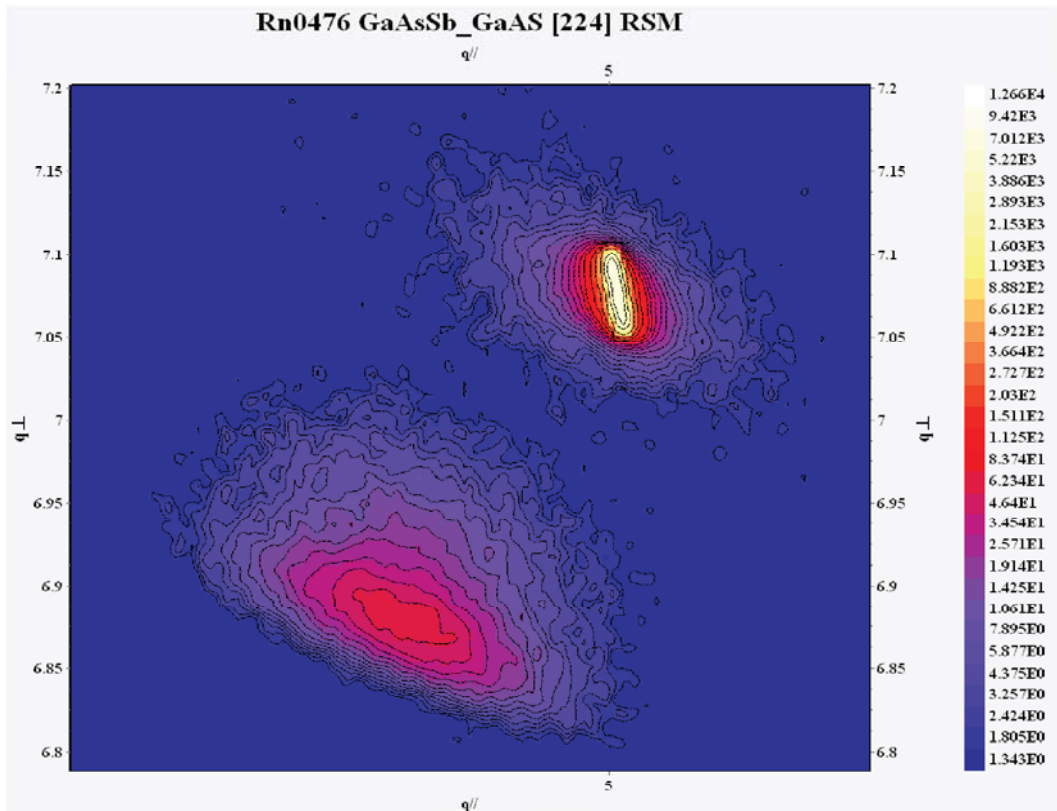


圖 5-1-7 在銻砷化鎵厚度為 200nm 時的非對稱面[224]的倒空間圖譜

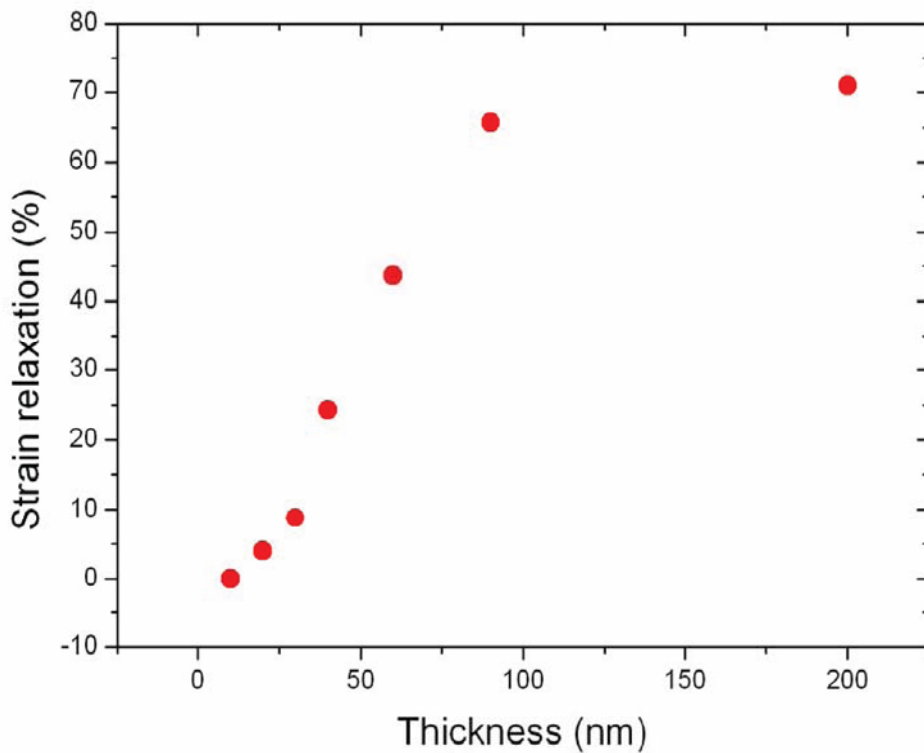


圖 5-1-8 銻砷化鎵的鬆弛程度對其厚度的關係圖

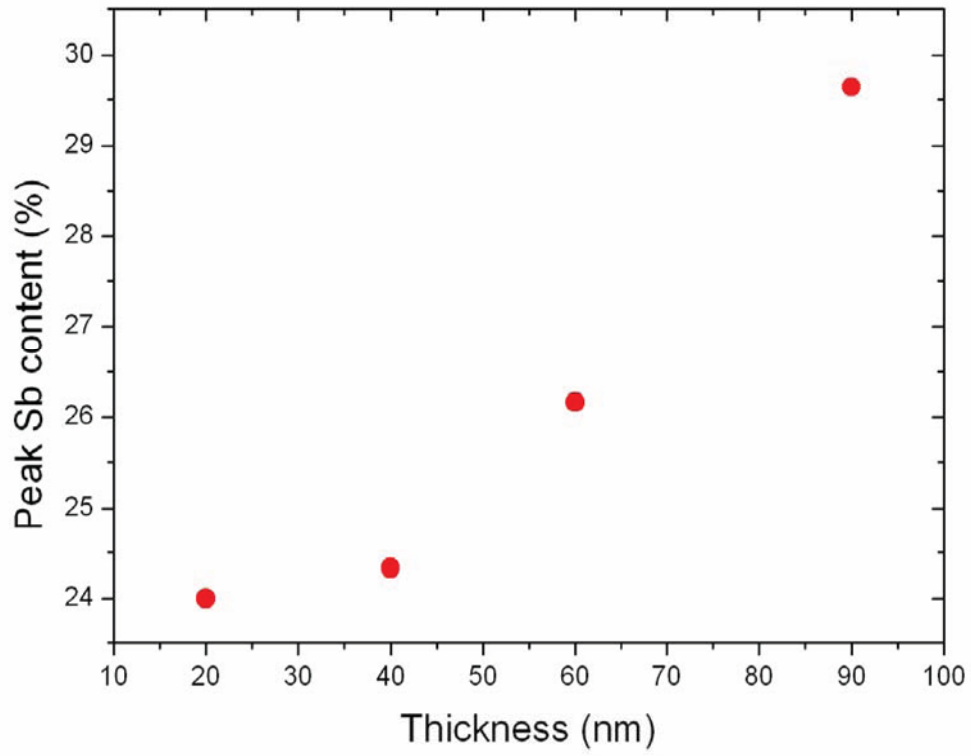


圖 5-1-9 銻砷化鎵的峰值銻含量對其厚度的關係圖

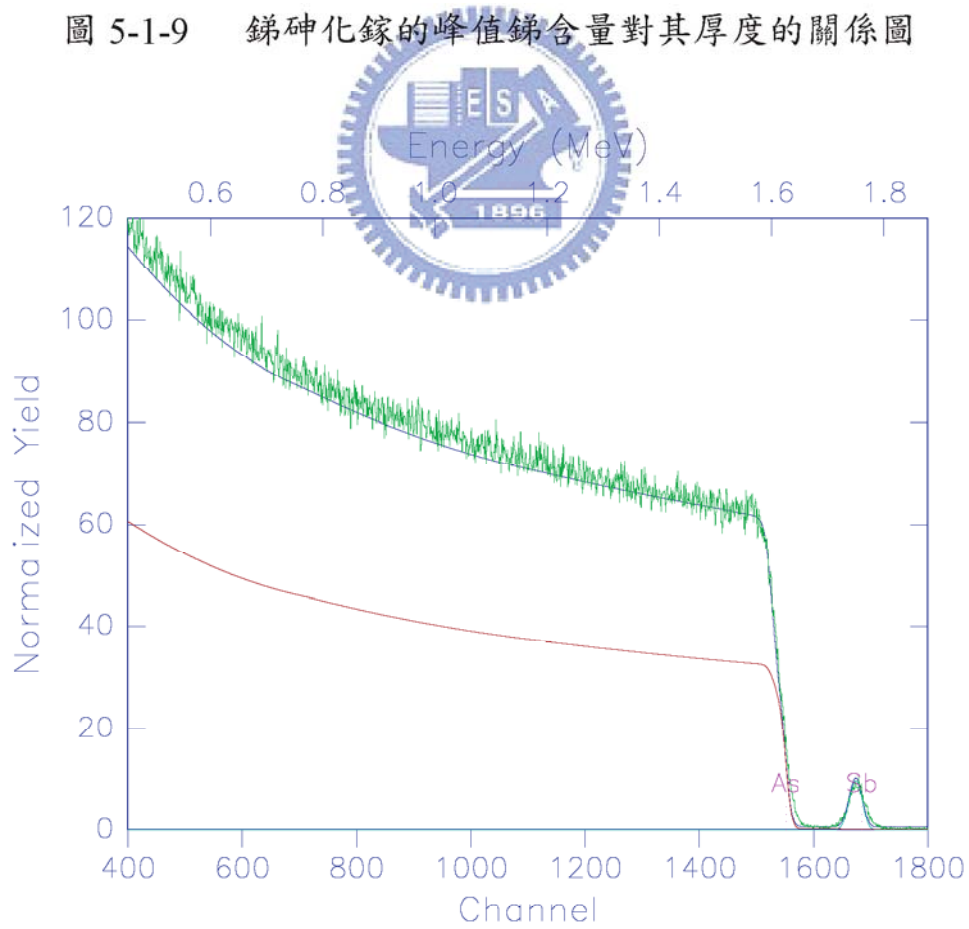


圖 5-1-10 在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的拉賽福回向散射能譜圖

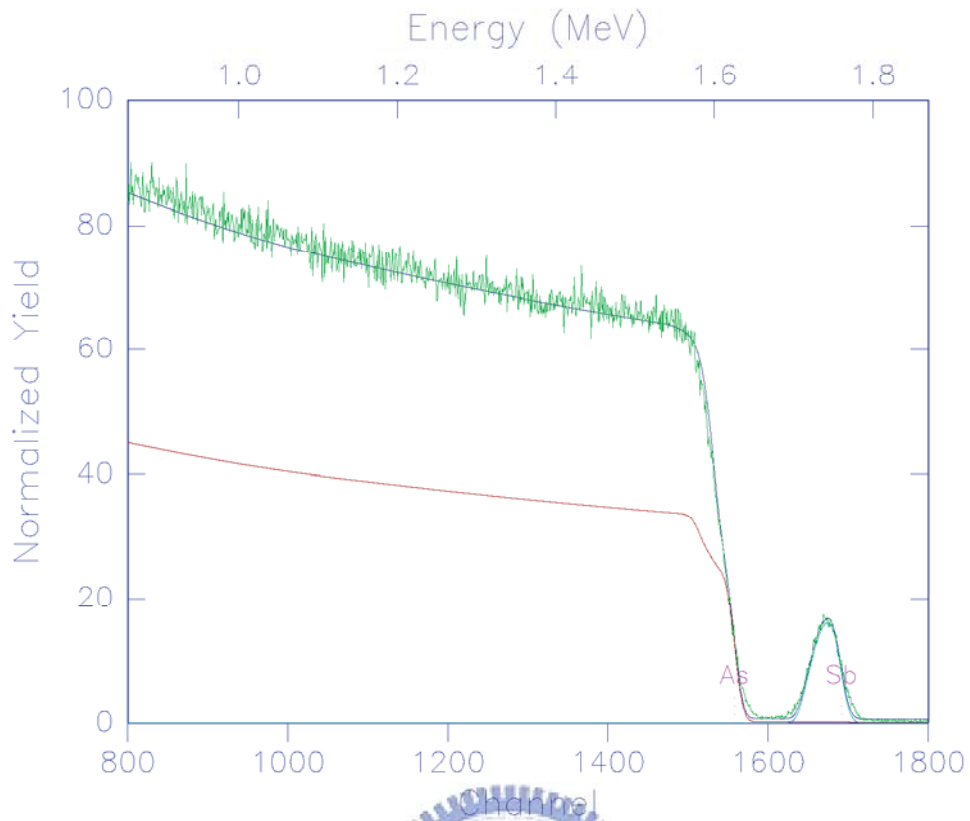


圖 5-1-11 在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的拉賽福回向散射能譜圖

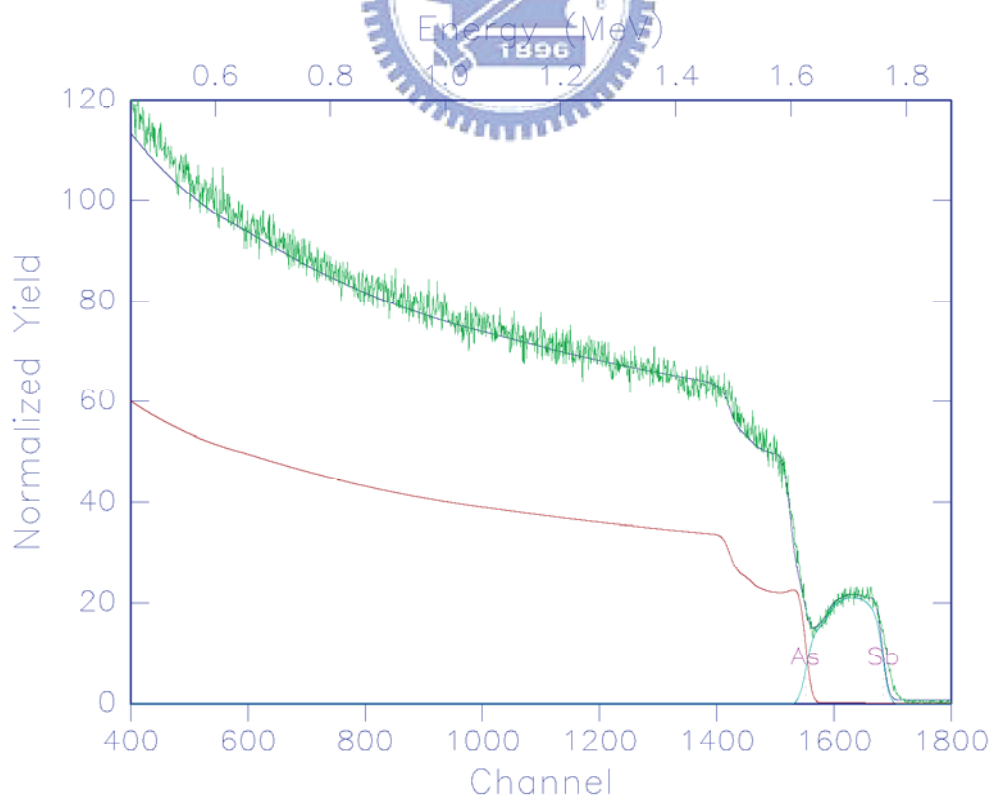


圖 5-1-12 在銻砷化鎵厚度為 200nm 時的拉賽福回向散射能譜圖

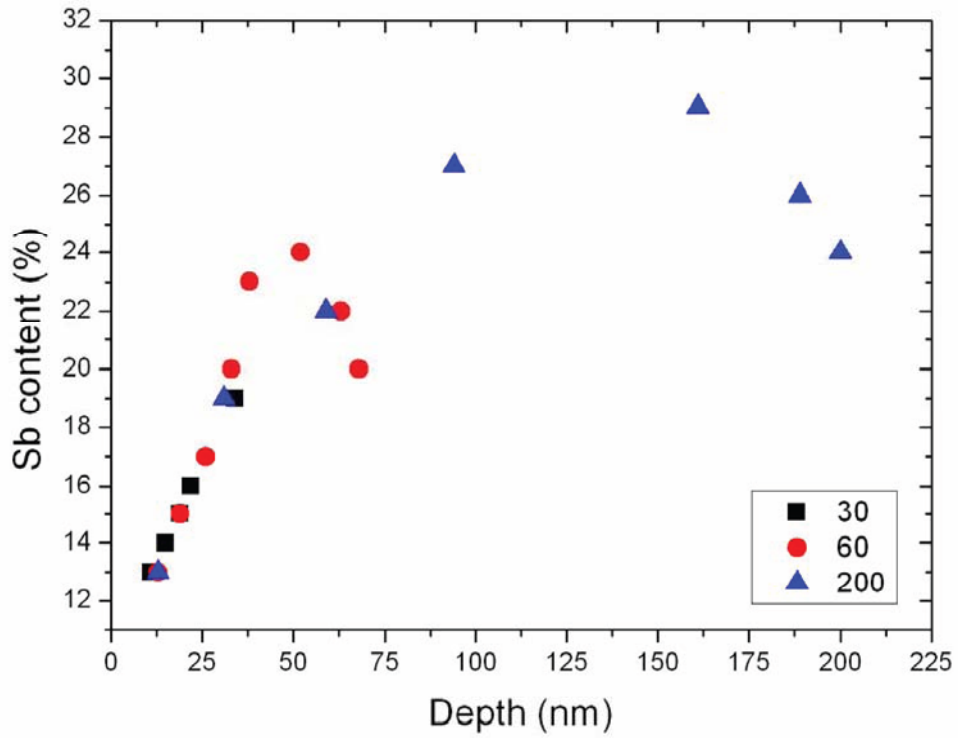


圖 5-1-13 輕離子射入於不同厚度的銻砷化鎵其銻含量對深度的關

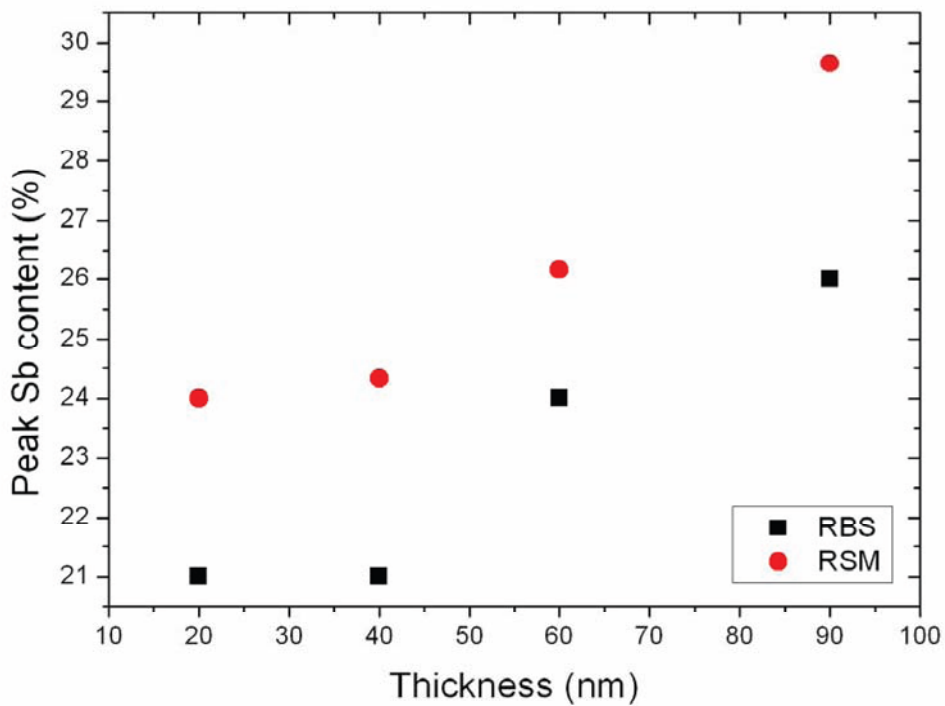


圖 5-1-14 RBS 與 RSM 的峰值銻含量對不同厚度的銻砷化鎵的比較

圖



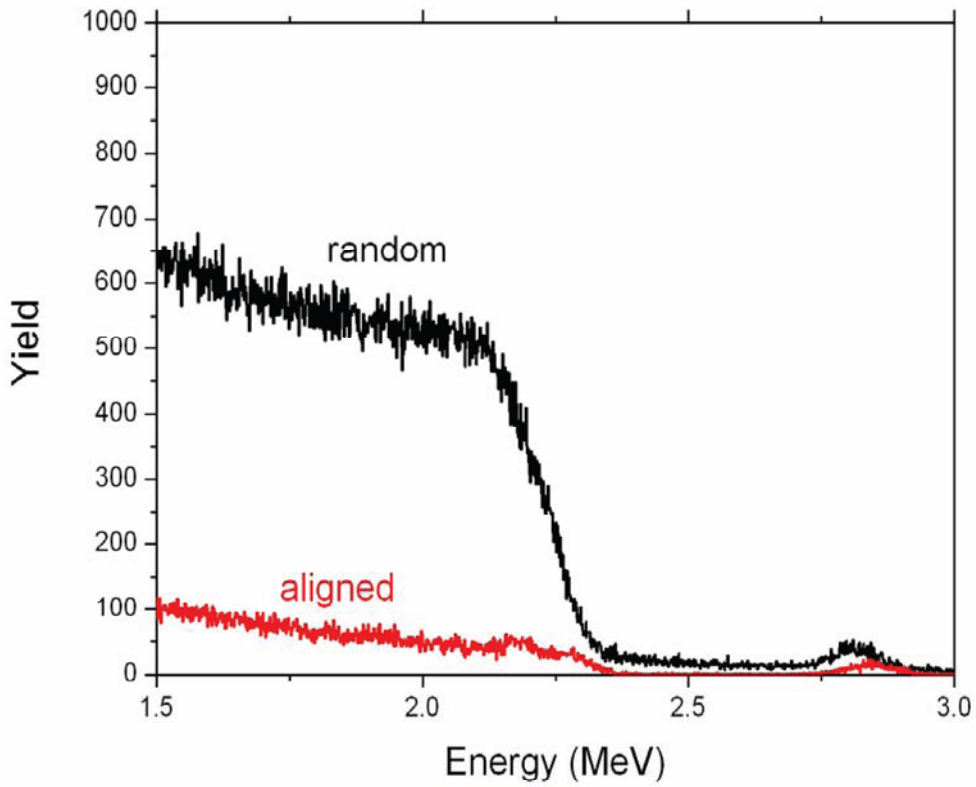


圖 5-1-15 在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的重離子溝道效應能譜圖

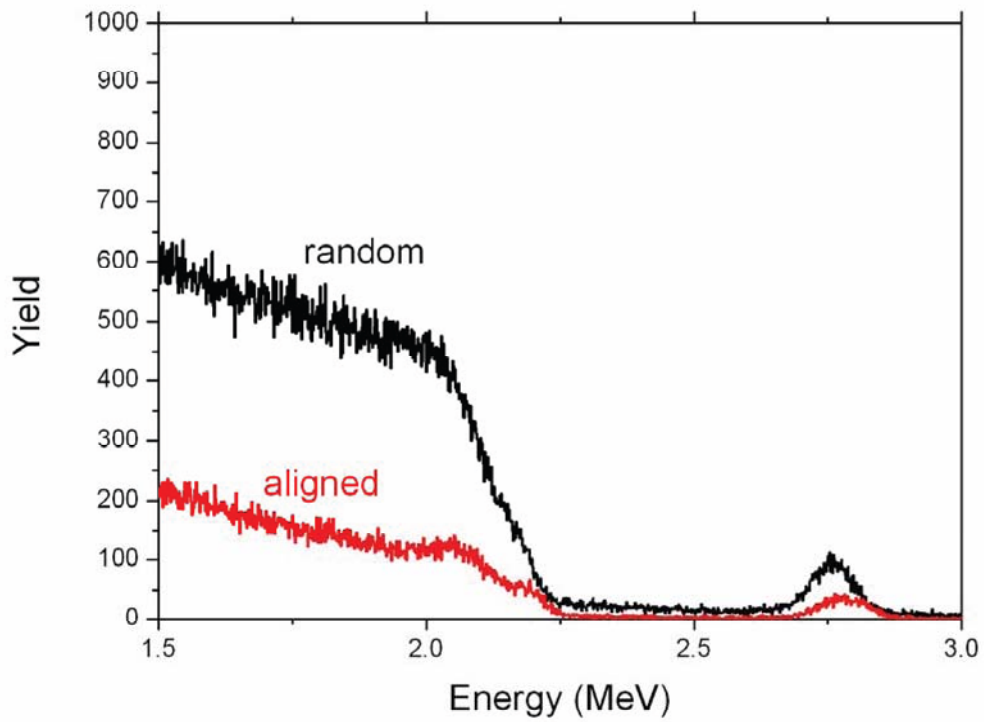


圖 5-1-16 在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的重離子溝道效應能譜圖

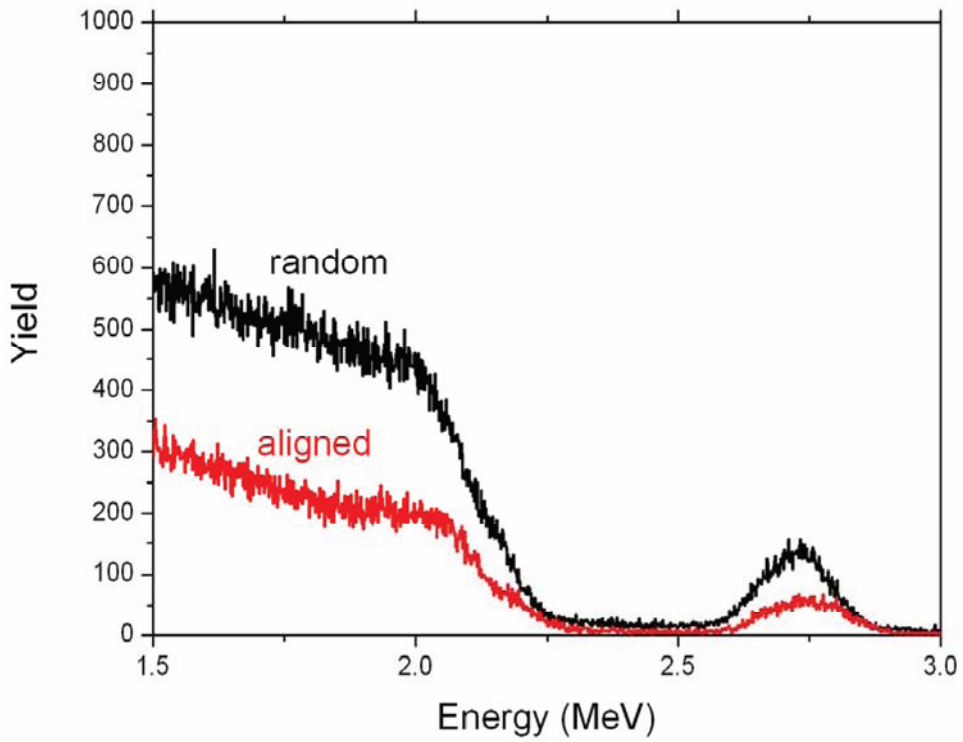


圖 5-1-17 在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的重離子溝道效應能譜圖

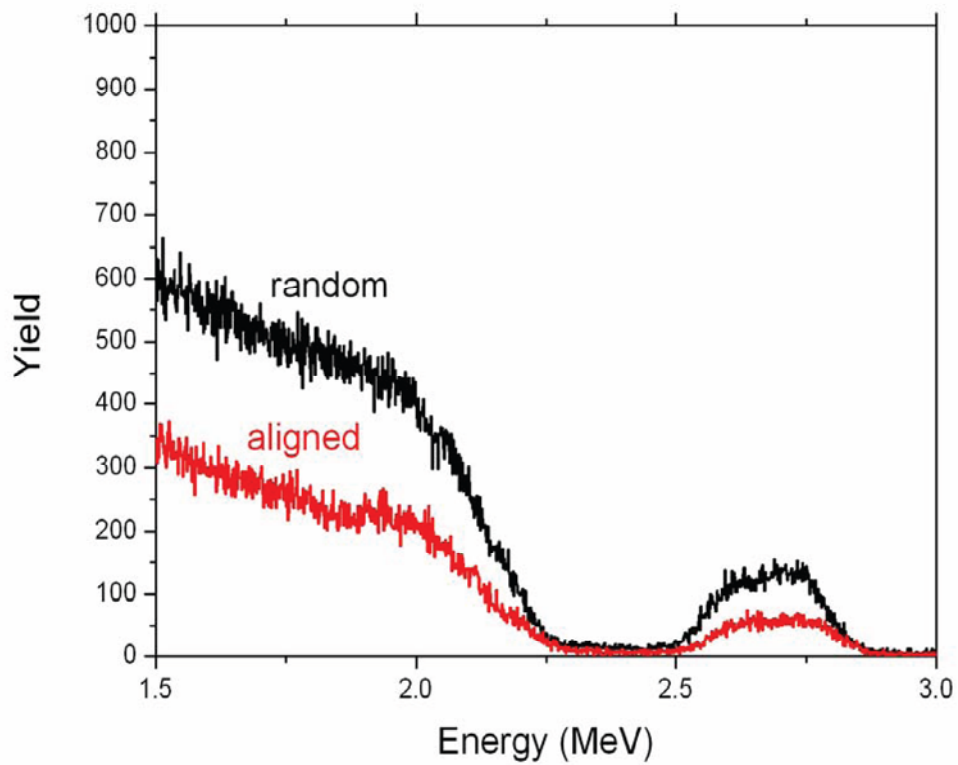


圖 5-1-18 在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的重離子溝道效應能譜圖

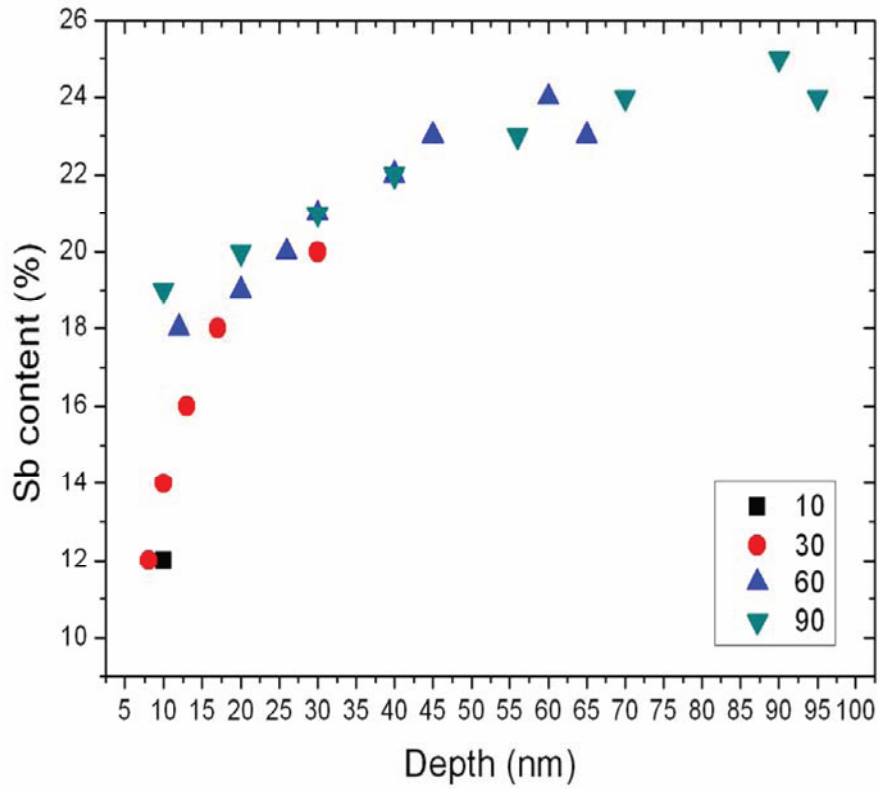


圖 5-1-19 重離子射入於不同厚度的銻砷化鎵其銻含量對深度的關

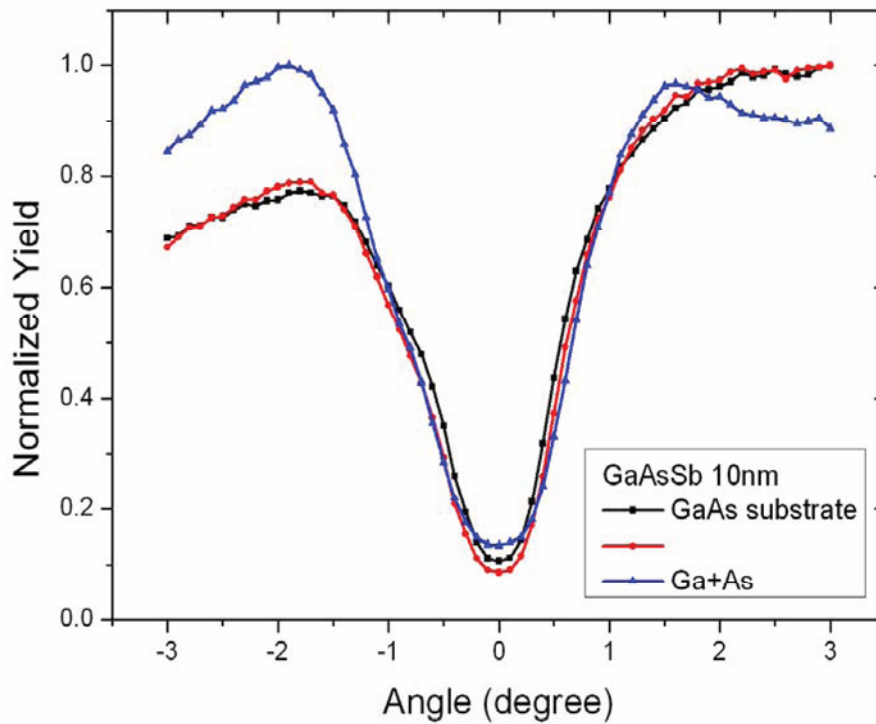


圖 5-1-20 在銻砷化鎵厚度為 10nm 時的[001]方向 dip 曲線

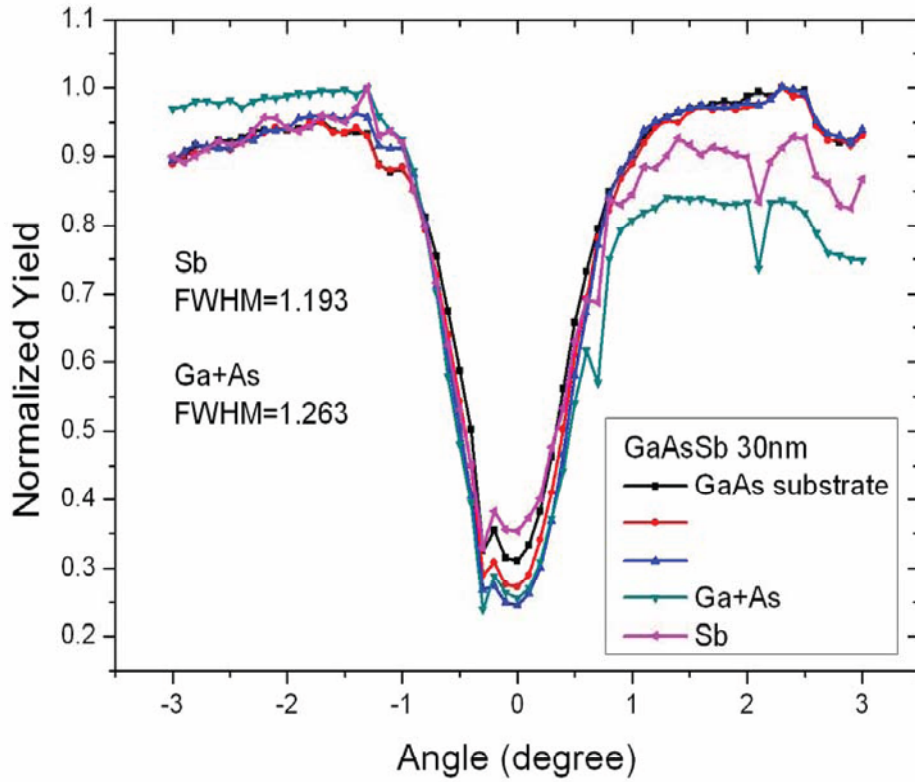


圖 5-1-21 在銻砷化鎵厚度為 30nm 時的[001]方向 dip 曲線

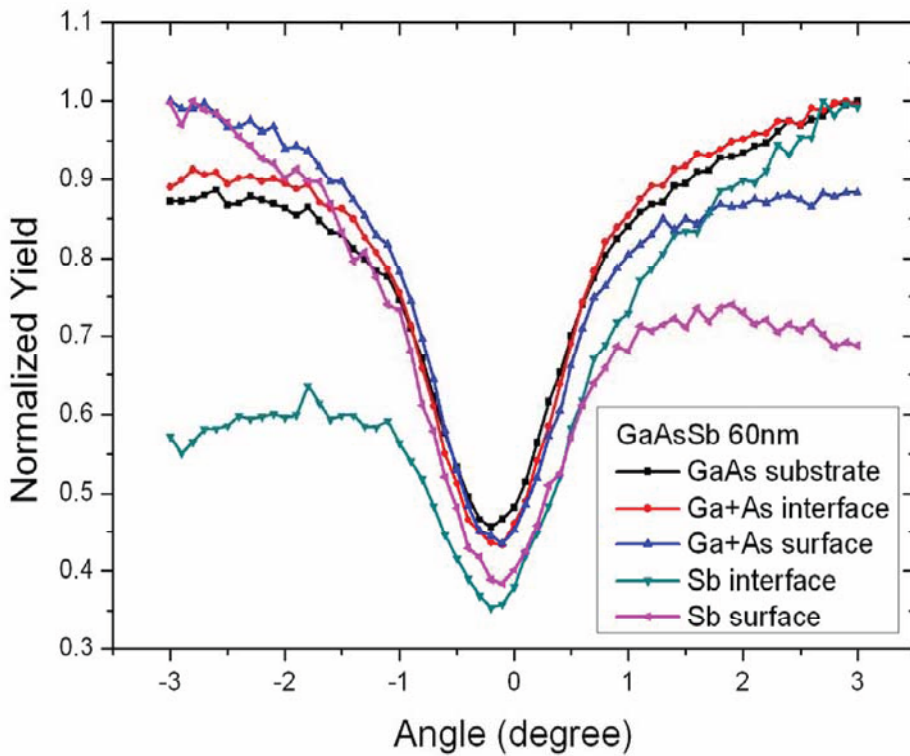


圖 5-1-22 在銻砷化鎵厚度為 60nm 時的[001]方向 dip 曲線

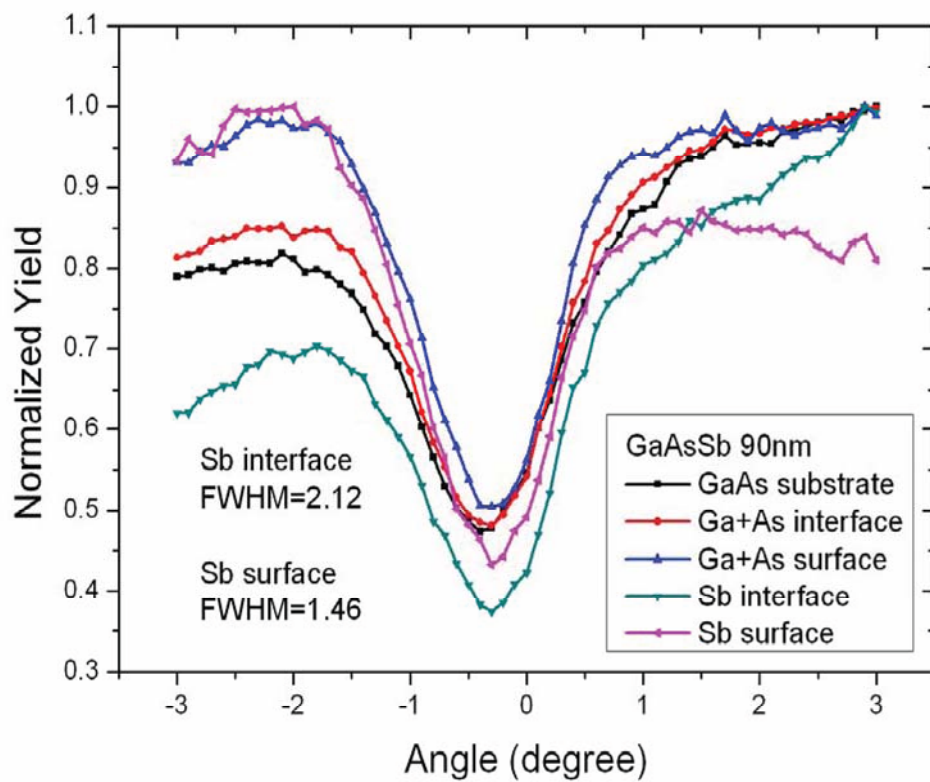


圖 5-1-23 在銻砷化鎵厚度為 90nm 時的[001]方向 dip 曲線

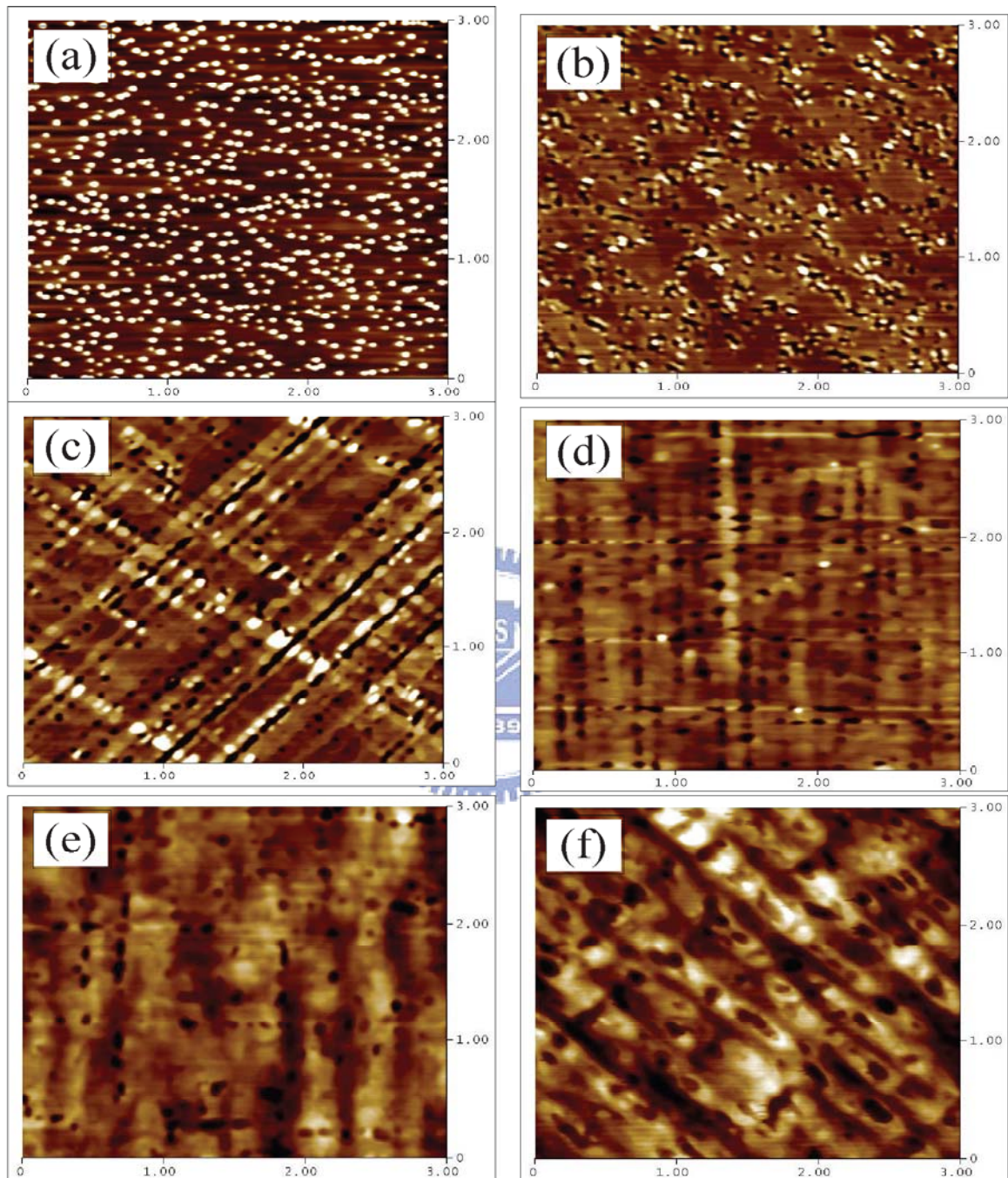


圖 5-2-1 在銻砷化鎵厚度為 (a) 0nm ; (b) 10nm ; (c) 30nm ; (d) 40nm ; (e) 60nm ; (f) 200nm 時的  $3 \times 3 \mu\text{m}^2$  AFM 圖

## 参考文献 (Reference)

- [1] Masahiko Kondow, Takeshi Kitatani, Shin'ichi Nakatsuka, Michael C. Larson, Kouji Nakahara, Yoshiaki Yazawa, Makoto Okai, Member, IEEE, and Kazuhisa Uomi, "**GaInNAs: a novel material for long-wavelength semiconductor lasers**," IEEE J Selected Topics in Quantum Electronics, vol. 3, no. 3, June (1997)
- [2] H. P. Xin and C. W. Tu, "**GaInNAs/GaAs multiple quantum wells grown by gas-source molecular beam epitaxy**," Appl. Phys. Lett. 72, 2442 (1998)
- [3] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, "**1.3  $\mu\text{m}$  room-temperature GaAs-based quantum-dot laser**," Appl. Phys. Lett. 73, 2564 (1998)
- [4] O. B. Shchekin and D. G. Deppe, "**1.3  $\mu\text{m}$  InAs quantum dot laser with  $T_0 = 161 \text{ K}$  from 0 to 80  $^\circ\text{C}$** ," Appl. Phys. Lett. 80, 3277 (2002)
- [5] Guobin Liu, Shun-Lien Chuang and Seoung-Hwan Park, "**Optical gain of strained GaAsSb/GaAs quantum-well lasers: A self-consistent approach**," J. Appl. Phys. 88, 5554 (2000)
- [6] M. Dinu, J. E. Cunningham, F. Quochi, and J. Shah, "**Optical properties of strained antimonide-based heterostructures**," J. Appl. Phys. 94, 1506 (2003)

[7] H. Y. Liu, M. J. Steer, T. J. Badcock, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, P. Navaretti, K. M. Groom, M. Hopkinson, and R. A. Hogg, **"Long-wavelength light emission and lasing from InAs/GaAs quantum dots covered by a GaAsSb strain-reducing layer,"** Appl. Phys. Lett. 86, 143108 (2005)

[8] H. Y. Liu, Y. Qiu, C. Y. Jin, T. Walther, and A. G. Cullis, **"1.55  $\mu\text{m}$  InAs quantum dots grown on a GaAs substrate using a GaAsSb metamorphic buffer layer,"** Appl. Phys. Lett. 92, 111906 (2008)

[9] B. Pérez Rodríguez and J. Mirecki Millunchick, **"Dislocation dynamics in strain relaxation in GaAsSb/GaAs heteroepitaxy,"** J. Appl. Phys. 100, 044503 (2006)

[10] Werner Seifert, Niclas Carlsson, Mark Miller, Mats-Erik Pistol, Lars Samuelson and L. Reine Wallenberg, **"In-situ growth of quantum dot structures by the Stranski-Krastanow growth mode,"** Prog. Crystal Growth and Charact. Vol. 33, pp. 423-471, 1996

[11] **The Physics of LEPTOS**

[12] 吳秀錦, "拉賽福回向散射分析及其應用," 科儀新知第十七卷三期 84.12

[13] Leonard C. Feldman, James W. Mayer and Steward T.A. Picraux, **"Materials Analysis by Ion Channeling."**



[14] B. Pérez Rodríguez and J. Mirecki Millunchick, "**Dislocation dynamics in strain relaxation in GaAsSb/GaAs heteroepitaxy**," J. Appl. Phys. 100, 044503 (2006)

[15] Ron Kaspi, Keith R. Evans, "**Sb-surface segregation and the control of compositional abruptness at the GaAsSb/GaAs interface**," Journal of Crystal Growth 175/176 (1997)

[16] S. T. Picraux, L. R. Dawson, G. C. Osbourn and W. K. Chu, "**Ion channeling studies of InGaAs/GaAs strained-layer superlattices**," Appl. Phys. Lett. 43, 930 (1983)

[17] W. K. Chu, C. K. Pan, C. A. Chang, "**Superlattice interface and lattice strain measurement by ion channeling**," Phys. Rev. B 28, 4033 - 4036 (1983)

[18] Toru Kanto and Koichi Yamaguchi, "**In-plane self-arrangement of high-density InAs quantum dots on GaAsSb/GaAs(001) by molecular beam epitaxy**," J. Appl. Phys. 101, 094901 (2007)