

國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文

披覆銻砷化鎵層之砷化銦量子點的載子動力學及能帶排列

Carrier Dynamics and Band Alignment of  
GaAsSb Capped InAs Quantum Dots

研究生：許峰菴

指導教授：張文豪 教授

中華民國一百年七月

披覆銻砷化鎵層之第二型砷化銾量子點的光學特性研究

**Carrier Dynamics and Band Alignment of  
GaAsSb Capped InAs Quantum Dots**

研究生：許峰菴

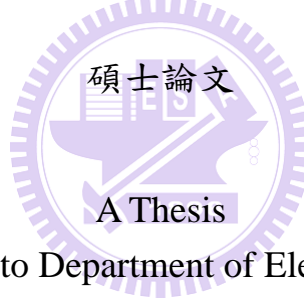
Student : Feng-Chang Hsu

指導教授：張文豪 教授

Advisor : Prof. Wen-Hao Chang

國立交通大學

電子物理系



Submitted to Department of Electrophysics  
College of Science  
National Chiao Tung University  
in partial Fullfillment of the Requirements  
for the Degree of  
Master  
in  
Electrophysics

July 2011

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百年七月

# 披覆銻砷化鎵層之砷化銻量子點的載子動力學及能帶排列

研究生：許峰菴

指導教授：張文豪 教授

國立交通大學電子物理研究所

## 摘要

論文第一部分利用光激螢光光譜研究不同  $\text{GaAs}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  披覆厚度對於  $\text{InAs}$  量子點的發光特性影響。發現披覆層厚度的增加將造成發光能量紅移、載子生命期變長及出現能帶彎曲效應。透過八能帶  $k \cdot p$  理論分析發光紅移及生命期延長的主因是來自於第二型能帶的形成及電洞量子侷限的降低，另外披覆層厚度增加造成量子點尺寸的擴大也是紅移因素之一。論文第二部分利用變功率光激螢光光譜以及時間解析光譜研究不同注入載子濃度對於 type-II  $\text{InAs}/\text{GaAs}_{0.84}\text{Sb}_{0.16}$  QDs 發光特性的影響。不同的載子注入濃度將造成不同的庫倫作用力強度，因而改變了量子點的躍遷型態。透過改變注入濃度，我們可以調變量子點的發光能量及輻射復合生命期。論文第三部分為研究 PIN 結構下 type-II QDs 之光電特性。我們藉由光電流實驗來研究 type-II QDs 的吸收，並透過變溫實驗觀察載子脫逃的行為。另外我們也討論了外加電場對於 type-II QDs 發光特性的影響。

# Carrier Dynamics and Band Alignment of GaAsSb Capping InAs Quantum Dots

Student : Feng-Chang Hsu

Advisor : Dr. Wen-Hao Chang

Department of Electrophysics  
National Chiao Tung University

## Abstract

The optical properties of GaAsSb-capped InAs quantum dots (QDs) with different capping layer thickness are investigated. Both the emission energy and the recombination lifetime of the QDs are found to be correlated with the capping layer thickness. Theoretical calculations based on eight-band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  model indicates that the quantum confinement of hole states and their wave function distributions are sensitive to the GaAsSb capping layer thickness. The Sb induced structural changes in QDs are also found to play a significant role in the optical properties of GaAsSb-capped QDs. We show that controlling the GaAsSb capping layer thickness is a feasible way to tailor the InAs QDs for long-wavelength applications. Then, we study the recombination dynamics in the InAs/GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub> QDs. In this type-II QDs system, the radiative transitions are strong affected by the band-bending effect induced by the carriers accumulated at the type-II InAs/GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub> interface. After the laser pulse excitation, the QD emission exhibits strong transition rate variations and large energy redshifts. Here we use the energy dependent TRPL to map the whole QD emission spectrum. After analysis the time evolution of peak energy and peak intensity, we can get the time evolution of the intensity and the energy shift. We report up to 2.1 times transition rate enhancement in the annealed type-II InAs/GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub> QDs could be achieved by high injection power. We find that the transition energy shows a linear dependence with the  $2/3^{\text{th}}$  power of the total emission intensity, indicating the QD emission obeys the type-II transition. Consequently, we can control the transition type in the InAs/GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub> QDs by the different injection levels. Finally, we study the electro-optical characteristics of type-II QDs embedded in PIN structure. We use photocurrent experiment to study the absorption spectra and the carrier escape processes in the type-II QDs. Then we study the effect of applied electric field on the emission properties of type-II QDs.

## 誌謝

轉眼之間兩年過去了，從當初懵懵懂懂的碩一生，到如今完成碩士論文即將畢業的我，感覺好像還是昨天的事。回想起這兩年來，真的很感謝我的指導教授張文豪老師，不論在研究方面及做人處事方面，總能時時提醒我沒考慮到的事，並給予建議。更重要的是，老師對於我的缺點，總是不吝嗇地告訴我，使我更能了解自己的缺點，並加以改進，真的很謝謝老師的指導與幫助。還有口試委員徐子民教授、綦振瀛教授、周武清教授及林麗瓊教授，感謝你們在口試時所給予的建議，使論文更加完備。

接著，非常感謝瑋廷學長，研究方面總能提出特別的見解，待人處事的圓融，處理問題的細心，模擬方面的幫忙，都對我有很大的幫助，難以文字說明對學長的感謝；感謝昱安學長、仗哲學長、林宣學姊、家賢學長在我生活及研究上面的提點及幫忙，沒有你們的幫助，我的碩士班生活，可能沒這麼精采及順利。

再來要感謝，同屆的詠盛、國榮、健家、珽愷、勃亨，那段一起歡笑、努力、痛苦和互相鼓勵的日子，使我在碩班生活更加充實有趣，將是我這兩年來最珍貴的回憶。也要謝謝學弟妹們，詩涵、若蓉、翊瑩、韋辰、柏維，在日常生活給我許多的幫助。祝福你們研究順心，明年順利畢業。

最後要感謝我的家人們，謝謝你們一路上默默的支持，陪伴著我，使我快樂的成長，讓我無後顧之憂地做好研究。

特別是我的女朋友，感謝妳的溫柔與體諒，讓深夜裡的實驗室，充滿暖  
暖的感動。



# 目錄

摘要.....	i
Abstract .....	ii
誌謝.....	iii
目錄.....	v
圖目錄.....	viii
第一章 簡介.....	1
第二章 實驗架構.....	2
2.1 樣品成長.....	2
2.2 光激螢光光譜理論與架設.....	5
2.3 時間解析光譜理論與架設.....	7
第三章 結果與討論.....	9
3.1 改變不同 GaAsSb 披覆層厚度的 InAs 量子點.....	10
3.1.1 光激螢光光譜.....	10
3.1.2 改變功率之光激螢光光譜.....	13
3.1.3 時間解析光譜.....	15
3.1.4 量子點模擬計算結果.....	17
3.2 注入載子改變能階躍遷型態.....	21
3.2.1 光激螢光光譜.....	21
3.2.2 改變功率之光激螢光光譜.....	23

3.2.3 不同能量的時間解析光譜.....	27
3.3 PIN 結構下第二型態排列之特性 .....	35
3.3.1 光激電流 .....	35
3.3.2 改變不同溫度下的光激電流.....	36
3.3.3 改變不同偏壓下的光激螢光光譜.....	38
第四章 結論.....	39
參考文獻.....	40





## 圖目錄

圖 2.1-1：樣品結構 4558、4549、4551 及 4547 .....	3
圖 2.1-2：樣品結構 3998、3997 及 3997-9a .....	3
圖 2.1-3：樣品結構 4583 及 4581 .....	4
圖 2.2-1：直接能隙的光激螢光示意圖 .....	5
圖 2.2-2：光激螢光光譜系統架構 .....	6
圖 2.2-3：TCSPC 示意圖 .....	7
圖 2.2-4：時間解析光譜系統架構 .....	8
圖 3.1-1：不同披覆層厚度樣品之(a)光激螢光光譜(b)發光半高寬 c)發光強度 .....	10
圖 3.1-2：CL 厚度(a) 0 nm，(b) 2.5 nm，(c) 5 nm 以及(d) 10 nm 樣品之 TEM 影像(e) 各樣品之量子點實際尺寸 .....	12
圖 3.1-3：CL 厚度(a) 0 nm、(b) 2.5 nm、(c) 5 nm、(d)10 nm 樣品之變功率光激螢光光譜 .....	13
圖 3.1-4：各樣品基態峰值對激發功率 $1/3$ 次方作圖 .....	14
圖 3.1-5：隨不同披覆厚度之(a)發光峰值的時間解析光譜(b)輻射複合生命期 .....	16
圖 3.1-6：不同披覆厚度(a)電子波函數分布(b)電洞波函數分布(c)波函數重疊率(d)發光能量 .....	19
圖 3.1-7：不同披覆厚度(a)導電帶位能分布(b)價電帶位能分布 .....	19

圖 3.2-1：各樣品的光激螢光光譜 .....	21
圖 3.2-2：能帶結構示意圖(a)type-I 量子點 (b)as-grown type-II 量子點 (c)annealed type-II 量子點 .....	22
圖 3.2-3：(a) as-grown type-I 量子點 (b) as-grown type-II 量子點 (c) annealed type-II 量子點樣品之改變功率光激螢光光譜(d)各樣品基態峰值對激發功率 1/3 次方作圖 .....	23
圖 3.2-4：有無能帶彎曲效應的能帶結構示意圖 .....	24
圖 3.2-5：三角位能井中能階及波函數分佈 .....	25
圖 3.2-6：anealed type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(b、d)不同能量的時間解析 光譜(c)1 mW 下不同時間點的光激螢光光譜 .....	27
圖 3.2-7：載子數隨時間複合對能帶結構的影響 .....	29
圖 3.2-8：as-grown type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(b、d)不同能量的時間解 析光譜(c)1 mW 下不同時間點的光激螢光光譜 .....	30
圖 3.2-9：(a、b)1 mW 下發光強度的 2/3 次方對發光峰值作圖(c、d)1 uW 下 發光強度的 2/3 次方對發光峰值作圖 .....	32
圖 3.2-10：溫度 100 K 時 as-grown type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(c、d)不 同能量的時間解析光譜(e)各時間點的螢光光譜 .....	33
圖 3.2-11：發光峰值隨發光強度的 2/3 次方的變化 .....	34
圖 3.3-1：光激電流及光激螢光光譜 .....	35

圖 3.3-2：不同溫度下 type-I 量子點的光激電流.....36

圖 3.3-3：不同溫度下 type-II 量子點的光激電流 .....37

圖 3.3-4：不同偏壓下的光激螢光光譜(a)type-I(b)type-II.....38



## 第一章 簡介

近年來披覆銻砷化鎵層(GaAsSb)的 InAs 量子點開始受到關注，由於此種量子點發光波長能延伸甚至是超越  $1.55 \mu\text{m}$ ，因此在光纖通訊領域具有高度發展潛力[1,2]。對於 InAs 量子點披覆 GaAsSb 層造成多種特性上的影響已被證實：1.披覆層 GaAsSb 最顯著的影響是當 Sb 含量  $x > 14\%$  後，InAs 與  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  介面將形成第二型能帶排列 (type-II band alignment)[3,4]。2.類似於傳統披覆 InAsSb 應變減低層(strain-reducing layer)的量子點[5-8]，披覆 GaAsSb 也同樣扮演著應變釋放的角色而造成發光波長的紅移。3.由於 Sb 原子的表面效應抑制了 InAs 量子點在長晶過程中的分解，披覆 GaAsSb 層將更能維持量子點的高度及形狀[9,10]。

對於 InAs/GaAsSb 量子點系統而言，電子的波函數保持在量子點中，但電洞波函數則依據 GaAsSb 披覆層而有不同分佈。透過披覆層能有效改變能帶排列、材料應變，以控制量子點發光能量、波函數重疊率。這使 InAs/GaAsSb 量子點非常有利於長波長光纖通訊、記憶元件[11]及太陽能電池[12]的應用。之前的研究指出，透過改變披覆層的 Sb 含量[13,14]、後處理的熱退火過程[15]將可有效調變 InAs/GaAsSb 量子點的發光特性。本論文中我們更進一步利用改變披覆層厚度、注入載子濃度以及外加電場的方式控制量子點的發光特性及復合動力學。

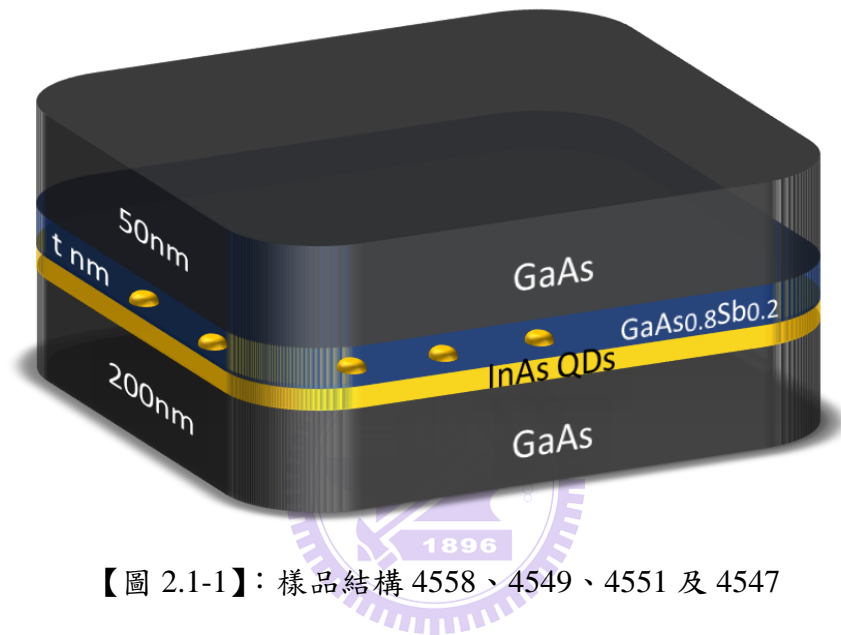
## 第二章 實驗架構

### 2.1 樣品成長

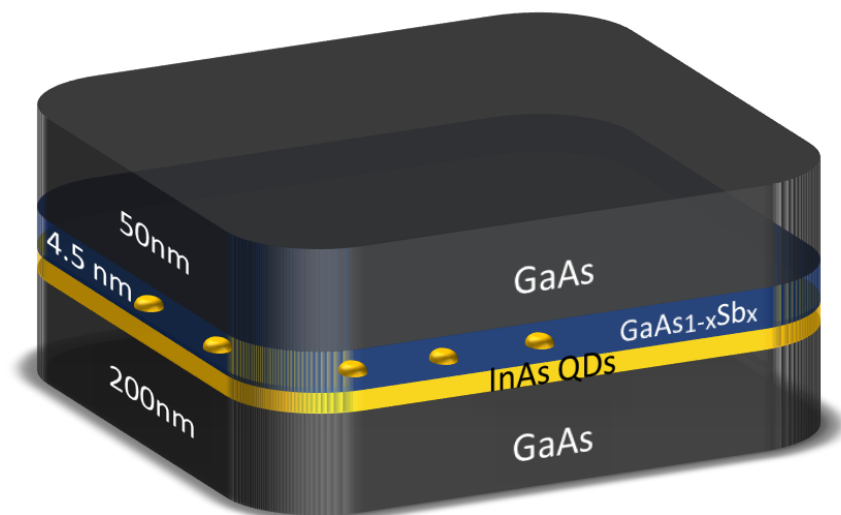
本論文所研究的樣品為披覆 GaAsSb 層的 InAs 量子點結構，所有樣品皆是以固態源分子束磊晶(Solid-Source Molecular Beam Epitaxy, SSMBE)方式成長，由中央大學電機工程學系蔡振瀛教授實驗室提供。首先在 GaAs 基板上成長厚度為 200 nm 的 GaAs 緩衝層，並在溫度 500 °C 情況下成長 InAs 量子點，大約成長 2.7 個 InAs 單原子層(monolayer, ML)，隨後成長 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 披覆層，最後再成長 50 nm 的 GaAs。利用原子力顯微鏡(Atomic force microscopy, AFM)量測表面量子點的形貌後，可得到量子點形貌接近於透鏡型(lens shaped)，平均高度約為 8.0 ± 0.5 nm，直徑約為 20 nm，而量子點密度則為 3 × 10<sup>10</sup> cm<sup>-2</sup>。

在此分為三部分不同樣品：第一部分為 InAs 量子點披覆不同厚度的 GaAs<sub>0.8</sub>Sb<sub>0.2</sub> 樣品，其樣品結構如【圖 2.1-1】所示。在此共成長了四種不同披覆層厚度的樣品，分別為  $t = 0$  nm、2.5 nm、5 nm 及 10 nm，編號分別為 4558、4549、4551 及 4547。第二部分為 InAs 量子點改變不同披覆層 Sb 含量的樣品，其樣品結構如【圖 2.1-2】所示。InAs 量子點上披覆了 4.5 nm 厚的 GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 披覆層，在此共成長了兩種不同 Sb 含量的樣品分別為  $x = 0\%$  及 16%，編號分別為 3998、3997。對於  $x = 16\%$  的樣品，我們做了 800 °C 的熱退火處理以消除樣品內的電洞侷限態，其編號為 3997-9a。第三部分樣

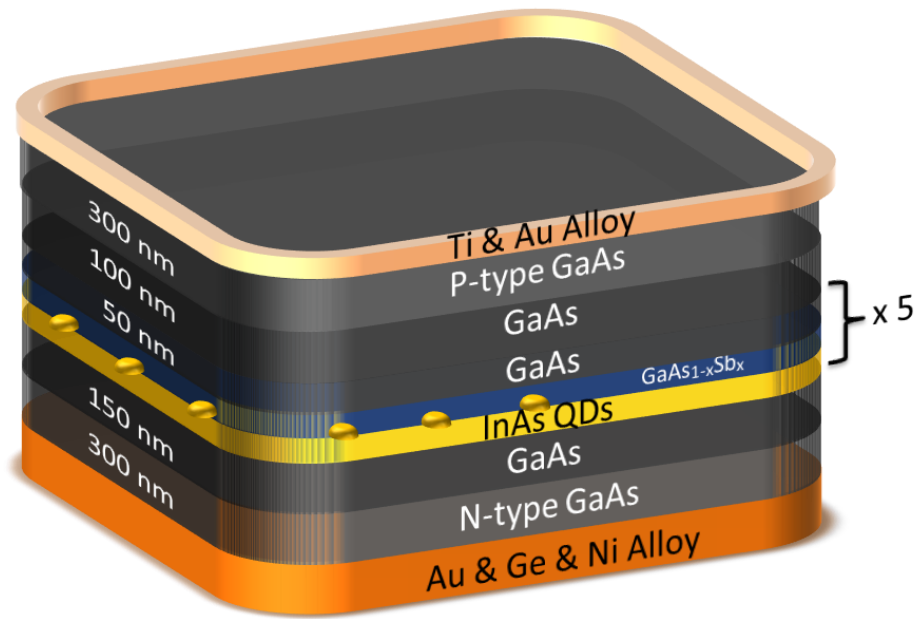
品為 PIN 結構下改變不同披覆層 Sb 含量的樣品，其樣品結構如【圖 2.1-3】所示。InAs 量子點上披覆了 5 nm 厚的  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  披覆層和 50 nm 厚的 GaAs，固定此成長條件重複成長五層，在此共成長了兩種不同 Sb 含量的樣品分別為  $x = 0\%$  及  $20\%$ ，編號分別為 4583、4581。



【圖 2.1-1】：樣品結構 4558、4549、4551 及 4547



【圖 2.1-2】：樣品結構 3998、3997 及 3997-9a



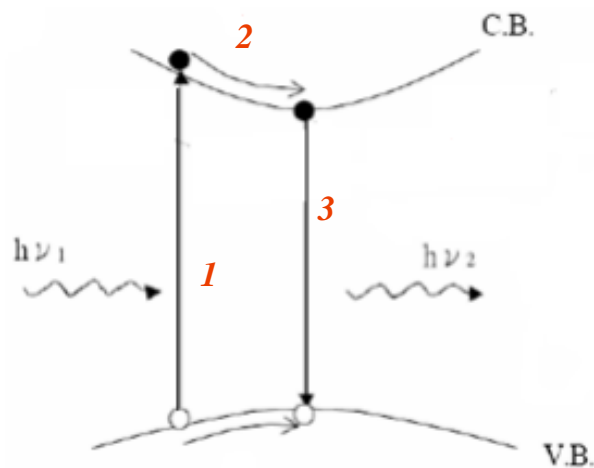
【圖 2.1-3】：樣品結構 4583 及 4581



## 2.2 光激螢光光譜理論及架設(Photoluminescence, PL)

### A. 光激螢光光譜理論

光激螢光光譜(Photoluminescence, PL)顧名思義就是利用激發光源照射樣品產生螢光的一種非破壞性半導體光性量測方法。對於半導體材料而言，在吸收一道能量大於材料能隙的光子後，電子將吸收激發光子的能量而從價帶躍遷至導帶並且在價帶產生電洞，形成電子電洞對(electron-hole pair)。高能量的電子電洞經由與晶格的碰撞釋出能量，導致電子電洞分別掉至導帶頂部及價帶底部，接著電子電洞進行復合發光，產生出螢光光譜。如【圖 2.2-1】從螢光光譜的峰值位置、發光強度與譜線的半高全寬，我們可大致推估其能隙大小與其長晶品質的好壞。



**1. generate electron-hole pair**

**2. phonon scattering**

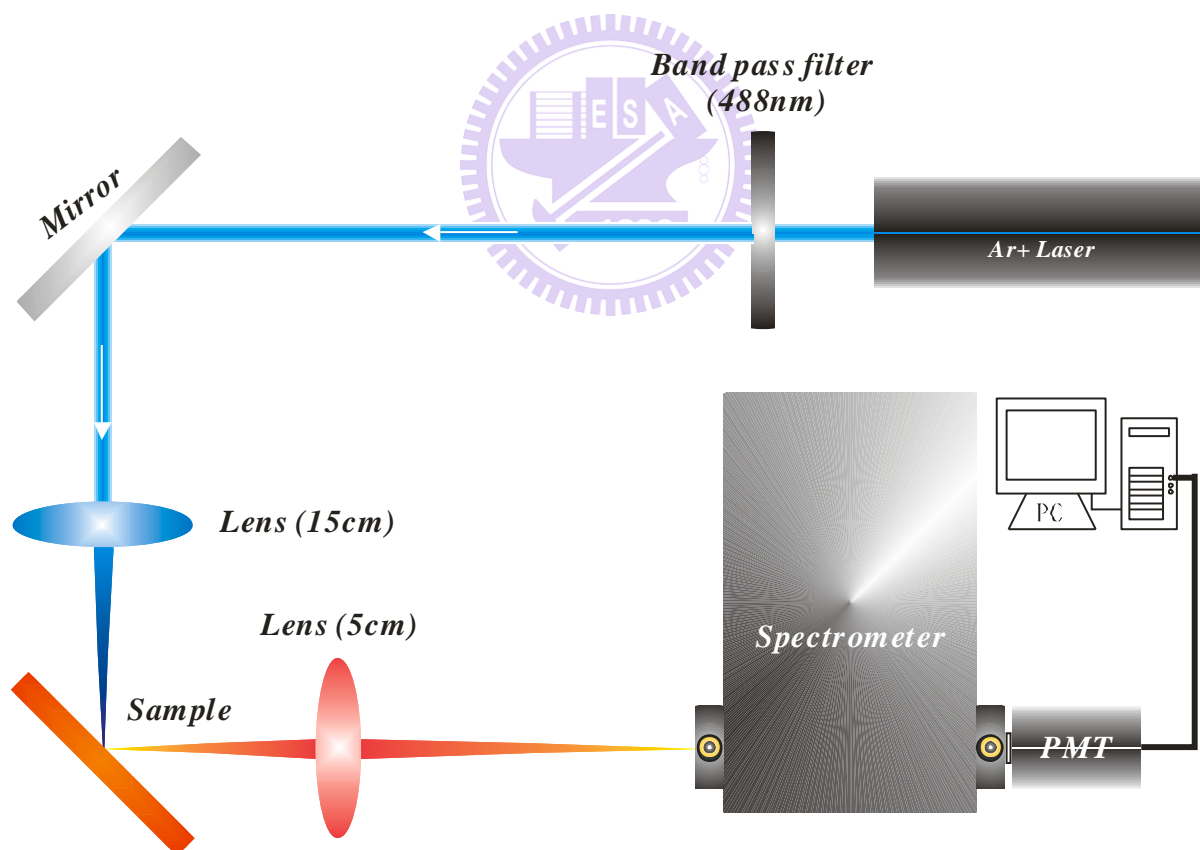
**3. radiative recombination**

【圖 2.2-1】：直接能隙的光激螢光示意圖



## B. 光激螢光光譜架設

如【圖 2.2-2】所示。首先使用  $\text{Ar}^+$  laser 當作激發光源，雷射光經過帶通濾波器(band pass filter)後再由聚焦透鏡聚焦至樣品上，聚焦至樣品上的光點直徑大約為  $44.7 \mu\text{m}$ 。接著利用蒐光透鏡蒐集螢光並聚焦至光譜儀內，經由光譜儀分光後利用偵測器偵測訊號，可得到樣品在各波長的發光強度，即為光激螢光光譜。光激螢光光譜的解析度與光柵條數、光譜儀長度以及狹縫寬度有關。在考慮上述三點的影響後，可得知每釐米狹縫寬度所對應的光譜解析度為  $3.2 \text{ nm}$ 。



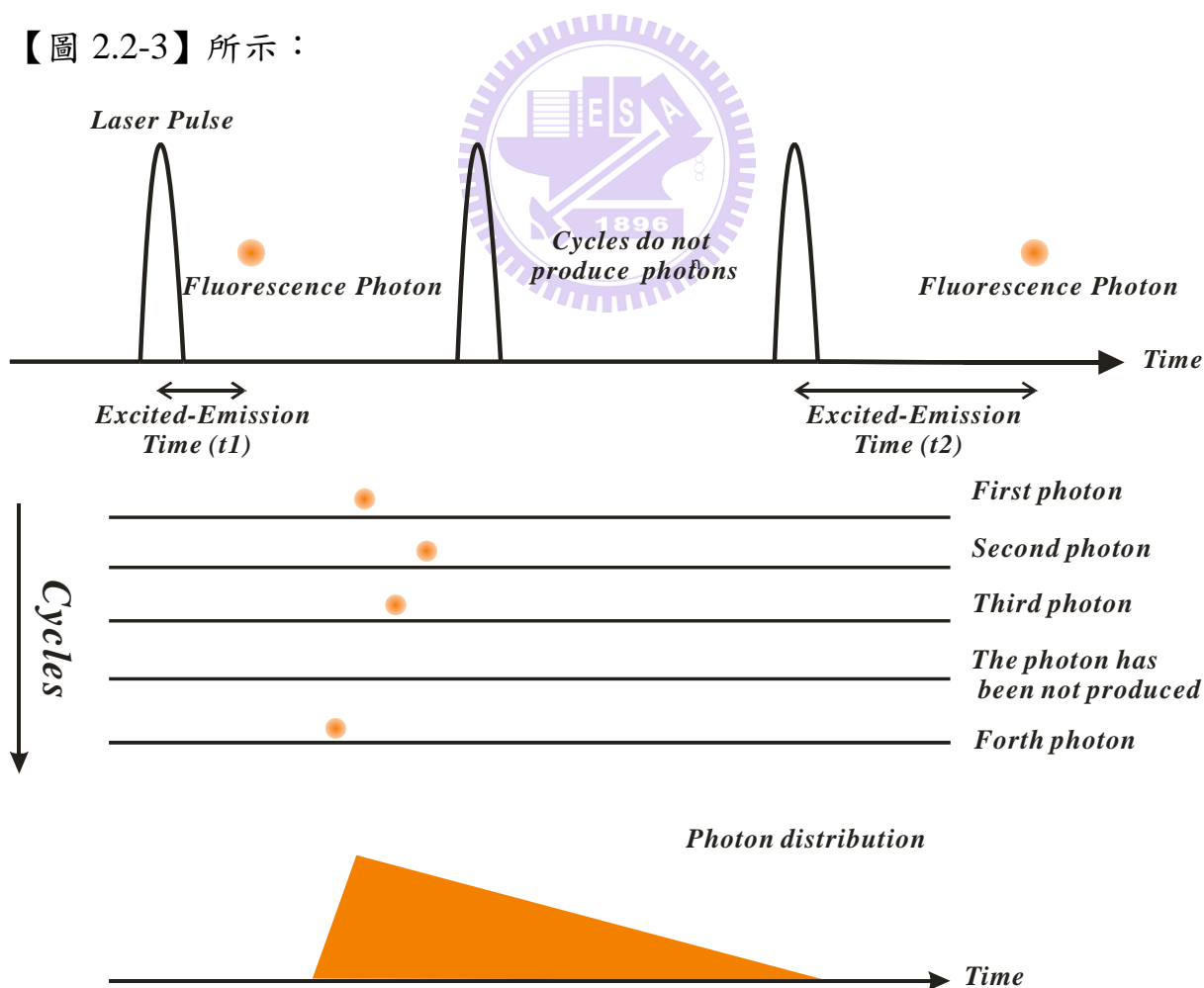
【圖 2.2-2】：光激螢光光譜系統架構

## 2.3 時間解析光激螢光光譜(Time-Resolved Photoluminescence, TRPL)

### A. 時間解析光激螢光光譜理論

時間解析光激螢光光譜(Time-Resolved Photoluminescence, TRPL)基本上是紀錄特定波長的光子，透過外加脈衝雷射來記錄單個螢光光子出現時間與激發脈衝光到達的延遲時間，並透過多次脈衝可得到螢光強度對時間的分布圖。因此我們利用時間相關單光子計數系統(Time-correlated single photo counting, TCSPC)把不同周期內的激發光子相對於激發光源的時間間隔記錄下來，透過長時間的累積統計下來重建螢光鬆弛時間(relaxation)。如

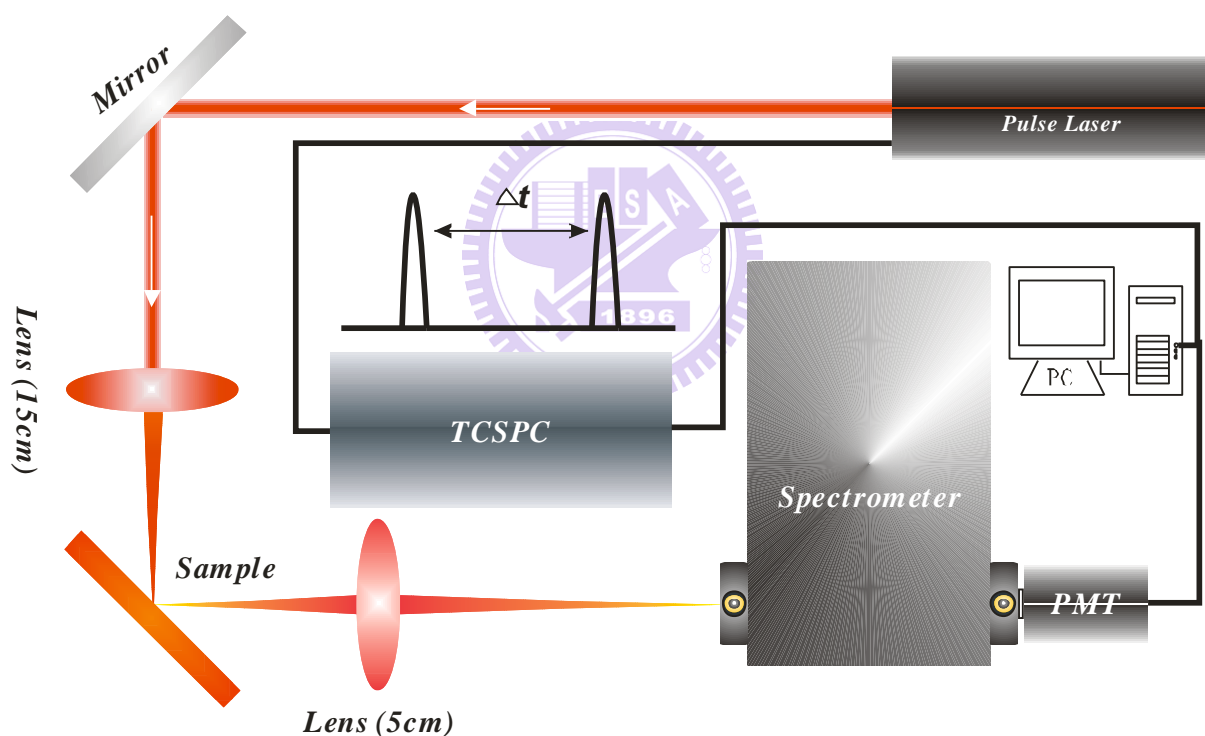
【圖 2.2-3】所示：



【圖 2.2-3】：TCSPC 示意圖

## B. 時間解析光激螢光光譜架設

如【圖 2.2-4】所示。首先使用脈衝雷射當作激發光源，雷射光經過聚焦透鏡聚焦至樣品上，聚焦至樣品上的光點直徑大約為  $100\ \mu\text{m}$ 。接著利用寬光透鏡蒐光並聚焦至光譜儀內，經由光譜儀分光選定特定波長並利用光電倍增管偵測訊號後，以 TCSPC 模組記錄光子抵達時間，可得到樣品螢光隨時間的強度衰減曲線。



【圖 2.2-4】：時間解析光譜系統架構

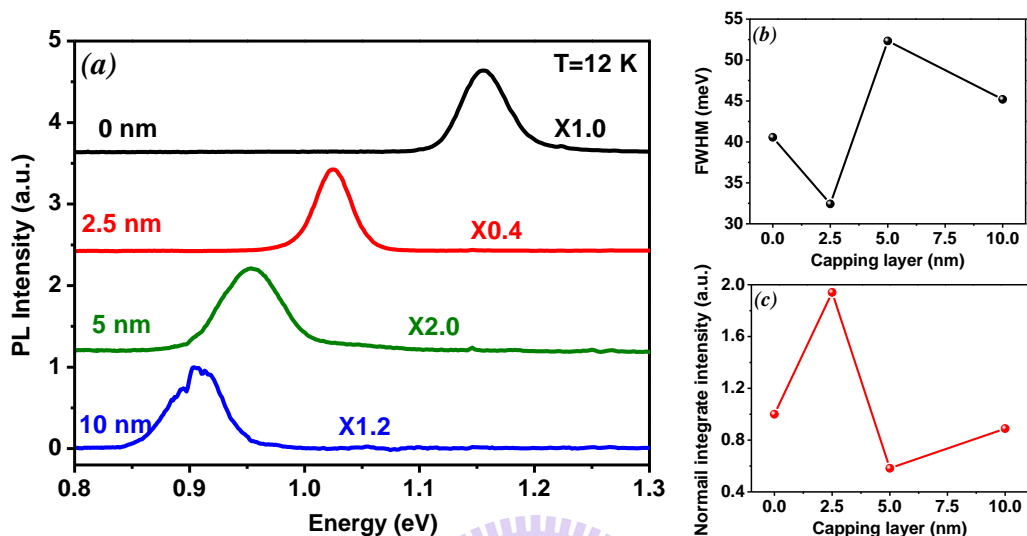
### 第三章 結果與討論

本章我們分成三部分討論。第一部分中我們探討了不同披覆層厚度對於 InAs/GaAsSb 量子點系統的影響。我們利用 TEM 及 PL 來釐清結構與光學特性隨披覆層厚度的變化，並藉由模擬了解應變與量子侷限兩者的效應。第二部分中我們探討了 type-II InAs/GaAs<sub>0.84</sub>Sb<sub>0.16</sub> 量子點系統在不同載子注入程度下的躍遷行為變化。透過變功率及時間解析光譜我們可清楚判斷躍遷形態與載子注入程度的關係。第三部分我們探討了 InAs/GaAsSb 量子點系統中的載子動力學。藉由改變溫度之光電流實驗，我們研究了此系統中的吸收以及載子脫逃過程。



### 3.1 改變不同 GaAsSb 披覆層厚度的 InAs 量子點

#### 3.1.1 光激螢光光譜

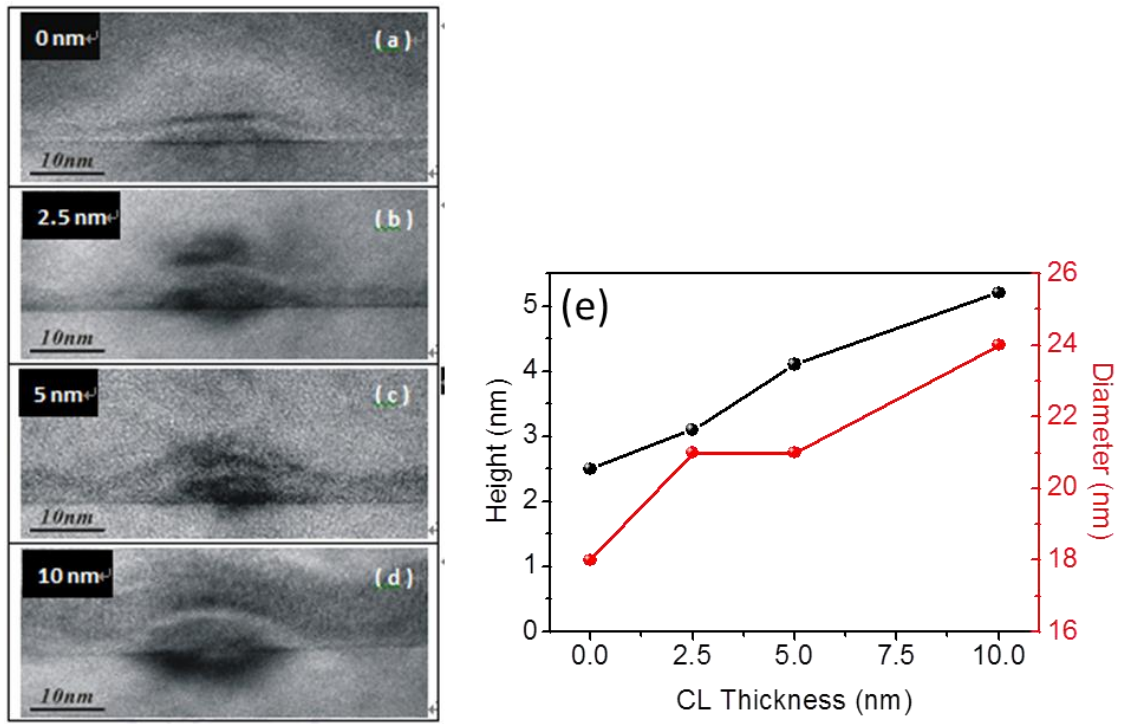


【圖 3.1-1】：不同披覆層厚度樣品之(a)光激螢光光譜(b)發光半高寬(c)發光強度

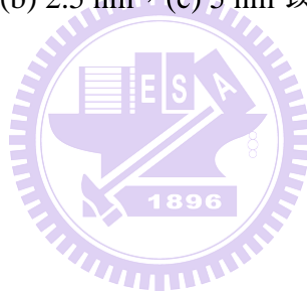
【圖 3.1-1(a)】為低溫( $T=12\text{ K}$ )低功率( $P_{ex}=10\text{ }\mu\text{W}$ )激發條件下的光激螢光光譜。由圖可以觀察到隨著 GaAsSb 披覆層(capping layer, CL)厚度的增加，PL 發光峰值有明顯紅移的現象。而針對各譜線分析後所得的發光峰值、半高寬(FWHM)、以及強度則分別示於【圖 3.1-1(b)-(c)】。在 InAs 量子點與  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  CL 的介面上，當  $x\geq 0.14$  之後，導帶的最小值將發生在 InAs 量子點中，而價帶的最大值則位於  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  CL 中，使得電子與電洞分別被局限於 InAs 量子點和  $\text{GaAs}_{1-x}\text{Sb}_x$  CL 中而形成 type-II QD [3,4,10]。因此對於 InAs/ $\text{GaAs}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  量子點而言，PL 發光隨 CL 厚度增加而紅移的現象可能是綜合了 type-II 量子點的形成[3,4,10]、電洞量子侷限

效應的減少、或是量子點應力的釋放所致。除此之外，最近的研究也指出，由於 Sb 原子在長晶過程中壓抑了量子點的分解，披覆 GaAsSb 層之量子點高度將明顯較披覆 GaAs 之量子點來的高[9,10]。此現象亦可能造成 PL 發光的紅移。

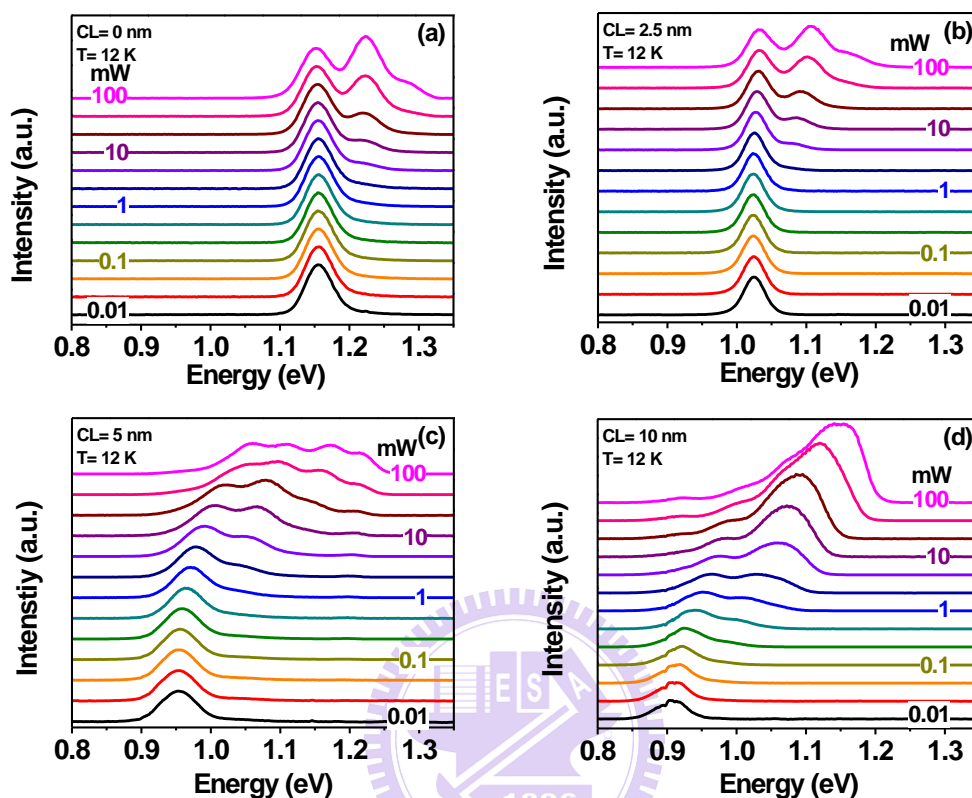
在此為了釐清量子點尺寸隨著 CL 厚度增加的改變，我們利用穿透式電子顯微鏡(transmission electron microscopy, TEM)來觀察量子點形貌的改變。【圖 3.1-2(a)-(d)】所示為各樣品沿著 110 方向橫截的 TEM 影像。對於披覆 GaAs 的樣品，InAs 量子點呈現平坦的形狀，我們得到量子點高度約為 2.5 nm 而直徑約為 18 nm。而在披覆 GaAsSb 後，量子點大小則隨著 CL 厚度增加漸漸變大。對於 CL 厚度  $t = 2.5, 5$  以及 10 nm 樣品，我們得到高度(直徑)分別為 3.1 nm (21 nm)、4.1 nm (21 nm)、5.2 nm (24 nm)。在此由於強烈的應變對比增加了精確分析量子點尺寸的困難，但我們仍可以確認量子點尺寸有隨 CL 厚度上升而增大的現象。因此量子點增大的現象也需考慮進 PL 發光的紅移成因之一。



【圖 3.1-2】：CL 厚度(a) 0 nm，(b) 2.5 nm，(c) 5 nm 以及(d) 10 nm 樣品之 TEM 影像(e) 各樣品之量子點實際尺寸



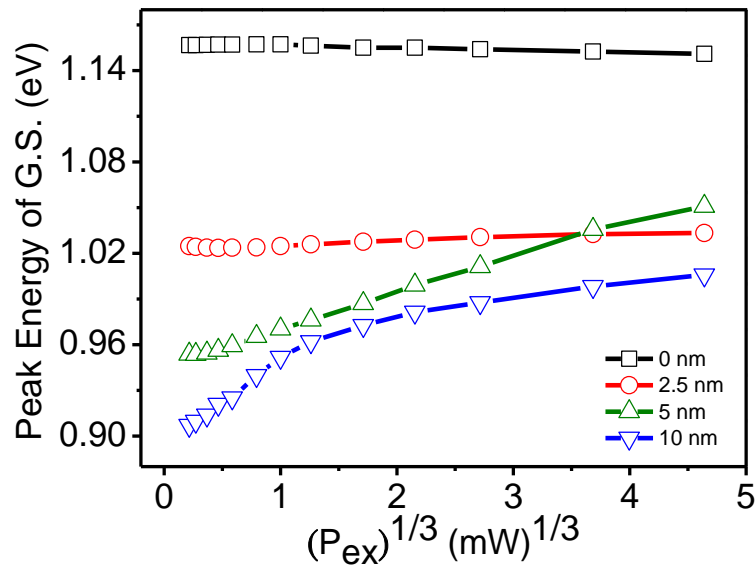
### 3.1.2 改變功率之光激螢光光譜



【圖 3.1-3】： CL 厚度(a) 0 nm、(b) 2.5 nm、(c) 5 nm、(d)10 nm 樣品之變功率光激螢光光譜

【圖 3.1-3(a)-(d)】為 GaAsSb CL 厚度 0 nm、2.5 nm、5 nm 及 10 nm 樣品在不同雷射功率激發下之螢光光譜，圖形由下而上代表雷射激發功率的上升。在光譜中可以觀察到高斯分布的量子點基態(ground state, G.S.)發光；隨著激發功率的上升，激發態(excited state, E.S.)也出現在光譜中。隨著雷射激發功率的提升，可以觀察全部樣品都有激發態螢光出現，此現象證明了載子受限於零維的態密度中(zero-dimension density of state)，因填態效應(state-filling effect)而在高激發功率時可觀察到激發態螢光[16]。





【圖 3.1-4】：各樣品基態峰值對激發功率 1/3 次方作圖

當激發功率的提升可以觀察到 CL 厚度 0 nm 及 2.5 nm 發光峰值仍然保持不動，但 5 nm 及 10 nm 發光峰值卻有很大的藍移現象。文獻指出此藍移現象是由於能帶彎曲效應(band-bending effect)所致[4]。在典型的第二型能帶結構中，電子與電洞在空間上的分離引起在 type-II 介面中的電場。當激發功率上升後，更多的載子注入將造成更強的電場，使得電子電洞的能態被提升到更高能量。藉由理論推導，我們可知藍移能量將正比於激發功率的 1/3 次方。【圖 3.1-4】為各樣品基態峰值對激發功率 1/3 次方作圖。在 5 nm 及 10 nm 的樣品中可以看到很大的藍移行為，此現象確認了能帶彎曲效應的存在及其第二型能帶排列。而在 2.5 nm 的樣品中並沒有觀察到明顯的藍移現象。因此降低 CL 厚度將減少 type-II 躍遷的特徵。

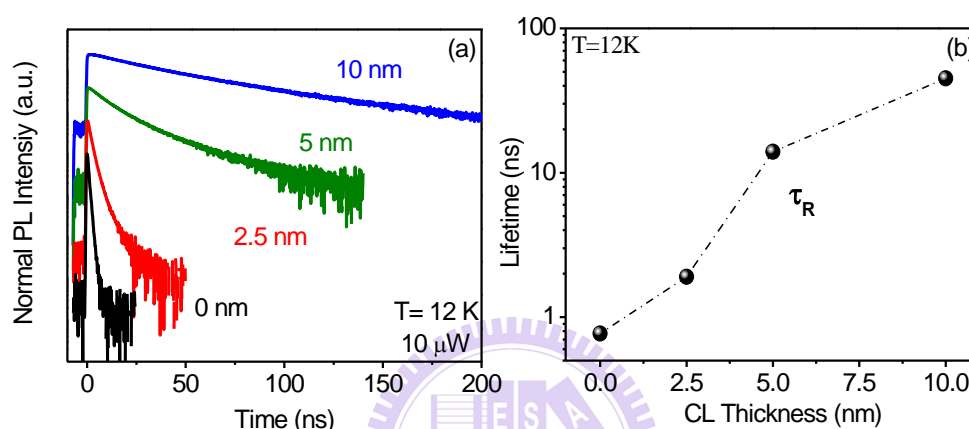
### 3.1.3 時間解析螢光光譜

輻射複合生命期對於 InAs 量子點披覆不同 GaAsSb 披覆層厚度的影響可藉由時間解析螢光光譜來測量。對於 type-II 系統，電子電洞在空間上的分離將導致輻射複合生命期的增加，由文獻可得知激子的輻射複合生命期與波函數重疊率的關係[17,18]：

$$\frac{1}{\tau_{rad}} = AE_{PL} |\langle \psi_e | \psi_h \rangle|^2$$

$|\langle \psi_e | \psi_h \rangle|$  為電子與電洞在空間中的波函數重疊率， $E_{PL}$  為量子點的發光能量， $A$  為材料相關的常數。由方程式可以了解到激子的輻射複合生命期反比於電子電洞波函數重疊率的平方並與量子點的發光能量成正比，只要波函數重疊率有些微的變化，都會以平方反比的關係反應在激子的輻射複合生命期。【圖 3.1-5(a)】為低溫( $T=12\text{ K}$ )低功率( $P_{ex}=10\ \mu\text{W}$ )下各樣品的時間解析光譜，而【圖 3.1-5(b)】則為各樣品經單指數擬合後所得的螢光衰減時間。對於單純披覆 GaAs 的 InAs 量子點而言，我們得到  $\tau_R=0.77\text{ ns}$ ，此值為典型 InAs 量子點的輻射複合生命期並與文獻上發表的值相當接近[19]。而對於披覆 GaAsSb 的 InAs 量子點而言，厚度  $t=2.5、5$  及  $10\text{ nm}$  樣品經擬合後所得的輻射複合生命期分別為  $1.9、14$  及  $45\text{ ns}$ ，因此可知福射複合生命期會隨著披覆層厚度的增加而延長。若把單純披覆 GaAs 樣品的電子電洞波函數重疊率當作是  $1(|\langle \psi_e | \psi_h \rangle| = 1)$ ，則對於厚度  $t=2.5\text{ nm}$  的樣品而言，電子電洞波函數重疊率仍然有  $58\%$ ，而對於  $5\text{ nm}$  及  $10\text{ nm}$  的樣

品波函數重疊率卻只剩下 21% 及 11%。這意味著當披覆層厚度小於 5 nm 時，電洞波函數的分佈隨披覆層的增加是很敏感的。隨著披覆層 GaAsSb 厚度的增加，電子的波函數始終都被侷限在量子點中，因此輻射複合生命期反映出的其實是電洞波函數穿出量子點外的比例。



【圖 3.1-5】：隨不同披覆厚度之(a)發光峰值的時間解析光譜(b)輻射複合生命期

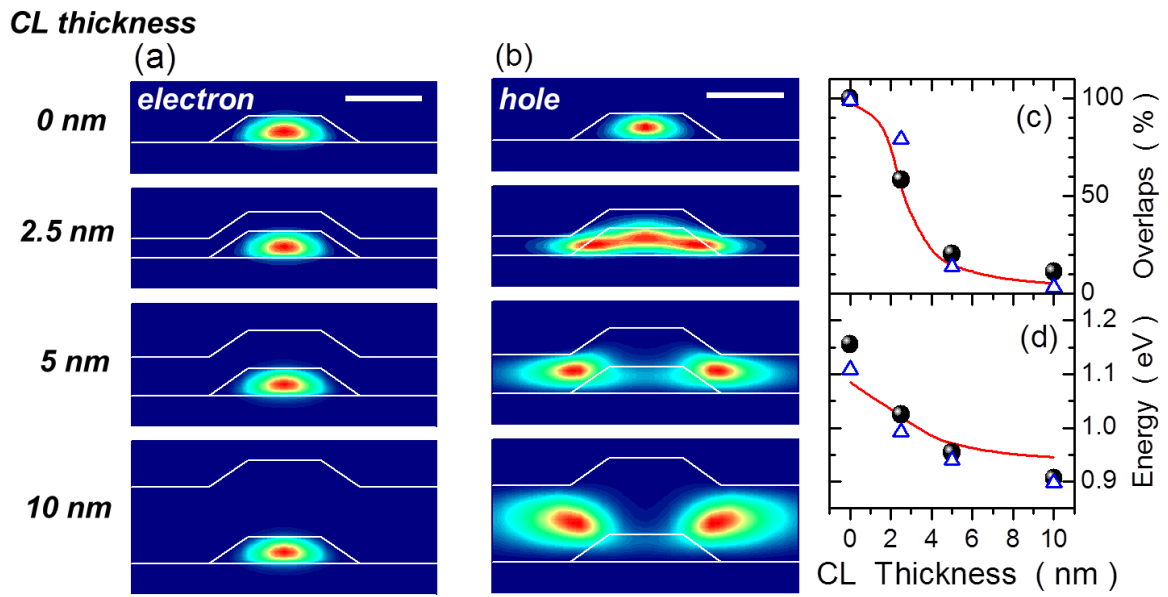
### 3.1.4 量子點模擬計算結果

為了瞭解披覆層厚度對於電子電洞的影響，在此我們利用八能帶  $k \cdot p$  理論進行模擬計算。我們設定 InAs 量子點為晶面{101}面上的截角金字塔型，而  $\text{GaAs}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  CL 則在量子點上維持固定的厚度。計算中的材料參數均採用文獻[20]中的值，而無應變的價電帶能量差(valence band offset, VBO)及變形位能(deformation potential)則分別參照文獻[21]及[22]。計算中也考慮了應變所引起的壓電偏極化(piezoelectric polarization)現象。

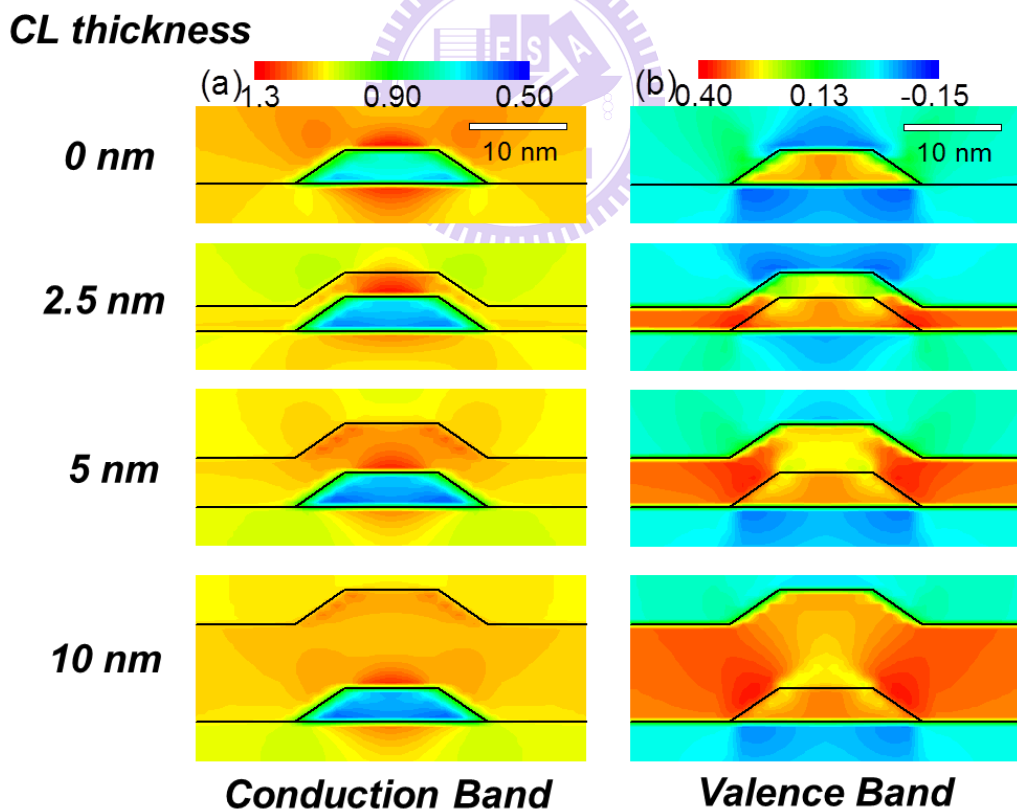
為了釐清披覆層厚度對於電洞的影響以及電子隨量子點尺寸的改變，我們進行了兩部分的計算。首先，我們考慮固定量子點的大小( $h=3.5$  and  $b=14$  nm)而改變披覆層厚度從  $t = 0 \sim 10$  nm。【圖 3.1-6(a)~(b)】所示為不同披覆層厚度在(110)平面上的基態電子電洞波函數分佈圖。對於披覆 GaAs 的量子點而言，電子與電洞均被良好的侷限於量子點中且波函數重疊率高達98%。隨著披覆層厚度的增加，電子的波函數沒有太大的改變，而電洞波函數則會逐漸滲出並進入 GaAsSb 披覆層，此係由於在 GaAsSb 層中較低的電洞位能所致更進一步增加披覆層厚度從 5~10 nm，電洞波函數更往磊晶方向滲出是因為受到應變在 GaAsSb 披覆層分佈的修正所造成的。更進一步觀察受到應變影響下的導電帶與價電帶的分布如【圖 3.1-7】。由圖可知導電帶分布隨披覆層增加並沒有太大的改變，但披覆層增加為 2.5 nm 時價電帶最低點從原來的量子點內變成了量子點側邊並隨著披覆層的增加逐漸遠離量子

點，這是由於能帶排列及應變所造成的。換句話說，隨著披覆層增加電子能階及波函數幾乎沒有改變。【圖 3.1-6(c)】中的實線為波函數重疊率計算的結果，披覆層厚度從 2~5 nm 波函數重疊率有逐漸減小的趨勢，當披覆層厚度大於 5 nm 時披覆層厚度與波函數重疊率之間的影响就越來越弱，與我們觀察到的實驗數據(solid symbols)一致。【圖 3.1-6(d)】為發光能量計算的結果，也觀察出隨披覆層的增加有紅移的趨勢。披覆層 0~10 nm 總紅移量是 140 meV 是小於實驗得到的紅移量(250 meV)。

實際上我們也計算了不同量子點大小與尋找次要紅移因素。披覆厚度不同最主要影響電洞能階的改變，但不能解釋觀察到發光能量全部紅移的原因。因此第二次的理論計算設置，我們更進一步考慮 TEM 的分析隨披覆層厚度的增加導致量子點增大的趨勢[10]。除了量子點的尺寸外，全部的參數設置仍保持相同。【圖 3.1-6】中的三角型標誌(open symbols)為第二次計算的設置，其不論是在波函數重疊率或是發光能量上皆與實驗的值有很好的一致性。這結果暗示著披覆層厚度的增加對量子點大小的修正在 InAs 量子點的光學特性演化上仍然扮演著不可忽略的角色。



【圖 3.1-6】：不同披覆厚度(a)電子波函數分布，(b)電洞波函數分布，(c)波函數重疊率，(d)發光能量。



【圖 3.1-7】：不同披覆厚度(a)導電帶位能分布(b)價電帶位能分布。

在室溫披覆 GaAsSb 披覆層厚度 2.5 nm 時，光激螢光光譜的發光峰

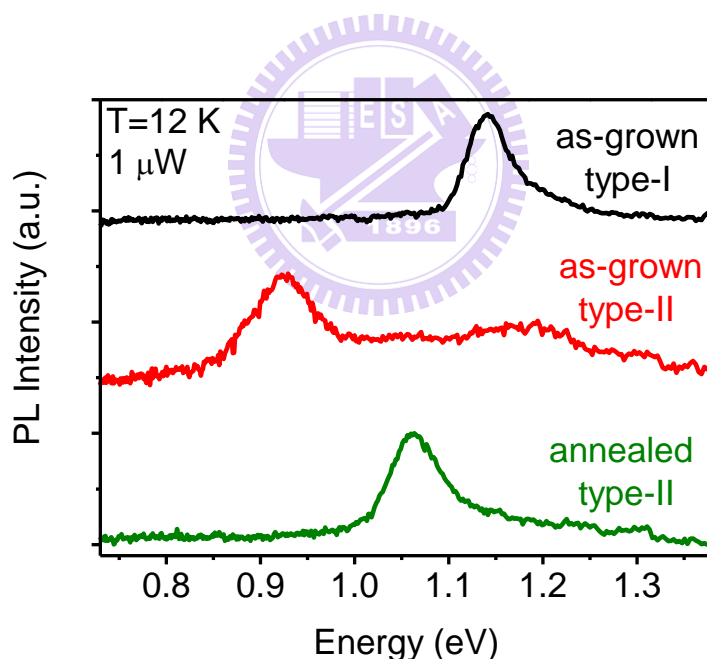
值大約  $1.3 \mu\text{m}$  而對於全光譜的積分強度大約為披覆 GaAs 披覆層的7倍。這對於改善長波長的光學特性是非常吸引人的。雖然增加披覆了 GaAsSb 的量子點高度有助於延伸發光波長[9,10]，但 type-II 量子點的形成在高 Sb 含量反而會抑制發光強度的效率[3,4]。藉由對 GaAsSb 披覆層中的 Sb 含量最佳化的研究可達到平衡[10]。在我們的研究中可藉由控制 GaAsSb 披覆層厚度小於  $2.5 \text{ nm}$  使發光波長延伸且仍保有 type-I 的特性。



## 3.2 注入載子改變能階躍遷型態

### 3.2.1 光激螢光光譜

【圖 3.2-1】為低溫( $T=12\text{ K}$ )及低功率( $1\ \mu\text{W}$ )激發條件下各樣品的光激螢光光譜，分別為 as-grown type-I 量子點、 as-grown type-II 量子點及 annealed type-II 量子點的樣品。由圖可以觀察到披覆  $\text{GaAs}_{0.84}\text{Sb}_{0.16}$  的 InAs 量子點(as-grown type-II)，其 PL 發光峰值相較於披覆 GaAs 的量子點(as-grown type-I)有明顯的紅移現象，此紅移現象來自於第二型能帶結構的形成。



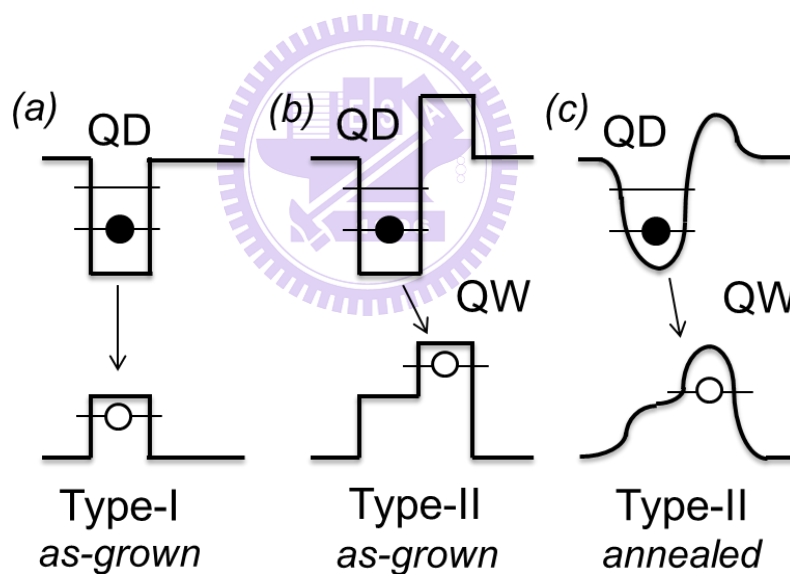
【圖 3.2-1】：各樣品的光激螢光光譜 (12 K)

為了消除 as-grown type-II 量子點中的侷限效應，由文獻[15]中我們得知，當 as-grown type-II 量子點的樣品，採取  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  的熱退火處理，將消除電洞侷限態。由【圖 3.2-1】可看出，經過熱退火處理的 annealed type-II 量



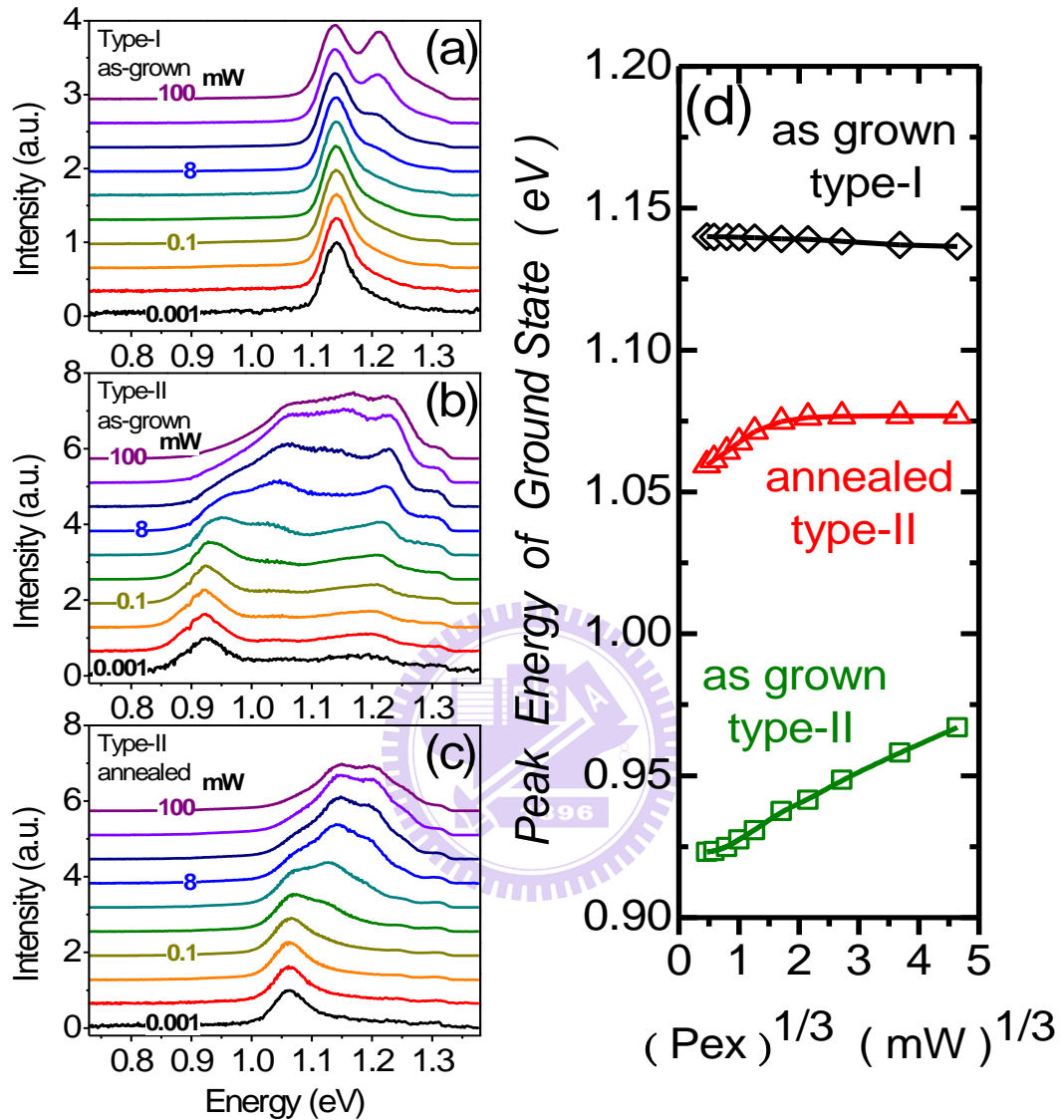
子點樣品，其 PL 的發光峰值相較於 as-grown type-II 的樣品，則呈現藍移現象，此藍移現象來自於侷限材料(InAs)與屏障材料(GaAsSb)之間的合金混和所致 [23,24]。

藉由上述 PL 實驗結果，大致上能了解不同樣品間能帶結構圖示意圖的變化，【圖 3.2-2】為各樣品的能帶結構示意圖。但經過高溫熱退火處理後，我們並不能確定原本的量子點結構是否仍存在，或已經變成類似量子井的結構。因此為了檢察高溫退火後量子點結構是否存在，我們利用變功率的光激螢光光譜實驗來做確認。



【圖 3.2-2】：能帶結構示意圖 (a) type-I 量子點 (b) as-grown type-II 量子點 (c) annealed type-II 量子點

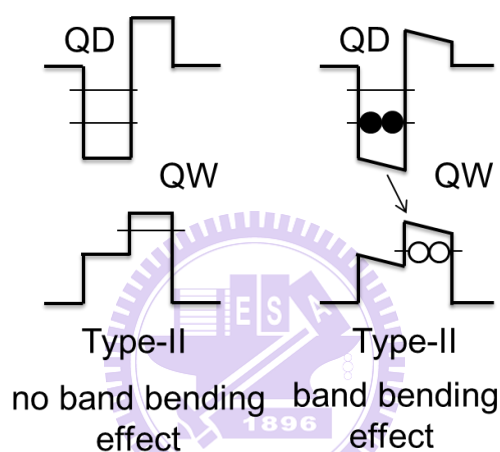
### 3.2.2 改變功率之光激螢光光譜



【圖 3.2-3】：(a) as-grown type-I 量子點 (b) as-grown type-II 量子點 (c) annealed type-II 量子點樣品之改變功率光激螢光光譜(d)各樣品基態峰值對激發功率  $1/3$  次方作圖

【圖 3.2-3(a)-(c)】分別為 as-grown type-I 量子點、 as-grown type-II 量子點及 annealed type-II 量子點在不同雷射激發功率下的螢光光譜；圖形曲線由下而上代表雷射激發功率的上升。光譜中可觀察到三片樣品在高激發

功率下都有激發態的出現，此現象為填態效應(state-filling effect)所造成的，也可確認載子受限於零維的能態密度中(zero-dimension density of state)。隨著激發功率的增加，as-grown type-I 量子點的發光峰值並沒有太大的變化，而 as-grown type-II 量子點的發光峰值卻有很明顯的藍移現象。此為 type-II 能帶排列受到高激發功率下，所產生能帶彎曲效應(band-bending effect)所致，【圖 3.2-4】為有無受到能帶彎曲效應的能帶結構示意圖。



【圖 3.2-4】：有無能帶彎曲效應的能帶結構示意圖

為了進一步了解 type-II 量子點受到高激發功率下，能帶彎曲效應對發光能量的影響，考慮系統處於激發-輻射的平衡狀態，利用能量守恆可得到：

$$\alpha P = B_{es} n_{es}^d p_{es}^w + B_{gs} n_{gs}^d p_{gs}^w,$$

其中 P 為注入的光子流密度速率(injected photon density rate)， $\alpha$  是結構上的整體吸收， $B_{gs}$  和  $B_{es}$  為基態與第一激態的自發性輻射復合係數， $n_{gs}^d$  和  $n_{es}^d$  為 InAs 量子點內基態與第一基發態的電子體密度， $p_{gs}^w$  和  $p_{es}^w$  為 GaAsSb 量子井中基態與第一激發態的電洞體密度。假設 type-II 系統處於電中性(charge

neutrality)的情況下：

$$p_{gs}^w = \frac{V_{dot}}{V_w} (n_{gs}^d + n_{es}^d) ,$$

其中 $V_{dots}$ 是 InAs 量子點的總體積，而 $V_w$ 是 GaAsSb 量子井的總體積。靠

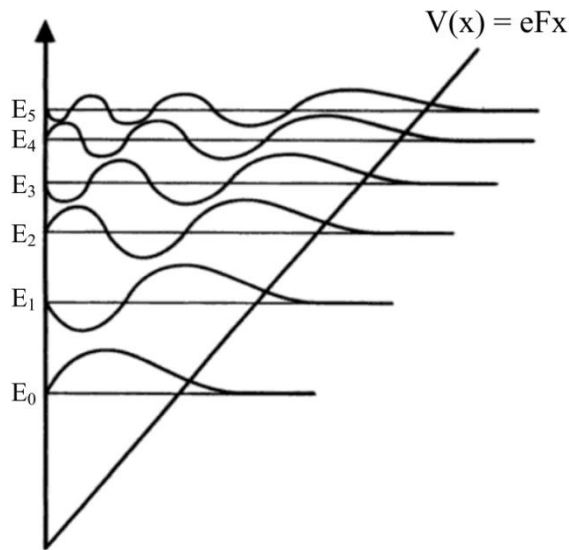
近量子點的頂部的電場為：

$$\varepsilon = \frac{ep_{gs}^w d}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} ,$$

$d$  為 GaAsSb 量子井的厚度。我們簡化問題先不考慮激發態得到：

$$\alpha P = \frac{V_{dot}}{V_w} B_{gs} (n_{gs}^d)^2 ,$$

接著去解如【圖 3.2-5】三角位能井的薛丁格方程式，並帶入 $V(x) = eFx$



【圖 3.2-5】：三角位能井中能階及波函數分佈

$$\frac{d^2\phi}{dx^2} - \frac{2m}{\hbar^2} (eFx - E)\phi(x) = 0 ,$$

此微分方程為 Airy function 的形式，因此解出來的微分方程解為：

$$\phi(x) = Ai\left(\left(\frac{2m}{\hbar^2 e^2 F^2}\right)^{1/3} (eFx - E_n)\right) ,$$

代入邊界條件可求出 $E_n$ 本徵值(Eigenvalue):

$$E_n = \left(\frac{\hbar^2}{2m}\right)^{1/3} \left(\frac{3\pi eF}{2} \left(n + \frac{3}{4}\right)\right)^{2/3},$$

$n = 0$  時為基態，並替換式子可得到基態能量為[10][25]:

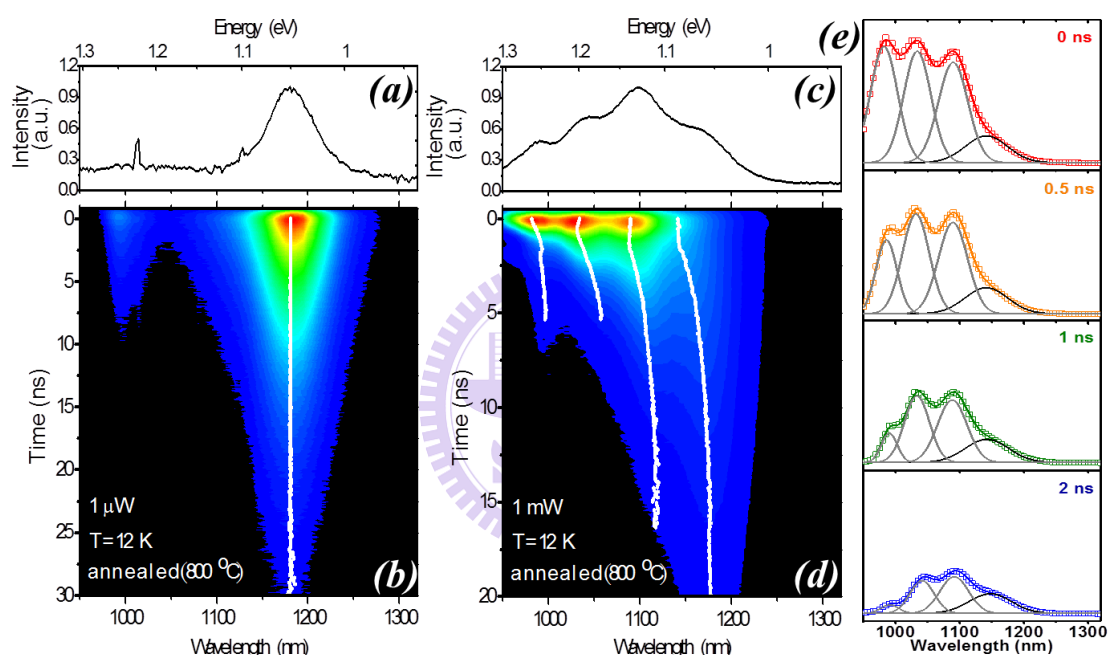
$$E_0 = \left(\frac{\hbar^2}{2m}\right)^{1/3} \left(\frac{9\pi eF}{8}\right)^{2/3} = \left(\alpha \frac{V_w}{V_{dots}} \frac{\hbar^2}{2mB_{gs}}\right)^{1/3} \left(\frac{9\pi e^2 d}{8\epsilon_0 \epsilon_r}\right)^{2/3} P^{1/3}. \quad (3-1)$$

由此上述方程式可了解基態峰值將與激發功率的 1/3 次方成線性關係，此為 type-II 量子點的典型行為。

因此為了確認各樣品是否為第二型能帶排列，我們將基態峰值與激發功率的 1/3 次方作【圖 3.2-3(d)】。觀察 as-grown type-II 量子點可發現，其基態峰值隨激發功率((1  $\mu$ W ~ 100 mW)的 1/3 做線性藍移。而在低功率(1  $\mu$ W ~ 10 mW)激發下的 annealed type-II 量子點，基態峰值隨激發功率 1/3 做線性藍移，當激發功率超過 10 mW 時，基態峰值逐漸飽和在 1.085 eV，並不隨著激發功率的提升而有所改變。其發光峰值的飽和現象，可能來自於載子引發的能帶彎曲效應(band-bending effect)，當累積大量載子使得電子電洞周圍有很強的庫倫作用力，導致原本的 type-II 能帶躍遷轉變為 type-I 的能帶躍遷。

### 3.2.2 不同能量的時間解析光譜

為了釐清在高激發功率下，能帶彎曲效應對 annealed type-II 量子點樣品的發光能量及複合速率的影響，我們對樣品進行不同能量的時間解析光譜量測。【圖 3.2-6(a)、(c)】為 annealed type-II 量子點，使用脈衝雷射激發的光激螢光光譜。



【圖 3.2-6】: annealed type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(b、d)不同能量的時間解析光譜(c)1 mW 下不同時間點的光激螢光光譜

【圖 3.2-6(b)、(d)】為不同能量的時間解析光譜彙整後作成的等高線圖。

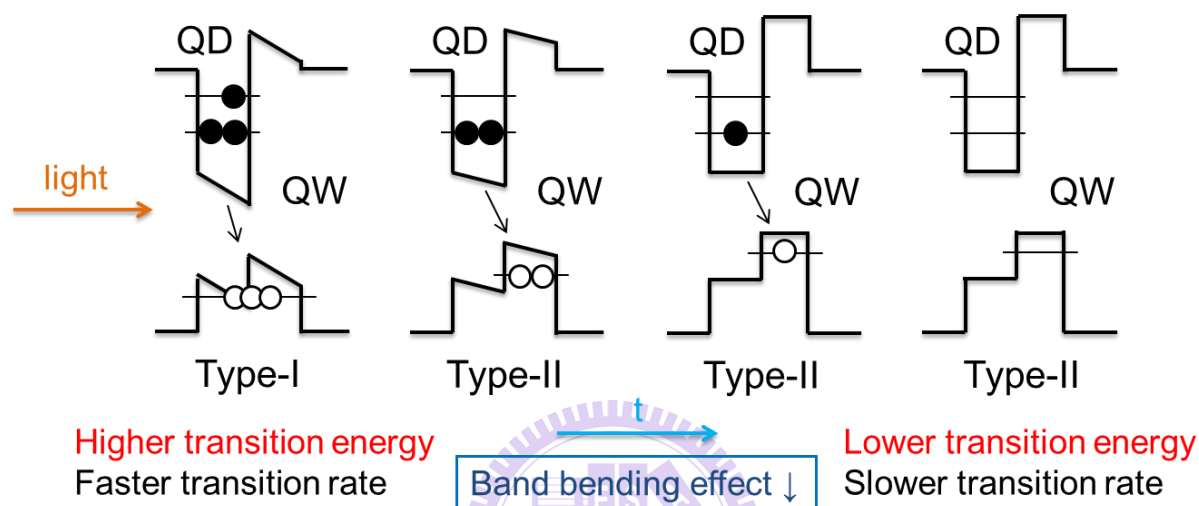
縱軸由上而下代表時間的演化，橫軸由左到右表示不同的偵測波長，而紅到藍的色階則分別代表螢光強度由高到低。將圖形縱切後，由上而下隨著時間演進，螢光強度隨時間衰減，代表的即是一般的時間解析光譜；而將圖形橫切後，由左而右隨波長增加，螢光強度則會存在一個峰值，此代表

了某固定時間點的螢光譜線，如【圖 3.2-6(e)】的譜圖；因此，整體圖形由上而下代表了在雷射激發後，螢光譜線隨時間的變化情形，而將整張圖由上而下疊加起來則可以得到時間積分的光激螢光光譜，正如【圖 3.2-6(a)、(c)】的譜圖。

【圖 3.2-6(b)、(d)】中的白色曲線是由每一個峰值擬合的結果描繪而成，因此白色曲線顯示了螢光峰值隨時間演進的變化情形。由圖可以發現隨著雷射激發功率的不同，發光峰值隨時間演化的行為是不一樣的：在  $1\ \mu\text{W}$  雷射激發下，發光峰值隨時間演化固定在  $1.055\ \text{eV}$ 。1 mW 雷射激發下，短時間內可以很清楚的解析出激態特徵，且在時間演化小於 6 ns 時，有很大量的發光能量紅移，並隨時間演化發光能量逐漸飽和在  $1.055\ \text{eV}$ 。此原因係由於高激發功率下，隨時間演化造成能帶彎曲效應逐漸降低的結果。

從上述 annealed type-II 量子點的樣品了解到，當激發功率夠高，將導致時間在 0~2 ns 之間，基態峰值不隨時間改變，如同 type-I 隨時間的發光特性。當時間大於 2 ns 時，基態峰值隨時間增加才有紅移的行為，類似於 type-II 隨時間的發光特性。我們推測是由於非平衡態載子數隨時間複合，造成了能帶彎曲效應降低，使得能帶躍遷的行為改變。【圖 3.2-7】為載子數隨時間複合對能帶結構的影響。由圖可知，在高激發功率下對 type-II 樣品進行激發，會產生大量的電子電洞對，其電子電洞之間有很強的庫倫作用力，使得能帶躍遷從第二型能帶躍遷轉變為第一型能帶躍遷。因此，將得

到較高的發光能量與較快的發光速率。隨著時間演化下載子數複合放光，導致能帶彎曲效應降低，使得受到高激發功率轉變的第一型能帶躍遷，將逐漸轉換回第二型能帶躍遷。發光能量也隨時間漸漸降低，並有較慢的複合速率。

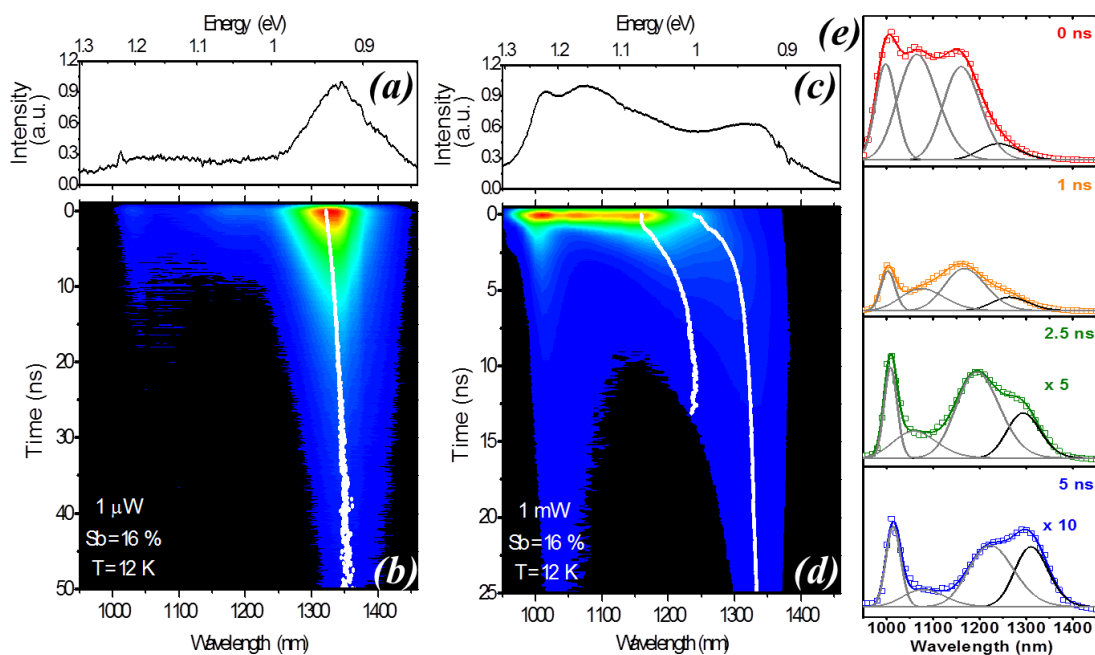


【圖 3.2-7】：載子數隨時間複合對能帶結構的影響

因此，我們認為 as-grown type-II 量子點在高激發功率下，也可能擁有能帶躍遷行為的轉換，所以進行了不同能量的時間解析光譜。

【圖 3.2-8(b)】為 as-grown type-II 量子點在  $1 \mu\text{W}$  雷射激發下，觀察出發光峰值隨時間有紅移的現象：當雷射對樣品進行激發時，發光峰值約位於  $1322 \text{ nm}$ ，當時間經過  $20 \text{ ns}$  後，峰值移到  $1341 \text{ nm}$ ，隨著時間演化至  $50 \text{ ns}$  後，峰值則移到了  $1350 \text{ nm}$ 。發光峰值除了隨時間演化有紅移外，其紅移量也隨時間減少，與 annealed type-II 量子點在  $1 \mu\text{W}$  情況下的行為不太相似。在此，發光峰值隨時間紅移的現象，是由於合金不均匀造成侷限效應的影響[15]。





【圖 3.2-8】: as-grown type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(b、d) 不同能量的時間解析光譜(c)1 mW 下不同時間點的光激螢光光譜

在 1 mW 雷射激發下，從【圖 3.2-8(d)】觀察出基態峰值隨時間演進有紅移的現象，此紅移現象隨時間不斷地進行，與 1 mW 雷射激發下 annealed type-II 量子點的紅移行為不太類似。是由於 annealed type-II 量子點在高激發功率下，只受到能帶彎曲效應造成的紅移行為，但由於 as-grown type-II 量子點在相同激發條件下，卻還有因合金不均勻造成侷限效應的影響，因此使這兩個樣品的紅移行為有所不同。

為了對 annealed type-II 量子點在非平衡態載子數隨時間複合造成了能帶彎曲效應的降低，使得能帶躍遷的行為改變做進一步的確認，我們需要更直接的證據。由公式(3-1):

$$E_0 = \left(\frac{\hbar^2}{2m}\right)^{1/3} \left(\frac{9\pi eF}{8}\right)^{2/3} = \left(\alpha \frac{V_w}{V_{dots}} \frac{\hbar^2}{2mB_{gs}}\right)^{1/3} \left(\frac{9\pi e^2 d}{8\epsilon_0 \epsilon_r}\right)^{2/3} P^{1/3}$$

得知 type-II 量子點的基態峰值正比於激發功率的 1/3 次方，藉由激發功率與載子數的關係：

$$\alpha P = \frac{V_{dots}}{V_w} B_{gs} (n_{gs}^d)^2$$

可得出基態峰值正比於載子數的 2/3 次方：

$$E_0 = \left(\frac{\hbar^2}{2m}\right)^{1/3} \left(\frac{9\pi e^2 d}{8\epsilon_0 \epsilon_r}\right)^{2/3} (n_{gs}^d)^{2/3}$$

為了得到載子數大小，藉由 PL 發光強度與載子數的關係：

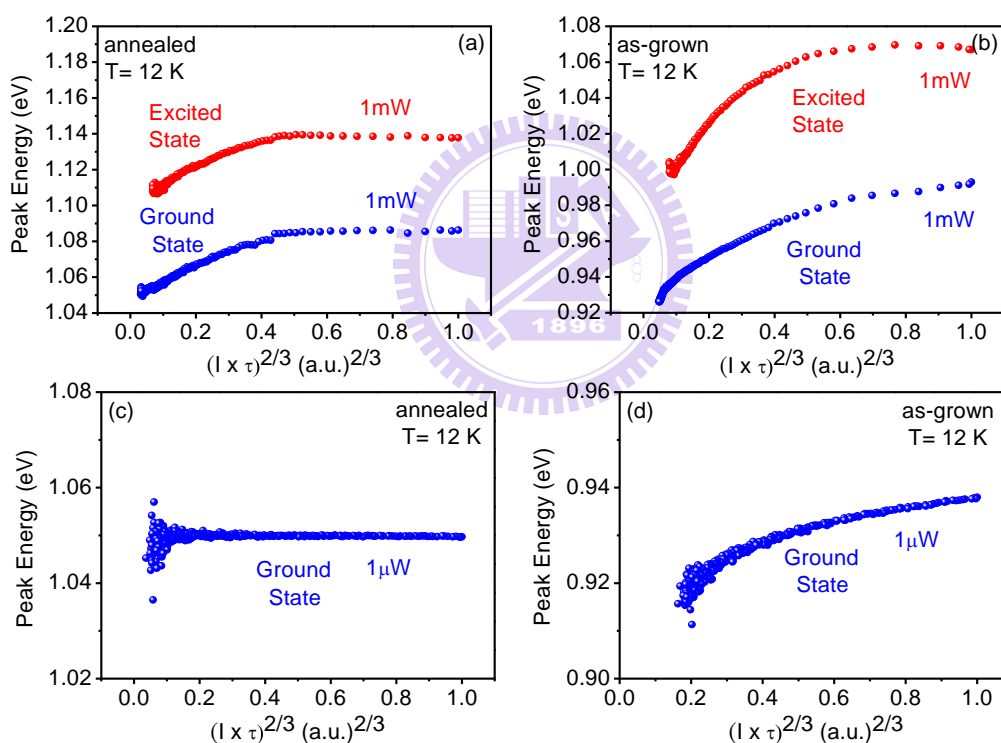


$$I \propto \frac{n}{\tau}$$

由此得知，載子數正比於光強度乘上載子生命期，而能帶彎曲效應造成的藍移現象，與整體 PL 發光強度有關。

因此，我們對不同時間下的整體 PL 發光強度做積分，並乘上載子生命期，對其歸一化並與發光峰值作【圖 3.2-9】。【圖 3.2-9(c)】為 1  $\mu$ W 下 annealed type-II 量子點，在沒有能帶彎曲及侷限效應下，隨著發光強度的 2/3 次方，其發光峰值並沒有任何改變。當激發功率提升至 1 mW 時，從【圖 3.2-9(a)】觀察到，發光峰值一開始隨發光強度的 2/3 次方不變，當發光強度伴隨著時間下降到某個程度時，發光峰值隨發光強度的 2/3 次方將呈現線性紅移，驗證了先前所提出能帶躍遷之間轉變的行為。

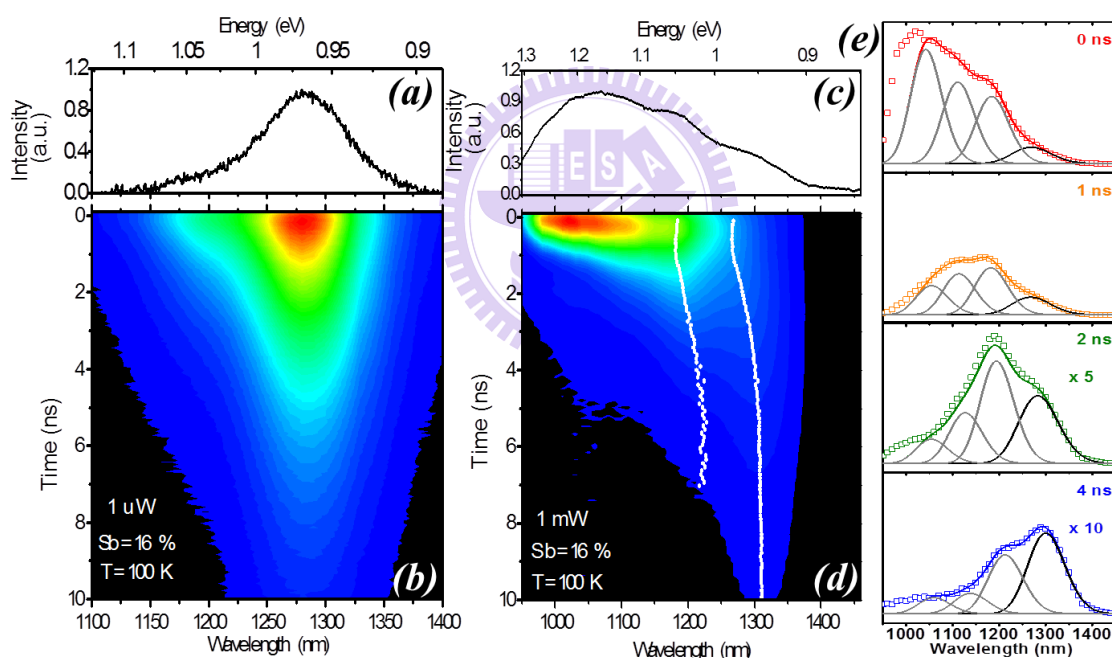
對於 as-grown type-II 量子點，由於合金不均勻所造成侷限效應的影響，我們可從【圖 3.2-9(b)】中觀察到，隨發光強度的  $2/3$  次方，發光峰值有著漸變的紅移行為。為了確認只受到侷限效應下，發光強度的  $2/3$  次方對發光峰值的影響，我們利用低激發功率觀察 as-grown type-II 量子點的發光峰值隨時間的演化如【圖 3.2-9(d)】，可以發現隨著發光強度的  $2/3$  也有漸變的紅移現象，這與我們的推測一致。



【圖 3.2-9】：(a、b)1 mW 下發光強度的  $2/3$  次方對發光峰值作圖(c、d)1  $\mu$ W 下發光強度的  $2/3$  次方對發光峰值作圖

為了瞭解，當 as-grown type-II 量子點消除侷限效應與我們預期的行為是否一致。從文獻[15]已知在 100 K 下，能消除侷限效應的影響。【圖

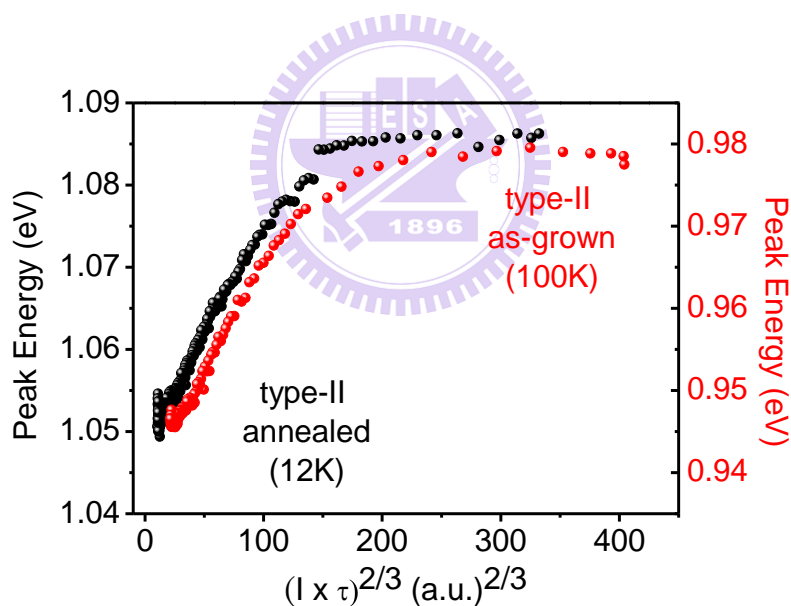
3.2-10(b)】可以發現當溫度上升到 100 K 後，隨著時間的演化其發光峰值不變。這結果與 annealed type-II 量子點的行為一致。更加確定 100 K 溫度下，確實去除了侷限效應後，我們再次探討高激發功率(1 mW)時，發光峰值與時間演化的關係如【圖 3.2-10(d)】。由圖可知，發光峰值隨時間演化的行為與 annealed type-II 量子點行為一致。藉此，我們希望進一步研究 as-grown type-II 與 annealed type-II 量子點樣品之間，因熱退火後造成價電帶能帶差的不同，是否影響能帶躍遷之間的轉變。



【圖 3.2-10】：溫度 100 K 下 as-grown type-II QDs(a、c)光激螢光光譜(c、d) 不同能量的時間解析光譜(e)各時間點的螢光光譜

【圖 3.2-11】為發光峰值與發光強度的  $2/3$  次方的變化，圖中黑色的點為低溫(12 K)高激發功率(1 mW)下的 annealed type-II 量子點，紅色的點則為溫度 100 K 高激發功率(1 mW)下的 as-grown type-II 量子點。由圖可知，

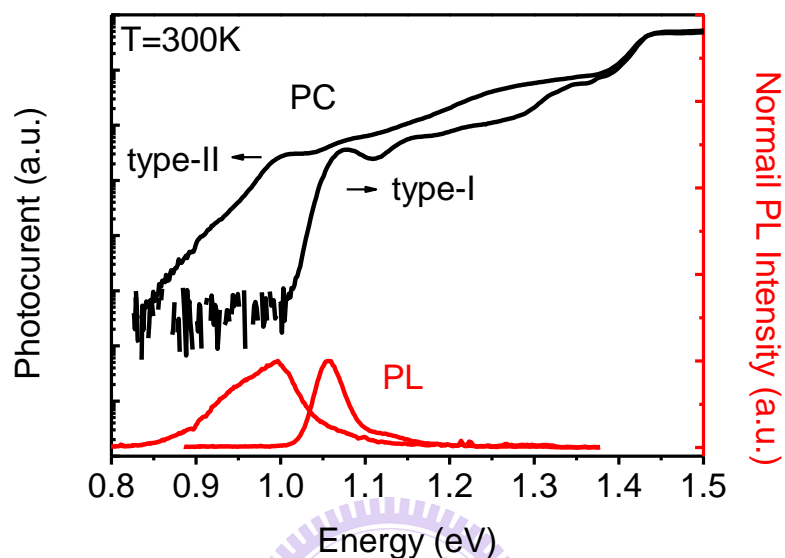
as-grown type-II 量子點在 100 K 溫度下，一開始隨著發光強度的  $2/3$  次方降低時，發光峰值在 1.084 eV 固定不變，當發光降低至某特定強度時，將開始線性紅移至 1.05 eV。此行為與 annealed type-II 量子點行為相當類似。但還是可以觀察出 annealed type-II 量子點，發生線性紅移的轉折點與 as-grown type-II 量子點有所不同。其中 as-grown type-II 量子點所發生的轉折點，為發光強度 180 的時候，相較於 annealed type-II 量子點在發生線性紅移的轉折點 140 稍微提早了一些。此結果暗示著，當價電帶能帶差較大時其，其能帶躍遷之間的轉換行為將會發生在較高的光強度下。



【圖 3.2-11】：發光峰值隨發光強度的  $2/3$  次方的變化

### 3.3 PIN 結構下第二型能帶排列之特性

#### 3.3.1 光激電流



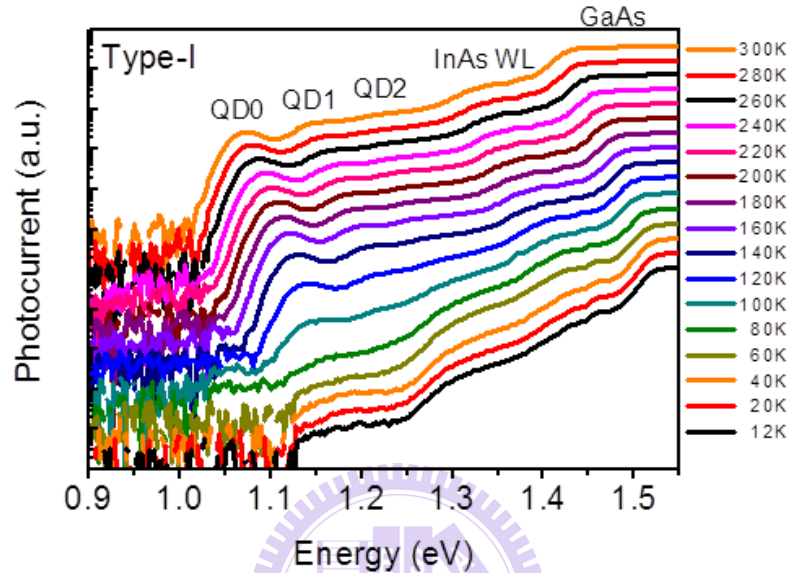
【圖 3.3-1】：不同銻含量樣品之光激電流及光激螢光光譜

【圖 3.3-1】為不同銻含量的樣品在高溫( $T=300\text{ K}$ )下的光激電流(黑色的線)與光激螢光光譜(紅色的線)。隨著銻含量 0% 至 20%，光激電流的吸收峰值從 1150 nm 到 1240 nm，有很明顯的紅移現象。對照光激螢光光譜的發光峰值，可確認為 type-I 及 type-II 量子點的基態吸收峰值，且由光激螢光光譜可觀察出半高寬隨銻含量上升也有增加的行為。

由圖可知 type-I 的光激電流在改變披覆層 Sb 的含量時，將吸收峰值往長波長前進使吸收效率提升。我們從 0.83 eV 到 1.55 eV 對整個光激電流作面積下的積分，發現 type-II 量子點的吸收效率比 type-I 量子點提升了 4.3%。造成吸收峰值的紅移是由於能帶排列的改變。這結果暗示利用 type-II

量子點系統可以提升一般利用量子點作為太陽能電池的吸收效率。

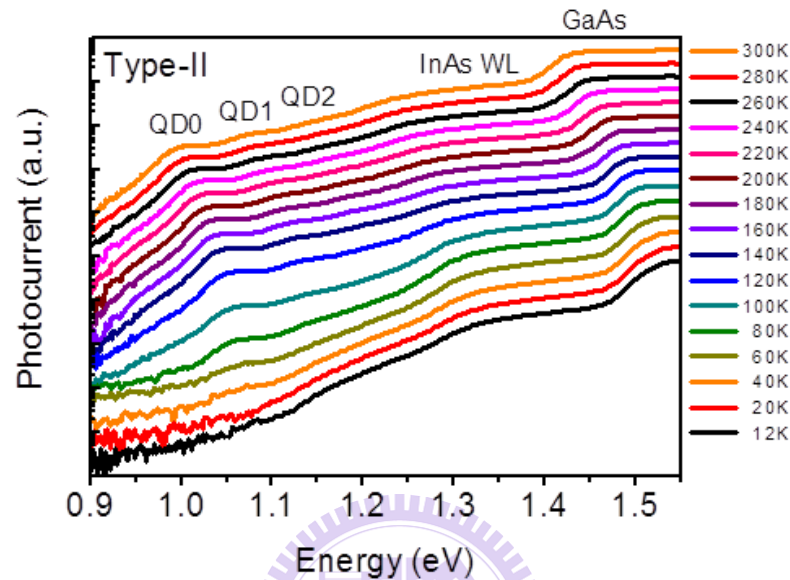
### 3.3.2 改變不同溫度下的光激電流



【圖 3.3-2】：不同溫度下 type-I 量子點的光激電流

【圖 3.3-2】為不同溫度下 type-I 量子點的光激電流。由圖可分為三部分，在 12 K 的情況下沒有看到 QD0 的吸收峰值且光電流訊號很弱，當溫度升高至 100 K 時開始發現有 QD0 的訊號且光電流訊號漸漸增加，直到 220 K 發現 QD0 光電流訊號開始飽和。推測低溫(12 K)時電子電洞被侷限在量子點內，由於沒有熱能幫助即使有內建電場的幫助也無法使電子電洞脫逃。當溫度提升至 100 K 時藉由熱能及內建電場的幫助下使部分電子電洞脫逃，因此觀察出 QD0 的訊號。直至 220 K 的溫度時提供的熱能已夠使電子電洞完全脫逃，因此當溫度再提升對於光電流訊號也沒有任何幫助。

此外我們也觀察到 QD0 的吸收峰值隨溫度有紅移的現象。這是因為 InAs 量子點能階隨溫度的變化所導致的行為。

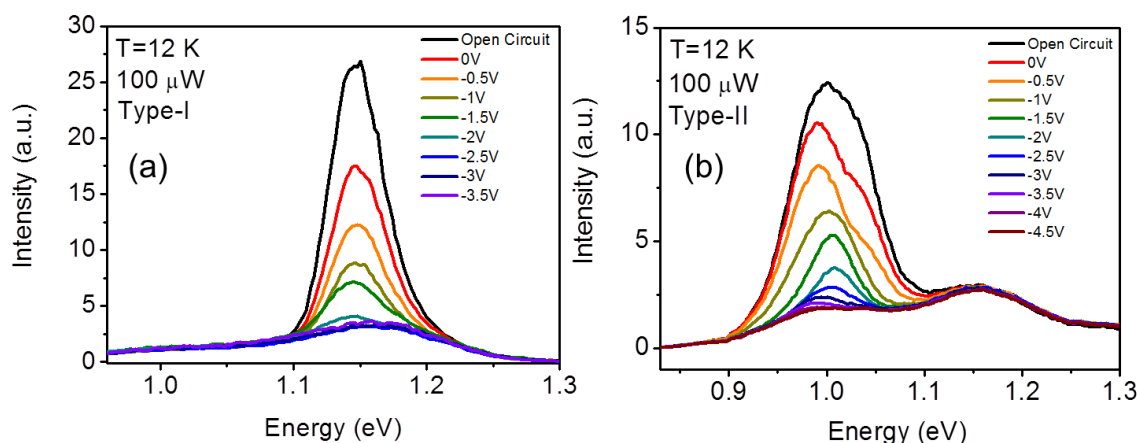


【圖 3.3-3】：不同溫度下 type-II 量子點的光激電流

【圖 3.3-3】為不同溫度下 type-II 量子點的光激電流。由圖可看出 12 K 的情況下，沒有看到 QD0 的吸收峰值且光電流訊號很弱，當溫度升高至 80 K 時，開始發現有 QD0 的訊號且光電流訊號漸漸增加，直到 160 K 發現 QD0 光電流訊號開始飽和。與 type-I 量子點所觀察到的現象類似。



### 3.3.3 改變不同偏壓下的光激螢光光譜



【圖 3.3-4】：不同偏壓下的光激螢光光譜(a)type-I(b)type-II

【圖 3.3-4(a)】為 type-I 在低溫(12 K)下不同偏壓的光激螢光光譜，由圖可觀察出隨著偏壓的提升增加了內建電場的強度，螢光強度下降、發光峰值紅移，與之前文獻的結果一致[26]。偏壓逐漸提升可以觀察出發光強度下降，但偏壓大於-2.5 V 時隨著偏壓的提升 PL 發光強度並沒有改變。推測偏壓大於-2.5 V 的 PL 發光都是來自於 P-type 或 N-type 中 GaAs 的發光。【圖 3.3-4(b)】為 type-II 不同偏壓的光激螢光光譜。由圖可知隨偏壓的增加螢光強度下降，此行為與 type-I 類似，但發光峰值隨偏壓的增加卻有先藍移再紅移的行為。推測造成此行為的原因為電洞原本在量子點的側邊，由於偏壓的提升導致電洞受電場的影響被推到量子點的頂部影響[27]。

## 第四章 結論

本論文第一部分研究不同  $\text{GaAs}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  CL 厚度對於 InAs 量子點的發光特性影響。隨著 CL 厚度增加，量子點有發光紅移、生命期延長及出現能帶彎曲效應的現象。當批覆上  $\text{GaAs}_{0.8}\text{Sb}_{0.2}$  層並增加厚度之後，因為第二型能帶排列的形成以及電洞量子侷限效應的降低，電洞將逐漸穿出量子點而進入 CL 中而形成第二型量子點。另一方面，CL 厚度的增加也造成量子點尺寸的擴大，因而造成進一步的發光紅移。第二部分研究不同載子注入量對於第二型量子點的發光特性影響。在低階注入下，量子點發光不受能帶彎曲效應影響。在中階注入下，量子點發光受到能帶彎曲效應影響而有發光能量及躍遷速率隨載子密度增加而上升的現象。在高階注入下，受到強烈庫倫吸引力的影響，量子點發光回到第一型的躍遷型態。第三部分研究 PIN 結構下 type-II 量子點之光電特性。相較於 type-I 量子點的吸收，type-II 量子點的吸收頻譜較為連續。而在外加電場的情況下，type-II 量子點則顯現了與 type-I 量子點不一樣的能量移動。

## 參考文獻

1. H. Y. Liu, M. J. Steer, T. J. Badcock, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, P. Navaretti, K. M. Groom, M. Hopkinson, and R. A. Hogg, [Appl. Phys. Lett.](#) **86**, 143108 (2005).
2. J. M. Ripalda, D. Granados, Y. González, A. M. Sánchez, S. I. Molina, and J. M. García, [Appl. Phys. Lett.](#) **87**, 202108 (2005).
3. H. Y. Liu, M. J. Steer, T. J. Badcock, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, F. Suarez, J. S. Ng, M. Hopkinson, and J. P. R. David, [J. Appl. Phys.](#) **99**, 046104 (2006).
4. C. Y. Jin, H. Y. Liu, S. Y. Zhang, Q. Jiang, S. L. Liew, M. Hopkinson, T. J. Badcock, E. Nabavi, and D. J. Mowbray, [Appl. Phys. Lett.](#) **91**, 021102 (2007).
5. K. Nishi, H. Saito, S. Sugou, and J.-S Lee, [Appl. Phys. Lett.](#) **74**, 1111 (1999).
6. V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov, A. Yu. Egorov, A. V. Lunev, B. V. Volovik, I. L. Krestnikov, Yu. G. Musikhin, N. A. Bert, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov, and D. Bimberg, [Appl. Phys. Lett.](#) **74**, 2815 (1999)
7. N.-T. Yeh, T.-E. Nee, J.-I. Chyi, T. M. Hsu, and C. C. Huang, [Appl. Phys. Lett.](#) **76**, 1567 (2000)
8. W.-H. Chang, H.-Y. Chen, H.-S Chang, W.-Y Chen, T. M. Hsu, T.-P. Hsieh, J.-I Chyi, and N.-T. Yeh, [Appl. Phys. Lett.](#) **86**, 131917 (2005).
9. J. M. Ulloa, I. W. D. Drouzas, P. M. Koenraad, D. J. Mowbray, M. J. Steer, H. Y. Liu, and M. Hopkinson, [Appl. Phys. Lett.](#) **90**, 213105 (2007).
10. J. M. Ulloa, R. Gargallo-Caballero, M. Bozkurt, M. del Moral, A. Guzmán, P. M. Koenraad, and A. Hierro, [Phys. Rev. B](#) **81**, 165305 (2010).
11. A. Marent, M. Geller, A. Schliwa, D. Feise, K. Pötschke, D. Bimberg, N.

- Akçay, and N. Öncan, [Appl. Phys. Lett.](#) **91**, 242109 (2007).
- 12.R. B. Laghumavarapu, A. Moscho, A. Khoshakhlagh, M. El-Emawy, L. F. Lester, and D. L. Huffaker, [Appl. Phys. Lett.](#) **90**, 173125 (2007).
- 13.W.-H. Chang, Y.-A. Liao, W.-T. Hsu, M.-C. Lee, P.-C. Chiu, and J.-I. Chyi, [Appl. Phys. Lett.](#) **93**, 033107 (2008).
- 14.Y. D. Jang, T. J. Badcock, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. Park, D. Lee, H. Y. Liu, M. J. Steer, and M. Hopkinson, [Appl. Phys. Lett.](#) **92**, 251905 (2008).
- 15.Y.-A. Liao, W.-T. Hsu, P.-C. Chiu, J.-I. Chyi, and W.-H. Chang, [Appl. Phys. Lett.](#) **94**, 053101 (2009).
- 16.S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff, and J. L. Merz, [Phys. Rev. B](#) **54**, 11548 (1996).
- 17.K. Karrai and R. J. Warburton, [Superlattices and Microstructures](#) **33**, 311 (2003).
- 18.R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karri, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, [Phys. Rev. Lett.](#) **79**, 5282 (1997).
- 19.R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, and Zh. I. Alferov, [Phys. Rev. B](#) **56**, 10435 (1997).
- 20.I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, [J. Appl. Phys.](#) **89**, 5815 (2001).
- 21.S.-H. Wei, and A. Zunger, [Appl. Phys. Lett.](#) **72**, 2011 (1998).
- 22.S.-H. Wei, and A. Zunger, [Phys. Rev. B](#) **60**, 5404 (1999).
- 23.R. Leon, Y. Kin, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou, and D. J. H. Cockayne, [Appl. Phys. Lett.](#) **69**, 1888 (1996).
- 24.S. Malik, C. Roberts, R. Murray, and M. Pate, [Appl. Phys. Lett.](#) **71**, 1987 (1997).
- 25.C. Weisbuch and B. Vinter, *Quantum semiconductor structures : fundamentals and applications*, Boston : Academic press (1991).
- 26.P. W. Fry, J. J. Finley, L. R. Wilson, A. Lemaitre, D. J. Mowbray, and M. S.

- Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill, and J. C. Clark, [Appl. Phys. Lett. 77](#), 4344 (2000).
- 27.P. Klenovsky, V. Krapek, D. Munzar, and J. Humlicek, [Appl. Phys. Lett. 97](#), 203107 (2010).

