國立交通大學

電子工程學系 電子研究所碩士班

碩士論文

砷化銦量子點及量子環在磁場下之 光激發螢光光譜研究

Studies of Magneto-photoluminescence of InAs Quantum Dots and Rings

研究生:李依珊

指導教授:李建平 教授

中華民國一〇一年六月

砷化銦量子點及量子環在磁場下之光激發螢光光譜研究

Studies of Magneto-photoluminescence of InAs Quantum Dots

and Rings

研究生:李依珊Student: Yi-Shan Li指導教授:李建平博士Advisor: Dr. Chien-Ping Lee



A Thesis

Submitted to Department of Electronics Engineering and Institute of Electronics College of Electrical and Computer Engineering National Chiao Tung University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Degree of

Master

in

Electronics Engineering June 2012 Hsinchu, Taiwan, Republic of China



學生:李依珊

指導教授:李建平 博士

國立交通大學

電子工程學系 電子研究所碩士班

摘要

本論文主要是利用在磁場下光激發螢光光譜研究自聚式砷化銦量子點以及 量子環的特性。從量子點演變到量子環的過程中,發光能量會因為高度變小而往 高能量移動。對量子點做快速熱退火實驗,由於銦原子和鎵原子在量子點中混合 嚴重,而導致發光能量藍移且均勻度增加。

在外加垂直於樣品表面方向的均勻磁場下,光激發螢光光譜會受到反磁性效 應以及塞曼分裂(Zeeman splitting)的影響而產生光譜的遷移。反磁性效應會導致 量子結構的發光能量隨著磁場的增加而藍移,且能量與磁場的平方成正比。基態 的反磁性位移會隨著激發功率密度越大而變大,這是由於在高激發功率下,受到 遮蔽效應的影響而使得激子的半徑變大,導致反磁性位移變大。

此外,在高激發功率密度時,我們研究量子點及量子環在激發態的螢光光 譜。在外加磁場下,由於塞曼效應的影響使得激發態的能階會分裂。其分裂的狀 況在量子點中與量子環中又有所不同。第一激發態在量子點與量子環中均為一分 為二。但在第二激發態,量子點的能階會一分為三,而量子環則維持一分為二。 利用塞曼分裂的能量差與磁場的線性關係,我們求得了激子在量子點與量子環中 的有效質量。我們所獲得的值與他人實驗觀測的值相吻合。我們並發現量子環的 激子有效質量較量子點的大,這可歸究為(1)因量子環成長所需的熱處理,使得 環中有較多的鎵原子。(2)量子環的發光能量較高,因能帶的 non-parabolicity 而 造成的。

Studies of Magneto-photoluminescence of InAs Quantum Dots and Rings

Student : Yi-Shan Li

Advisor : Dr. Chien-Ping Lee

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

Abstract

Magneto-Photoluminescence spectroscopy was used to the optical transition properties of self-assembled InAs quantum dots and quantum rings. With the evolution from quantum dots to quantum rings, the emission peaks of the corresponding optical spectra shift to higher energies because of the enhancement of energy quantization from the reduced structure height. Rapid thermal annealing (RTA) performed on the quantum dots reveals an emission energy blueshift as well as a reduction of inhomogeneous broadening due to the atomic intermixing of In and Ga inside the dots.

When a uniform magnetic field is applied normal to the sample surface, the emission peak shifts due to the diamagnetic effect and the levels with non-zero angular momentum split due to Zeeman effect. The diamagnetic effect leads to an energy blueshift in proportion to the square of the magnetic field. The diamagnetic shift amount of the ground state emission was found to increase with the excitation power. This increase is attributed to the more extended exciton radius due to screening effect at higher excitation power.

Using higher excitation power, we have also studied the magneto-optical response of the excited states of quantum dots and quantum rings. In a magnetic field, the excited state emission splits into several peaks due to orbital Zeeman effect. Different splitting behavior was observed for the dots and the rings. The first excited state splits into two for both the dots and the rings but the second excited state splits into three for the dots and two for the rings. From the amount of splitting, we were able to deduce the effective reduced mass of the excitations. The obtained values agree with what people generally agreed upon. A larger effective mass was observed for rings as compared with that of the dots, and it can be attributed to a higher degree of Ga-In intermixing because of the thermal annealing cycle during the growth of the rings and the higher emission energy, which gives rise to the band non-parabolicity effect.

致 謝

研究所這兩年來,受到許多人的幫助,首先要感謝的就是指導教授李建平老師,能夠成為老師的學生,成為實驗室的一份子我真的覺得很幸運也很榮幸,感謝老師給我良好的研究環境以及資源,還有研究上的指導以及鼓勵,讓我對自己 更有自信。另外還要感謝林聖迪老師願意熱心地與我討論實驗的結果以及提供建議。

在研究過程中遇到瓶頸時,也受到許多學長姐的幫助。最要感謝的是大鈞學 長,每當實驗遇到問題以及困難都會找你討論,雖然你已經畢業了,但你還是願 意幫助我,給我許多意見以及想法,讓我順利完成研究,真的很謝謝你。在低溫 強磁場量測時,感謝蘇聖凱學長幫忙換樣品,那段時間贏煩你也辛苦你了。另外 還要感謝 Queena,在實驗遇到問題的時候都很熱心的與我討論並且提供協助, 有很多數據處理的方法因為有妳的指導讓我能更快上手,謝謝妳。林建宏,謝謝 你的熱心幫助我很多很多,包括長晶、掃 AFM、以及量測系統的討論與改善, 還有鼓勵,非常感謝你。感謝實驗室的同學們在修課時一起討論課業,謝謝孫耘 這兩年的陪伴讓我不孤單,也謝謝小芊平時陪我聊天抒發壓力。另外還要感謝一 起打羽球的大家,每次打球的時候都很歡樂很開心,很能放鬆心情並且調劑身 心。我愛實驗室的大家。

最後要感謝我的家人,在求學的過程中一直提供我經濟支柱以及沒有壓力的 環境,感謝你們的關心以及支持,我愛你們。

III

	頁次
中文摘要	I
英文摘要	П
致 謝	III
目 錄	IV
圖 目 錄	VI
表 目 錄	IX
第一章 緒論	1
1.1 前言	1
1.2 研究動機 Е.	3
1.3 本文架構	4
第二章 理論背景	5
2.1 磁場中光譜的遷移	5
2.1.1 反磁性位移	6
2.1.2 塞曼效應	7
2.2 量子結構在磁場中的能階變化	9
2.2.1 量子點	9
2.2.2 量子環	13
第三章 樣品結構與實驗裝置	16
3.1 樣品結構	16
3.2 光激發螢光光譜	22
3.2.1 發光機制	22
3.2.2 光激發螢光光譜量測系統	23
3.2.3 磁場光激發螢光光譜量測系統	25

第四章 實驗結果與討論	27
4.1 量子點與量子環之螢光光譜	
4.1.1 量子點到量子環發光藍移	
4.1.2 不同熱退火溫度之螢光光譜	
4.2 量子點之磁場光激發螢光光譜	
4.2.1 零磁場功率相依光譜	
4.2.2 磁場螢光光譜與分析方法	40
4.2.3 基態反磁性位移與遮蔽效應	45
4.2.4 激發態塞曼分裂與等效質量	51
4.3 量子環之磁場光激發螢光光譜	56
4.3.1 零磁場功率相依光譜	56
4.3.2 磁場螢光光譜與分析方法	
4.3.3 基態反磁性位移與遮蔽效應	63
4.3.4 激發態塞曼分裂與等效質量	
4.4 量子點與量子環之磁場螢光光譜比較	73
4.4.1 量子點與量子環之結果比較	73
4.4.2 量子環比較	77
第五章 結論	80
參考文獻	81

圖目錄

圖 1-1	半導體材料在不同維度下之能態密度	1
圖 2-1	自旋為 $\frac{1}{2}$ 時的塞曼分裂	8
圖 2-2	圓盤狀量子點外加垂直於樣品表面方向的磁場,及位能為拋物位井	9
圖 2-3	抛物位井量子點的分立能階能譜圖1	1
圖 2-4	在不同磁場以及不同能態下,量子點的簡併態以及能量變化1	1
圖 2-5	量子點之 Fock-Darwin 光譜1	2
圖 2-6	均匀磁通量 $\Phi_B = \pi r_a^2 B$ 垂直穿過量子環內部1	3
圖 2-7	電子在理想的量子環內之能譜1	5
圖 2-8	電子在具有寬度的真實量子環內之能譜1	5
圖 3-1	量子點的樣品結構1	6
圖 3-2	量子環的樣品結構1	7
圖 3-3	量子環的形成示意圖1	7
圖 3-4	1×1 µm ² 的 AFM 表面形貌圖	9
圖 3-5	光激發螢光機制2	2
圖 3-6	光激發螢光之實驗架設2	4
圖 3-7	在強磁場下量測光激發螢光之實驗架設2	6
圖 4-1	量子點到量子環形成過程之螢光光譜2	8
圖 4-2	量子點演變至量子環之螢光光譜及能階間之能量差	0
圖 4-3	量子點以及量子環之半高寬比較3	1
圖 4-4	LM4683(QDs)在13K以及300K之螢光光譜比較3	1
圖 4-5	LM4698(QDs)在不同熱退火溫度之光激發螢光光譜3	3
圖 4-6	LM4698(QDs)在不同熱退火溫度之能量、能階間之能量差、半高寬34	4
圖 4-7	RN0069(QDs)變激發功率之光激發螢光光譜	б

圖 4-8	RN0069(QDs)激發功率650 mW時之螢光光譜圖與其高斯擬合之圖形37
圖 4-9	LM4698(QDs)變激發功率之光激發螢光光譜
圖 4-10	LM5148(QDs)變激發功率之光激發螢光光譜
圖 4-11	RN0069(QDs)磁場為0T、7T、14T時,利用數條高斯譜線去擬合的結
	果以及能量分裂的過程41
圖 4-12	RN0069(QDs)激發功率 650 mW 時的磁場螢光光譜42
圖 4-13	RN0069(QDs)激發功率650 mW,各能階之能量位置對磁場的關係44
圖 4-14	不同能態下,量子點的簡併態以及能量隨磁場的變化44
圖 4-15	RN0069(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜46
圖 4-16	RN0069(QDs)激發功率 150 mW 時,基態的能量對磁場的關係47
圖 4-17	LM4698(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜47
圖 4-18	LM4698(QDs)激發功率 250 mW 時,基態的能量對磁場的關係48
圖 4-19	LM5148(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜48
圖 4-20	LM5148(QDs)激發功率 250 mW 時,基態的能量對磁場的關係49
圖 4-21	RN0069(QDs)在不同激發強度之下基態的反磁係數50
圖 4-22	RN0069(QDs)激發功率 650 mW 時的磁場螢光光譜及激發態分析52
圖 4-23	Ga _{1-x} In _x As 在 x 含量不同時對應到的等效質量54
圖 4-24	RN0069(QDs)在不同功率下激子的波函數半徑55
圖 4-25	LM5133(QRs)變激發功率之光激發螢光光譜
圖 4-26	LM5149(QRs)變激發功率之光激發螢光光譜57
圖 4-27	LM5133(QRs)磁場為0T、7T、14T時,利用數條高斯譜線去擬合的結
	果以及能量分裂的過程59
圖 4-28	LM5133(QRs)激發功率 550 mW 時的磁場螢光光譜60
圖 4-29	LM5133(QRs)激發功率 550 mW,各能階之能量位置對磁場的關係62
圖 4-30	不同能態下,量子環的簡併態以及能量隨磁場的變化62
圖 4-31	LM5133(QRs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜64

圖 4-32	LM5133(QRs)激發功率 150 mW 時,基態的能量對磁場的關係64
圖 4-33	LM5149(QRs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜65
圖 4-34	LM5149(QRs)激發功率 650 mW 時,基態的能量對磁場的關係66
圖 4-35	LM5133(QRs)在不同激發強度之下基態的反磁係數67
圖 4-36	LM5149(QRs)在不同激發強度之下基態的反磁係數67
圖 4-37	LM5133(QRs)激發功率 350 mW 時的磁場螢光光譜及激發態分析69
圖 4-38	LM5133(QRs)在不同功率下激子的波函數半徑71
圖 4-39	LM5149(QRs)在不同功率下激子的波函數半徑72
圖 4-40	量子點及量子環在不同能階之簡併態以及其能量隨磁場的變化73
圖 4-41	不同樣品在第一激發態的激子等效質量74
圖 4-42	不同樣品在基態的反磁係數75
圖 4-43	不同樣品的激子波函數半徑76
圖 4-44	電子在量子點及量子環中波函數分佈76
圖 4-45	LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)在不同能態下的發光能量比較77
圖 4-46	LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)的激子等效質量78
圖 4-47	LM5133(QRs)以及LM5149(QRs)在基態發光的反磁係數之比較79

表目錄

表 3-1	不同樣品的製程條件及尺寸,以及基態躍遷能量	.20
表 3-2	不同樣品的製程條件及尺寸,以及基態躍遷能量	.21
表 4-1	量子點形成至量子環之量子結構尺寸	.29
表 4-2	量子點樣品在各能階之能量	.39
表 4-3	量測量子點樣品在不同激發功率下基態的反磁係數	.50
表 4-4	RN0069(QDs)在不同功率下之第一激發態及第二激發態的激子等效質	
	量	.53
表 4-5	RN0069(QDs)基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及計算	出
	激子波函數半徑	.55
表 4-6	量子環樣品各能階之能量以及半高寬	.57
表 4-7	量測量子環樣品在不同激發功率下基態的反磁係數	.67
表 4-8	LM5133(QRs)及LM5149(QRs)在不同功率下之第一激發態及第二激發	態
	的激子等效質量	.70
表 4-9	LM5133(QRs)基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及計算	出
	激子波函數半徑	.71
表 4-10	LM5149(QRs)基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及計算	出
	激子波函數半徑	72

第一章 緒論

1.1 前言

近年來,奈米科技的發展成為熱門的議題,而其應用與人們的生活息息相關。為了 滿足人類的需求,微型化元件的發展為必須的,而當元件的尺寸進入奈米等級時,物質 會因為量子尺寸效應以及表面效應,表現出與塊材中不同的物理特性,使得發光性、磁 性、導電性都會有所不同^[1]。

奈米半導體材料可依據不同的幾何型態,而分成三維、二維、一維以及零維的結構, 分別定義這些不同維度的材料為塊材(bulk)、量子井(quantum well)、量子線(quantum wire), 以及量子點(quantum dot)。量子點是在三個維度的尺寸皆為奈米等級,內部的電子在各 方向上的運動都受到侷限,因此稱為零維結構。在不同維度的材料下,能態密度(density of state)也會不同,如圖 1-1,在三維系統下之能態密度為連續分佈,然而在零維度的量 子點系統中,能態密度接近δ函數,使得電子的能量會呈離散分佈^[2]。由於量子點具有 極高的能態密度,電子與電洞在量子點中復合的機率很高,會使得發光的效率高,因此 量子點很適合用來做發光元件,常見的應用例如量子點雷射^[3-5]、光二極體^[6-7]或紅外線 偵測器^[8-9]等。



圖 1-1 半導體材料在不同維度下之能態密度

量子點的製作方式有很多種,從早期的化學蝕刻、電子濺鍍等方法,一直到近年來 使用磊晶的方式來成長量子點的奈米結構,目前常用的成長方法是使用分子束磊晶 (molecular beam epitaxy,MBE)以及有機金屬化學氣相沈積(metal-organic chemical vapor deposition,MOCVD)的磊晶成長技術。而分子束磊晶成長法是在超高真空環境下,利用 材料源加熱後所蒸發的分子束直接在基板上沉積,然後形成半導體化合物的單晶薄膜成 長法。這種方法是利用不同材料間之晶格不匹配(lattice mismatch)的原理,使量子點在特 定基材表面自聚生長。一般磊晶成長可分為三種模式,分別為Frank-van der Merwe (FM) 模式、Stranski-Krastanow (SK)模式以及Volmer-Weber (VW)模式。在我們的研究中則是 使用SK模式,其原理是成長一層與下層結構差異較大的材料,而形成層狀的二維結構, 此層結構稱為潤濕層(wetting layer),因為晶格常數不匹配而產生應力,應力會隨著潤濕 層的增加而越來越大,當潤濕層磊晶到一定的臨界厚度,樣品由於累積的應力過大而必 須釋放,而形成零维的量子點。這種從二維到三維的S-K磊晶模式成長的量子點稱為自 聚式量子點(self-assembled quantum dot)^[10]。

研究半導體的結構或是成分分析,可以使用掃描式電子顯微鏡(scanning electronic microscopy, SEM)^[11]、原子力顯微鏡(atomic force microscopy, AFM)^[12]或是穿透式電子 顯微鏡(trasmission electronic microscopy, TEM)^[13]等方法來直接得到結構的組成以及形 貌,另外還可以使用光譜的量測技術來量測分析半導體結構中載子的躍遷行為以及能階 分佈。光譜分析主要的技術有光激發螢光光譜(photoluminescence, PL)^[14]、電激發螢光 光譜(electroluminescence, EL)^{[15}、螢光激發光譜(photoluminescence excitation, PLE)^[16]、 時間解析光譜(time-resolved photoluminescence, TRPL)^[17]以及吸收光譜(absorption spectroscopy)^[18]等量測技術。光激發螢光光譜是一種非破壞性的光學量測,通常用於發 光半導體材料分析,可以得知半導體材料的能階結構、掺雜的雜質種類、載子的躍遷行 為以及化合物的組成分析等訊息。而本論文主要就是利用光激發螢光光譜分析來了解量 子點以及量子環的發光特性,並且外加不同強度的磁場,觀察光激發螢光光譜的遷移。

1.2 研究動機

零維的量子結構在空間上的三維侷限,出現類似原子的不連續能階以及δ函數的能 態密度,不僅引起人們在學術研究上極大的興趣,其光學或電學的應用更為廣泛。比起 量子點,另一種零維量子結構一量子環的特性研究就少了許多。量子環在形貌上是一種 中央凹陷的環狀結構,而發光特性也與量子點有些許不同。另外,由於量子點以及量子 環能態的簡併數目不同,可以利用外加磁場的光激發螢光光譜,觀察因為塞曼效應而產 生的能階分裂個數,並且比較量子點以及量子環的光譜遷移的行為。

R. Rinaldi等人對量子點分別外加平行以及垂直量子點生長方向的磁場,並且研究賽 曼效應對光譜的影響^[19]。在外加平行量子點生長方向的磁場(Faraday configuration),光 譜中之激發態會隨著磁場的增加而產生兩個或更多的分裂,但是在垂直生長方向的磁場 下(Voigt configuration)的光譜中,激發態不會有分裂的情形出現。P. P. Paskov等人量測自 聚式之砷化銦/砷化鎵量子點在磁場下的螢光光譜^[20],由於非零的角動量量子數使得激 發態有分裂的現象,進而求出激子減縮質量。S. Awirothananon等人將砷化銦/砷化鎵量 子點去做快速熱退火(RTA)約30秒,並且外加磁場到28 T,然後比較不同的熱退火溫度 的量子點樣品之磁場螢光光譜^[21]。當熱退火溫度越高,由於鎵的成分變高,使得量子點 的發光能量會藍移,且量子點尺寸的均勻度變好,能階間的能量差會變小。Fock-Darwin 光譜中,第一激發態與第二激發態其分裂的能階隨著磁場的增加而慢慢趨於交錯,當退

在1959年,Aharonov和Bohm提出了AB效應理論^[22],在電子運動的空間中,無論是 否具有電磁場存在,電子的波函數相位都會受到磁場向量勢的影響。另外,在1960年, 首先由R.G. Chambers等人從實驗中證實了AB效應^[23]。在A. Lorke等人的實驗中^[24],將 量子環置於垂直平面方向的均勻磁場中,發現其基態的能量會隨著磁場的增加而出現週 期性的震盪,此現象即為量子環的AB效應。而N.A.J.M. Kleemans等人將量子環外加至 30 T的高磁場下做螢光光譜的量測^[25],在高激發強度下,光譜出現了三個能階的躍遷, 並且發現激發態會因為外加磁場而產生兩個分裂,並且透過計算的結果得到與量測結果 的一致性。

在我們的研究中,同時量測量子點以及量子環的磁場螢光光譜,探討光譜遷移的行為,藉由受到反磁性位移以及塞曼效應的影響而做進一步的分析,並且將兩種零維量子 結構的結果一起作比較。

1.3 本文架構

本論文主要以砷化銦量子點以及量子環之光激發螢光光譜的量測為主,以及外加平 行生長方向的磁場,量子結構會因此受到反磁性位移以及塞曼效應的影響而產生光譜的 遷移,並且加以分析。首先,第一章主要介紹量子結構以及研究的動機。第二章則以一 個簡單的量子點以及量子環模型,推導在外加磁場下,產生反磁性位移以及塞曼效應, 而這些影響使得量子點及量子環的能階會隨著磁場的變化而產生偏移或分裂。第三章是 樣品的成長以及實驗的量測系統介紹。第四章是實驗的結果與討論,一開始是比較量子 點到量子環的形成過程中光譜的藍移,以及量子點在不同快速熱退火的溫度下光譜的偏 移,最後再根據磁場螢光光譜的量測結果可以得到量子點及量子環的反磁係數以及激子 的等效質量。第五章則是將實驗的量測結果做一個總結。

第二章 理論背景

2.1 磁場中光譜的遷移

考慮一個單一電子在量子結構中,置於一個均勻的外加磁場情況下,Hamiltonian 的形式可以表示為:

$$H = \frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} + e\vec{A} \right)^2 + V(\vec{r}) \tag{1}$$

其中*m* 是電子的等效質量, $V(\vec{r})$ 是 confining potential, \vec{A} 是磁場向量勢(vector potential),假設外加的均勻磁場方向為 Z 方向, $\vec{B} = (0,0,B)$,則 \vec{A} 可以表示為:

$$\vec{A} = \frac{1}{2}B(-y, x, 0)$$
 (2)

將(2)式帶入(1)式可以得到

$$H = \frac{1}{2m} \left[-\hbar^2 \nabla^2 + e^2 |\vec{A}|^2 + \frac{e\hbar}{i} (\vec{\nabla} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{\nabla}) \right] + V(\vec{r})$$

$$= \frac{-\hbar^2}{2m} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) + \frac{e^2 B^2}{8m} (x^2 + y^2) + \frac{eB}{2m} \frac{\hbar}{i} \left(x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right) + V(\vec{r})$$
(3)
$$I \equiv I \pm E \neq R$$

轉換成圓柱座標

$$H = \frac{-\hbar^2}{2m} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right) + \frac{e^2 B^2 \hat{\rho}^2}{8m} + \frac{eB}{2m} \left(\frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \varphi} \right) + V(\vec{\rho})$$
$$= \frac{\hat{p}^2}{2m} + \frac{e^2 B^2 \hat{\rho}^2}{8m} + \frac{e}{2m} \vec{L} \cdot \vec{B} + V(\vec{\rho})$$
(4)

其中, \vec{L} 是軌道角動量(orbital angular momentum),而 $\hat{\rho}$ 則代表與磁場垂直的距離分量。 將 Hamiltonian 表示為 $H = H_0 + H_{ZO} + H_D$, 可得到

$$H_0 = \frac{\hat{p}^2}{2m} + V(\vec{\rho})$$
(5)

$$H_D = \frac{e^2 B^2 \hat{\rho}^2}{8m} \tag{6}$$

$$H_{ZO} = \frac{e}{2m}\vec{L}\cdot\vec{B} \tag{7}$$

 H_0 是零磁場時的 Hamilton; H_D 是反磁項(diamagnetic term); H_{ZO} 是軌道塞曼效應(orbital Zeeman effect)的部分。

2.1.1 反磁性位移(diamagnetic shift)

先從古典力學的角度來看,以一個類氫原子模型,帶電量為e,質量為m,以速度 v在軌道半徑r的地方繞行。電子的軌道運動產生的電流強度i,以及對應的軌道磁矩 (orbital magnetic momentum)大小M和軌道角動量L表示如下:

$$i = \frac{ev}{2\pi r} \tag{8}$$

$$M = i \cdot \pi r^2 = \frac{e}{2} r v \tag{9}$$

$$L = rmv \tag{10}$$

根據(9)式與(10)式,將磁矩以角動量來表示可寫成

$$M = \frac{e}{2m}L\tag{11}$$

寫成向量形式

$$\vec{M} = \frac{e}{2m}\vec{L}$$
(12)

另外在量子力學中,帶電粒子在磁場作用下,動量變成 $\vec{p} \rightarrow \vec{p} - e\vec{A}$,則角動量為

 $\vec{L} \rightarrow \vec{L} - e\vec{r} \times \vec{A}$, (11)式便改寫成

$$\vec{M} = \frac{e}{2m} \left(\vec{L} - e\vec{r} \times \vec{A} \right) = \frac{e}{2m} \vec{L} - \frac{e^2}{2m} \vec{r} \times \vec{A}$$
(13)

其中,第一項
$$\vec{M}_1 = \frac{e}{2m}\vec{L}$$
代入(7)式可以得到 $H_{ZO} = -\vec{M}_1 \cdot \vec{B}$ (14)

帶電粒子的磁矩與外加磁場平行,因此 H_{ZO}稱為順磁項(paramagnetic term)。而(13)式中得第二項

$$\vec{M}_2 = -\frac{e^2}{2m}\vec{r}\times\vec{A} \tag{15}$$

將磁場向量勢 $\vec{A} = -\frac{1}{2}(\vec{r} \times \vec{B})$ 帶入(15)式

$$\vec{M}_2 = \frac{e^2}{4m}\vec{r} \times \left(\vec{r} \times \vec{B}\right) = \frac{e^2}{4m}\left[\left(\vec{r} \cdot \vec{B}\right)\vec{r} - \left(\vec{r} \cdot \vec{r}\right)\vec{B}\right]$$
(16)

由(16)式可以知道 \vec{M}_2 是磁場 \vec{B} 感應出來的磁矩,由於磁場是均勻的,所以磁矩和磁場

耦合能量可以表示成

$$E = -\int_{0}^{B} M_{2}(B')dB' = -\frac{1}{2}\vec{M}_{2}\cdot\vec{B} = \frac{e^{2}}{8m} \left[r^{2}\vec{B} - \left(\vec{r}\cdot\vec{B}\right)\vec{r}\right] = \frac{e^{2}B^{2}}{8m}r_{\perp}^{2}$$
(17)

與(6)式比較便可得知, H_D 為感應磁矩與磁場的耦合能量。根據冷次定律(Lenz's law), 感應磁矩會反抗外加磁場,因此 H_D 被定義為反磁項(diamagnetic term),而反磁性的能量 與磁場的平方成正比。

根據(6)式,激子能量的反磁偏移(diamagnetic shift)可寫成

$$\Delta E_D = \frac{e^2 B^2 \langle \rho^2 \rangle}{8\mu} = \gamma B^2 \tag{18}$$

$$\gamma = \frac{e^2 \langle \rho^2 \rangle}{8\mu} \tag{19}$$

 γ 為反磁係數(diamagnetic coefficient)。可以發現反磁偏移的大小與激子的等效波函數半徑(effective wave function radius) $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ 以及激子的減縮質量(exciton reduced mass) μ 有關。在低磁場的情況下,磁場造成的微擾小於激子的 binding energy,所以能量會隨著磁場平方的關係而增加。在高磁場的情況下,磁場的迴旋能量(cyclotron energy)會超過激子的 binding energy 以及 confining energy,波函數會發生改變,而能量的偏移會與磁場 呈線性的關係。^[26]

$$\frac{dE}{dB} = \frac{e\hbar}{2\mu} \tag{20}$$

2.1.2 塞曼效應(Zeeman effect)

根據之前推導的結果,由(7)式,由塞曼效應產生的能量差可表示成

$$\Delta E_{ZO} = \frac{e\hbar\ell}{2\mu}B\tag{21}$$

ℓ是角量子數(angular quantum number)。對基態(ground state)而言,ℓ = 0,因此賽曼效 應產生的能量差 Δ*E*_{Z0} = 0;對激發態(excited states)來說, ℓ ≠ 0,所以會有能量差,稱 為軌道產生的塞曼分裂(orbital Zeeman splitting)。 除了由軌道角動量產生的磁矩而推導出能量差,另外,外加磁場同時會與電子的自旋(spin)角動量作用,也會造成能量的分裂,稱為自旋塞曼分裂(spin Zeeman splitting)。 其Hamiltonian的形式可表示成

$$H_{ZS} = g \frac{e}{2m_0} \vec{S} \cdot \vec{B}$$
(22)

g為自旋g因子(g factor), \vec{S} 為自旋角動量,所對應的量子數標記為s,電子自旋產生的 能量偏移寫成

$$\Delta E_{ZS} = g \frac{e\hbar}{2m_0} sB \tag{23}$$

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_0} \tag{24}$$

 μ_B 為波耳磁子(Bohr magneton)。當電子自旋為 $\frac{1}{2}$, *s*所允許的值為 $\pm \frac{1}{2}$, 自旋造成的塞曼分裂可表示為

$$\Delta E_{ZS} = \frac{g\mu_B B}{2} - \left(-\frac{g\mu_B B}{2}\right) = g\mu_B B \tag{25}$$

在零磁場時, $s = +\frac{1}{2}$ 與 $s = -\frac{1}{2}$ 這兩個狀態為簡併;在外加磁場的情況下,這兩個簡併 態的能量會產生分裂。自旋造成的塞曼效應不論在基態或者是激發態都存在,而且在零 磁場時,皆為兩個簡併態。當自旋為 $\frac{1}{2}$ 時,塞曼分裂與外加磁場的關係如圖2-1。當自旋 的方向與磁場同向,則能量會隨著磁場的增加而降低;若自旋的方向與磁場反向,則能 量的大小會隨著磁場增加而變大。



2.2 量子結構在磁場中的能階變化

由於量子點以及量子環的理論計算相當複雜,在這裡僅以簡單的模型來計算量子點 和量子環的能譜隨著磁場的變化。

2.2.1 量子點

在此主要考慮單一電子侷限在量子點內的量化能階。因為塞曼效應中自旋的部分, 其 Hamilton 非常小,因此在計算量子點的能譜時忽略不計。假設量子點為扁平的圓柱狀 (例如圓盤)(圖 2-2a),而電子在磊晶方向(z 軸)上的侷限區域遠小於垂直於磊晶方向(x y 平面)的侷限區域,造成電子在 z 軸上的量化能階差距會遠大於 x y 平面上的量化能階差 距,因此,在 z 方向的能量可視為定值,只考慮 x y 平面的量子侷限。假設位能 V(r)為 一個二維的拋物位井(parabolic confining potential)(圖 2-2b)

(a)
$$\vec{B}$$
 (b) $V(\vec{r}) = \frac{1}{2}m\omega_0^2\rho^2$ (26)

圖2-2 (a)圓盤狀的量子點外加垂直於樣品表面方向的磁場 (b)位能為拋物位井

而(4)式的Hamiltonian形式可另外表示成

$$H = \frac{\hat{p}^2}{2m} + \frac{1}{2}\omega_c \hat{L}_z + \frac{1}{8}m\omega_c^2 \rho^2 + \frac{1}{2}m\omega_0^2 \rho^2$$
(27)

$$\omega_c = \frac{eB}{m} \tag{28}$$

 ω_c 為電子的迴旋頻率(cyclotron frequency)。由於位能為軸向對稱,電子的波函數可寫成

$$\psi_{n\ell}(\vec{\rho}) = \frac{e^{i\ell\phi}}{\sqrt{2\pi}} \varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) \tag{29}$$

n為主量子數, ℓ 為角動量量子數。

根據
$$H\psi_{n\ell}(\vec{\rho}) = E_{n\ell}\psi_{n\ell}(\vec{\rho})$$
, 將(29)式代入(27)式可得

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2}{\partial\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho} + \frac{1}{\rho^2}\frac{\partial^2}{\partial\varphi^2}\right) + \frac{1}{2}\omega_c\left(\frac{\hbar}{i}\frac{\partial}{\partial\varphi}\right) + \frac{1}{8}m\omega_c^2\rho^2 + \frac{1}{2}m\omega_0^2\rho^2\right]\frac{e^{i\ell\varphi}}{\sqrt{2\pi}}\varphi_{n\ell}(\vec{\rho})$$

$$e^{i\ell\varphi}$$

$$=E_{n\ell}\frac{e^{n\ell}}{\sqrt{2\pi}}\varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) \tag{30}$$

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2}{\partial\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho} - \frac{\ell^2}{\rho^2}\right) + \frac{1}{2}\hbar\omega_c\ell + \frac{1}{2}m\rho^2\left(\omega_0^2 + \frac{1}{4}\omega_c^2\right)\right]\frac{e^{i\ell\varphi}}{\sqrt{2\pi}}\varphi_{n\ell}(\vec{\rho})$$

$$=E_{n\ell}\frac{e^{i\ell\varphi}}{\sqrt{2\pi}}\varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) \tag{31}$$

接著處理特徵值問題

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m}\left(\frac{\partial^2}{\partial\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial\rho} - \frac{\ell^2}{\rho^2}\right) + \frac{1}{2}m\omega_h^2\rho^2 - \varepsilon_{n\ell}\right]\varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) = 0$$
(32)

$$\omega_h = \sqrt{\omega_0 + \left(\frac{\omega_c}{2}\right)^2} \tag{33}$$

$$\varepsilon_{n\ell} = E_{n\ell} - \frac{1}{2}\hbar\omega_c\ell \tag{34}$$

 ω_h 為混合頻率(hybridized frequency)。在外加磁場的影響下,電子會感受到拋物位能而 且大小與 ω_h 有關。當B = 0時, $\omega_h = \omega_0$;當 $\omega_c \gg \omega_0$ 時, ω_h 會趨近於 $\omega_c/2$,因此, 當外加磁場B越大, ω_c 會越大,並且能增進侷限的效果。(32)式具有解析解

$$\varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) = \frac{1}{\ell_B} f_{n,|\ell|} \left(\frac{\rho^2}{2\ell_B^2}\right) \tag{35}$$

$$f_{n,\ell}(x) = \sqrt{\frac{n!}{(\ell+n)!} \cdot e^{-\frac{x}{2}} \cdot x^{\frac{\ell}{2}} \cdot L_n^{\ell}(x)}$$
(36)

$$\ell_B \equiv \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega_h}} \tag{37}$$

 $L_n^{\ell}(x)$ 為Laguerre-polynomial, ℓ_B 為磁長度(magnetic length)。將(35)式代入(29)式,可以得到波函數

$$\psi_{n\ell}(\vec{\rho}) = \frac{e^{i\ell\varphi}}{\sqrt{2\pi}}\varphi_{n\ell}(\vec{\rho}) = \frac{1}{\ell_B}f_{n,|\ell|}\left(\frac{\rho^2}{2\ell_B^2}\right) \cdot \frac{e^{i\ell\varphi}}{\sqrt{2\pi}}$$
(38)

最後,解出來的特徵值能量為

$$E_{n\ell} = \hbar\omega_h (2n + |\ell| + 1) + \frac{1}{2}\hbar\omega_c \ell \quad , \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad , \quad \ell = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (39)$$

在零磁場時, $B = 0 \Rightarrow \omega_c = 0 \Rightarrow \omega_h = \omega_0$, 能量的特徵值變成

$$E_{n\ell} = \hbar\omega_0 (2n + |\ell| + 1)$$
(40)

n和 e 彼此獨立,代入不同的值,可以得到在零磁場時,不同的能態的簡併數目,如圖 2-3。對基態(ground state)而言沒有其他簡併態,而第一激發態(first excited state)有兩個 簡併態,第二激發態(second excited state)則有三個簡併態,以此類推。然而,對激發態 而言,原本在零磁場時簡併的這些能態,會隨著磁場的增加使得能量發生變化,如圖2-4, 這個現象稱為塞曼效應(Zeeman effect),能量的分裂亦稱為塞曼分裂(Zeeman splitting)。





圖2-4 在不同磁場以及不同能態下,量子點的簡併態以及能量變化

另外,再來討論另一種情況,就是當磁場趨近於無限大時, $B \to \infty \Longrightarrow \omega_c \gg \omega_0$ $\Rightarrow \omega_h \to \frac{\omega_c}{2}$,因此能量特徵值可寫成

$$E_{n\ell} = \frac{1}{2}\hbar\omega_c(2n+|\ell|+1+\ell) = \hbar\omega_c\left(n_L + \frac{1}{2}\right)$$
(41)

$$n_L = n + \frac{1}{2}(|\ell| + \ell) \tag{42}$$

 n_L 為index of Landau level,當 $n_L = 0$ 時,能量會有最小值為 $E_{n\ell} = \frac{1}{2}\hbar\omega_c$,滿足此條件 的能態有 $(n,\ell) = (0,0) \times (0,-1) \times (0,-2) \times (0,-3) \times \dots$,這些能態在磁場趨近於無限大 時能量會簡併。另外,當 $E_{n\ell} = \frac{3}{2}\hbar\omega_c$ 時 $n_L = 1$,滿足的能態有 $(n,\ell) = (0,1) \times (1,0) \times (1,-1) \times (1,-2) \times \dots$,當磁場趨於無限大時能量會簡併,其餘的以此類推^[27],如圖2-5, 為量子點在不同的 (n,ℓ) 能態,能量隨著磁場的變化趨勢。



圖2-5 量子點之Fock-Darwin光譜

2.2.2 量子環

考慮量子環的內側加入一個均勻磁場 $\vec{B} = B\hat{z}$,如圖2-6(a)。就古典物理而言,量子 環中的帶電粒子沒有受到磁場作用,所以磁場不會影響量子環內的帶電粒子,然而,從 量子力學的角度來看,雖然磁場本身不會影響帶電粒子,但是磁場向量勢(vector potential) \vec{A} 卻會影響量子環中帶電粒子的相位。



由Stokes' theorem可知

$$\oint_{C} \vec{A} \cdot d\vec{l} = \iint_{S} (\vec{\nabla} \cdot \vec{A}) \cdot d\vec{S} = \iint_{S} \vec{B} \cdot d\vec{S} = \Phi_{B}$$
(43)

$$\Phi_B = \pi r_a^2 B \tag{44}$$

其中, Φ_B 為磁通量(magnetic flux)。而磁場向量勢為

$$\vec{A} = \frac{\Phi_B}{2\pi r} \hat{\varphi} \tag{45}$$

在均匀磁場下,一帶電粒子的Hamiltonian形式可表示為

$$H = \frac{1}{2m^*} \left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} - q\vec{A}\right)^2 + V = \frac{1}{2m^*} \left(-\hbar^2 \nabla^2 + q^2 A^2 + 2i\hbar q\vec{A} \cdot \vec{\nabla}\right) + V$$
(46)

在量子環中,位能V = 0 ($r_a < r < r_b$)。另外,考慮量子環的寬度為零,即令 $r_b - r_a = 0$,可視為一個理想的一維量子環,磁通量即可表式成 $\Phi_B = \pi r^2 B$ 。將 Hamiltonian 的形式

轉換成極座標

$$H = \frac{1}{2m^*} \left[-\frac{\hbar^2}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + \left(\frac{q\Phi_B}{2\pi r}\right)^2 + i\frac{\hbar q\Phi_B}{\pi r^2} \frac{\partial}{\partial \varphi} \right] \psi(\varphi) = E\psi(\varphi)$$
(47)

解線性微分方程:

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial \varphi^2} - 2i\beta \frac{\partial \psi}{\partial \varphi} + \epsilon \psi = 0 \tag{48}$$

$$\beta \equiv \frac{q\Phi_B}{2\pi\hbar} \tag{49}$$

$$\epsilon \equiv \frac{2m^* r^2 E}{\hbar^2} - \beta^2 \tag{50}$$

波函數的形式可寫成

$$\psi = A e^{i\lambda\varphi} \tag{51}$$

代入(48)式解得

$$\lambda = \beta \pm \sqrt{\beta^2 + \epsilon} = \beta \pm \frac{r}{\hbar} \sqrt{2m^*E}$$
(52)

因為在
$$\varphi = 2\pi$$
時,波函數 $\psi(\varphi)$ 為連續,因此 λ 為整數
 $\beta \pm \frac{r}{\hbar}\sqrt{2m^*E} = \ell$
(53)
最後解出

$$E_{\ell} = \frac{\hbar^2}{2m^* r^2} \left(\ell - \frac{q\Phi_B}{2\pi\hbar}\right)^2 \quad , \quad \ell = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$
(54)

其中 ℓ 為角動量量子數(angular momentum quantum number)。若帶電粒子為電洞,則 q = e;若為電子,則q = -e。(54)式可寫成

$$E_{\ell} = \frac{\hbar^2}{2m^* r^2} \left(\ell \pm \frac{\Phi_B}{\Phi_0} \right)^2 \quad , \quad \ell = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$
 (55)

(55)式中,正號對應到電子能階,負號對應到電洞能階。 Φ_0 為磁通量子(magnetic flux quantum), $\Phi_0 = h/e$,其中 h 為普朗克常數(Planck's constant)。根據(55)式,可以得到 不同角動量量子數其能量隨著磁場的變化,如圖 2-7。在零磁場的情況下,除了基態以 外,其餘的激發態都有兩個簡併態,能量會隨著外加的磁場而發生變化。另外,基態的 角動量量子數ℓ會隨著磁場的增加而變小 $(\ell = 0 \rightarrow \ell = -1 \rightarrow \ell = -2 \rightarrow \cdots)$,且量子 環的能量在固定增加磁場下會有一個反覆出現的周期震盪,此震盪是一個 Φ_B 的函數並 且有一個 Φ_0 的周期,此現象是因為帶電粒子在量子環內受到磁場向量勢 \overline{A} 影響其相位導致,這種量子現象稱為AB效應(Aharonov-Bohm effect)^[22]。



然而,真實的量子環是具有寬度的(如圖 2-6),因此,在外加均勻磁場下,真實量子 環不同角動量量子數其能量隨著磁場的變化如圖 2-8^[28],可以看到,基態的能量隨著磁 場的震盪較不明顯。



圖 2-8 電子在具有寬度的真實量子環內之能譜

第三章 樣品結構與實驗裝置

3.1 樣品結構

本研究使用的砷化銦(InAs)量子點以及量子環是使用分子束磊晶系統(Molecular Beam Epitaxy, MBE)生長,量子點的樣品結構如圖 3-1 所示。首先,在 600°C 的環境下, 先在砷化鎵(GaAs)基板上成長 200nm 的 GaAs 緩衝層(buffer layer),可使磊晶的表面平 坦以及減少表面缺陷。在緩衝層上再成長 30nm 的 Al_{0.35}Ga_{0.65}As 做為載子侷限層(carrier confine layer),以增加光強度。然後,再成長 150nm 的 GaAs,此層又稱為 barrier layer, 接著便將溫度降到 520°C,然後利用 Stranski-Krastanow (S-K)成長方法來成長 2.6 分子 層(monolayer, ML)的 InAs,因為超過臨界厚度,應力釋放而形成量子點,磊晶速率約 控制在 0.056 µ m/hr。當量子點形成後,再將溫度升回 600°C 並且覆蓋一層 150nm 的 GaAs。 緊接著成長 30nm 的 Al_{0.3}Ga_{0.7}As,最後覆蓋 50nm 的 GaAs 以保護結構,避免 Al_{0.3}Ga_{0.7}As 氧化。為了得到量子點在試片上的分佈密度以及形貌,在樣品的最頂層會以相同的長晶 條件成長一層 2.6 ML 的 InAs 量子點,以利於原子力顯微鏡(atomic force microscopy, AFM)的掃描實驗,根據 AFM 掃描的結果,可以得到量子點的尺寸以及密度。上述樣品 成長方法為量子點樣品 LM4683(QDs)之製作方式。



圖 3-1 量子點的樣品結構

圖 3-2 為量子環樣品 LM5133(QRs)的結構示意圖。量子環的製作方式,是在形成量 子點以後,部分覆蓋一層大約 2nm 的 GaAs (Capping layer), GaAs 薄層對量子點的解潤 濕現象(dewetting process),應力導致量子點中心的銦(In)原子會向外移動而形成中央凹 陷的環狀結構^[29],量子環的形成如圖 3-3。



圖 3-3 量子環的形成示意圖

實驗使用的量子點及量子環的樣品可分為兩組,一組樣品密度較高,約2×10¹⁰ cm⁻², 分別為 LM4683(QDs)、LM4593(QVs)、LM4729(QVs)以及 LM4691(QRs),因為樣品密 度高,在光激發螢光光譜實驗中被激發的量子結構較多,因此量到的螢光光譜訊號強度 較強,在此主要是作為一般光激發螢光光譜之不同量子結構其發光特性研究。而另一組 樣品是為了要量測外加磁場下,基態以及激發態的光譜遷移,因此需要密度較低的樣品 才容易看到載子在激發態的躍遷,密度大約1×10⁸ cm⁻²到9×10⁹ cm⁻² 左右,在此使用的 量子點樣品為 RN0069(QDs)、LM4698(QDs)以及 LM5148(QDs),還有量子環樣品 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)。

LM4683(QDs)、LM4593(QVs)、LM4729(QVs)、LM4691(QRs)這四片是在形貌上從 量子點演變至量子環的過程,後三片量子環為中央凹陷深度不同之環狀結構,其中 LM459(QVs)3及LM4729(QVs)因為中央凹陷程度不深所以又類似火山型結構(quantum volcanos,QVs)。這四片樣品主要是用來量測從量子點演進到量子環的過程中,由於結 構上的差異,會使得發光的特性有何改變。為了取得量子結構表面形貌以及密度,使用 AFM 來掃描樣品的表面,並且根據截面分析可以估計量子結構的尺寸。圖 3-4 為樣品 LM4683(QDs)、LM4593(QVs)、LM4729(QVs)及LM4691(QRs)的表面形貌圖。



圖 3-4 1×1 µm²的 AFM 表面形貌圖 (a) LM4683 (QDs) (b) LM4593(QVs)

(c) LM4729(QVs) (d) LM4691(QRs)

表 3-1 為這四片樣品在長晶時使用之條件,包括長晶溫度、長晶速率、沉積厚度, 以及為了要形成環狀結構所必須的退火步驟,包含退火溫度以及退火時間。退火的溫度 越高,以及退火的時間越長,都會使原子的移動力變快,而更快且更容易形成中央凹陷 的環狀結構。另外,由 AFM 掃描樣品表面的結果可以得到量子結構的表面形貌以及尺 寸,相關資訊列於表 3-1,可以看到當量子點逐漸形成量子環的過程中,由於量子結構 中心的銦原子會向外擴散,而導致其量子結構的直徑會越來越大,且高度會越來越小。 量子結構的製成的條件會影響到量子結構的尺寸,而尺寸的大小也會影響到載子在量子 結構中的躍遷能量。

	LM4683 (QDs)	LM4593 (QVs)	LM4729 (QVs)	LM4691 (QRs)
Temperature (°C)	525	525	525	525
Rate (µm/hr)	0.056	0.056	0.056	0.056
Deposition amount (ML)	2.6	2.6	2.8	2.6
Anneal Time (s)	_	50	5	10
Anneal Temp. (°C)	-	450	525	525
Base Width (nm)	40	50	55	60
Height (nm)	14	2	1.7	1
Hole Depth (nm)	_	0.8	2	1.5
Density (cm ⁻²)	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰	2×10 ¹⁰
Ground state (eV)	1.099	1.149	1.171	1.222

表 3-1 LM4683(QDs)、LM4593(QVs)、LM4729(QVs)及LM4691(QRs)的製程條件及尺

寸,以及基態躍遷能量

在磁場光激發螢光光譜實驗中,除了研究基態在外加磁場下受到反磁性位移的影響 之外,還要研究激發態在磁場下之塞曼效應。因為在相同的激發功率下,量子結構中密 度較低的,其單一顆量子結構中的載子數目較多,載子容易在低能階達到飽和而填入較 高的能階,而產生高能階的螢光。為了得到量子結構在激發態中的發光,因此在磁場光 激發螢光光譜實驗中,使用密度較低樣品。表 3-2 為磁場螢光光譜實驗中使用的樣品, 其製程條件以及量子結構的尺寸,還有載子在基態的躍遷能量。通常長晶溫度越高,原 子的移動力變快且容易聚集在一起,造成量子結構的密度變低,尺寸變大。所以在磁場 螢光光譜實驗所使用的樣品與表 3-1 的樣品相比,長晶的溫度較高,而使得樣品密度較 低,且尺寸也比較大。

	RN0069 (QDs)	LM4698 (QDs)	LM5148 (QDs)	LM5133 (QRs)	LM5149 (QRs)
Temperature (°C)	510	544	550	535	545
Rate (µm/hr)	0.056	0.056	0.056	0.056	0.056
Deposition amount (ML)	2.6	3.0	2.2	2.2	2.4
Anneal Time (s)	—	—	—	10	10
Anneal Temp. (°C)	_	_	_	500	525
Base Width (nm)	110	78	73	70	87
Height (nm)	10	27	3	1	0.5
Hole Depth (nm)	_	_	—	1.8	0.5
Density (cm ⁻²)	1×10 ⁸	7×10 ⁹	7×10 ⁹	9×10 ⁹	9×10 ⁹
Ground state (eV)	1.104	1.126	1.159	1.218	1.225

表 3-2 不同樣品的製程條件及尺寸,以及基態躍遷能量

3.2 光激發螢光光譜

3.2.1 發光機制

光激發螢光(Photoluminescence, PL)是材料吸收光子後產生電子電洞對,而電子從 較高能態躍遷至較低能態之輻射復合(radiative recombination),並放出光子的過程,可用 來檢測半導體材料的發光特性。光激發螢光可以得到材料的能階結構以及載子的躍遷行 為,是一種非破壞性的分析技術。藉由分析螢光光譜可以得知材料的發光強度、發光波 段、摻雜的雜質種類以及材料結構的品質等等。

半導體之光激發螢光過程如圖 3-5。當材料吸收入射光子的能量,當入射光子的能 量要高於半導體的能隙時,價電帶(valence band)的電子會因為獲得了入射光子的能量而 躍遷至導電帶(conduction band),在價電帶留下電洞而形成了電子電洞對(electron-hole pair),接著藉由聲子的作用,電子與電洞會釋放部分能量而分別到導電帶與價電帶能量 最低的地方,然後電子電洞對會產生輻射復合而發出螢光。



圖 3-5 光激發螢光機制

3.2.2 光激發螢光光譜(photoluminescence, PL)量測系統

光激發螢光光譜量測系統之實驗架設如圖 3-6。我們使用的激發光源為氫離子雷射 (Argon laser),波長為 488 nm,利用反射鏡(mirror)以及透鏡(lens)將雷射光聚焦在待量測 的樣品上,被雷射激發的樣品產生電子電洞對,而電子電洞對復合後發出螢光,再透過 另一面透鏡將樣品發出的螢光聚焦進光譜儀的狹縫中,經過光譜儀內的光柵(grating)分 光後,再由連接在光譜儀出口端的 InGaAs 偵測器接收訊號,並且將訊號傳到電腦後便 可得到光激發螢光光譜。

實驗裝置如下:

- 1. 氫離子雷射(Argon laser):波長為488 nm,作為激發樣品的光源。
- 2. 光衰減片(neutral density filter):用來調整雷射光的激發強度。
- 3. 斷波器(chopper)以及鎖相放大器(lock-in amplifier):將斷波器輸出的參考頻率輸入至鎖相放大器,而雷射光源也會變成周期性光源來激發樣品,使得樣品發出的螢光也帶有周期性訊號並輸入至鎖向放大器中,鎖相放大器便能將帶有此周期的訊號放大,以及將非此周期訊號的雜訊過濾。
- 4. 致冷座(cryostat):有降溫功能,可使樣品從13K至室溫下之溫度範圍進行量測。
- 5. 光譜儀(monochromator):內部的光柵可進行分光,光柵的解析度為1200 gr/mm, 焦距55 cm。
- 6. 偵測器(detector):配合待測樣品的發光波長,我們選擇InGaAs的材料偵測樣品的 訊號,InGaAs的響應範圍約在750 nm~1750 nm,並且使用電子式冷卻系統 (thermal-electric cooled)來進行降溫,可得到較好的偵測效率。



圖3-6 光激發螢光之實驗架設

3.2.3 磁場光激發螢光光譜(Magneto-photoluminescence)量測系統

在磁場下的光激發螢光光譜實驗架設如圖 3-7。我們使用的激發光源為掺鈦藍寶石 雷射(Ti:Sapphire laser),是一種固態可調雷射,輸出波長範圍約在 700 nm~1000 nm。 量測選擇的波長為 750 nm (1.65 eV),是因為入射的能量要大於砷化鎵的能隙(約1.5 eV), 如此一來,才可在砷化鎵的材料上激發出更多電子電洞對,再藉由聲子的作用釋放部分 能量而到量子點的能階上復合並且發出螢光。為了看到量子點在激發態的發光,因此需 要高激發功率,而雷射波長在 750 nm 時的平均功率約為 1 W,所以選用掺鈦藍寶石雷 射為激發光源。雷射光輸出後,透過物鏡聚焦將光導進光纖,經由光纖傳輸的雷射光在 打到樣品之前會透過一個小聚焦鏡聚焦,如此一來可使雷射光打到樣品時的聚焦點縮小 約為 2 mm,以增加雷射光的激發密度,可以看到量子點在激發態的發光。打入的雷射 激發樣品產生電子電洞對,而電子電洞對復合後發出來的螢光,會被另一條光纖收集起 來並且傳輸至光纖的另一端,然後再經由兩面透鏡使光變平行再聚焦後導入光譜儀上, 經過光譜儀解析後再經由熱電冷卻的 InGaAs 偵測器接受以及訊號的轉換,便可得到光 激發螢光的光譜。

因為要在低溫減少熱擾動以及外加高磁場,必須使用杜瓦瓶(Dewar flask)來進行實驗。我們使用的是Oxford公司的 variable temperature insert (VTI)系統,另外利用幫浦抽走He⁴氣體,隨著壓力下降的同時,可使量測溫度從原本液氦溫度(4.2 K)降到1.4 K,超導磁鐵可提供均勻磁場範圍為0 T到14 T。為了維持長時間的低溫運作,磁場系統的正中間為放置樣品的真空層,向外依序為放置磁鐵的液態氦冷卻層、液態氮冷卻層以及真空隔絕層,如此可降低液態氦的揮發速率。樣品位置必須放在磁鐵的正中心才能得到正確的磁場強度,而磁場的方向是沿著樣品成長的方向,即為法拉第配置(Faraday Configuration)。


圖 3-7 在強磁場下量測光激發螢光之實驗架設

第四章 實驗結果與討論

4.1 量子點與量子環之螢光光譜

零維量子結構主要可分為量子點以及量子環,兩者在形貌上有很大的差異,也影響 了發光的特性。在此部分主要研究的其中一組樣品為 LM4683(QDs)、LM4593 (QVs)、 LM4729 (QVs)以及 LM4691(QRs)。這四片樣品為在形貌上從量子點演進至量子環的過 程,後三片為中央凹陷深淺不一的環狀結構,其中 LM4593(QVs)以及 LM4729(QVs)又 因為凹陷程度淺,類似火山型結構(QVs)。另一組樣品是量子點 LM5148(QDs)以及量子 環 LM5149(QRs)。再來是將量子點樣品 LM4698(QDs),比較不同的熱退火溫度之樣品 的發光特性。

4.1.1 量子點到量子環發光藍移

從量子點到量子環的形成過程,對應到光譜的發光能量也會有所偏移。圖 4-1 是樣 品 LM4683 (QDs)、LM4593 (QVs)、LM4729 (QVs)以及 LM4691 (QRs)之光激發螢光光 譜,以及四片樣品 1×1 µm²的 AFM 表面形貌圖。量測系統為 3.2.2 節介紹的光激發螢 光光譜(PL)量測系統,量測溫度為 13 K,雷射光激發功率 10 mW,激發密度約為 100 W/cm²。根據光激發螢光光譜的結果,當量子點演變至量子環,基態(ground state,GS) 發光的能量會越來越高,從量子點到量子環基態的發光能量分別為 1.099 eV、1.149 eV、 1.171 eV 以及 1.222 eV。然而,從量子點到量子環的形成過程中,結構中的高度會漸漸 變低,而寬度也就是直徑會漸漸變大,表 4-1 為量子點形成至量子環的尺寸變化。一般 而言,高度較小因為量子侷限效應其發光的能量會較高,所以,從量子點演變至量子環 的過程發光的光譜會發生藍移的現象。從量子點到量子環的形成會使得發光藍移也可從 另一角度去解釋,就是退火(annealing)的步驟,從量子點演變到量子環必須經過一道退 火的步驟才能形成環狀結構,而 LM4593(QVs)、LM4729(QVs)以及 LM4691(QRs)是有 經過退火的樣品,由於退火的時間不同會使得量子結構有所不同,當退火時間越長,環 狀結構半徑會越大,且中央凹陷的地方會越深,形貌會越像環狀。因為退火的時間越長, 會使得銦原子與鎵原子混合越嚴重,造成鎵的含量越高。而砷化銦在低溫下的能隙(band gap, Eg)大約 0.417 eV,砷化鎵的能隙大約 1.519 eV^[30],以在砷化銦鎵的材料中,鎵的 比例較高時會有較大的能隙,而造成發光能量較高。所以從量子點到量子環的形成過程, 發光能量會藍移。



圖 4-1 在 13 K, 激發功率 10 mW 下, 量子點到量子環形成過程之光激發螢光光譜

	LM4683 (QDs)	LM4593 (QVs)	LM4729 (QVs)	LM4691 (QRs)
Base Width	40 nm	50 nm	55 nm	60 nm
Height	14 nm	2 nm	1.7 nm	1 nm
Hole Depth		0.8 nm	2 nm	1.5 nm
Density	$2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$			

表 4-1 量子點形成至量子環之量子結構尺寸

另外,在量子結構中直徑較大者,其能階間之能量差會較小。圖 4-2(a)為量子點到 量子環的形成過程之光激發螢光光譜,量測溫度為 13 K,激發功率為 50 mW,激發密 度約為 500 W/cm²,在高激發功率下可以看到光譜中明顯的兩個峰值,分別是載子在基 態與第一激發態的躍遷,另外還有較小的峰值為載子在第二激發態的躍遷。隨著量子點 到量子環的形成過程,載子在量子結構中發光的能量會藍移,另外,基態與第一激發態 之能量差以及第一激發態(1st excited state, ES1)與第二激發態(2nd excited state, ES2)之能 量差會變小。圖 4-2(b)是將三種不同的量子結構其能階間之能量差的變化趨勢。就量子 點而言,其基態與第一激發態的能量差約為 70.4 meV,而在演進到量子環的過程中,能 量差會縮小至 61.2 meV 然後再到 55.9 meV,此外,量子點之第一激發態與第二激發態 的能量差為 61.2 meV,在演變至量子環的過程中,能量差也會縮小到 50.9 meV,再減 小到 39.3 meV。從量子點演變至量子環的過程中,因為退火時錮原子會向外擴散而導致 量子結構中的高度變小且直徑變大,所以從螢光光譜中可以看到載子在量子結構中的發



一般量子結構的大小是呈高斯分佈,所以其對應的發光光譜也是呈高斯分佈,而光 譜峰值的半高寬(full width at half maximum, FWHM)可以代表樣品之量子結構尺寸的均 匀性,半高寬越窄,表示量子結構大小越一致。如圖 4-3 是 LM5148(QDs)量子點及 LM5149(QRs)量子環的光激發螢光光譜圖,量測系統為 3.2.3 節介紹的磁場光激發螢光 光譜(Magneto-photoluminescence)量測系統,量測溫度為 1.4 K, 雷射光激發功率 2 mW, 激發密度約為 0.05 W/cm²。光激發螢光光譜中,量子點在基態峰值的半高寬大約為 40 meV,而量子環的半高寬明顯的比量子點小,大約 29 meV,這是因為量子環在形成時 會多經過一道退火的步驟,會使得量子結構的均勻性變好,而造成半高寬變小。



圖 4-4 是量子點樣品 LM4683(QDs)在 13 K 以及 300 K 之螢光光譜,激發功率皆為 10 mW,為了方便觀察,所以將 300 K 的螢光訊號放大了兩倍。在 300 K 下,基態的發 光能量約 1.026 eV,而 13 K 則為 1.103 eV。在低溫下少了熱效應,量測到的量子點發 光能量會比在室溫量測高,且放光的強度也較強。因為在半導體中,溫度會影響能隙的 大小,通常溫度越高,能隙會越小,所以在 300 K 下量測量子點的發光能量會比 13 K 時低。



圖 4-4 LM4683(QDs)激發功率 10 mW,在 13 K 以及 300 K 之螢光光譜比較

4.1.2 不同熱退火溫度之螢光光譜

為了驗證量子環在製成過程中,退火的步驟會影響其發光特性,因此在此研究量子 點在不同熱退火溫度下的螢光光譜比較實驗。將量子點樣品 LM4698(QDs)切成好幾片, 然後進行快速熱退火(rapid thermal annealing,RTA)處理,退火時間皆為30秒,並且加 以不同熱退火的溫度,分別為800℃、825℃、850℃、875℃以及900℃,然後將這五片 樣品以及沒有經過熱退火的樣品作光激發螢光光譜的量測,並且比較其發光特性。圖4-5 為樣品 LM4698(QDs)在不同熱退火溫度下的光激發螢光光譜比較,量測溫度為18 K, 雷射激發功率為30 mW,激發密度約為300 W/cm²。由螢光光譜中可以發現在沒有經過 熱退火的樣品,基態的發光能量大約1.127 eV,隨著熱退火的溫度升高,量子點的發光 能量也會跟著越來越高,而退火溫度為900℃的樣品其基態發光能量約1.348 eV。另外 可以發現,在未經過熱退火的樣品中,基態與第一激發態的能量差以及第一激發態與第 二激發態的能量差分別為63 meV 以及48 meV,而當熱退火溫度升高,能階的間距也會 隨之變小,在900℃的樣品,其能態間之能量差分別為27 meV 以及25 meV。這個現象 的原因可能是因為錮原子與鎵原子之間的擴散有關,當熱退火溫度越高,鎵原子的含量 變高,而使得能隙變大,造成量子點的發光能量變高。另外,因為經過熱退火,會使得 量子點的均勻性變好,對應到螢光光譜則是發光之峰值的半高寬變窄。



圖 4-5 LM4698(QDs)在 18 K, 激發功率 30 mW 下, 不同熱退火溫度之光激發螢光光譜

不同熱退火溫度的量子點樣品的光激發螢光光譜結果,其基態、第一激發態以及第 二激發態的發光能量位置對熱退火溫度的關係如圖 4-6(a),每一個能階的發光能量都會 隨著熱退火的溫度變高而藍移,熱退火溫度 900℃在基態的發光能量比 800℃的發光能 量高了大約 170 meV。圖 4-6(b)是基態與第一激發態的能量差以及第一激發態與第二激 發態的能量差對不同熱退火溫度的關係,當熱退火溫度越高,能階間之能量差會越小, 大約從 45 meV 減小到 25 meV。另外,圖 4-6(c)是在不同熱退火溫度下,光譜中基態峰 值之半高寬的變化,可以發現當退火溫度從 800℃升到 900℃,半高寬會從 38 meV 縮小 至 15 meV,代表著量子點的均勻性會因為熱退火的溫度越高而變好,而使得頻譜中峰 值的半高寬會越來越小。



圖 4-6 LM4698 在 18 K,激發功率 30 mW 下,不同熱退火溫度之(a)發光能量 (b)能階間之能量差 (c)半高寬

4.2 量子點之磁場光激發螢光光譜

一般量子點在零磁場時的光激發螢光光譜,在外加磁場的情況下,會造成光譜的遷移,主要是受到幾個主要的效應影響,一個是反磁性位移,激子感應磁矩反抗外加磁場造成的效應,另一個主要的影響為塞曼效應,在均勻的磁場下位產生光譜的分裂。在這裡主要提供磁場光激發螢光光譜量測的量子點樣品分別為 RN0069(QDs)、LM4698(QDs) 以及 LM5148(QDs)。

4.2.1 零磁場功率相依光譜

圖 4-7 是樣品 RN0069(QDs)在 1.4 K 下,不同的 雷射光激發功率之下的光激發螢光 光譜圖,量測的功率範圍是在 2 mW 到 650 mW,因為此雷射功率數值是耦合進光纖之 前的功率值,在經過耦合進光纖後以及聚焦點大小為 0.2 cm 的計算之下,實際上激發樣 品的激發功率密度範圍是在 0.05 W/cm² 到 16.25 W/cm²之間,但是為了求方便,以下都 以耦合進光纖前的雷射功率來表示。在低功率的情況下,只有單一個峰值,此為量子點 在基態(ground state,GS)的發光,半高寬(full width at half maximum,FWHM)大約為 33 meV,半高寬的大小反映出量子點尺寸的均勻度。然而,隨著激發強度的增加,有越來 越多的峰值出現,在雷射功率為 650 mW 時,出現了四個明顯的峰值,能量從低到高依 序為基態(GS)、第一激發態(1st excited state,ES1)、第二激發態(2nd excited state,ES2) 以及第三激發態(3rd excited state,ES3)。在高能量的區域,可以看到兩個明顯的峰值, 分別為 InAs 的潤濕層(wetting layer,WL)的發光以及基板 GaAs (barrier layer)的發光,發 光能量分別約為 1.45 eV 和 1.5 eV。

每一條光譜的發光強度與其對應到能階上的載子數成正比,為了方便觀察當改變激發功率時各個能階載子數量的變化,所以將圖 4-7(a)的光譜圖對基態作歸一化,得到圖 4-7(b)。在高激發功率的光譜中,因為激發功率提高所提供的載子數很多,可從基態填滿飽和後一路往高能量的地方填,使得激發態的載子數變多,反映在光譜圖上,激發態在高功率時的譜線強度有所提升。因此,根據圖 4-7(b)的光譜圖可以判定圖中不同峰值是代表量

子點不同能階的發光,並不是來自於很多組尺寸相異量子點群各自的基態發光,因為若是這種情況,光譜的強度比會反映各組量子點群的數量比,而與雷射激發功率無關。所以經由圖 4-7(b) 可以確認這些峰值是來自於同一群尺寸相近的量子點之基態與激發態的躍遷訊號。



圖 4-7 RN0069 (QDs) (a) 變激發功率之光激發螢光光譜 (b)將基態歸一化之光譜圖

一般量子點的尺寸大小是呈高斯分佈,所以由不同尺寸對應到的各個量子點內同一 個能階的能量分佈也是會呈高斯分佈,因此,多組的能階躍遷所貢獻出的螢光光譜圖便 可以使用數條高斯譜線的疊加來擬合。如圖 4-8,為樣品 RN0069(QDs)在 650 mW 的雷 射激發功率之下的光激發螢光光譜圖,並且由多組高斯譜線疊加擬合,可以知道量子點 基態的躍遷能量為 1.104 eV,而激發態躍遷的能量分別為 1.165 eV、1.218 eV、1.269 eV 以及 1.31 eV。



圖 4-8 RN0069(QDs)激發功率 650 mw 時螢光光譜圖與其高斯擬合之圖形

圖 4-9 為量子點樣品 LM4698(QDs)在 1.4 K下,變激發功率之光激發螢光光譜。在 激發功率為 2 mW 時,只有基態的發光,量子點在基態的躍遷能量約 1.126 eV,半高寬 大約為 30 meV,由半高寬的大小反映出量子點尺寸的均勻度很高。當雷射的激發功率 增加,光譜中峰值的個數也會變多,當激發功率為 650 mW 時,出現兩個明顯的峰值, 分別為基態與第一激發態的發光,另外還有小部份第二激發態的發光,第一激發態與第 二激發態躍遷的能量分別為 1.188 eV 以及 1.24 eV。



圖 4-10 為量子點樣品 LM5148(QDs)在 1.4 K下,變激發功率之光激發螢光光譜。 在激發功率為 2 mW 時,量子點在基態的躍遷能量約 1.159 eV,半高寬大約為 40 meV。 當雷射的激發功率增加,螢光光譜中峰值的數目也會越來越多,且發光的強度也會越來 越大。當激發功率為 650 mW 時,出現三個峰值,分別為載子在基態的躍遷,以及載子 在第一激發態與第二激發態的躍遷,而第一激發態與第二激發態躍遷的能量分別為 1.23 eV 以及 1.278 eV。



將三個量子點樣品之光激發螢光光譜利用多組高斯譜線疊加擬合,得到不同樣品在 各能階發光的能量值,如表4-2。因為樣品 RN0069(QDs)的量子點密度較低(約1×10⁸ cm⁻²), 因此與其他兩個樣品相比(密度約 7×10⁹ cm⁻²),在相同的激發功率密度下,一樣數量的 載子可以填到的量子點數目較少,所以對單一個量子點而言,載子在低能量的能階上較 容易達到飽和,因而填到較高能量的能階上,所以量測到的光譜會出現較多的能階數 目。

	RN0069 (QDs)	LM4698 (QDs)	LM5148 (QDs)
GS (eV)	1.104	1.126	1.159
ES1 (eV)	1.165	1.188	1.230
ES2 (eV)	1.218	1.240	1.278
ES3 (eV)	1.269		

表 4-2 量子點樣品在各能階之能量

4.2.2 磁場螢光光譜與分析方法

在外加均匀磁場的情況下,光激發螢光光譜會產生遷移,主要是受到了反磁性位移 以及塞曼效應的影響。在磁場光激發螢光光譜的實驗中,量測之磁場範圍為OT到14T, 磁場間隔為 0.5 T,使用的量測系統為磁場光激發螢光光譜(Magneto-photoluminescence) 量測系統,量測溫度大約為1.4K。圖4-11為量子點樣品RN0069(QDs)的磁場光激發螢 光光譜,激發功率 650 mW,激發密度約 16.25 W/cm²,由於樣品 RN0069(QDs)的密度 很低(約 1×10⁸ cm⁻²),所以可以明顯地看到載子在基態、第一激發態以及第二激發態的 躍遷。量子點在外加均勻磁場下,光譜中基態的發光峰值所對應到的能量,會隨著磁場 的增加而往高能量移動,此現象稱為藍移,而第一激發態以及第二激發態的峰值會隨著 磁場的增加而產生分裂。為了要清楚定義能量的位置,每一張能譜都使用數條高斯譜線 去擬合。對基態而言,在外加磁場的情況下不會產生分裂,只會受到反磁性位移的影響 而產生能量位置的藍移;對第一激發態來說,除了反磁性位移的影響之外,還受到了塞 曼效應的影響而產生能階的分裂,而在零磁場時的簡併數目為兩個,所以在外加磁場的 光譜中,使用兩個高斯譜線去擬合;第二激發態在零磁場時的簡併數目是三個,所以在 外加磁場光譜中用三個高斯譜線去擬合。圖 4-11 為磁場在 0 T、7 T、14 T 時,使用數 條高斯譜線去擬合的結果,以及可以看出不同的能態其能量分裂的過程。量測圖中,黑 色空心圓點是原始的量測數據,實線代表的是擬合時使用的高斯譜線,深藍色線為光譜 中基態發光的部分,紅色實線屬於第一激發態的部分,藍色實線為第二激發態的部分, 以及桃紅色線為同一張光譜中,每一條高斯譜線最後疊合的結果。第一激發態在外加磁 場的情況下分裂成兩個,第二激發態分裂成三個。數條高斯譜線擬合疊加後的結果會與 原始的量測數據一致。



圖 4-11 RN0069(QDs)激發功率為 650 mW,在磁場為 0 T、7 T、14 T 時,利用數條高 斯譜線去擬合的結果以及能量分裂的過程。黑色空心圓點是原始的量測數據,實線為不 同條高斯譜線,深藍色線為基態的部分,紅色線為第一激發態的部分,藍色線為第二激 發態的部分,以及桃紅色線為數條高斯譜線最後疊合的結果。第一激發態在外加磁場的 情況下分裂成兩個,第二激發態分裂成三個。數條高斯譜線擬合疊加後的結果與原始的 量測數據一致。

圖 4-12 為樣品 RN0069(QDs)在激發功率 650 mW 下的磁場光激發螢光光譜,磁場範圍 0 T 到 14 T,每隔 1 T 有一條譜線,由圖 4-12 可以看到隨著磁場變化,光譜遷移的趨勢。



圖 4-12 RN0069(QDs)激發功率 650 mW 時的磁場螢光光譜

將光譜經由高斯擬合得到每一個能態之發光能量對磁場作圖,如圖 4-13。圖中,黑 色點為基態的峰值對磁場的關係,其主量子數以及角動量量子數 (n, ℓ) 為(0,0); 紅色點為第一激發態的部分,而且在外加磁場的情況下,峰值會從一個分裂成兩個,分別代表 (0,1)及(0,-1)這兩個能態,(0,1)的能態之能量會隨著磁場增加而變大,(0,-1)的能 態會隨著磁場的增加而能量變小;藍色點為第二激發態的部分,在有磁場的情況下,峰 值會從一個分裂成三個,分別為(0,2)、(1,0)、(0,-2)三個能態,(0,2)的能態其能量會 隨著磁場增加而越來越大,而(0,-2)的能量會隨著磁場的增加而變小。對基態而言, 能量的偏移只有受到反磁性位移的影響,所以能量的變化會與磁場的平方成正比, $\Delta E_D = \gamma B^2$,其中 γ 為反磁係數,可以經由擬合的結果得到反磁係數的大小。而對第一 激發態來說,因為外加磁場而產生能量分裂,而能量差為塞曼效應影響產生的塞曼分裂, $\Delta E_{+1} = e\hbar B/\mu$,能量差會對磁場呈線性的關係。另外,第二激發態因為塞曼效應而會分 裂成三個,其主量子數以及角動量量子數(n, ℓ)分別為(0,-2)、(1,0)、(0,2),根據塞曼 效應的能量差 $\Delta E_{z} = e\hbar \ell B/2\mu$,因此 (0,-2) 跟 (0,2) 這兩個能態對應到的能量差會對 磁場呈線性的關係。在激發功率為 650 mW, 第一激發態在 14 T 時能量分裂的大小約為 30 meV, 第二激發態約為 60 meV。另外, 藉由第一激發態以及第二激發態之簡併態的 能量分裂對磁場的關係,可以求出激子的等效質量。

圖 4-14 為理論計算中,量子點在不同能態下,其簡併態以及能量對磁場的變化關 係圖。由實驗分析的結果與理論計算的結果比較,可以發現能量對磁場的變化趨勢是一 致的。



圖 4-14 不同能態下,量子點的簡併態以及能量隨磁場的變化

4.2.3 基態反磁性位移與遮蔽效應(screening effect)

圖 4-15 為量子點樣品 RN0069(QDs)在不同激發功率下的磁場螢光光譜,量測 的雷射激發功率範圍從 2 mW 到 650 mW,激發密度約在 0.05 W/cm² 到 16.25 W/cm²之 間。由磁場螢光光譜,可以得到量子點的光激發螢光光譜隨著磁場的增加而產生遷移。 而光譜中,基態的發光能量會隨著磁場的增加而往高能量處偏移,此現象稱為反磁性位 移(diamagnetic shift)。反磁所造成的能量變化與磁場的平方成正比, $\Delta E_D = \gamma B^2$, 藉由 這個關係可以得到反磁係數 γ (diamagnetic coefficient)。在激發功率 2 mW,由磁場螢光 光譜可以看到只有一個峰值,也就是載子在基態的躍遷。當激發功率為70mW以及150 mW 時,除了基態的發光之外,還有一小部分為第一激發態的發光。激發功率為 250 mW 以及 350 mW 時,由磁場螢光光譜中可以發現,除了載子在基態的躍遷之外,還可以看 到第一激發態隨著磁場的增加,峰值會有分裂的情形。當激發功率增加至最高 650 mW 時,可以觀察到除了第一激發態的分裂之外,第二激發態也有明顯的分裂。將磁場螢光 光譜中,基態發光的能量位置對磁場作圖,可以得到不同激發功率下之基態反磁係數。 圖 4-16 為樣品 RN0069(QDs)在激發功率 150 mW 時,基態的能量對磁場的關係,根據 能量的變化會與磁場的平方成正比,藉由擬合可以得到反磁係數 $\gamma = 11.15 \, \mu eV/T^2$ 。另 外,圖 4-17 為量子點樣品 LM4698(QDs)在激發功率為 150 mW、250 mW 以及 650 mW 下之磁場螢光光譜。圖 4-18 為樣品 LM4698(QDs)在激發功率 250 mW 時,基態的能量 對磁場的關係,經由擬合求得的反磁係數為 $\gamma = 8.3 \,\mu eV/T^2$ 。量子點樣品 LM5148(QDs) 在激發功率 250 mW 以及 650 mW 之磁場螢光光譜如圖 4-19。由光譜中,基態的能量對 磁場的關係可以求得基態的反磁係數,而樣品 LM5148 (QDs)在激發功率為 650 mW 時, 基態的反磁係數為 $\gamma = 12.13 \, \mu eV/T^2$, 如圖 4-20。



圖 4-15 RN0069(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜 (a) 2 mW (b) 70 mW (c) 150 mW (d) 250 mW (e) 350 mW (f) 650 mW



圖 4-16 RN0069(QDs)激發功率 150 mW 時,基態的能量對磁場的關係



圖 4-17 LM4698(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜 (a) 150 mW (b) 250 mW (c) 650 mW



圖 4-18 LM4698(QDs)激發功率 250 mW 時,基態的能量對磁場的關係



圖 4-19 LM5148(QDs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜 (a) 250 mW (b) 650 mW



圖 4-20 LM5148(QDs)激發功率 650 mW 時,基態的能量對磁場的關係

將不同的量子點樣品,在不同的激發功率下,經由實驗結果得到基態的反磁係數整 理在表 4-3。可以明顯的觀察到,對於同一個量子點樣品,當激發功率增加,反磁係數 會增加,到了高激發功率下反磁係數的值會接近飽和,如圖 4-21 為樣品 RN0069(QDs) 在不同激發功率下之基態反磁係數的變化。反磁係數造成的能量偏移如(56)式

$$\Delta E_D = \gamma B^2 = \frac{e^2 \langle \rho^2 \rangle B^2}{8\mu} = \frac{e^2}{8m_0} \left(\frac{\langle r^2 \rangle^e}{m_r^e} + \frac{\langle r^2 \rangle^h}{m_r^h} \right) B^2$$
(56)

激子的反磁性位移不僅會受到減縮質量的影響,激子的侷限位能(confinement potential) 的強度亦會影響反磁現象。外加磁場會使激子在垂直磁場的方向上受到侷限並且使其能 量增加,另外,反磁係數會隨著侷限位能的增加而減少,也就是說,電子和電洞的波函 數在量子點中的空間分離量減少。在低激發密度時,電子和電洞之間有較強的庫倫作用 力(Coulomb interaction),使得電子和電洞的空間分離量較低, $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ 的值較小;在激發 密度較高時,量子點內填入了較多的載子而產生遮蔽效應(screening effect),使得電子和 電洞之間的相互吸引力減低,庫倫作用力較弱, $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ 的值較大,因此造成反磁係數變 大。然而,遮蔽效應的影響也在我們的實驗當中被驗證。

γ ($\mu eV/T^2$)	RN0069 (QDs)	LM4698 (QDs)	LM5148 (QDs)
2mW	8.87 ± 0.3		
70mW	10.91 ± 0.2		
150mW	11.15 ± 0.1	8.37 ± 0.2	
250mW	12.44 ± 0.2	8.30 ± 0.1	10.04 ± 0.3
350mW	12.48 ± 0.3		
650mW	12.25 ± 0.2	10.06 ± 0.2	12.13 ± 0.1

表 4-3 量測量子點樣品在不同激發功率下基態的反磁係數



圖 4-21 RN0069(QDs)在不同激發強度之下基態的反磁係數

4.2.4 激發態塞曼分裂(Zeeman splitting)與等效質量

量子點在外加磁場的情況下,原本在零磁場時簡併的能態會產生能階分裂,這個現 象稱為塞曼效應。塞曼效應又可分為兩種,一種是軌道塞曼分裂(orbital Zeeman splitting), 而另一種是自旋塞曼分裂(spin Zeeman splitting)。然而,軌道塞曼效應的能量差 $\Delta E_{ZO} = \frac{e\hbar}{2m^*} \ell B$, ℓ 為角動量量子數;自旋塞曼效應的能量差 $\Delta E_{ZS} = g \frac{e\hbar}{2m_0} sB$, s 為自 旋角動量量子數, $s = \pm \frac{1}{2}$, g 為自旋 g 因子,對於長在砷化鎵上的砷化銦(InAs/GaAs) 量子點來說,g 值通常約為 2。因為電子在半導體晶格中的等效質量會遠小於電子的靜 止質量, $m^* \ll m_0$,所以自旋造成的塞曼分裂之能量差會遠小於軌道塞曼分裂的能量 差, $\Delta E_{ZS} \ll \Delta E_{ZO}$,而自旋塞曼分裂在磁場為 14 T 時之能量差數量級大約為 1 meV 左 右。然而,一般量子點群的光激發螢光光譜之半高寬通常都大於 20 meV,在這樣的解 析度條件下是無法明顯的觀測到自旋塞曼效應的能量分裂,若是想要明顯地觀察到自旋 塞曼效應的影響,就必須得量測單顆量子點才行,因為在單量子點的螢光光譜中,半高 寬約為 50 μeV ,在這樣的解析條件下才可精確觀測到自旋塞曼效應。而我們量測的樣 品並非單量子點,而是量子點群,所以在我們的研究中便忽略了自旋塞曼分裂的部分, 只考慮軌道塞曼效應。

軌道塞曼分裂的能量差 $\Delta E_{ZO} = e\hbar \ell B/2\mu$,與角動量量子數 ℓ 有關,對基態而言, $\ell = 0$,所以不會有塞曼分裂;對激發態來說,存在著 $\ell \neq 0$ 的能態,因此會有塞曼分 裂產生之能量差。在這部分,可以藉由實驗量測到之激發態的能量差,來求得量子點中 激子的等效質量。

圖 4-22 為量子點樣品 RN0069(QDs)在激發功率為 650 mW 時的磁場螢光光譜。由 光譜中可以觀察到在零磁場時可以看到三個峰值,分別代表基態、第一激發態以及第二 激發態的發光,除了基態隨著磁場的增加而往高能量偏移之外,第一激發態的峰值隨著 磁場的增加而產生分裂,而從激發態的能量差與磁場是呈線性關係,由圖 4-22(c)可以求 得斜率為 2.25。此外,第二激發態的能階也會隨磁場的增加而分裂成三個,(0,-2)跟 (0,2)這兩個能態對應到的能量差會對磁場呈線性的關係,斜率為 4.564。



圖 4-22 RN0069(QDs)激發功率 650 mW 時的磁場螢光光譜及激發態分析 (a)磁場螢光 光譜 (b)第一激發態的能量對磁場的關係 (c)第一激發態的能量差對磁場為線性關係 (d)第二激發態的能量對磁場的關係 (e)第二激發態的能量差對磁場為線性關係

對激發態來說,因為塞曼效應造成的能量差會與磁場呈線性關係,因此可以藉由第 一激發態能量差 $\Delta E_{\pm 1} = e\hbar B/\mu$,以及第二激發態能量差 $\Delta E_{\pm 2} = 2e\hbar B/\mu$,得到不同能 態的激子等效質量。表 4-4 為樣品 RN0069(QDs)在不同激發功率下,激子的等效質量。 RN0069(QDs)在第一激發態求得的等效質量之平均值約為 $\mu = 0.0525 m_0$,而在激發功 率為 650 mW,第一激發態以及第二激發態求出的等效質量差異不大,激子的等效質量 皆為 $\mu = 0.051 m_0$ 左右。

μ (unit of m_0)	ES1	ES2
250mW	0.0540 ± 0.0005	
350mW	0.0520 ± 0.0005	
650mW	0.0514 ± 0.0011	0.0507 ± 0.0009

表 4-4 RN0069(QDs)在不同功率下之第一激發態及第二激發態的激子等效質量

一般而言,若是不考慮應力作用及自旋-軌道交互作用,價電帶包含了三個簡併能 帶,分別為輕電洞能帶、重電洞能帶以及自旋-軌道交互作用分裂能帶。而自旋-軌道交 互作用會造成價電帶的分裂,分成能量較高的輕、重電洞的簡併能帶,以及能量較低的 自旋-軌道交互作用的分裂能帶。然而,在砷化銦/砷化鎵(InAs/GaAs)量子點中,由於兩 種材料的晶格不匹配(晶格常數約相差 7%),因此在成長的過程中會產生應力,造成晶格 形變所引起的應變,而導致了能帶結構的改變。砷化銦晶格是以壓縮的方式與砷化鎵晶 格匹配成長,因此砷化銦屬於壓縮應變,所以能隙會增加,另外因為材料受到應變的影 響,會破壞材料的對稱性,導致價電帶的能帶分裂,產生重電洞能帶與輕電洞能帶分裂, 重電洞能帶在價電帶中能量最高的位置,而輕電洞能帶之能量則會較重電洞能帶向下偏 移了約 200 meV 左右^[31]。對電洞而言,重電洞能帶有較低的量化能量,因此在此考慮 電洞在重電洞能帶的發光,電洞等效質量的計算則為 m^h = m^{hh}。因為砷化銦(InAs)量 子點在形成的過程中,會產生銦(In)原子與鎵(Ga)原子的混合(intermixing),所以實際上 的量子點會混入一些鎵而變成砷化銦鎵(InGaAs)量子點。而砷化銦在低溫下的能隙大約 0.417 eV,砷化鎵的能隙大約 1.519 eV^[30],通常能隙越小,會具有較小的等效質量,所 以在砷化銦鎵的材料中,鎵的比例較高時會有較大的能隙,因此等效質量也會較大。電 子在砷化銦的材料中的等效質量大約 0.023 m₀,在砷化鎵的等效質量約為 0.067 m₀, 如圖 4-23,可以知道 Ga_{1-x}In_xAs 隨著元素比例不同會有不同的等效質量,而鎵的含量越 高則等效質量就越大。



另外,從實驗中我們求得基態的反磁係數以及激發態的激子等效質量,在此假設激 態與第一激發態的激子等效質量差異不大,根據反磁係數的定義 $\gamma = e^{2} \langle \rho^{2} \rangle / 8 \mu$,可以 去計算激子在量子點中的波函數半徑 $\sqrt{\langle \rho^{2} \rangle}$,結果如表 4-5。由於在低激發功率下無法 求出第一激發態的等效質量,因此使用在高激發功率所求得的平均值 $\mu = 0.0525 m_{0}$ 去 計算。將激子波函數半徑對不同功率作圖(圖 4-24),可以發現當激發功率增大,激子的 波函數半徑也會跟著變大,也就是電子電洞的空間分離量會變大,這個結果就如同 4.2.3 節提到的遮蔽效應所影響。

	$\gamma (\mu eV/T^2)$	μ (unit of m_0)	$\sqrt{\langle \rho^2 \rangle} ({\rm nm})$
2mW	8.87 ± 0.3		4.60 ± 0.08
70mW	10.91 ± 0.2		5.10 ± 0.05
150mW	11.15 ± 0.1		5.16 ± 0.02
250mW	12.44 ± 0.2	0.0540 ± 0.0005	5.52 ± 0.04
350mW	12.48 ± 0.3	0.0520 ± 0.0005	5.43 ± 0.07
650mW	12.25 ± 0.2	0.0514 ± 0.0011	5.35 ± 0.04

表 4-5 RN0069(QDs)由實驗求得的基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及



圖 4-24 RN0069(QDs)在不同功率下激子的波函數半徑

4.3 量子環之磁場光激發螢光光譜

在外加均勻磁場的情況下,量子環的光激發螢光光譜的偏移主要是受到反磁性位移 以及塞曼效應的影響。在這裡主要提供磁場光激發螢光光譜量測的量子環樣品分別為 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)。最後比較量子點以及量子環量測結果中的反磁係數以 及激子等效質量。

4.3.1 零磁場功率相依光譜

圖 4-25 為量子環樣品 LM5133(QRs)在 1.4 K 下,不同的雷射激發功率之下的光激發 螢光光譜圖,量測的功率範圍是在 2 mW 到 550 mW。在低功率的情況下,只有單一峰 值,此為量子環在基態的發光,能量為 1.218 eV,半高寬約 32 meV。然而,隨著激發 強度的增加,有越來越多的峰值出現,在雷射功率為 550 mW 時,出現了三個明顯的峰 值,能量從低到高依序為基態、第一激發態以及第二激發態。而第一激發態以及第二激 發態的躍遷能量分別為 1.264 eV 以及 1.308 eV。



圖 4-25 LM5133(QRs)變激發功率之光激發螢光光譜

圖 4-26 為樣品 LM5149(QRs)在 1.4 K下,變激發功率之光激發螢光光譜圖,量測的 功率範圍是在 2 mW 到 650 mW。在低激發功率時,只有基態發光,半高寬約 29 meV。 當激發功率增強至 650 mW 時,有基態、第一激發態以及第二激發態的發光,發光的能 量分別為 1.225 eV、1.269 以及 1.312 eV。將量子環樣品之光譜利用多組高斯譜線疊加 擬合,可以得到樣品在各個能階發光的能量值,如表 4-6。



	LM5133 (QRs)	LM5149 (QRs)
GS (eV)	1.218	1.225
ES1 (eV)	1.264	1.269
ES2 (eV)	1.308	1.312
FWHM (meV)	32	29

表 4-6 量子環樣品各能階之能量以及半高寬

4.3.2 磁場螢光光譜與分析方法

在外加均匀磁場下,光激發螢光光譜會產生遷移,主要是受到了反磁性位移以及塞 曼效應的影響。在磁場光激發螢光光譜的實驗中,量測之磁場範圍為OT到14T,磁場 間隔為 0.5 T,使用的量測系統為磁場光激發螢光光譜(Magneto-photoluminescence)量測 系統,量測溫度大約為1.4K。圖4-27為量子環樣品LM5133(QRs)的磁場光激發螢光光 譜,激發功率 550 mW,激發密度約 13.75 W/cm²,因為樣品 LM5133(ORs)的密度低, 大約 9×10⁹ cm⁻²,所以可以明顯地看到載子在基態、第一激發態以及第二激發態的躍遷。 量子環在外加均勻磁場下,光譜中基態的發光峰值所對應到的能量,會隨著磁場的增加 而往高能量移動,此現象稱為藍移,而第一激發態以及第二激發態的峰值會隨著磁場的 增加而產生分裂。為了要清楚定義能量的位置,每一張能譜都使用數條高斯譜線去擬合。 對基態而言,在外加磁場的情況下不會產生分裂,只會受到反磁性位移的影響而產生能 量位置的藍移;對第一激發態來說,除了反磁性位移的影響之外,還受到了塞曼效應的 影響而產生能階的分裂,而在零磁場時的簡併數目為兩個,所以在外加磁場的光譜中, 使用兩個高斯譜線去擬合;第二激發態在零磁場時的簡併數目也是兩個,所以在外加磁 場光譜中用兩個高斯譜線去擬合。圖 4-34 為磁場在 0 T、7 T、14 T 時,使用數條高斯 譜線去擬合的結果,以及可以看出不同的能態其能量分裂的過程。量測圖中,黑色空心 圓點是原始的量測數據,實線代表的是擬合時使用的高斯譜線,深藍色線為光譜中基態 發光的部分,紅色實線屬於第一激發態的部分,藍色實線為第二激發態的部分,以及桃 紅色線為同一張光譜中,每一條高斯譜線最後疊合的結果。第一激發態在外加磁場的情 況下分裂成兩個,第二激發態分裂成兩個。數條高斯譜線擬合疊加後的結果會與原始的 量測數據一致。



圖 4-27 LM5133(QRs)激發功率 550 mW,在磁場為 0T、7T、14T時,利用數條高斯 譜線去擬合的結果以及能量分裂的過程。黑色空心圓點是原始的量測數據,實線為不同 條高斯譜線,深藍色線為基態的部分,紅色線為第一激發態的部分,藍色線為第二激發 態的部分,以及桃紅色線為數條高斯譜線最後疊合的結果。第一激發態以及第二激發態 在外加磁場的情況下皆分裂成兩個。數條高斯譜線擬合疊加後的結果與原始的量測數據

一致。

圖 4-28 為量子環樣品 LM5133(QRs)在激發功率 550 mW 下的磁場光激發螢光光譜, 磁場範圍 0 T 到 14 T,每隔 1 T 有一條譜線,由圖 4-28 可以看到隨著磁場變化,光譜遷 移的趨勢。



圖 4-28 LM5133(QRs)激發功率 550 mW 時的磁場螢光光譜

將光譜經由高斯擬合得到每一個能態之發光能量對磁場作圖,如圖 4-29。圖中,黑 色點為基態的峰值對磁場的關係,其角動量量子數 $\ell = 0$;紅色點為第一激發態的部分, 而且在外加磁場的情況下,峰值會從一個分裂成兩個,分別代表 $\ell = 1 Q \ell = -1$ 這兩 個能態, $\ell = 1$ 的能態之能量會隨著磁場增加而變大, $\ell = -1$ 的能態會隨著磁場的增加 而能量變小;藍色點為第二激發態的部分,在有磁場的情況下,峰值一樣會從一個分裂 成兩個,分別為 $\ell = 2 Q \ell = -2$ 這兩個能態, $\ell = 2$ 的能態其能量會隨著磁場增加而越 來越大,而 $\ell = -2$ 的能量會隨著磁場的增加而變小。對基態而言,能量的偽移只有受 到反磁性位移的影響,所以能量的變化會與磁場的平方成正比, $\Delta E_D = \gamma B^2$,其中 γ 為 反磁係數,可以經由擬合的結果得到反磁係數的大小。而對第一激發態來說,因為外加 磁場而產生能量分裂,而能量差為塞曼效應影響產生的塞曼分裂, $\Delta E_{\pm 1} = e\hbar B/\mu$,能量 差會對磁場呈線性的關係。而第二激發態原本在零磁場時簡併的兩個簡併態,也會隨著 外加磁場而產生能量的分裂, $\Delta E_{\pm 2} = 2e\hbar B/\mu$,能量差對磁場也是呈線性的關係。另外, 藉由第一激發態以及第二激發態之簡併態的能量分裂對磁場的關係,可以求出激子的等 效質量。

圖 4-30 為理論計算中,量子環在不同能態下,其簡併態以及能量對磁場的變化關 係圖。由實驗分析的結果與理論計算的結果比較,可以發現能量對磁場的變化趨勢是一 致的。


Magnetic field

圖 4-30 不同能態下,量子環的簡併態以及能量隨磁場的變化

4.3.3 基態反磁性位移與遮蔽效應(screening effect)

圖 4-31 為量子環樣品 LM5133(QRs)在不同激發功率下的磁場螢光光譜,量測 的雷射激發功率範圍從 150 mW 到 550 mW,激發密度約在 3.75 W/cm² 到 13.75 W/cm² 之間。由磁場螢光光譜,可以得到量子環的光激發螢光光譜隨著磁場的增加而產生遷 移。而光譜中,基態的發光能量會隨著磁場的增加而往高能量處偏移,此現象稱為反磁 性位移(diamagnetic shift)。反磁所造成的能量變化與磁場的平方成正比, $\Delta E_n = \gamma B^2$, 藉由這個關係可以得到反磁係數γ(diamagnetic coefficient)。激發功率為 150 mW 以及 250 mW 時,由磁場螢光光譜中可以看到,除了載子在基態的發光之外,還有一部分為 第一激發態的發光,而第一激發態隨著磁場的增加,峰值會有分裂的情形。當激發功率 增加到 350 mW 及 550 mW 時,可以觀察到除了第一激發態的分裂之外,第二激發態也 有明顯的分裂。將磁場螢光光譜中,基態發光的能量位置對磁場作圖,可以得到不同激 發功率下之基態反磁係數。圖 4-32 為樣品 LM5133(QRs)在激發功率 150 mW 時,基態 的能量對磁場的關係,根據能量的變化會與磁場的平方成正比,藉由擬合可以得到反磁 係數為 y = 14.54 µeV/T²。圖 4-33 為量子環樣品 LM5149(QRs)在激發功率為 150 mW 到 650 mW 下之磁場螢光光譜。激發功率為 150 mW 時,可以看到載子在基態的躍遷, 基態的發光能量會隨著磁場的增加而往高能量處偏移。當激發功率為 250 mW、350 mW 以及 550 mW 時,由磁場螢光光譜中可以看到基態以及第一激發態的發光,除了載子在 基態的躍遷之外,還可以看到第一激發態隨著磁場的增加,峰值會有分裂的情形。當激 發功率為 650 mW, 第一激發態以及第二激發態隨著磁場的增加, 峰值會有分裂的情形, 而第一激發態以及第二激發態的能階均分裂成兩個。圖 4-34 為樣品 LM5149(QRs)在激 發功率 650 mW 時,基態的能量位置對磁場的關係,經由擬合求出基態的反磁係數為 $\gamma = 13.66 \, \mu eV/T^2 \, \circ$



圖 4-32 LM5133(QRs)激發功率 150 mW 時,基態的能量對磁場的關係



圖 4-33 LM5149(QRs)在不同激發功率下之磁場螢光光譜 (a) 150 mW (b) 250 mW (c) 350 mW (d) 550 mW (e) 650 mW



圖 4-34 LM5149(QRs)激發功率 650 mW 時,基態的能量對磁場的關係

由磁場光激發螢光光譜可以觀察到,基態的發光能量會隨著磁場的增加而往高能量 移動,並可藉由能量變化對磁場的關係進而求得反磁係數。我們將不同的量子環樣品, 在不同的激發功率下,經由實驗結果得到基態的反磁係數整理在表 4-7。可以明顯的觀 察到,對於同一個量子環樣品而言,當激發功率增加,反磁係數會增加,到了高激發功 率下,反磁係數的值會接近飽和,如圖 4-35 與圖 4-36 分別為樣品 LM5133(QRs)及 LM5149(QRs)在不同激發功率下之基態反磁係數的變化。在低激發密度時,電子和電洞 之間有較強的庫倫作用力(Coulomb interaction),使得電子和電洞的空間分離量較低, $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ 的值較小;在激發密度較高時,量子點內填入了較多的載子而產生遮蔽效應 (screening effect),使得電子和電洞之間的相互吸引力減低,庫倫作用力較弱, $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$ 的 值較大,而反磁係數 $\gamma = e^2 \langle \rho^2 \rangle / 8 \mu$,因此在高激發密度時,造成反磁係數變大,此現 象為遮蔽效應所造成的影響。

γ ($\mu eV/T^2$)	LM5133 (QRs)	LM5149 (QRs)
150mW	14.54 ± 0.2	10.88 ± 0.2
250mW	15.37 ± 0.3	11.93 ± 0.1
350mW	15.90 ± 0.3	12.90 ± 0.2
550mW	16.39 ± 0.3	13.63 ± 0.2
650mW		13.66 ± 0.1





圖 4-35 LM5133(QRs)在不同激發強度之下基態的反磁係數



圖 4-36 LM5149(QRs)在不同激發強度之下基態的反磁係數

4.3.4 激發態塞曼分裂(Zeeman splitting)與等效質量

TIM

由磁場螢光光譜中,可以得到量子環的光激發螢光光譜隨著磁場的增加而產生遷 移。圖 4-37 為量子環樣品 LM5133(QRs)在激發功率為 350 mW 時的磁場螢光光譜,以 及激發態的分析。如圖 4-37(a),由光譜圖可以看到在零磁場時出現了三個峰值,分別代 表載子在基態、第一激發態以及第二激發態的躍遷,當磁場漸漸增加,除了基態的發光 能量會隨著磁場的增加而逐漸往高能量偏移之外,第一激發態的峰值隨著磁場的增加而 產生分裂,如圖 4-37(b),在零磁場時量子環的第一激發態有 (0,1) 及 (0,-1) 這兩個簡 併態,在外加磁場下,(0,1) 的能量會隨著磁場的增加而上升,而 (0,-1) 的能量會隨著 磁場的增加而下降。將 (0,1) 及 (0,-1) 這兩個龍態的能量差對磁場作圖 (圖 4-37(c)), 得到第一激發態的能量差與磁場是呈線性關係,可以求得斜率為 1.833。此外,第二激 發態在零磁場時簡併的龍態為 (0,2) 跟 (0,-2),在外加磁場下,第二激發態的峰值也會 隨著磁場的增加有明顯的分裂,其能階與第一激發態一樣均分裂成兩個,如圖 4-37(d), (0,2) 的能量會隨著磁場的增加而上升,而 (0,-2) 的能量會隨著磁場的增加而下降。由 圖 4-37(e)可以得到第二激發態的能量差對磁場的關係為線性,斜率為 3.493。



圖 4-37 LM5133(QRs)激發功率 350 mW 時的磁場螢光光譜及激發態分析 (a)磁場螢光 光譜 (b)第一激發態的能量對磁場的關係 (c)第一激發態的能量差對磁場為線性關係 (d)第二激發態的能量對磁場的關係 (e)第二激發態的能量差對磁場為線性關係

對激發態來說,因為軌道塞曼效應造成的能量差會與磁場呈線性關係,因此可以藉 由第一激發態能量差 $\Delta E_{\pm 1} = e\hbar B/\mu$,以及第二激發態能量差 $\Delta E_{\pm 2} = 2e\hbar B/\mu$,得到不 同能態的激子等效質量。表 4-8 為量子環樣品 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)在不同激 發功率下,激子的等效質量。LM5133(QRs)在第一激發態求得的等效質量之平均值約為 $\mu = 0.0625 m_0$,在激發功率為 350 mW 及 550 mW 時,可以得到第二激發態的激子等 效質量,約為 $\mu = 0.0666 m_0$,而 LM5149(QRs)在第一激發態求出的等效質量平均約為 $\mu = 0.0647 m_0 左右, 在 650 mW 的激發功率時,可求出第二激發態的等效質量大約$ $<math>\mu = 0.0674 m_0$,另外可以發現這兩片量子環試片在第二激發態求出的等效質量會比第 一激發態來得大,這是因為在能量較高時,會具有較大的等效質量。

μ (unit of m ₀)	LM5133 (QRs)		LM5149 (QRs)	
	ES1	ES2	ES1	ES2
150mW	0.0627 ± 0.0004			
250mW	0.0618 ± 0.0005		0.0664 ± 0.0005	
350mW	0.0631 ± 0.0009	0.0663 ± 0.0008	0.0647 ± 0.0010	
550mW	0.0626 ± 0.0011	0.0669 ± 0.0018	0.0630 ± 0.0010	
650mW			0.0646 ± 0.0009	0.0674 ± 0.0024

表 4-8	LM5133(QRs)及	LM5149(ORs)在不)	司功率下之	第一激發態及貨	第二激發態的激子
-------	--------------	----------------	-------	---------	----------

等效質量

從實驗結果求得基態的反磁係數以及激發態的激子等效質量,根據反磁係數的定義 $\gamma = e^2 \langle \rho^2 \rangle / 8 \mu$,可以去計算激子在量子環中的波函數半徑 $\sqrt{\langle \rho^2 \rangle}$,量子環樣品 LM5133(QRs)以及LM5149(QRs)的結果分別如表 4-9、4-10。由於樣品 LM5149(QRs)在 150 mW 的激發功率下無法求出第一激發態的等效質量,因此使用在高激發功率所求得 的平均值 µ = 0.0647 m₀ 去計算。將樣品 LM5133(QRs)及 LM5149(QRs)的激子波函數半 徑對不同功率作圖(圖 4-38、4-39),可以發現當激發功率增大,激子的波函數半徑也會 跟著變大,也就是電子電洞的空間分離量會變大,此現象為遮蔽效應所影響。

	$\gamma (\mu eV/T^2)$	μ (unit of m_0)	$\sqrt{\langle \rho^2 \rangle} ({ m nm})$
150mW	14.54 ± 0.2	0.0627 ± 0.0004	6.44 ± 0.04
250mW	15.37 ± 0.3	0.0618 ± 0.0005	6.57 ± 0.06
350mW	15.90 ± 0.3	0.0631 ± 0.0009	6.76 ± 0.06
550mW	16.39 ± 0.3	0.0626 ± 0.0011	6.83 ± 0.06

表 4-9 LM5133(QRs)由實驗求得的基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及



圖 4-38 LM5133(QRs)在不同功率下激子的波函數半徑

	$\gamma (\mu eV/T^2)$	μ (unit of m_0)	$\sqrt{\langle ho^2 angle} ({ m nm})$
150mW	10.88 ± 0.2		5.66 ± 0.05
250mW	11.93 ± 0.1	0.0664 ± 0.0005	6.00 ± 0.02
350mW	12.90 ± 0.2	0.0647 ± 0.0010	6.16 ± 0.05
550mW	13.63 ± 0.2	0.0630 ± 0.0010	6.25 ± 0.04
650mW	13.66 ± 0.1	0.0646 ± 0.0009	6.34 ± 0.02

表 4-10 LM5149(QRs)由實驗求得的基態反磁係數與第一激發態之激子等效質量,以及



圖 4-39 LM5149(QRs)在不同功率下激子的波函數半徑

4.4 量子點與量子環之磁場螢光光譜比較

4.4.1 量子點與量子環之結果比較

比較量子點樣品 RN0069(QDs)以及量子環樣品 LM5133(QRs)及 LM5149(QRs)在磁 場光激發螢光光譜量測下,受到反磁性位移以及軌道塞曼效應的影響而使得光譜遷移。 量子點以及量子環因為結構上的差異,所以其能量的簡併態也會有所不同。量子點以及 量子環在基態能階對應的主量子數以及角動量量子數 (n, e) 皆為 (0,0),第一激發態的簡 併態也相同,為 (0,1) 和 (0,-1),然而,量子點在第二激發態的簡併態為 (0,-2)、(1,0) 以 及 (0,2),但是量子環在第二激發態的簡併態只有 (0,2) 和 (0,-2)。因此,對應到磁場螢 光光譜中,量子點以及量子環在第二激發態的峰值會隨著磁場的增加而分別分裂成三個 以及兩個,而在這部分的差異也從我們的實驗量測結果中觀察得到,圖 4-40。



圖 4-40 量子點及量子環在不同能階之簡併態以及其能量隨磁場的變化 (a) RN0069(QDs)在不同能階之簡併態及其能量隨磁場的變化 (b) LM5133(QRs)在不同 能階之簡併態及其能量隨磁場的變化

由磁場螢光光譜的分析處理可以得到量子結構的反磁係數、激子的等效質量,以及 經由計算可得激子的波函數半徑,並且比較量子點及量子環的差異。由第一激發態的能 量分裂可以求出不同功率下,量子結構的激子等效質量,如圖 4-41。量子點樣品 RN0069(QDs)的激子等效質量平均大約為 $\mu = 0.0525 m_0$,而量子環樣品 LM5133(QRs) 以及 LM5149(QRs)的激子等效質量分別為 $\mu = 0.0625 m_0$ 以及 $\mu = 0.0647 m_0$,量子點 的激子等效質量比量子環小。這是由於量子結構在形成過程中,量子環為了要形成中央 凹陷的結構,必須在製成得過程中比量子點多一道退火(annealing)的步驟,而在退火的 過程中,結構中央之銦原子會向外擴散,使得銦原子與鎵原子混合嚴重,造成量子結構 中鎵的含量變高,而在砷化銦鎵(InGaAs)的材料中,鎵的比例若較高,則材料的能隙會 較高,會具有較大的等效質量^[32]。



圖 4-41 不同樣品在第一激發態的激子等效質量

由磁場螢光光譜可以得到不同量子點以及量子環樣品在基態的發光,以及基態的反磁係數,如圖 4-42。量子點樣品 RN0069(QDs)在低激發功率到高激發功率的反磁係數範 圍約8.87 $\mu eV/T^2$ 到 12.25 $\mu eV/T^2$,而量子環樣品 LM5149(QRs)的反磁係數範圍約 10.88 $\mu eV/T^2$ 到 13.66 $\mu eV/T^2$,另一片量子環樣品 LM5133(QRs)的基態反磁係數範圍 約從 14.54 $\mu eV/T^2$ 到16.39 $\mu eV/T^2$,可以觀察到量子點在基態的反磁係數比量子環小。



最後,根據反磁係數的定義 γ = e² (ρ²)/8μ,我們可以由實驗得到的結果去計算激 子在量子點及量子環中的波函數半徑,如圖 4-43。根據計算的結果,量子點樣品 RN0069(QDs)在低激發功率到高激發功率的激子波函數半徑範圍約 4.6 nm 到 5.4 nm,量 子環樣品 LM5149(QRs)的激子波函數半徑範圍約從 5.7 nm 到 6.3 nm,而量子環樣品 LM5133(QRs)的激子波函數半徑範圍約 6.4 nm 到 6.8 nm,量子點的激子波函數半徑較量 子環小。比較直徑相同的量子點以及量子環,對量子點而言,電子的波函數在量子點的 正中心,電子在量子點中心出現的機率最高,然而,量子環的中心是沒有材料的,電子

在那裡出現的機率是零,而實際上電子會出現在環上具有寬度的地方,並且會繞行運動,所以在量子環中,電子的等效半徑會比在量子點中還大。圖 4-44 為量子點及量子 環電子在量子結構中之波函數的簡單示意圖。



圖 4-44 (a)電子在量子點中波函數分佈 (b)電子在量子環中波函數分佈

4.4.2 量子環比較

在磁場螢光光譜實驗中,我們量測了兩個不同的量子環樣品,分別是 LM5133(QRs) 以及 LM5149(QRs),因為兩片樣品在製程條件以及結構尺寸不同,在此根據量測的實驗 結果做一個簡單比較。在光激發螢光光譜量測中,可以得到載子在量子環結構中不同能 階的躍遷能量,如圖 4-45,LM5133(QRs)在基態、第一激發態及第二激發態的能量分別 為 1.218 eV、1.264 eV 以及 1.308 eV,對 LM5149(QRs)而言,載子在不同能階上的能量 分別為 1.225 eV、1.269 eV 及 1.312 eV,LM5149(QRs)的發光能量比 LM5133(QRs)高。



圖 4-45 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)在不同能態下的發光能量比較,而 LM5149(QRs)具有較高的發光能量

在磁場螢光光譜實驗中,光譜會因為外加均勻磁場而產生遷移,磁場螢光光譜中, 激發態會隨著磁場的增加而產生能階分裂,根據第一激發態的塞曼分裂,其能量差對磁 場呈線性關係,藉由能量差對磁場的關係圖可以求得的激子等效質量。圖 4-46 為 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)在不同雷射激發功率下,第一激發態的激子等效質量, 而 LM513(QRs)3 的等效質量平均約為 $\mu = 0.0625 m_0$,而 LM5149(QRs)的等效質量約 $\mu = 0.0647 m_0$,由實驗的結果可以知道 LM5149(QRs)的等效質量較大,然而,通常能 量較高,會具有較大的等效質量。而 LM5149(QRs)具有較高的發光能量,同時又具有較 大的激子等效質量,實驗符合預期的結果。



在磁場光激發螢光光譜實驗中,可以觀察到光譜中,載子在基態的躍遷其能量會隨 著外加磁場的增加而往高能量偏移,能量差與磁場的平方成正比,正比係數即為反磁係 數。圖 4-47 是比較 LM5133(QRs)以及 LM5149(QRs)在不同雷射激發功率下,基態的反 磁係數,不論是 LM5133(QRs)還是 LM5149(QRs),隨著激發功率增加,其反磁係數會 越來越大,在高激發功率時,反磁係數的大小會趨於飽和。在高激發功率下,量子環中 填入了較多的載子而產生遮蔽效應,使得電子和電洞間的相互吸引力變低,庫倫作用力 變弱,而造成電子與電洞的空間分離量變大,因此反磁係數會變大。另外,由圖 4-47 可以看到 LM5133(QRs)在基態的反磁係數比 LM5149(QRs)大,根據反磁係數的公式, $\gamma = e^2 \langle \rho^2 \rangle / 8 \mu$,若激子的等效質量較小,其反磁係數較大,這與我們實驗的比較結果 相呼應,更能驗證了我們的實驗結果彼此相符。



第五章 結論

本研究主要是量測自聚式砷化銦/砷化鎵(InAs/GaAs)量子點以及量子環的磁場螢光 光譜,並且研究其發光特性。量子點以及量子環由於結構上的差異,發光的特性也會有 所不同。從量子點演變到量子環的過程中,由於結構之高度變小,導致發光能量藍移。 在量子點的熱退火實驗中,因為銦原子和鎵原子在量子點中混合嚴重,使得發光的能量 變高且均勻度增加。同時,熱退火實驗也可驗證量子環在製成過程中,熱退火的步驟造 成量子環發光能量藍移,且具有較好的均勻度。

在外加垂直於樣品表面方向的均勻磁場下,光激發螢光光譜會受到反磁性效應以及 塞曼分裂(Zeeman splitting)的影響而產生光譜的遷移。在零磁場時,量子點與量子環在 不同能階的簡併數目不同。在基態,量子點及量子環都只有一個能態而無簡併態;第一 激發態在量子點及量子環中均有兩個簡併態;然而在第二激發態中,量子點有三個簡併 態,但量子環則維持兩個簡併態。在外加磁場下,由於量子點及量子環的激發態存在著 角動量不為零的能態,受到塞曼效應的影響使得激發態的能階會分裂。在我們的磁場螢 光光譜實驗,量測了不同雷射激發功率下,量子點以及量子環的螢光光譜。在高激發功 率密度下,我們看到了激發態的能階分裂,也確實看到了量子點及量子環在第二激發態 能階分裂的數目不同。利用塞曼分裂的能量差與磁場呈線性關係,我們求得了激子的有 效質量。而我們是第一個在磁場螢光光譜中,比較量子點以及量子環的激子有效質量之 差異。實驗結果中,量子環的激子有效質量比量子點大,這是由於量子環在成長過程中 所需的熱處理,導致量子環中有較多的鎵原子,此外,量子環的發光能量較高,受到能

反磁性效應會導致量子結構的發光能量隨著磁場的增加而藍移,且能量與磁場的平 方成正比。我們觀察基態的反磁性位移會隨著激發功率密度越大而變大,這是由於在高 激發功率下,受到遮蔽效應的影響而使得電子電洞間庫倫作用力變小,電子與電洞的空 間分離量變大,而激子的半徑變大,導致反磁性位移變大。

參考文獻

- [1] Z.L. Wang, "Characterization of Nanophase Materials", Wiley-VCH (2000).
- [2] A. P. Alivisators, Science 271, 933 (1996)
- [3] D. L. Huffaker, et al., Appl. Phys. Lett. 73, 2564 (1998)
- [4] D. Bimberg, et al., IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 3, 196 (1997)
- [5] O. G. Schmidt, et al., Elec. Lett. 32, 1302 (1996)
- [6] N.M. Park, T.S. Kim and S.J. Park, Appl. Phys. Lett. 78, 2575 (2001)
- [7] S. Coe, et al., Nature **420**, 800 (2002)
- [8] S.F. Tang, S.Y. Lin and S.C. Lee, IEEE Trans. Electron Devices, 49, 1341 (2002)
- [9] T.C. Lin, S.C. Lee and H.H. Cheng, J. Vac. Sci. Technol. B 22, 109 (2004)
- [10] D. Leonard, et al., Appl. Phys. Lett. 63, 3203 (1993)
- [11] R. Steffen, et al., Appl. Phys. Lett. 68, 223 (1996)
- [12] F.Y. Tsai and C.P. Lee, J. Appl. Phys. 84, 2624 (1998)
- [13] X.Z. Liao, et al., Phys. Rev. Lett. 82, 5148 (1999)
- [14] L. Brusaferri, et al., Appl. Phys. Lett. 69, 3354 (1996)
- [15] K. Mukai, et al., Appl. Phys. Lett. 68, 3013 (1996)
- [16] Y. Toda, et al., Phys. Rev. Lett. 82, 4114 (1999)
- [17] R. Heitz, et al., Phys. Rev. B 57, 9050 (1998)
- [18] R. Dingle, W. Wiegmann, and C. H. Henry, Phys. Rev. Lett. 33, 827 (1974)
- [19] R. Rinaldi, et al., Phys. Rev. Lett. 77, 342 (1996)
- [20] P. P. Paskov, et al., Phys. Rev. B 62, 7344 (1998)
- [21] S. Awirothananon, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 43 2088 (2004)
- [22] Y. Aharonov and D. Bohm, Phys. Rev. 115, 485 (1959)
- [23] R.G. Chambers, et al., Phys. Rev. Lett. 5, 1 (1960)
- [24] A. Lorke, et al., Phys. Rev. Lett. 84, 2223 (2000)

- [25] N. A. J. M. Kleemans, et al., Phys. Rev. B 80, 155318 (2009)
- [26] E. Nabavi, et al., J. Appl. Phys. 105, 053512 (2009)
- [27] P.A. Maksym, Physica B **249** 233 (1998)
- [28] B.C. Lee, O. Voskoboynikov and C.P. Lee, Physica E 24 87 (2004)
- [29] H.S. Ling and C.P. Lee, J. Appl. Phys. 102, 024314 (2007)
- [30] I. Vurgaftman, J.R. Meyer and L.R. Ram-Mohan, J. Appl. Phys. 89, 5815 (2001)
- [31] P. D. Wang, et al., Phys. Rev. B 50, 1604 (1994)
- [32] C. Hermann and C. Weisbuch, Phys. Rev. B 15, 823 (1977)



簡歷 (Vita)

姓名:李依珊 (Yi-Shan Li)

性别:女

出生年月日:民國 77年1月3日

籍貫:台灣新北市

學歷:

國立中興大學物理學系學士 (95.9-99.6)

國立交通大學電子研究所碩士班 (99.9-101.6)

碩士論文題目:

砷化銦量子點及量子環在磁場下之光激發螢光光譜研究

1

Studies of Magneto-photoluminescence of InAs Quantum Dots and Rings

IIII