

# 第一章 緒論

量子點 (quantum dots, QDs) 結構在三個維度方向均形成位能障，故具有把電子侷限住的高效率優點。對於研究基礎物理的人而言，QDs 能量不連續，用來模擬原子能階非常方便，故 QDs 又被稱為人造原子 (artificial atom)。另外由於 QDs 符合高密度與低耗能的需求，在應用上 QDs 已漸漸取代量子井 (quantum well) 結構。用途包括：光感測 (phohtodetector) 元件，光儲存元件，穿遂共振元件，單電子電晶體，量子計算機 (quantum computer) 等等。由於量子點具有 0 維的不連續態分佈，並且擁有低起始電流 (thres-hold current) 減少雷射操作 power，故本實驗室研究以量子點結構為主。其中 InAs/InGaAs/GaAs Dots in well 結構的優勢是減少晶格不匹配程度，拉長波長，並降低臨界電流[1-2]。

InAs/GaAs 的晶格不匹配約為 7%，由分子束磊晶 (Molecular Beam Epitaxy) 使用自聚式 (self-assembled) 方法成長量子點，從二維慢慢聚成三維結構。原則上 InAs QDs 隨著長晶厚度增加，發光波長往長波長移動，或調整 In 與 Ga 含量比例，亦可拉長波長。當成長厚度達某臨界厚度時，在 InAs 與 GaAs 介面會出現應力效應 (strain effect)，此應力有可能導致能帶 (band) 結構變化，不可忽略。M. A. Cuasack, Briddon，和 Jaros 等人計算出當 InAs/GaAs 介面產生應力效應時[3-4]，在能帶介面會形成尖端狀 (apexes)，此尖端對量測而言可視為一座山，即位能障 (barrier)。本實驗目的便是希望能描繪出在不同 InAs 量子點厚度下，載子的放射與捕捉情形，結合光與電的特徵，期待對  $1.3\mu\text{m}$  量子點雷射[5] 領域研究有貢獻。

目前研究量測技術有很多，常用的光學量測有光激發 (PL)，拉曼光譜 (Raman scattering spectroscopy, RS)，等等。至於電性量測，深層

能階暫態頻譜 (Deep Level Transient Spectroscopy, DLTS) 是一項重要而普遍的方法。其優點有：靈敏度高，訊雜比 (S/N ratio) 高，可同時判斷出多數與少數載子缺陷，解析出多種缺陷。以往 DLTS 是拿來測量缺陷使用，現在更進一步應用在量測量子點結構。除了 DLTS，本實驗亦使用電流-電壓 (I-V)，電容-電壓 (C-V)，電容-頻率 (C-F)，電導-溫度 (G-T) 等量測來輔助樣品的電性分析。

論文架構：

第二章： 樣品製備的長晶條件和量測系統

第三章： PL 光性與電性的實驗結果與討論，電性包括 I-V、C-V、G-T 以及 DLTS。

第四章： 結論



## 第二章 樣品製備與量測系統

InAs 的晶格常數大於 GaAs，所以以當 InAs 藉由 MBE 成長在 GaAs 上時，由於晶格不匹配，平行於長晶方向會產生壓縮 (compressive) 應變，此應變將 InAs 推擠壓縮成三維島嶼狀，這是島嶼式 (V-Mode, Volmer-Weber mode) 長晶法。早在 1992 年 Tabuchi 就提出以 S-K 成長模式在 GaAs 基板上成長 InAs 量子點[6]，許多實驗亦證明 S-K 成長模式的量子點確實具有三維量子侷限效應[7]。

### 2-1 樣品製備

本實驗樣品採 InAs/InGaAs/GaAs 結構，見圖 2-1。首先在(100)方向的  $n^+$  GaAs ( $10^{18}\text{cm}^{-3}$ ) substrate 上做 heavy doping( $10^{19}\text{cm}^{-3}$ )，降低異質界面之間的位能障，以確保接下來的 GaAs buffer layer 與  $n^+$  GaAs substrate 介面能夠順利導通。GaAs buffer layer 在  $600^\circ\text{C}$  下成長  $0.2\ \mu\text{m}$ ，摻雜 Si 變 n-type，濃度為  $10^{17}\text{cm}^{-3}$ 。接著溫度降到  $485\sim 500^\circ\text{C}$ ，成長 InAs 量子點，本實驗共成長三片不同 InAs 厚度：2.34 ML、3.06 ML、3.33 ML。長完 QDs 再蓋上 60Å 的 InGaAs QW，之後再蓋上一層 20 秒 low temperature( $500^\circ\text{C}$ )成長的 GaAs。最後覆蓋  $0.2\ \mu\text{m}$  厚的 GaAs cap layer，Si 摻雜濃度亦為  $10^{17}\text{cm}^{-3}$ 。

在做成 Schottky diode 前，樣品必須先經過一般 RCA 清洗步驟，RCA 清洗步驟在此不再累述。接著我們使用金屬 Al 做 Schottky contact 的材料，使用熱蒸鍍方法在 GaAs cap layer 上鍍上面積為  $5.024\times 10^{-3}\text{cm}^2$  的大小。最後在背面  $n^+$  GaAs substrate 上以 In 做 ohmic contact，送進爐管以  $300^\circ\text{C}$  加熱 10 秒做合金融合。

另外 2.34 ML 及 3.06 ML 兩片樣品做 CV 量測，轉成縱深分佈圖來看，peak 太深而無法在縱深分佈圖完整呈現出來，又怕偏壓過大使電流增加而損壞樣品，所以我們對 2.34 ML 及 3.06 ML 樣品做蝕刻 (etching) 動作，蝕刻條件  $\text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{O}$  的比例是 3 : 1 : 20，蝕刻時間 2.34 ML 及 3.06 ML 分別為 6 與 11 秒。最後結果從縱深分佈圖來看，2.34 ML 及 3.06 ML 樣品比 3.33 ML 要來的淺約  $0.05 \mu\text{m}$ 。

## 2-2 量測系統

### 2.2.1 光性量測

PL(Photoluminescence)量測系統：包括真空腔體、降溫用壓縮機 (compressor)、固態雷射(波長為 532nm，功率為 1.5W)、分光儀、Optical chopper、透鏡組、衰減片、high pass filter 以及 InGaAs 光偵測器。

### 2.2.2 電性量測

- a. Keithley 236：用來量測電流-電壓(I-V)的特性曲線。
- b. HP 4194 阻抗/增益相位分析儀：量測電容-電壓(C-V)、電容-頻率(C-F, admittance spectroscopy)和暫態電容(transient capacitance)。
- c. Deep Level Spectrometer (SULA Technology 製)：DLTS 技術量測。
- d. LakeShore 330 溫控器。
- e. 變溫系統：包括 Cryogenic、真空幫浦、真空腔體、三軸探針台及杜爾瓶。

# 第三章 實驗結果與分析

## 3-1 光激發螢光 (Photoluminescence) 量測討論

本實驗採用 InAs/InGaAs Dots-in-Well 結構，我們成長不同 InAs 厚度的五片樣品，分別有 1.97 ML，2.34 ML，2.7 ML，3.06 ML 以及 3.33 ML，希望能達到 1.3  $\mu\text{m}$  波段。首先觀察圖 3-1，此 PL 是在室溫下以 10mW 的 power 去激發電子，可以看到最薄三片樣品隨著 InAs 厚度增加，波長往長波長移動：1.97 ML，2.34 ML 及 2.7 ML 樣品，發光波段分別在 1238nm，1300nm 與 1310nm，半高寬各為 60meV，44meV 與 44meV。波長的增加是因為隨著 InAs 厚度增加，量子點會長得越大顆，發光波長也就越長[8]。其中發光波長在 1300nm 的 2.34 ML 樣品不僅半高寬最小，峰值又為五片樣品裡最高，故在成長 InAs/GaAs DWELL 結構時，2.34 ML 是成長 InAs 量子點最好的磊晶厚度條件。

當 InAs 厚度超過 2.7 ML 時，3.06 ML 樣品波長拉回到 1223nm 短波長，而更厚的 3.33 ML 樣品則拉回到 1215nm 波長。3.06 ML 及 3.33 ML 樣品的 PL 峰值都要比其它較薄的三片樣品峰值來的弱很多，同時 3.06 ML 及 3.33 ML 樣品的半高寬上升到 80meV 與 98meV。把五片樣品 PL 訊號列表如下：

	1.97 ML	2.34 ML	2.7 ML	3.06 ML	3.33 ML
發光波長(nm)	1238	1300	1310	1223	1215
半高寬(eV)	60	44	44	80	98

從波長變化與峰值高低比較，均顯示 InAs/InGaAs DWELL 結構中成長 InAs 量子點的臨界厚度介於 2.7 ML~3.06 ML 之間。所以只要長晶厚度在臨界厚度內，不同材料之間就不會產生缺陷[9]，如同 1.97 ML、2.34 ML 及 2.7 ML 樣品的 PL 峰值強度，仍然可以保持不錯的載子侷限效果。

我們推測 3.06 ML 及 3.33 ML 樣品因為成長 InAs 量子點過厚，厚度超過臨界厚度，由於 InAs 與 GaAs 材料晶格常數的不匹配，發生晶格鬆弛現象，進而產生缺陷吃掉部分自由載子，造成 PL 峰值要比其它三片要來的低很多。接著我們會藉由電性量測，來探討這些缺陷有什麼特徵。本研究主要以未達臨界厚度的 2.34 ML 樣品，以及超過臨界厚度的 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品為主。本 PL 量測系統是波長 532nm 雷射，利用衰減片調變功率，功率可以為 10mW、100mW 及 1000mW。使用 InGaAs 光偵測器，波長量測範圍是 1000nm~1450nm。



### 3-2 電流-電壓 (I-V) 量測討論

藉由 sample 做成 Schottky Diode 來進行電性量測，需要確定是否做好金屬與半導體接面的 Heterojunctions。根據半導體物理推導出來的 Schottky 電流公式：

$$I = I_s \left\{ \exp\left[\frac{q(V - I r_s)}{nkT}\right] - 1 \right\} \quad (3-1)$$

其中  $I_s$  為 Saturation current， $r_s$  為串聯電阻， $k$  是波茲曼常數， $T$  是溫度， $V$  是順向偏壓， $n$  是 ideal factor。利用(3-1)式來擬合圖 3-2 的室溫正向 I-V 曲線，2.34 ML、3.06 ML 及 3.33 ML 樣品分別可以得到 ideal factor 是：1.3，1.1，1.2，尚是不錯的 Schottky Diode。

圖 3-3 逆向偏壓在小偏壓 ( $0\sim-2V$ ) 內顯示，3.06 ML 樣品相較於未晶格鬆弛之 2.34 ML 樣品有較大的漏電流，大了約一個數量級。H. Temkin 的  $In_xGa_{1-x}As/InP$ [10] 研究也曾提到，量子井超過臨界厚度時亦會產生漏電流變大的情形，因此我們判斷 3.06 ML 樣品確實發生的晶格鬆弛現象。至於 3.33 ML 樣品在第二章樣品製備提到過，此片樣品不像 2.34 ML 及 3.06 ML 樣品做過蝕刻的動作，所以在逆向 I-V 裡無法比較 3.33 ML 樣品的晶格鬆弛現象。但我們仍可觀察到 3.33 ML 樣品在小偏壓 ( $0\sim-2V$ ) 內，漏電流彎曲的程度是最大的，表示有自由載子被捕捉或空乏，造成電阻變大而電流彎曲。從逆向 I-V 我們可以找出三片樣品所能承受的逆偏範圍，在此偏壓範圍下對樣品做 C-V 量測，以免造成大電流損壞樣品。

### 3-3 電容-電壓(C-V) 量測討論



首先比較三片樣品縱深分佈強度，見圖 3-4。明顯地 2.34 ML 樣品峰值強度要比其它兩片來的高很多，同其 PL 峰值高度也比其它兩片高很多一樣。2.34 ML 樣品在越過量子結構之後，濃度恢復到  $10^{17}cm^{-3}$  的背景摻雜濃度，並無觀察到缺陷的存在。另外兩片 3.06 ML 及 3.33 ML 樣品由於超過臨界厚度，晶格鬆弛過於嚴重而產生缺陷吃掉部分載子，造成峰值低落。從 3-4 圖中我們也可以看到，3.06 ML 及 3.33 ML 兩片樣品在量子點靠近基板的那一邊發生自由載子空乏(carrier depeltion)，載子濃度遠低於背景濃度  $10^{17}cm^{-3}$ ，推論有缺陷存在的關係。

圖 3-5(a)之 2.34 ML 樣品的 100kHz 變溫 C-V 量測，隨著逆偏增加 Schottky Diode 的電容值會下降，等到偏壓加到量子點區-0.5V，因為量子點中有自由載子累積，使得偏壓增加時電容值下降趨勢變緩，而有一平

台產生。等過了-1.5V，所有自由載子從量子點被趕出來後，回復到原有的 Schottky Diode 電容下降程度。圖 3-5(b)是 2.34 ML 樣品由 C-V 量測轉換成縱深分佈圖，可以看見溫度越低 peak 越高，這是常見的量子侷限效應，表示 2.34 ML 尚有不少的量子點結構。峰值有兩包，推論位於  $1.6\ \mu\text{m}$  深的是 excited state，另一個  $0.18\ \mu\text{m}$  深的是 ground state。

另外圖 3-6(a)是 2.34 ML 樣品 80K 變頻 C-V 量測，頻率範圍從 1kHz 到 100kHz，圖 3-6(b)的縱深分佈圖峰值未隨頻率變化，表示此量子點載子的時間常數很短，短於  $10^{-5}\text{sec}$ ，完全趕上 AC 訊號而被量到。在頻率介於 1kHz~100kHz 範圍下，我們並沒觀察到量子放射 (quantum emission) [11-12]，或缺陷或串聯電組的存在。那麼要由頻率響應來觀察量子放射的話，頻率必須高於 100kHz，或者在更低溫條件下測量。

在 3.06 ML 樣品的變頻 C-V 量測裡，見圖 3-7(a)，我們發現頻率響應現象，頻率介於 10kHz~100kHz 之間。而換算成縱深分佈圖如圖 3-7(b)所示，從此圖我們可以看到唯一一個峰值，峰值的電子隨頻率增加而趕不上 AC 訊號出來，使得峰值低落。另外在量子點靠近基板的那一邊 (bottom side) 濃度急遽下降，這是因為 3.06 ML 這片樣品超過臨界厚度產生的缺陷吃掉自由載子，造成載子空乏現象。在載子空乏區域我們觀察到濃度隨頻率增高而變大，這是因為前面峰值的電子若趕不上 AC 訊號出來，那麼當 DC 偏壓掃到後面也就是載子空乏區的時候，所有前面沒出來的載子勢必都要被趕出來。所以前面頻率高的峰值，載子在後面才會出來，濃度較大，而前面低頻峰值的載子早已出來，後面載子空乏區的濃度就會比較小。

此外 3.06 ML 樣品在載子空乏區後面濃度急遽上升，甚至會超過  $10^{18}\text{cm}^{-3}$ ，這是因為 3.06 ML 樣品經過蝕刻動作，讓樣品製備裡的 heavy doping~ $10^{19}\text{cm}^{-3}$  距離表面變的更淺，所以在  $0.3\ \mu\text{m}$  深的地方就觀察到濃度急遽上升的現象。圖 3-8(a)(b)是 3.06 ML 樣品 10kHz 變溫 C-V 量測及縱深分佈圖，3.06 ML 樣品，不像 2.34 ML 樣品具有量子結構的侷限，其



峰值隨溫度增高而變大，推測這是因為晶格鬆弛產生的缺陷所致。

最後圖 3-9 是 3.33 ML 樣品的 10kHz 變溫 C-V 量測，對照到圖 3-10 縱深分佈圖，僅有一個峰值位於  $0.22 \mu\text{m}$  深處，此峰值不具有量子侷限效應，推測此現象是因為量子點後面缺陷造成的。如同 3.06 ML 樣品一般，3.33 ML 樣品在越過量子點結構區的濃度急遽下降，同樣發現缺陷存在，濃度遠低於背景濃度  $\sim 10^{17} \text{cm}^{-3}$ ，後來也因為 heavy doping 使得濃度急遽上升。圖 3-11(a) 是 3.33 ML 樣品溫度 84K 變頻 C-V 量測，在 10kHz 條件下，量子點內電子的 emission rate 快於 AC 訊號，所以 C-V 仍存在代表量子點能階的平台。可是 50kHz 的 AC 訊號稍微快了些，使得電子較跟不上 AC 訊號，平台幾乎消失，到了 100kHz 已看不見平台產生。故我們可以確定量子點內載子的頻率響應介於 10kHz~100kHz 之間，稍後我們可以針對此頻率響應去做 G-T 量測 (3-4 節)。繼續觀察圖 3-11(b) 的變頻縱深分佈圖，如同 3.06 ML 樣品一樣的特徵，載子空乏區受到前面峰值載子在高頻下不出來的影響，使得載子空乏區濃度隨頻率變高而變大。

綜合上述電性觀察，3.06 ML 與 3.33 ML 兩片樣品都超過臨界厚度，在結構底部 InAs/GaAs 介面附近發生晶格鬆弛而產生缺陷，缺陷吃掉載子發生載子空乏現象。故不論從電性 C-V 量測或光性 PL 量測，我們都可以看到峰值低落的現象。

### 3-4 暫態頻譜(Deep-Level Transient Spectroscopy) 與導納頻譜 (Admittance) 量測討論

由上一節 C-V 量測得到，2.34 ML 擁有 excited state 和 ground state 兩支峰值，至於 3.06 ML 及 3.33 ML 量片樣品僅出現一支峰值，並且在量子點後有載子空乏現象。本節將使用深層能階暫態頻譜 (DLTS) [13-14] 與導納頻譜分析來量測量子放射或缺陷的活化能。

首先針對 2.34 ML 樣品進行量測，圖 3-12 的 DLTS 偏壓範圍含括量子點結構，速率視窗 (rate window) 設為 2.15ms 及 0.86ms，在 300K 以下完全沒有訊號，表示在量子點裡不管是 excited state 還是 ground state，載子的放射速率 (emission rate) 遠快於速率視窗而不被 DLDS 所解析。同時我們亦沒有觀察到任何缺陷的訊號。因此為了得到量子點訊號我們必須在更低溫的條件下，或者設定更短更快的速率視窗。溫度 300K 以上的 DLTS 訊號推論是 GaAs bulk 的缺陷[15]，故不予討論。

雖然無法從 DLTS 得到 2.34 ML 樣品的活化能，但比較另一片 SH332 樣品仍可推論 2.34 ML 樣品的活化能特徵。實驗室謝明芳同學[16]的 SH332 樣品，一樣是 InAs/InGaAs DWELL 結構，長晶條件與 2.34 ML 樣品相同，發光波段也在 1300nm，差別僅在於摻雜濃度為  $5 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ ，而 2.34 ML 樣品是  $10^{17} \text{cm}^{-3}$ 。SH332 樣品的 DLTS 在溫度 80K 以上亦沒有任何訊號，表示需要在更低溫下進行量測。圖 3-13(a) 是 SH332 樣品之 G-T 圖[17-18]，量測頻率介於 100k~1MHz 之間，量測溫度從低溫 50K 開始，在溫度 50 到 75K 之間出現一個峰值。根據峰值出現的溫度做 Arrhenius plot 得到 57meV 的活化能，見圖 3-13(b)。根據推論 57meV 是載子從 ground state 跳到 excited state 的活化能，再從 excited state 直接穿隧(tunneling)出來 [19-21]，見示意圖圖 3-14。所以我們比照 SH332 樣品，推論 2.34 ML 樣

品的 ground state 載子一樣不需克服理論值 0.3eV 活化能而是直接穿隧出來，故不會出現在溫度 80K 以上的 DLTS 裡。因此想藉由 DLTS 去測量完整的量子放射活化能，則必須先解決載子穿隧的效果。

3.06 ML 樣品的縱深分佈圖擁有一支峰值，我們針對此峰值做 DLTS 量測。圖 3-15 是 3.06ML 樣品的 DLTS，速率視窗設成 8.6ms，DLTS 峰值出現在約 275K 的溫度下。圖 3-16 是 DLTS 換算成 Arrhenius plot，從斜率我們得到 0.37eV 的活化能。這個活化能可能的來源有兩個，一是量子放射，一是缺陷活化能，必須加以辨別。

在這裡我們先考慮未產生缺陷的 2.34 ML 樣品，見圖 3-6(b)，其 C-V 量測在低溫 80K 時載子還趕得上 AC 訊號 $\sim 100\text{kHz}$ ，表示載子的時間常數  $\tau$  短於  $10^{-5}\text{sec}$ ，那麼若溫度升到 275K 時，時間常數會遠短於  $10^{-5}\text{sec}$ 。也就是說，假設 3.06 ML 樣品的量子結構也還完整的話，那麼載子的時間常數在溫度 275K 下也會遠短於  $10^{-5}\text{sec}$ 。所以從這裡假設 3.06 ML 樣品的活化能如果是來自於量子放射的話，那麼速率視窗應該是遠短於 8.6ms 才對，發生了矛盾。因此我們排除活化能是來自於量子放射，合理推測此 0.37eV 是缺陷的活化能。

接著我們仔細觀察 3.06 ML 樣品的 DLTS，見圖 3-17，隨著速率視窗變小，DLTS 的峰值有變大趨勢，這個現象表示有捕捉位能障 (capture barrier) 的存在。在前面 CV 量測裡我們已經看到缺陷的產生，而此缺陷捕捉自由載子，在價帶上的表現對載子而言就像個位能障一樣，故我們所得到的活化能，其實就包含了必須克服這個位能障的能量。在稍後 3-5 節我們會藉著改變填充偏壓實驗，進行捕捉位能障的量測，並找出 3.06 ML 樣品的捕捉位能障的大小為 0.1eV。另外我們針對量子結構後的載子空乏區做 G-T 量測，見圖 3-18 及圖 3-19 之 Arrhenius plot，我們在 G-T 量測裡發現兩個活化能。最大的活化能 $\sim 0.171\text{eV}$ ，有可能就是我們在 3-5 節會計算得出的捕捉位能障大小 $\sim 0.1\text{eV}$ ，而較小的活化能推論是載子藉由穿隧

效應出來的，所以發生在較低溫度。

最後討論 3.33 ML 樣品的活化能，此樣品特徵與 3.06 ML 樣品幾乎一模一樣，見圖 3-20(a)(b)，藉由 DLTS 我們量測到活化能為 0.41eV，如同 3.06 ML 樣品，我們亦推論這個活化能是來自於缺陷。在 3-3 節縱深分佈裡提到，3.33 ML 樣品如同 3.06 ML 樣品在量子點結構後面發現載子空乏現象，這載子空乏在價帶表現上，預估會於 InAs/GaAs 介面附近形成一個捕獲位能障，而圖 3-21 顯示 3.33 ML 樣品在不同速率視窗下 DLTS 峰值會隨著偏移，證實了 3.33 ML 樣品存在一位能障。而 DLTS 峰值偏移的大小比 3.06 ML 樣品更嚴重，或許與位能障的大小有關係。此外圖 3-21 的  $\tau=8.6\text{ms}$ 、 $4.3\text{ms}$  之峰值約  $280^\circ\text{C}$  處約有小小跳針，這是因為轉換加熱器 (heater) 所致。在最後 3-5 節裡我們會找到高 0.22eV 的捕捉位能障。而在 G-T 量測裡，見圖 3-22(a)(b)，實驗室王建國學長[22]亦在載子空乏區域的偏壓下，發現了 0.2eV 的活化能，推論可能是捕捉位能障的大小。



### 3-5 捕捉位能障(Capture Barrier)

本實驗室的 DLTS 系統，其  $t_1$  與  $t_2$  的比值是固定的，所以在不同速率視窗下 DLTS 峰值並不會改變。但萬一發生應力(strain)作用或差排缺陷(dislocation defect)，卻可能造成捕捉位能障，那麼在不同的速率視窗下，DLTS 峰值便會出現不同大小。一般我們透過改變填充偏壓時間去進行捕捉位能障的量測，關於捕獲行為描述如下[23]：

$$S(t_p) = S(0) + S(\infty) * [1 - \exp(-C * t_p)]$$
$$\Rightarrow \ln \left[ 1 - \frac{S(t_p)}{S(\infty)} \right] = -C * t_p \quad (3-3)$$

$$C = \sigma v n \quad (3-4)$$

其中  $S$  是 DLTS 峰值強度， $t_p$  是填充偏壓時間 (filling pulse width)， $S(0)$  是背景強度 (background signal)， $S(\infty)$  是量子點填充飽和強度， $C$  是捕捉速率 (capture rate)， $\sigma$  是捕捉截面積 (capture cross section)， $v$  是平均速率 (mean thermal velocity)， $n$  是自由載子濃度 (free carrier concentration)。根據(3-3)式，峰值強度與填充偏壓時間及捕捉速率有關。在固定一個速率視窗下，我們改變不同填充偏壓時間，進行 DLTS 峰值量測，同時找出峰值飽和強度，根據(3-3)式去做擬合便可以找到捕捉速率。

故每個速率視窗對照到一組溫度，捕捉速率，以及捕捉截面積 (根據 3-4 式)。由於捕捉截面積與溫度和捕捉位能障大小有關，根據下式，我們可以求出捕捉位能障大小：

$$\sigma = \sigma_{\infty} \exp\left(-\frac{E_{\sigma}}{K_B T}\right) \quad (3-5)$$

其中  $\sigma_{\infty}$  是係數與溫度無關， $E_{\sigma}$  是捕捉位能障 (capture barrier) 大小， $K_B$  是波茲曼常數 (Boltzmann constant)。根據 3-5 式，帶入不同  $\sigma$  和對應的溫度  $T$ ，即可擬合得到捕捉位能障  $E_{\sigma}$ 。

3.06 ML 及 3.33 ML 兩片樣品都從 DLTS 觀察到位能障存在，首先我們針對 3.06 ML 樣品改變不同填充偏壓時間 (filling pulse width)，設定速率視窗為 8.6ms，見圖 3-23。得到  $S(t_p)$  和  $S(\infty)$ ，列表如下：

$\tau=8.6\text{ms}$	$S(0.01\text{ms})$	$S(0.03\text{ms})$	$S(0.05\text{ms})$	$S(0.1\text{ms})$	$S(\infty)$
	0.11	0.16	0.18	0.23	0.39

從圖 3-23 我們清楚看到填充偏壓時間在 1ms 與 30ms 時，DLTS 峰值呈飽和狀態，故採用 30ms 峰值強度為飽和強度。速率視窗  $\tau=8.6\text{ms}$  對應到峰值出現的溫度  $T=281.8\text{K}$ 。根據上表格及(3-3)式畫得圖 3-24 之中  $\tau=8.6\text{ms}$  的一組數據，取得代表捕捉速率的斜率  $C=0.96\text{S}^{-1}$ 。改變四個速率視窗即可得到圖 3-24 四個捕捉速率。重複上述實驗步驟，我們也對 3.33 ML 樣品進行捕捉速率的量測，圖 3-25，圖 3-26 分別是 3.33 ML 樣品改變填充偏壓時間之 DLTS 及換算捕捉速率。

求得捕捉速率後再藉由(3-4)式換算對應之捕捉截面積，因此改變四個速率視窗得到四組對應溫度及捕捉截面積。最後根據(3-5)式，做圖 3-27 便可擬合斜率得到捕捉位能障大小，3.06 ML 樣品的位能障  $E_{\sigma}=0.1\text{eV}$ ，而 3.33 ML 樣品位能障為  $0.22\text{eV}$ 。此兩片樣品之捕捉位能障大小，都相當接近前面由 G-T 得到的活化能，分別是  $0.171\text{eV}$  與  $0.2\text{eV}$ 。

前面我們由 C-V 量測觀察到 3.06 ML 與 3.33 ML 量片樣品發生載子空乏，顯示這兩片樣品在長晶過程中產生了缺陷。另外從 C-V 變頻量測與 DLTS 我們判斷這兩片樣品的活化能是來自於缺陷，而不是量子放射。接著從 DLTS 亦觀察到捕捉位能障的存在，透過改變不同填充偏壓時間去測量捕捉位能障的大小，在這過程中我們假設 DLTS 峰值會飽和的條件，也就是說我們假設這個缺陷是載子可以填滿的，而事實上我們確實看到如此。

然而一般缺陷分成兩種類型：點缺陷 (point defect) 與差排缺陷 (dislocation defect)。點缺陷通常出現在單一材料成長的過程中，而此類型缺陷不會產生捕捉位能障，同時載子是可以把缺陷填滿的，所以我們排除 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品的缺陷是點缺陷。另一種差排缺陷常出現在異質接面的長晶過程，雖然此類型缺陷會產生捕捉位能障，而且隨電子填充率的增加，捕捉位能障越來越大。可是差排缺陷的另一個特徵是載子無法填滿此類型缺陷，這個又與我們的 DLTS 峰值填飽的事實矛盾，於是又排除差排缺陷的可能。

雖然 3.06 ML 與 3.33 ML 兩片樣品依現有的實驗證據，我們還無法判斷此缺陷是點缺陷還是差排缺陷，或是有另一種更可靠的模型去解釋載子飽和的機制，但是從 C-V 量測與 DLTS 分析，可以確定超過臨界厚度的樣品有缺陷存在並造成捕捉位能障。另外 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品的缺陷活化能分別是 0.37eV 與 0.41eV，相當接近，而兩樣品的捕捉位能障大小分別為 0.1eV 與 0.22eV，就實驗誤差來看，嚴格地講也不是相差很大。故兩片超過臨界厚度，同時發生晶格鬆弛的樣品，是否只是因為施加電場大小的不同，才造成不一樣的缺陷能階跟捕捉位能障大小，是可以繼續研究的課題。



## 第四章 結論

從 PL 量測判斷長晶狀況可以發現，InAs/InGaAs DWELL 結構中 InAs 臨界厚度介於 2.7 ML~3.06 ML 之間。未超過臨界厚度時，隨著 InAs 厚度增加，量子點長得越來越大顆，發光波長往長波長移動。2.34 ML 樣品的發光波長正好在 1300nm，而且在五片樣品裡半高寬最小~44meV，峰值最大，磊晶品質最好。繼續增加 InAs 厚度時，兩片超過臨界厚度的 3.06 ML 及 3.33 ML 樣品發光波段拉回到 1223nm 和 1215nm 的短波長，發生藍移現象。同時 3.06 ML 及 3.33 ML 樣品由於 InAs 厚度過厚，InAs 與 GaAs 材料晶格不匹配發生晶格鬆弛現象，造成峰值低落，而半高寬更增加到 80meV 及 98meV。故綜合上述光性特徵，在成長 InAs/GaAs DWELL 結構時，2.34 ML 是成長 InAs 量子點最好的磊晶厚度條件。

2.34 ML 樣品除了 PL 特徵良好，在變溫 C-V 量測裡觀察到兩個峰值，推論為 ground state 與 excited state，均有良好的量子侷限效應。而在變頻 C-V 量測裡沒有觀察到頻率響應，顯示量子點的電子放射速率極快，時間常數短於  $10^{-5}$ sec。另外 DLTS 量測並沒有發現缺陷存在，亦證明此樣品磊晶情況良好。接著經比較 SH332 樣品，我們合理推論 2.34 ML 樣品的載子從 ground state 到 excited state 而後直接穿隧出來，故無法藉由 DLTS 找到從 ground state 到 conduction band 的完整活化能。

超過臨界厚度的 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品具有相同電性特徵。兩片樣品由於晶格鬆弛產生缺陷，在 C-V 量測裡觀察到缺陷吃掉載子，發生載子空乏的現象，而此現象是發生在靠近基板的 InAs/GaAs 介面那一邊(bottom side)。另外這兩片樣品的 C-V 縱深分佈(C-V profile)峰值比未發生晶格鬆弛的 2.34 ML 樣品來的低很多，此電性量測與光性 PL 特徵相同。同時我們透過 DLTS 分別找出 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品的活化能分別是 0.37 與



0.41eV，並判斷此活化能的來源是來自於缺陷。透過觀察不同速率視窗下 DLTS 峰值的表現，我們發現捕捉位能障的存在，推論此捕捉位能障就是缺陷造成的。經由不同填充偏壓時間的實驗，我們找出 3.06 ML 與 3.33 ML 樣品的捕捉位能障分別是 0.1eV 與 0.22eV。



## 參考文獻

- [1] A. Stinitz, G. T. Liu, L. F. Lester and K. J. Malloy, “ Low Threshold Current Density  $1.3\text{-}\mu\text{m}$  InAs Quantum-Dot Lasers with the Dots-in-a-Well(DWELL) structure ” , IEEE Photonics Technology Letters 12(6)(2000).
- [2] V. M. Ustinov, N.A. Maleev, A. E. Zhukov, A.R. Kovsh, 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, “InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at  $1.3\mu\text{m}$ ” , Appl. Phys. Lett. 74(19) 2815 (1999).
- [3] M. A. Cusack, P. R. Briddon, and M. Jaros, “ Electronic structure of InAs/GaAs self-assembled quantum dots ” , Phys. Rev. B 54, R2300(1996).
- [4] M. A. Cusack, P. R. Briddon, and M. Jaros, “ Absorption spectra and optical transitions in InAs/GaAs self-assembled quantum dots ” , Phys. Rev. B 56, 4047(1997).
- [5] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, and D. G. Deepe, “ $1.3\mu\text{m}$  room temperature GaAs - based quantum - dot laser” , Appl. Phys. Lett. 73, 2564(1998).
- [6] M. Tabuchi, S. Noda, A. Sasaki, Sci & Tech. Mesoscopic structure, 397(1992).
- [7] Self-assembled InGaAs/GaAs quantum Dots semiconductor and semimetals, Volume 60 Mitsuru Sugawara.

- [8] T. Yamauchi, Y. Matsuba, L. Bolotov, M. Tabuchi, and A. Nakamura, "Correlation between the gap energy and size of single InAs quantum dots on GaAs(001) studied by scanning spectroscopy", *Appl. Phys. Lett.* 77, 4368 (2000).
- [9] D. Leonard, K. Pond, and P. M. Petroff "Critical layer thickness for self-assembled InAs island on GaAs", *Phys. Rev. B* 50, 11687 (1997).
- [10] J. Zou, and D. J. H. Cockayne, " Misfit dislocations and critical thickness in InGaAs/GaAs heterostructure systems ", *J. Appl. Phys.* 73, 619 (1993).
- [11] P. N. Brounkov, A. Polimeni, S. T. Stoddart, M. Henini, L. Eaves, and P. C. Main, "Electronic structure of self-assembled InAs quantum dots in GaAs matrix", *Appl. Phys. Lett.* 73, 1092 (1998).
- [12] C. M. A. Kapteyn, M. Lion, R. Heitz, and D. Bimberg, "Hole and electron emission from InAs quantum dots", *Appl. Phys. Lett.* 76, 1573 (2000).
- [13] D. V. Lang, " Fast Capacitance Transient Apparatus: Application to ZnO and O Centers in Gap p-n Junction ", *J. Appl. Phys.*, Vol. 45, P. 3014 (1974).
- [14] D. V. Lang, " Deep-Level Transient Spectroscopy: A New Method to Characterize Traps in Semiconductor ", *J. Appl. Phys.*, Vol. 45, P. 3023 (1974).
- [15] A. G. Milnes, " Impurity and Defect Levels (Experimental) in Gallium Arsenide ", in *Advances in Electronics and Electron Physics* (P. M. Hawkes, ed. ), Academic Press, Orlando,

FL, 61, 63-160, 1983

- [16] 謝明芳，交通大學電子物理所碩士論文，‘自聚式 InAs 量子點上覆蓋  $\text{InAs}_{0.14}\text{AlAs}/\text{InAs}_{0.14}\text{GaAs}$  複合層之研究’，2004.
- [17] W. H. Chang, W. Y. Chen, M. C. Cheng, C. Y. Lai, and T. M. Hsu, “Charging of embedded InAs self-assembled quantum dots by space-charge techniques”, *Phys. Rev. B* 64, 125315 (2001).
- [18] 陳乃權，交通大學電子物理所博士論文， “ 分子束磊晶低溫成長砷化鎵電性量測分析 ” ，1998.
- [19] S. G. hosh, B. Kochman, J. Singh, “ Conduction band offset in InAs/GaAs self-organized quantum dots measured by deep level transient spectroscopy ” , *Appl. Phys. Lett.* 76, 2571 (2000).
- [20] C. M. A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, O. Stier, R. Heitz, M. Grundmann, N. D. Zakharov, and D. Bimberg, “ Electron escape from InAs quantum dots ” , *Phys. Rev. B* 60, 14265 (1999).
- [21] W. H. Chang, W. Y. Chen, M. C. Cheng. C. Y. Lai, and T. M. Hsu , “ Charging of embedded InAs self-assembled quantum dots by space-charge techniques ” , *Phys. Rev. B* 64, 125315 (2001).
- [22] 王建國，交通大學電子物理所碩士論文， “ 砷化銦/砷化鎵 Dots in Well 量子點結構之電性研究 ” ，2003.
- [23] H. L. Wang, F. H. Yang, S. L. Feng, “ Experimental determination of local Strain effect on InAs/GaAs self-organized quantum dots ” , *Phys. Rev. B* 61, 5530(2000).

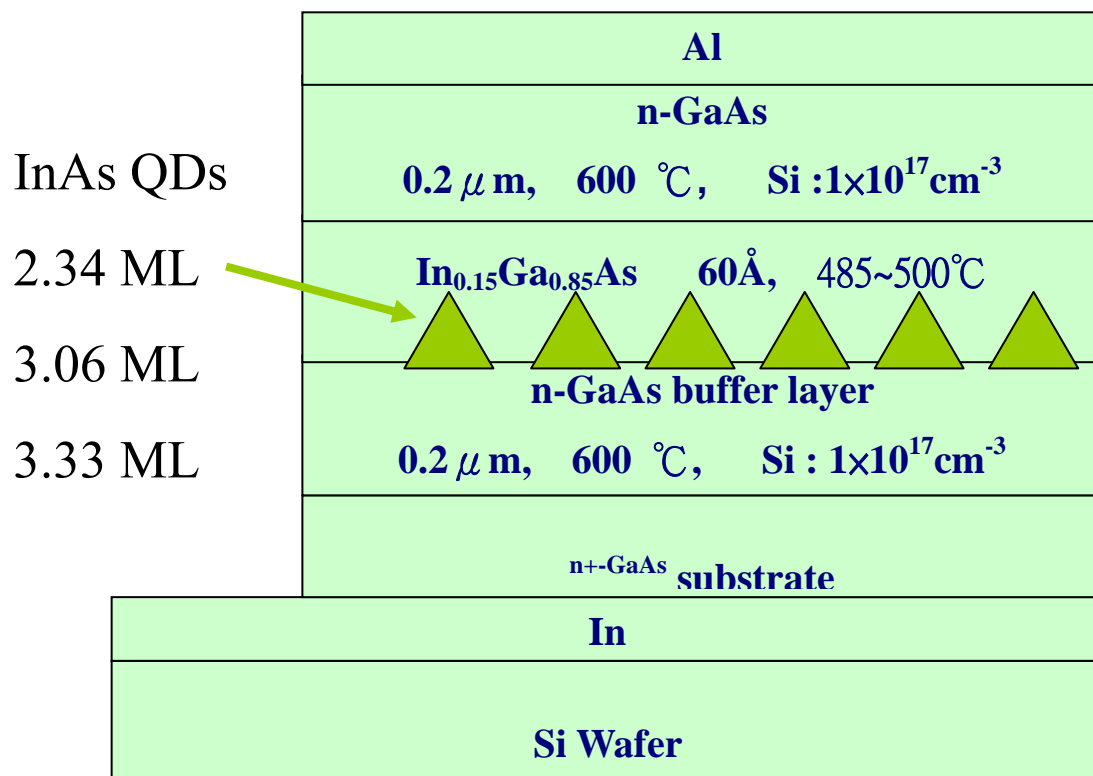


圖 2-1 樣品結構圖

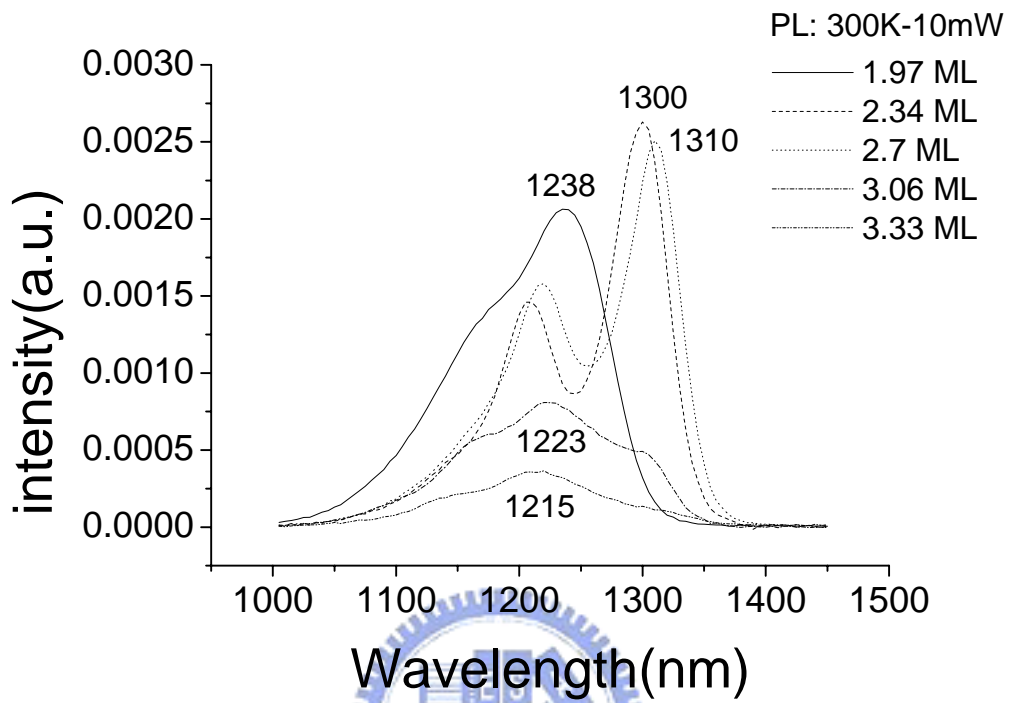


圖 3-1 不同厚度樣品之室溫 PL 圖

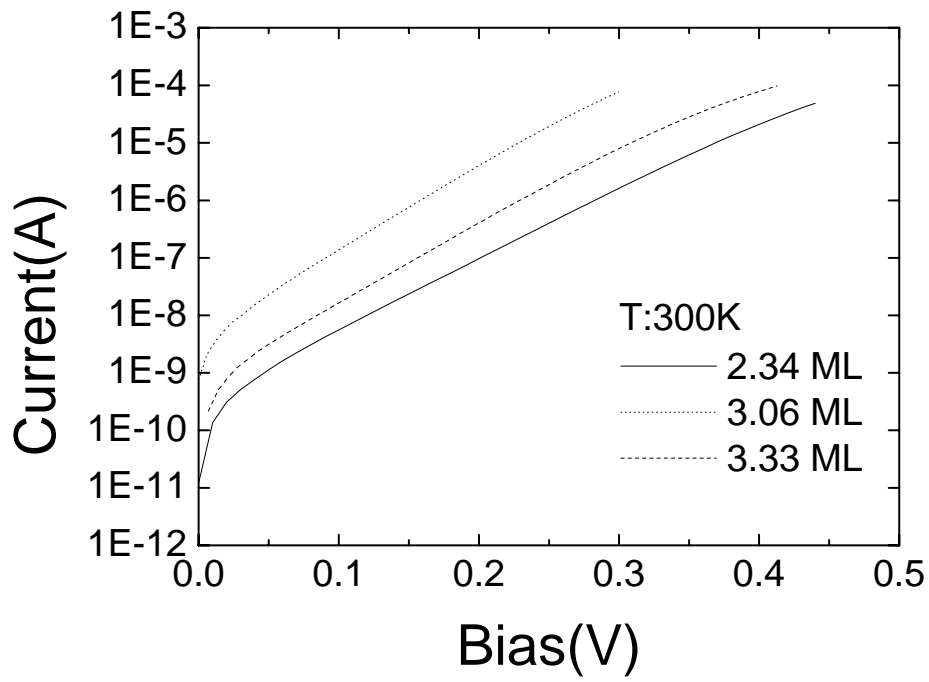


圖 3-2 三片樣品之正向 I-V 圖

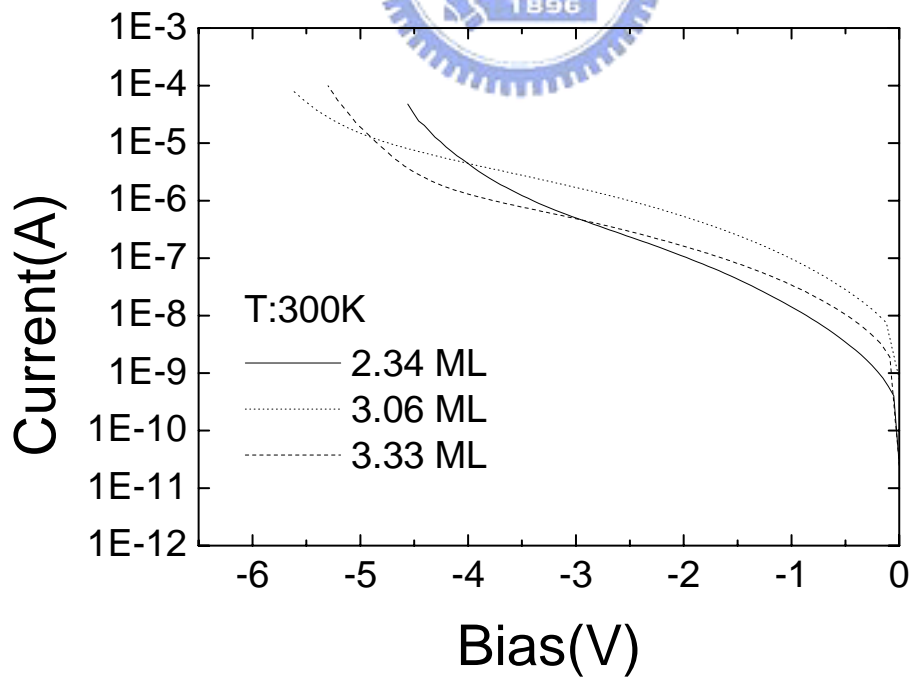


圖 3-3 三片樣品之反向 I-V 圖

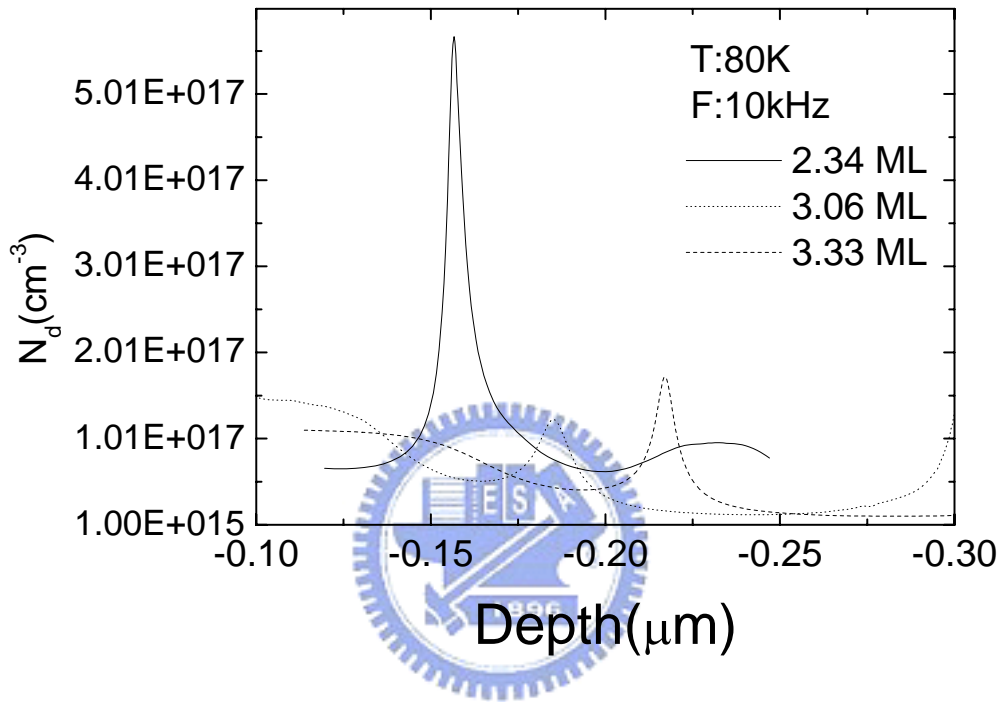


圖 3-4 三片樣品之縱深分佈比較圖



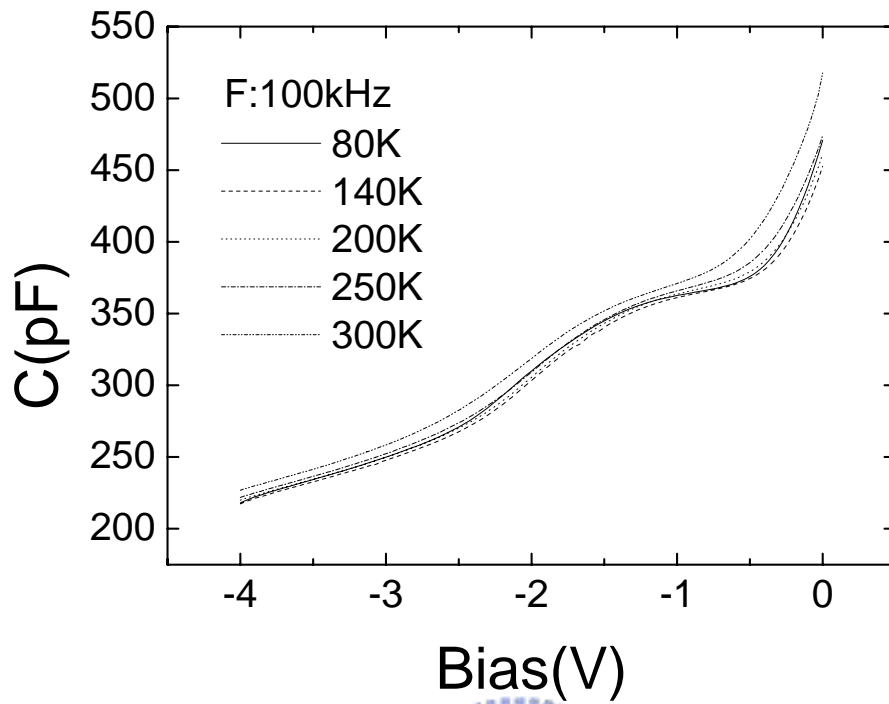


圖 3-5(a) 2.34 ML 樣品之 100kHz 變溫 C-V 圖

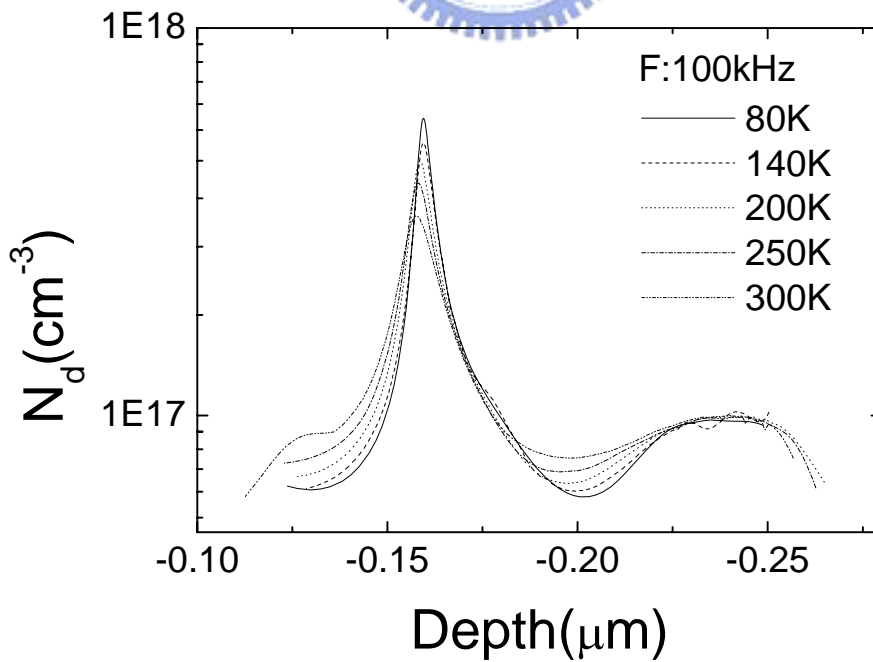


圖 3-5(b) 2.34 ML 樣品之 100kHz 變溫縱深分佈圖

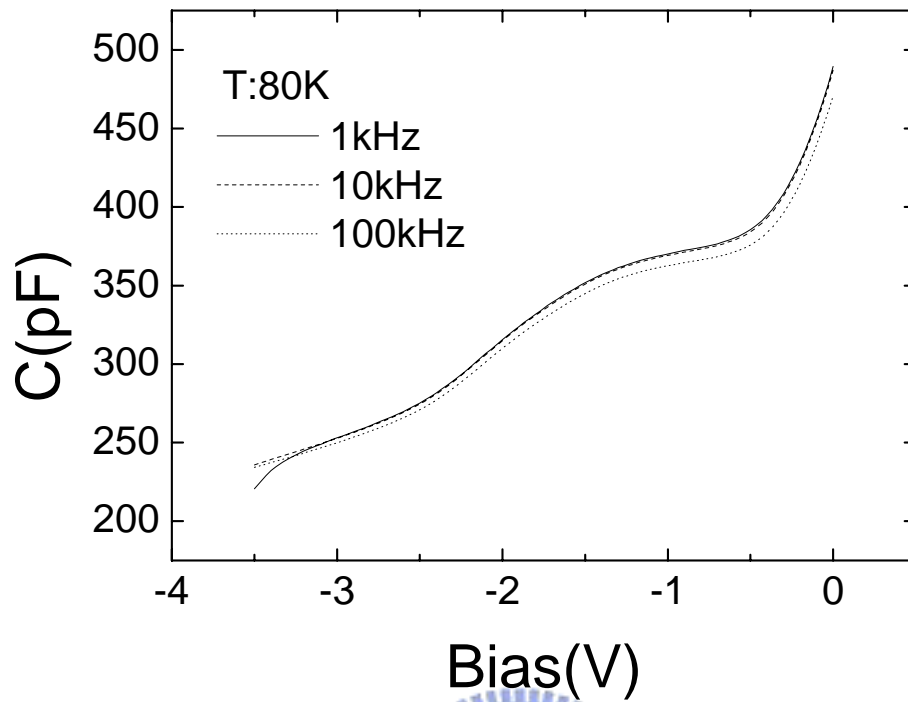


圖 3-6(a) 2.34 ML 樣品之溫度 80K 變頻 C-V 圖

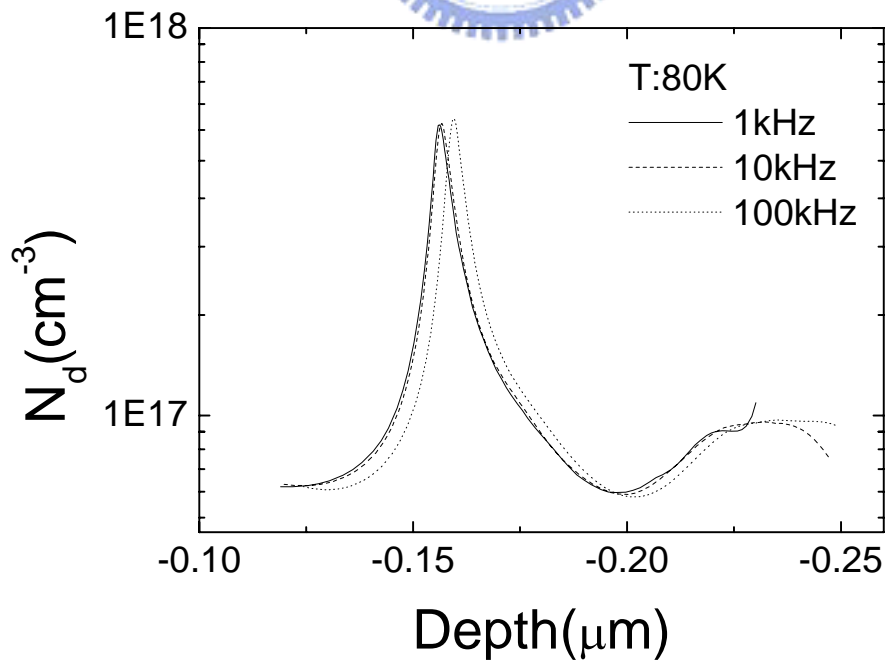


圖 3-6(b) 2.34 ML 樣品之溫度 80K 變頻縱深分佈圖

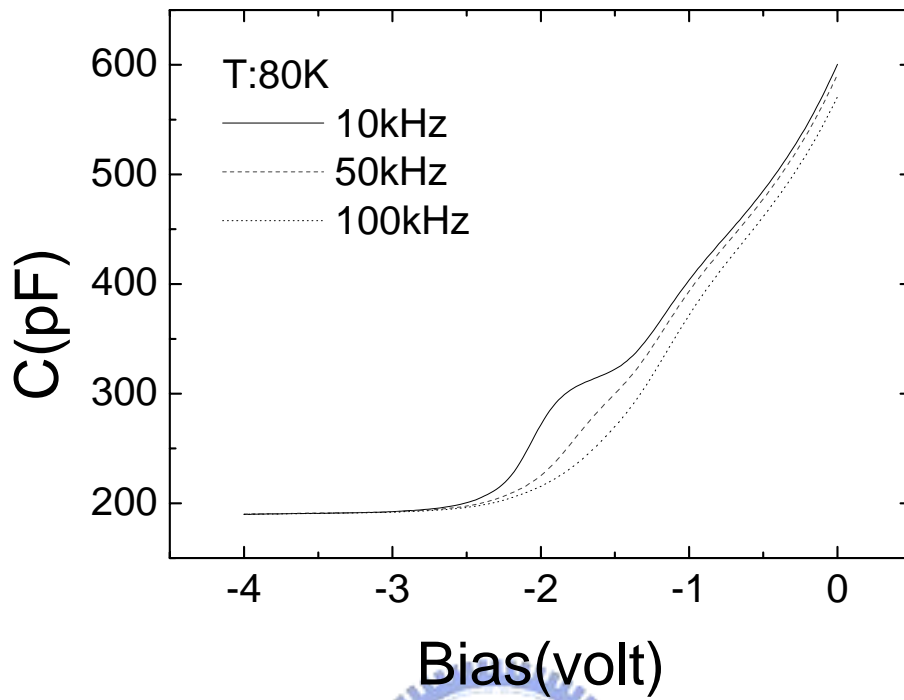


圖 3-7(a) 3.06 ML 樣品之溫度 85K 變頻 C-V 圖

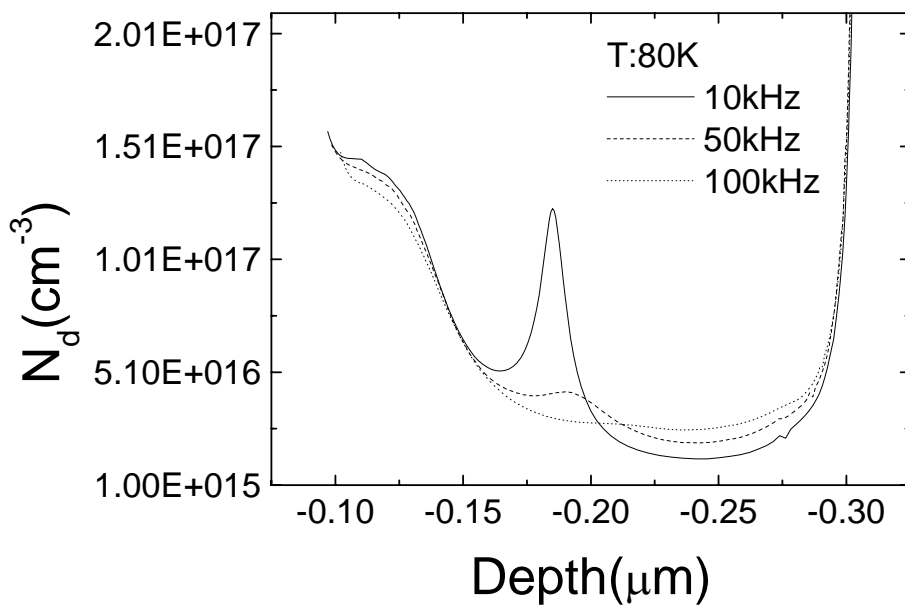


圖 3-7(b) 3.06 ML 樣品之溫度 85K 變頻縱深分佈圖

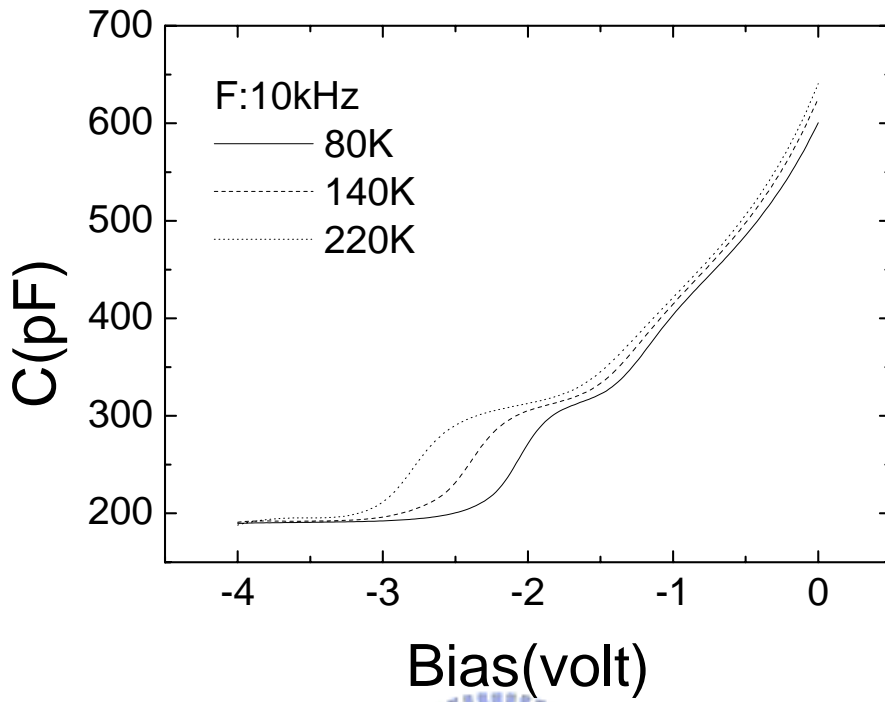


圖 3-8(a) 3.06 ML 樣品之 10kHz 變溫 C-V 圖

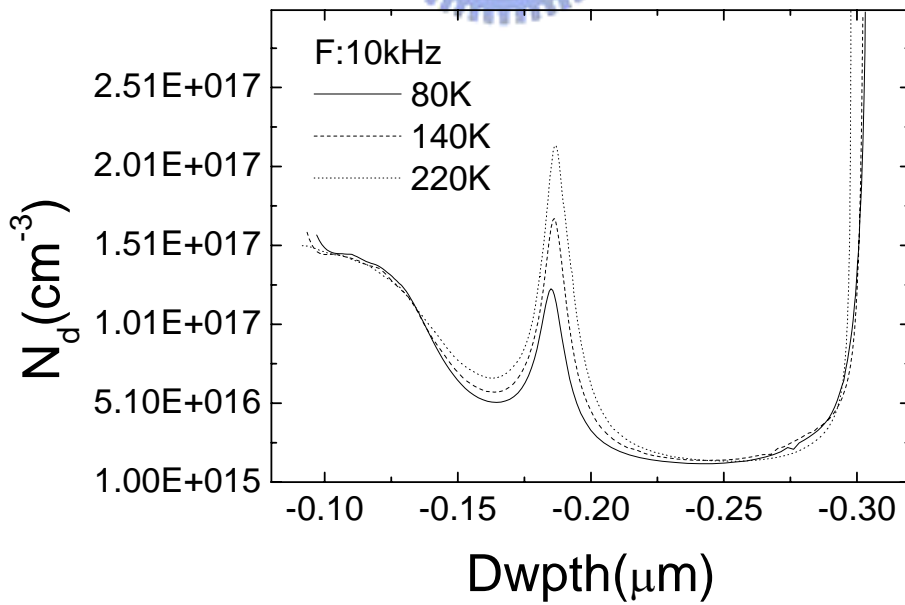


圖 3-8(b) 3.06 ML 樣品之 10kHz 變溫縱深分佈圖

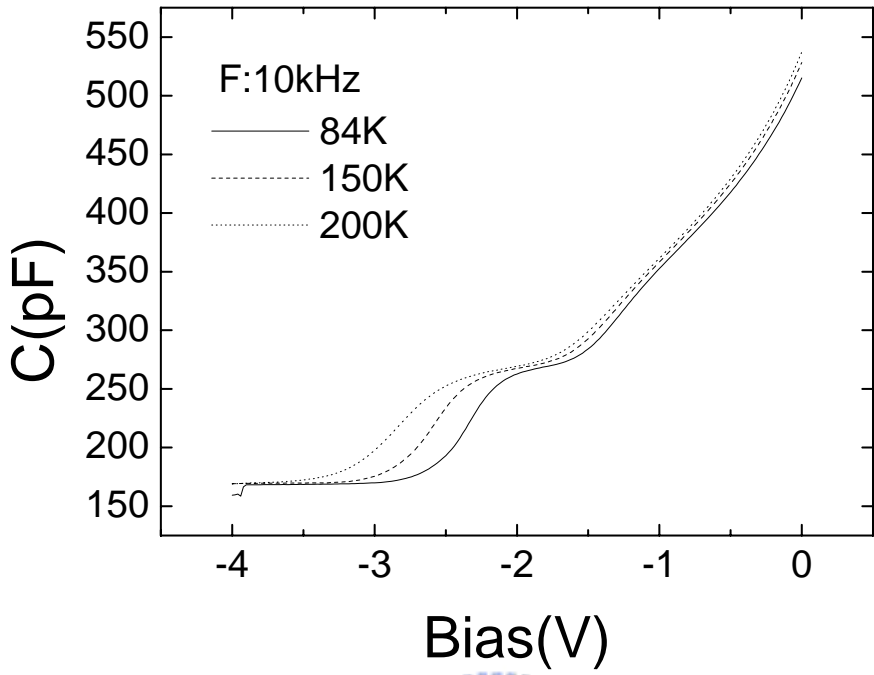


圖 3-9 3.33 ML 樣品之 10kHz 變溫 C-V 圖

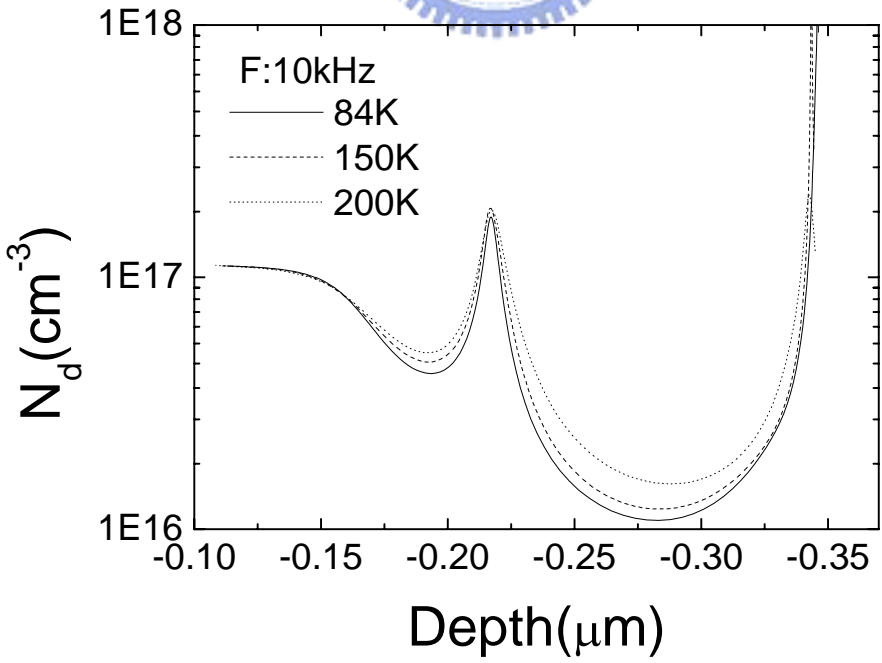


圖 3-10 3.33 ML 樣品之 10kHz 變溫縱深分佈圖

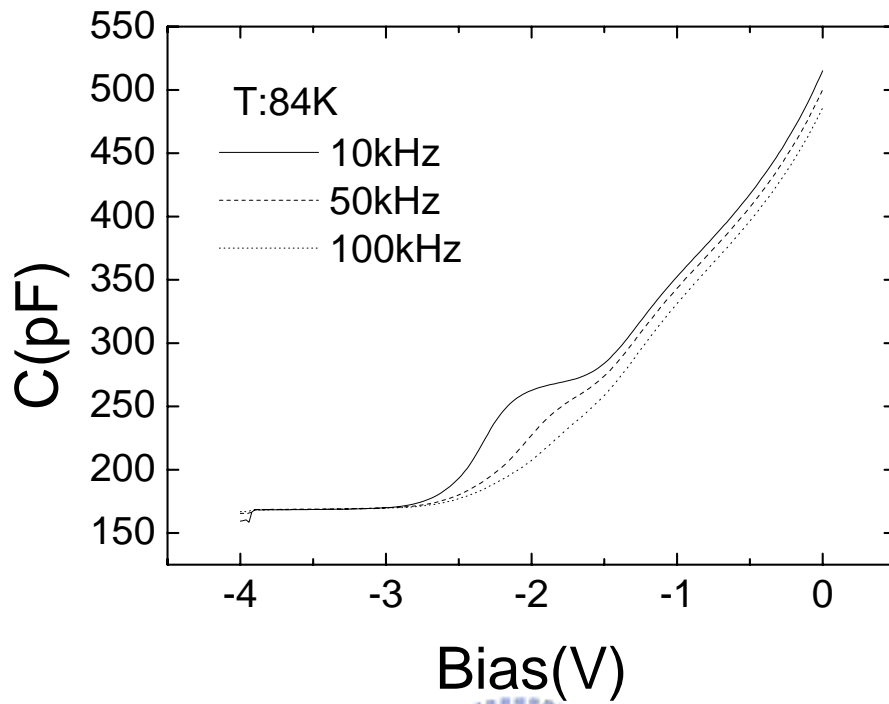


圖 3-11(a) 3.33 ML 樣品之溫度 84K 變頻 C-V 圖

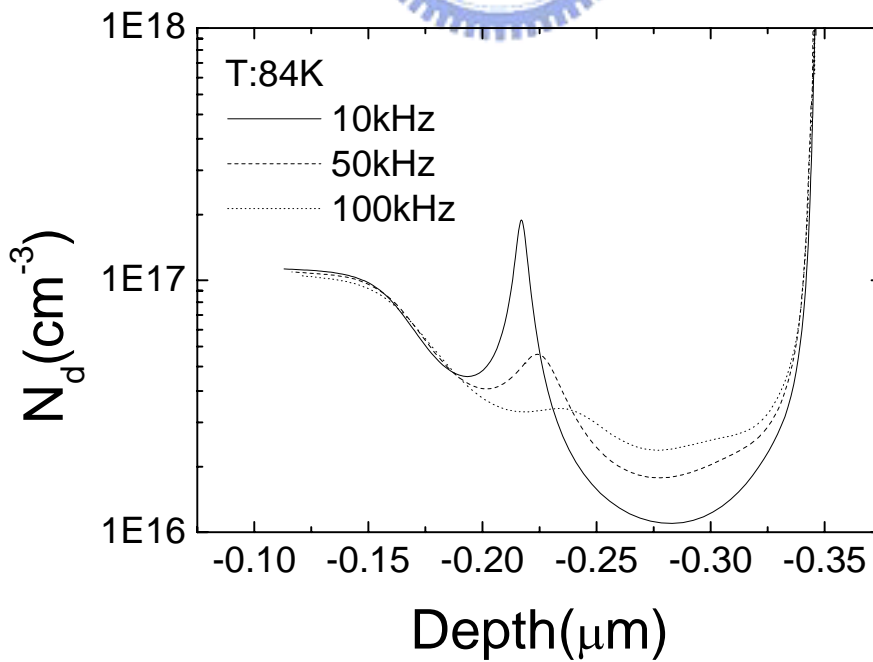


圖 3-11(b) 3.33 ML 樣品之溫度 84K 變頻縱深分佈圖

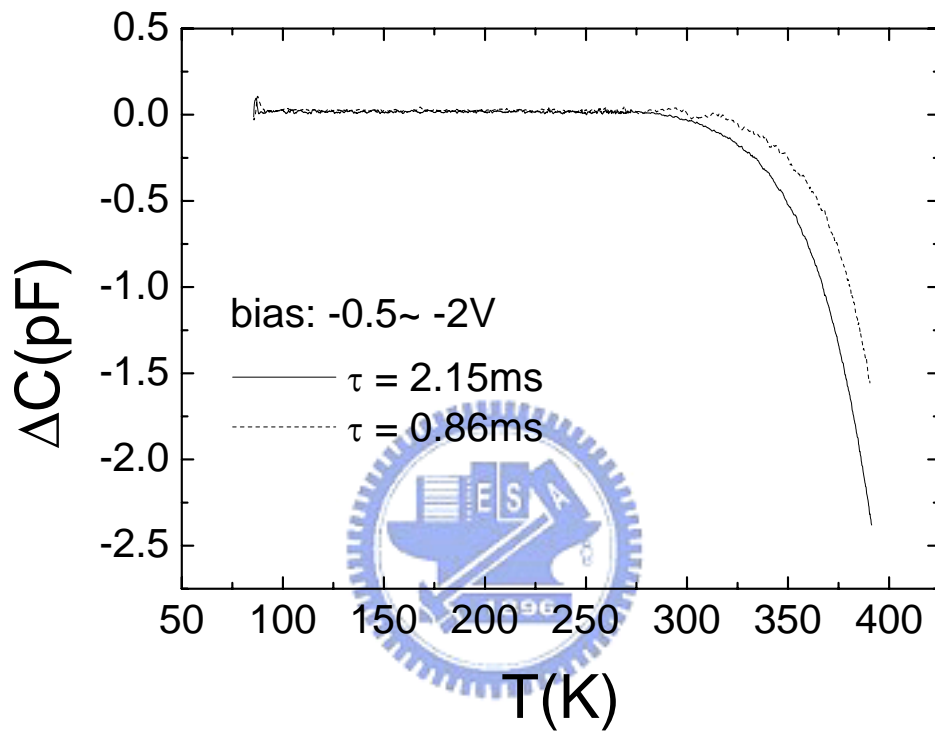


圖 3-12 2.34 ML 樣品之 DLTS

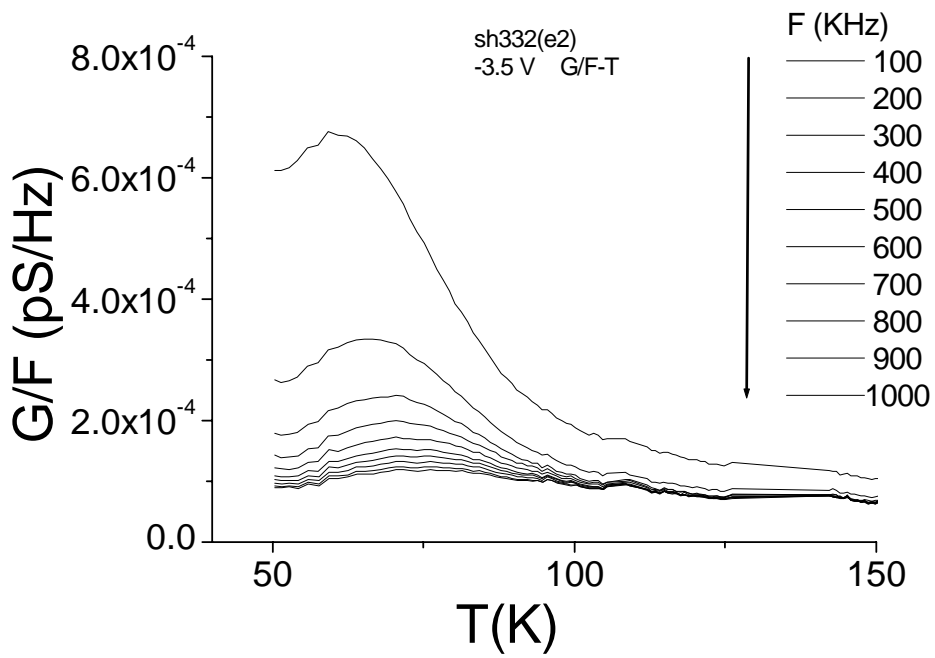


圖 3-13(a) SH332 樣品之 G-T 圖

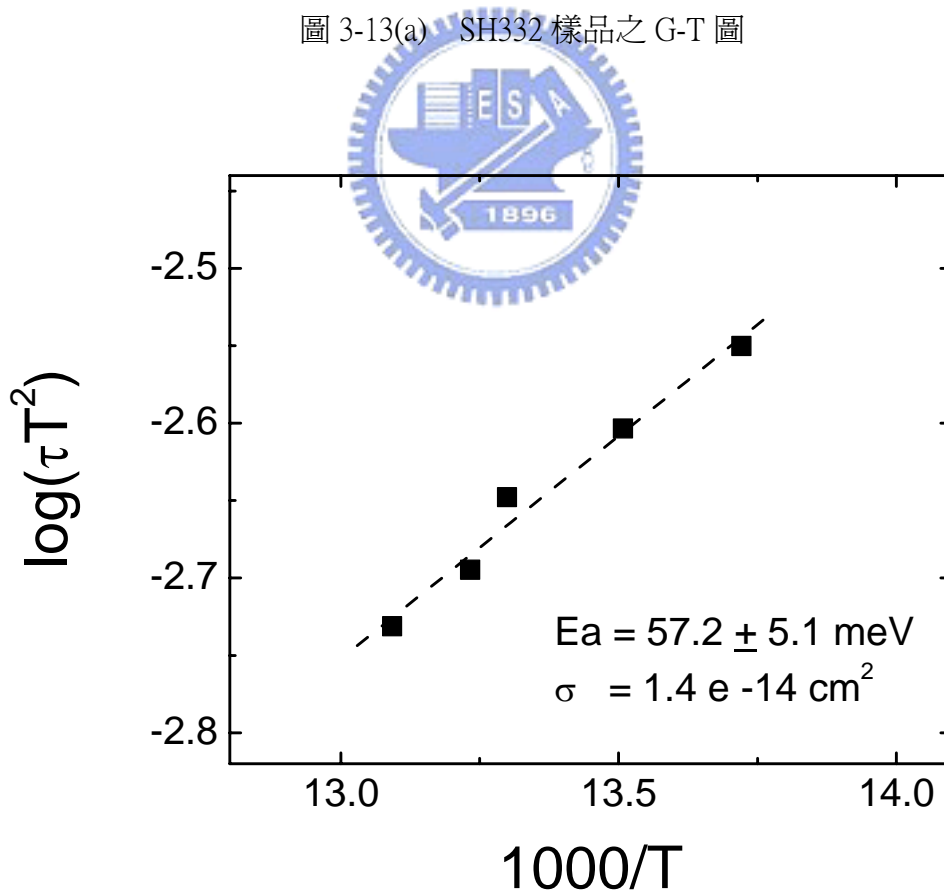


圖 3-13(b) SH332 樣品 G-T 之 Arrhenius plot



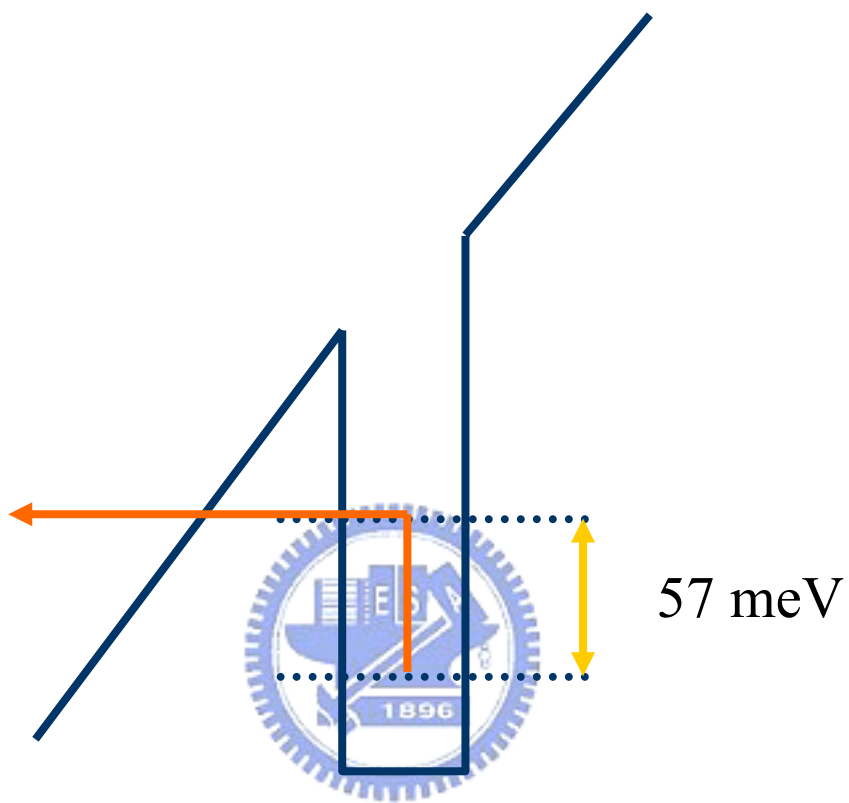


圖 3-14 SH332 樣品穿遂現象示意圖

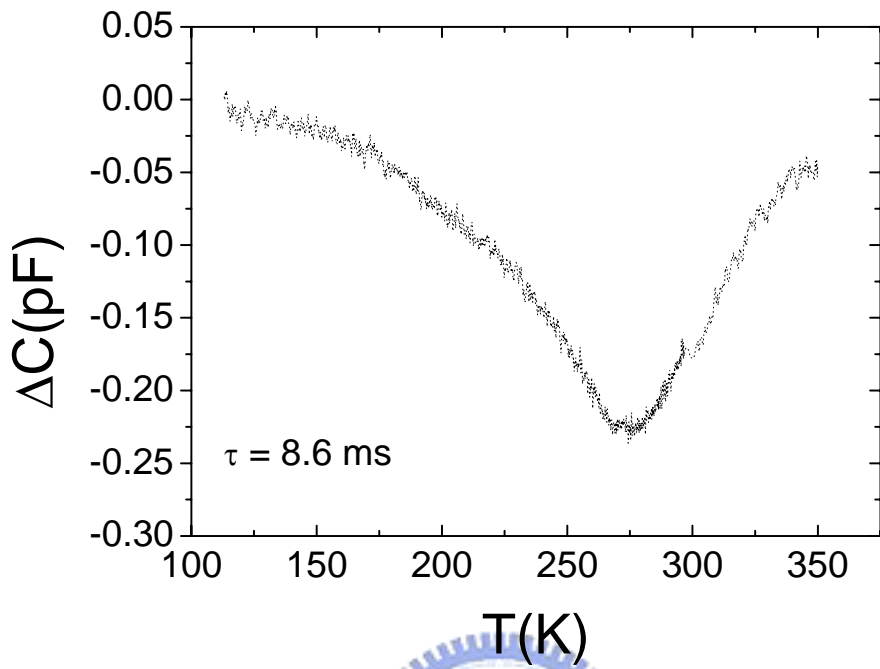


圖 3-15 3.06 ML 樣品之 DLTS

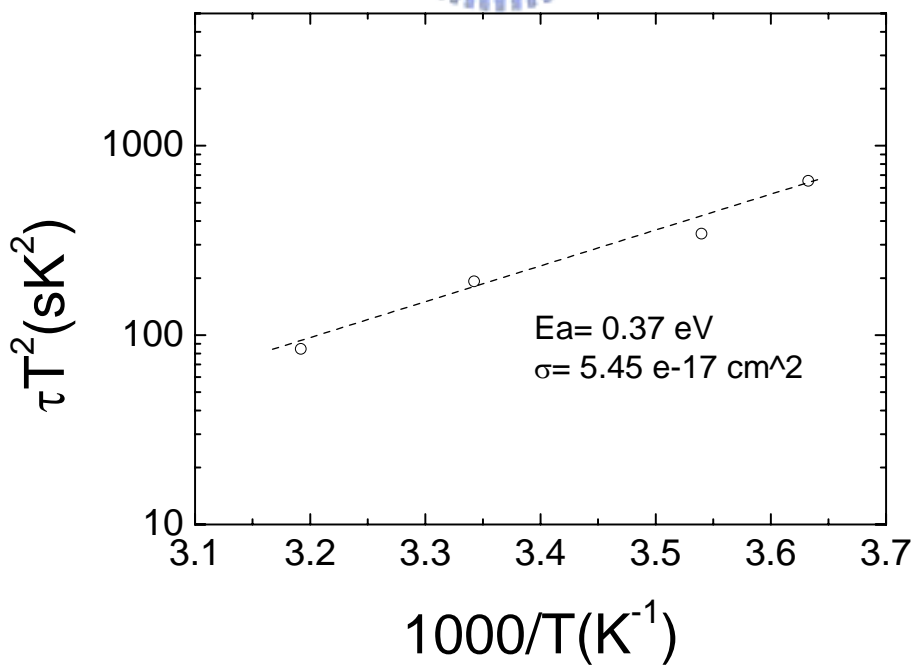


圖 3-16 3.06 ML 樣品 DLTS 之 Arrhenius plot

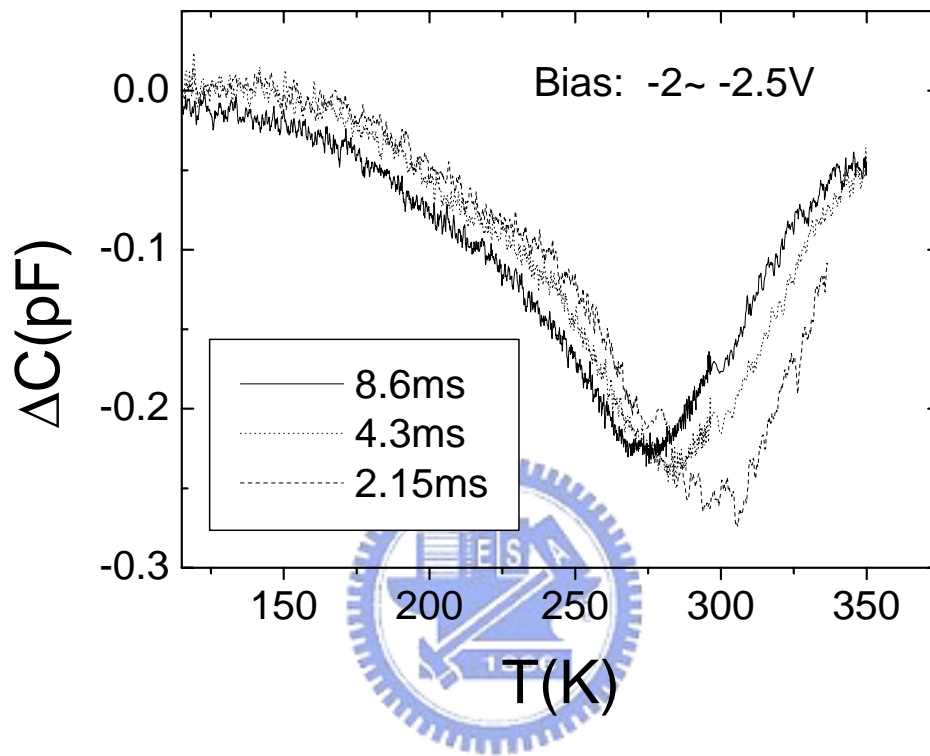


圖 3-17 3.06 ML 樣品不同速率視窗下之 DLTS

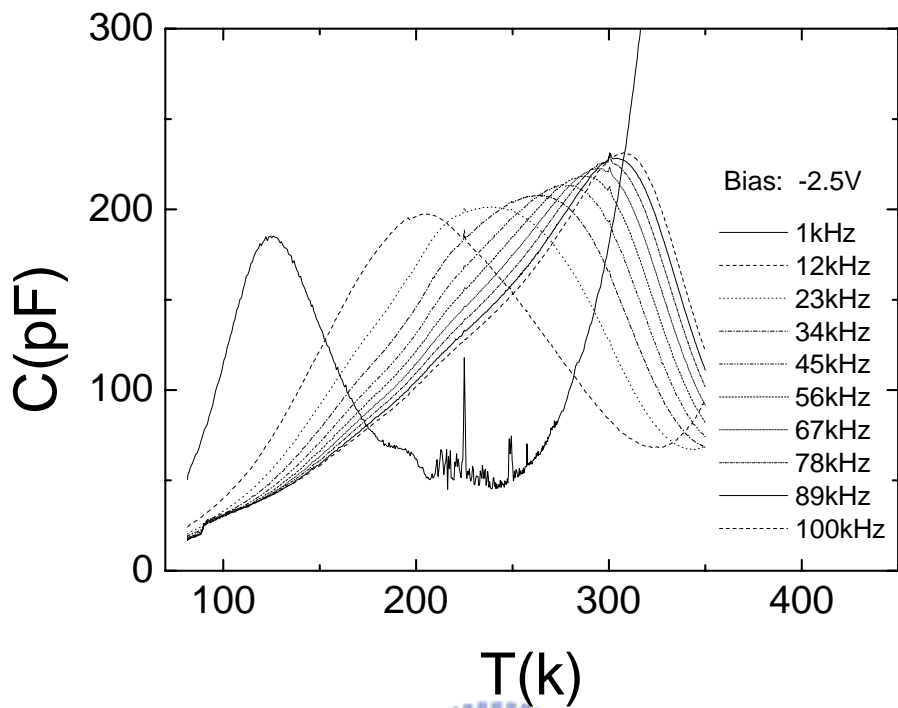


圖 3-18 3.06 ML 樣品載子空乏區之 G-T

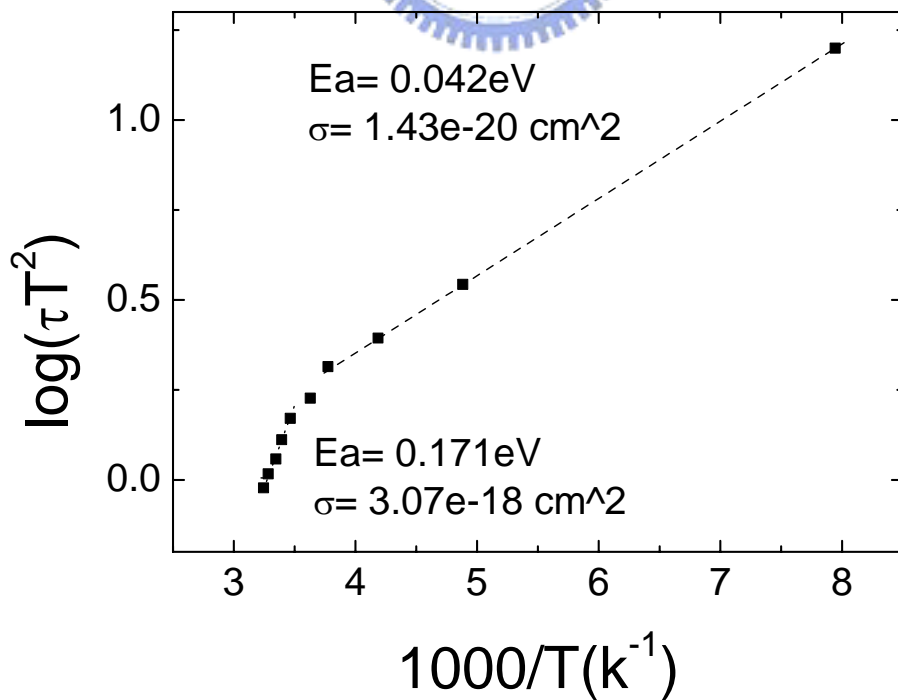


圖 3-19 3.06 ML 樣品 G-T 之 Arrhenius plot

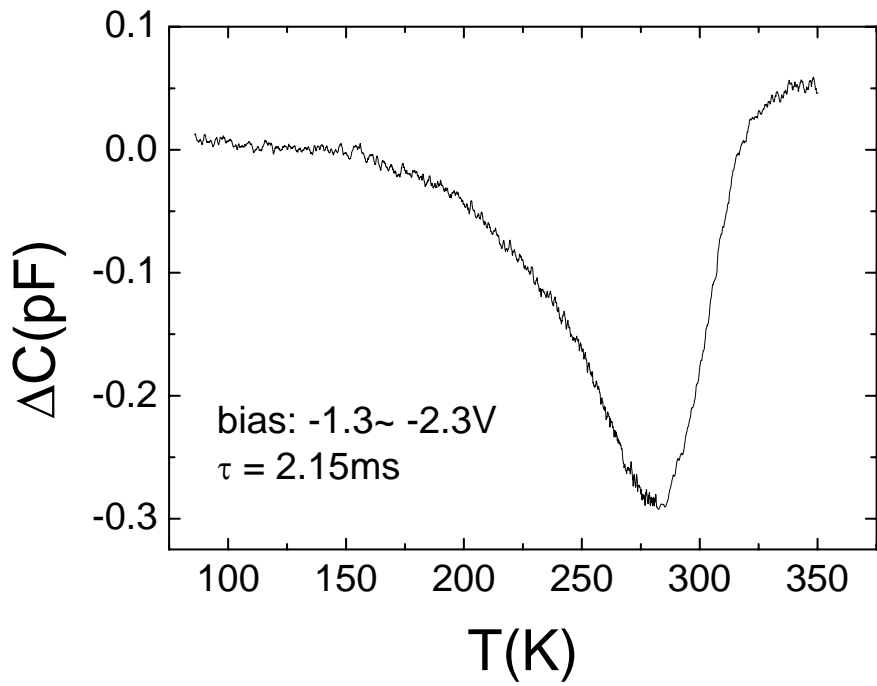


圖 3-20(a) 3.33 ML 樣品之 DLTS

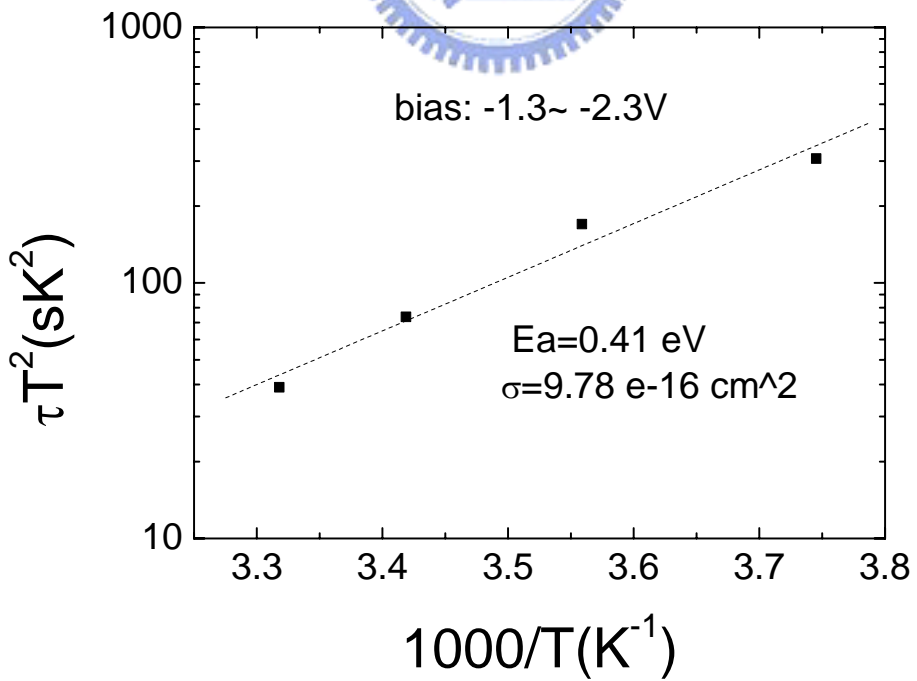


圖 3-20(b) 3.33 ML 樣品 DLTS 之 Arrhenius plot

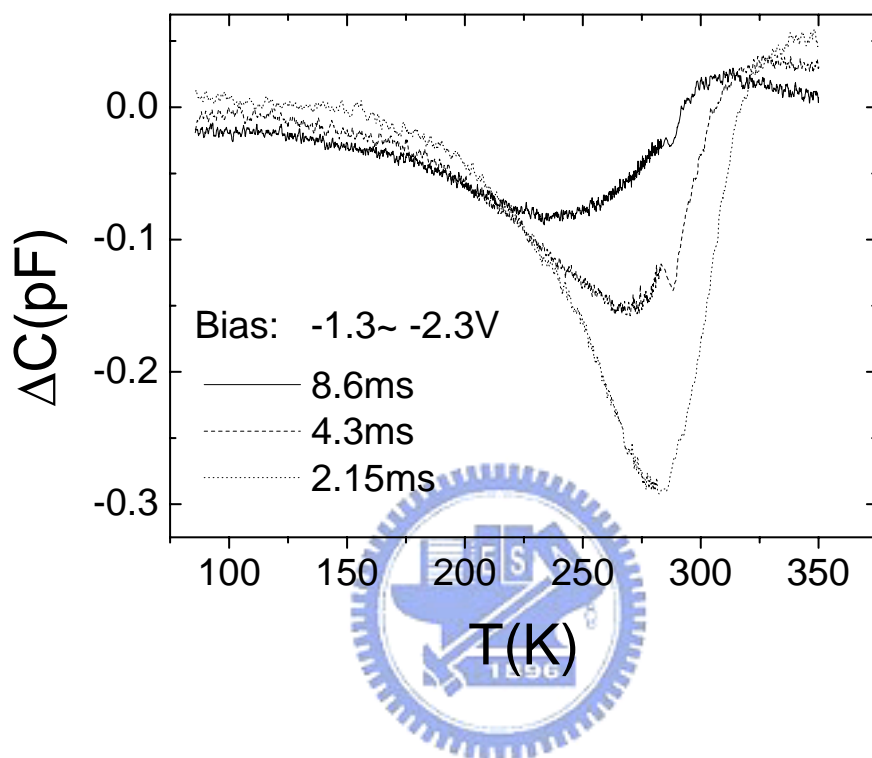


圖 3-21 3.33 ML 樣品不同速率視窗下之 DLTS

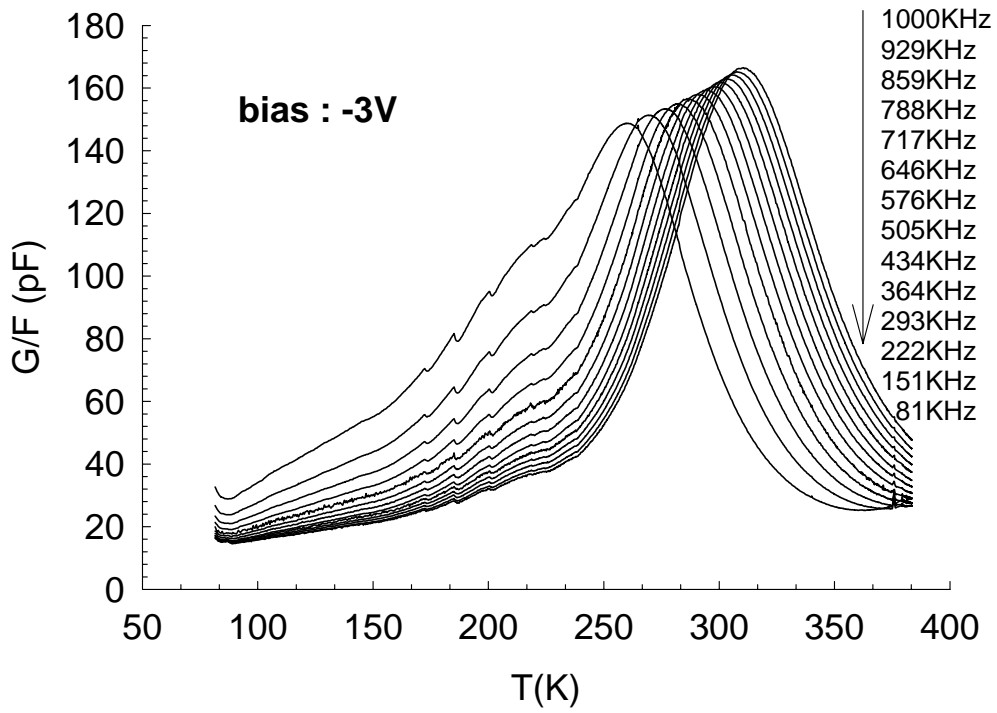


圖 3-22 (a) 3.33 ML 樣品 G-T 圖

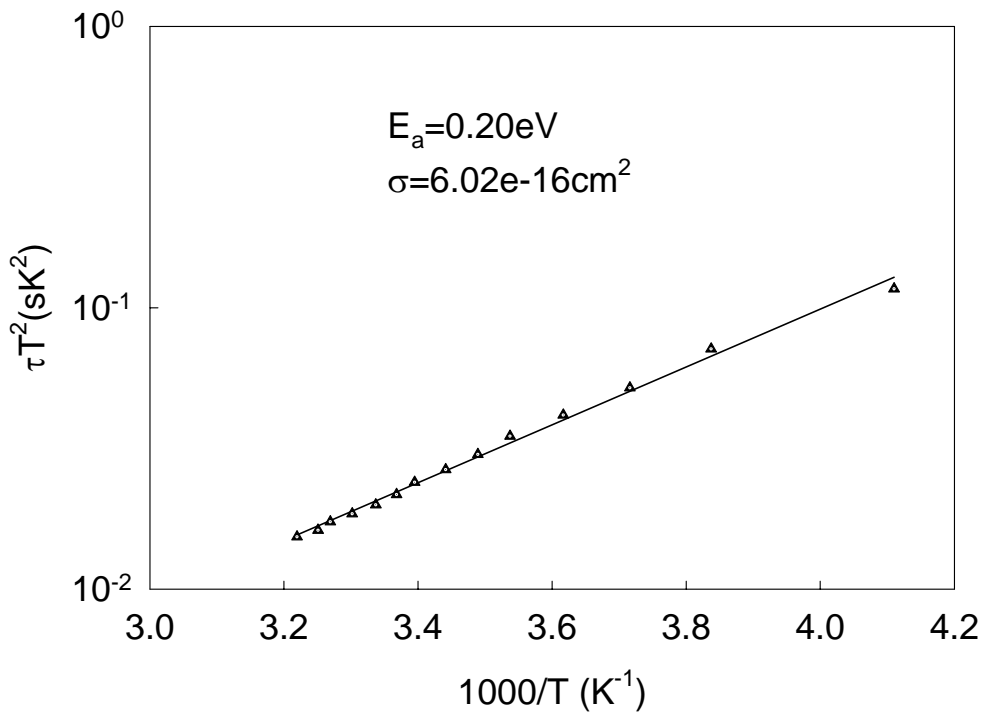


圖 3-22 (b) 3.33 ML 樣品 G-T 之 Arrhenius plot

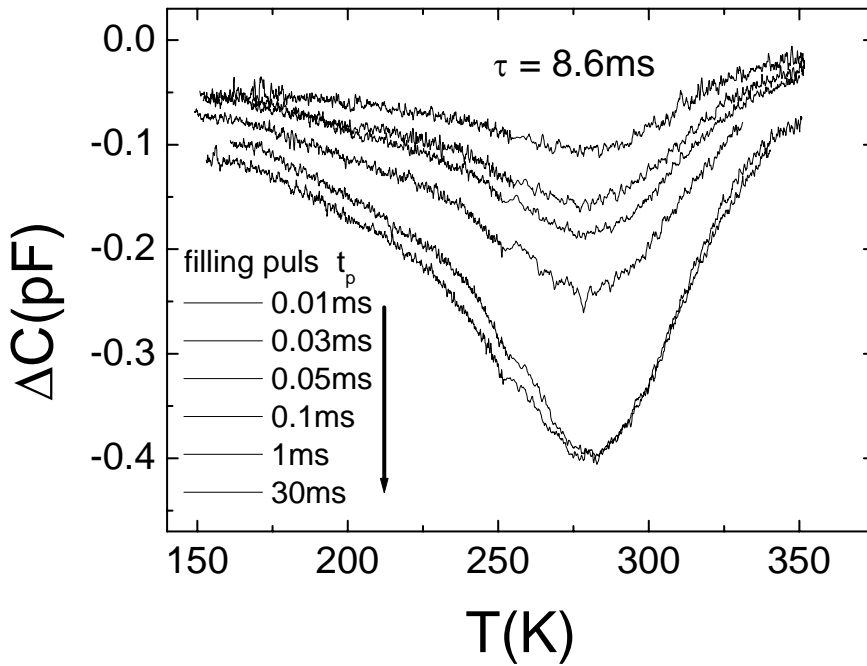


圖 3-23 3.06 ML 樣品不同填充偏壓時間之 DLTS

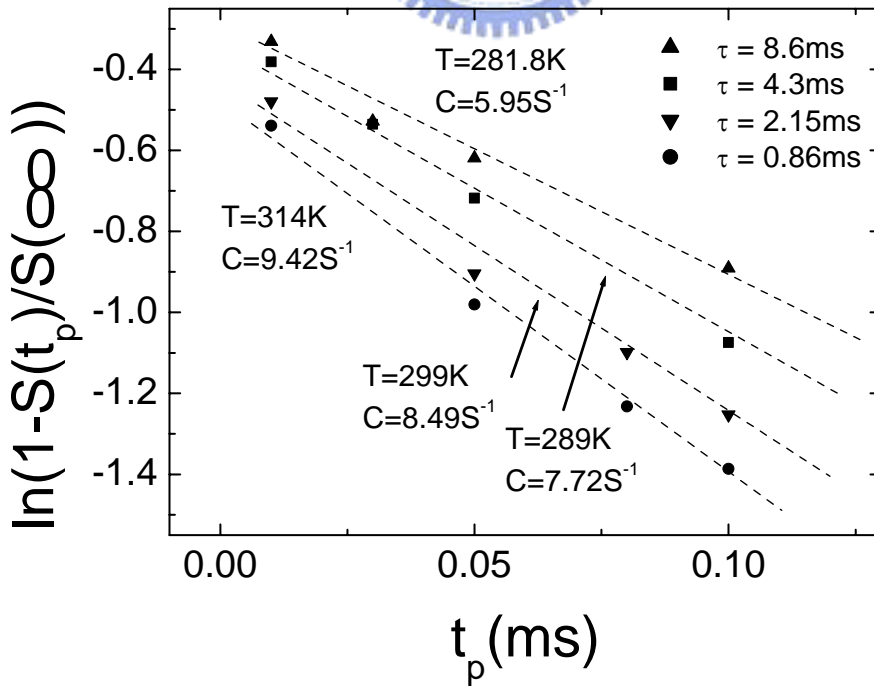


圖 3-24 3.06 ML 樣品不同速率視窗求對應之捕捉速率



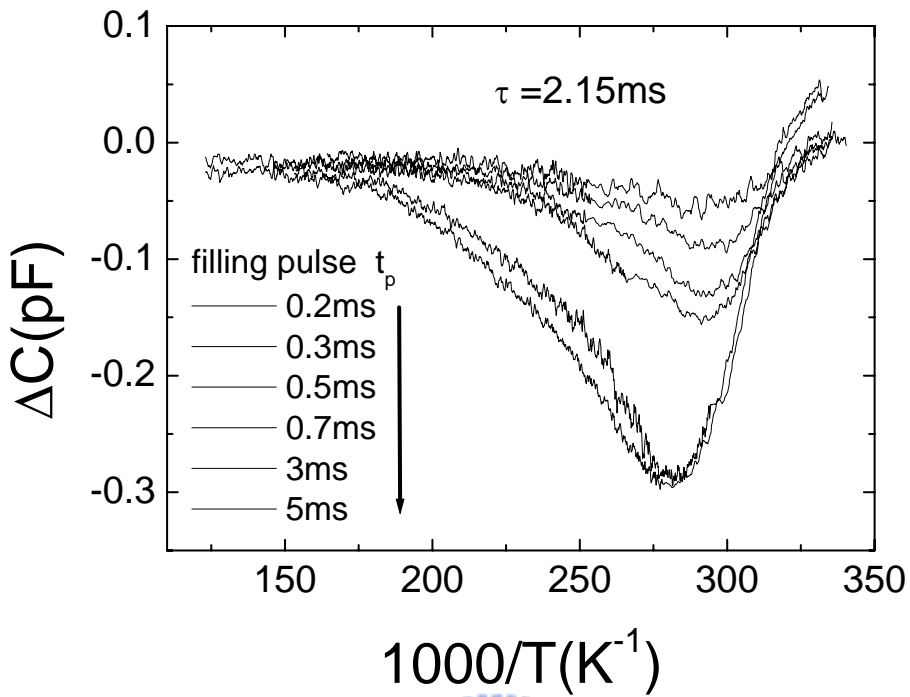


圖 3-25 3.33 ML 樣品不同填充偏壓時間之 DLTS

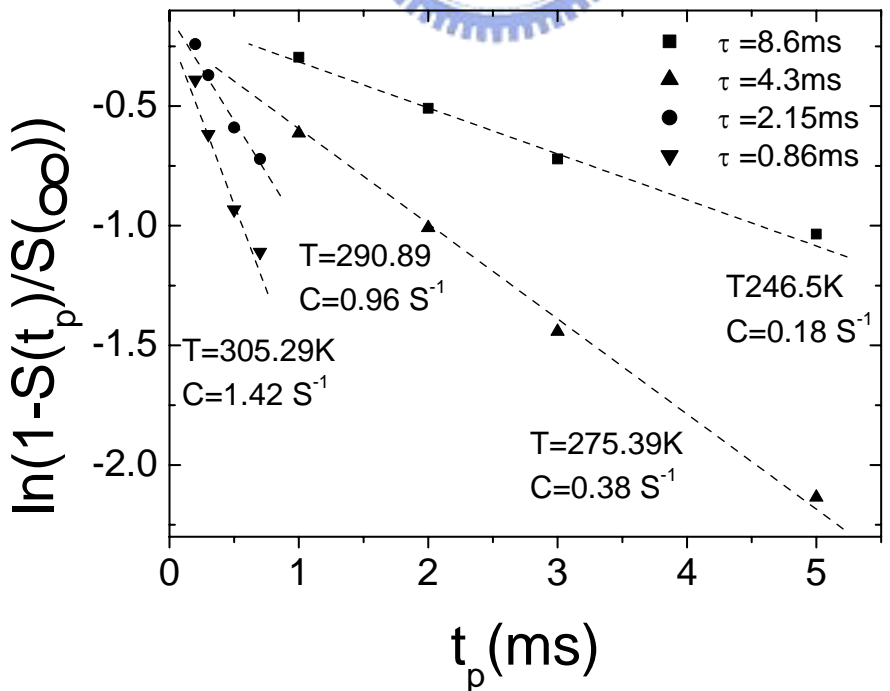


圖 3-26 3.33 ML 樣品不同速率視窗求對應之捕捉速率

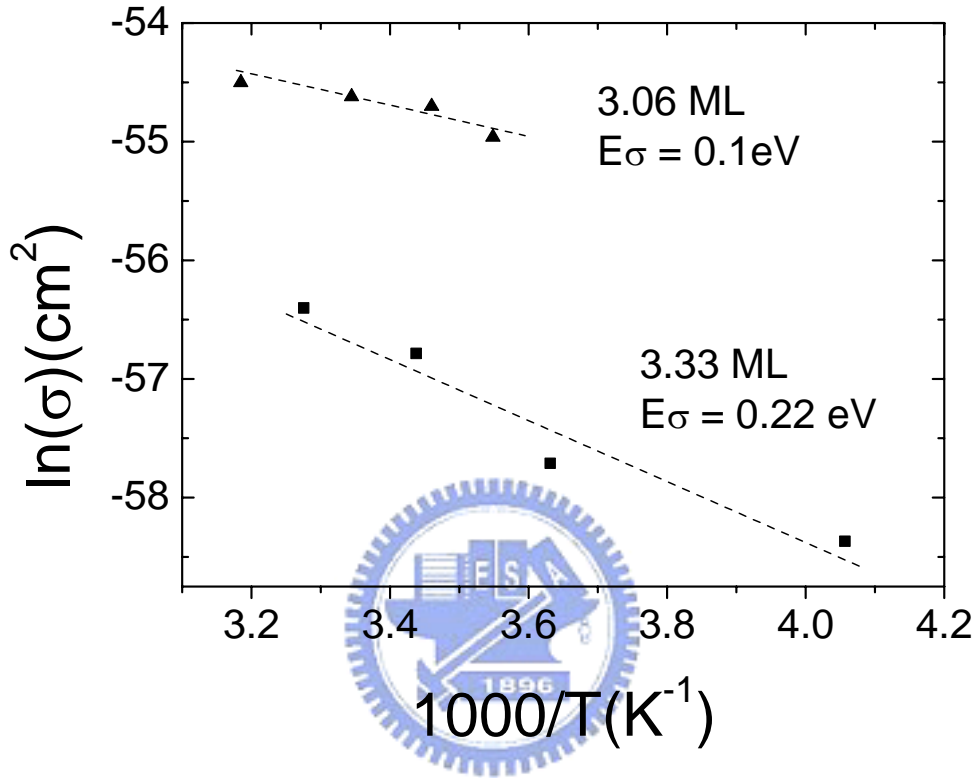


圖 3-27 3.33 ML 和 3.06 ML 樣品之捕捉位能障