

國立交通大學

電子物理學系

碩士論文

熱退火對 InAsN/InGaAs 量子點結構電子放射之影響

**The influence of rapid thermal annealing on the electron emission  
of InAsN/InGaAs dot-in-well structures**



研究生：張雁婷

指導教授：陳振芳 博士

中華民國九十九年七月

熱退火對 InAsN/InGaAs 量子點結構電子放射之影響

**The influence of rapid thermal annealing on the electron emission  
of InAsN/InGaAs dot-in-well structures**

研究生：張雁婷

Student : Yen-Ting Chang

指導教授：陳振芳 博士

Advisor : Dr. Jenn-Fang Chen

國立交通大學

電子物理學系



Submitted to the Institute of Electrophysics  
College of Science  
National Chiao Tung University  
in partial Fulfillment of the Requirements  
for the Degree of  
Master of Science  
in  
Electrophysics  
July 2010  
Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十九年七月

# 熱退火對 InAsN/InGaAs 量子點結構電子放射之影響

研究生：張雁婷

指導教授：陳振芳 博士

國立交通大學電子物理學系

## 摘 要

本論文主要是藉由光性及電性的量測，包括光激發螢光頻譜(PL)、電容電壓(C-V)、導納頻譜(C-F&G-F)、深層能階暫態頻譜儀(DLTS)的量測，來探討在 InAsN/InGaAs 這種 quantum dot-in-well (DWELL) 結構中，其量子能階，缺陷能階和電子放射機制經由快速熱退火(rapid thermal annealing)後的改變。樣品是 InAs 量子點成長 2.2 ML，並摻入 17% 的氮，所形成的 InAsN 量子點 (As-grown)，再予以熱退火 700°C 2 分鐘 (RTA 700) 和 800°C 3 分鐘 (RTA 800) 作為進一步研究。

由 TEM 分析上發現摻入氮的樣品其量子點尺寸下降，以至於在 PL 量測中未得到預期的波長紅移現象，並且可看見 InAsN 量子點的發光效率降低和半高寬(full width at half maximum, FWHM)變寬的現象，以及出現一個不同於量子點的低能量訊號(localized states)，推測以上現象是因為所摻入的氮含量高達 17% 所致。

氮分佈的不均勻使得發光效率變低，而且氮本身的群聚效應在量子能階附近產生了 localized states，且經由傅立葉分析(Fast Fourier filtered image)觀察，在量子點周圍發現一些錯位差排缺陷(misfit dislocation defect)，這些現象都將影響電子的放射機制。

樣品經過熱退火過程後，在 PL 量測中可看到量子訊號增強，localized states 訊號減弱，這是因為氮在量子點中分佈變均勻及摻氮所產生的點缺陷減少，降低非輻

射再結合的現象，PL 強度因而增強；而電性量測中更可發現 localized states 減少，使背景摻雜濃度恢復，電子放射機制因而改變，同時也觀察到量子穿隧效應。在論文中也使用理論計算模擬電性量測結果，證明熱退火過程確實讓樣品的量子特性恢復。



# **The influence of rapid thermal annealing on the electron emission of InAsN/InGaAs dot-in-well structures**

Student: Yen-Ting Chang

Advisor: Dr. Jenn-Fang Chen

Department of Electrophysics  
National Chiao Tung University

## **Abstract**

The effects of post-growth thermal annealing on optical and electrical properties of InAsN /InGaAs dot-in -well structures grown by molecular beam epitaxy on GaAs(100) were studied by using capacitance-voltage (C-V) profiling, bias-dependent deep level transient spectroscopy (DLTS) and photoluminescence (PL) measurements.

An unexpected blueshift of the PL emission energy of the InAs QDs with N incorporation is observed. This effect could be induced by a decrease of QDs size with N incorporation. In addition, a broadening of the QDs PL emission and a decrease in PL intensity are seen, which is attributed to the QD size fluctuations, due to a wide energy distribution of the density of states. After annealing, the PL intensity is increased and the PL linewidth is reduced. Furthermore, the low energy tail created by N incorporation is reduced by the annealing process. These results suggest that annealing can reduce compositional fluctuation between the QDs and remove the non-radiative centers associated with the point defects.

Also, a significant improvement on the electrical properties of the rapid thermal annealing (RTA) samples can be obtained. After annealing, the C-V spectra show that a

C plateau is split into two plateaus, corresponding to the quantum states and localized states. The result suggests that the thermal annealing process improves the quality of QDs. Furthermore, the carrier-depletion effect is reduced and a quantum tunneling effect is observed.

In summary, annealing recovers the background concentration due to the decrease of the localized states. It enhances the quantum effect of InAsN /InGaAs dot-in-well structures, which can be seen from the optical and electrical measurements. The result of C-V simulation is consistent with the experiment data.



## 致 謝

研究生生活，在這星期即將結束，突然要離開新竹還真有點不捨，兩年來要感謝的人太多，首先感謝老師當初收了我，讓我能夠在氣氛這麼好的實驗室做研究，也謝謝老師兩年來的指導。

阿豪、孟謙、阿鴻、仲安學長謝謝你們的照顧，尤其在工六七樓最帥的孟謙學長訓練下，讓我可以堅強的面對未來的困難；還有畢業的怡帆、嘉葳、達叔、阿翔謝謝你們在實驗上的指導；家峰、阿至、Chic、學妹妍君、學弟小毛、小豆，真的很高興可以認識你們，有你們的加入，讓實驗室氣氛更加歡樂許多；特別是碩一點五的Chic及碩一們，謝謝你們辛苦的為實驗室大小活動付出；Chic謝謝你平常聽我有事沒事的碎碎念，學妹謝謝你幫我跑環校；還有我碩二最尊敬的三位同學，阿誠、阿俊、華安謝謝你們幫我度過研究上的難關，祝福你們未來發展順利。

我的新室友小花，剛到新竹的第一天就能遇見你，我真的太幸運了，我會懷念跟你相處的每一天的，希望你未來工作順利，我們尾牙見；我最親愛的老朱，謝謝你遠距離的關心，還有鐵口的本領，我就要回去找你了775；還有在新竹的大學同學們，我會想念你們的，祝大家實驗順利要畢業的快點畢業，要死會的快點死會，幸福的就要一直幸福下去。

因為能和大家相遇，讓我的學生生涯充滿歡笑，讓我能有一段美麗的回憶，真的很高興能和你們度過這些時光，請大家繼續跟我保持聯絡吧！

我最重要最愛的爸媽、老妹，沒有你們的支持，就沒有今天的我，謝謝你們。

雁婷

于交大 2010.07

# 目 錄

中文摘要.....	i
英文摘要.....	iii
致謝.....	v
目錄.....	vi
圖表目錄.....	viii
第一章 緒論.....	1
1-1 InAs/GaAs 量子點材料簡介.....	1
1-1-1 量子點簡介及其特性.....	1
1-1-2 Dot-in-well (DWELL)簡介.....	2
1-1-3 氮摻雜效應.....	2
1-2 研究動機.....	3
1-3 論文架構.....	4
第二章 樣品製備與量測系統簡介.....	7
2-1 樣品製備.....	7
2-1-1 樣品成長.....	7
2-1-2 電極製作.....	7
2-2 量測系統簡介.....	8
2-2-1 光激發螢光量測系統(PL).....	8
2-2-2 電流電壓量測(I-V).....	10
2-2-3 電容電壓量測(C-V).....	11
2-2-4 導納頻譜量測(C-F & G-F).....	11
2-2-5 深層能階暫態頻譜量測(DLTS).....	12
第三章 InAsN/InGaAs 結構光性分析.....	13



3-1	As-grown 的光性.....	13
3-2	As-grown 與 RTA 樣品光性比較.....	14
第四章	熱退火效應對電子放射機制的影響.....	20
4-1	電壓電容量測.....	20
4-2	導納頻譜量測.....	22
4-3	Phonon assisted tunneling model.....	23
4-4	DLTS 深層能階暫態頻譜分析.....	25
4-5	電性結論.....	27
第五章	電容電壓量測模擬.....	54
5-1	C-V 模擬.....	54
第六章	結語.....	60
	參考文獻.....	61



# 圖 表 目 錄

## 圖目錄

圖1-1	三五族合金半導體晶格常數及能隙關係圖.....	5
圖2-1	樣品結構圖及能階圖.....	13
圖2-2	PL系統架構圖.....	13
圖3-1	InAs QDs 與 InAsN QDs 室溫 PL 比較圖.....	15
圖3-2	(a)InAs QDs 與 InAsN QDs TEM 比較圖.....	15
圖3-2	(b)Fast Fourier filtered .....	15
圖3-3	室溫高功率的 PL 圖.....	16
圖3-4	As-grown 能階示意圖.....	16
圖3-5	As-grown 變溫 PL 圖.....	17
圖3-6	As-grown 與 RTA sample 的 PL 比較圖.....	18
圖3-1	RTA 800 的 PL 圖(logarithmic scale).....	19
圖4-1	As-grown 室溫變頻 C-V 圖.....	28
圖4-2(b)	As-grown 室溫濃度縱深圖.....	28
圖4-2(b)	As-grown 室溫低頻縱深濃度圖.....	29
圖4-3(a)	As-grown 變頻 C-V 圖.....	30
圖4-3(b)	RTA 700 變頻 C-V 圖.....	30
圖4-3(c)	RTA 800 變頻 C-V 圖.....	30
圖4-4(a)	As-grown 縱深濃度圖.....	31
圖4-4(b)	RTA 700 縱深濃度圖.....	31
圖4-4(c)	RTA 800 縱深濃度圖.....	31
圖4-5	As-grown 與 Schottky diode C-V 比較圖.....	32
圖4-6(a)	RTA 700 室溫 C-V 圖.....	33
圖4-6(b)	RTA 800 室溫 C-V 圖.....	33
圖4-7(a)	As-grown 室溫高頻轉縱深.....	34
圖4-7(b)	RTA 700 室溫高頻轉縱深.....	34
圖4-7(c)	RTA 800 室溫高頻轉縱深.....	34
圖4-8(a)	As-grown $\frac{G}{f}$ -f 圖( $V_R = -0.8$ V).....	35
圖4-8(b)	As-grown $\frac{G}{f}$ -f 圖( $V_R = -0.9$ V).....	35
圖4-8(c)	As-grown $\frac{G}{f}$ -f 圖( $V_R = -1.6$ V).....	36
圖4-8(d)	As-grown $\frac{G}{f}$ -f 圖( $V_R = -1.8$ V).....	36

圖4-9	As-grown $\tau - \frac{1}{T}$ 關係圖.....	37
圖4-10	能階示意圖.....	37
圖4-11(a)	RTA 700 $\tau - \frac{1}{T}$ 關係圖.....	38
圖4-11(b)	RTA 800 $\tau - \frac{1}{T}$ 關係圖.....	38
圖4-12	Frenkel - Poole effect.....	40
圖4-13(a)	RTA 700 Phonon-assisted tunneling fitting.....	41
圖4-13(b)	RTA 800 Phonon-assisted tunneling fitting.....	41
圖4-14	As-grown 與 RTA 樣品電子放射時間比較圖.....	42
圖4-15(a)	As-grown 在 rate window 為 21.5 ms 的 DLTS 圖.....	43
圖4-15(b)	RTA 700 在 rate window 為 4.3 ms 的 DLTS 圖.....	43
圖4-15(c)	RTA 800 在 rate window 為 4.3 ms 的 DLTS 圖.....	43
圖4-16	As-grown 與 RTA 樣品能階示意圖.....	44
圖4-17	As-grown 與 RTA 樣品穿隧效應示意圖.....	44
圖4-18	As-grown 在 rate window 為 43 ms 不同偏壓的 DLTS 圖.....	45
圖4-19	As-grown 淺層與深層能階濃度與 C-V 對照圖.....	46
圖4-20(a)	RTA 700 在 rate window 為 4.3 ms 不同偏壓的 DLTS 圖.....	47
圖4-20(b)	淺層能階不同偏壓下訊號大小比較.....	48
圖4-20(c)	深層能階不同偏壓下訊號大小比較.....	48
圖4-21(a)	RTA 800 在 rate window 為 4.3 ms 不同偏壓的 DLTS 圖.....	49
圖4-21(b)	淺層能階不同偏壓下訊號大小比較.....	50
圖4-21(c)	深層能階不同偏壓下訊號大小比較.....	50
圖4-22	RTA 700 深層能階躍遷示意圖.....	51
圖4-23	RTA 800 深層能階躍遷示意圖.....	52
圖4-24	As-grown 與 RTA 樣品載子放射時間比較圖.....	53
圖4-1	RTA 樣品載子放射時間與理論比較圖.....	53
圖5-1	模擬所用導帶模型.....	56
圖5-2(a)	低頻等效電路.....	56
圖5-2(b)	高頻等效電路.....	56
圖5-3(a)	As-grown C-V 模擬圖.....	57
圖5-3(b)	As-grown 樣品轉縱深模擬.....	57
圖5-4	能態密度分佈.....	57
圖5-5	RTA 700 樣品 C-V 模擬.....	58
圖5-6	RTA 700 樣品 C-V 模擬.....	58
圖5-7	RTA 800 樣品 C-V 模擬.....	59

# 圖 表 目 錄

## 表目錄

表 4-1 (a)	RTA 700 QDs 與 localized states 活化能及捕捉截面積.....	39
表 4-1 (b)	RTA 800 QDs 與 localized states 活化能及捕捉截面積.....	39
表 4-2	As-grown 量子能階與缺陷能階活化能及捕捉截面積.....	45
表 4-3	RTA 700 量子能階活化能及捕捉截面積.....	47
表 4-4	RTA 800 量子能階與活化能及捕捉截面積.....	49
表 4-5	RTA 700 缺陷能階活化能及捕捉截面積.....	51
表 4-6	RTA 800 缺陷能階活化能及捕捉截面積.....	52



# 第一章 緒論

## 1-1 InAs/GaAs 量子點材料簡介

### (1). 量子點特性與應用：

量子點是一種奈米晶體 (nanocrystals)，其直徑僅在數個~數十奈米間，而如果材料的特徵尺寸在三個維度上都與電子的 de Broglie 波長或電子平均自由路徑相近或更小，電子的能量將被量化，所以就造成了類似 $\delta$  function 的態密度&能階分立不連續的特性<sup>[1,2]</sup>。這種特性導致以量子點為作用區的半導體雷射具有較窄的增益頻譜 (gain spectrum)、低臨界電流 (threshold current)<sup>[4]</sup>、較高飽和材料增益 (saturation material gain) 等優點。已經在電子或光電元件被使用，如半導體雷射<sup>[5,6]</sup>、電晶體<sup>[7]</sup>、光二極體 (LEDs)<sup>[8]</sup>等，近幾年在電荷量子訊息上<sup>[9]</sup>和生物感測上<sup>[10]</sup>也有潛在的應用。而量子點亦可拉長以 GaAs 為基底元件的放射波長，以達到光通訊所需的波長範圍 (1.3~1.55 $\mu\text{m}$ ) (此範圍剛好符合光纖的透明視窗，而 1.3 $\mu\text{m}$  為最小散射的波長；1.55 $\mu\text{m}$  為最小吸收的波長)。

### (2). 異質介面三種磊晶模式的成長機制：

早期的自聚式量子點是在 1988 年由 T. Itoh、Y. Iwabuchi、及 M. Katanoka 在玻璃上成長 CdSe、CdS、和 CuCl 等的微小結晶體，來觀察其量子點光與電的特性<sup>[11]</sup>。而利用應力誘發原理來成長量子點的磊晶方法主要有二：

1. 有機金屬氣相磊晶(Metal Organic Chemical Vapor Deposition, MOC-VD)是一種單向的化學反應，成長速度較快且維護方便，較適合大量生產，但成長高品質的量子點則較具挑戰性。
2. 分子束磊晶 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) 成長均勻和密集的量子點，此種成長方式中，表面能對於量子點的成核作用很重要。優點為在成份及厚度上具有良好的操控性，磊晶速率可精確到每秒低於一個分子層(ML/s)，品質及均勻度佳，且可利用反射高能電子繞射 (reflection high energy electron diffraction, RHEED)

對材料表面做即時的監控。

接著簡單介紹異質接面的三種磊晶模式<sup>[12]</sup>，這些成長模式的機制就是系統的演變總會傾向最低的能量：

1. 層接式 ( F-vdM mode, Frank-van der Merwe mode )<sup>[13]</sup>：磊晶材料的表面能小於或等於基板的表面能時，有利於此種成長模式。
2. 島嶼式 ( V-W mode, Volmer-Weber mode )<sup>[14]</sup>：磊晶材料的表面能大於基板的表面能時，則利於島嶼式的模式。
3. 層接而後島嶼式 ( S-K mode, Stranski-Krastanow mode )<sup>[15]</sup>：成長幾個單層後，會先在 GaAs 上形成沾濕層 ( wetting layer )，然後自我聚集形成島狀物，所以也稱為自聚式量子點 ( self-assembled QDs )。此種成長方式有效的提供高密度、高均勻度及無缺陷的量子點。但當厚度繼續增加，應力鬆弛後就會有插排等缺陷產生。



### 1-1-2 Dot-in-well (DWELL)簡介

Dot-in-well 顧名思義是指量子點埋在量子井中，也就是量子點與基板間多了緩衝層，此結構好處是可減緩量子點與基板的應力及晶格不匹配，量子點中的能階也因多加了這層產生平移、拉長波長，相關的研究如在 InAs 和 GaAs 之間加入 InGaAs 層<sup>[16,17]</sup>，成功的將波長延伸至 1.3 $\mu\text{m}$  以上，另外提高 InGaAs 層中的 In 含量和增加 InGaAs 層的厚度，可以將波長拉得更長<sup>[18]</sup>，除此之外，在 2000 年中 D. Deppe 的研究團隊就證實了 InGaAs 的量子點成長在 InGaAs 的緩衝層上比直接成長在 GaAs 基板上密度要高上兩倍<sup>[19]</sup>，量子點尺寸與形狀也較均勻與完美<sup>[20]</sup>。

### 1-1-3 氮摻雜效應

對於不同混合比例的半導體合金其能隙大小可由 Vegard's law<sup>[29]</sup>來決定，並且加上一個包含與混和比例無關的 bowing coefficient<sup>[30]</sup>的二次式來修正能隙，在一般三五

族的合金中，隨著晶格常數的降低能隙因而增加如圖 1-1 所示。但將摻入氮的合金中卻得到一個晶格常數和能隙皆降低的結果，這是因為氮原子電負度很大，所以和其他同為五族的元素相比，其有較大的 bowing coefficient，這會造成導帶會有一個明顯的彎曲現象<sup>[31]</sup>。在 BAC ( band anticrossing ) mode 中<sup>[32]</sup>，也解釋了氮的摻雜使能隙變小的這一現象，這是因為氮原子產生的微擾所致。氮原子會在導帶附近形成一個共振的能帶和導帶產生強烈的交互作用，此一作用後會使得導帶分裂成兩條，在原先的位置往上下各自移動，下移的導帶與價帶間距離減少，進而使能隙變小，波長變長。

## 1-2 研究動機

近年來常在成長 InAs 的量子點過程中，蓋上一層 capping layer 使得發光波長得以延展到 1.3  $\mu\text{m}$  附近<sup>[21]</sup>，而研究中發現以 InGaAs 材料取代傳統的 GaAs 材料當成 capping layer 的 InAs/InGaAs(DWELL)結構除了可將波長拉長又可以有效的降低應力對量子結構的影響。成長較大尺寸的量子點也可增加發光波長<sup>[22]</sup>，但因為成長方式的限制，容易發生銻的相分離 ( In segregation )，使得波長的紅移現象並不明顯。對 InAs/InGaAs ( DWELL ) 奈米結構摻入氮，正是一個將發光波長發長且降低應力影響的兩全其美方式。

而我們的 InAsN/InGaAs ( DWELL ) 奈米結構卻出現一個特別的現象，和同樣長晶條件下的 InAs/InGaAs ( DWELL ) 結構相比，在 PL 量測中並未看到波長被拉長的結果。藉由 TEM 的量測結果，可看到在 InAsN 量子點下方有一條明顯的 wetting layer，而 wetting layer 具有高含量的銻，並且我們可以看到 InAsN 量子點的尺寸降低為 3nm，推測這是波長未被拉長的主因。

因為高濃度的氮 (17%) 摻雜，使得本來就會出現的氮在 InAsN 量子點中分布不均勻現象更加明顯<sup>[23,24]</sup>，以至於 InAsN 量子點的發光效率降低；不同於量子點訊號，在低能量區域也出現一個長尾巴的訊號，這是因為氮自身的群聚效應而產生一個偏

限載子的能階 ( localized states ) ，而此能階會延伸至 InAs 材料導帶 ( conduction band ) 上方<sup>[24]</sup> ，推測其會在 InAsN 量子能階下方形成一個特性相似的能階。而經由傅立葉分析 ( Fast Fourier filtered image ) 會發現在量子點周圍也存在一些錯位差排缺陷 ( misfit dislocation defect )，這是普遍存在於 GaAs/GaAs 和 InGaAs/GaAs 材料中的 E2 (E2-like)<sup>[25,26]</sup> 缺陷。

在電性的量測中，可以看到因為氮摻雜改變了本來完美的量子結構，使得在 InAsN 量子點中的電子放射時間比完美的 InAs 量子點<sup>[27]</sup> 來得長，因此除了使用 C-V 和 Admittance 量測外，還可以配合 DLTS 加以分析；快速熱退火過程 ( RTA ) ，可重整樣品結構<sup>[23,24,28]</sup> ，在我們的研究中發現，這會讓 InAsN 量子結構恢復量子特性。

### 1-3 論文架構

本論文主要是利用光性 ( PL ) 及電性 ( C-V、Admittance、DLTS 等 ) 的量測，研究對成長厚度 2.2ML InAs/InGaAs 量子點，摻入 17% 的氮後所形成的 InAsN/InGaAs ( DWELL ) 結構，比較其能階及電子放射機制在經過熱退火後的改變。樣品一共有三片，分別是 As-grown 熱退火 700°C 2 分鐘 ( RTA 700 ) 和 800°C 3 分鐘 ( RTA 800 )。

以下簡介本論文的章節安排：

第一章緒論部份，簡介量子點的成長及應用，並對研究的 DWELL 樣品做簡單介紹，以及此研究的動機。

第二章樣品的製備與量測系統部分，包括了實驗樣品的成長結構及電性量測所需之電極製作，另外針對本論文所用到的量測系統做簡介。

第三章針對 PL 量測來做分析，可以看出經由熱退火後三片明顯樣品的差別，隨的熱退火溫度的提高，量子點訊號也隨之提升。

第四章分析電性的量測結果，包含 C-V profiles、admittance ( G-F ) 以及 DLTS ，來比較熱退火對樣品的影響及改善。



第五章模擬電性量測的結果，支持實驗的結果。

第六章統整光性及電性的實驗結果，了解熱退火過程在 InAsN/InGaAs ( DWELL )  
量子結構的影響。



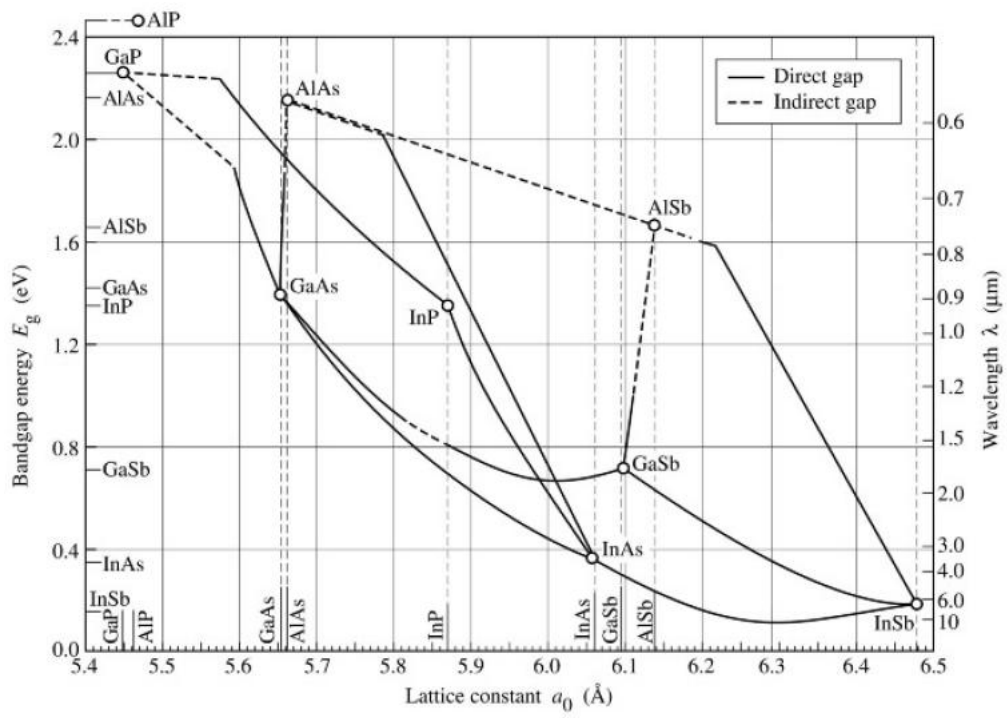


圖 1-1 三五族合金半導體晶格常數及能隙關係圖



## 第二章 樣品製備與量測系統簡介

### 2-1 樣品製備

樣品製備分為量子點樣品的成長與正極蕭基界面（Schottky contact）及負極歐姆界面（Ohmic contact）的電極製作

#### 2-1-1 樣品成長

樣品是由工研院所提供，由分子束磊晶（Molecular beam epitaxy）成長的，長晶所使用的基板為(100)方向的  $n^+$ -GaAs ( $8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )，基板成長溫度固定在  $600^\circ\text{C}$ ，而 QD、QW 的長晶溫度則設定為  $485\sim 500^\circ\text{C}$ 。成長的步驟：

- (1). 先在 GaAs 基板上成長一層  $0.3 \mu\text{m}$  GaAs 緩衝層  
(buffer layer, Si doping:  $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )
  - (2). 之後成長 2.2 ML InAs QD，同時以射頻電漿（RF Plasma）游離氮分子的方式將 17% 的氮原子加入 InAs QD layer。
  - (3). 接著再以相同溫度覆蓋上一厚度為  $60\text{\AA}$  的  $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$  QW
  - (4). 最後升回  $600^\circ\text{C}$ ，覆蓋  $0.3 \mu\text{m}$  GaAs capping layer (Si doping:  $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ )。
  - (5). 此外並將樣品做熱退火處理（RTA），分別為  $700^\circ\text{C}$  2 分鐘， $800^\circ\text{C}$  3 分鐘
- 本論文成長的樣品結構圖及所對應的能帶圖如圖 2.1 所示。

#### 2-1-2 電極製作

成長完的樣品由於電性量測的需求，有製作電極的必要。主要是利用熱蒸鍍方法在樣品的正面鍍上 Al 形成蕭基界面，利用逆偏壓來調變蕭基界面所形成的空乏區，來量測樣品不同區域的特性。除此之外仍然需要在樣品的背面製作歐姆界面，以便做訊號的量測。另外在製作電極前還需要一連串清理的步驟，以免影響半導體與金

屬的接面，造成實驗的誤判。主要步驟如下：

- (1). 配合使用石英震盪器，沖泡去離子水 (D.I water) 約 3 分鐘 ( 去除表面一般雜質 )，並用氮氣吹乾。
- (2). 將試片浸泡於丙酮溶液 (Acetone) 中約 2~3 分鐘，去除表面油漬。
- (3). 沖泡去離子水，約 3 分鐘 ( 去除殘留之 Acetone )，並用氮氣吹乾。
- (4). 置入稀釋過的鹽酸溶液 (HCl:H<sub>2</sub>O=1:1) 中約 2~3 分鐘 ( 去除陽離子及氧化層)。
- (5). 沖泡去離子水約 3 分鐘 ( 去除殘留的酸液 )，並用氮氣吹乾。
- (6). 經過清理後的樣品，於其上覆蓋所需要的 mask 來決定金屬接面的面積大小。  
(本篇論文中所量測的面積大小為 0.005024 cm<sup>-3</sup>)
- (7). 置入蒸鍍機內，使用機械幫浦 ( mechanical pump ) 及擴散幫浦 ( diffusion pump )，待抽真空至 2~3x10<sup>-6</sup> torr 以下，再開始以熱蒸鍍的方式鍍上 Al。
- (8). 另外歐姆接面則是使用 In，先在樣品的背面上點上兩個 In ball，經過高溫爐管約 300 °C 的加熱後，量測兩個 In ball 間的電阻值使低於 10 Ω，具有歐姆特性，再將之置於均勻塗滿 In 的 Si 基板上。以上為電性量測所需的樣品製備。

## 2-2 量測系統簡介

本研究主要分為光性量測與電性量測，分別在 2-1-1 節及 2-2-2 節以後做介紹。

### 2-2-1 光激發螢光量測系統(PL)

本論文使用的 PL (Photoluminescence)量測系統是楊賜麟老師實驗室所提供的，其中依實驗需求所使用的儀器設備包含：

- (1). 固態雷射 ( solid-state laser )：為 Excel 公司生產，型號為 LOC-VENTUS 1000 SERIES，為 CW 雷射，波長 532 nm，最大輸出功率 1.3 mW，雷射穩定度在 1.9% 以內，RMS 平均雜訊為 0.7%，驅動電流 6 安培，主要利用此雷射來激發樣品

發出螢光而偵測。

- (2). 衰減濾光片組 ( Variable Neutral Density Filter ) : 利用衰減片來控制、調整想要的雷射輸入功率。
- (3). 光遮斷器 ( Optical chopper ) : 目的在於使連續波的雷射形成方波的形式，所使用的型號為 NEW FOCUS 3501，7/5 孔型式，固定頻率在 500 Hz。
- (4). 聚焦透鏡 ( Focus Lens ) : 利用聚光透鏡將雷射光聚焦在樣品上。
- (5). 溫控裝置 : 主要為了量測低溫與變溫的光學特性而設置，包含真空腔體 ( chamber )、降溫用壓縮機 ( compressor )、機械幫浦 ( mechanical pump )、冷卻水系統以及溫控器 ( temperature controller )。系統的最低溫約在 10 K，可利用循環 He 的壓縮機與溫控器的加熱器相互配合以便控制所想要的溫度進行量測。
- (6). 高通濾光片 ( Long-pass filter ) : 我們所使用的是 695 nm 的濾光片，目的為濾掉雷射光，避免其進入光偵測器中 ( 因為螢光相較於雷射光是屬於非常微弱的光 )。
- (7). 分光儀 ( monochromator ) : 型號為 ARC Spectro-275，聚焦長度為 27.5 cm，內部含有有三塊光柵，為 600 groove/mm ( BLZ=1000 nm )，主要是根據實驗所需的波段範圍來選擇。
- (8). 光偵測器 ( photodetector ) : 使用 Electro-Optical Systems 公司所生產的 InGaAs 光偵測器，在 300 K 時所適用的波長為 800 nm 到 1800 nm。
- (9). 訊號放大器 ( multi-meter ) : 將光偵測器所接收到的訊號放大。
- (10). 鎖相放大器 ( Lock-in Amplifier ) : 儀器型號為 STANDFORD RESEARCH SYSTEM SR850，目的在量測微小的交流訊號。

PL 設備架設如圖 2.2 所示，首先由固態雷射發射波長為 532 nm 的雷射光，經由實驗需要調整好倍率的衰減片，來降低雷射輸出功率，然後經由光遮斷器對雷射光進行調變，並將光遮斷器的頻率送至鎖相放大器作為參考頻率，經過光遮斷器的雷

射光經由第一面透鏡聚焦在樣品上，進而激發樣品放射出螢光，再經由第二片透鏡聚焦在分光儀的狹縫中進行分光，且在光進入狹縫前，另外使用一片 695 nm 的高通濾光片以濾掉雷射光，以避免其對訊號產生干擾，之後螢光再經由光偵測器去接收，傳送至鎖相放大器處理後再傳回電腦而存檔。利用 PL 系統在各溫度下可以針對我們的樣品做量測，也可以利用不同衰減倍率的濾光片針對不同的雷射激發強度做量測。

## 2-2-2 電流電壓量測(I-V)

以下介紹本研究的電性量測系統。首先，樣品的電流與電壓特性是電性量測實驗中的首要步驟，可利用 I-V 特性的量測了解我們樣品在成長與經過熱蒸鍍等電極製備後其特性是否良好，作為其他電性量測的參考依據。主要是利用蕭基接面的電流特性，來擬合樣品的漏電流 (leakage current)、串聯電阻  $r_s$  (series resistance) 與理想因子  $n$  (ideal factor)，Schottky 電流公式如下：

$$I = I_s \left\{ \exp \left[ \frac{q(V - Ir_s)}{nkT} \right] - 1 \right\} \quad (2-1)$$

上式中  $I_s$  為逆向飽和電流 (saturation current)， $V$  為順向偏壓， $k$  為波茲曼常數 (Boltzmann's constant)。本篇論文利用 KEITHLEY 236 作 I-V 量測，本量測的樣品其理想因子、漏電流、串聯電阻如下表。

	Ideal factor ( n )	leakage current	series resistance ( $r_s$ )
As-grown	1.4	$5 \times 10^{-9}$ A	380 $\Omega$
RTA 700	1.4	$7 \times 10^{-11}$ A	350 $\Omega$
RTA 800	1.4	$6 \times 10^{-10}$ A	200 $\Omega$

### 2-2-3 電容電壓量測 (C-V)

在蕭基接面下可以藉由調變其空乏區，控制樣品的費米能階（Fermi level）去量測樣品所反映出來的電容特性，接下來的量測都與樣品的電容與導納值有關。首先，C-V 量測主要是利用外加逆偏壓來空乏半導體內自由載子，配合交流頻率的調變做電容電導量測，不同 DC 偏壓下的電容值可得出各區域的載子濃度變化，再利用縱深變化圖初步了解樣品是否存在有載子侷限，或存有大量缺陷空乏大量載子。主要利用到的公式有平行板電容公式（2-2）與載子濃度隨空間分佈公式(2-3)：

$$C = \frac{\epsilon_0 A}{W} \quad (2-2)$$

$$N(W) = \frac{2}{q\epsilon_0 A^2 \left[ \frac{d(C^{-2})}{dV} \right]} \quad (2-3)$$

其中 W 為空乏區寬度， $\epsilon$  為半導體介電係數(permittivity)，A 為元件面積(0.005024 cm<sup>2</sup>)，N(W)為空乏區為 W 時的載子濃度。

### 2-2-4 導納頻譜量測 (C-F & G-F)

若由 C-V 量測發現某逆偏下載子對不同頻率有不同電容值的響應，則可進一步作 C-F 與 G-F 量測，更深入去探討被侷限的載子對外加偏壓的反應時間。調變 ac 的頻率由 100 Hz 到 15 MHz，理論上不同的溫度之下，載子的反應時間常數也不同(與其熱動能有關)，因此可藉由量測 C-F 與 G-F 頻譜，針對不同偏壓(對應到不同區域)的量測，進而畫出阿瑞尼斯圖 (Arrhenius plot)，由圖中的斜率與截距，推算缺陷或侷限能階的活化能 (activation energy) 及捕捉截面積 (capture cross section)。根據數學推導的結果，電容及電導對應頻率的公式如下[27,28]：

$$C_p = \frac{\epsilon_0}{x_d} + (2\epsilon_f)^2 C_0 \left[ \frac{1}{\omega^2 + (2\epsilon_f)^2} \right] \quad (2-4)$$

$$G_p(\omega) = 2e_n C_0 \left[ \frac{\omega^2}{\omega^2 + (2\epsilon_f)^2} \right] \quad (2-5)$$

其中  $\omega$  為量測頻率， $e_n$  為電子放射率 ( emission rate )，由式子看出當  $\omega \ll e_n$  時，缺陷可隨交流偏壓來捕捉或放射電子，缺陷對電容便有貢獻；當  $\omega \gg e_n$  時，則對量測頻率無響應。另外由(2-4)式電容對  $\log(\omega)$  的關係圖中，反曲點會落在  $\omega = 2e_n$  上，(2-5)式  $\omega = 2e_n$  時也會得到最大的  $G(\omega)/\omega$  值  $C_0/2$ ，可藉此得出不同溫度的  $e_n$ 。(使用 HP4194 阻抗/增益相位分析儀做以上的量測。

### 2-2-5 深層能階暫態頻譜量測(DLTS)

DLTS 技術在 1974 年首先由貝爾實驗室的 D. V. Lang 在 J. A. P. 提出[29]，主要機制：利用週期性變化電壓施加於樣品上，改變樣品空乏區的大小，在連續不斷的暫態電容量測中，找出隨溫度變化時的最大電容變化值的溫度，來獲得深層缺陷的資訊[30]。優點：靈敏度高 ( 可到  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$  之濃度偵測範圍 )、能測多數與少數載子、觀測 defect 能階範圍廣、尤其是較深層的缺陷能階 ( emission time 在毫秒等級 ) 也能夠被精準量測到，提高信號對雜訊的比值 ( S/N ratio ) 等。DLTS 技術主要是給定兩時間  $t_1$  與  $t_2$ ，固定  $t_2/t_1$ ，改變  $t_1$  與  $t_2$  來設定不同速率窗 ( 利用雙閘訊號平均器設定 )，電子發射速率  $e_n$  隨著系統溫度變化而改變，只有當  $e_n$  剛好落在所設之速率窗中，量測系統才達到峰值，即有  $e_{n,\max} = \frac{\ln(t_2/t_1)}{t_2 - t_1}$ 。當溫度很低時， $\Delta C$  變化幅度很小 (  $\Delta C \sim 0$  )，當溫度很高時， $\Delta C$  變化幅度又太快 (  $\Delta C \sim 0$  )，只有當溫度在特定範圍， $\Delta C$  變化才最大，與我們所設定的時間常數最接近。設定不同  $t_1$  與  $t_2$  來改變不同速率窗 ( rate window，即  $e_{n,\max}^{-1}$  )，獲得多組不同  $e_{n,\max}$  與峰值溫度數據，可同樣求出缺陷活化能與捕捉截面積。



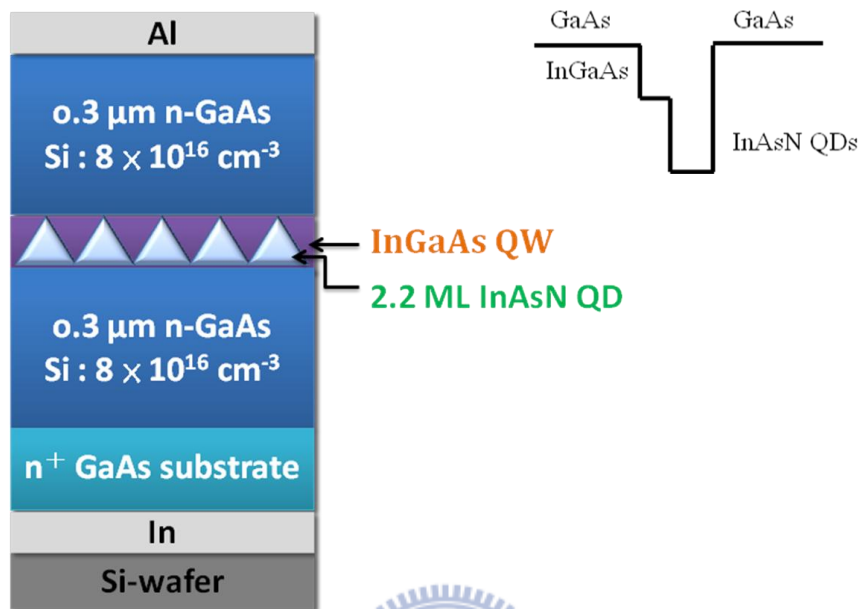


圖 2-1 樣品結構圖及能階圖

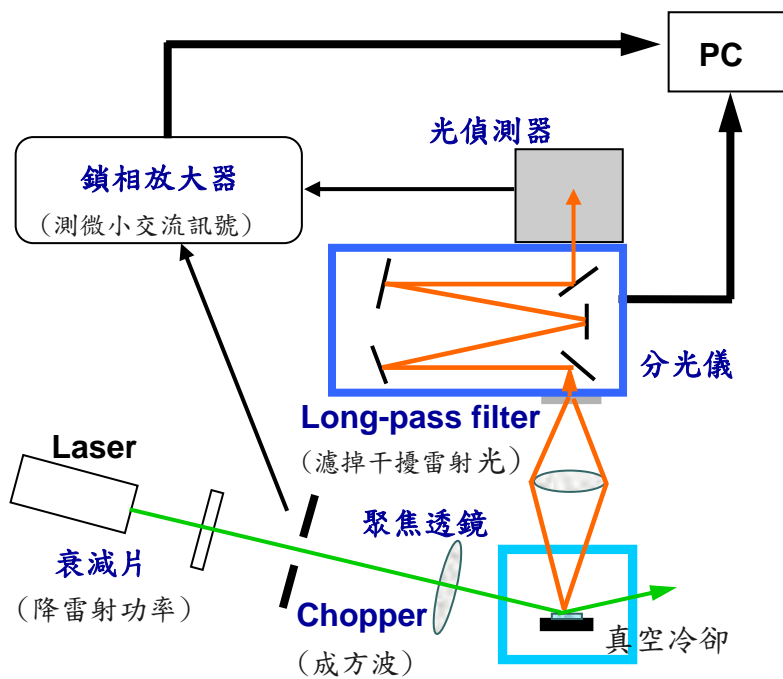


圖 2-2 PL 系統架構圖

## 第三章 InAs/InGaAs 結構在光性分析

### 3-1 As-grown 的光性

圖 3-1 比較 InAs QDs 與 InAsN QDs 室溫 PL 圖，可發現三點特別的地方：(1) InAsN QDs 的 PL 位置和未摻入氮的 InAs QDs 比較，並沒有發生一般摻入氮樣品所發生的紅移現象，關於這點，可由圖 3-2 (a) 的 TEM 分析中得到解釋。我們發現 InAsN QDs 的高度降為 3nm，這個尺寸與一般量子點大小 (~10nm) 相比小了許多，推測這正是為何沒有發生波長變長的原因；而我們發現這麼小尺寸的量子點卻有跟正常量子點相近的發光波長，推測這是摻入氮所造成的貢獻。(2) 由於氮原子在量子點中分佈的不均勻<sup>[33,34]</sup>，以及量子點的大小不均如圖 3-2 (a)，所以會造成 PL 的訊號下降、FWHM (full width at half maximum) 很寬的現象發生；再者，因為氮的體積較小，會在結構中造成一些點缺陷 (point defect)，這些點缺陷正是非輻射性發光 (non-radiative centre) 的主要成因。(3) 在低能量區域，有一個不同於量子點的訊號產生，在文獻<sup>[24,28]</sup>中提到高濃度的氮，本身會發生群聚現象，因而在 InAsN 的導帶附近產生一些侷限載子的能階<sup>[35]</sup>，相信在 PL 中所見的低能量訊號正為此所貢獻，這些能階我們稱之為 localized states。

而對量子點周圍進行 TEM 的傅立葉轉換分析由圖 3-2(b)，可發現存在的許多錯位差排缺陷 (misfit dislocation defect)，但這些缺陷的影響無法由光性量測分析，將在下一章以電性量測加以討論。

圖 3-3 為我們對樣品在室溫下以高功率的光源量測的結果，以高斯進行擬合可清楚看見三個發光能階，分別為 capping layer、InAsN 量子點及氮所產生的 localized states，藉由 Varshni equation<sup>[36]</sup> 和 band offset ratio<sup>[37]</sup>，可知 As-grown 的能階示意圖如圖 3-4 所示。

圖 3-5 為在變溫量測下的 PL 結果，隨著溫度上升能隙會因而減小，因此可看到 capping layer 和量子點的訊號，因溫度升高而發生紅移趨勢。

### 3-2 As-grown 與 RTA 樣品的光性比較

圖 3-6 為 As-grown 樣品與 RTA 樣品的 PL 比較圖。我們可以發現隨著溫度改變，三片樣品的 capping layer 和量子點的訊號皆發生紅移現象。並且在樣品經過 RTA 後 capping layer 和量子點的訊號與 As-grown 相比發生了藍移現象，這是因為熱退火過程中，樣品內原子重新再排列所致<sup>[23]</sup>。

三個樣品最明顯的差別在於，量子訊號的增強，和 localized states 訊號的下降。可以發現當熱退火溫度在 700°C 時，量子點訊號漸漸顯現出來，而 localized states 訊號和 As-grown 相比，尚未獲得很大的改善。當熱退火溫度達到 800°C 量子訊號變得非常強，且 FWHM 變得很窄，顯示此時的量子點的發光效率很好，圖 3-7 為 RTA 800 的 PL 圖轉換成對數尺度，可看出此時的 localized states 訊號非常微弱。

發光效率的改善，是因為熱退火讓原本不均匀分布在 InAs 量子點中的氮含量，變得均勻分布在其中，以及因為摻氮而產生的點缺陷的減少。而熱退火的過程也會使得樣品內部的 As-N 產生 interdiffusion 的效應<sup>[23]</sup>，所以當熱退火溫度達到 800°C 時，我們量測到一個 FWHM 很窄且有藍移現象的 PL 圖，在一些文獻中<sup>[38]</sup>也指出熱退火過程會使氮 (N) 聚集在銻 (In) 附近，因而產生 In-N 的聚集，而發生藍移現象。

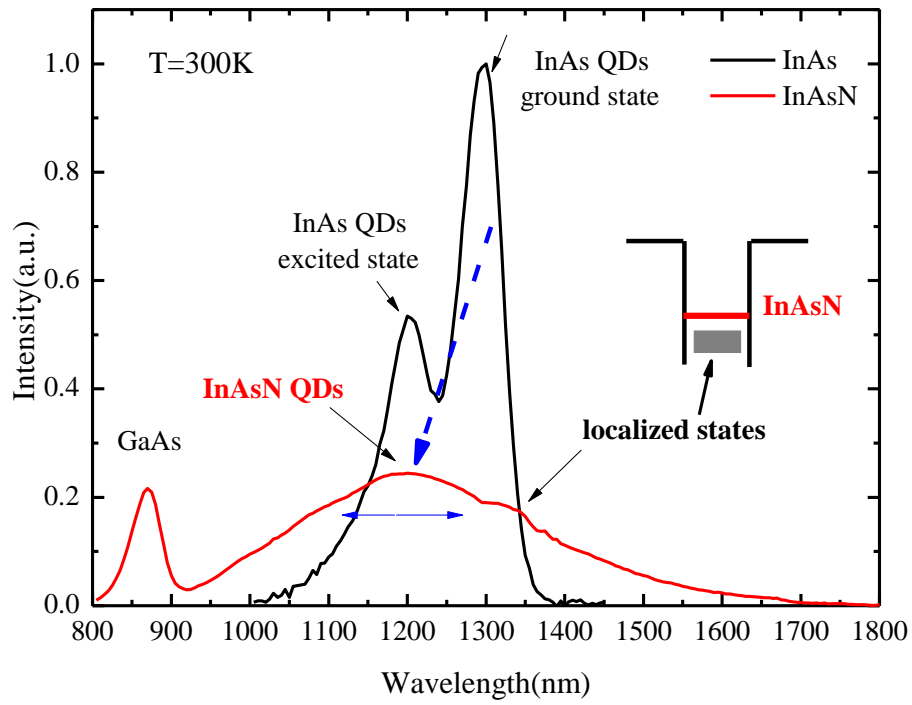


圖 3-1 InAs QDs 與 InAsN QDs 室溫 PL 比較圖

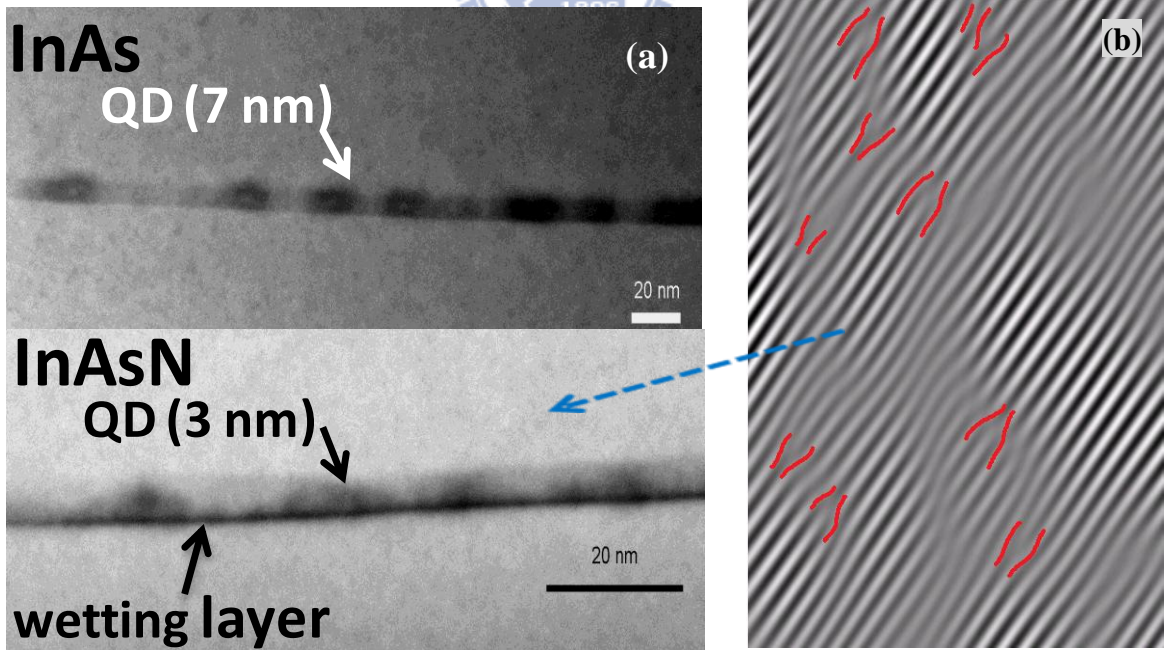


圖 3-2 (a) InAs QDs 與 InAsN QDs TEM 比較圖 (b) fast Fourier filtered

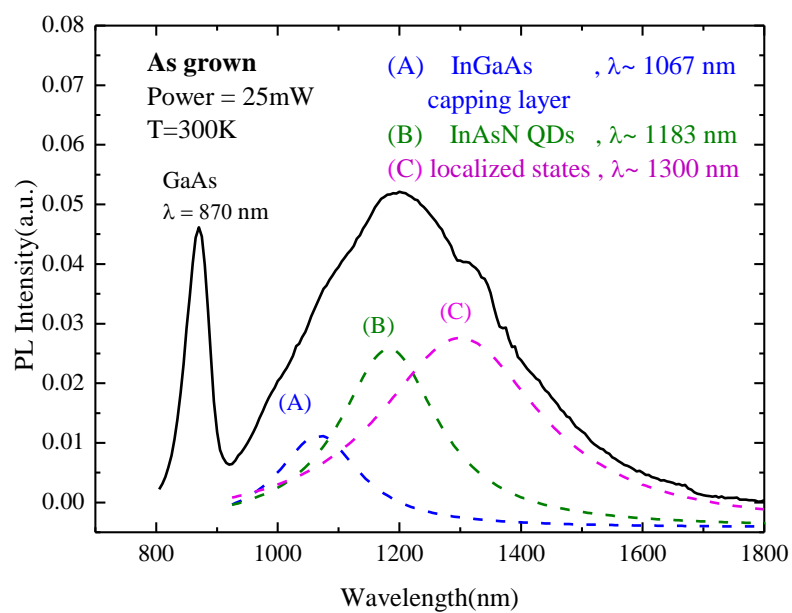


圖 3-3 室溫高功率的 PL 圖

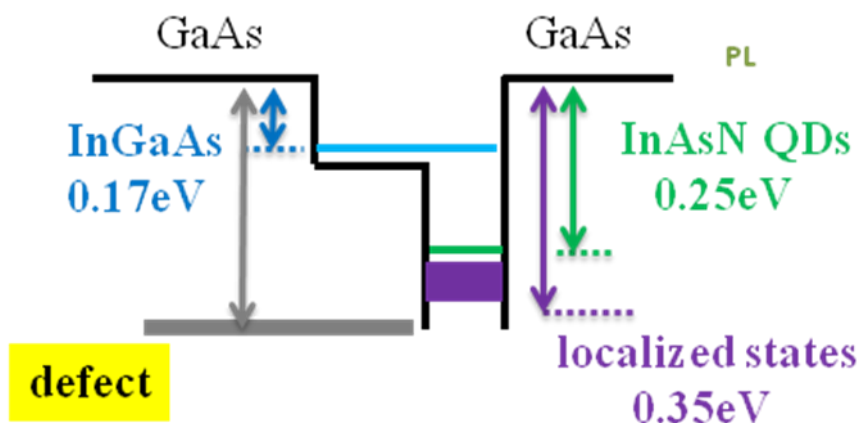


圖 3-4 As-grown 能階示意圖

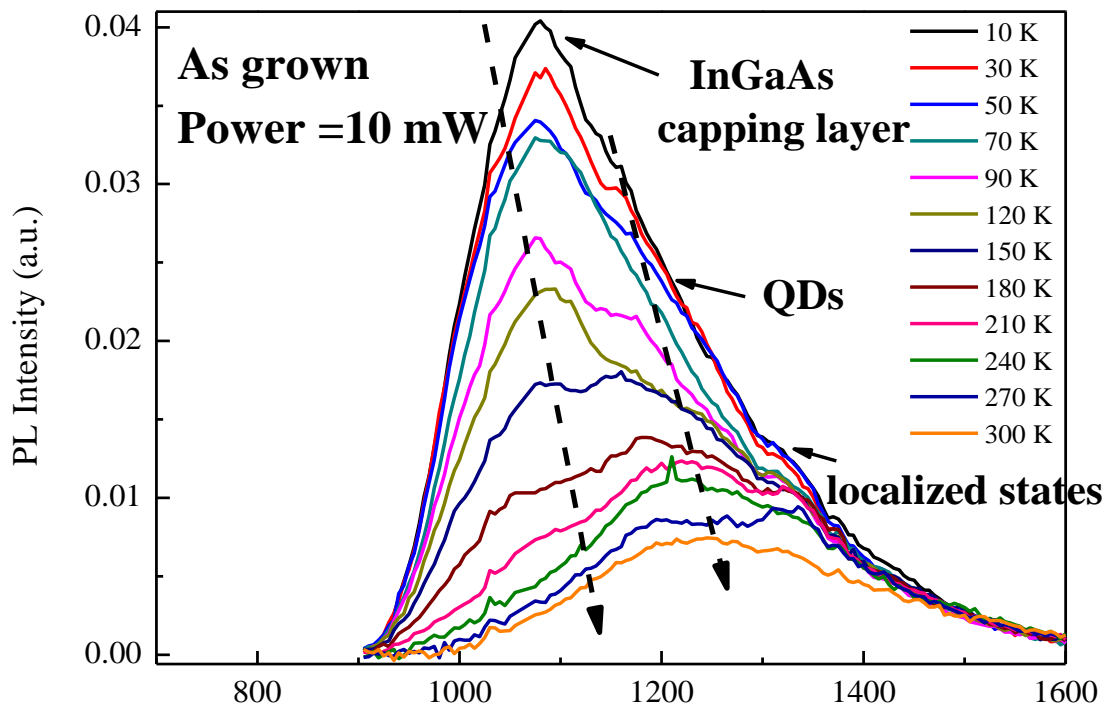


圖 3-5 As-grown 變溫 PL 圖

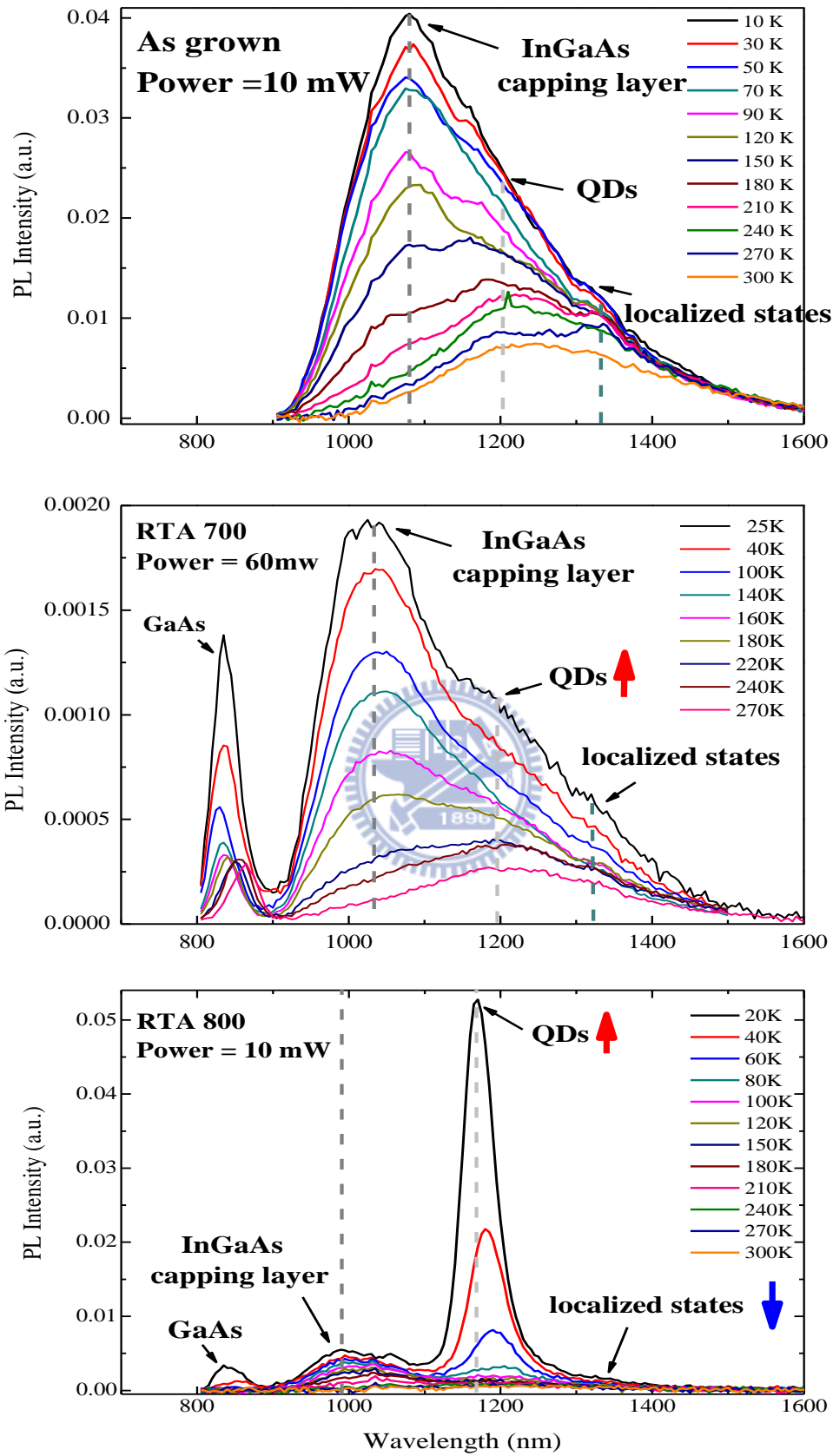


圖 3-6 As-grown 與 RTA sample 的 PL 比較圖

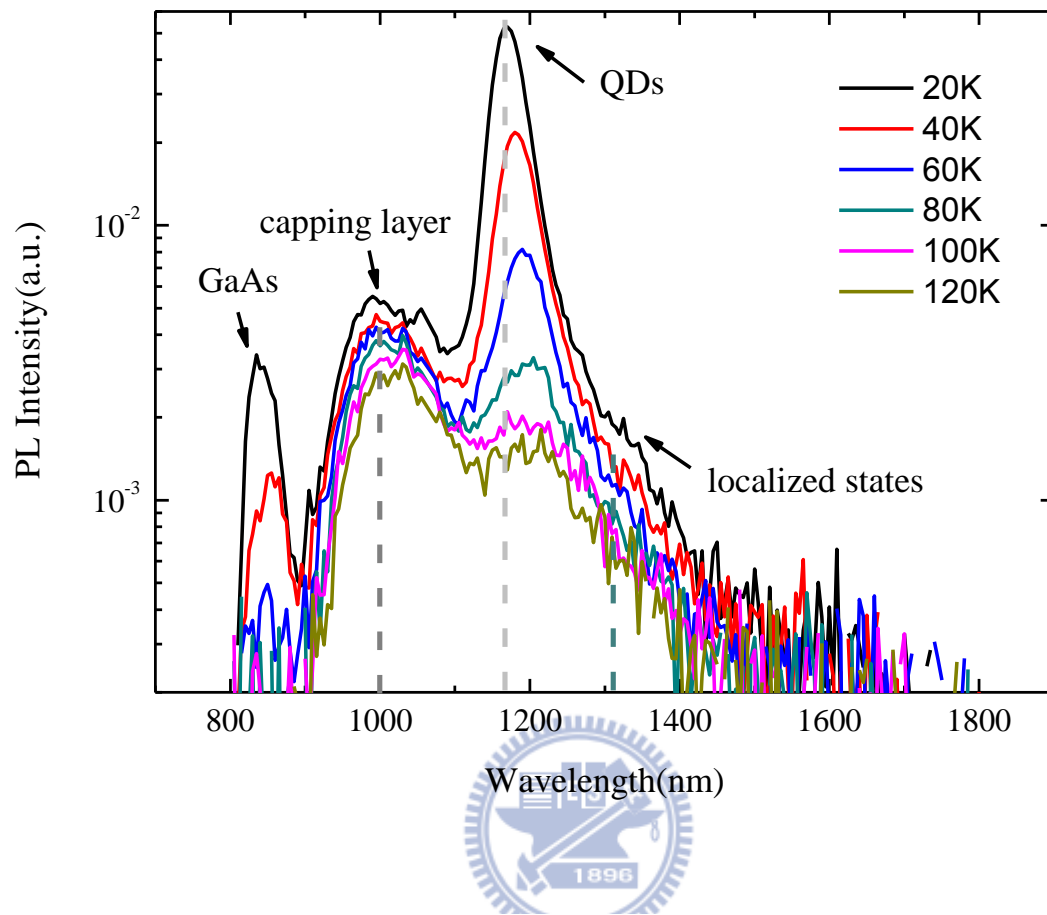


圖 3-7 RTA 800 的 PL 圖 (logarithmic scale)



## 第四章 熱退火的效應對電子放射機制的影響

由前章的光性分析中可知，熱退火的過程改善量子點結構，並降低因氮而產生的 localized states。在電性分析中，我們同樣可以看到量子特性藉由熱退火過程的回復，以及 localized states 的減少，經過熱退火後，電子放射的時間由本來的  $10^{-1}$  s 減為  $10^{-4}$  s，小了有 2~3 個數量級之多。在經過熱退火過程的樣品中，也量測 As-grown 樣品所未見到的量子穿隧效應。

先前在傅立葉分析中所見到的錯位差排缺陷 (misfit dislocation defect)，其電子放射機制，和活化能的大小，經過熱退火後也有明顯的不同。

### 4-1 電容電壓量測

圖 4-1 為 As-grown 樣品室溫變頻的 C-V 圖，在偏壓為 -1 V 到 -2.5 V 間有一個頻率響應的電容平台出現，經由圖 4-2(a) 轉縱深的結果，可看出在頻率為 500 Hz 時有兩個載子侷限的訊號出現，分別位於圖 4-1 中 -1.3 V 及 -1.5 V 的位置，配合圖 4-2(b) 發現隨著量測頻率加大 -1.5 V 的訊號會漸漸消失，當頻率達 3 kHz 訊號只剩一個，並且 -1.3 V 的訊號位置變化不太明顯，代表載子速度較快可以趕上 AC 訊號的調變。因此 -1.3 V 的訊號由量子點所貢獻，而 -1.5 V 的訊號由 localized states 所貢獻。

由圖 4-3 As-grown 樣品與 RTA 樣品的 C-V 圖比較圖中，看到 RTA 的樣品出現了兩個明顯的頻率響應平台，如同 PL 量測中所見，快速熱退火的過程增強量子訊號，所以頻率響應平台由一分裂成兩個。圖 4-4 是將 C-V 圖轉縱深後的結果。隨著熱退火的溫度提高 localized states 的訊號減弱許多，與 PL 量測結果一致。

在 C-V 量測中，藉由調變 AC 訊號來量測載子放射行為，在低頻量測時由於載子放射速度大於量測訊號，所有被能階捕獲的載子皆可被 AC 訊號調變出來，因此在 C-V 圖上我們會看到平台的出現，在圖 4-4(a) 中可看到一個載子被侷限的訊號，隨著加快量測的頻率，漸漸減小。當載子放射速度趕不上量測速度時，此時只能靠

DC 訊號的反向偏壓將載子趕出，而頻率到達 100 kHz 時，不論是 AC 訊號或是 DC 訊號都無法量測到載子的放射行為，那麼將此時的電容值為背景摻雜濃度的電荷所貢獻，所以將 C-V 圖轉縱深後，所得到的濃度為原來摻雜的背景濃度值 ( $N_d$ )。

圖 4-5 為 As-grown 樣品與 Schottky diode 的 C-V 圖比較，觀察兩者高頻的電容變化，在 As-grown 樣品中，會看到電容驟減的現象，小偏壓時電容變化符合高摻雜濃度的 Schottky diode C-V 曲線，大偏壓時符合低摻雜濃度的 Schottky diode C-V 曲線，這表示 As-grown 樣品的背景摻雜濃度，由樣品表面到底部呈現一個不均勻的分佈。圖 4-6 (a)(b) 為 RTA 樣品的室溫 C-V 圖，兩個樣品高頻的電容值變化很接近一個 Schottky diode 的形式。圖 4-7 (a)-(c) 為三片樣品的轉縱深比較，可看見在小偏壓區域三片樣品皆有濃度下降的情況，而在量子點附近，As-grown 樣品的背景濃度，明顯下降，隨著熱退火的溫度提高，這個空乏的現象漸漸減緩，在 RTA800 樣品中恢復的最明顯；小偏壓開始的濃度下降現象是因為存在錯位差排缺陷，所以背景濃度會被空乏，而在量子點附近 As-grown 樣品的背景濃度又比 RTA 樣品低許多，這是因為 As-grown 樣品在量子點周圍的存在較高濃度的 localized states，當 localized states 濃度降低，背景濃度可以回復一個均勻值。錯位差排缺陷對背景濃度的影響，經由 RTA 後改善的情形並不明顯，所以 RTA800k 的背景濃度雖然變均勻 ( $\sim 4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )，但相較於實際的摻雜濃度 ( $8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) 還是略低一些。

在量子點附近的空乏，也影響了載子放射速度，比較圖 4-3 (a)-(c) As-grown 的樣品在溫度達 300K 才有頻率響應發生，但經過 RTA 過程的樣品在溫度為 200K 時，就有兩個明顯的響應平台出現，代表 RTA 樣品樣品中量子點及 localized states 的載子放射速度皆比 As-grown 的樣品快許多；4-6 (a)(b) 可發現隨著溫度變高，在 AC 訊號的調變下，電容的消長並不明顯，這是因為量子點及 localized states 的載子放射速度皆變快了。

## 4-2 導納頻譜量測 (C-F & G-F)

在這個部分我們使用導納頻譜，來量測樣品中的淺層能階。Admittance 量測是固定反向偏壓改變頻率下的分析，而反向偏壓的選取，由 C-V 圖上頻率響應的偏壓範圍而定。圖 4-8 (a)-(d) 為 As-grown 樣品由 Admittance 量測的結果，我們在其頻率響應範圍由 -0.8 V 到 -1.8 V 進行量測。配合圖 4-1，偏壓為 -0.8 V 位於頻率響應平台的開頭，在此偏壓量測下，我們會發現有兩個截然不同的訊號產生，當偏壓加大 0.1 V，只剩下另一個訊號，而從 -0.9 V 以後至 -1.8 V 的訊號就單純的只有一個，分析後的結果如圖 4-9 所示，圖 4-9 是載子放射時間與溫度的關係，可明顯看出兩個訊號的載子放射時間明顯不相同，經由 Arrhenius plots 分析，發現在 -0.8 V 所量測的能階約為 0.12 eV，與圖 3-5 比較，此能階和 PL 分析中的 capping layer 能量相近，證明這個淺層訊號，是由被 capping layer 侷限的載子所貢獻。由 -0.9 V 以後的訊號經 Arrhenius plots 分析，無法分辨是由量子點或 localized states 所貢獻，推測這是因為 localized states 離 InAsN 量子能階相當接近所造成；量子點和 localized states 所形成的侷限能階，約為 GaAs 導帶下方 0.3 eV 至 0.5 eV 左右。將 Admittance 量測的結果，以圖 4-10 能階示意圖做整理，而錯位差排缺陷 (misfit dislocation defect) 所造成捕捉載子的深層缺陷，由於載子放射時間過太長，使用 Admittance 無法量測，這個部分將以 DLTS 做分析。

同樣的我們對圖 4-3(b)(c) RTA 樣品做 Admittance 量測，載子放射時間與溫度的關係如 4-11(a)(b) 所示，並沒有出現如同 As-grown 樣品兩個明顯不同的訊號，在高溫的區域，隨著溫度上升，載子的放射速度變快，但在低溫的地方，載子的放射速度，卻不隨溫度改變而有所變化，這個現象代表載子放射過程發生量子穿隧效應。這個現象，清楚表現出 RTA 過程讓樣品的量子特性回復。我們取高溫線性區域，經由 Arrhenius plots 分析如表 4-1(a)(b)，會發現 RTA 樣品的活化能皆小於 As-grown 樣品的活化能，而這些活化能卻又大於 capping layer 的能階深度，固推測這些訊號是由量子能階與 localized states 所貢獻。但所擬合得的活化能並非侷限載子的能階與

GaAs 導帶實際的距離，僅代表因為溫度上升，載子獲得能量從侷限能階上升的高度值；在放射過程中包含了穿隧效應的這個現象，我們引用 phonon-assisted tunneling model 來分析<sup>[19]</sup>。

### 4-3 phonon-assisted tunneling model

這個模型是由 G. Vincent et al. 在 1979 年提出，指出電場效應在在一個介面中扮演一個很重要的角色，他會對電子放射行為產生很大的影響。首先對一個，純粹因為熱能而使得電子獲得能量而躍遷到導帶的行為（pure thermal emission）做說明，此時電場效應會降低電子躍遷時所需跨越的能障高度；假設原本需要跨越的能障高度為  $E_a$  (4.2.1)，而電場會使其降低  $\Delta E_a$ ，電子放射所需的時間也因而降低，這個能障降低的現象稱為 Frankel-Poole effect (4.2.2)。以圖 4-12 作為說明。而與溫度無關的穿隧效應，其放射速率表示式為 (4.2.3)<sup>[39]</sup>。

至於 phonon-assisted tunneling model 中，電子放射速率包含 (4.2.1) 與 (4.2.4)，表示電子躍遷過程含有兩種行為，(I) 由侷限能階，躍遷到 GaAs 的導帶 (4.2.1) (II) 由侷限能躍遷到某個高度（非 GaAs 的導帶），然後由此位置穿隧而出 (4.2.4)，而此種行為的總放射機率为 (4.2.1) 加上 (4.2.4) 最後以 (4.2.5) 呈現，我們以這樣的模型，來分析 RTA 樣品經由 Admittance 量測的結果，而擬合的結果為圖 4-13 (a)(b)。可知 RTA 的樣品其侷限能階，約在 GaAs 的導帶下方 0.3eV 往下加深，理論上，隨著偏壓加大，電場影響會更明顯，但由於量測的限制，我們只能夠以此模型擬合小偏壓時的數據，故無法得知量子點下方的 localized states 其能階與 GaAs 的導帶最大差距為合。在 (4.2.5) 的表示式中，會有一個積分的過程，雖然公式中考慮在侷限載子的能階上方，皆有可能發生穿隧的行為，但由表 4-1(a)(b) 可知其發生穿隧的行為的位置大約在量子能階及 localized states 上方 0.2 eV~ 0.3eV (RTA 700) 及 0.15 eV~ 0.3eV (RTA 800)，這個能量差距約 capping layer 與量子能階及 localized states 的距離，推測載子經由 capping layer 穿隧出去的機率很高，這也可能是我們在 Admittance 量測中並未

見到 capping layer 訊號的原因。

圖 4-13 比較三片樣品載子放射的速度，可看出在 RTA 樣品中因為存在的穿隧效應，所以載子放射所需的時間相對來的短。

**Thermal emission rate** 
$$e_n = \gamma \cdot \sigma \cdot T^2 \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{k \cdot T}\right) \quad (4.2.1)$$

**Frankel-Poole effect** 
$$e'_n = \gamma \cdot \sigma \cdot T^2 \cdot \exp\left[\frac{-(E_a - \Delta E_a)}{k \cdot T}\right] = e_n \cdot \exp\left(\frac{\Delta E_a}{k \cdot T}\right) \quad (4.2.2)$$

$$\Delta E_a = q \cdot \sqrt{\frac{q \cdot F}{\pi \cdot \epsilon}}$$

**Tunneling emission rate** (4.2.3)

$$e_{tun} = \frac{q \cdot F}{4 \cdot \sqrt{2 \cdot m \cdot E_a}} \exp\left(\frac{-4}{3} \cdot \frac{\sqrt{2 \cdot m \cdot E_a^3}}{q \cdot h \cdot F}\right)$$

**phonon-assisted tunneling** (4.2.4)

$$e_{\text{phonon-assisted tunneling}} = \gamma \cdot \sigma \cdot T^2 \cdot \exp\left[\frac{-(E_a - E)}{k \cdot T}\right] \cdot \exp\left(\frac{-4 \cdot \sqrt{2 \cdot m \cdot E^3}}{3 \cdot q \cdot h \cdot F}\right) \cdot \exp\left(1 - \frac{\Delta E_a}{E}\right)^{\frac{5}{3}}$$

Tunneling probability for triangular barrier

Frenkel-Poole effect

**Total emission rate** (4.2.5)

$$e_{total} = \underbrace{\gamma \cdot \sigma \cdot T^2 \cdot \exp\left[\frac{-(E_a - \Delta E_a)}{k \cdot T}\right]}_{\text{Thermal-emission rate}} + \int_{\Delta E_a}^{E_a} \underbrace{\gamma \cdot \sigma \cdot T^2 \cdot \exp\left[\frac{-(E_a - E)}{k \cdot T}\right] \cdot \exp\left(\frac{-4 \cdot \sqrt{2 \cdot m \cdot E^3}}{3 \cdot q \cdot h \cdot F}\right) \cdot \exp\left(1 - \frac{\Delta E_a}{E}\right)^{\frac{5}{3}}}_{\text{Thermally-assisted tunneling rate}} dE$$

#### 4-4 DLTS (深層能階暫態頻譜分析)

本章使用 DLTS 來分析侷限載子的能階濃度，以及深層缺陷的活化能。由於量測方式的不同，所以在 Admittance 量得的量子能階及 localized states(兩者通稱淺層能階)活化能會比 DLTS 大一些。淺層能階的活化能約為 GaAs 導帶下方 0.2 eV 至 0.35 eV，深層能階約為 GaAs 導帶下方 0.5 eV 至 0.7 eV，此深層缺陷是常見於 GaAs/GaAs 及 InGaAs/GaAs 中 E2-like 的缺陷<sup>[25]</sup>。

圖 4-15 (a)-(c)為三片樣品量子點及 localized states 的訊號(經過 normalized)與偏壓的對應關係，與圖 4-4 (a)-(c) 轉縱深訊號出現的偏壓互相比較。隨著空乏偏壓加大，量測到的能階為量子點下方的 localized states，比較 localized states 訊號與量子點訊號，在 RTA800 中變化最大，代表隨偏壓加大，量子點下方的能階減少，這也再次證明，RTA 的過程使 localized states 減少。圖 4-16 為三片樣品的能階示意圖比較。localized states 減少，使得背景濃度恢復，又背景濃度與空乏區寬度成反比，這也是為什麼在 RTA 的樣品中可以看到 As-grown 樣品所未見的穿隧效應，圖 4-17 為樣品發生穿隧效應的示意圖。

圖 4-18 是對 As-grown 樣品做 DLTS 量測的結果，這是在 rate window = 43 ms，不同反向偏壓下的 DLTS 圖，在低溫區域的訊號，是我們在 Admittance 量測中看到的淺層能階訊號，而高溫區域，則是深層的缺陷訊號，可看到隨著反向偏壓加大，訊號出現的溫度會往高溫移動，這是因為反向偏壓加大，量測到的是由更深的能階放射出來的載子，所以當固定 rate window 下觀察，會發現淺層能階與深層缺陷皆隨反向偏壓加大，訊號往高溫移動。

而我們會發現，淺層能階的訊號在 -1.5 V 到 -2.5 V 間達到最大值，對應 C-V 圖正是頻率響應最明顯的區域；而深層缺陷的訊號，在小偏壓時就出現，在淺層能階訊號最明顯的區域，也達最大值，這個深層缺陷存在於表面到量子點附近，過了量子點後，此訊號也變的不明顯。由於這個深層缺陷的訊號並不會飽和，即便在實驗上已將 filling pulse 調到 100 ms，所以我們無法得知他確切濃度值，所以在分析上，

是在我們量測的 rate window 中選取最大的暫態電容變化來觀察其趨勢。由公式 (4.4.1)<sup>[47]</sup> 我們將淺層能階與深層缺陷的濃度分佈與 C-V 圖互相對應，如圖 4-19 所示。

$$N_{\text{trap}} = \left(\frac{2 \cdot \Delta C}{C}\right) \cdot N_{\text{doped}} \quad (4.4.1)$$

同樣的我們也對 RTA 樣品進行 DLTS 分析，兩片樣品的淺層能階皆隨偏壓打深訊號峰值往高溫移動如圖 4-20 (a) 圖 4-21 (a)，且由圖 4-20(b) 圖 4-21(b) 進行不同偏壓下訊號比較，發現 RTA 樣品在小偏壓時達最大值，隨著空乏越深訊號漸漸減弱。一開始就空乏到量子點區域，這與背景濃度的起始值有關，如圖 4-4(a)-(c)所示。在 As-grown 樣品中，起始濃度雖高，但其遞減速度很快，而 RTA 樣品的起始濃度略小於 As-grown 樣品，但整體濃度趨於一定值；起始值的不同，使 RTA 樣品一開始就有很大的量子訊號產生。比較圖 4-20(b) 圖 4-21(b)可以發現，RTA 800 的樣品，當偏壓加大時，其訊號降低的比 RTA 700 來的快，推測這是因為 localized states 減少的關係。當空乏至 -1.5 V 後，對 RTA 800 的樣品來講，空間上已沒有侷限載子的能階，故其訊號減弱。

而深層缺陷的活化能在 RTA700 (RTA800) 樣品中，約為 GaAs 導帶下方 0.5 eV (0.4 eV)，並未量測到 As-grown 樣品的 0.7 eV。如同淺層能階，深層缺陷的訊號在一開始就達最強 4-20(c) 圖 4-21(c)，且在 RTA 800 中，空乏至 -3 V 時，深層缺陷的訊號變的十分微弱。

深層缺陷在 RTA 700 中的訊號峰值，隨空乏越深峰值，先往低溫移動，在 -2.5 V 後又往高溫移動如圖 4-20(a)，在 RTA 800 中則是隨空乏越深訊號的峰值往低溫移動如圖 4-21(a)。而在這些區域中得到的活化能有偏小的趨勢，關於這點，推測此載子的放射過程，可能包含的穿隧效應，在文獻<sup>[40,41]</sup>中，指出侷限載子的能階  $E_S$  上方，若有存在另一能階  $E_P$ ，當載子被  $E_S$  捕捉時，有兩種路徑 (1) 直接被  $E_S$  捕捉，(2) 先被  $E_P$  捕捉在鬆弛到  $E_S$ ，所以當載子放射時，會依同樣的路徑，放射至導帶。不論是

直接或間接放射至導帶的路徑，其活化能均相同，這是沒有考慮穿隧效應的過程；但如果在過程中，藉由  $E_p$  穿隧出去，那麼量測到的活化能就不是  $E_s$ 。所以我們推測，在 RTA 的樣品中，深層缺陷的活化能在某些區域變小，有可能就是發生此現象，藉由上方能階穿隧至導帶。圖 4-22 圖 4-23 分別為深層缺陷躍遷路徑示意圖。

## 4-5 電性量測結論

綜合電容電壓(C-V)、導納頻譜(Admittance)及深層能階頻態頻譜分析(DLTS)，我們將三片樣品的能階圖加以比較如圖 4-16，經過熱退火過程，量子點能階位置改變不大，正如同光性量測上所見，稍微的發生藍移；而 localized states 濃度降低，在空間上的分布位置也減少，使背景濃度在熱退火溫度達  $800^{\circ}\text{C}$  明顯的恢復。比較淺層能階，圖 4-14 及深層能階如圖 4-24 的載子放射時間，再經過 RTA 過程明顯的變短，這是因為載子放射的過程包含穿隧效應，代表熱退火過程使其恢復原本的量子特性。圖 4-25 我們將 RTA800 樣品的深層缺陷放射時間與模擬發生 Phonon-assisted tunneling 時載子放射時間比較，假設在小偏壓時得到的缺陷活化能為實際深度，我們使用 pure thermal emission rate (4.2.1) 擬合得活化能( $E_a$ )及捕捉截面積( $\sigma$ )，將這些數值帶入(4.2.5)中，求得發生穿隧效應時的載子放射時間，並與實驗比較，發現與空乏偏壓達 -2 V 及 -2.5 V 的實驗值相符，被缺陷的所捕捉的載子也發生了穿隧效應，



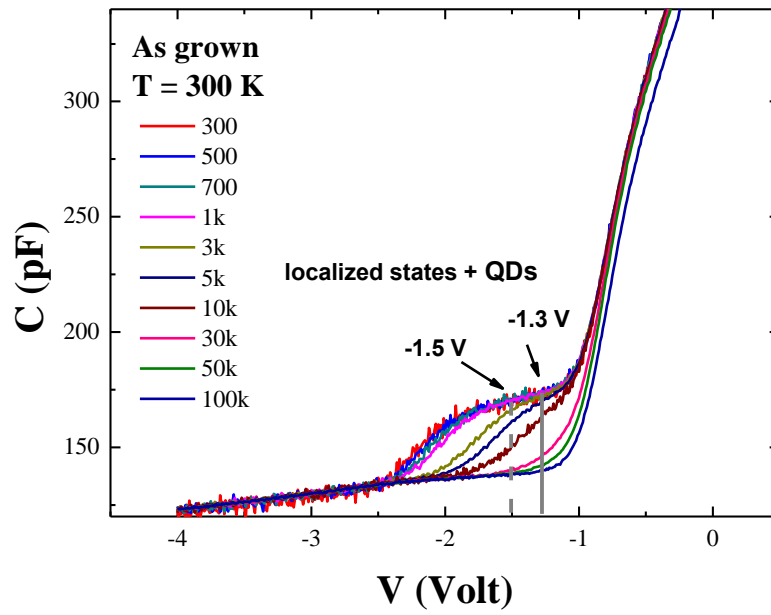


圖 4-1 As-grown 室溫變頻 C-V 圖

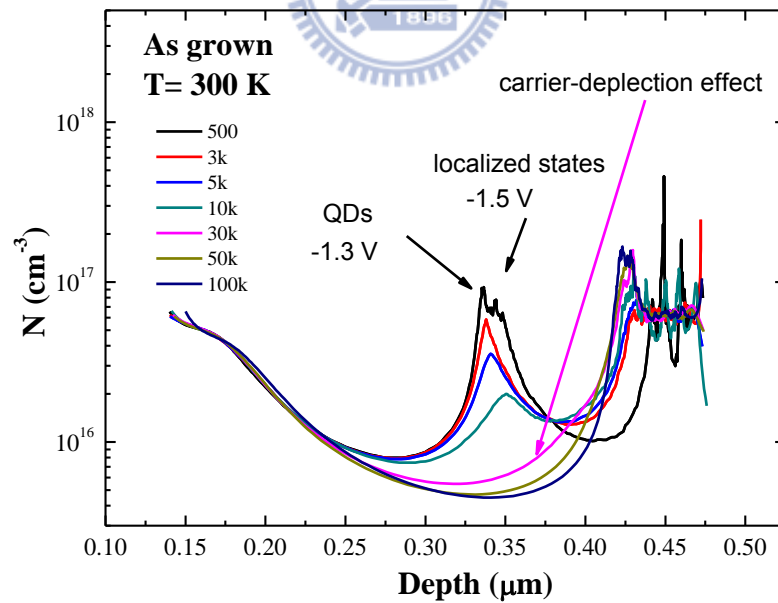


圖 4-2 (a) As-grown 室溫縱深濃度圖

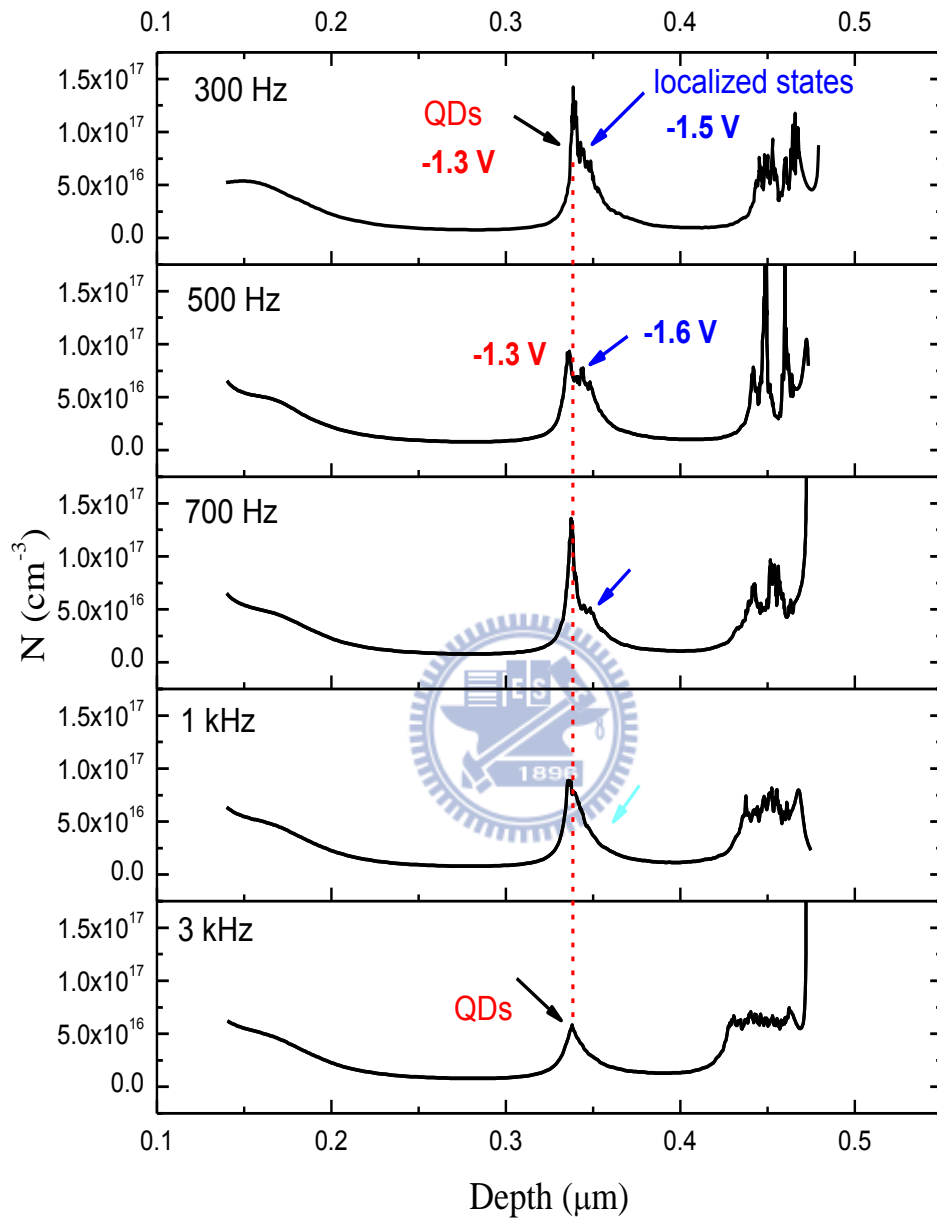


圖 4-2 (b) As-grown 室溫低頻縱深濃度圖

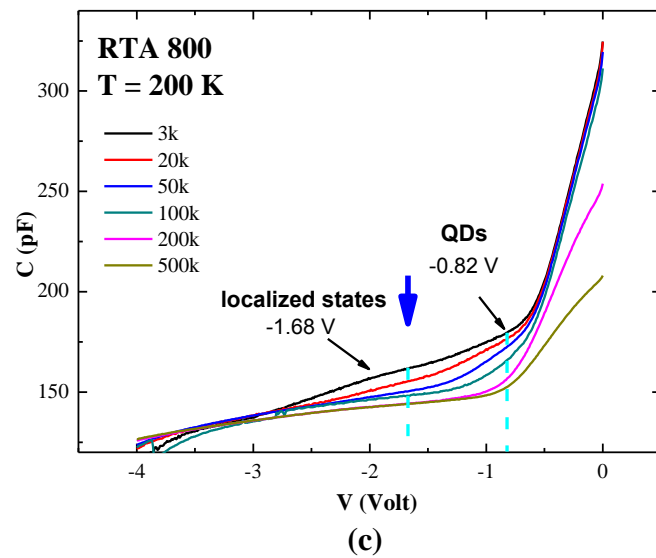
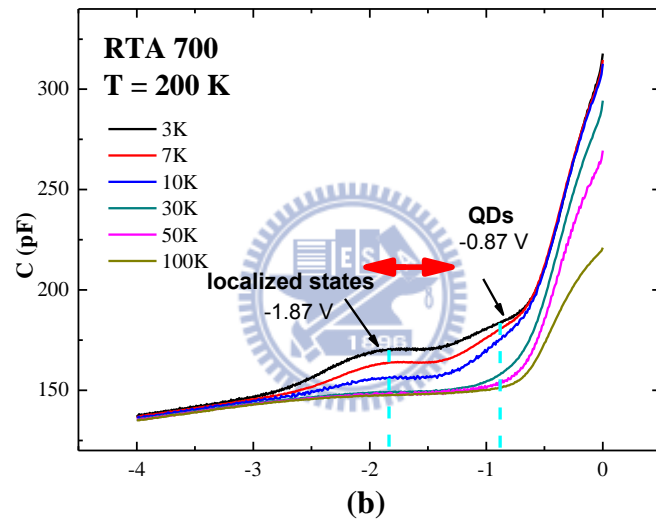
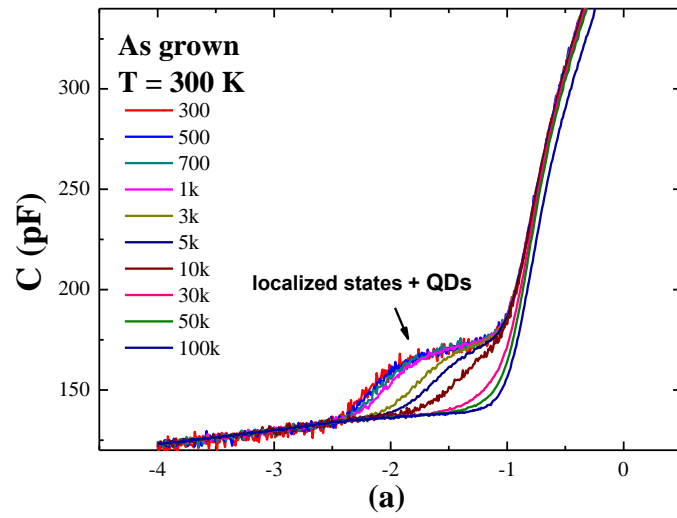
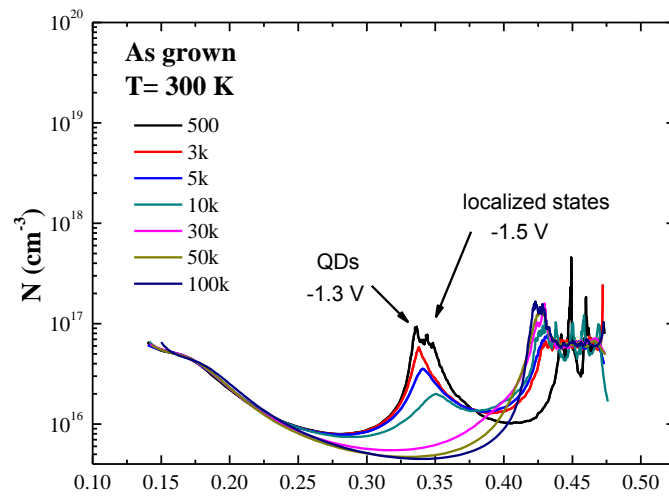
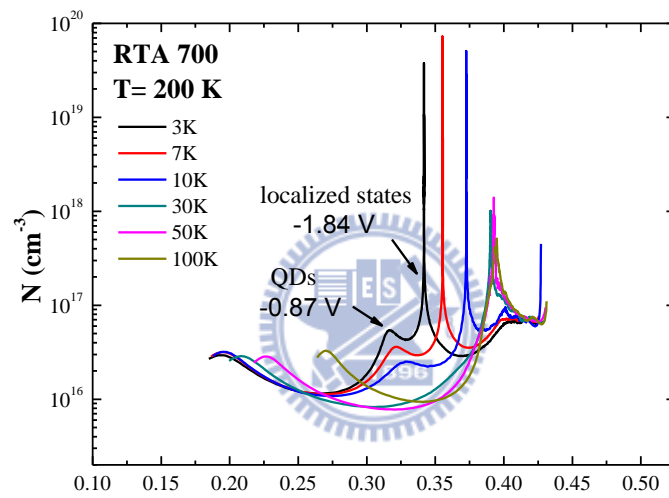


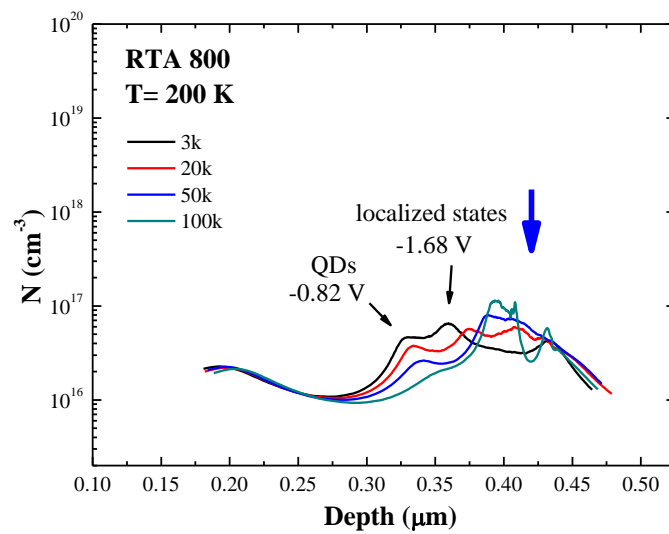
圖 4-3 (a) As-grown (b) RTA 700 (c) RTA 800 變頻 C-V 圖



(a)



(b)



(c)

圖 4-4 (a) As-grown (b) RTA 700 (c) RTA 800 縱深濃度圖

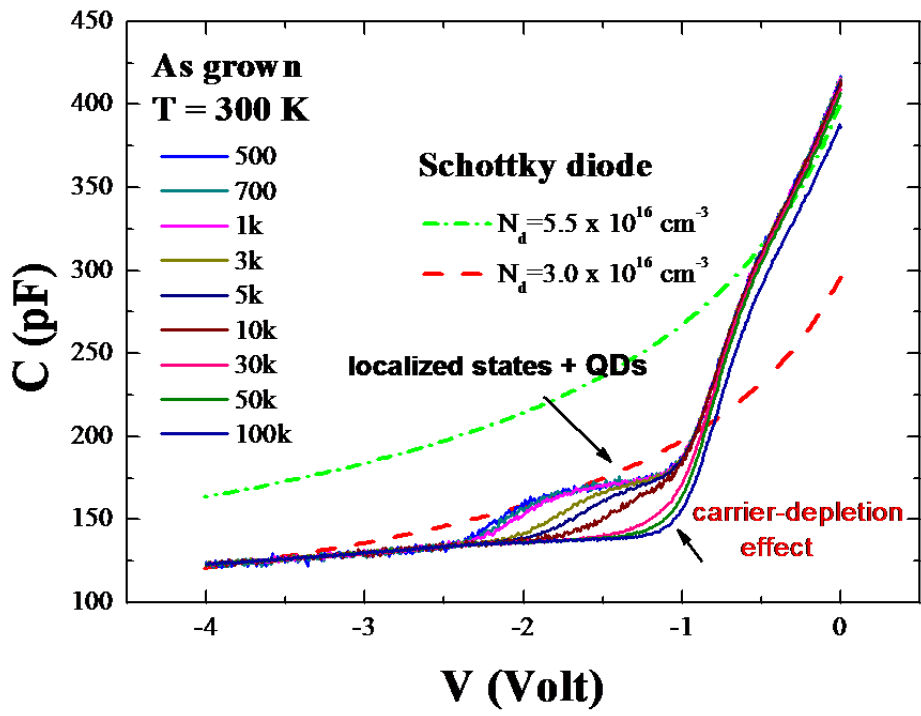


圖 4-5 As-grown 與 Schottky diode C-V 比較圖

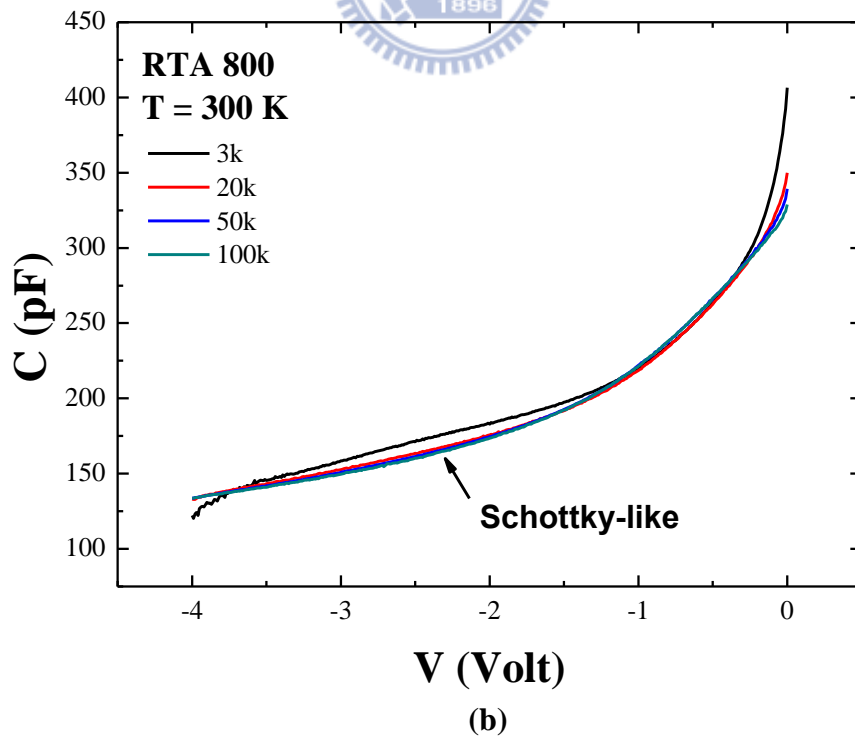
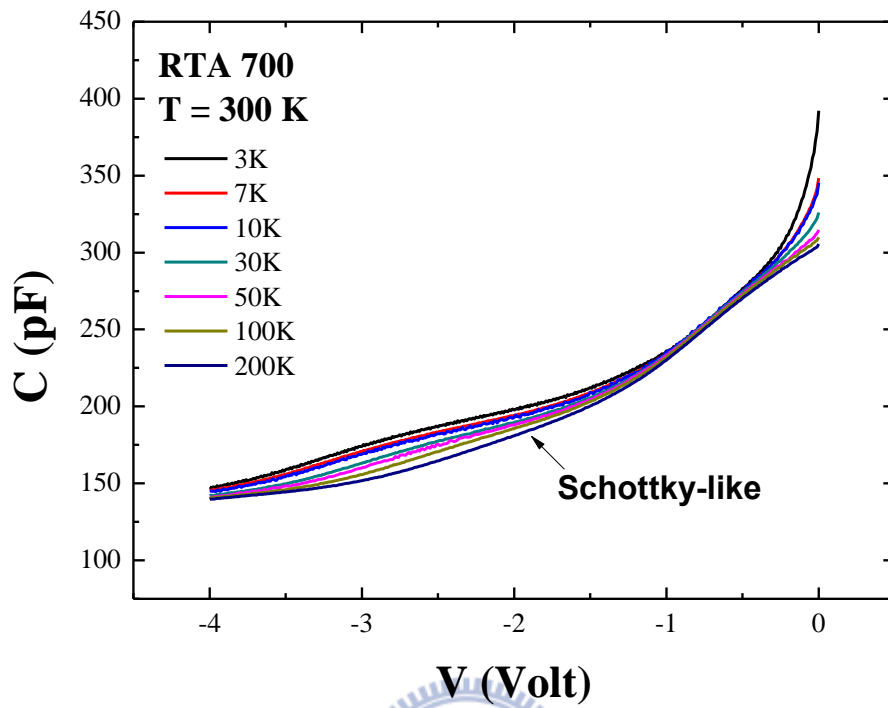


圖 4-6 (a) RTA 700 (b) RTA 800 室溫 C-V 圖

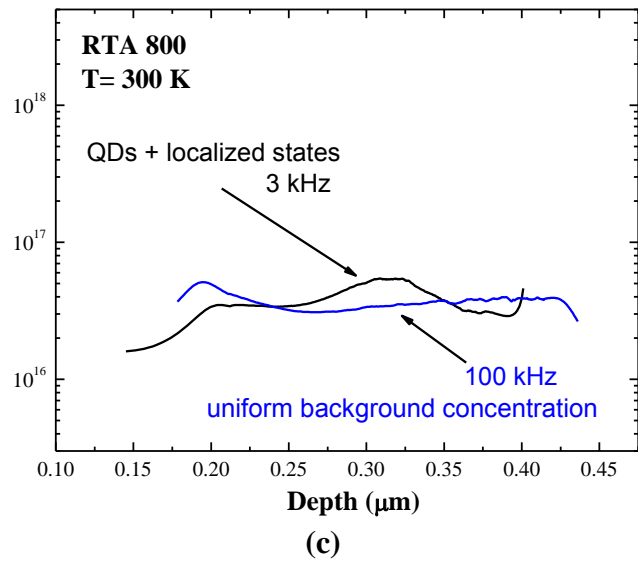
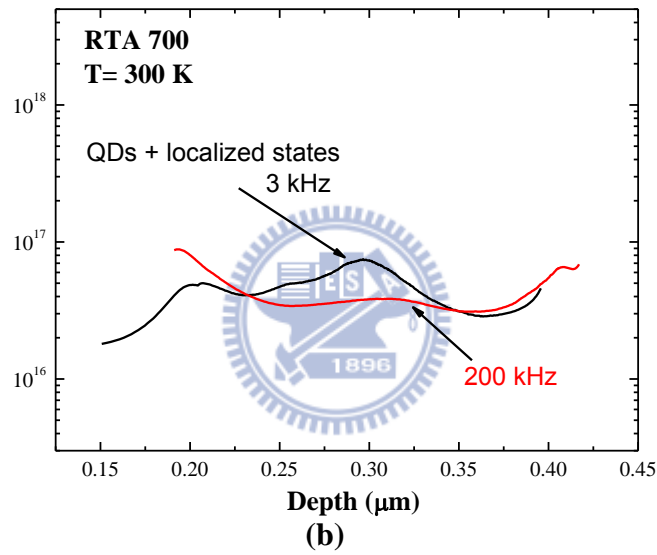
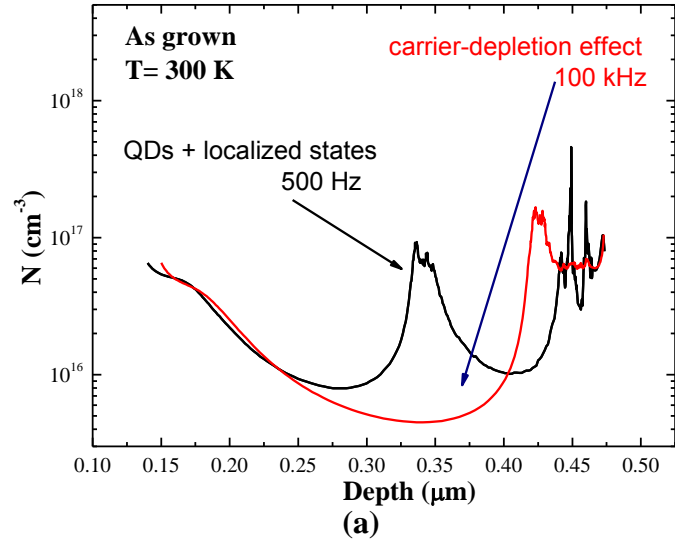


圖 4-7 (a) As-grown (b) RTA 700 (c) RTA 800 室溫高頻轉縱深

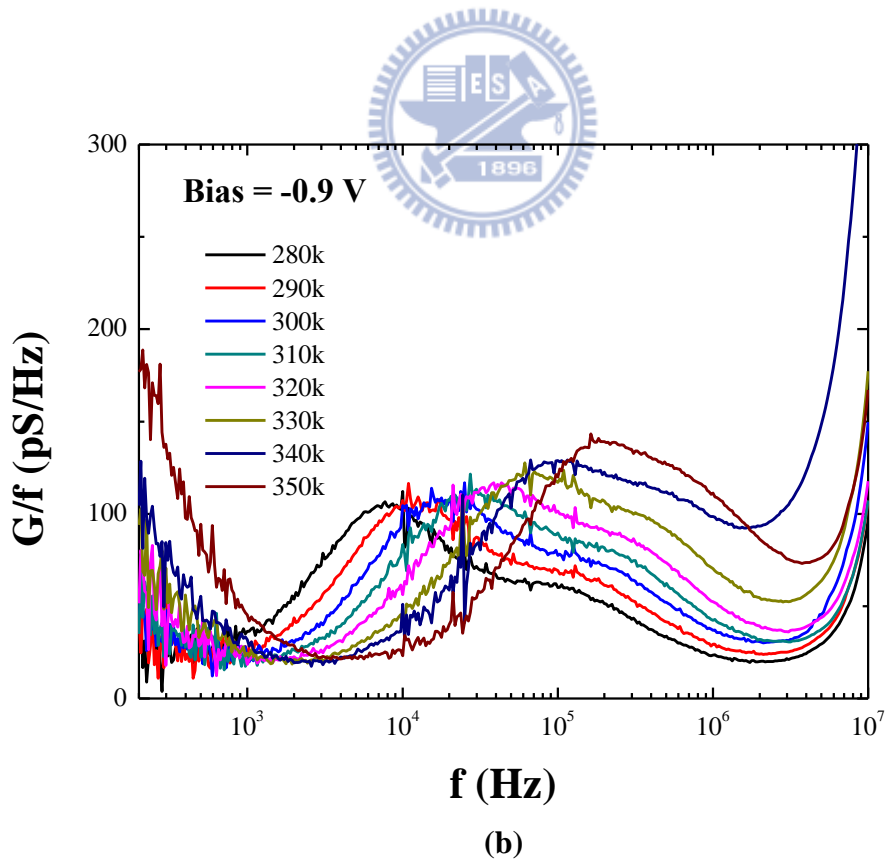
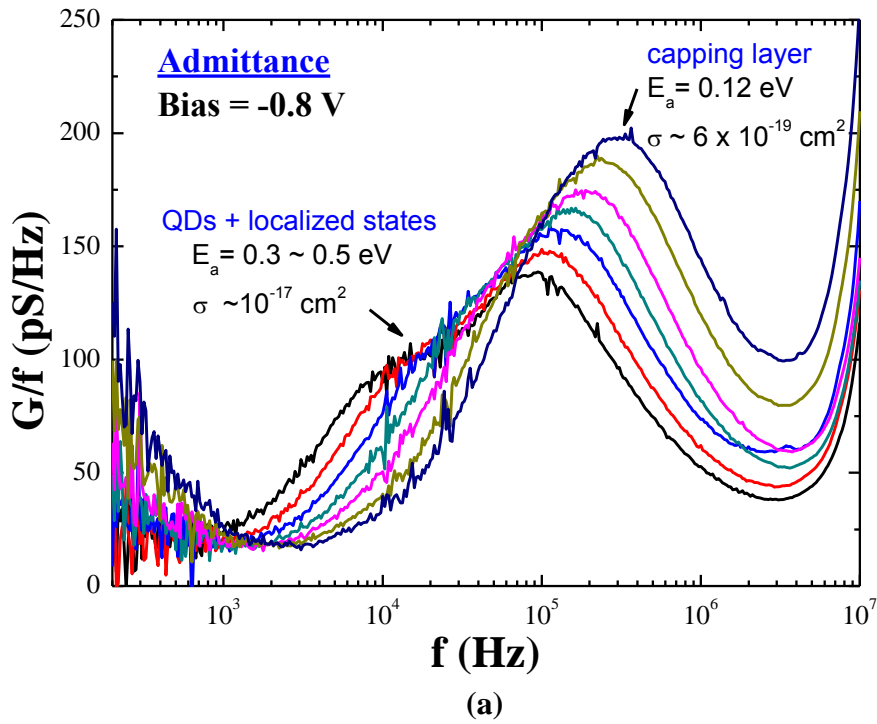


圖 4-8 (a)  $V = -0.8$  (b)  $V = -0.9$  V As-grown  $\frac{G}{f}$ - $f$  圖



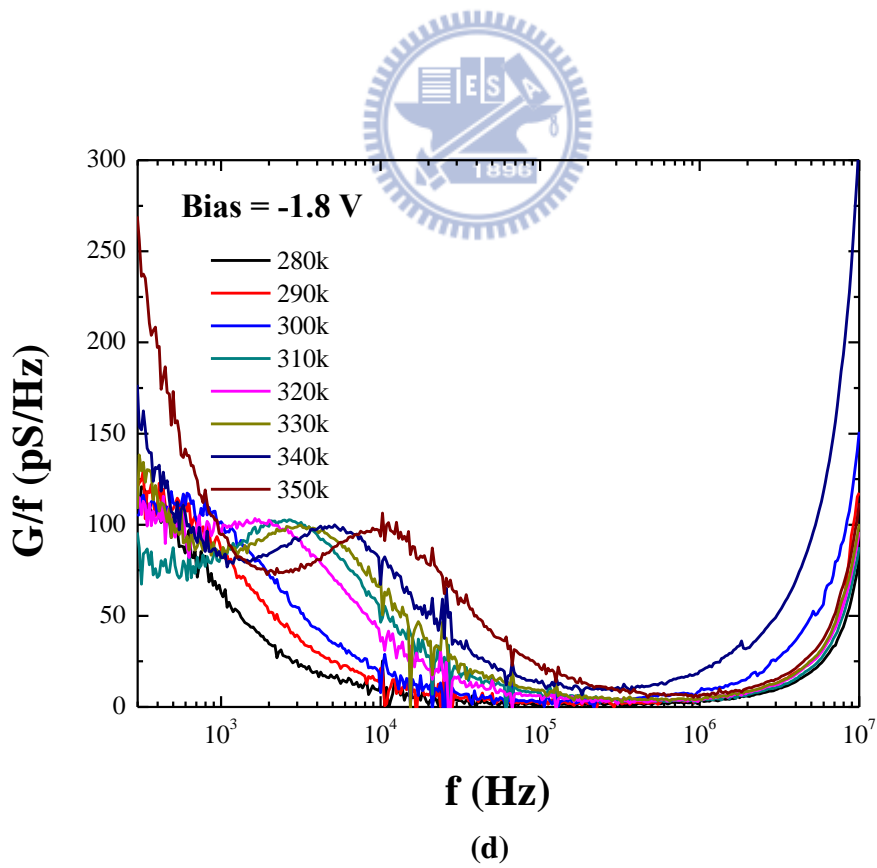
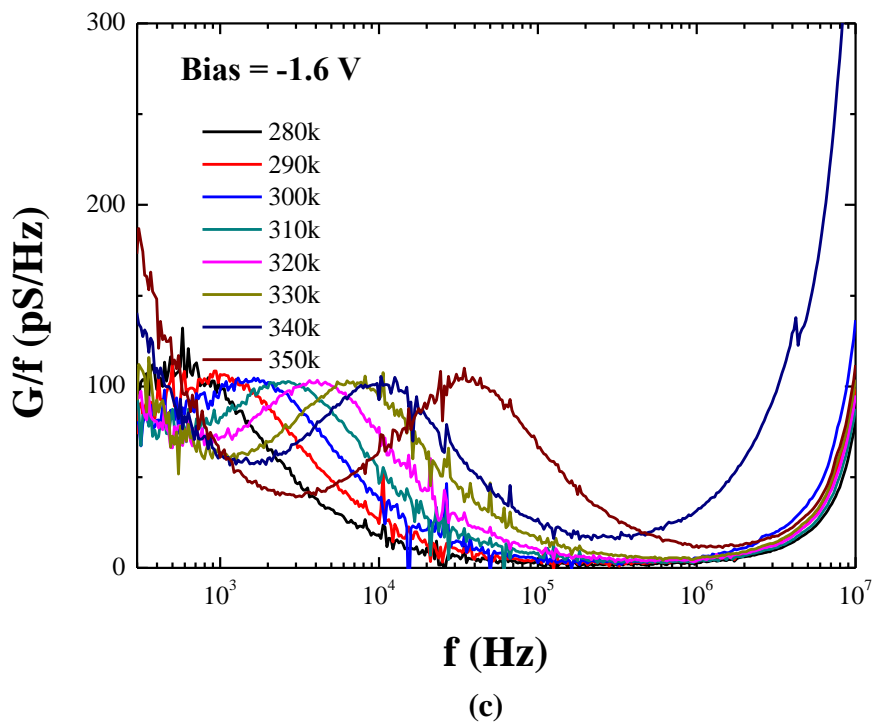


圖 4-8 (c)  $V = -1.6$  (d)  $V = -1.8$  V As-grown  $\frac{G}{f}$ - $f$  圖

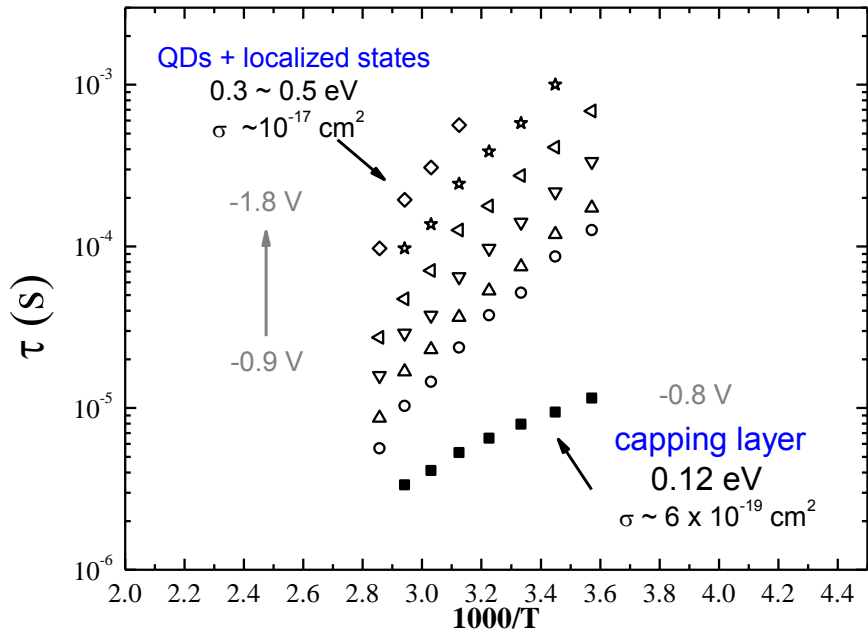


圖 4-9 As-grown  $\tau - \frac{1}{T}$  關係圖

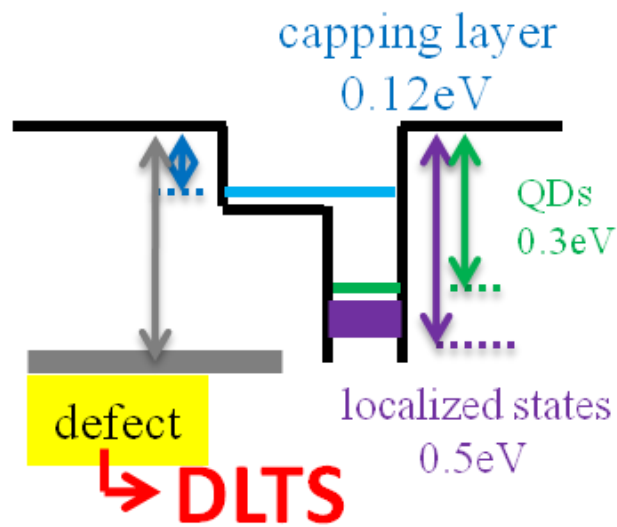
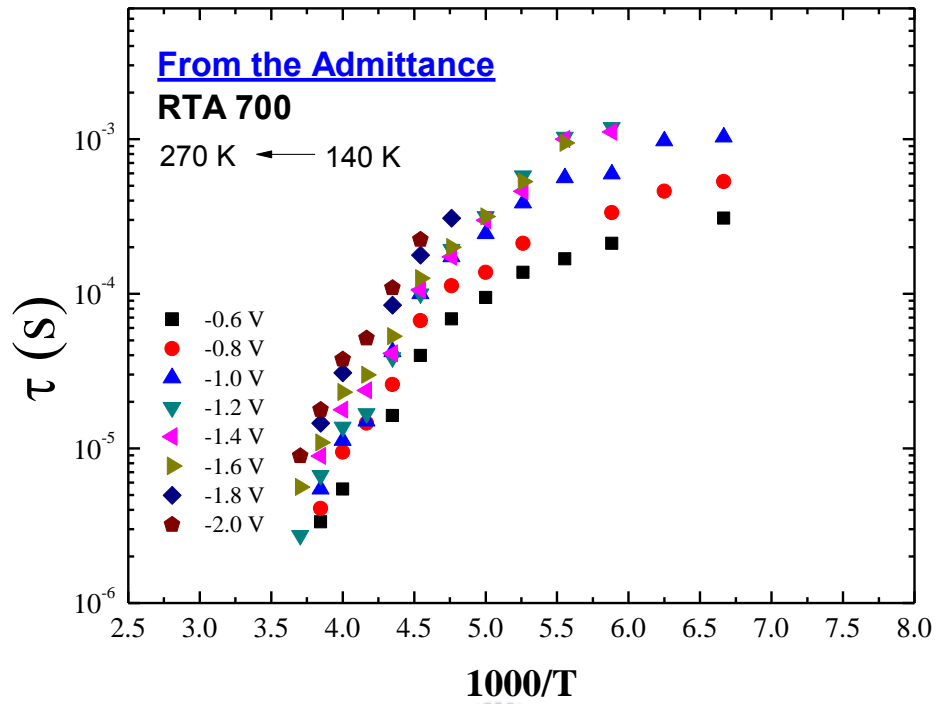
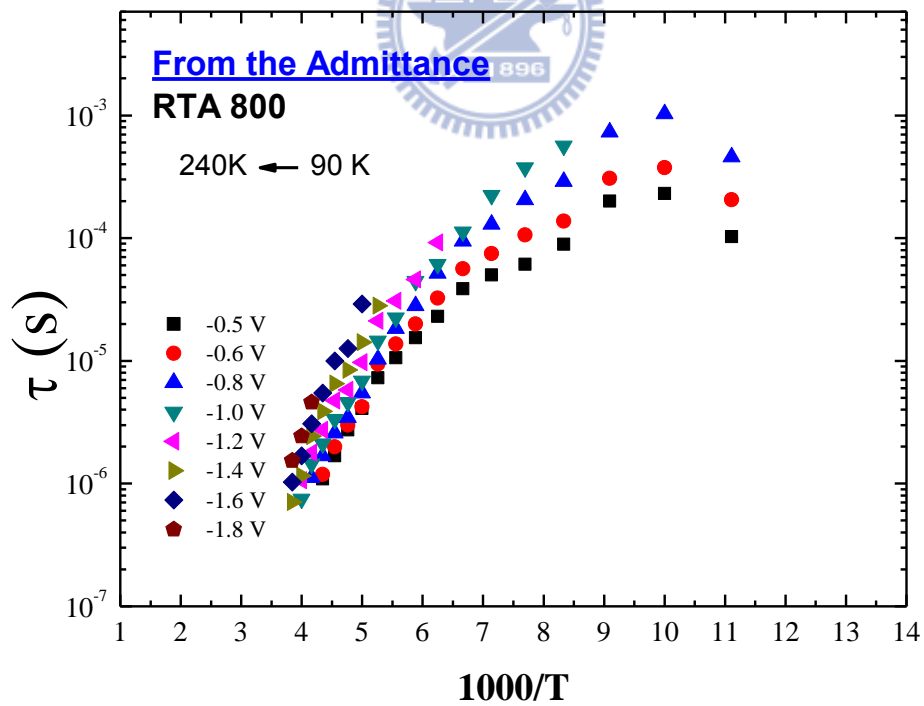


圖 4-10 能階示意圖



1000/T

(a)



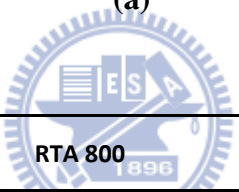
1000/T

(b)

圖 4-11 (a) RTA 700 (b) RTA 800  $\tau - \frac{1}{T}$  關係圖

RTA 700		
Bias	Ea (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )
-0.6 V	0.21	$2 \times 10^{-16}$
-0.8 V	0.26	$5 \times 10^{-15}$
-1.0 V	0.27	$1 \times 10^{-15}$
-1.2 V	0.29	$4 \times 10^{-15}$
-1.4 V	0.25	$3 \times 10^{-16}$
-1.6 V	0.26	$6 \times 10^{-16}$
-1.8 V	0.24	$2 \times 10^{-16}$
-2.0 V	0.28	$9 \times 10^{-16}$

(a)



RTA 800		
Bias	Ea (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )
-0.5V	0.13	$5 \times 10^{-17}$
-0.6V	0.13	$4 \times 10^{-17}$
-0.8 V	0.13	$4 \times 10^{-17}$
-1.0 V	0.15	$8 \times 10^{-17}$
-1.2 V	0.15	$8 \times 10^{-17}$
-1.4 V	0.18	$2 \times 10^{-16}$
-1.6 V	0.20	$5 \times 10^{-16}$
-1.8 V	0.25	$3 \times 10^{-15}$

(b)

表 4-1 (a) RTA 700 (b) RTA 800 QDs 與 localized states 活化能及捕捉截面積

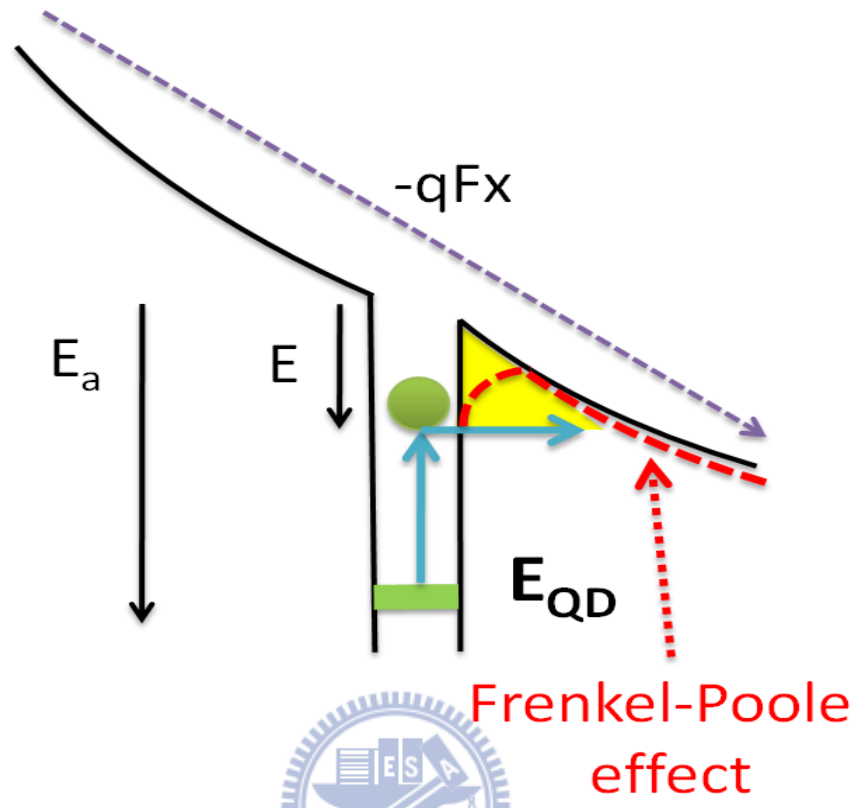


圖 4-12 Frenkel - Poole effect

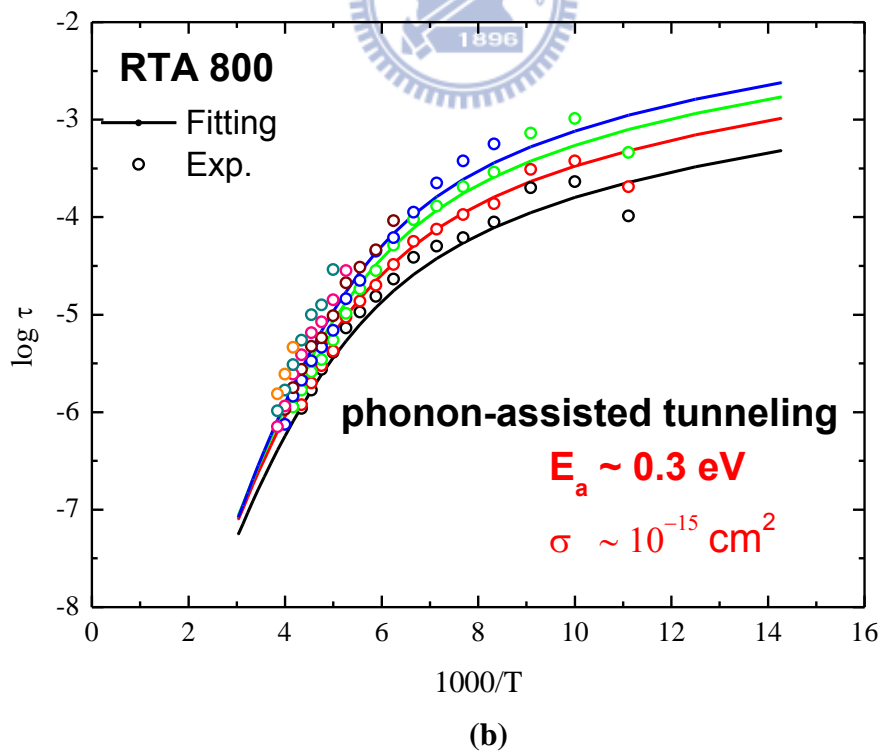
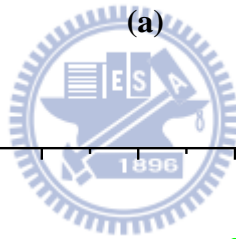
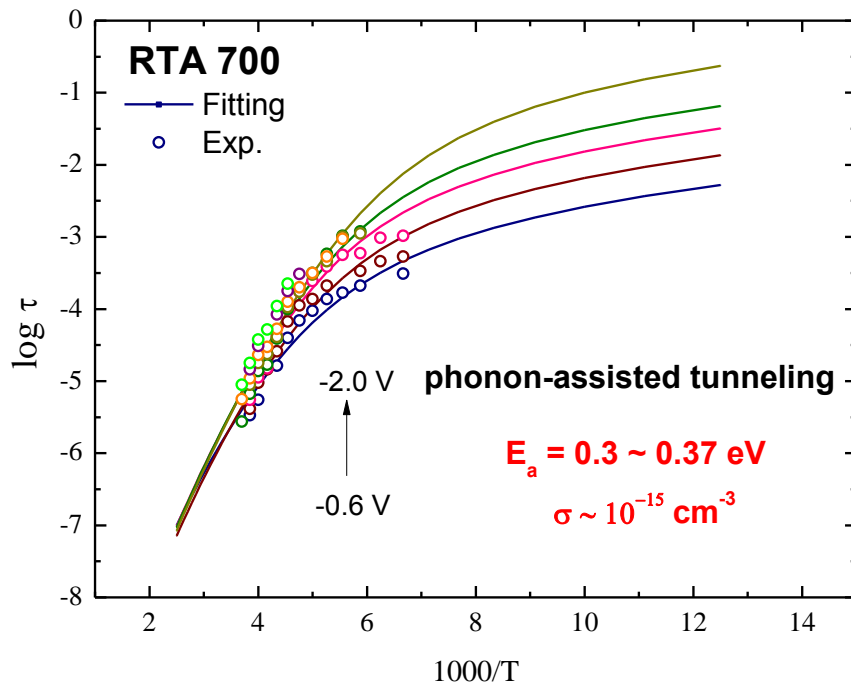


圖 4-13 (a) RTA 700 (b) RTA 800 Phonon-assisted tunneling fitting

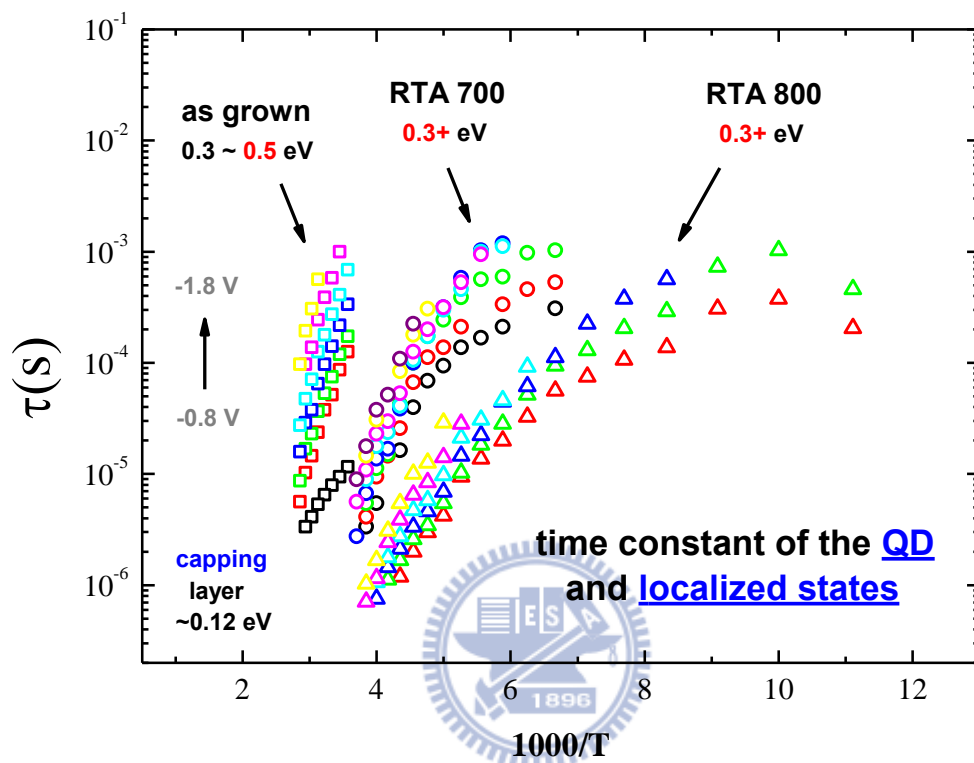


圖 4-14 As-grown 與 RTA 樣品電子放射時間比較圖

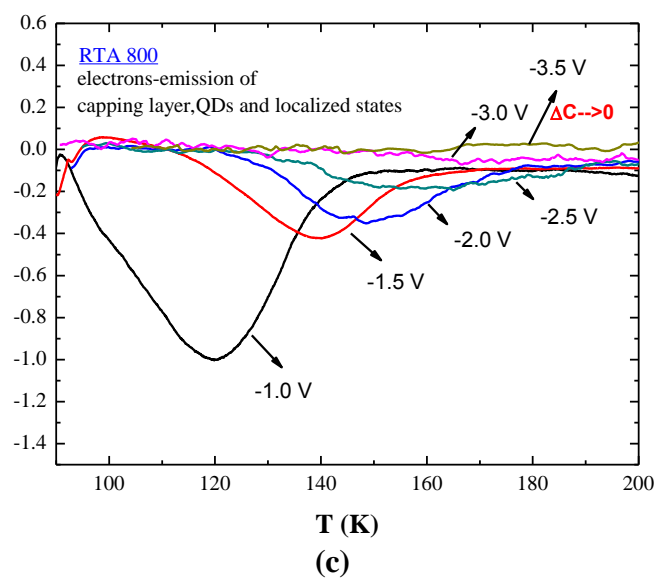
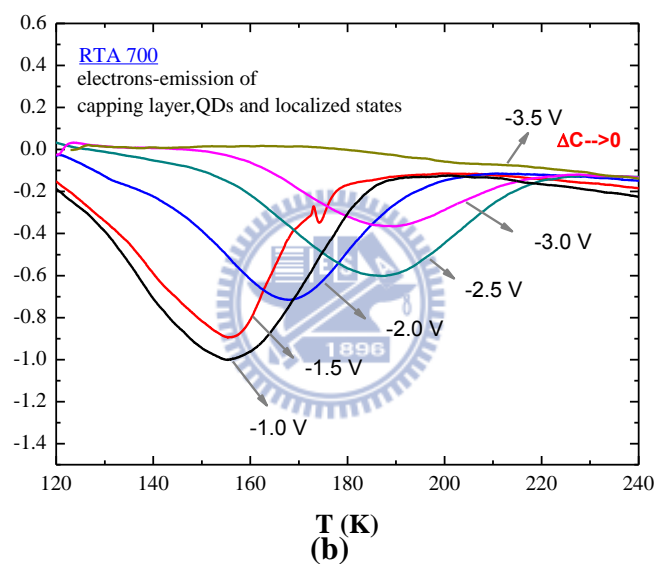
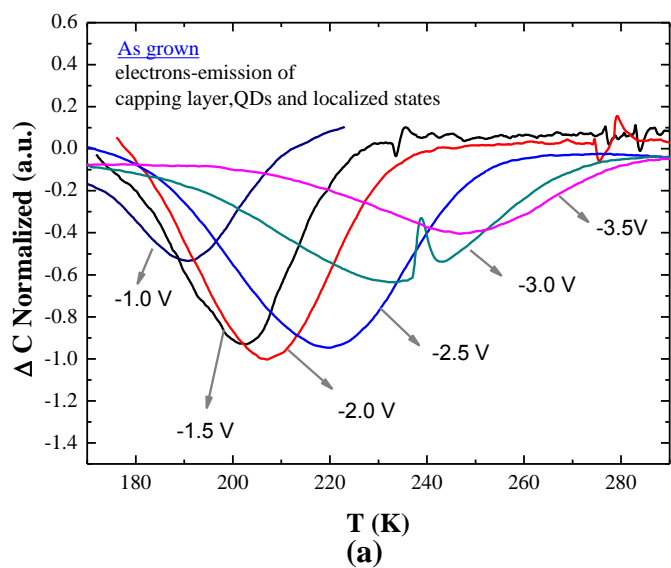


圖 4-15 (a)As-grown,  $rw = 21.5$  ms (b) RTA 700 (c) RTA 800  $rw = 4.3$  ms DLTS



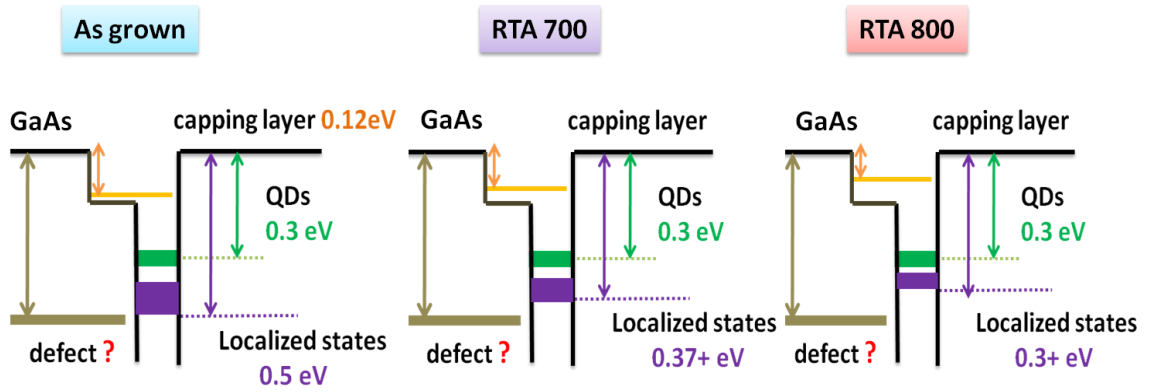


圖 4-16 As-grown 與 RTA 樣品能階示意圖

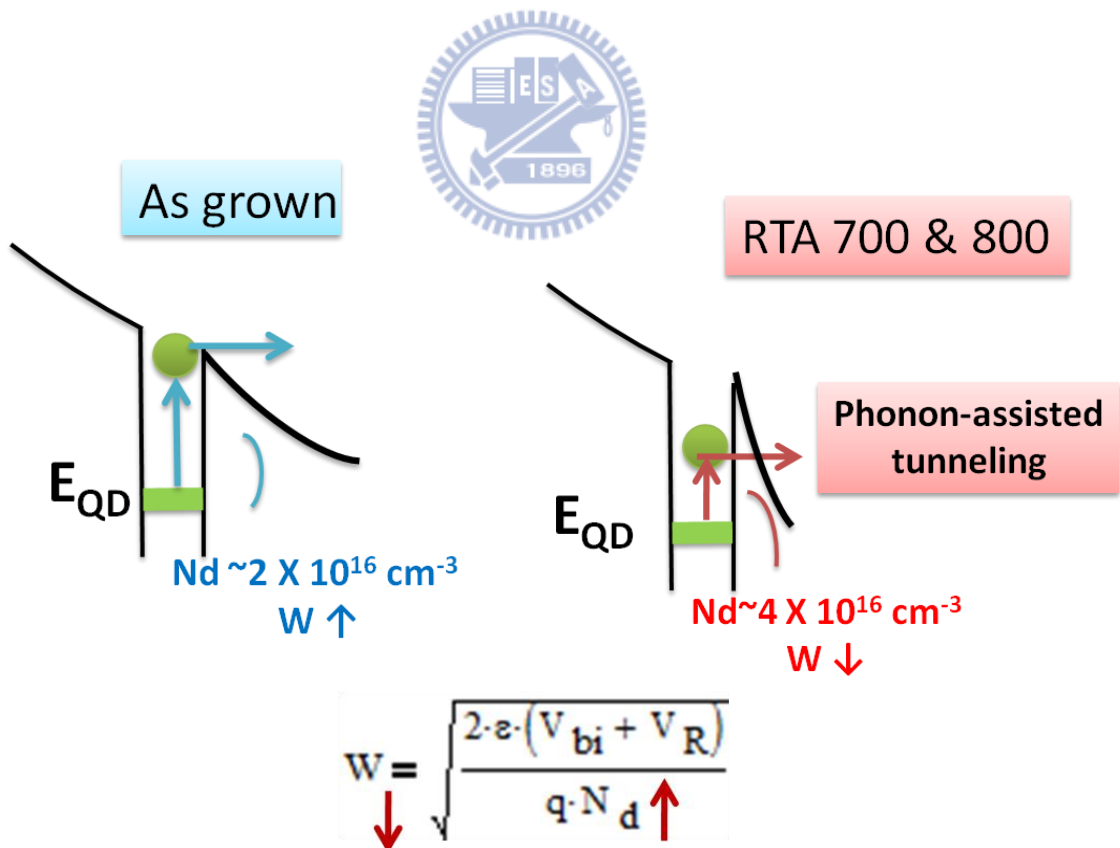


圖 4-17 As-grown 與 RTA 樣品穿隧效應示意圖

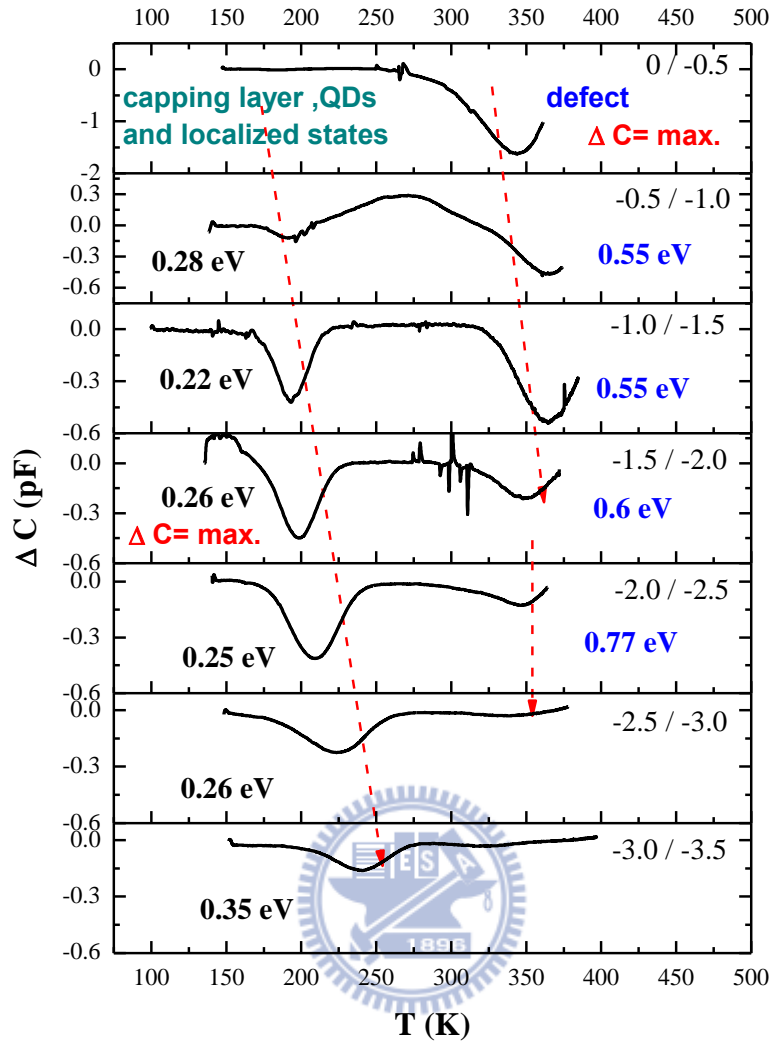


圖 4-18 As-grown 在 rate window 為 43 ms 不同偏壓的 DLTS 圖

QDs emission			Defect mission		
Bias	$E_a$ (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )	Bias	$E_a$ (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )
-0.5 / -1.0	0.28	$4 \times 10^{-17}$	-0.5 / -1.0	0.55	$3 \times 10^{-17}$
-1.0 / -1.5	0.22	$2 \times 10^{-17}$	-1.0 / -1.5	0.55	$2 \times 10^{-17}$
-1.5 / -2.0	0.26	$1 \times 10^{-17}$	-1.5 / -2.0	0.60	$3 \times 10^{-16}$
-2.0 / -2.5	0.25	$3 \times 10^{-18}$	-2.0 / -2.5	0.77	$5 \times 10^{-13}$
-2.5 / -3.0	0.26	$1 \times 10^{-18}$			
-3.0 / -3.5	0.35	$5 \times 10^{-17}$			

表 4-2 As-grown 樣品量子能階與缺陷能階之活化能與捕捉截面積

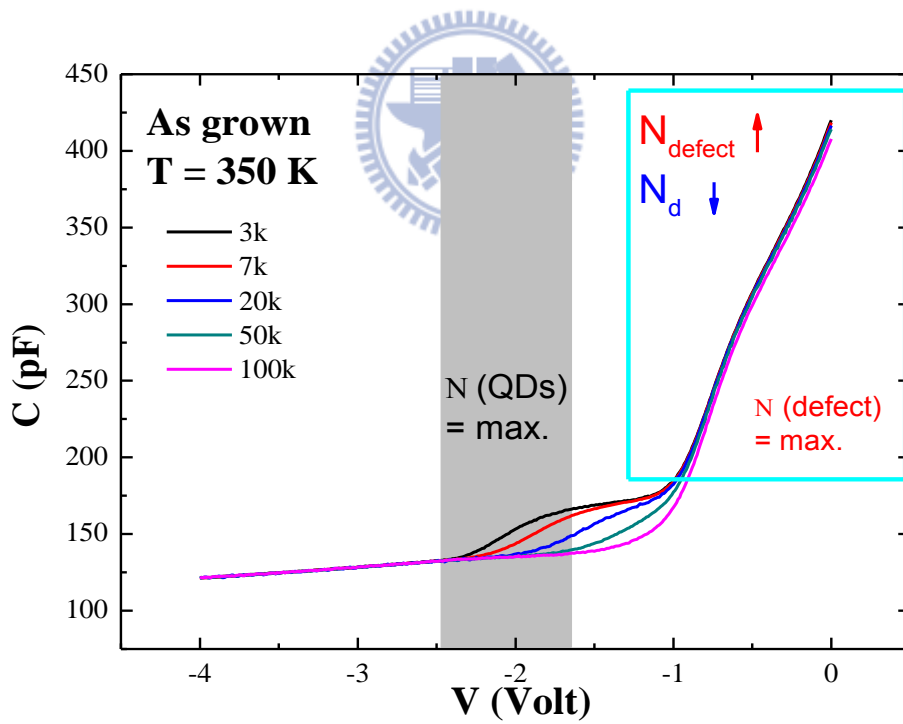
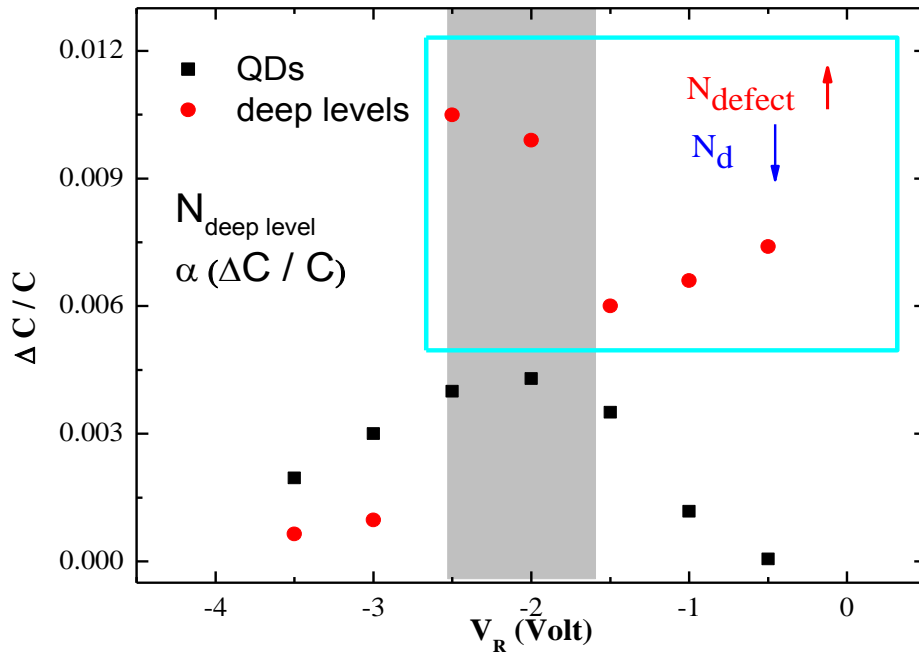


圖 4-19 As-grown 淺層與深層能階濃度與 C-V 對照圖

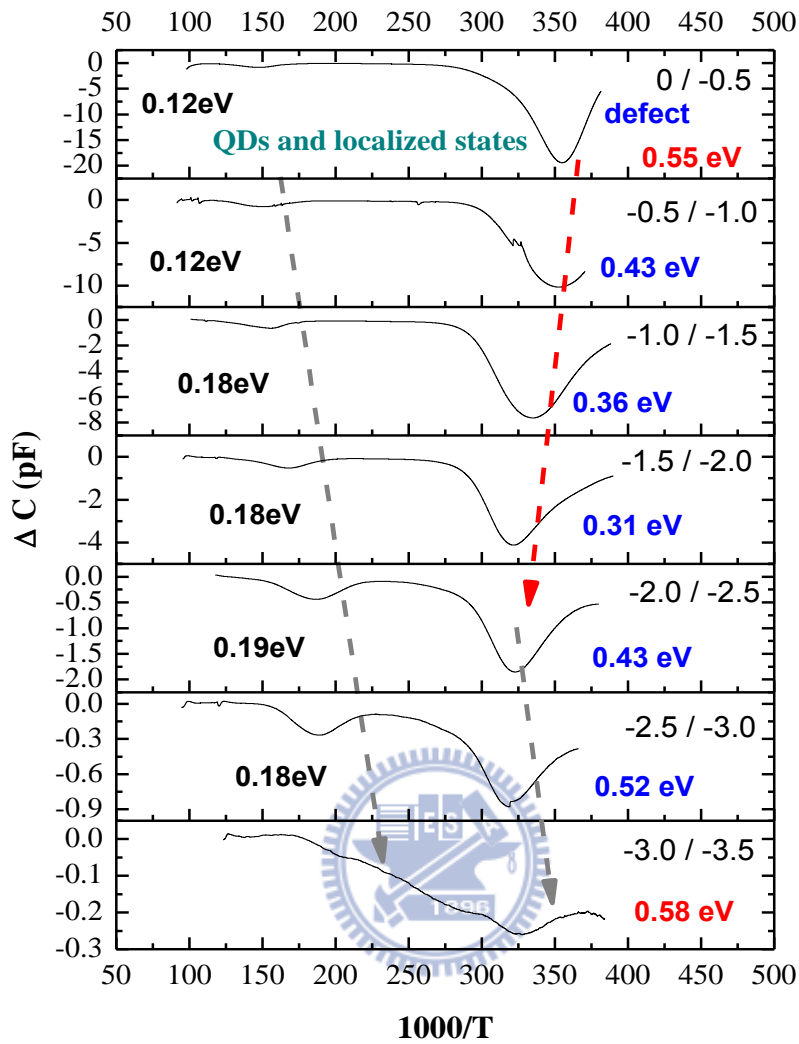
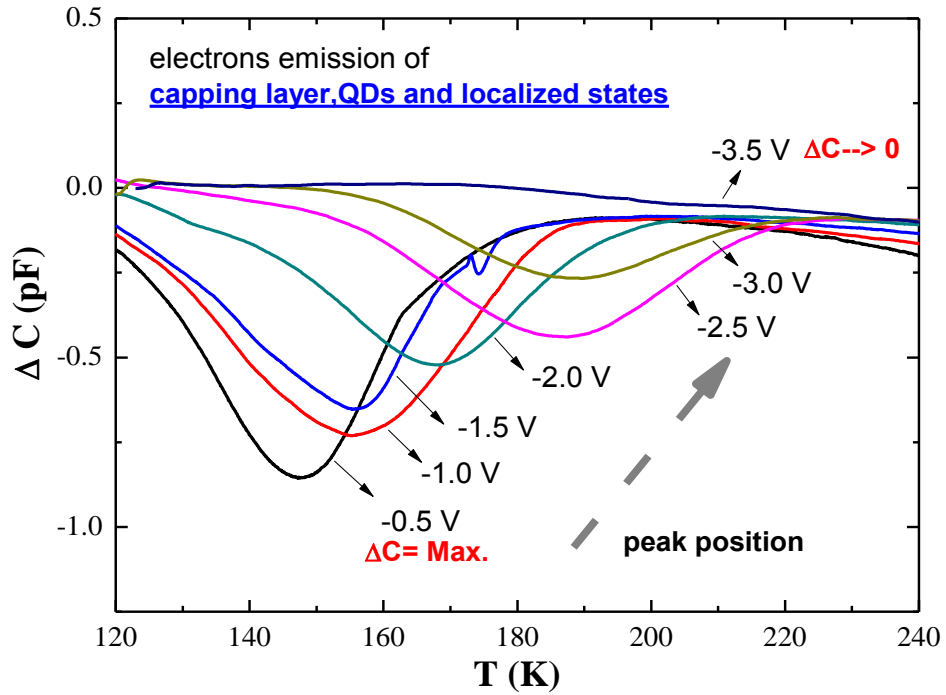


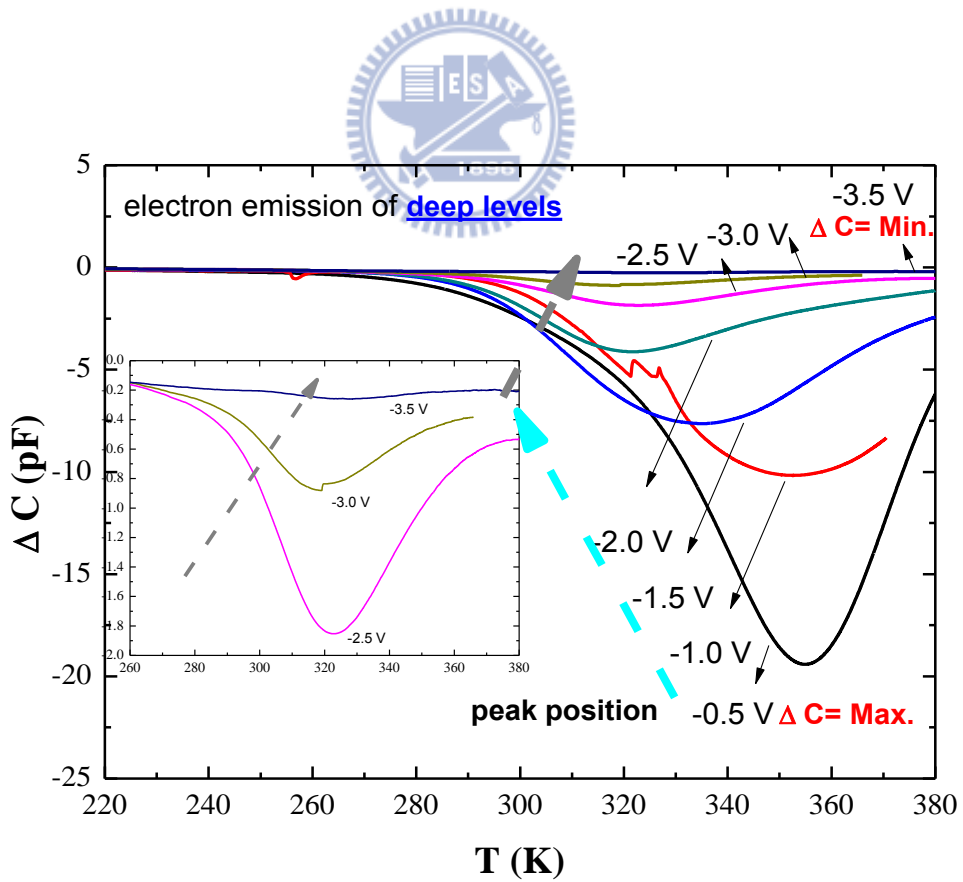
圖 4-20 (a) RTA 700 在 rate window 為 4.3 ms 不同偏壓的 DLTS 圖

QDs emission		
Bias	Ea (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )
0 / -0.5	0.12	$8 \times 10^{-19}$
-0.5 / -1.0	0.12	$3 \times 10^{-19}$
-1.0 / -1.5	0.18	$7 \times 10^{-18}$
-1.5 / -2.0	0.18	$1 \times 10^{-17}$
-2.0 / -2.5	0.19	$9 \times 10^{-18}$
-2.5 / -3.0	0.18	$1 \times 10^{-18}$

表 4-3 RTA 700 樣品量子能階之活化能與捕捉截面積



(b)



(c)

圖 4-20 (b) 淺層能階 (c) 深層能階不同偏壓下訊號大小比較

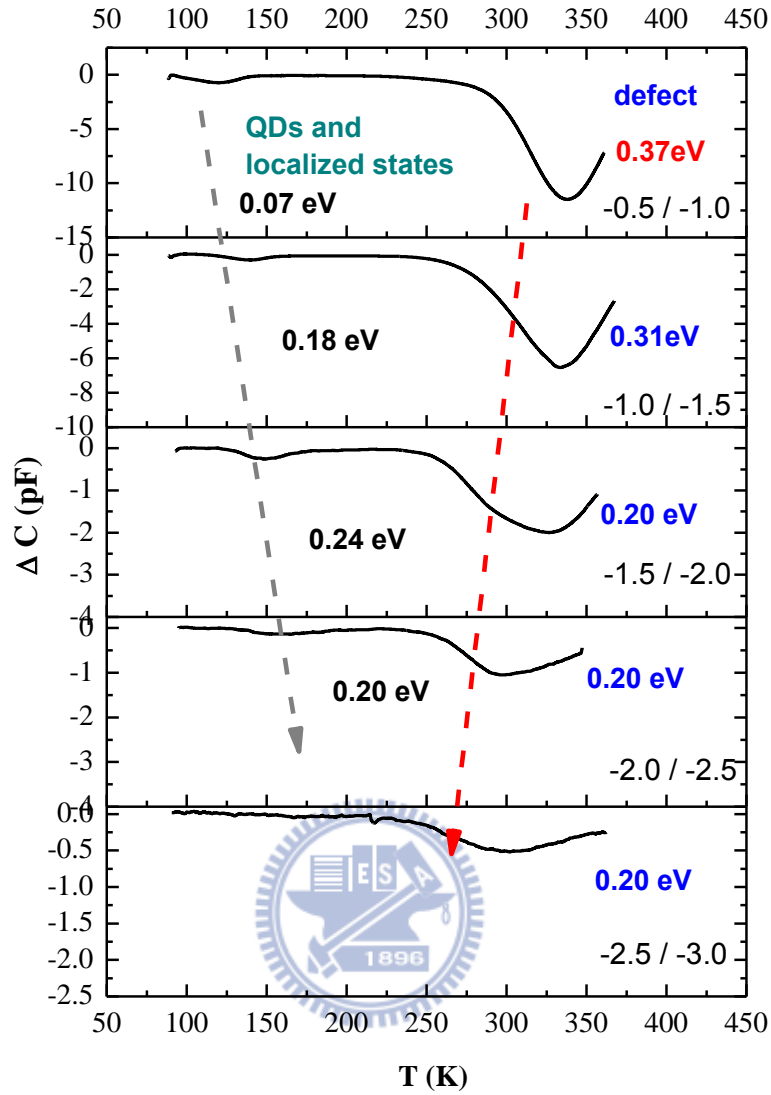


圖 4-21 (a) RTA 800 在 rate window 為 4.3 ms 不同偏壓的 DLTS 圖

QDs emission		
Bias	Ea (eV)	$\sigma$ (cm <sup>2</sup> )
-0.5 / -1.0	0.07	$7 \times 10^{-20}$
-1.0 / -1.5	0.18	$2 \times 10^{-16}$
-1.5 / -2.0	0.24	$5 \times 10^{-15}$
-2.0 / -2.5	0.21	$5 \times 10^{-17}$

表 4-4 RTA 800 樣品量子能階之活化能與捕捉截面積

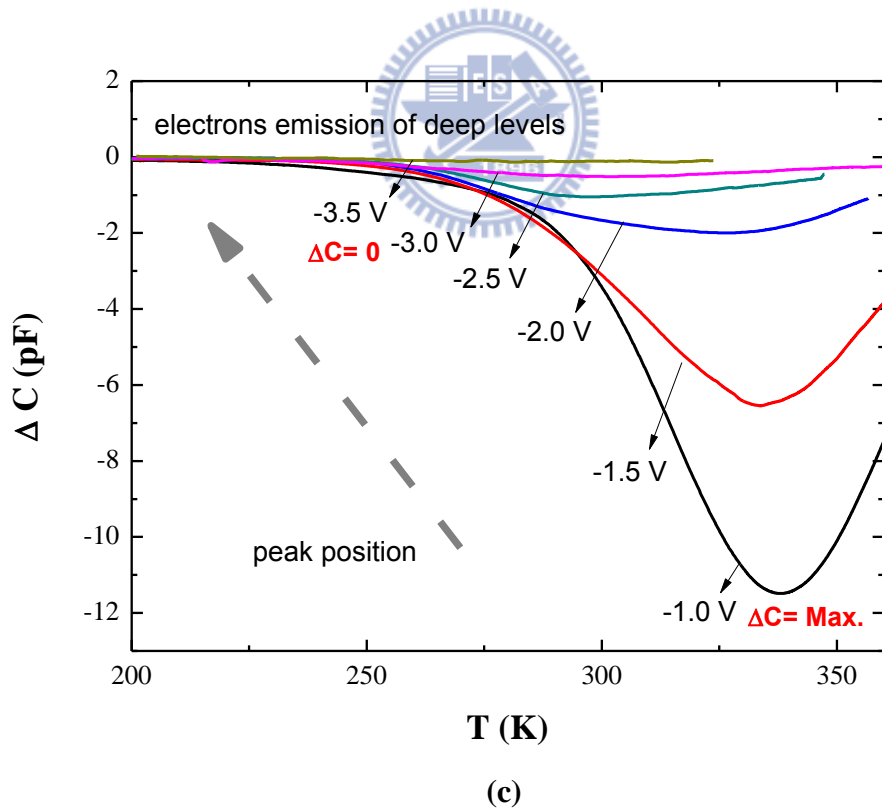
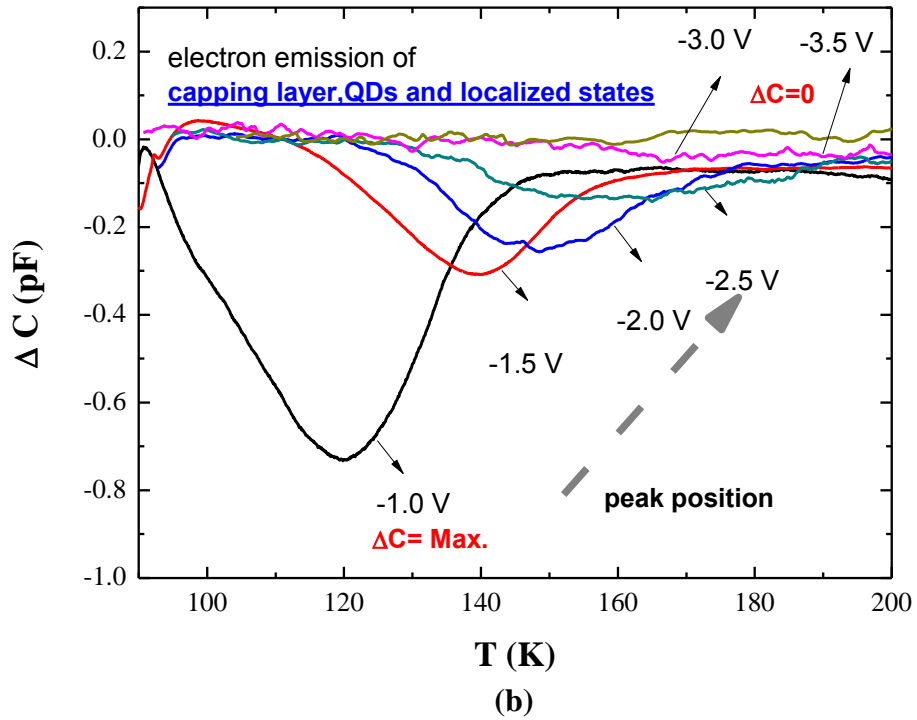


圖 4-21 (b) 淺層能階 (c) 深層能階不同偏壓下訊號大小比較

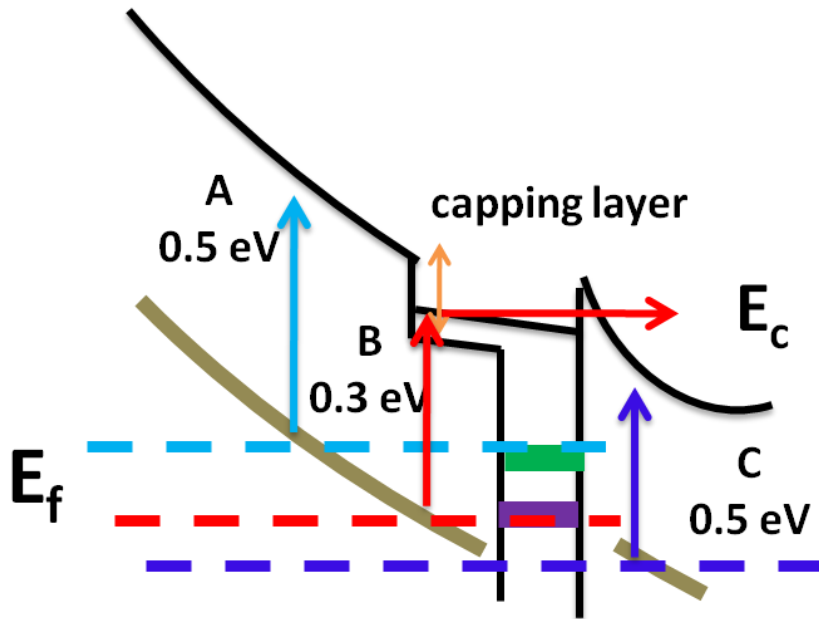


圖 4-22 RTA 700 深層能階躍遷示意圖

Defect emission			
	Bias	$E_a$ (eV)	$\sigma$ ( $\text{cm}^2$ )
A	0 / -0.5	0.55	$5 \times 10^{-16}$
	-0.5 / -1.0	0.43	$1 \times 10^{-17}$
B	-1.0 / -1.5	0.36	$2 \times 10^{-18}$
	-1.5 / -2.0	0.31	$7 \times 10^{-19}$
C	-2.0 / -2.5	0.43	$1 \times 10^{-16}$
	-2.5 / -3.0	0.52	$1 \times 10^{-15}$
	-3.0 / -3.5	0.58	$7 \times 10^{-15}$

表 4-5 RTA 700 樣品缺陷能階之活化能與捕捉截面積



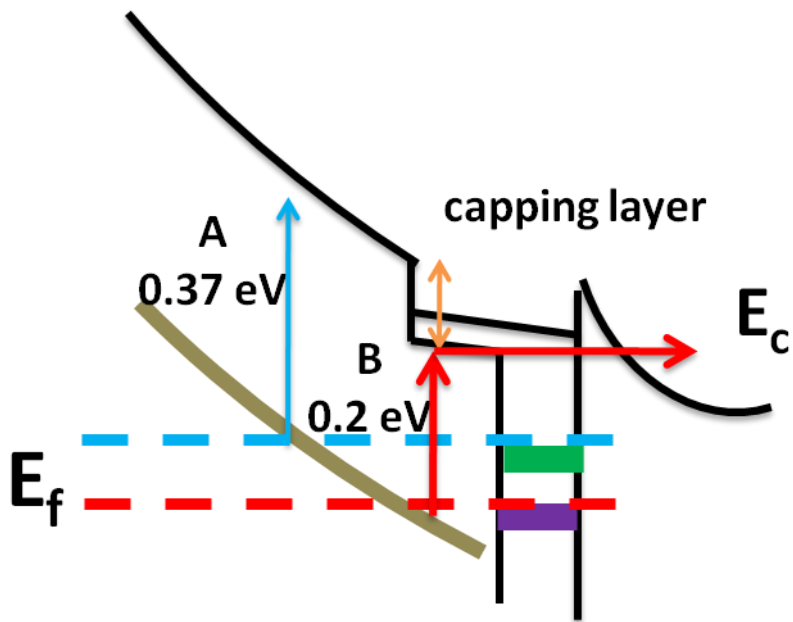


圖 4-23 RTA 800 深層能階躍遷示意圖

deep level emission			
	Bias	$E_a$ (eV)	$\sigma$ ( $\text{cm}^2$ )
A	-0.5 / -1.0	0.37	$3 \times 10^{-18}$
	-1.0 / -1.5	0.31	$5 \times 10^{-19}$
B	-1.5 / -2.0	0.20	$2 \times 10^{-20}$
	-2.0 / -2.5	0.20	$3 \times 10^{-20}$
	-2.5 / -3.0	0.20	$3 \times 10^{-20}$

表 4-6 RTA 800 樣品缺陷能階之活化能與捕捉截面積

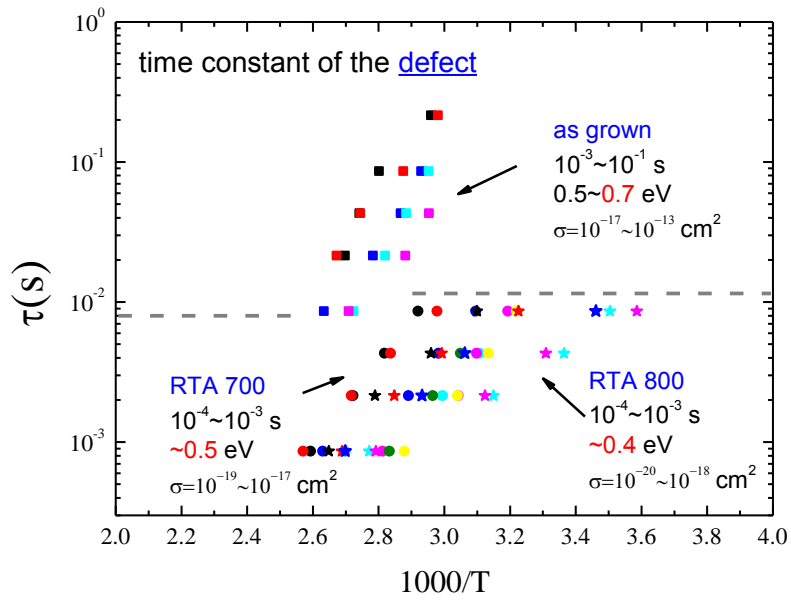


圖 4-24 As-grown 與 RTA 樣品載子放射時間比較圖

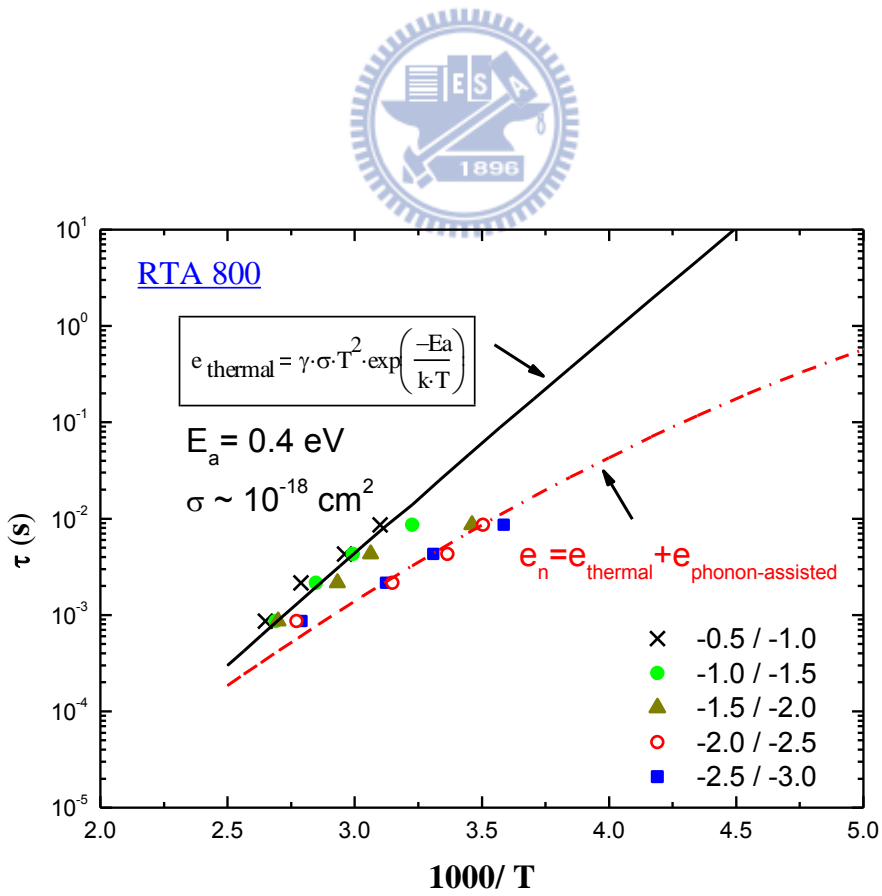


圖 4-25 RTA 樣品載子放射時間與理論比較圖

## 第五章 電容電壓量測模擬

在本章我們模擬實驗量測的 C-V 圖，與實驗的數據進行比較，確定產生頻率響應的載子侷限能階成分為何，並了解深層缺陷對量測上的影響。

### 5-1 C-V profile 模擬

使用 Poisson's equation 加上邊界值條件，我們可以到此時空乏區的電場、電位，進而知道空乏區的寬度為何，再加上平行電容板公式，便可求得電容值大小，而這個電容值，就是實驗中高頻量測下的結果。因為量測頻率太高，載子的放射速度趕不上量測速度，所以此時在空乏區的帶電量由背景摻雜濃度所決定。在低頻時，因為量測速度慢，所以可以量到能階所侷限的載子放射過程，載子放射至導帶，貢獻而外的電荷量，所以在 C-V 圖上會有平台出現，侷限能階所貢獻的電容值，需用能態密度(5.1.1)與 Fermi-Dirac(5.1.2)能量分佈來表示<sup>[42,43]</sup>，而能態密度須考慮量子點大小不均勻的效應，所以在公式(5.1.1)中將量子點大小不均勻的影響以  $\Delta E$  表示，圖 5-1<sup>[44]</sup> 為模擬使用的模型，圖 5-2(a)(b) 為低頻及高頻的等效電路。

圖 5-3(a)為我們模擬 As-grown 樣品的高溫低頻 C-V 圖，As-grown 樣品在 C-V 量測時只有一個響應平台，我們需使用了三個能態密度才可成功的描述頻率響應平台。我們將所模擬的 C-V 圖進行轉縱深如圖 5-3(b)，其中包含三個載子侷限能階，分別代表 capping layer、InAsN QDs 與 localized states，圖 5-4 為轉縱深的結果，capping layer 不甚明顯，所以我們在實驗的轉縱深只有看到兩個侷限訊號，但在 Admittance 量測中卻出現 capping layer 訊號。由於，As-grown 的樣品存在高濃度的 localized states 及深層缺陷，會將背景濃度空乏，固在模擬時，使用一個固定的背景濃度會造成誤差。載子被空乏的現象對量測的影響，我們將其視為等效的降低背景濃度值，在 As-grown 樣品中  $N_d$  約為  $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 。

同時也對 RTA 的樣品進行模擬，在實驗的 C-V 圖中，我們可以看到兩個頻率響應的平台，但同樣的也須使用三個能態密度以增加準確度，圖 5-5 為 RTA 700

樣品模擬的結果，圖 5-6 為僅考慮量子能階當成低頻電容貢獻，圖 5-7 為 RTA 800 樣品模擬的結果，在模擬的過程中，可發現在高溫熱退火的樣品中，使用一固定的  $N_d$  值便可模擬實驗結果，這就是熱退火使得被捕捉的載子量下降，背景濃度恢復的結果。在實驗中發現，在熱退火溫度達  $800^\circ\text{C}$  時，量子特性會恢復，所以在模擬時控制量子點不均的影響係數  $\Delta E$ ，在 RTA 800 值為最小。背景濃度及態密度在模擬過程中的改變，皆顯示熱退火對樣品的影響。

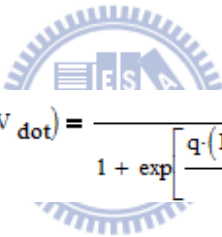
### Density of states

(5.1.1)

$$D(E, V_{\text{dot}}) = \frac{N_{\text{dot}}}{\sqrt{\frac{\pi}{2} \Delta E}} \cdot \exp \left[ -2 \cdot \left( \frac{E_F - E_{\text{dot}} - q \cdot V_{\text{dot}}}{\Delta E} \right)^2 \right]$$

### Fermi-Dirac distribution

(5.1.2)



$$f(E_f, V_{\text{dot}}) = \frac{1}{1 + \exp \left[ \frac{q \cdot (E_f - V_{\text{dot}})}{k \cdot T} \right]}$$

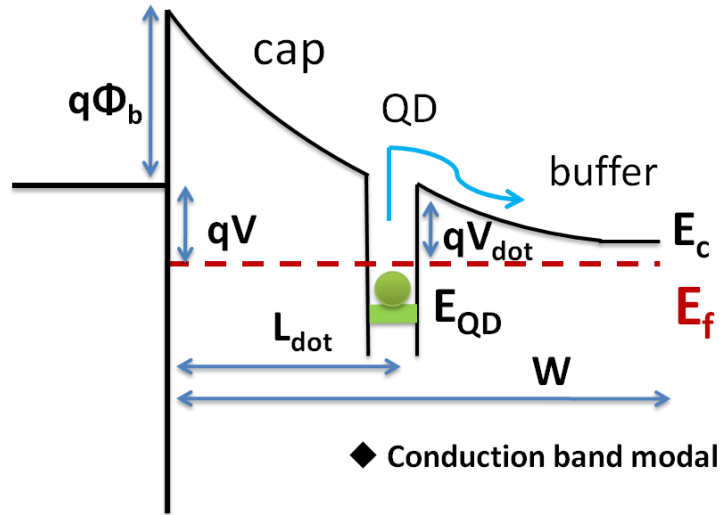


圖 5-1 模擬所用導帶模型

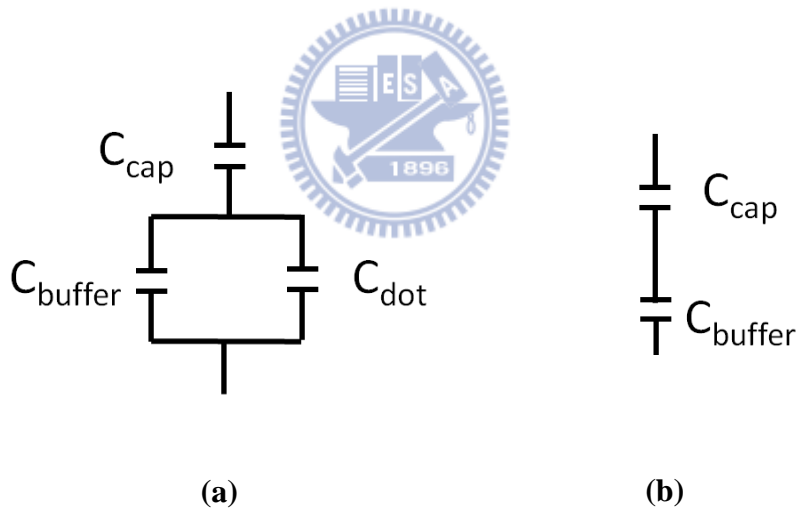


圖 5-2 (a) 低頻等效電路 (b) 高頻等效電路

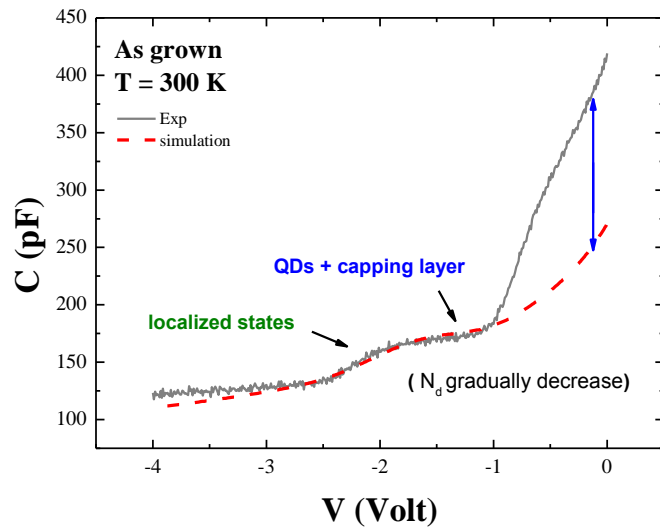


圖 5-3(a) As-grown 樣品 C-V 模擬

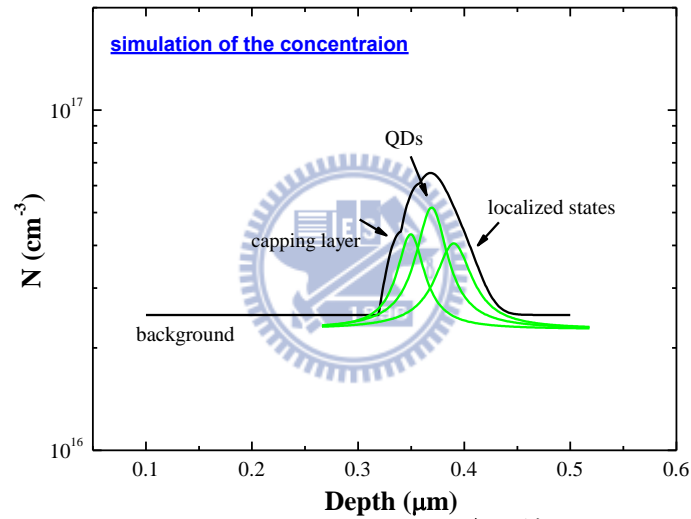


圖 5-3(b) As-grown 樣品轉縱深模擬

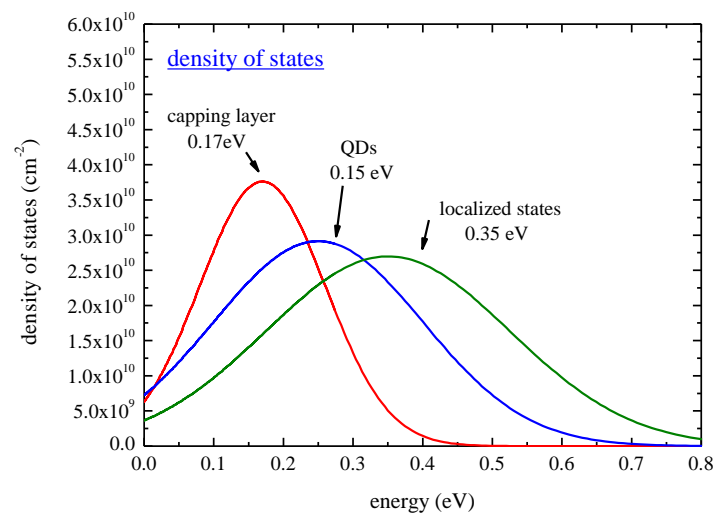


圖 5-4 能階密度分佈

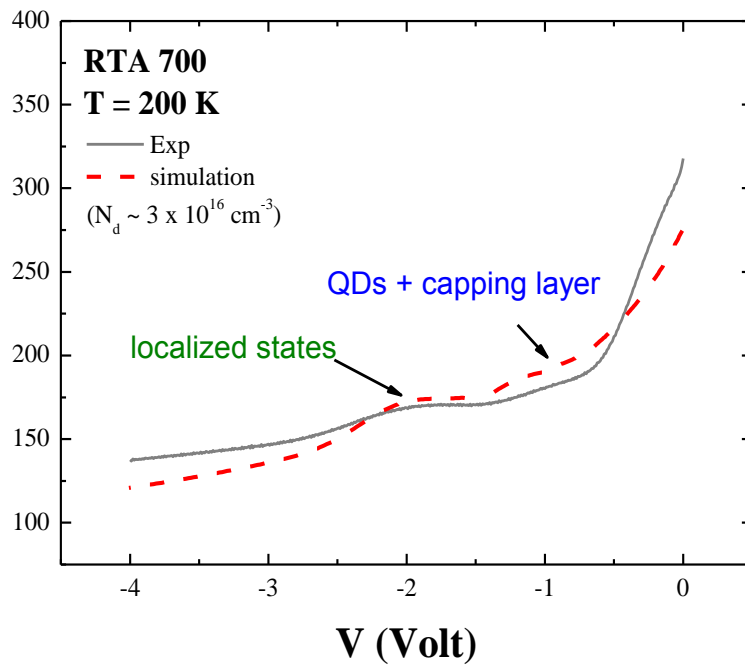


圖 5-5 RTA 700 樣品 C-V 模擬

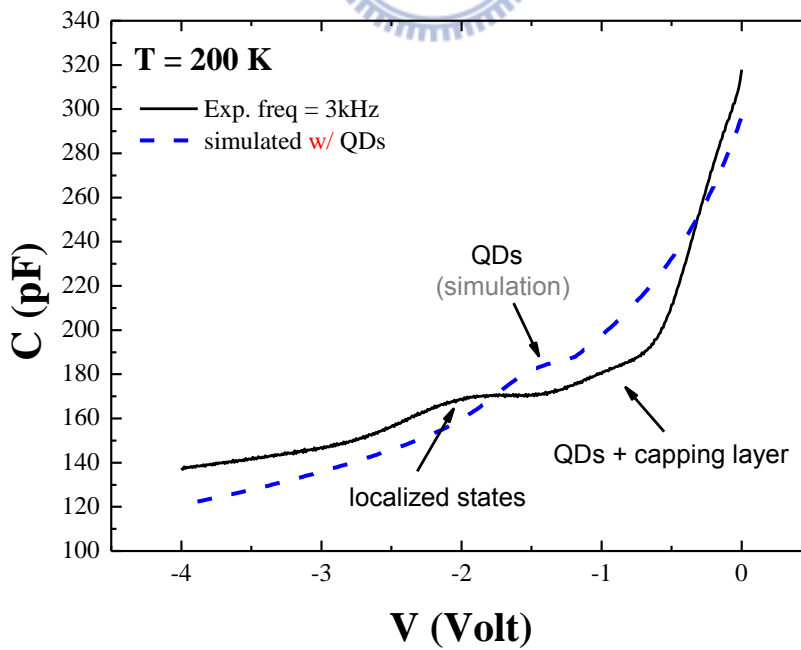


圖 5-6 RTA 700 樣品 C-V 模擬

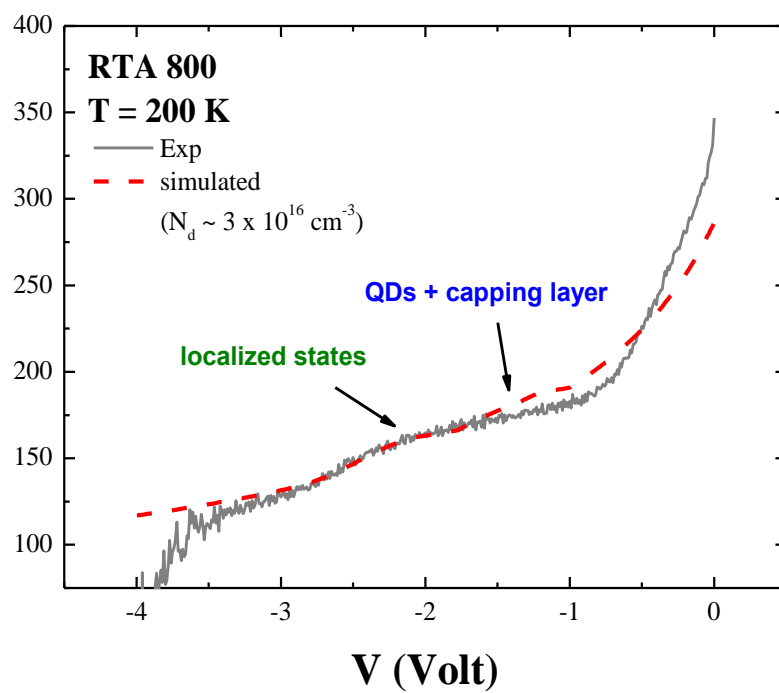


圖 5-7 RTA 800 樣品 C-V 模擬





## 第六章 結語

本論文藉由光性及電性量測，比較 InAsN/InGaAs quantum dot-in-a-well (DWELL) 結構經熱退火後的差異。DWELL 結構可以減緩應力對量子點的影響，在許多研究中<sup>[23,28,44]</sup>，皆發現在量子點結構上在蓋上一層 capping layer 可增加其發光效率對於波長的延展也有一定效果。而在三五族合金中摻雜氮，更是可以得到明顯的波長紅移現象，不過隨著摻雜含量的提高，會出現相分離的現象<sup>[45]</sup>，讓原子在樣品內呈不均勻，所以高含量的氮摻雜樣品，其發光效率很差<sup>[24]</sup>，我們的樣品中就可以看到這一現象，且也存在著一個低能量訊號 (localized states) 這是由於氮的群聚所造成<sup>[24,35]</sup>；在 InAsN/InGaAs 中，因為存在著侷限載子的能階，載子被空乏，這讓載子的放射時間變長，所以我們可以看到頻率響應的現象發生，並且可以對量子結構進行電性分析。

比較樣品經熱退火過程前後的差異，可以看到量子訊號增強，發光效率變好，半高寬明顯變窄，低能量訊號變弱，這是因為熱退火過程使原子重新分佈<sup>[23,33,38]</sup>，鍵結改變，也讓氮均勻的分佈在各個量子點中，還有一些由氮所造成的點缺陷也降低。

而電性在熱退火過程前後的差異，最明顯的地方在於，不論是量子點或是深層缺陷的電子放射速度階變快，速度差異約有兩到三個數量級之多，且可以在 C-V 圖看見兩個頻率響應的平台，在 RTA 的樣品中更可見到量子穿隧效應。這是因為熱退火讓 localized states 的量降低，在空間上分佈變少，背景濃度得以恢復。

## 參考文獻

- [1] P. Hawrylak, *Phys. Rev. B* 60, 5597 (1999).
- [2] U. Banin, Y. Cao, D. Katz, O. Millo, *Nature* 400, 542 (1999).
- [3] Tzy-Rong Lin, Mao-Kuen Kuo, Bo-Ting Liao and Kuo-Pin Hung, "Mechanical and optical properties of InAs/GaAs self-assembled quantum dots," *Bulletin of the College of Engineering, N.T.U.*, No. 91 (2004).
- [4] M. V. Maximov, B. V. Volovik, D. A. Bedarev, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, N. A. Bert, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, I. P. Soshnikov, and P. Werner, *Appl. Phys. Lett.* vol. 75, 2347 (1999)
- [5] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O.B Shchekin, and D.G. Deppe, "1.3  $\mu$ m room-temperature GaAs-based quantum dot laser," *Appl. Phys. Lett.* vol. 73, pp. 2564-2566 (1998).
- [6] Y. Arakawa and K. Sakaki, "Evanescent-light guiding of atoms through hollow optical fiber for optically controlled atomic deposition," *Appl. Phys. Lett.* vol.40, pp.939-941 (1982).
- [7] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. p. Kotthaus, and P. M. Petroff, "Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots," *Phys. Rev. Lett.* 73, pp.2252-2255 (1994).
- [8] D. L. Huffaker and D.G. Deppe, "Electroluminescence efficiency of 1.3  $\mu$ m wavelength InGaAs/GaAs quantum dots," *Appl. Phys. Lett.* vol. 73, pp. 520-522 (1998).
- [9] National Science and Technology Program for Nanoscience and Nanotechnology, research plan, 2004.01.18
- [10] Seongsin M. Kim, "Review on recent development of quantum dots: From optoelectronic devices to novel bio-sensing applications," *Proc. of SPIE*, Vol. 4999, 423 (2003).
- [11] T. Itoh, Y. Iwabuchi, M. Katanoka, *Physica Status Solidi B* vol. 145, 567 (1988).
- [12] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, "Quantum Dot Heterostructures," (Wiley, 1999)
- [13] F. C. Frank, and J. H. van der Merwe, *Proc. Roy. Soc. London A*, vol. 198, pp.205 (1949).
- [14] M. Volmer, and A. Weber, *Z. Phys. Chem.*, vol. 119, pp.277 (1926).
- [15] I. N. Stranski, and L. Von Krastanov, *Akad. Wiss Lit. Main Math. Natur. K1. Iib*, vol. 146, pp.797 (1939).
- [16] F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg, A. O. Kosogov and P. Werner, "InAs/InGaAs/GaAs quantum dots with high lateral density grown by

- MOC-VD,” *Appl. Surf. Scie*, vol.123, pp.725-728 (1998).
- [17] V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, A. Yu. Egorov, A. V. Lunev, B. V. Volovil, I. L. Krestnikov, Yu. G. Musikhin, N. A. Bert, P. S. Kop’ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov and D. Bimberg, ”InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at  $1.3 \mu\text{m}$ ,” *Appl. Phys. Lett.* vol. 74, pp. 2815-2817 (1999).
- [18] M. V. Maximov et al., ”Quantum dots formed by activated spinodal decomposition of InGa(Al)As alloy on InAs stressors,” *Physica E*, vol.7, pp.326-330 (2000).
- [19] D. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, and D. Deppe, *J. Select. Topics Quantum Electron.* vol. 6, 452 (2000).
- [20] S. Kim, H. Mohseni, M. Erdtmann, E. Michel, C. Jelen, and M. Razeghi, *Appl. Phys. Lett.* vol.73, 963 (1998).
- [21] Ustinov V M *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 2815
- [22] Joyce P B, Krzyzewski T J, Bell G R, Jones T S, Le Ru E C and Murray R 2001 *Phys. Rev. B* **64** 235317
- [23] R Gargallo-Caballero, J Miguel-Sánchez, Á Guzmán, A Hierro and E Muñoz, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 41 (2008) 065413 (4pp)
- [24] M. de la Mare<sup>1</sup>, Q. Zhuang<sup>1</sup>, A. Krier<sup>1</sup>, A. Patané<sup>2</sup>, and S. Dhar<sup>3</sup>, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 031110 (2009)
- [25] ŁUKASZ GELCZUK\*, MARIA DĄBROWSKA-SZATA, *Optica Applicata*, Vol. XXXIX, No. 4, 2009
- [26] C. H. Goo, W. S. Lau, T. C. Chong, and L. S. Tan, *Appl. Phys. Lett.* 69, 2543 (1996)
- [27] 陳育志, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ”摻雜不同氮含量的 InAs/InGaAs 量子點與不同長晶速率的 InGaAsN 單一量子井之電性研究” (2003)
- [28] Alessandro Cristofoli, SYNTHESIS AND PROPERTIES OF NEW SEMICONDUCTOR ALLOYS FOR LONG WAVELENGTH COHERENT EMITTERS ON GALLIUM ARSENIDE
- [29] L. Vegard, *Z. Phys.* 5, 17 (1921)
- [30] L. Bellaiche, S.-H. Wei, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* 54, 17568 (1996)
- [31] J. A. Van Vechten, *Phys. Rev.* 182, 891 (1969).
- [32] W. Shan, W. Walukiewicz, J. W. Ager III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, and S. R. Kurtz, *Phys. Rev. Lett.* 82, 1221 (1999).
- [33] Hierro A, Ulloa J M, Chauveau J M, Trampert A, Pinault M A, Tournié E, Guzmán A, Sánchez-Rojas J L and Calleja E 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 2319
- [34] Y. D. Jang, J. S. Yim, U. H. Lee, D. Lee, J. W. Jang, K. H. Park, W. G. Jeong, J. H. Lee, and D. K. Oh, *Physica E* 17, 127 (2003)

- [35] E. P. O'Reilly, A. Lindsay, P. J. Klar, A. Polimeni, and M. Capizzi, *Semicond. Sci. Technol.* 24, 033001 (2009).
- [36] Y. P. Varshni, *Physica (Amsterdam)* 34, 149 (1967).
- [37] I. Vurgaftman) and J. R. Meyer, *J. A. PHY.VOLUME* 89, NUMBER 11
- [38] Uno K, Yamada M, Tanaka I, Ohtsuki O and Takizawa O 2005 *J. Cryst. Growth* **278** 214
- [39] G. Vincent, A. Chantre, and D. Bois, *J. Appl. Phys.* 50, 5484 (1979)
- [40] E. N. Korol, *Sov. Phys.-Solid State* 19, 1327 (1977).
- [41] O. Engström<sup>1,\*</sup> and P. T. Landsberg<sup>2</sup>, *Phys. Rev. B* 72, 075360 (2005)
- [42] A. J. Chiquito\*, Yu. A. Pusep, S. Mergulhão, and J. C. Galzerani, *Phys. Rev. B* 61, 5499–5504 (2000)
- [43] S. D. Lin et. al, *Appl. Phys. Lett.* 90, 263114 (2007)
- [44] O. Engström, M. Kaniewska, and M. Kaczmarczyk, *Appl. Phys. Lett.* 95, 013104 (2009)
- [45] C. T. Foxon, T. S. Cheng, S.V. Novikov, D. E. Lacklison, L. C. Jenkins, D. Johnston, J. W. Orton, S. E. Hooper, N. Baba-Ali, T. L. Tansley, and V. V. Tret'yakov, *J. Cryst. Growth* 150, 892 (1995)
- [46] 徐榕鎂, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ” 應力鬆弛引發之缺陷效應下的 InAs/InGaAs 量子躍遷機制” (2008)
- [47] D. V. Lang, *J. Appl. Phys.* 45, 1974, pp. 3023-3032.
- [48] J. F. Chen, *J. Appl. Phys.* 102, 043705 (2007)
- [49] J. F. Chen, *J. Appl. Phys.* 105, 063705 (2009)

