國立交通大學

電子物理系

碩士論文

InAsSb 量子點表面活化及相分離現象以及熱退 火影響 InAsSb 量子點光性電性

Surfactant effect and phase separation in InAsSb QDs and thermal annealing effects on the electrical and optical properties of InAsSb QDs

> 研 究 生 : 黃英子 指導教授 : 陳振芳博士

中華民國九十七年七月

致謝

終於,我的碩士生涯即將畫下句點,在結束了這本碩士論文之後:D。在這之間,歷經了很多不為人知的痛苦!數不盡的漫漫長夜,幸好有交大的小七陪伴著 我度過艱難時刻 XD。

在交大的兩年裡面我玩得很快樂,也認識了很多人。人跟人之間如果說要留下什麼蛛絲馬跡才算認識的話,那麼我只好將我在交大所遇見的人們寫在致謝裡 頭當成一種感謝,感謝他們走在路上碰巧遇見我的時候會抬起頭來說一聲:"哈 囉。"在經過了之後就算我想聽也聽不著了呢!哈。

在交大的生活圈裡頭,當然不能不提我的大學同窗好友張笑魚跟蔡小雅兩位, 它們兩個唯一做的對我有益的事情就是讓我一再地變胖變胖再變胖,我們三個湊 在一塊的時間都是在吃東西,甲好逗相報大概就是指我們這一款的^O^! 寫到這 邊還是不免想到一起逛街,一起買大杯飲料的情景,一起感嘆女人老了代謝就變 慢了,所以肥胖不是我們的錯,是年齡的錯!另外還有遠在 UCLA 但是心還是跟 我們同在的阿周小姐。以上能夠當同學真是一件不簡單的事情,能夠變成朋友更 是一件不簡單的事情,就跟我完成這一本論文一樣這麼不簡單,嘖嘖。

當然還有一路走來始終如一的九人幫,小賊,逼逼,阿特,小屎,烏龜,夏 蟲,柏靜,雷妹。我想說很少有人像我們九人幫這個樣子,至少在我身邊的就只 有我們這樣一個例子,我很以大家為榮。尤其是小賊跟逼逼帶我這隻鄉下老鼠進 台北城。另外在這邊我要特別提提逼逼小姐,她在我要口試的前兩天,從台北趕 下來跟我 PK 酒量,結果醉倒在我宿舍地板上,也讓我體驗一邊修改投影片,一 邊還要觀賞醉倒人的瘋言瘋語秀,這真是我碩士生活以來最難以忘懷的畫面!還 有阿特帶領他的學妹室友以及我的可愛敏慈室友,我們一起參加了只有兩隊報名 的小七接力賽,還很厲害地獲得了第一名。這一切一切讓我想瘋狂尖叫,即使現 在已是凌晨兩點多,我想起了你們還是想尖叫!

另外說說我在交大的室友幫吧,我覺得室友是一種很奇妙的緣分,是學校特

地讓陌生人介入另一個陌生人的生活當中。外語室友學姐讓我發現交大美髮部是 一個修剪瀏海的好去處以及每個星期三晚上外語系的休閒電影時間,感謝他讓我 的碩士生活添增了幾分美感☺。還有碩二遇到的室友群,小恬恬常常在半夜十二 點幫我買小籠包還有豆漿,讓我夜晚生活因為小籠包而整個亮了起來;夏夏陪我 夜晚跑步,雖然我不知道一個瘦子好端端得減肥幹麼用啊?好像在瘦子界沒有人 會認為自己是瘦子;可是在胖子界大家都很大方地承認自己是胖子,我想我永遠 也搞不懂瘦子的想法!最後還有小詹,他是個細心的室友,感謝他把好用的 endnote 給我使用,也讓我無緣無故地電腦中毒,媽阿~我在趕論文阿,還要忙 著掃毒 T_T 不過我相信他不是故意的,後來他也教我許多寫論文應該要注意的地 方,我真是受用良多。

再來說說我碩士生活的重心之一,那就是新光幫啦!雖然今年畢業後我就離 開了低年級組輔的行列,但是我想我們共同創造的美好回憶不會消失的**^O^**。敬 暉,信傑,世昌,鄭瑩,還有曉涵,還有一兩個從沒有同梯上山的夥伴們。當然 還有那些讓我又愛又恨的原住民小朋友:羽蝶,巧馨,月鈴,波塔,哈路谷,郁 芳,宇恩。認識你們讓我學到了一件事情:有些人在離開了之後是再也不會見到 面的。幸好我有偷偷照大夥的照片 下來,你們,接下來可以離開了!

接下來感謝漫爵的老師還有大哥,林姐,思翰,冠霖,鮪魚,璧躍,小油, 賽門,琬茹.....跟大家聊天是一個很歡樂的時光,時間不知不覺咻就過完了。如 果可以我希望可以早點兒遇見大家,怎麼不說晚點離開捏=="當然不行阿,我 要畢業啊!嗯,雖然大家都不相信我很愛你們大家,其實我自己也不太信 XD。 不過,跟以前比起來我有感覺到我的成長,謝謝你們!

在快結束的同時,要來感謝實驗室一下!首先感謝實驗室的老闆陳振芳老師, 老師在忙於當系主任的同時,還要修改我搖搖欲墜的英文 orz! 加上我有嚴重的 老師恐懼症,很少跟老師討論,最後口試倒數的時候才三番兩次地去麻煩老師 T_T 還好,老師人很好,還是照單全收,實在是太感動了 Q.Q

還有實驗室的江振豪學長,我對他還真是完全沒有尊敬到啊,現在想想嗯,

大概是老師的好脾氣傳給了江振豪學長了吧,再感謝老師一次吧 XD。還有管錢 管得很辛苦的謝佩珍學姐,還讓我們大夥兒在他家煮火鍋,真是好心來著。另外 還有楊政鴻跟王俞授學長,雖然你們流落在實驗室分部,可是還算是實驗室的一 份子,我也讓你們佔一下版面。

至於同學兩年的徐榕鎂,還好你不是走嬌豔風的,不然我就被比下去了>"<, 希望你可以達成開早餐店的願望,在高雄是吧?有機會我一定會去吃 XD。還有 黃正皓,碩二下才開始有比較多話聊講話真是無敵爆笑好笑的。因為我們兩個就 是愛拖咩,拖到快要口試了才在唉唉叫,不過終於,我們都活過來了!另外坐在 我旁邊沒冷氣唉唉叫有冷氣穿外套的謝孟謙同學,我不常來實驗室不是我去約會 阿,是我想要留一個空氣流通良好的位置給你,不然你怎麼有位置(我的位置)放 電風扇吹捏?希望你民國一百年畢業啦!

還有我不太熟的學弟妹們 orz,因為我不太常待在實驗室,而且我待在實驗 室的時段都很奇怪......我在的時候大家都不在,嗚嗚嗚 TT。嘉葳還有怡帆,到 現在我還是很好奇你們的高度會不會影響你們做實驗的準度?加油,你們還有一 年可以長高的時間 go!至於達叔跟傅昱翔,好好照顧實驗室嬌小的兩枝花吧!

最後我想要感謝我的家人,尤其是我媽媽。當這本論文完成的時候,我第一個最想讓你看到:D。

一路走來,也寫到這裡我實在是累了。沒想到很多人的名字在我腦海裡是那 麼印象鮮明的!就算全世界同名同姓的人很多,但讓我提到想笑著說聲謝謝就屬 你們那幾個!謝啦,呼~~在此投上我十二萬分的敬意!

英子

於新竹風城交大 2008 7/23

InAsSb 量子點表面活化及相分離現象以及熱退火影響

InAsSb 量子點光性電性

研究生: 黃英子

指導教授: 陳振芳 博士

	國立交通大學電	子物理研究所		
3			2.	
31	中文推	i要 C、、	12	
本論文主要研究	Sb 摻入 InAs QDs 所	出起的表面活什	效應以及相分	雜情

本論文主要研究 Sb 掺入 InAs QDs 所引起的表面活化效應以及相分離情形。 藉由 Varshni 材料參數解析出 InAs+Sb QDs 在成長當中會形成一群長波長的 InSb QDs 以及一群尺寸大小不一的 InAs-rich QDs。並由表面活化效應延遲量子點生長 速率解釋 InAs+Sb QDs 因遭受 Sb 不同程度表面活化效應影響使得 InAs-rich QDs 形成尺寸大小不一的量子點。

另將 InAs+Sb QDs 熱退火處理,發現高溫熱退火(700°C, 750°C)會引起 InAs-rich QDs 發生相分離情形,趕出原本少數掺入 InAs-rich QDs 的 Sb,而顯現 InAs QDs 的發光行為,使均匀性變佳。但熱退火同時也提供 InAs+Sb QDs 相分離出的長波 長 InSb QDs 熱能,使長波長 InSb QDs 發生晶格鬆弛現象,減弱長波長 InSb QDs 發光強度。

而 InSb QDs 因熱退火引發晶格鬆弛產生的缺陷,其中缺陷活化能和缺陷捕捉截面積和 Deep Level Transient Spectroscopy (DLTS)量測的填充偏壓時間有干係。 填充偏壓時間愈大(80 ms)缺陷活化能(0.29 eV)和捕捉截面積愈小;反之(1 ms)缺陷活化能(0.95 eV)和捕捉截面積愈大。由此,推測存在一個缺陷捕捉位能障進而影響缺陷捕捉截面積。 不只 DLTS 顯現缺陷訊號,室溫 Capacitance Voltage (C-V)頻譜經由轉縱深發現 在樣品表面 0.2μm 附近有缺陷訊號,此缺陷訊號為 DLTS 所測量到的熱退火缺陷, 熱退火缺陷在低溫下不影響量子點行為,200 K 之後牽制量子點行為,並將量子 點位置從原本的 0.4μm 拉近 0.3μm 左右。此為熱退火缺陷將整個能帶彎曲造成 的影響,故可在較小偏壓就偵測到缺陷訊號以及提前的量子點訊號。另外也可以 從 C-V 縱深頻譜看到載子傳輸行為,其轉換溫度跟 PL 互相呼應。

Atomic Force Microscope (AFM)所提供的 2.2 ML 和 2.8 ML 量子點尺寸不均現 象和 2.2 ML RTA650 Tunneling Electron Microscope (TEM)可瞧見缺陷存在,皆與上 述光性、電性量測結果符合。



Surfactant effect and phase separation in InAsSb QDs and thermal annealing effects on the electrical and optical properties of InAsSb QDs



This phenomenon can be attributed to antimony (Sb) which causes phase separation and surfactant effects on InAs+Sb QDs. Surfactant effect delays QDs growth rate and thus, with strong surfactant effect, InAs QDs size decreases and vice versa. Hence, the Photoluminescence (PL) result displays large Full Width Half Maximum (FWHM) of InAs-rich QDs and the Atomic Force Microscope (AFM) picture shows worse size uniformity in InAs+Sb QDs.

After thermal annealing, a few Sb are swept out in InAs-rich QDs; therefore, InAs QDs emission behavior shows up. Furthermore, annealing destroys InSb QDs emission intensity and a defect signal can be detected by Deep Level Transient Spectroscopy (DLTS). This defect is induced by relaxation of InSb QDs after high temperature thermal annealing. The defect activation energy which is related to its capture cross section varies from 0.29 eV to 0.95 eV as filling pulse changes from 80 ms to 1 ms. That can be explained by a capture barrier which influences the capture cross section.

Capacitance-Voltage (C-V) measurement can also detect a defect peak at 0.2 μ m and the carriers transfer between InAs-rich QDs and InSb QDs can also be observed by temperature dependent C-V depth profile.

Tunneling Electron Microscope (TEM) and AFM presenting misfit-like defect and worse size uniformity match our discussions in electricity and optics.

IV

<u>目錄</u>

中文摘要・	• • • • • •	••••	• • • • • • •	••••	•••I
英文摘要・	• • • • • •	• • • • • •	•••••	•••••	•••III
章節目錄·	• • • • • •	• • • • • •	• • • • • • •	•••••	···VI
圖目錄・・	• • • • • •				• • • VIII
表目錄・・	SIL			44	•••• xiii
1		E	SN		E
				÷.	
R.P.		5-1	896	\checkmark	5
	1	1111	1111	11	

第一章	緒論	<u>.</u>	1
	1.1	前言	1
	1.2	Antimony 對量子點的影響	2
	1.3	退火對量子點的影響	2
	1.4	InAs _x Sb _{1-x} QDs 介绍	2
	1.5	研究動機	3
	1.6	論文架構	3
	2		
第二章	樣品	出製備與量測系統簡介	5
14	2.1	樣品製備與電極製作	5
	2.2	量測系統介紹	6
第三章	光性	±量測結果與分析	11
	3.1	As grown 2.0 ,2.2 和 2.8 ML 光性討論	12
	3.2	熱退火 2.2,2.8 ML 光性討論	15
	3.3	熱退火 2.8 ML 變溫 PL	15
	3. <mark>4</mark>	AFM	17
第四章	電性	±量測結果與分析	38
	4.1	深層能階暫態頻譜分析	40
	4.2	暫態電容量測分析	43
	4.3	電容-電壓量測分析	43
	4.4	TEM 結果與討論	46

第五章	結論	74

參考文獻	1 	75



圖目錄

圖	1.1-1	三五族半導體晶格常數與能隙關係圖		4
圖	1.2-1	InAsSb 三元合金分成 InAs-rich 和		4
		InSb-rich 兩相		
圖	2.1-1	S-K mode QDs 成長		8
圖	2.1-2	InAs+Sb QDs 結構圖		9
圖	2.1-3	InAs+Sb QDs 能帶圖		9
圖	2.2-1	PL 量測系統架構		10
圖	3.1-1	不同厚度 InAs+Sb QDs 室溫 PL	<u> </u>	18
圖	3.1-2(a)	2.0 ML 室溫變 power	12	19
圖	3.1-2(b)	2.2 ML 室溫變 power		19
圖	3.1-2(c)	2.8 ML 室溫變 power		19
置	3.1-3	不同厚度 InAs+Sb QDs 低温 PL		20
啚	3.1-4	不同厚度 InAs/InGaAs 量子點低溫 PL		20
置	3.1-5(a)	2.0 ML 低溫變 power		21
啚	3.1-5(b)	2.2 ML 低溫變 power		21
圖	3.1-5(c)	2.8 ML 低溫變 power	<u> </u>	21
圖	3.1-6(a)	2.2 ML InAs+Sb QDs 變溫 PL		22
圖	3.1-6(b)	2.8 ML InAs+Sb QDs 變溫 PL		22
圖	3.1-7(a)	2.2 ML 發光波長對溫度關係圖		23
圖	3.1-7(b)	2.2 ML 半高寬對溫度關係圖		23
圖	3.1-8(a)	2.8 ML 發光波長對溫度關係圖		24
圖	3.1-8(b)	2.8 ML 半高寬對溫度關係圖		24
圖	3.1-9(a)	2.2 ML P1 擬和 InSb QDs		25
圖	3.1-9(b)	2.8 ML P1 擬和 InSb QDs		25

圖 3.1-10(a)	2.2 ML P2 擬和 InAs 和 InSb QDs		26
圖 3.1-10(b)	2.8 ML P2 擬和 InAs 和 InSb QDs		26
圖 3.2-1(a)	熱退火 2.2 ML 室溫 PL 比較圖		27
圖 3.2-1(b)	熱退火 2.8 ML 室溫 PL 比較圖		27
圖 3.2-2(a)	熱退火 2.2 ML 低溫 PL 比較圖		28
圖 3.2-2(b)	熱退火 2.8 ML 低溫 PL 比較圖		28
圖 3.3-1	2.8 ML RTA650 變溫 PL		29
圖 3.3-2(a)	2.8 ML RTA650 發光波長對溫度關係圖		29
圖 3.3-2(b)	2.8 ML RTA650 半高寬對溫度關係圖		29
圖 3.3-3(a)	2.8 ML RTA650 P1 擬和 InSb QDs		30
圖 3.3-3(b)	2.8 ML RTA650 P2 擬和 InAs 和 InSb QD		30
圖 3.3-4	2.8 ML RTA700 變溫 PL		31
圖 3.3-5(a)	2.8 ML RTA700 發光波長對溫度關係圖		31
圖 3.3-5(b)	2.8 ML RTA700 半高寬對溫度關係圖		31
圖 3.3-6(a)	2.8 ML RTA700 P1 擬和 InSb QDs		32
圖 3.3-6(b)	2.8 ML RTA700 P2 擬和 InAs QDs		32
圖 3.3-7	2.8 ML RTA750 變溫 PL		33
圖 3.3-8(a)	2.8 ML RTA750 發光波長對溫度關係圖		33
圖 3.3-8(b)	2.8 ML RTA750 半高寬對溫度關係圖	<u> </u>	33
圖 3.3-9(a)	2.8 ML RTA750 P3 擬和 InAs QDs		34
圖 3.3-9(b)	2.8 ML RTA750 P2 擬和 InSb QDs		34
圖 3.3-10(a)	勞倫茲擬和 2.8 ML		35
圖 3.3-10(b)	InSb QDs 基態與第一激發態		35
圖 3.4-1(a)	2.0 ML AFM 圖		36
圖 3.4-1(b)	2.2 ML AFM 圖		36

圖 3.4-1(c)	2.8 ML AFM 圖		36
圖 3.4-2	圖解 InAs+Sb QDs 量子點成長情形		37
圖 4.1-1	2.2 ML RTA650 不同偏壓 DLTS 及阿瑞		47
	尼斯圖		
圖 4.1-2	2.2 ML RTA750 不同偏壓 DLTS 及阿瑞		48
	尼斯圖		
圖 4.1-3	2.8 ML RTA650 不同偏壓 DLTS 及阿瑞		49
	尼斯圖	B	
圖 4.1-4	2.8 ML RTA750 不同偏壓 DLTS 及阿瑞	26	50
31	尼斯圖	27	
圖 4 .1-5	2.2 ML RTA650 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖	12	51
圖 <mark>4</mark> .1-6	2.2 ML RTA750 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖	- 15	51
圖 4.1-7	2.8 ML RTA650 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖		52
圖 4.1-8	2.8 ML RTA750 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖		52
圖 4.1-9	2.2 ML, 2.8 ML 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖		53
圖 4.1-10	2.2 ML, 2.8 ML 熱退火缺陷與 E1, E2 阿	15	54
2	瑞尼斯比較圖	15	
圖 4.1-11	2.2 ML RTA750 改變填充偏壓時間 DLTS		55
	及阿瑞尼斯圖		
圖 4.1-12	2.2 ML RTA750 DLTS 不同填充偏壓時		56
	間比較圖		
圖 4.1-13	2.2 ML RTA750 熱退火缺陷阿瑞尼斯比		57
	較圖		
圖 4.1-14	2.2 ML RTA750 熱退火缺陷與 E1, E2 阿		57
	瑞尼斯比較圖		

圖 4.1-15	圖解熱退火缺陷能階圖		58
圖 4.1-16	熱退火缺陷捕捉截面積與缺陷活化能		60
	指數關係圖		
圖 4.2-1	DLTS 和 transient 阿瑞尼斯圖		60
R			
4.3-1(a)(b)	2.0,2.2,2.8 ML 室溫 CV 及縱深分布圖		61
8	A TABLER DA.		
4.3-2(a)(b)	2.2 ML 低温 CV 及縱深分布圖		62
圖		Co.	
4.3-3(a)(b	2.2 ML 室溫 CV 及縱深分布圖		62
8	E SN N	112	
4.3-4(a)(b)	2.8 ML 低溫 CV 及縱深分布圖	2.1.5	63
圖		R IE	
4.3-5(a)(b)	2.8 ML 室溫 CV 及縱深分布圖		63
圖		15	
4.3-6(a)(b)	2.8 ML 室溫大偏壓 CV 及縱深分布圖	12	64
圖	in Conservation	15	
4.3-7(a)(b)	2.2 ML RTA650 低溫 CV 及縱深分布圖		65
<u>B</u>	" A Designed and the second se		
4.3-8(a)(b)	2.2 ML RTA650 室溫 CV 及縱深分布圖		66
圖			
4.3-9(a)(b)	2.8 ML RTA650 低溫 CV 及縱深分布圖		67
E .			
4.3-10(a)(b)	2.8 ML RTA650 室溫 CV 及縱深分布圖		68

圖

4.3-11(a)(b)	2.2 ML	RTA650	變溫 CV 及縱深分布圖	 69
P				
4.3-12(a)(b)	2.8 ML	RTA650	變溫 CV 及縱深分布圖	 70
圖 4.3-12	2.8 ML	RTA650	室溫 C-V 圖	 71
圖 4.4-1(a)	2.2 ML	RTA650	HRTEM	 72
圖 4.4-1(b)	2.2 ML	RTA650	HRTEM(經傅立葉轉換)	 73



表目錄

表 2.1-1	InAs+Sb QDs 不同厚度長晶條件		8
表 3.1-1	室溫不同厚度 InAs+Sb QDs 基態與第		
	一激發態波長與半寬值		16
表 3.1-2	低溫不同厚度 InAs+Sb QDs 波長與半		
	寬值		20
表 4.1-1	2.2 ML RTA750 不同填充偏壓時間下熱		
	退火缺陷活化能與缺陷捕捉截面積表		58
表 4.1-2	熱退火缺陷活化能與缺陷捕捉截面積	2	
3/		1	59
表 4.3-1	2.8 ML RTA650 各偏壓下的 Nt		71
- 31 (a)			
		-8 I E	
-		·	
31	N	115	
21	1896	15	
97		15	
		S. 1	
	a state of the sta		

第一章緒論

<u>1.1 前言</u>

自從 InAs/GaAs 發現可以以 Stranski-Krastanow mode (S-K mode)形成自聚式量子 點(self-assembled quantum dots, QDs)[1],有不少研究針對 InAs QDs,如:發光波長 [2,3]、量子能階計算[3,4]以及控制成長參數或改變生長磊晶方法[5],企圖延長 QDs 發光波長和增強發光強度等等使之用於半導體雷射以及光纖通訊上[6-8]。 成長量子點最難控制的地方是量子點尺寸的大小,量子點尺寸的大小影響了量子 能階大小,也影響了量子點發光波段的長短[9]。根據量子計算,當量子點尺寸 小,能階高發光波段短;反之量子點尺寸大,能階往下降發光波段變長。所以有 許多研究著重在於如何延長量子點的發光波段[10-13]。

要延長量子點的發光波段最直截的想法是將量子點的尺寸變大,但是這又牽涉到 量子點跟基板材料的晶格常數匹配關係。當兩種晶格常數不同的材料生長在一起, 界面會產生應力,自聚式量子點也是因為這種界面應力而產生的。但是當量子點 愈長愈大,兩個不同材料間的應力大到不能承受時,這時就會有缺陷產生[14-18]。 所以開始有研究量子點缺陷的文章,或者改變基板材料跟量子點材料,熱退火討 論量子點性質等等的研究[19-21]。圖 1.1-1 為三五族半導體材料晶格常數跟能隙 的關係圖,量子點跟其緩衝層之間的晶格常數差異,也就是所謂的不匹配程度, 會影響量子點的允許厚度(critical thickness)。

除了量子點尺寸要拉大外,量子點的密度以及尺寸均勻性更是影響發光的主要因 素[22]。一般長晶速率快,成長的量子點密度大但是尺寸小;成長速率變慢,量 子點尺寸雖大但是密度過小,以致發光強度過弱[23-26]。所以又發展多層量子點 層或者量子井量子點結構,增加量子點附和發光機率,增大發光強度。 總而言之,決定量子點重要的因素是決定於產生量子點的應力!由應力引發出材 料彼此間相容的問題、缺陷影響量子點特性的問題,之後又衍生藉由退火改變量 子點原生特性的討論[19,27]。

1.2 銻(antimony,Sb) 對量子點的影響

有文獻指出 Sb 掺入量子點會有相分離的情形[28, 29]。圖 1. 2-1 說明 Sb 掺入 InAs 合金當中容易形成 InAs-rich 和 InS-rich 兩個相。除此之外量子點掺入 Sb 會有延 遲量子點生長的表面活化效應發生[29, 30],所以有的利用 Sb 長成密度高的小顆 量子點[30-32]。另外,Sb 有效的掺入可以延長量子點發光波長[33, 34],而量子 點的尺寸也跟掺入 Sb 的多寡息息相關。另外也有文獻指出 InAsSb/GaAs QDs 具 有 type-II 的發光形式[35, 36]。 近來更有 InSb QD 相關的研究[37]。

1.3 熱退火對量子點的影響

有的量子點經過退火之後,可以改善尺寸大小不均問題,並且有些熱退火可以消除缺陷。另外更有研究發現熱退火會造成 In 跟 Ga 之間 interdiffusion 使 PL 呈現 藍移特性[38-40]。除此之外,早先研究 InAsSb QDs 量子點的文獻當中,發現退火 可以減少 phase separation 的情況。但是對於退火的功用其實是眾說紛紜,大概 是不同材料特性對退火的響應並不一致。例如:量子點有些經過熱退火特性變好 [41],有些量子點經過熱退火卻有缺陷形成[42-44]!加上不同退火溫度也會影響 退火的功用[45, 46]。

<u>1.4 InAs_xSb_{1-x}QDs 介紹</u>

InAs QDs 掺入 Sb 的目的是要拉長量子點發光波長,因為 InSb QDs 晶格常數較大,對應的能隙低,可以有效拉長發光波長,但這就理想狀況而言。有文獻指出 InAsSb QDs 室溫發光波段可達 1.3 µm[33];另外也有文獻指出 Sb 混入掺入量子點裡頭, 會使量子點密度增大,並增加量子點體積,使量子點更容易聚集[29];但是 Sb 容易產生表面相分離也影響著 InAsSb QDs,不過有文獻指出經由熱退火可以減低 Sb 產生的相分離狀況[29]。文獻上指出 InSb 的鍵結能量較 InAs 的鍵結弱是造成 相分離的主因,不過如果適當提供充足的 As₂流量,可以減低相分離情形。本實 驗室在此之前研究過 InAsSb QDs,發現 Sb 的摻入產生了表面活化效應,延遲了 QDs 的生長。除此之外 InAsSb QDs 也較一般量子點提早發生晶格鬆弛,應是 Sb 摻入造成晶格不匹配程度提高,所以提早發生晶格鬆弛現象[47]。

(InAs/GaAs:6.9%;InSb/GaAs:14.6%)

1.5 研究動機

承續本實驗室先前研究,由電性得知 Sb 對 InAsSb QDs 有表面活化效應;再由光 性看到低溫光激發螢光光譜(PL)不尋常的大半寬特徵和 AFM 顯現 InAsSb QDs 尺寸 不均現象等等。對於低溫不尋常的半寬,探究是否為 Sb 掺入造成?跟 AFM 顯現 量子點尺寸不均是否有相關連?以及經過退火之後能否改善量子點尺寸不均現 象?退火對量子結構良好的 InAsSb QDs 和晶格鬆弛的 InAsSb QDs 兩者之間的影響。

1.6 論文架構

本論文主要是研究成長不同厚度的 InAs+Sb QDs, Sb 對量子點的成分以及尺寸有 什麼影響,以及經過了熱退火的改變。利用光性研究量子點特徵,利用電性確認 缺陷行為,並加以研究缺陷性質。

以下是本論文的架構:

- 第一章 緒論
- 第二章 樣品製備與量測系統簡介
- 第三章 光性量測結果與分析
- 第四章 電性量測結果與分析
- 第五章 結論



圖 1.2-1 InAsSb 三元合金分成 InAs-rich 和 InSb-rich 兩相

第二章 樣品製備與量測系統簡介

2.1 樣品製備與電極製作

(樣品製備)

本論文的樣品是以分子數磊晶方式成長(molecular beam epitaxy,MBE),在 n⁺GaAs(100)基板上成長 0.3µm 矽摻雜 n-type GaAs buffer layer,成長溫度為 595°C。 之後成長主要量子點層, InAs+Sb QDs, antimony, Sb,設定 6%含量,(實際 Sb 摻入 量未能得知)成長溫度設定為 485°C。最後覆蓋 0.3µm 矽摻雜 n-type GaAs cap layer。

Reflection High Energy Diffraction(RHEED)在 2.0 ML觀察到量子點開始生長的現象, 繞射圖形從條帶狀轉為斑點狀,說明 InAs+Sb QDs 是依照 S-K mode 成長圖 2.1-1。 分別成長不同厚度的 InAs+Sb QDs, 2.0 ML(SH 454), 2.2 ML(SH435)以及 2.8 ML(SH438)表 2.1-1。

(退火試片)

量子結構成長完畢後,依據實驗需要,分別將2.0 ML,2.2 ML和2.8 ML 退火 650°C、700°C、750°C 三種不同溫度,退火時間皆為一分鐘。退火時,會在退火試 片前方以及後方各放一塊擋板,可以減低退火不均勻現象以及降低退火時周圍環 境雜質滲入情況。

(電極製作)

量測電性須在基板正面製作正極蕭基接面(Schottky contact),背面製作歐姆接面 (Ohmic contact)。我們選擇 Al 當正極材料, In 當負極電極材料。

將 Al 鍍在樣品表面需要維持介面的潔淨度以及平整度,如此才可形成良好蕭基接面。Al 電極面積約 0.005024 cm²。

完成蕭基接面後,在基板背面先點上數顆銦球,接著送進爐管(300°C)兩分鐘,目 的為了減少半背面基板電阻影響測量電性。最後把矽基板放在加熱平台上預熱三 到四分鐘(200°C),鋪上一層均勻銦,而後將所要量測電性的量子結構放在矽基板 上面,就完成了整個電極製作。圖 2.1-2、圖 2.1-3 分別為 InAs+Sb QDs 樣品結 構圖以及能帶圖。

<u>2.2 測量系統介紹</u>

(PL 量測系統)

圖 2.2-1 為本實驗所使用的光性量測系統為 PL 量測系統,所使用到的量測儀器 如下:

- 固態雷射(solid-state laser):型號為 LOC-VENTUS 1000 SERIES,波長為 532 nm, 最大輸出功率為 1300 mW,用來激發樣品發光。
- 分光儀 (monochromator): 型號為 ARC Spectro-275, 其焦距長度為 27.5 cm, 內部有三塊光柵可供選擇。
- 3. 光遮斷器(chopper): 型號為 NEW FOCUS MODEL 3501, 選用的頻率為 80 Hz。
- 光偵測器 (photodetector):由 Electro-Optical Systems 公司所生產的 InGaAs 光偵測器,在室溫波長範圍為 800~1800 nm。
- 5. 濾波片 (filter): 使用 695 nm 的 long-pass filter, 其用意是為了濾除雷射光。
- 6. 鎖相放大器(Lock-in Amplifier):型號為STANDFORD RESEARCH SYSTEM SR850,

 用來測量微小的交流訊號。
- 低溫系統:包括真空腔體、降溫用壓縮機(compressor)、溫控器(型號為 Neocera LTC-11)等。

(電性量測系統)

1. Keithley 236:用來量測電流-電壓(I-V)特性曲線。

- DLTS 系統(SULA Technology 製造):包含脈衝產生器、溫控系統、雙閘訊號平 均器、電容計、降溫系統及水平垂直紀錄器等。其 t₂/t₁=11.5 是固定的,量 測頻率是 1MHz。
- HP 4194(阻抗/增益相位分析儀):用來量測電容-電壓(C-V)、電容-頻率(C-F, 又稱 Admittance Spectroscopy)、暫態電容(Transient Capacitance)與深層能階 暫態頻譜(Deep Level Transient Spectroscopy)的特性曲線。
- 4. 溫控器:型號為 LakeShore330。
- 5. 變溫量測系統:變溫系統是 open cycle 型式的,利用液態氮降溫,最低溫可達 80K;另一種是利用液態氦降溫,最低可降至 20K 的溫度。系統總共包括 Cryogenic、抽真空 Pump、液態氮鋼瓶、真空腔體內有加熱平台與三軸探針 台等。其中真空腔體為 CRYO 製造,型號為 CMP-1487。

所有實驗量測數據,都是藉由電腦透過GPIB介面控制卡來控制儀器與讀取數據, 之後再利用軟體處理與繪圖。





表 2.1-1 InAs+Sb QDs 不同厚度長晶條件

圖 2.1-3 InAs+Sb QDs 能帶圖

第三章 光性量測結果與分析

在光激發螢光光譜(Photoluminescence, PL)量測實驗當中,本實驗室是使用 532nm 的固態雷射,最大輸出功率為 1300 mW,其中使用的光偵測器為 InGaAs 偵測器,所適用的波段範圍為 800-1800 nm。

在光性研究分析當中,為了解 InAs+Sb QDs 在生長的過程當中,受到 Sb 的影響 有多少?根據量子點能階隨溫度的變化行為,參照 Varshni fitting,及材料能隙隨 溫度的變化關係式:

$$E = E_0(0) - \frac{\alpha T^2}{\beta + T}$$

以下附上 InAs 和 InSb 兩者材料的 α , β 值:

若是 InAs QDs,則 InAs QDs 各不同能階隨溫度變化的發光型態會符合 InAs bulk 的能隙跟溫度的關係式。同理 InSb QDs 的行為也是如此。

Varshni a B
InAs 2.76x10 ⁻⁴ 83
InSb 6x10 ⁻⁴ 500

本章先討論三片 as grown 2.0 ML, 2.2 ML 和 2.8 ML 的光性行為,接著再對熱退 火試片進行光性研究討論。爾後根據光性顯現行為探討 Sb 掺入 InAs QDs 所造成 的影響。

<u>3.1 As grown 2.0,2.2, 2.8 ML 光性討論</u>

(室溫 PL)

從室溫(300 K) PL,圖 3.1-1 可以看出 2.2 ML 在三片裡頭,量子發光是最好的。 本實驗室之前黃文鏑學長和吳春慧學姐早已研究過 2.2 ML 的光性和電性,並且 證明 2.0 和 2.2 ML 是量子情形良好的樣品而量子點長到 2.8 ML 就產生晶格鬆弛。 從室溫的 PL 看出 2.0,2.2 和 2.8 ML 都具有兩個發光發值,根據兩個峰值的能量 差異(80,70,70 meV) 表 3.1-1,推測此兩個峰值為單一量子群的基態跟第一激 發態。2.0 ML 是 InAs+Sb QDs 剛開始長的情形,可以從室溫 PL 看出,2.0 ML 半高 寬比較大,即量子點的均匀性比起 2.2 ML 和 2.8 ML 是較差的。這可以從量子點 一開始生長的時候,有的生長較快,有的生長較慢,所以均匀性會比較差,但是 隨著量子點愈長愈厚,量子點尺寸大小差異性變小,量子點的均匀性會變得比較 好。而且隨著量子點愈長愈厚,可以見到發光波長有紅移現象,這是因為量子點 尺寸變大,能階會往下降,造成發光能量變小,所以發光波長會紅移。 從 2.0 ML 到 2.2 ML,PL 強度變強是因為隨著量子點增厚,量子侷限能力變強; 但到了 2.8 ML,PL 強度不增反減,是因為晶格鬆弛產生的缺陷影響了 PL 強度。 圖 3.1-2(a)-(c)為 2.0 ML,2.2 ML 和 2.8 ML 室溫變功率 PL。

(低溫 PL)

從低溫的 PL,圖 3.1-3 可以看出這三片樣品在低溫的量子行為跟室溫是截然不同的!在室溫是一群量子點的基帶與第一激發態的發光行為。但是在低溫,因為兩個峰值的能量差異將近 140 meV 表 3.1-2,所以不可能是單一群量子點的基帶與第一激發態發光。除此之外,隨著量子點成長厚度變大,短波段的頻譜是愈來愈寬!這跟傳統量子點隨著厚度愈長愈厚,量子尺寸愈來愈均匀的情形有所出入圖 3.1-4。所以排除低溫 PL 是單一量子群的發光行為。暫且先將低溫看到的兩群發光量子點稱作短波長量子點以及長波長量子點。圖 3.1-5(a)-(c) 為2.0 ML,

2.2 ML 和 2.8 ML 低溫變功率 PL。

(變溫 PL)

對於室溫是單一量子點行為,低溫轉為兩群或者是多群量子點行為感到不可思議! 對此將 2.2 ML 和 2.8 ML 作變溫 PL。在此不討論 2.0 ML, 2.0 ML 長波段量子點訊 號在低溫不明顯,在此只討論 2.2 ML 和 2.8 ML 長波段量子點和短波段量子點皆 明顯的情況。

從變溫的頻譜圖,圖 3.1-6(a)(b)可看出 2.2 ML 和 2.8 ML 短波段的量子點會從 低溫的大半高寬漸漸變窄最後變成室溫看到的正常量子點發光行為。為了更了解 量子點隨溫度變化的發光行為模式。對此我們選擇高斯擬和法對不同溫度去擬和 最佳 PL 圖形,但卻發現在低溫情況需要用高斯三點擬和,到了 150 K 之後,無 法再用高斯三點擬和反而只需用高斯兩點擬和才符合實際情形。對此怪異現象, 稍後再多做說明。

在擬和過程當中,圖 3.1-7(a)(b)低溫 2.2 ML 和 2.8 ML 用高斯三點擬和稱作 P1, P2 和 P3。(其中 P1 是低能量長波段,P2 介中,P3 是高能量短波段。)W1,W2 和 W3 是各自對應的半高寬圖 3.1-8(a)(b)。

擬和的結果發現 2.2 ML 和 2.8 ML, P1(長波段)半高寬都維持在 40 meV 附近,發 光能量隨溫度的變化也符合一般量子點行為模式。相反的 P2 半高寬從低溫時的 130 meV 到中段溫度的 100 meV 最後室溫又轉變高 140 meV ! 形成一個凹口向上 的形狀。除此之外 P2 發光能量隨溫度的變化曲線也悖離一般量子點行為模式。 為了釐清 InAs+Sb QDs 會形成什麼種類的 QDs ? 根據 Varshni fitting,分別對 P1 以 及 P2 進行模擬。結果圖 3.1-9(a)(b)發現 2.2 ML 和 2.8 ML 的 P1(長波段)發光能 量隨溫度變化的關係完全符合 InSb bulk 的能隙隨溫度的變化,所以 P1(長波段) 可以說是 InSb QDs。可是對於 P2 不論是 InAs QDs 還是 InSb QDs 都無法完整的擬 和,但是如果將 P2 分成低溫跟高溫情形討論,則在圖 3.1-10(a)(b) 2.2 ML 和 2.8 ML, P2 在低溫情況下符合 InAs QDs 行為,在接近室溫情況則轉為 InSb QDs ! 這也是為什麼 P2 的半高寬隨溫度的變化是凹口向上的圖形。根據文獻指出半高 寬呈現凹口情形表示具有載子互相傳輸的行為[48, 49],從我們的實驗結果看來, P2 在低溫是 InAs QDs 發光,到了高溫,因為 InAs QDs 量子侷限能較 InSb QDs 差, 所以低溫原本待在 InAs QDs 的載子,等到溫度一升高,擁有足夠的熱能就會脫 逃。而高溫 P2 呈現的 InSb QDs 的行為,推測是 InSb QDs 的第一激發態。這也是 為什麼在 2.2 ML 和 2.8 ML 室溫量測到的是單一群量子點(InSb QDs)的基態跟第一 激發態。

至於只有在低溫才出現的 P3(短波段),因為它的發光能量高達 1.24eV,而 GaAs 低溫的能隙為 1.5eV,所以當溫度一升高載子很容易從 P3 的發光能階跳到 GaAs 的傳導帶,因此高溫時沒有 P3 的 PL 訊號。

(Sb 掺雜影響低溫 PL)

室溫有 InSb QDs 基態與第一激發態的發光行為,到了低溫除了有 InSb QDs 基態 訊號,還有一個頻譜很寬的短波長訊號。雖然只有室溫才看得到 InSb QDs 第一 激發態,但根據一般量子點發光模式,低溫的第一激發態會比室溫的情況更強烈, 但礙於低溫短波長訊號頻譜太寬,所以高斯擬和無法解析出低溫的 InSb QDs 第 一激發態訊號。

至於低溫短波長訊號半高寬會如此大,推測是生長 InAs QDs 的時候掺入 Sb 造成 的影響。Sb 的掺入讓量子點尺寸變得不均匀,據文獻記載, Sb 具有表面活化效 應,表面活化效應會延遲 QDs 的生長速率,使一般量子點尺寸變小。而我們的 量子點樣品,受到 Sb 表面活化效應影響劇烈量子點尺寸就比較小,反之量子點 尺寸就比較大。所以低溫的寬頻譜是由於受到不同 Sb 程度的表面活化效應而形 成各式各樣大小尺寸不一的量子點發光所致。

14

3.2 熱退火 2.2, 2.8 ML 光性討論

在 2.2 ML 和 2.8 ML QDs 可以看出有尺寸不均匀現象,影響了低溫的 PL 頻譜圖。 把 2.2 ML 和 2.8 ML 做熱退火,退火溫度為 650°C、700°C 和 650°C。討論熱退火 對 InSb QDs 的影響及熱退火對 Sb 造成 InAs-rich QDs 量子點尺寸不均的現象是否 有改善?

电音乐器展开

(熱退火 室溫 PL)

圖 3.2-1(a)(b) 2..2 ML 室溫熱退火比較圖以及 2.8 ML 室溫熱退火比較圖,熱退 火會減弱 InSb QDs 基態發光強度。從 2.2 ML 看來,第一激發態強度也是跟著被 削弱。正常而言,當基態的強度被削減的時候,第一激發態的強度也會隨著削減, 因為這代表 InSb QDs 數目減少。至於 InSb QDs 因為熱退火的緣故而被削弱勢力, 推測是因為 InSb 跟 GaAs 基板晶格常數的 mismatch 較大,對周遭環境產生的 strain 也較大,而熱退火會讓 InSb QDs 發生晶格鬆弛現象,所以減弱了 InSb QDs 的發 光強度。

(熱退火 低溫 PL)

圖 3.2-2(a)(b)熱退火 2.2 ML 和熱退火 2.8 ML 低溫 PL 除了可以看到 InSb QDs 基 態隨著退火度愈高,強度減弱的程度就愈嚴重。另外大半高寬短波長短波長 InAs-rich QDs 訊號經過退火以後分成兩個清楚的訊號。除此之外經過熱退火以後, 2.2 ML 和 2.8 ML 短波長訊號的半寬變狹窄,推測熱退火可以改善尺寸不均匀現 象。

<u>3.3 熱退火 2.8 ML 變溫 PL</u>

(2.8 ML RTA650 變溫 PL)

圖 3.3-1 2.8 ML RTA650 變溫的情形跟 as grown 2.8 ML 類似,圖 3.3-2(a)(b)

P1(長波長)根據 Varshni fitting 也可擬和出是符合 InSb QDs。至於圖 3.3-3(a)(b) P2(短波長混成訊號其一)低溫也式呈現 InAs QDs,室溫就轉為 InSb QDs 第一激發 熊訊號。

(2.8 ML RTA700 變溫 PL)

圖 3.3-4 2.8 ML 經過熱退火 700°C,由變溫的 PL 並藉著高斯三點擬和,再用 Varshni fitting 分析。圖 3.3-5(a)(b) P1(長波長)還是原來的 InSb QDs 訊號,但是 P2 卻變成 InAs QDs 的發光訊號圖 3.3-6(a)(b)!所以 2.8 ML 經過熱退火之後不 只 InSb QDs 縮減,連第一激發態也跟著消失。所以熱退火確實可以減少 Sb 掺入 InAs QDs 造成的成分不均匀現象,使得 InAs-rich QDs 可以解析出 InAs QDs 發光行 為。

(2.8 ML RTA750 變溫 PL)

圖 3.3-7 2.8 ML 經過熱退火 750°C,經由變溫 PL 和高斯兩點擬和,因為 P1(長 波長)InSb QDs 的訊號經過高溫 750°C 退火後,訊號太小(InSb QDs 數目驟減)以致 無法擬和。

在此我們討論 P2 和 P3 的行為, 2.8 ML 熱退火 750°C 之後, 圖 3.3-8(a)(b) P3 經由 Varshni 擬和出有 InAs QDs 的形式, 圖 3.3-9(a)(b) P2 在低溫情況有 InSb QDs 的形式!這證明熱退火可以消除 Sb 掺入造成的成分不均匀的現象! 综合三片熱退火變溫結果, 退火 650°C 因為溫度不夠高,所以 PL 形貌跟 as grown 樣品相差不多。退火 700°C 有一部分的 Sb 被趕出來(看到 P2 具有 InAs QDs 特性)。 更高溫的退火 750°C, 趕出更多 Sb, 被趕出的 Sb 自己又形成 InSb QDs, 所以在 退火 750°C 可以看到有 InAs QDs(P3), 以及低溫時後可看見 InSb QDs(P2)。所以退 火之後, 低溫混成包的訊號頻譜愈來愈窄, 因為成分不均匀的現象因為退火的緣 故而減少。

在做熱退火分析時,低溫混成包訊號 P2, P3 根據不同的退火溫度而呈現不同的

QDs 訊號。例如:2.8 ML 退火 700°C P2 是 InAs QDs 訊號,到了 2.8 ML 退火 750°C P2 低溫卻變成 InSb QDs 訊號。退火並非將 InAs QDs 轉變成 InSb QDs,而是因為混成包訊號半寬大,經過熱退火之後,用高斯三點擬和所對應的並非是同樣的點。高斯擬和只是呈現每個情況下的主導者情形。

此外,如果將高斯擬和轉換成勞倫茲擬和,圖 3.3-10(a)(b)則在 2.8 ML as-grown 可以看到 InSb QDs 的基態(P1)以及第一激發態(P2)。勞倫茲擬和可以呈現 InSb QDs 第一激發態是因為勞倫茲擬和是考慮 homogeneous broaden,但是高斯擬和考慮 inhomogeneous broaden,所以才會在高斯擬和看到 InAs QDs 和 InSb QDs 的情形; 而在勞倫茲擬和裡頭呈現 InSb QDs 的基態與第一激發態。

3.4 InAs+Sb QDs AFM

由圖 3.4-1(a)-(c)看出, InAs+Sb QDs 在 2.0 ML 就已經有尺寸不均現象, 這也是 為什麼在低溫 PL 見到隨著量子點愈長愈厚, 半寬卻愈來愈大。2.8 ML AFM 延續 著 2.2 ML 具有尺寸不均的現象, 而且尺寸大的量子點有愈長愈大顆的趨勢, 還 有許許多多尺寸不一的小顆量子點。根據 Sb 掺入 InAs+Sb QDs 產生的相分離現 象,以及 Sb 對 InAs QDs 造成表面活化效應延遲量子點生長, 使量子點尺寸變小。 受到不同程度 Sb 的表面活化效應, 使量子點表面活化嚴重的尺寸小, 表面活化 不明顯的尺寸大, 也就形成大小不一的量子點。

圖 3.4-2 可以說明從 2.0 ML 起,一開始 Sb 掺入 QDs 的量不明顯,屬於量子點開 始生長情形。到了 2.2 ML,因為 Sb 的量開始增加,相分離的情況產生,量子點 開始形成 InSb QDs 和 InAs-rich QDs,而 InAs-rich QDs 裡頭分別有各種受到 Sb 不 同程度表面活化效應影響的量子點,形成尺寸大小不一的量子點。到了 2.8 ML, InSb QDs 繼續生長愈長愈大顆,同樣地 InAs-rich QDs 裡面還是受到不同程度的 Sb 表面活化效應的牽制,使得 InAs-rich QDs 各自以不同的速率生長,同時不斷 地有受到表面活化效應嚴重的小顆量子點冒出,所以造成 InAs+Sb QDs 愈長愈厚, 均匀性卻沒有變好!

表 3.1-1 室溫不同厚度 InAs+Sb QDs 基態與第一激發態波長與半寬值

圖 3.1-2(c) 2.8 ML 室溫變 power


圖 3.1-3 不同厚度 InAs+Sb QDs 低溫 PL

	Sh454(2.0 ML)	Sh435(2.2 ML)		Sh438(2.8 ML)	
發光波長(nm)	1016	1008	1117	1060	1192
發 <mark>光</mark> 能量(eV)	1.22	1.23	1.11	1.17	1.04
半高寬(meV)	97	108	111	167	36

表 3.1-2 低溫不同厚度 InAs+Sb QDs 波長與半寬值



圖 3.1-4 不同厚度 InAs/InGaAs 量子點低溫 PL



圖 3.1-5(c) 2.8 ML 低溫變 power



圖 3.1-6(b) 2.8 ML InAs+Sb QDs 變溫 PL



圖 3.1-7(b) 2.2 ML 半高寬對溫度關係圖



圖 3.1-8(b) 2.8 ML 半高寬對溫度關係圖



圖 3.1-9(b) 2.8 ML P1 擬和 InSb QDs(虛線為 Varshni 擬和值)



圖 3.1-10(b) 2.8 ML P2 擬和 InAs 和 InSb QDs



圖 3.2-1(b) 熱退火 2.8 ML 室溫 PL 比較圖



圖 3.2-2(b) 熱退火 2.8 ML 低溫 PL 比較圖



圖 3.3-2(b) 2.8 ML RTA650 半高寬對溫度關係圖



圖 3.3-3(b) 2.8 ML RTA650 P2 擬和 InAs 和 InSb QD



圖 3.3-5(b) 2.8 ML RTA700 半高寬對溫度關係圖



圖 3.3-6(b) 2.8 ML RTA700 P2 擬和 InAs QDs



圖 3.3-8(b) 2.8 ML RTA750 半高寬對溫度關係圖



圖 3.3-9(b) 2.8 ML RTA750 P2 擬和 InSb QDs



圖 3.3-10(b) InSb QDs 基態與第一激發態



圖 3.4-1(c) 2.8 ML AFM 圖



第四章 電性量測結果與分析

(1)深層能階暫態頻譜基礎理論

(Deep Level Transient Spectroscopy, DLTS)

深層暫態能階頻譜(DLTS)技術在 1978 年被貝爾實驗室的 D. V. Lang 提出,近來被 廣泛用於量測半導體中缺陷的技術。主要是利用週期性變化的電壓施於量測樣品 上,進而改變樣品空乏區的大小獲得深層能階的相關資訊。本實驗室用的樣品是 n-type GaAs,所以就 n 型半導體蕭基結構來討論。

n型半導體蕭基結構的電容與載子濃度、缺陷濃度的關係式如下:

$$C = A_{\sqrt{\frac{q\varepsilon_{s}N_{D}}{2(V_{bi} - V_{R})}}} \sqrt{1 - \frac{N_{T}}{N_{D}}} e^{\frac{t}{\tau}} , V_{R}: 逆向偏壓; V_{bi}: 內建位勢障$$

可以改寫成

$$C = C_0 \left(1 - \frac{N_T}{2N_D} e^{-\frac{1}{\tau}}\right), \quad C_0 = A \sqrt{\frac{q\varepsilon_s N_D}{2(V_{b_1} - \tau)}}$$

在不同的兩個時間 t1 和 t2,所偵測到的 $\Delta C = C_0 \frac{N_T}{2N} (e^{\frac{T_2}{\tau}} - e^{-\frac{T_2}{\tau}})$

$$\Delta C_{\rm max} = C_0 \frac{N_T}{2N_D}$$

 $\pm^{N_D >> N_T}$,上式

若固定測量時的 t1:t2 的值,則當ΔC有最大值時,表示電子脫離缺陷捕捉的時間常數τ,剛好落在所設定的速率窗(rate window)中,所以改變不同的速率窗,可以得到多組溫度跟時間常數τ。帶入下式關係式;

$$\tau T^2 = \frac{e^{\frac{E_c - E_t}{kT}}}{\gamma_n \sigma_n}$$

1000

再經由阿瑞尼斯圖 $\ln(\tau T^2)$ v.s. T 可以求得電子從缺陷跳到 GaAs 傳導帶的活化能(斜率)以及缺陷捕捉截面積的大小(截距)。

(2)暫態電容頻譜基礎理論

(Capacitance transient spectroscopy)

暫態電容的理論跟 DLTS 是一樣的,只是 DLTS 是藉由改變速率窗來測得每個速率 窗所對應的溫度,而暫態電容是藉由每次改變不同的溫度量測電容對時間的響應。 由 DLTS 的理論知道 n 型半導體蕭基結構的電容與載子濃度、缺陷濃度的關係式 如下:

$$C(t) = C_0 (1 - \frac{N_T}{2N_D} e^{-\frac{t}{\tau}})$$
, $\Delta C_{\text{max}} = C_0 \frac{N_T}{2N_D}$

所以量測多個不同溫度的 **C(t)**,再求得每個溫度下電子脫離缺陷捕捉的時間常數 τ,再經由阿瑞尼斯圖求得缺陷活化能以及缺陷的捕捉截面積。

(3) 電容-電壓量測基礎理論

(Capacitance-Voltage measurement, C-V)

電容-電壓(C-V)量測是利用外加逆向偏壓(DC)來空乏半導體內的自由載子,藉此 改變其空乏區寬度。

假設空乏區為一平行板電容,根據半導體理論得知 $C=\frac{\mathscr{E}_0A}{W}$

其中W為空乏區的寬度大小,A為所製作電極的面積。若改變所施壓的逆偏壓 大小,則空乏區的寬度也會跟著改變,電容值也隨之變化。 空乏區的大小跟施加逆偏的關係為下式:

 $W = \left[\frac{2\varepsilon\varepsilon_0(V_{bi} + V_R)}{eN_d}\right]^{\frac{1}{2}}$

若改變偏壓 dV→dW→dQ ,又 $C = \frac{dQ}{dV}$

最後可以求得半導體內多數載子濃度隨空間的分布變化關係式,如下:

$$N(W) = \frac{2}{q \varepsilon_0 A^2(\frac{dC^{-2}}{dV})}$$

<u>4.1 深層能階暫態頻譜(deep level transient spectroscopy, DLTS)分析</u>

本實驗室黃文鏑學長曾做過 2.0 ML, 2.2 ML 和 2.8 ML 的電性分析,發現 2.0 ML 和 2.2 ML 在長晶的過程沒有缺陷產生,是良好的量子點樣品。但是 2.8 ML 卻在 表面產生了 threading dislocation,在量子點附近則有 misfit dislocation。這證明了 InAs+Sb QDs 長到了 2.8 ML 的時候量子點就已經產生晶格鬆弛現象。

(2.2 ML, 2.8 ML 熱退火缺陷)

退火 2.2 ML,退火温度分別為 650°C、700°C 和 750°C 一分鐘。圖 4.1-1 圖 4.1-2 發現在退火溫度為 650°C 及 750°C 時,DLTS 都可以偵測到一個深能階的缺陷。 (Ea≅ 0.65eV,σ ≅ 10⁻¹⁴~10⁻¹⁵cm²)

同樣退火本身晶格鬆弛的 2.8 ML, 退火溫度也是 650°C、700°C 和 750°C 一分鐘。 圖 4.1-3 圖 4.1-4 同樣也發現溫度為 650°C 及 750°C 時存在一個缺陷。 圖 4.1-5 說明 2.2 ML RTA650 不同偏壓下的阿瑞尼斯圖, 從偏壓從-0V~-3V, 所量 測到的應當是同一種缺陷,這可以由阿瑞尼斯圖看出它們都是處在同一塊區域。

不僅如此,圖4.1-6 2.2 ML RTA750 偏壓從-0V~-1V, DLTS 所量測到的也是相同的缺陷。同理圖4.1-7 2.8 ML RTA650 偏壓從-0V~-3V,還有 2.8 ML RTA750 偏壓從-0V~-1.5V 也是屬於同一類型的缺陷圖4.1-8。

圖 4.1-9 2.2 ML RTA650、2.2 ML RTA750、2.8 ML RTA650 和 2.8 ML RTA750, DLTS 所值測到的缺陷似乎是同一群的缺陷。暫且稱它為 InAs+Sb QDs 經由熱退火所產 生的缺陷。

原本沒有晶格鬆弛的 2.2 ML 經過熱退火之後產生的缺陷和已經晶格鬆弛的 2.8 ML 經過熱退火之後產生的缺陷竟是屬於同一種缺陷! 那麼這個經由熱退火所產

40

生的缺陷跟原本 as grown 2.8 ML 晶格鬆弛所引起的 threading dislocation 和 misfit dislocation 之間是否有所關聯?圖 4.1-10 把 as grown 2.8 ML 經由晶格鬆弛所產 生的 threading dislocation 和 misfit dislocation 的活化能阿瑞尼斯圖跟 DLTS 所量測 到的經由熱退火而產生的缺陷的活化能阿瑞尼斯圖畫在一起,發現 2.2 ML 和 2.8 ML 經由熱退火產生的缺陷在阿瑞尼斯圖是夾在 threading dislocation (E1)和 misfit dislocation(E2)兩個區塊當中。所以無法藉由這個缺陷在阿瑞尼斯圖上的位置去判 別這個缺陷的是 threading-like dislocation 還是 misfit-like dislocation。

(熱退火缺陷性質分析-點缺陷特性)

為了對此熱退火產生的缺陷做更深入的了解,改變 DLTS 的填充偏壓時間,看這 個缺陷是屬於填充飽和缺陷還是非填充飽和缺陷,以便了解這個缺陷是比較類似 misfit dislocation(填充飽和)還是 threading dislocation(非填充飽和)。 圖 4.1-11 為 2.2 ML RTA750 改變不同填充偏壓時間的 DLTS。 結果經由熱退火產生的缺陷,圖 4.1-12 改變填充偏壓,從 1 ms 到 80 ms,在 30 ms 之後,DLTS 的缺陷訊號就顯現有飽和狀態。顯然的,這個缺陷具有和 misfit dislocation 相同的點缺陷特性。將不同的填充偏壓時間所量到的缺陷的阿瑞尼斯 圖畫在一起,當填充偏壓的時間愈小(1 ms)缺陷捕捉截面積跟缺陷活化能是愈大 的,而且當填充偏壓時間愈大(80 ms),缺陷的位置是愈往 misfit dislocation 的區 間移去,求得的活化能和捕捉截面積也跟著變小圖 4.1-13 圖 4.1-14。表示這個 缺陷的活化能跟捕捉截面積跟填充偏壓時間之間是有關係。根據實驗結果顯示, 表 4.1-1,當填充偏壓時間愈小,電子要跨過的缺陷的位能障是愈高的,對應的 捕捉截面積也跟著變大;反之當填充偏壓時間變大電子要跨越的缺陷位能障是變 小的,對應的捕捉截面積也跟著變小。

由改變 DLTS 填充偏壓時間的實驗結果可以肯定這個由熱退火而產生的缺陷具有 點缺陷形式(具有填充飽和現象),推測這個缺陷是 misfit-like defect。但是為什麼 它的活化能會隨填充偏壓時間而改變?它的活化能可以從填充偏壓時間為1ms

41

的 0.95 eV 到 80 ms 的 0.29 eV !

我們假設熱退火的緣故讓缺陷具有大大小小不同的能階圖 4.1-15,當填充偏壓時間小(1 ms)電子會被灌到缺陷裡頭比較深的能階,量測到的缺陷活化能就比較大。當填充偏壓時間變大的時候,深能量的能階被填滿就會換到更淺的能階上去,所以當填充偏壓時間加到 80 ms 的時候,我們量測到比較小的缺陷活化能。 從 DLTS 改變填充偏壓時間的圖看出,當填充偏壓時間變長的時候,DLTS 的頻譜 是又大又寬的,這說明這個缺陷擁有大大小小不同的能階範圍,這跟我們所假設 的論點符合。

至於捕捉截面積跟缺陷活化能的關係,當捕捉截面積愈小所對應的缺陷活化能也 是比較小的。更進一步分析,捕捉截面積跟缺陷活化能是呈指數函數關係。所以 推斷存在一個缺陷捕捉位能障,這個缺陷捕捉位能障的大小影響捕捉截面積的大 小。這個缺陷捕捉位能障的存在,是因為這個熱退火讓缺陷有大大小小不同的能 階。一個電子從缺陷的深能階要跳到 GaAs 的傳導帶上面去,中途缺陷大大小小 的不同能階可能會進行再捕捉行為,因此在缺陷底層的能階除了要克服從底層能 階跳到 GaAs 傳導帶的位能障,還須克服淺能量的缺陷能階所提供的捕捉位能障, 進而影響了捕捉截面積的大小。

表 4.1-2、 圖 4.1-16 把所有 2.2 ML 和 2.8 ML 經由熱退火產生的缺陷的缺陷活化 能跟捕捉截面積,做 1n(*) V.S. E。plot,得到一條近乎直線的關係式,說明這 個熱退火缺陷的捕捉截面積跟缺陷活化能是 EXP 的關係式。

以上 DLTS 量測顯示,熱退火產生的缺陷具有一個捕捉位能障,以致嚴重影響 DLTS 不同速率窗下的缺陷訊號峰值大小,甚至影響了該速率窗下所對應的溫度。因為捕捉截面積是溫度的函數,而捕捉位能障影響捕捉截面積的大小,所以改變了速率窗下所對應的溫度,也改變了缺陷訊號峰值的大小。為了改善捕捉截面積影響訊號峰值大小以及速率窗所對應溫度的問題,必須將填充偏壓時間加大直到缺陷飽和狀態,這樣可以避免因為捕捉位障影響的捕捉截面積影響峰值訊號大小以及對應溫度。由此再改變不同速率窗去求活化能以及捕捉截面積的大小會

比較符合實際的情況,也可以減少因為捕捉位能障而影響數據的清晰度,讓數據分析明顯化。

<u>4.2 暫態電容量測分析(Capacitance transient spectroscopy analysis)</u>

為了證實這個熱退火產生的缺陷具有點缺陷的特性,分別對 2.2 ML RTA650 和 2.8 ML RTA650 量測不同溫度的暫態電容。當量測時間拉長的時候,暫態電容圖是呈現飽和的指數圖形。接著對不同溫度下所量測到的暫態電容求出各別的時間常數,將從暫態電容得到的時間常數跟溫度的關係畫成阿瑞尼斯圖,並跟 DLTS 所得到的阿瑞尼斯圖一起比較。不管是由暫態電容量測還是 DLTS,量測到的缺陷都是同一種。圖 4.2-1(a)(b) 顯示 transient 跟 DLTS 所量測的為同一缺陷,即熱退火產生的缺陷。

4.3 電容-電壓量測分析(Capacitance-Voltage measurement)

InAs+Sb QDs 2.2 ML 是良好的量子點結構,不僅可以從 PL 看到 2.2 ML 在低溫(20 K) 和室溫(300 K)的發光強度是 2.0 ML, 2.2 ML 和 2.8 ML 三片裡面最好的。 圖 4.3-1(a)(b)從電性 C-V 來看, 2.2 ML 也是三片裡面量子侷限力最佳的。不論 是低溫或者是室溫的 C-V 及縱深圖, 2.2 ML 的量子點位置大約接近 0.3µm 圖 4.3-2(a)(b),圖 4.3-3(a)(b),位置會提前的關係是因為這幾片樣品量測電性 前會先經過蝕刻的緣故。圖 4.3-4(a)(b),圖 4.3-5(a)(b) 2.8 ML 看不到良好的 侷限載子能力,是因為量子點長到 2.8 ML 的時候就已經發生晶格鬆弛,在表面 有 threading dislocation,量子點附近也有 misfit dislocation,造成 C-V 量測只能看 到載子被空乏的現象。

但是 2.8 ML 在 0.30μm 之後可以觀察到兩個明顯的峰值,為了確定這個峰值是不 是漏電流所引起的?圖 4.3-6(a)(b)把量測的偏壓從-3.5V 拉到-5V,結果顯示在 0.3μm 之後是存在有兩個峰值訊號,雖然峰值訊號跟背景濃度相差不多,但是出 現的位置跟量子點生長的位置相差不遠,所以認為這是量子點的訊號,但為什麼 會有兩個量子點訊號?推測是跟 InAs+Sb QDs 會產生兩群的量子點(0.3μm, 0.45μm),這個現象也可以在光性 PL 看到。至於到 0.5μm 時候縱深圖會急遽上升, 是因為 C-V 所加的 DC 訊號已經到達缺陷的費米能階位置,造成原本被缺陷捕捉 的載子瞬間被激發出來,所以才有如此大的縱深變化圖。

根據 PL 結果顯示, InSb QDs 發光波長較長,基態能量較小,比起大能隙,短發 光波長的 InAs-rich QDs,在 C-V 量測上會先偵測到 InAs-rich QDs,爾後再偵測到 InSb QDs。圖 4.3-1(a)(b)從室溫 C-V比較三片 as grown 2.0 ML,2.2 ML和 2.8 ML, 在 0.28µm 的峰值應當是 InAs-rich QDs 的訊號,在 0.35µm 的峰值訊號是位在 0.28µm 位置的 InAs-rich QDs 空乏掉鄰近載子而產生的背景峰值訊號。圖 4.3-6(a)(b) C-V 在大逆偏壓下看到 2.8 ML 在 0.45µm 附近的峰值訊號,推測是 另一群量子點 InSb QDs 的訊號,後頭緊跟著被大逆偏而掃出來的缺陷訊號。

(2.2 ML RTA650/2.8 ML RTA650 低溫、室溫 C-V 分析)

圖 4.3-7(a)(b) 2.2 ML RTA650 在低溫 85 K 可以量測到一個位置在 0.4µm 附近量 子侷限現象,侷限載子濃度大約在 10¹⁷ cm⁻³ 左右。但是到了室溫(300 K)時圖 4.3-8(a)(b)卻在 0.2µm 產生一個強烈的載子侷限訊號,侷限載子濃度大約在 5X10¹⁷ cm⁻³ 左右。顯然地它跟低溫的量子點訊號是不同的訊號,其一,出現的位 置不相同;其二,它在室溫的侷限能力比低溫觀察到的量子點侷限能力強(不同 於量子侷限的特性)。除此之外,在室溫低頻下可以看到靠近 0.25µm 出現一個侷 限載子濃度大約為 10¹⁷ cm⁻³ 左右的訊號,但是隨著頻率上升這個訊號也跟著消 失。

在 4.2 小節, DLTS 發現 2.2 ML RTA650 在表面存在有熱退火缺陷,所以推測在室 溫(300 K)看的 0.2μm 載子侷限訊號是缺陷的訊號,而靠近 0.25μm 低頻才出現的 訊號應該是受缺陷牽制而提前位置的低溫量子點訊號,原本量子點的訊號對頻率 的響應是不明顯的,但是因為表面產生的熱退火缺陷影響了量子點時間常數,進

44

而使量子點有頻率響應,所以到了高頻的時候看見的幾乎都是熱退火缺陷的訊號。 而低溫觀察到 0.4μm 附近的量子侷限訊號,猜想是 InAs-rich QDs 和 InSb QDs 的 合成訊號。缺陷提前量子點位置的原因可由能帶彎曲來解釋,因為缺陷活化能很 大(約 0.6 eV),讓能帶圖呈現大幅度的彎曲,以致影響了量測量子點出現的位置。 相同的情況也可以在 2.8 ML RTA650 觀察到,圖 4.3-9(a)(b) 2.8 ML RTA650 低 溫 C-V(100 K)在 0.45μm 可以觀察到量子侷限情形,跟 2.2 ML RTA650 比較起來, 2.8 ML RTA650 看起來像有兩個量子侷限情形,一個在 0.44μm 另一個在 0.49μm。 圖 4.3-10(a)(b) 2.8 ML RTA650 室溫 C-V 跟 2.2 ML RTA650 類似,也是在 0.2μm 量測到缺陷訊號並且在低頻率下看到被缺陷牽制的訊號,但是隨著量測的頻率變 高,量子點的訊號也隨著不見。而低溫觀察到兩個量子訊號推測為 0.44μm(InAs-rich QDs)和 0.49μm(InSb QDs)。

(2.2 ML RTA650/2.8 ML RTA650 變溫 C-V 分析)

從圖 4.3-11(a)(b) 2.2 ML RTA650 及圖 4.3-12(a)(b) 2.8 ML RTA650 一系列變溫 的 C-V 量測當中,在 200 K 附近,低溫 0.4μm 附近的訊號開始往表面遷移,這時 候也伴隨著 0.2μm 的缺陷訊號出現。尤其在 2.8 ML RTA650 的變溫 C-V 中,在 200 K 之前 0.4μm 的量子訊號是左高右低,但在 200 K 之後轉換成右高左低,隨後隨 著溫度上升,訊號也開始往表面移動。

而先前 PL 量測到載子傳輸行為大概在 150 K-200K 左右,所以 2.8 ML RTA650 低溫兩個的量子侷限行為,一個應當是 InAs-rich QDs(左邊 0.44μm)一個應當是 InSb QDs(右邊 0.49μm)。(符合 C-V 量測會先看到 InAs-rich QDs,再看到 InSb QDs)所以 當溫度升到 200 K 之後,可以看到 InSb QDs 的訊號是強於 InAs rich QDs 的訊號的。 接著當熱退火缺陷訊號產生的時候,量子點的訊號是整個被提前到 0.3μm 附近, 推測也是因為缺陷將整個能帶彎曲造成的影響,而量子點因為受缺陷抑制而具有 頻率響應。 (熱退火缺陷對光激發螢光的影響)

由第三章的光性分析得知經由熱退火會對 InSb QDs 的 PL 強度產生影響。不論是 2.2 ML 或是 2.8 ML 我們都可以看到熱退火會減弱 InSb QDs 的發光強度。DLTS 在 2.2 ML 和 2.8 ML 退火溫度為 650°C 和 750°C 時都可以量測到經由熱退火產生的缺 陷。從室溫 C-V 也可以偵測到 2.2 ML RTA650 和 2.8 ML RTA650 位於 0.2µm 附近的 深能階缺陷。綜觀以上實驗結果,推論熱退火產生的缺陷,影響 InAs+Sb QDs PL 訊號強度。另外圖 4.3-12 2.8 ML RTA650 室溫 C-V 在-1 V 附近觀察到的平台, 跟 DLTS 在-1 V 附近缺陷濃度較高,顯是 C-V -1 V 平台為 DLTS 所量測到的熱退 火缺陷訊號,也是 InSb QDs 經由熱退火發生晶格鬆弛的缺陷訊號。表 4.3-1 為 2.8 ML 不同偏壓下的缺陷濃度值。

4.4 TEM 結果與討論

TEM 2.2 ML RTA650 的結果顯示, 熱退火產生了一種類似 misfit dislocation 的缺陷, 並無 threading dislocation 存在。這跟 DLTS 和暫態電容所量測到的缺陷為點缺陷 的行為不謀而合。但是它在阿瑞尼斯圖的位置跟 misfit dislocation 的位置會有些 許的差異,推測是熱退火讓 misfit dislocation 改變了特性,即大大小小不同的缺 陷能階以及捕捉位障等等。除此之外我們從 TEM 觀察到的在上層的 GaAs 的缺陷 是多於下層的 GaAs,這也跟 DLTS 量測到的缺陷濃度是表面較高符合。









圖 4.1-4 2.8 ML RTA750 不同偏壓 DLTS 及阿瑞尼斯圖



圖 4.1-6 2.2 ML RTA750 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖



圖 4.1-8 2.8 ML RTA750 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖



圖 4.1-9 2.2 ML, 2.8 ML 熱退火缺陷阿瑞尼斯圖



圖 4.1-10 2.2 ML, 2.8 ML 熱退火缺陷與 E1, E2 阿瑞尼斯比較圖






圖 4.1-14 2.2 ML RTA750 熱退火缺陷與 E1, E2 阿瑞尼斯比較圖



圖 4.1-15 圖解熱退火缺陷能階圖

2.2 ML	Activation energy	Cross section area
RTA650	(eV)	(cm²)
-0~-0.5V	0.55	2.12X10 ⁻¹⁵
-0.5~-1V	0.57	2.62X10 ⁻¹⁵
-1~-1.5V	0.57	1.76X10 ⁻¹⁵
-1.5~-2V	0.63	1.43X10 ⁻¹⁴
-2~-2.5V	0.61	7.12X10 ⁻¹⁵
-2.5~-3V	0.68	9.58X10 ⁻¹⁴

2.2 ML	Activation energy	Cross section area
RTA750	(eV)	(cm ²)
-0~-0.5V	0.42	3.02X10 ⁻¹⁷
-0.5~-1V	0.82	4.27X10 ⁻¹¹

2.2 ML	Activation energy	Cross section area
RTA750	(eV)	(cm ²)
1 ms	0.95	3.48X10 ⁻⁹
10 ms	0.82	4.27X10 ⁻¹¹
30 ms	0.45	2.01X10 ⁻¹⁶
5 <mark>0 m</mark> s	0.35	4.18X10 ⁻¹⁸
80 ms	0.29	3.76X10 ⁻¹⁹
2.8 ML	Activation energy	Cross section area
DTAGEO	(0)()	(cm ²)

2.8 ML	Activation energy	Cross section area
RTA650	(eV)	(cm ²)
-0~-0.5V	0.59	1.93X10 ⁻¹⁴
-0.5~-1V	0.67	1.82X10 ⁻¹³
-1~-1.5V	0.71	2.25X10 ⁻¹³
-1.5~-2V	0.65	5.81X10 ⁻¹⁴
-2~-2.5V	0.56	2.10X10 ⁻¹⁵
-2.5~-3V	0.66	6.69X10 ⁻¹⁴
	4 4 5 8 W W	1 2 -

2.8 ML RTA750	Activation energy (eV)	Cross section area (cm ²)
-0~-0.5V	0.43	4.74X10 ⁻¹⁷
-0.5~-1V	0.38	9.30X10 ⁻¹⁸
-1~-1.5V	0.37	9.20X10 ⁻¹⁸

表 4.1-2 熱退火缺陷活化能與缺陷捕捉截面積表



圖 4.1-16 熱退火缺陷捕捉截面積與缺陷活化能指數關係圖



圖 4.2-1 DLTS 和 transient 阿瑞尼斯圖



圖 4.3-1(a)(b) 2.0, 2.2, 2.8 ML 室溫 CV 及縱深分布圖







圖 4.3-6(a)(b) 2.8 ML 室溫大偏壓 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-7(a)(b) 2.2 ML RTA650 低溫 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-8(a)(b) 2.2 ML RTA650 室溫 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-9(a)(b) 2.8 ML RTA650 低溫 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-10(a)(b) 2.8 ML RTA650 室溫 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-11(a)(b) 2.2 ML RTA650 變溫 CV 及縱深分布圖



圖 4.3-12(a)(b) 2.8 ML RTA650 變溫 CV 及縱深分布圖



表 4.3-1 2.8 ML RTA650 各偏壓下的 Nt





第五章 結論

從光激發螢光光譜(Photoluminescence, PL)的討論,根據 Varshni fitting 解析出 2.2 ML 和 2.8 ML 長波長訊號為 InSb QDs,了解到 Sb 在 InAs+Sb QDs 的成長中,會有相分離的情形產生(InSb QDs 和 InAs-rich QDs)。由於 Sb 表面活化效應的影響,使得受表面活化效應影響不一的 InAs-rich QDs 生長形成大大小小尺寸不一的量子點,跟 AFM 所顯現出的量子點均匀性不一可以互相應證。根據 Sb 表面活化效應延遲 InAs QDs 生長概念,推演出 InAs+Sb QDs 生長情況。

熱退火 InAs+Sb QDs,讓跟 GaAs 基板不匹配程度大的 InSb QDs 發生晶格鬆弛現 象,可從 PL 光譜看出 2.2 ML 和 2.8 ML 的 InSb QDs 經熱退火以後強度衰減,推 測熱退火所提供的熱能讓 InSb QDs 產生晶格鬆弛,減少 InSb QDs 發光數目。另 外深層暫態能階頻譜(DLTS)也可觀察到熱退火缺陷,故此缺陷是影響 InSb QDs 發 光減弱的原因。而熱退火對於 InAs-rich QDs 的影響,可改善尺寸不均勻情況。2.2 ML 和 2.8 ML 經過熱退火後,PL 半寬明顯縮減並解析出兩個清楚可見的訊號。高 溫度退火 2.8 ML, InAs-rich QDs 顯示具有 InAs QDs 發光行為。

熱退火 2.2 ML 和 2.8 ML 產生的缺陷,根據 DLTS 改變填充偏壓時間以及 transient 量測,判斷熱退火缺陷具有點缺陷特性。但熱退火缺陷的活化能又隨著填充偏壓時間變化有巨大的改變,以及缺陷捕捉截面積跟缺陷活化能之間成指數關係!根據捕捉位能障會影響缺陷活化能大小的理論,推測熱退火讓缺陷擁有多個缺陷能 階,也因此產生捕捉位能障改變缺陷捕捉截面積的大小。

退火 2.2 ML 和 2.8 ML 的 C-V 頻譜,可以觀察到靠近表面的缺陷訊號牽制量子點, 影響量子點頻率響應,並隨著溫度變化影響量子點遷移。另外從 2.8 ML 退火 650°C 變溫 C-V 觀察到兩群量子點隨著溫度傳輸的行為可以對應 PL 載子在 InSb QDs 和 InAs-rich QDs 間的傳輸行為。

TEM 顯現熱退火缺陷佐證 PL, DLTS, Transient, 以及 C-V 所觀察。

74

- [1] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Leroux, "GROWTH BY MOLECULAR-BEAM EPITAXY AND CHARACTERIZATION OF INAS/GAAS STRAINED-LAYER SUPERLATTICES," *Applied Physics Letters*, vol. 47, pp. 1099-1101, 1985.
- [2] O. B. Shchekin, G. Park, D. L. Huffaker, and D. G. Deppe, "Discrete energy level separation and the threshold temperature dependence of quantum dot lasers," *Applied Physics Letters*, vol. 77, pp. 466-468, Jul 2000.
- [3] A. Persano, A. Cola, A. Taurino, M. Catalano, M. Lomascolo, A. Convertino, G. Leo, L. Cerri, A. Vasanelli, and L. Vasanelli, "Electronic structure of double stacked InAs/GaAs quantum dots: Experiment and theory," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, p. 8, Nov 2007.
- [4] N. Vukmirovc and S. Tomic, "Plane wave methodology for single quantum dot electronic structure calculations," *Journal of Applied Physics*, vol. 103, p. 12, May 2008.
- [5] D. L. Huffaker and D. G. Deppe, "Electroluminescence efficiency of 1.3 mu m wavelength InGaAs/GaAs quantum dots," *Applied Physics Letters*, vol. 73, pp. 520-522, Jul 1998.
- [6] P. B. Joyce, T. J. Krzyzewski, G. R. Bell, T. S. Jones, E. C. Le Ru, and R. Murray,
 "Optimizing the growth of 1.3 mu m InAs/GaAs quantum dots," *Physical Review B*, vol. 64, p. 6, Dec 2001.
- H. Y. Liu, M. Hopkinson, C. N. Harrison, M. J. Steer, R. Frith, I. R. Sellers, D. J.
 Mowbray, and M. S. Skolnick, "Optimizing the growth of 1.3 mu m
 InAs/InGaAs dots-in-a-well structure," *Journal of Applied Physics*, vol. 93, pp. 2931-2936, Mar 2003.
- [8] H. Y. Liu, I. R. Sellers, M. Gutierrez, K. M. Groom, R. Beanland, W. M. Soong, M. Hopkinson, J. P. R. David, T. J. Badcock, D. J. Mowbray, and M. S. Skolnick, "Optimizing the growth of 1.3-mu m InAs/InGaAs dots-in-a-well structure: Achievement of high-performance laser," *Materials Science & Engineering C-Biomimetic and Supramolecular Systems*, vol. 25, pp. 779-783, Dec 2005.
- [9] C. Y. Ngo, S. F. Yoon, W. J. Fan, and S. J. Chua, "Effects of size and shape on electronic states of quantum dots," *Optical and Quantum Electronics*, vol. 38, pp. 981-991, Sep 2006.
- [10] S. I. Jung, H. Y. Yeo, I. Yun, J. Y. Leem, I. K. Han, J. S. Kim, and J. I. Lee, "Size distribution effects on self-assembled InAs quantum dots," *Journal of Materials Science-Materials in Electronics*, vol. 18, pp. S191-S194, Oct 2007.
- [11] A. Zolotaryov, A. Schramm, C. Heyn, and W. Hansen, "InAs-coverage dependence of self-assembled quantum dot size, composition, and density," *Applied Physics Letters*, vol. 91, p. 3, Aug 2007.

- [12] N. Y. Tang, "Effect of size non-uniformity on photoluminescence from ensembles of InAs quantum dots embedded in GaAs," *Journal of Materials Science*, vol. 42, pp. 6913-6916, Aug 2007.
- [13] Y. D. Jang, H. Lee, D. Lee, J. S. Kim, J. Y. Leem, and S. K. Noh, "The energy level spacing from InAs/GaAs quantum dots: Its relation to the emission wavelength, carrier lifetime, and zero dimensionality," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, p. 3, May 2006.
- [14] J. T. Ng, U. Bangert, and M. Missous, "Formation and role of defects in stacked large binary InAs/GaAs quantum dot structures," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 22, pp. 80-85, Feb 2007.
- [15] R. Choudhury, D. R. Bowler, and M. J. Gillan, "Atomic structure of misfit dislocations at InAs/GaAs(110)," *Journal of Physics-Condensed Matter*, vol. 20, p. 7, Jun 2008.
- [16] E. Hulicius, J. Oswald, J. Pangrac, J. Vyskocil, A. Hospodkova, K. Kuldova, K. Melichar, and T. Simecek, "Growth and properties of InAs/InxGa1-xAs/GaAs quantum dot structures," *Journal of Crystal Growth*, vol. 310, pp. 2229-2233, Apr 2008.
- [17] T. Yang, J. Tatebayashi, M. Nishioka, and Y. Arakawa, "Effects of accumulated strain on the surface and optical properties of stacked 1.3 mu m InAs/GaAs quantum dot structures," *Physica E-Low-Dimensional Systems & Nanostructures*, vol. 40, pp. 2182-2184, Apr 2008.
- P. Frigeri, L. Nasi, M. Prezioso, L. Seravalli, G. Trevisi, E. Gombia, R. Mosca, F. Germini, C. Bocchi, and S. Franchi, "Effects of the quantum dot ripening in high-coverage InAs/GaAs nanostructures," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, p. 8, Oct 2007.
- [19] T. Yang, J. Tatebayashi, K. Aoki, M. Nishioka, and Y. Arakawa, "Effects of rapid thermal annealing on the emission properties of highly uniform self-assembled InAs/GaAs quantum dots emitting at 1.3 mu m," *Applied Physics Letters*, vol. 90, p. 3, Mar 2007.
- [20] N. Arpatzanis, A. Tsormpatzoglou, C. A. Dimitriadis, J. D. Song, W. J. Choi, J. I. Lee, and C. Charitidis, "Effect of rapid thermal annealing on the noise properties of InAs/GaAs quantum dot structures," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, p. 6, Sep 2007.
- [21] R. Santoprete, P. Kratzer, M. Scheffler, R. B. Capaz, and B. Koiller, "Effect of post-growth annealing on the optical properties of InAs/GaAs quantum dots: A tight-binding study," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, p. 8, Jul 2007.
- [22] L. Hoglund, E. Petrini, C. Asplund, H. Malm, J. Y. Andersson, and P. O. Holtz, "Optimising uniformity of InAs/(InGaAs)/GaAs quantum dots grown by metal

organic vapor phase epitaxy," *Applied Surface Science*, vol. 252, pp. 5525-5529, May 2006.

- [23] T. Passow, S. Li, P. Feinaugle, T. Vallaitis, J. Leuthold, D. Litvinov, D. Gerthsen, and M. Hetterich, "Systematic investigation into the influence of growth conditions on InAs/GaAs quantum dot properties," *Journal of Applied Physics*, vol. 102, p. 9, Oct 2007.
- [24] V. G. Dubrovskii, G. E. Cirlin, Y. G. Musikhin, Y. B. Samsonenko, A. A. Tonkikh, N. K. Polyakov, V. A. Egorov, A. F. Tsatsul'nikov, N. A. Krizhanovskaya, V. M. Ustinov, and P. Werner, "Effect of growth kinetics on the structural and optical properties of quantum dot ensembles," *Journal of Crystal Growth*, vol. 267, pp. 47-59, Jun 2004.
- [25] V. G. Dubrovskii, Y. G. Musikhin, G. E. Cirlin, V. A. Egorov, N. K. Polyakov, Y. B. Samsonenko, A. A. Tonkikh, N. V. Kryzhanovskaya, N. A. Bert, and V. M. Ustinov, "Dependence of structural and optical properties of QD arrays in an InAs/GaAs system on surface temperature and growth rate," *Semiconductors*, vol. 38, pp. 329-334, 2004.
- [26] V. G. Dubrovskii, V. A. Egorov, G. E. Cirlin, N. K. Polyakov, Y. B. Samsonenko, N.
 V. Kryzhanovskaya, A. F. Tsatsul'nikov, and V. M. Ustinov, "Theoretical and experimental study of the effect of InAs growth rate on the properties of QD arrays in InAs/GaAs system," *Semiconductors,* vol. 37, pp. 855-860, 2003.
- [27] T. Kaizu, M. Takahasi, K. Yamaguchi, and J. Mizuki, "Modification of InAs quantum dot structure during annealing," *Journal of Crystal Growth*, vol. 301, pp. 248-251, Apr 2007.
- [28] A. Semenov, O. G. Lyublinskaya, V. A. Solov'ev, B. Y. Meltser, and S. V. Ivanov, "Surface segregation of Sb atoms during molecular-beam epitaxy of InSb quantum dots in an InAs(Sb) matrix," *Journal of Crystal Growth*, vol. 301, pp. 58-61, Apr 2007.
- [29] H. Miyoshi, R. Suzuki, H. Amano, and Y. Horikoshi, "Sb surface segregation effect on the phase separation of MBE grown InAsSb," *Journal of Crystal Growth*, vol. 237, pp. 1519-1524, Apr 2002.
- [30] T. Matsuura, T. Miyamoto, T. Kageyama, M. Ohta, Y. Matsui, T. Furuhata, and F. Koyama, "Surfactant effect of Sb on GaInAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy," *Japanese Journal of Applied Physics Part 2-Letters & Express Letters*, vol. 43, pp. L605-L607, May 2004.
- [31] D. Guimard, M. Nishioka, S. Tsukamoto, and Y. Arakawa, "Effect of antimony on the density of InAs/Sb : GaAs(100) quantum dots grown by metalorganic chemical-vapor deposition," *Journal of Crystal Growth*, vol. 298, pp. 548-552, Jan 2007.

- Y. Sun, S. F. Cheng, G. Chen, R. F. Hicks, J. G. Cederberg, and R. M. Biefeld,
 "The effect of antimony in the growth of indium arsenide quantum dots in gallium arsenide (001)," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, p. 6, Mar 2005.
- [33] K. S. a. Y. Arakawa, "Near 1.3µm Emission at Room Temperature from InAsSb/GaAs Self-Assembled Quantum Dots on GaAs Substrates," vol. 1, 139, 2001.
- [34] G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, J. Coelho, A. Mereuta, J. M. Moison, J. M. Gerard, and I. Sagnes, "Bimodal distribution of Indium composition in arrays of low-pressure metalorganic-vapor-phase-epitaxy grown InGaAs/GaAs quantum dots," *Applied Physics Letters*, vol. 79, pp. 2157-2159, Oct 2001.
- [35] J. Rihani, V. Sallet, H. J. Christophe, M. Oueslati, and R. Chtourou, "Antimony incorporation in InAs quantum dots grown on GaAs substrate by molecular beam epitaxy," *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, vol. 40, pp. 550-555, 2008.
- [36] O. G. Lyublinskaya, V. A. Solov'ev, A. N. Semenov, B. Y. Meltser, Y. V. Terent'ev, L. A. Prokopova, A. A. Toropov, A. A. Sitnikova, O. V. Rykhova, S. V. Ivanov, K. Thonke, and R. Sauer, "Temperature-dependent photoluminescence from type-II InSb/InAs quantum dots," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, p. 6, May 2006.
- [37] A. N. Semenov, O. G. Lyublinskaya, V. A. Solov'ev, B. Y. Mel'tser, and S. V.
 Ivanov, "In situ study of the formation kinetics of InSb quantum dots grown in an InAs(Sb) matrix," *Semiconductors*, vol. 42, pp. 74-79, Jan 2008.
- Y. M. Park, Y. J. Park, K. M. Kim, J. D. Song, J. I. Lee, K. H. Yoo, H. S. Kim, and C. G. Park, "Interdiffusion and structural change in an InGaAs dots-in-a-well structure by rapid thermal annealing," *Journal of Applied Physics*, vol. 96, pp. 5496-5499, Nov 2004.
- [39] Z. M. Wang, S. L. Feng, Z. D. Lu, Q. Zhao, X. P. Yang, Z. G. Chen, Z. Y. Xu, and H.
 Z. Zheng, "Annealing behavior of InAs/GaAs quantum dot structures," *Journal of Electronic Materials*, vol. 27, pp. 59-61, Feb 1998.
- [40] Q. W. Mo, T. W. Fan, Q. Gong, J. Wu, Z. G. Wang, and Y. Q. Bai, "Effects of annealing on self-organized InAs quantum islands on GaAs (100)," *Applied Physics Letters*, vol. 73, pp. 3518-3520, Dec 1998.
- [41] J. F. Chen, R. S. Hsiao, S. H. Shih, P. Y. Wang, J. S. Wang, and J. Y. Chi,
 "Properties of defect traps in triple-stack InAs/GaAs quantum dots and effect of annealing," *Japanese Journal of Applied Physics Part 2-Letters & Express Letters*, vol. 43, pp. L1150-L1153, Sep 2004.
- [42] S. W. Lin, A. M. Song, N. Rigopolis, B. Hamilton, A. R. Peaker, and M. Missous, "Combined optical and electrical studies of the effects of annealing on the

intrinsic states and deep levels in a self-assembled InAs quantum-dot structure," *Journal of Applied Physics*, vol. 100, Aug 2006.

- [43] D. Z. Hu, D. M. Schaadt, and K. H. Ploog, "Stress development during annealing of self-assembled InAs/GaAs quantum dots measured in situ with a cantilever beam setup," *Journal of Crystal Growth*, vol. 293, pp. 546-549, Aug 2006.
- [44] M. M. Sobolev, I. V. Kochnev, V. M. Lantratov, N. A. Bert, N. A. Cherkashin, N. N. Ledentsov, and D. A. Bedarev, "Thermal annealing of defects in InGaAs/GaAs heterostructures with three-dimensional islands," *Semiconductors*, vol. 34, pp. 195-204, 2000.
- [45] G. X. Shi, P. Jin, B. Xu, C. M. Li, C. X. Cui, Y. L. Wang, X. L. Ye, J. Wu, and Z. G. Wang, "Thermal annealing effect on InAs/InGaAs quantum dots grown by atomic layer molecular beam epitaxy," *Journal of Crystal Growth*, vol. 269, pp. 181-186, Sep 2004.
- [46] J. Tatebayashi, Y. Arakawa, N. Hatori, H. Ebe, M. Sugawara, H. Sudo, and A. Kuramata, "InAs/GaAs self-assembled quantum-dot lasers grown by metalorganic chemical vapor deposition Effects of postgrowth annealing on stacked InAs quantum dots," *Applied Physics Letters*, vol. 85, pp. 1024-1026, Aug 2004.
- [47] J. F. Chen, R. S. Hsiao, W. D. Huang, Y. H. Wu, L. Chang, J. S. Wang, and J. Y. Chi,
 "Strain relaxation and induced defects in InAsSb self-assembled quantum dots," *Applied Physics Letters*, vol. 88, p. 3, Jun 2006.
- [48] M. Y. Kong, X. L. Wang, D. Pan, Y. P. Zeng, J. Wang, and W. K. Ge, "A comparison of photoluminescence properties of InGaAs GaAs quantum dots with a single quantum well," *Journal of Applied Physics*, vol. 86, pp. 1456-1459, Aug 1999.
- [49] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, X. P. Yang, Z. L. Yuan, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang, and L. L. Chang, "Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates," *Physical Review B*, vol. 54, pp. 11528-11531, Oct 1996.