

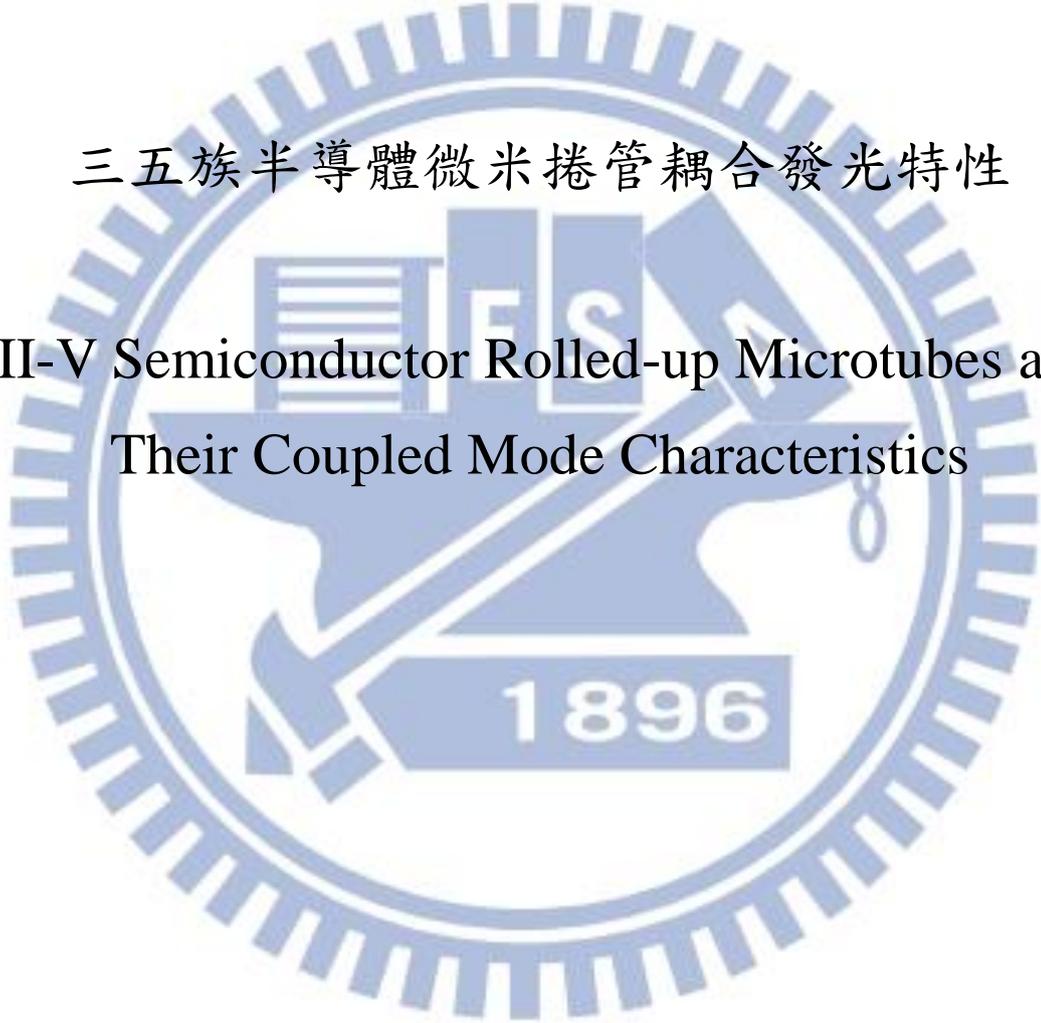
國立交通大學

電子工程學系電子研究所碩士班

碩士論文

三五族半導體微米捲管耦合發光特性

III-V Semiconductor Rolled-up Microtubes and
Their Coupled Mode Characteristics



研究生：彭柏霖

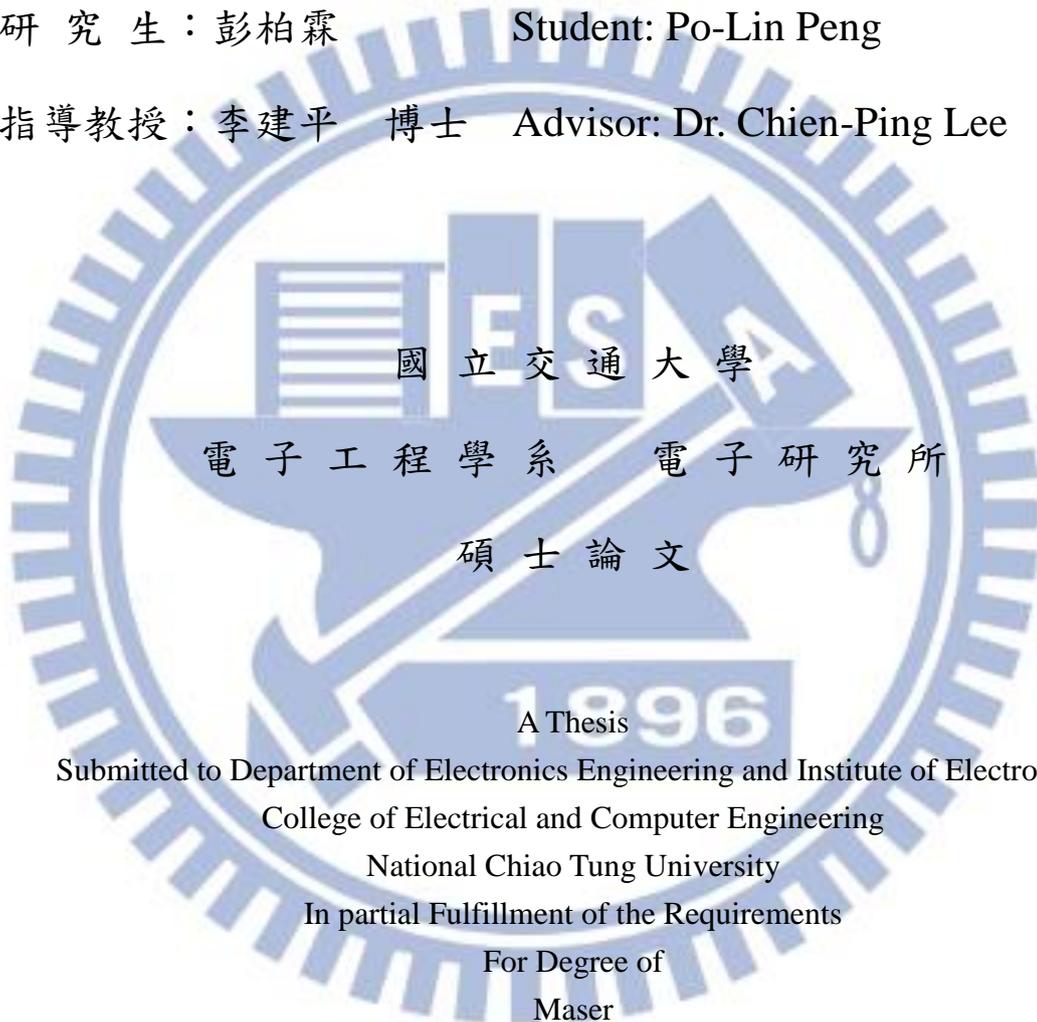
指導教授：李建平教授

中華民國一零三年十月

三五族半導體微米捲管耦合發光特性
III-V Semiconductor Rolled-up Microtubes and
their Coupled Mode Characteristics

研究生：彭柏霖 Student: Po-Lin Peng

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 Degree of
Master
in
Electronics Engineering
October 2014
Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一零三年十月

三五族半導體微米捲管耦合發光特性

學生：彭柏霖

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

在本論文中，我們製作出多種捲管結構。將因為晶格不匹配而內含內建應力的應變雙層薄膜成長於犧牲層之上，我們利用選擇性蝕刻將犧牲層去除，使得應變雙層薄膜從基板上被釋放並且捲曲成微米等級的捲管。透過光罩圖樣的設計，並結合長晶、黃光以及蝕刻的技術，我們成功地製作出內嵌有砷化銦量子點的砷化鎵/砷化銦鎵微米捲管。利用光激發量測系統，我們成功量測到單根微米捲管的共振模態，展現其環形共振腔的性質。我們也對單根微米捲管進行變溫量測，發現其共振波長隨溫度紅移，並將砷化鎵折射率對溫度變化一次項求出。另外我們也製作出耦合雙捲管，期望能夠在積體光路方面發展其應用。光激發量測顯示耦合雙捲管的確會有模分裂的產生，與 Rsoft 電磁場模擬軟體所得到的結果相符合。

III-V Semiconductor Rolled-up Microtubes and their Coupled Mode Characteristics

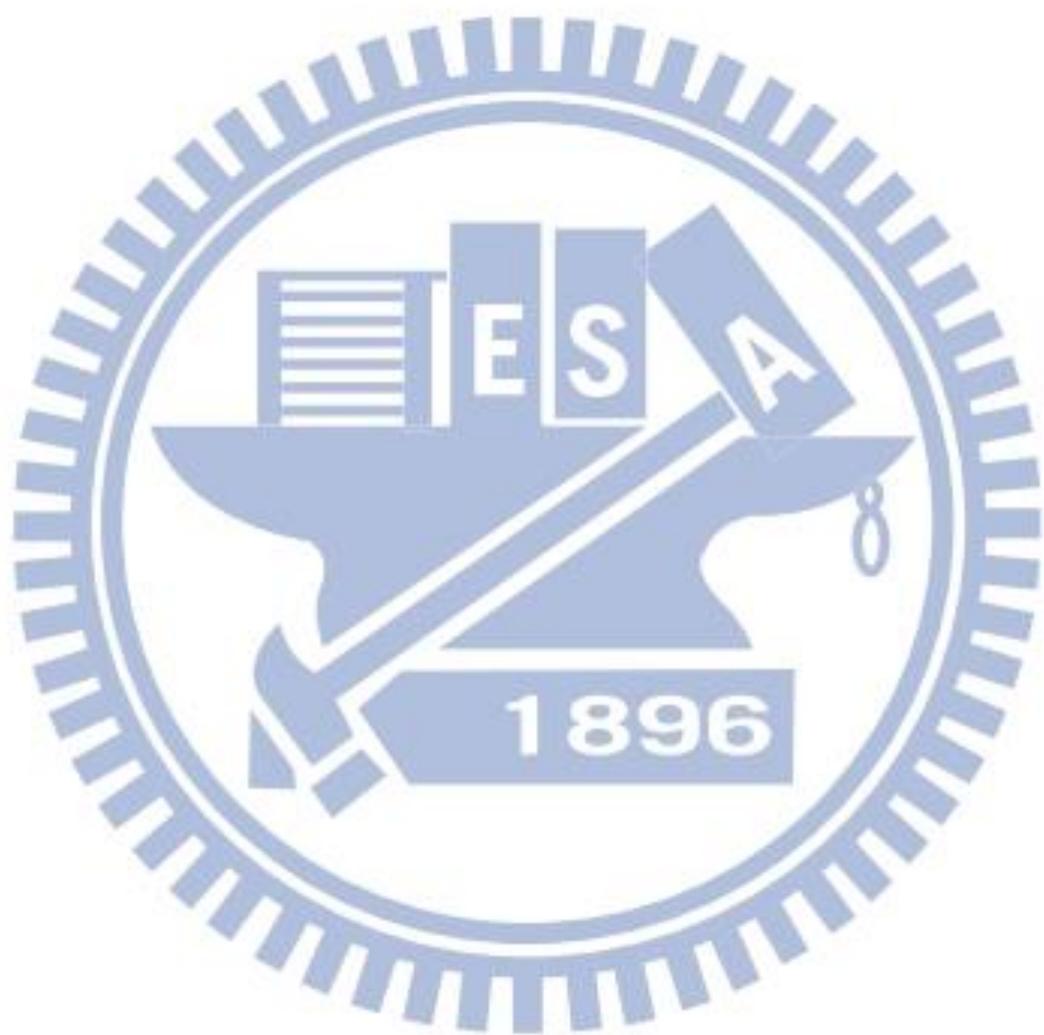
Student: Po-Lin Peng

Advisor: Dr. Chien-Ping Lee

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

Abstract

In this thesis, several types of semiconductor microtube structures have been fabricated. We are able to form micron sized rolled-up tubes by lifting off the strained bi-layer which is composed of two lattice mismatched thin films with selective etching. With the well-designed patterns on the mask, well controlled MBE crystal growth, photolithography techniques as well as etching techniques, GaAs/InGaAs microtubes with embedded InAs quantum dots were fabricated. The light emission properties were studied using an optical pumping system, which helped us to acquire the information of the optical resonant modes of each single microtube. The microtubes showed characteristics as ring resonators with sharp peaks on the spectrum. On the other hand, we observed the thermal characteristic of each single microtube, which showed that the optical modes would red-shift as the temperature rose, and we also figured out the first order term of the effect of GaAs refractive index temperature dependence. We also fabricated coupled twin microtubes, expecting practical application as optical filters or add/drop multiplexers in optical integrated circuits. The optical spectra of the couple twin microtubes indicated the existence of mode splitting, which was predicted by the simulation results based on a FDTD software-Rsoft.



致 謝

在碩士班的這兩年裡我學習到了許多東西，比方說如何進行半導體相關的製程、如何利用軟體對量測系統加以控制以及如何分析數據等等。這些工作把我以前所學的知識加以整合起來，並且用以分析一個實際的元件，讓我獲得了不少的成就感。這些必須感謝我的指導教授-李建平老師，把我帶入三五族半導體的世界裡，讓我能夠依照自己的想法發揮。每次參與老師主持的 meeting，雖然不見得能夠完全了解大家報告的主題內容，不過從老師給予大家的解釋以及務實建議，總能夠從中得到一些啟發並對於這些課題能有更深入的了解。另外也要感謝林聖迪老師的打氣以及林國瑞老師給了我許多建議。

我能夠順利地進行捲捲的研究，首先得感謝孫耘學姐帶領我完成整套基礎製程，也在我有疑問時給予我建議。非常感謝小金學長以及尼克學長不辭辛勞地幫我長晶，並且提供我一些可行的想法。最要感謝的是 Queena 學姐以及巫俠學長，沒有你們在三樓的拔刀相助，根本不可能完成量測。Queena 學姐的博學多聞解決了我許多的疑惑，學姐的成名作- μ PL 系統則是分析捲捲發光的強力工具，而巫俠學長的硬體以及軟體功力我就不再贅言了。而 KB 學長帶領我 PL 量測、小豪學長的 SEM、文長學長的分析以及畢業學長旭傑、聖凱、岳民的幫助，博後學長建宏的許多瘋狂想法、建旭學長在清大的設備支援，這些我是忘不掉的。

同屆的韋儒、市長、鴻霆、秉耕、書文、蒜頭、柏威以及厚聰，跟你們一起在實驗室裡、課堂上、球場上以及出遊的回憶是美好的。很喜歡大家聚在一起討論課業以及辦活動，希望之後能再相遇。學弟妹來得、有容、廣仁、迺惠、志洋、士弘與謙偉，期待你們能夠做出一些夠有威力的東西，研究能夠順順利利。感謝帝成忍受我的牛脾氣，不過所謂「愛之深，責之切」，我相信經過這麼多之後，你一定會越來越沉穩。接著是以坐我隔壁的敏琦為首的學弟妹們，你們認真以及誠懇的態度已經讓你們在研究上有很好的開端。

最後得感謝爸爸、媽媽、姊姊以及妹妹，不順心的事回到家總是會煙消雲散。這兩年來你們全力支持我，讓我無後顧之憂地做研究。在最後的最後，我想把這篇論文獻給我所愛的大家。

目 錄

摘 要	i
Abstract.....	ii
目 錄	v
圖目錄	vii
表目錄	ix
第一章 緒論	1
第二章 微米捲管形成與光學原理	3
2.1 半導體捲管形成原理	3
2.2 半導體捲管直徑推估	5
2.3 半導體微米捲管環形共振腔之光學共振模態	8
第三章 微米捲管及其元件製程	10
3.1 樣品結構	10
3.2 置於玻璃基板上之單微米捲管與雙微米捲管元件	11
3.3 置於溝槽上之單微米捲管元件	14
第四章 低溫微光激發螢光系統架設	19
4.1 低溫致冷器	20
4.2 幫浦系統	22
4.3 微光激發螢光系統	22
第五章 實驗結果及討論與分析	25
5.1 樣品光激發螢光頻譜分析	25
5.2 低溫微光激發螢光之量測頻譜與分析	26

5.3 微米捲管直徑與理論值比較	27
5.4 溝槽上之單微米捲管發光特性	29
5.5 玻璃基板上之單微米捲管發光特性	33
5.6 單微米捲管發光變溫量測與分析	37
5.3 雙捲管耦合之理論計算與發光特性	42
第六章 結論與展望	52
參考文獻	53
簡歷	55



圖目錄

圖 2.1.1 半導體的晶格常數及能隙圖.....	3
圖 2.1.2 半導體微米捲管形成機制示意圖.....	4
圖 2.2.1 圓柱狀捲曲結構示意圖.....	6
圖 2.3.1 光波在微米捲管管壁中全反射示意圖.....	8
圖 2.3.2 等效二維平面波導模型示意圖.....	8
圖 3.1.1 樣品磊晶結構示意圖.....	10
圖 3.2.1 將捲管從原本樣品基板轉移至異質基板上的過程示意圖.....	13
圖 3.2.2 玻璃基板上之微米捲管顯微影像.....	13
圖 3.2.3 雙微米捲管顯微影像.....	14
圖 3.3.1 置於溝槽上之微米捲管製程示意圖.....	16
圖 3.3.2 光激發微米捲管蝕刻圖樣以及樣品在顯微鏡下之影像.....	17
圖 3.3.3 鍍金之溝槽上微米捲管圖樣.....	18
圖 4.1.1 低溫致冷器運作流程圖.....	20
圖 4.1.2 低溫致冷器實品.....	21
圖 4.3.1 微光激發螢光系統示意圖.....	23
圖 4.3.2 微光激發螢光系統實際架構.....	23
圖 5.1.1 成長樣品之光激發螢光頻譜.....	24
圖 5.2.1 玻璃基板上之微米捲管在微光螢光激發系統下的光學顯微影像.....	27
圖 5.3.1 樣品之掃描式電子顯微影像.....	28
圖 5.4.1 溝槽上之樣品 Lm5403 微米捲管.....	29
圖 5.4.2 不對稱之螺旋狀環形共振腔示意圖.....	31
圖 5.4.3 溝槽上之樣品 Lm5403 變功率微光激發螢光量測頻譜.....	31
圖 5.5.1 玻璃基板上之樣品 Lm5403 微米捲管變功率微光激發螢光量測頻譜.....	34

圖 5.5.2 玻璃基板上之樣品 Rn1390 微米捲管變功率微光激發螢光量測頻譜.....	36
圖 5.6.1 玻璃基板上之樣品 Lm5403 微米捲管變溫微光激發螢光量測頻譜.....	38
圖 5.6.2 微米捲管共振模態隨著溫度升高而紅移.....	39
圖 5.6.3 玻璃基板上之樣品 Rn1390 微米捲管變溫微光激發螢光量測頻譜.....	41
圖 5.7.1 單環形共振腔之模擬頻譜.....	43
圖 5.7.2 Rsoft 環形共振腔.....	43
圖 5.7.3 單與雙環形共振腔之 Rsoft 模擬頻譜.....	45
圖 5.7.4 雙環形共振腔隨間距變化之 Rsoft 模擬頻譜.....	45
圖 5.7.5 間距為零之雙環形共振腔在 1054.64nm(標號 1)的 Rsoft 模擬共振場圖.....	47
圖 5.7.6 間距為零之雙環形共振腔在 1056.77nm(標號 2)的 Rsoft 模擬共振場圖.....	47
圖 5.7.7 間距為零之雙環形共振腔在 1066.17nm(標號 3)的 Rsoft 模擬共振場圖.....	48
圖 5.7.8 間距為零之雙環形共振腔在 1068.07nm(標號 4)的 Rsoft 模擬共振場圖.....	48
圖 5.7.9 (a)單環形共振腔 Rsoft 模擬場圖，波長 1062.12nm.....	49
圖 5.7.9 (b)耦合雙量子井之波函數(對稱與反對稱)示意圖.....	49
圖 5.7.10 單捲管與雙捲管的微光激發螢光頻譜、單環共振腔與雙環共振腔的 Rsoft 模擬頻譜.....	49
圖 5.7.11 (a)單與雙環狀共振腔模擬頻譜比較.....	50
圖 5.7.11 (b)單根與耦合微米捲管量測頻譜比較.....	50

表目錄

表 4.1 微光激發螢光系統組成元件.....	19
表 5.3.1 半導體材料參數.....	28
表 5.3.2 樣品參數：薄膜厚度、捲管直徑理論值以及實驗值.....	29
表 5.4.1 根據圖 5.4.3，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數.....	33
表 5.5.1 根據圖 5.5.1，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數.....	35
表 5.5.2 根據圖 5.5.2，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數.....	37



第一章 緒論

近年來有關半導體微米腔體(microcavities)的研究進展十分迅速，其在半導體雷射方面的研究與應用也受到相當的重視，像是微米盤(microdisks)、微米柱(micropillars)以及光子晶體(photonic-crystal)等半導體微米腔體已有許多豐碩的研究成果。而在這些結構中，我們已經能夠觀察到低臨界電流雷射以及共振腔量子電動力學(Cavity Quantum Electrodynamics)的現象，例如 Purcell effect 等 [1][2]。

而在西元 2000 年時，由俄國 Prinz 等人[3]首次製作出半導體捲管的結構，其後陸續有許多文獻研究半導體捲管的原理、結構、光性與電性量測與元件展望。有別於前述這些以從上到下的製程方法所製作之共振腔，半導體微米捲管為自發捲曲之三維光學元件，其具有以下優勢：(1)半導體微米捲管的磊晶表面十分平滑，與其他主動層經蝕刻的半導體微米腔體相比較，更能夠有效降低光波散射損失以及非輻射復合的情形，提升腔體的品質因子(Q factor)；(2)半導體微米捲管由二維磊晶平面捲曲成三維結構後，因為主動區的應力被釋放進而增強了發光效率[4]；(3)光波被侷限在微米捲管管壁中，其光場最強區域與管壁中的主動層能夠達到幾乎完美的重合。因此半導體微米捲管具有高度的發展潛力達到低閾值(threshold)或是近乎零閾值(near-zero threshold)的半導體雷射，達到高輸出功率[5][6]。

半導體捲管的基本結構為成長一層犧牲層，以及具晶格不匹配(lattice mismatch)特性的雙層應變薄膜於基板(substrate)上，利用選擇性蝕刻去除犧牲層後，雙層應變薄膜釋放應力(strain)而形成微捲管的結構。半導體捲管所使用的材料可為 Si-Ge、III-V 族半導體、II-VI 族半導體等，也可結合金屬、聚合物等材料作應用。半導體捲管的優點，在於可以利用磊晶技術及黃光製程的結合，精準的控制其結構與位置。磊晶技術可以調變薄膜層中不同的材料組成以及薄膜厚度，由此決定半導體捲管的直徑。薄膜厚度可從幾個原子層(monolayer, ML)至數十奈米(nm)，而捲管直徑的範圍則可從數奈米至數十微米(μm) [3]。而藉由黃光微影製程，則可以精確的控制捲管的長度、位置與形狀。

半導體微米捲管具有十足發展的潛力，例如能夠應用在積體光路(Optical Integrated Circuits) [7][8]、微機電系統(Microelectromechanical Systems, MEMS)、應用流體(fluidics)、生物醫學等領域。

而在積體光路方面，環形共振腔(Ring Resonator)作為光學濾波器、訊號處理以及生醫感測上有廣泛的應用。基本上，高品質因子(High Q factor)是必須的。不少文獻致力於在 SOI(Silicon On Insulator)的結構[9][10]上製作高品質因子的環形共振腔。通常將一個或數個環形共振腔製作出來，並與其周圍的波導管產生耦合，藉此產生濾波的作用。不過因為微米環形共振腔的尺度不大，難以用傳統光學微影的方式製作出來，必須利用電子束微影的方式來製作。

本實驗利用分子束磊晶系統(Molecular beam epitaxy, MBE)來成長樣品。此系統能夠依照我們所需，結合 RHEED(Reflection High Energy Electron Diffraction)的監控，準確地控制磊晶薄膜的組成成份以及厚度。我們能藉由磊晶樣品結合黃光微影以及蝕刻等製程步驟，而不必使用電子束微影，製作出符合實驗所需的形狀、尺寸以及位置的微米捲管元件。在本實驗中我們利用光激發量測微米捲管在低溫以及室溫下的光學特性，並分析其光學共振模態，展現其微米環形共振腔的性質。此外我們也製作了耦合的雙微米捲管並透過 FDTD(Finite Difference Time Domain)的方式計算耦合微米環形共振腔的模分裂特性，以期其在積體光路上能夠結合後段製作的波導管(waveguide)，作為光學濾波器或是光篩取多工器(add/drop multiplexer) [11]。

第二章 微米捲管形成與光學原理

2.1 半導體捲管形成原理 [12]

半導體微米捲管的形成是由兩個重要的部分所決定，一是成長於同一基板(substrate)上的應變雙層薄膜(strained bilayers)，二是成長於基板和應變雙層薄膜之間的犧牲層。其中應變雙層薄膜是由兩種晶格常數(lattice constant)不匹配的材料所組成，接著利用具有高度選擇性的蝕刻溶液將犧牲層蝕刻掉，應變雙層薄膜即會釋放應力自發性的捲曲，形成半導體捲管。

本研究中的應變雙層薄膜以三五族半導體 GaAs 以及 InGaAs 兩種材料為主，此兩種材料的晶格常數可參考圖 2.1.1。GaAs 的晶格常數約為 5.65325\AA ，而 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 在 $x=0.2$ 時晶格常數約為 5.73426\AA ，由此可知應變雙層薄膜的晶格不匹配量(lattice mismatch)約為 $\Delta a/a=1.43\%$ 。而犧牲層則是使用 AlAs，其晶格常數為 5.6611\AA 。

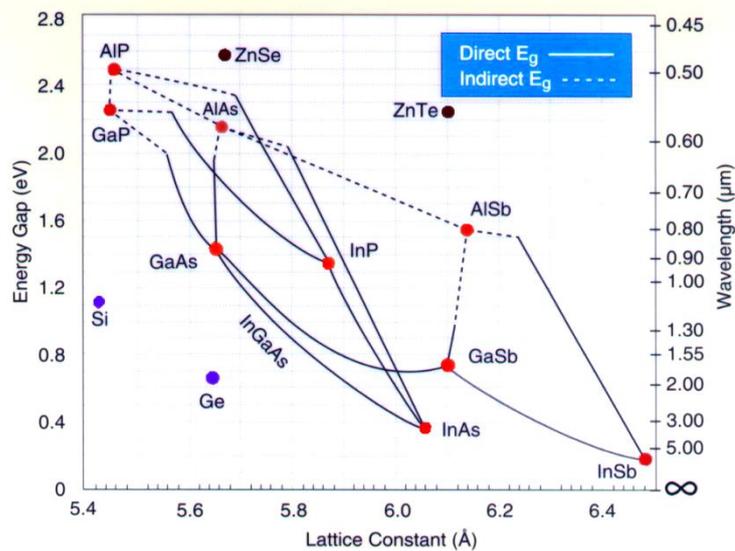


圖 2.1.1 半導體的晶格常數及能隙圖

半導體微米捲管的形成機制則如圖 2.1.2 所示。首先於 GaAs 基板上成長晶格常數相匹配的 AlAs 犧牲層，再成長由 GaAs 以及 InGaAs 這兩種晶格不匹配的材料所組成的應變雙層薄膜於其上。此時因為 InGaAs 的晶格常數較 GaAs 大，因此 InGaAs 薄膜會受到壓縮(compressive)的應力，反之應變雙層薄膜中的 GaAs 薄膜則會受到一伸張(tensile)的應力。接著使用具有高度選擇蝕刻比($> 10^9$)的氫氟酸(hydrofluoric acid, HF)溶液蝕刻掉 AlAs 犧牲層，而不會蝕刻 GaAs/InGaAs 薄膜，則受到應力的雙層薄膜會被釋放離開基板。此時原本受壓縮應力的 InGaAs 層會產生向外延展的力量 F1，同時原本受到伸張應力的 GaAs 層則會產生向內收縮的力量 F2，如此便會產生一作用在 GaAs/InGaAs 雙層薄膜上的力矩 M，促使雙層薄膜捲曲而形成微米捲管，以平衡應變雙層薄膜間所受的應力，這是製作微米捲管時最重要的步驟。蝕刻速率與品質的控制將是決定半導體微米捲管形成與否的關鍵。

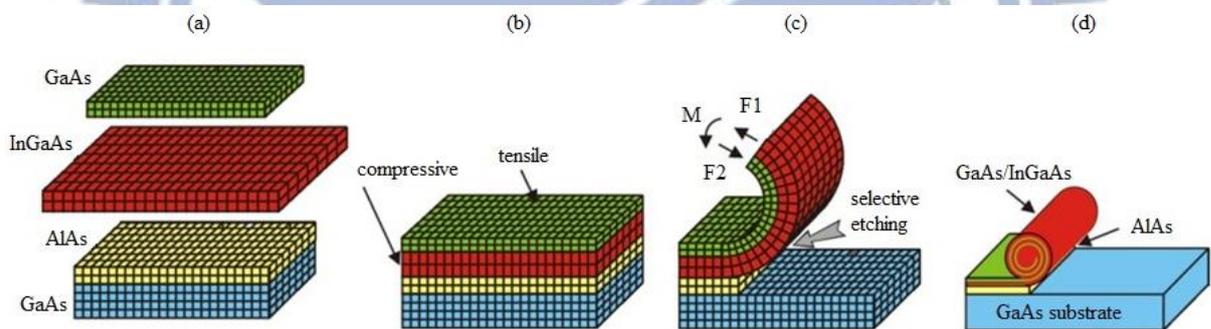


圖 2.1.2 半導體微米捲管形成機制示意圖 [12]

(a) 磊晶前各薄膜層的晶格常數，其中 GaAs 層與 InGaAs 層不互相匹配

(b) 經分子束磊晶後 GaAs/InGaAs 間受到應力而互相匹配的樣品

(c) 選擇性蝕刻犧牲層後釋放應力而捲曲的應變雙層薄膜

(d) 應變雙層薄膜捲曲完後形成捲管

2.2 半導體捲管直徑推估[13]

半導體捲管的直徑可用理論估計，其與雙層應變薄膜的內建應變量(built-in strain)、雙層應變薄膜的總厚度及其厚度比例有關。

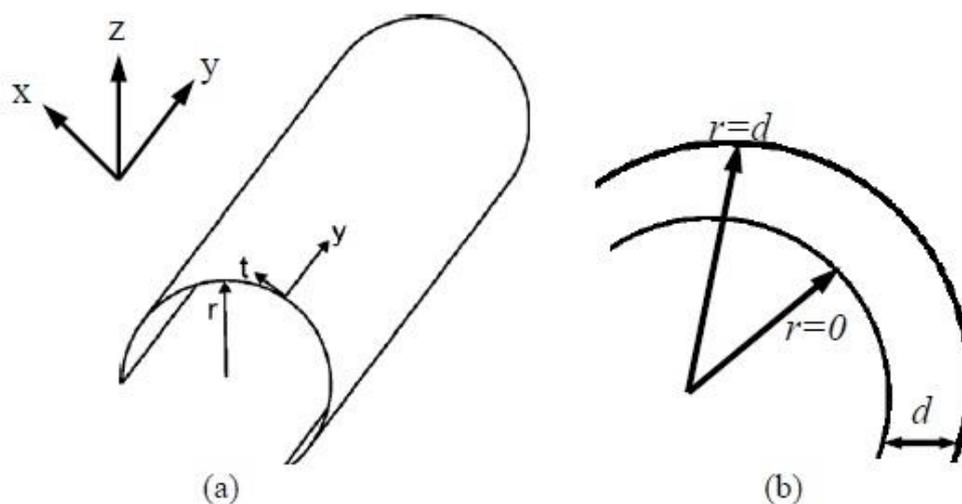


圖 2.2.1 (a) 圓柱狀捲曲結構示意圖，其中捲管的切線方向 t 、軸向 y 以及徑向 r (b) 薄膜內的徑向座標 r 的座標關係圖。[13]

假設捲管為一圓柱狀結構如圖 2.2.1 所示，徑向(r)的應力鬆弛且為零，而由後續推導可知，不論捲管軸向(y 軸)應力是否鬆弛，皆不會對捲管曲率半徑造成影響。以 a_t 、 a_y 分別表示在平面切線方向以及軸向的晶格常數，以 a_r 表示徑向的晶格常數， ε_t 、 ε_y 及 ε_r 則為相對應的應變量。其中 a_t 和 a_r 皆與徑向座標 r 有關。若薄膜厚度為 d ，則在薄膜的內、外表面徑向座標分別設為 $r=0$ 和 $r=d$ 。若薄膜內表面的曲率半徑及晶格常數分別為 R 和 a_i ，則切線方向晶格大小可視為隨半徑大小線性變化： $a_t(r) = a_i(1 + r/R)$ 。而 a_y 和 a_r 由應變鬆弛的情況所決定，而 ε_r 和 a_r 則和雙軸鬆弛有關，即徑向應力 $\sigma_r=0$ 。

利用連續彈性理論(continuous elasticity theory)，我們能夠解釋捲管偏好沿 $\langle 100 \rangle$ 方向捲曲的原因來自於捲管在不同晶格結構、方向及對稱性等因素下所相對應的應變能(strain energy) [13]。

以等向性(isotropic)材料而言，徑向應變量 $\varepsilon = \frac{\nu}{\nu-1}(\varepsilon_t + \varepsilon_y)$ ，而薄膜的應變能為 $E = \frac{Y}{2(\nu^2-1)}(\varepsilon_t^2 + \varepsilon_y^2 + 2\nu\varepsilon_t\varepsilon_y)$ ，其中 Y 、 ν 分別為楊氏係數以及泊松比(Poisson ratio)。此外，對於鑽石(diamond)以及閃鋅(zinc blende)結構材料而言，還必須要考慮其立方對稱性。對於(001)方向的薄膜，徑向應變量 $\varepsilon_r = \varepsilon_{zz}$ ，且由於徑向應力 $\sigma_r=0$ ，所以 $\varepsilon_{zz} = -\frac{C_{12}}{C_{11}}(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy})$ 。假如薄膜沿著〈100〉方向捲曲，則 $\varepsilon_t = \varepsilon_{xx}$ 且 $\varepsilon_y = \varepsilon_{yy}$ ，則應變能為：

$$E_{100}(\varepsilon_t, \varepsilon_r) = \frac{C_{11} - C_{12}}{2C_{11}} [C_{11}(\varepsilon_t + \varepsilon_r)^2 + C_{12}(\varepsilon_t^2 + \varepsilon_r^2)]$$

其中 C_{11} 、 C_{12} 為晶體的彈性剛性常數(elastic stiffness constant)。

微米捲管向不同於[100]方向捲曲時，其應變能會有所不同。若(001)方向的薄膜沿著(hk0)方向捲曲時，其中(hk0)方向與[100]方向夾一角度 φ ，則應變能將變為：

$$E_{\varphi}(\varepsilon_t, \varepsilon_r) = E_{100}(\varepsilon_t, \varepsilon_r) + C_0 \left(\frac{\varepsilon_t - \varepsilon_r}{2} \right)^2 \sin^2(2\varphi)$$

若薄膜沿著〈110〉方向捲曲， $\varphi=45^\circ$ ，其中 $C_0 = 2C_{44} - C_{11} + C_{12}$ ，且對於砷化鎵以及銻化鎵來說， $C_0 > 0$ ，則 $E_{110} > E_{100}$ 。由此可知，當薄膜沿著〈100〉方向捲曲時，其應變能為最小值，所以捲管偏好沿著〈100〉方向捲曲。由於我們的樣品成長完後，晶圓大平邊所對應的方向為〈011〉，因此我們在後續的光罩設計上，圖樣皆與大平邊呈現45度角傾斜，光罩圖樣見圖3.3.2(a)。

將雙層應變薄膜兩層之應變能分別加總起來得到 E_{total} ，接著將分別對 a_i 以及 R 做微分，尋找在最小的總應變能時所對應的微米捲管晶格常數以及半徑。

$$\frac{\partial E_{total}}{\partial a_i} = 0$$

$$\frac{\partial E_{total}}{\partial R} = 0$$

如此便能得到 R_c ，也就是微米捲管的半徑如下：

$$R_c = \frac{d_1^4 + 4nd_1^3d_2 + 6nd_1^2d_2^2 + 4nd_1d_2^3 + d_2^4n^2}{6\varepsilon n(1+\nu)d_1d_2(d_1+d_2)}$$

式中的各項參數分別為：下標1代表GaAs層，下標2則代表InGaAs層， $d = d_1 + d_2$

為雙層薄膜總厚度， $m = d_1/d_2$ 是兩種薄膜的厚度比， $n = Y_1/Y_2$ 為兩種薄膜的楊氏係數 (Young's modulus) 比，以及由於兩層薄膜之間的晶格不匹配 (lattice mismatch) 所產生的平面雙軸向應變量 (in-plane biaxial strain) $\varepsilon = \frac{a_2 - a_1}{a_1}$ 。

上式經過一番整理後，可得到下列計算半導體捲管直徑的公式 [14][15]：

$$D = \frac{d[3(1+m)^2 + (1+m \cdot n)[m^2 + (m \cdot n)^{-1}]]}{3\varepsilon(1+m)^2} \quad (2.1)$$

若假設 $Y_1 \sim Y_2$ ，於上式 (2.1) 中將 n 值以一代入並且忽略高次項則可簡化如下：

$$D = \frac{1}{3\varepsilon} \frac{(d_1 + d_2)^3}{d_1 \cdot d_2} \quad (2.2)$$

2.3 半導體微米捲管環形共振腔之光學共振模態

半導體微米捲管的管壁即是由磊晶成長之應變雙層薄膜所組成的。若我們在應變雙層薄膜當中成長量子點 (或是量子井) 的結構，則量子點 (或量子井) 就會在捲管管壁中形成一個具有光學活性的主動區 (optically active region)。此外，由於量子點 (或量子井) 周圍的半導體材料以及空氣其等效折射率 n_{eff} 較低，因此便形成了一個有效的波導結構。而樣品薄膜由原先的二維平面捲起後形成三維捲管，大部分的波導結構都離開了基板立於空氣之中，大大增強了此波導結構的特性。

光激發量測捲管的光學特性時，當雷射光源經過聚焦打在捲管管壁上，會在雷射光的焦點附近產生電子與電洞，接著電子與電洞會迅速在光學活性區形成激子 (exciton)，並產生輻射復合 (radiative recombination) 而放出光子。當產生的光波能夠滿足在管壁以及空氣介面之間形成全反射的條件時，則光波便會在垂直於捲管軸向 (y 方向) 的圓周方向上形成建設性干涉，並且在環繞圓周一圈後維持相同的相位，如同圖 2.3.1 所示。因此，我們在量測捲管的光學特性時，被局限在捲管圓周方向上的光波便會在相對寬廣的量子點 (或量子井) 發光波段上，產生一系列尖銳且幾乎等距的訊號波峰，即為半導體微米捲管環形共振腔的光學共振模態 (Optical Resonance Modes, ORMs)。

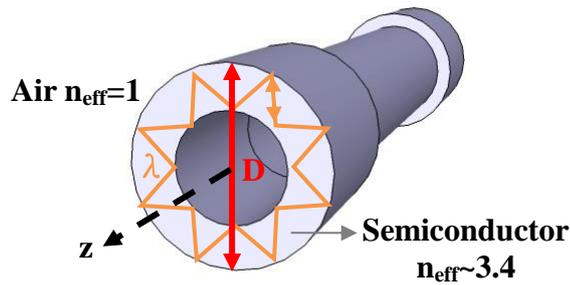


圖 2.3.1 光波在微米捲管管壁中全反射示意圖

根據文獻[16]的研究結果，以及我們所做的偏極化量測可得知，侷限於捲管中的光波其電場主要是平行分布於捲管管壁的(TE mode)。這是因為我們所使用的主動層為量子點，其電子電洞對復合，電子躍遷所發出的光本身就是 TE mode 的光，因此我們可以利用等效的二維平面波導模型(planar dielectric waveguide model)來分析捲管的光學共振模態[17]。圖 2.3.2 即為等效二維平面波導模型的示意圖，模型中的 y 及 l 方向分別為捲管的軸向以及沿著捲管圓周的方向。

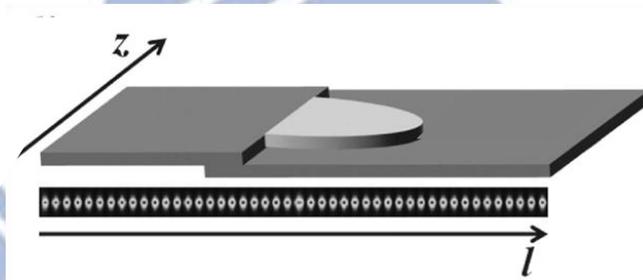


圖 2.3.2 等效二維平面波導模型示意圖 [18]

由純量的亥姆霍茲方程式(scalar Helmholtz equation)可得到下式：

$$-\frac{1}{n_{\text{eff}}(y)^2} \left[\frac{\partial^2 E(l,y)}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E(l,y)}{\partial l^2} \right] = k^2 E(l,y) \quad (2.3)$$

其中 $E(l,y)$ 為電場分布， $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ 為光波在自由空間之波向量(freespace wave vector)。

由於捲管軸向的電場變化極小，因此可將電場分解成軸向及圓周方向兩個分項， $\varphi(y)$ 是沿著 y 方向的橫向電場分布，而 β 則為沿著 l 方向的傳播常數(propagation constant)，

即將電場分布近似為 $E(l, y) = \varphi(y)e^{i\beta l}$ ，將其代入上式可得到公式(2.4)。由於公式(2.4)的形式類似於薛丁格方程式，因此稱為 photonic quasi-Schrödinger equation，利用此公式並配合數值解可以求得捲管的光學共振軸向模態(axial modes)。

$$-\frac{\partial^2 \varphi(y)}{\partial y^2} - n_{\text{eff}}(y)^2 k^2 \varphi(y) = -\beta^2 \varphi(y) \quad (2.4)$$

而另一方面，方位角的共振條件(azimuthal resonance condition)，即為環繞捲管圓周方向的主要共振模態條件，如公式(2.5)所示：

$$n_{\text{eff}}(y) \cdot \pi D = m\lambda \quad (2.5)$$

其中 m 為 azimuthal 模數。當 m 值很大的時候，共振模態之間的間距可以表示為：

$$\Delta\lambda = \lambda_m - \lambda_{m+1} = n_{\text{eff}} \cdot \pi D \cdot \left(\frac{1}{m} - \frac{1}{m+1} \right) \cong \frac{n_{\text{eff}} \cdot \pi D}{m^2}$$

我們可以接著推導出公式(2.6)：

$$\Delta\lambda = \lambda^2 / \pi D \cdot n_{\text{eff}} \quad (2.6)$$

在共振的情況下，捲管中的光波會滿足上面兩個式子，其中 n_{eff} 為半導體捲管材料的等效折射率(effective index of refraction)， D 為捲管直徑，共振腔長度=捲管圓周長= πD ， m 為方位角模數(azimuthal mode number)， λ 為在捲管中的光波波長。

第三章 微米捲管及其元件製程

3.1 樣品結構

本實驗中所使用的樣品皆是利用分子束磊晶系統(Molecular Beam Epitaxy, MBE)所成長。而 MBE 的優點在於能夠成長複雜的異質結構，樣品的表面也足夠光滑，能夠減少捲管共振時因為表面粗糙而造成的光波散射。

首先在半絕緣砷化鎵(Semi-Insulating GaAs, SiGaAs)基板上成長 100nm 的 GaAs 緩衝層。為了使應變雙層薄膜能夠順利地與基板分離，因此接著成長 50nm 的 AlAs 犧牲層。在犧牲層的上方接著成長應變雙層薄膜，由受到壓縮應力的 $\text{In}_{0.2}\text{GaAs}$ 以及受到伸張應力的 GaAs 所組成。在應變雙層薄膜的 GaAs 層裡面，我們成長了 2.6ML(monolayer)的 InAs 的量子點，作為樣品中主動發光層，如圖 3.1.1 所示。

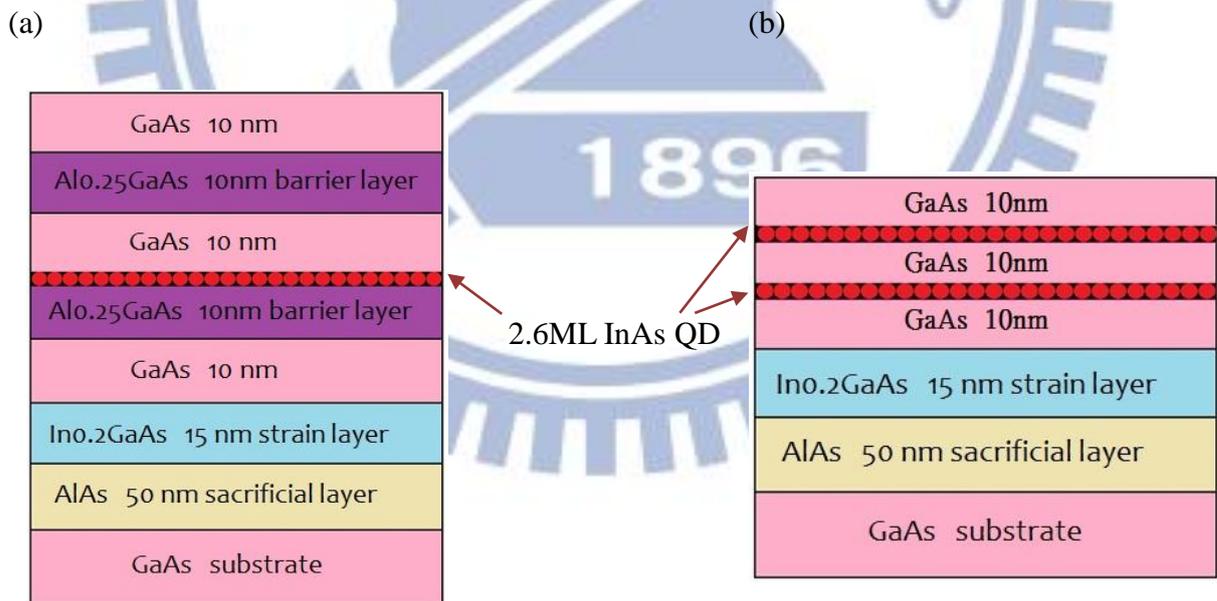


圖 3.1.1 樣品磊晶結構示意圖

(a) 樣品 Lm5403 (b) 樣品 Rn1390

如同前面所述，由包含 InAs 量子點的應變雙層薄膜與 AlAs 犧牲層所組成。為了更加有效的將載子侷限在量子點附近的 GaAs 層中，期望能夠獲得更好的發光效率，Lm5403 在量子點的上下方各成長了 10nm 的 Al_{0.25}GaAs 作為 SCH(Separate Confinement Heterostructure) layer，如圖 3.1.1(a)。而另外，我們也成長了雙層量子點的樣品 Rn1390(圖 3.1.1(b))，其結構大致上與樣品 Lm5403 類似，GaAs 基板上成長 GaAs 緩衝層之後，成長 50nm AlAs 犧牲層，接著成長 15nm 的 In_{0.2}GaAs。不同的地方在於最表層的 GaAs 裡面的主動層，我們將前述的 SCH layer 拿掉，並且將量子點的層數增加變為兩層，已 10nm GaAs 的間隔將兩層量子點隔開，以期能夠提高在未來製成微米捲管後的發光強度。

3.2 置於玻璃基板上之單微米捲管與雙微米捲管元件

我們於磊晶樣品成長完之後，接著使用光學微影的方式來定義出捲管的尺寸、捲曲圈數以及位置等等。如第二章所述，為了擁有最小的應變能，捲管會傾向沿著<100>的方向捲曲。由於我們的樣品是成長在(100)GaAs 基板上，基板的平邊與<100>方向夾 45 度角，所以我們的光罩上的圖樣設計與光罩平邊夾 45 度角，以利精準曝光，並且能夠使選擇性蝕刻掉 AlAs 後的雙層應變薄膜釋放應力形成多層且均勻的捲管。圖 3.2.1 為流程示意圖，詳細步驟如下：

1. 深層蝕刻溶液：

由 $H_3PO_4 : CH_3OH : H_2O_2 = 1 : 3 : 1$ 所組成，此溶液用於開啟蝕刻起始窗口(starting window)，蝕刻至犧牲層 AlAs 使其露出並定義捲管捲曲的起始位置，如此在作選擇性蝕刻時便會由此處開始蝕刻犧牲層並捲曲形成捲管。

2. 選擇性蝕刻：

選擇性蝕刻溶液由 10% 氫氟酸(hydrofluoric acid, HF)溶液 100ml，再加上 1ml 的表面活性去泡劑 Benzalkonium chloride，簡稱 BKC，其中文名稱為氯化苯二甲烴胺，簡稱

四級胺。根據參考文獻[19][20]，我們在以氫氟酸為主的選擇性蝕刻溶液中又添加了表面活性去泡劑(surfactant and antifoaming agent)，是因為此添加劑會隨著氫氟酸被帶到 AlAs 層，並且能夠將蝕刻後所產生的氫氣等生成物帶走，藉此使蝕刻能更加順利並延後到達蝕刻終點。此溶液將會選擇性蝕刻 AlAs 犧牲層，而不會蝕刻樣品中的其他材料如 GaAs 等等，其選擇比 $> 10^9$ ，使犧牲層上方的應變雙層薄膜能釋放應力而捲曲形成捲管狀。選擇性蝕刻後，微米捲管立於砷化鎵基板上的光學顯微影像見圖 3.3.2(a)。

薄膜捲曲成捲管之後，由於其立於基板之上，假如直接用雷射光激發，將會面臨到漏光的問題。造成漏光的最大原因是因為薄膜本身的折射率與基板的折射率很接近(約為 3.4 左右)，光場並不能很好地侷限在薄膜裡面，而會透過耦合的方式，經由基板逸散。因此我們將捲管轉移至折射率較低(大約 1.5)的玻璃基板之上。

3. 捲管轉移至玻璃基板：

如下圖 3.2.1 所示，在玻璃基板上滴一些適當的溶劑做為媒介，這裡我們使用不會對樣品品質造成影響的甲醇(CH_3OH)。接著將表面立著微米捲管的砷化鎵基板直接倒立放置於其上，並且等待其風乾。重力以及表面張力的作用會使得捲管掉落在玻璃基板上，而在溶劑揮發之後，捲管則會因為凡德瓦力停留在玻璃基板之上。注意這裡的捲管因為處在有機溶劑的環境之中，捲管的排列已經不如當初光罩圖樣設計般的整齊，而且有可能發生捲管互相交錯的情況。無論如何，只要我們量測時選擇單根捲管即可。最後再將上面的砷化鎵基板移除，我們稍後即可對此玻璃基板上的微米捲管進行量測。轉移至玻璃基板上的捲管光學顯微影像見圖 3.2.2(b)。

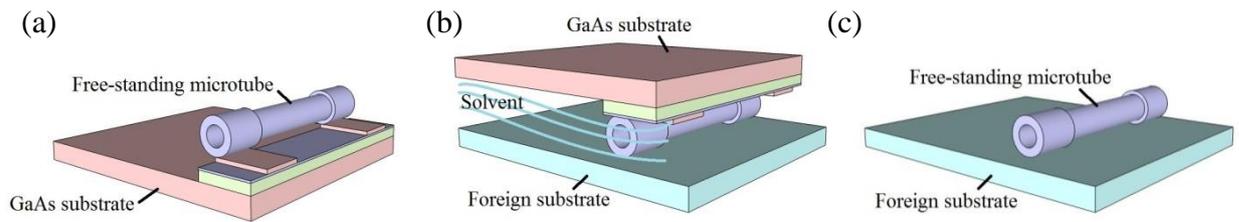


圖 3.2.1 將捲管從原本樣品基板轉移至異質基板上的過程示意圖

(a)在原本樣品基板上完成的懸空捲管 (b)將樣品基板藉由適當溶劑作媒介，倒放至另一異質基板上 (c)移除樣品基板，待溶劑自然風乾，捲管停留於異質基板上

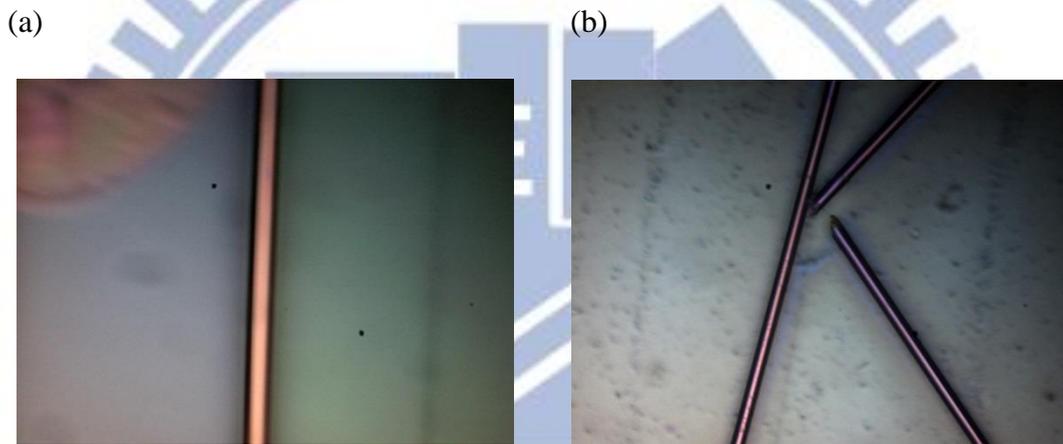


圖 3.2.2 (a)立於砷化鎵基板上之微米捲管 (b)轉移至玻璃基板上之微米捲管

另外我們為了量測環形共振腔的發光耦合性質，製作了雙捲管。利用深層蝕刻將樣品朝著 45 度角的方向蝕刻出周期性、寬度約為 $40\mu\text{m}$ 的起始窗口，其深度 $>1\mu\text{m}$ ，穿越犧牲層，如圖 3.2.3(a)。由於留下來週期性表面寬度約為 $95\sim 100\mu\text{m}$ ，選擇性蝕刻時，應變雙層薄膜會從起使窗口向著每塊 mesa 的中心捲曲。如果選擇性蝕刻夠久，最後會形成兩兩成對的捲管，停留在每塊 mesa 的中心(圖 3.2.3(b))。如同前面的轉移步驟，我們將雙捲管利用甲醇轉移至玻璃基板(圖 3.2.3(c))。

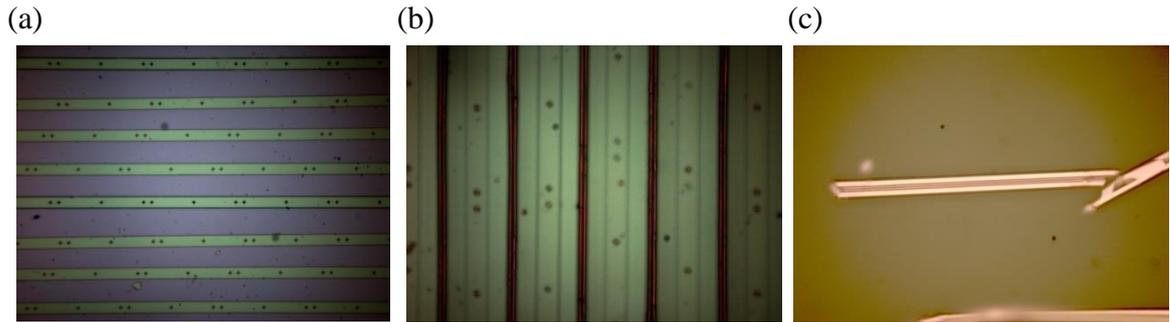


圖 3.2.3 (a)選擇性蝕刻前，樣品之 mesa 圖樣 (b)雙捲管兩兩成對捲曲於砷化鎵基板之上
(c)雙捲管轉移至玻璃基板上

3.3 置於溝槽上之單微米捲管元件

為了更進一步降低共振光波耦合至基板逸散，我們在捲管捲曲之前，在基板上開出溝槽，使得捲管捲起之後，能夠立於其之上。

這裡我們先利用淺層蝕刻(shallow etching)破壞其餘三邊的應變雙層薄膜，再利用深層蝕刻(deep etching)只讓矩形其中一邊的 AlAs 犧牲層露出。淺層蝕刻的目的是只蝕刻應變雙層薄膜上面的 GaAs 層，盡量留下 InGaAs 層保護 U 形 mesa 的兩條邊不側向捲起。最後再經由選擇性蝕刻來形成捲管，如此控制捲管的圈數、軸向長度以及位置。不過在這樣的結構下，若直接用雷射光激發捲管，量子點的發光會逸散至折射率與波導結構相近的 GaAs 基板，所以我們增加了基板蝕刻，以此作為固定的光激發微米捲管製程。圖 3.3.1 為立於溝槽上之微米捲管製程的步驟示意圖，圖 3.3.2 則為 mesa 設計圖以及捲管影像。各道蝕刻詳細步驟以及順序如下：

1. 淺層蝕刻：

淺層蝕刻液由 $\text{NH}_4\text{OH} : \text{H}_2\text{O}_2 = 1 : 250$ 所組成，室溫下 pH 值約為 7.3。此溶液可以選擇性蝕刻 GaAs，而較不會蝕刻 InGaAs 以及 AlGaAs 等材料。配置淺層蝕刻溶液的實驗器皿需先用烤箱將水分烤乾，保持完全乾燥，否則不易抓準蝕刻條件。蝕刻時使用磁石攪拌子持續攪拌，使整杯溶液的蝕刻速率保持均勻且固定。此步驟將應變雙層薄膜上

方的 GaAs 去除，破壞應變雙層薄膜的應力，以定義出捲管的軸向長度，捲曲長度以及捲管中央懸空的區域大小。淺層蝕刻的矩形檯面(mesa)設計成 U 形的圖樣，如此可使樣品薄膜捲曲後 U 型中央的部分形成懸空的捲管，U 型的兩個邊則作為支撐中央懸空捲管的橋梁部分。

2. 基板蝕刻：

基板蝕刻溶液由 $\text{H}_2\text{SO}_4 : \text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{O} = 1 : 8 : 80$ 所組成，此溶液配方以約每分鐘 $0.5\mu\text{m}$ 的速率蝕刻樣品中所有材料。我們利用此溶液在捲管懸空區域的中央快速蝕刻矩形 mesa 至約 $2\mu\text{m}$ 的深度，並使 U 形 mesa 釋放應力捲曲並且懸空在此矩形區塊上方，避免在量測捲管的發光特性時，光波逸散至基板而無法測得。我們設計的基板蝕刻矩形 mesa 寬度為 $20\mu\text{m}$ ，但由於此蝕刻溶液樣品時會有側蝕的現象，因此蝕刻完後在樣品表面的矩形 mesa 寬度會變為約 $30\mu\text{m}$ ，但是仍遠小於淺層蝕刻 U 形 mesa 中央捲管懸空的尺寸($60\mu\text{m}$)，因此並不至於影響後續捲管的製程與量測。

3. 深層蝕刻：如同前一節 3.2-1 所述。

4. 選擇性蝕刻：如同前一節 3.2-2 所述。

在第四步選擇性蝕刻前的三道蝕刻步驟可以依需求隨意調換其先後順序，不過如果將深層蝕刻擺在這三道裡的最後一道效果較佳。因為深層蝕刻是用來定義捲管起始窗口，在做完深層蝕刻之後緊接著做選擇性蝕刻，可有效避免其他兩道蝕刻步驟影響到起始窗口的平整度。

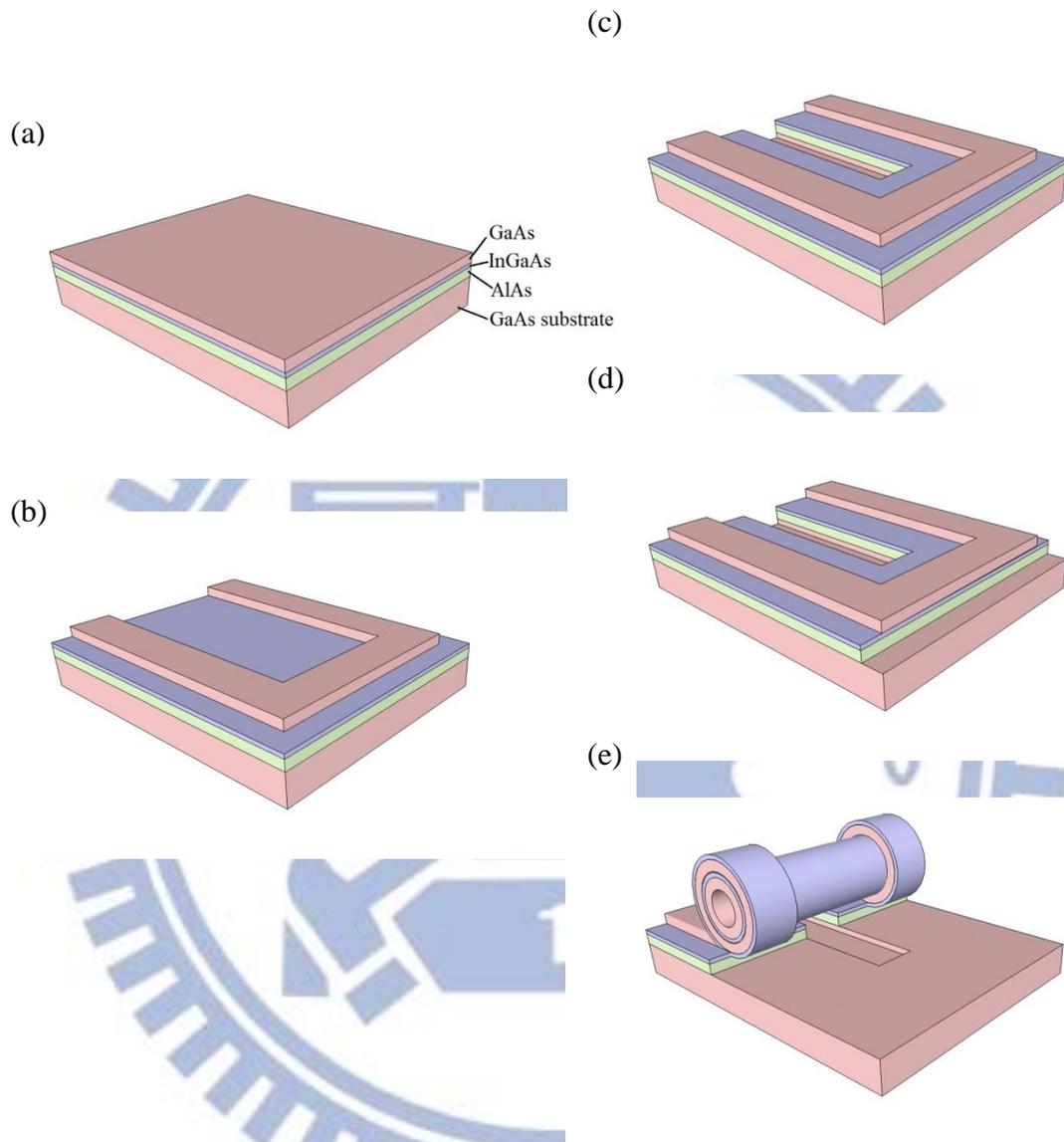


圖 3.3.1 置於溝槽上之微米捲管製程示意圖

- (a)分子束磊晶系統成長的樣品結構 (b)U 形淺層蝕刻 (c)矩形基板蝕刻
 (d)深層蝕刻定義起始窗口 (e)選擇性蝕刻犧牲層，樣品薄膜捲曲形成捲管

(a)

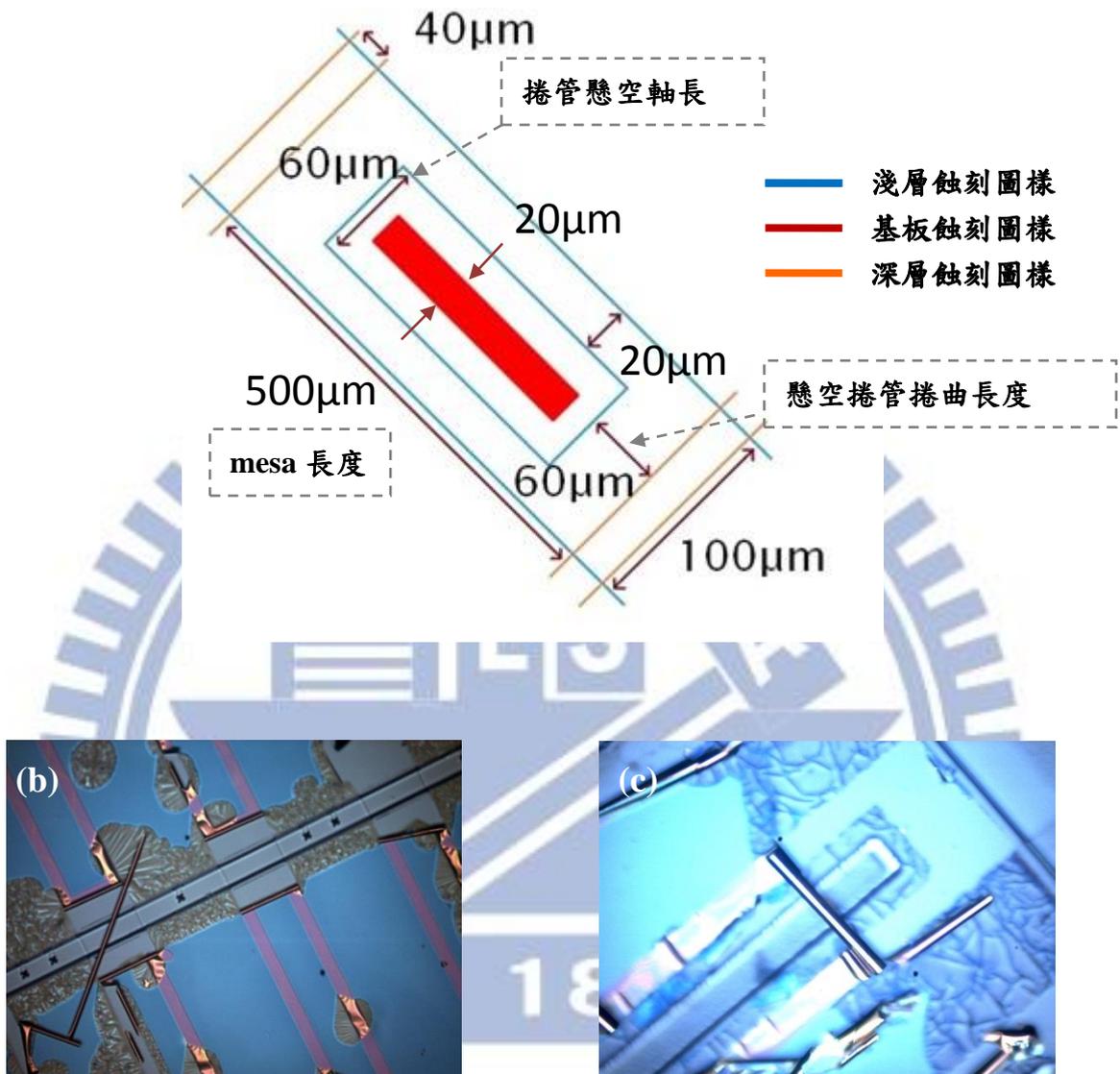


圖 3.3.2 光激發微米捲管蝕刻圖樣以及樣品在顯微鏡下之影像[樣品 Lm5403]

(a) 光罩設計圖樣 (b) 沒有基板蝕刻之 U 形 mesa 所形成之捲管

(c) 有基板蝕刻 U 形 mesa 所形成之捲管

以上為固定之溝槽上微米捲管製程。不過因為淺層蝕刻條件非常嚴苛，對於蝕刻液比例、蝕刻液濃度還有皿器濕度非常敏感，微米捲管的良率很低，所以之後改為直接忽略淺層蝕刻，先做蝕刻深度 2µm 的基板蝕刻，再用深層蝕刻直接蝕刻出 U 形 mesa 直到犧牲層之下，並在 U 形 mesa 的中間利用電子蒸鍍槍(e-gun)橫著鍍上 250nm 的金。由於這

樣厚度的金相對於薄膜捲起的應力有壓制的效果，可以防止 U 形 mesa 從側向捲起，只朝我們定義出的方向捲曲。而實驗結果也顯示，多了鍍金這到步驟的確能夠大幅提升微米捲管停留於溝槽上的成功率，見圖 3.3.3。

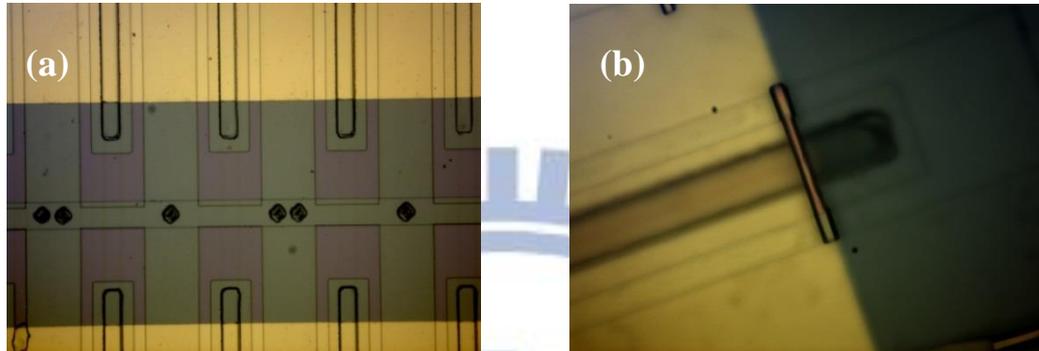


圖 3.3.3 鍍金之溝槽上微米捲管圖樣[樣品 Lm5403]

(a)選擇性蝕刻前圖樣 (b)選擇性蝕刻後捲管形成

第四章 低溫微光激發螢光系統之架設

為了深入了解半導體微米捲管的光學特性，我們在雙層應變薄膜的 GaAs 層裡面埋入量子點(2.6ML)，並且利用微光激發螢光系統，以高解析以及精準定位的方式來量測半導體微米捲管。

光學量測系統可大約分成三個部分：

表 4.1 微光激發螢光系統組成元件

	包含元件	主要功能
低溫致冷器	低溫致冷器，液態氮/氦傳輸管，抽器馬達，氣體流量計，溫度計(變溫控制儀)	將樣品端溫度降低至 77K(液態氮)或 4K(液態氦)
幫浦系統	Scroll 幫浦，Turbo 幫浦，壓力偵測器	抽真空至可降低溫範圍並防止水氣凝結，妨礙樣品收光
微光激發螢光系統	三軸步進馬達，分光鏡，CCD(影像觀測)，InGaAs detector，三軸 stage，紅外線長焦距顯微鏡 20X 與 100X，HeNe CW laser，高解析單光儀，chopper，衰減片，lock-in amplifier(鎖相放大器)	激發以及收取樣品發光，並且分析其頻譜

4.1 低溫致冷器

本實驗所量測的半導體微米捲管管壁根據捲起來的圈數不同會有不同的厚度，一般來說大概在 200 個奈米以內。在這樣厚度之下，若我們想要觀測半導體微米捲管的光學特性，必須在低溫的條件下達成。若是在室溫下操作，我們發現半導體微米捲管會因為管壁太薄，導致熱能累積，進而降低發光效率。要是增加激發雷射的能量，微米捲管甚至會燒毀而導致無法再次量測。另一方面，由於在室溫，聲子(phonon)的濃度大幅上升，導致主動層(量子點)內的非輻射復合(non-radiative recombination)機會也增加，導致微米捲管在室溫下的 PL 訊號不夠明顯，因此我們在本實驗中將樣品所在的環境降到低溫，避免訊雜比太低，或是因為過熱而將元件燒壞。這裡我們採用液態氮降溫，因此之後低溫情形便固定為液態氮溫度 77K。低溫致冷器的運作原理如圖 4.1.1 所示，低溫致冷器實際形貌見為圖 4.1.2。低溫致冷器可外接一個溫度控制儀，藉由程式控制幫浦抽氣的速率以及對樣品加熱來精準地在變溫量測時，達到我們所要求的目標溫度。

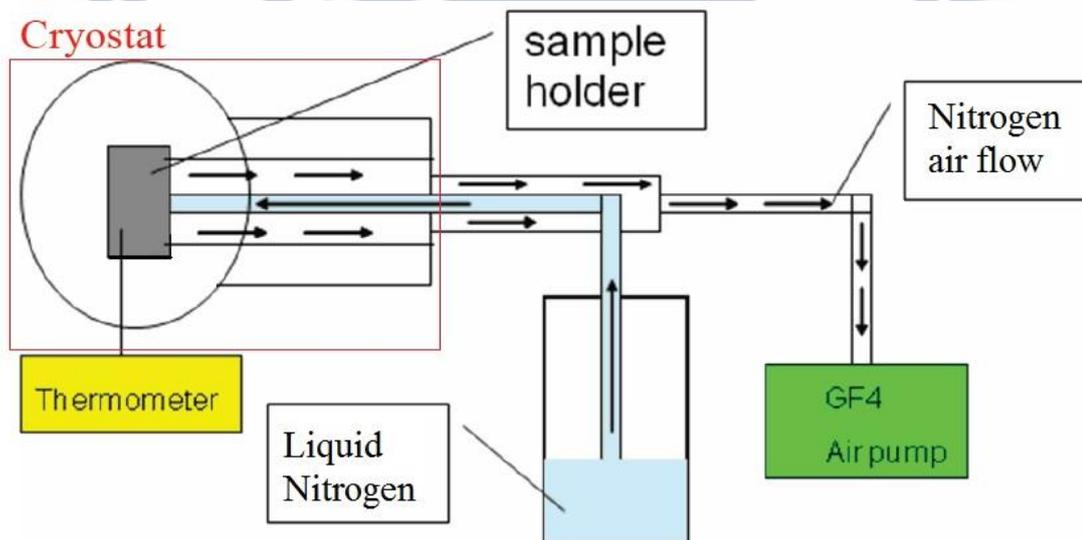


圖 4.1.1 低溫致冷器運作流程圖

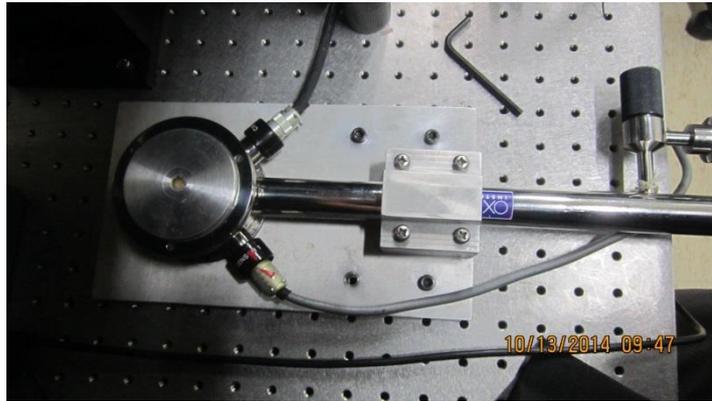


圖 4.1.2 低溫致冷器實品

本研究中的半導體微米捲管管徑大約為 $5\sim 9\mu\text{m}$ 左右。因為微米捲管的最小尺度為微米等級，所以這裡所採用的低溫致冷器必須能夠達到下列幾個目標：

1. 低震動

為了避免低溫致冷器在降溫的過程中因為在窗口上結水氣妨礙系統收光，降溫過程中我們將低溫致冷器抽真空。在一般 PL 實驗中，我們可以同時降溫以及抽真空，因為抽真空造成的震動幅度小於 PL 的直徑(約 $200\mu\text{m}$)。

但本實驗中的半導體微米捲管直徑約 $8\sim 9\mu\text{m}$ ，若抽真空的過程中造成震動，會使得雷射光焦距在微米捲管上的點不斷變動，造成實驗結果無法重複，或是在量測的過程中產生雜訊。因此本實驗系統在量測過程中不會同時抽真空，以確保沒有震動。

另外本實驗所使用的致冷氣體為液態氮，以連續抽氣的方式冷卻，也就是以抽氣幫浦從傳輸管後端吸取前端液態氮揮發後形成的氣態氮，因而造成液態氮因為處在低壓而被吸入腔體之中。前端的液態氮並不直接接觸腔體，而是以夾層分開，以連續抽氣取代壓縮式，避免壓縮氣體所造成的震動。致冷器本身的內部設計使得液態氮不直接接觸腔體，可以確保實驗可以在幾乎無震動的情況下進行。

2. 高解析度

微米捲管的直徑一般在數個 μm 的範圍，因此為了量測微米管的發光特性，低溫致

冷器必須提供高解析度。高解析度來自於前述的低震動以及將樣品與光窗的距離縮小至 2mm，確保樣品落在高倍數顯微鏡的焦距內而達到高解析度的需求。

4.2 幫浦系統

由於量測在低溫操作，為了確保內部沒有水氣導致無法降溫或者降溫太慢，必須將腔體內抽真空。在本系統中，為了降低震動，不能在降低溫的時候同時抽真空，因此我們需要更高的真空度來盡量延長量測的時間。本系統需要的壓力於 $10^{-4} \sim 10^{-5}$ torr 以下，所以我們的幫浦系統除了 scroll 幫浦之外，還包含了一個 turbo 幫浦。Scroll 幫浦主要將低溫致冷器裡面的 chamber 粗抽至 10^{-3} torr，之後搭配 turbo 幫浦可以將本系統抽至 2×10^{-5} torr，低溫下可達 1.6×10^{-6} torr。

4.3 微光激發螢光系統

圖 4.3.1 為微光激發螢光系統之示意圖，而圖 4.3.2 為本實驗所使用之微光激發螢光系統。

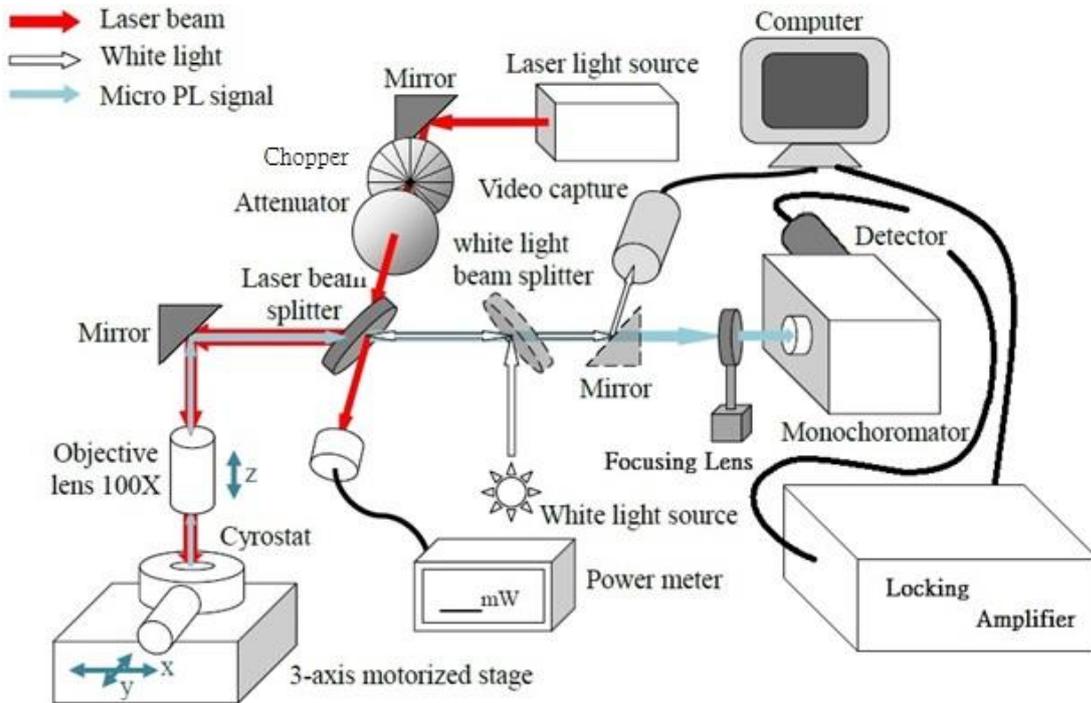


圖 4.3.1 微光激發螢光系統示意圖

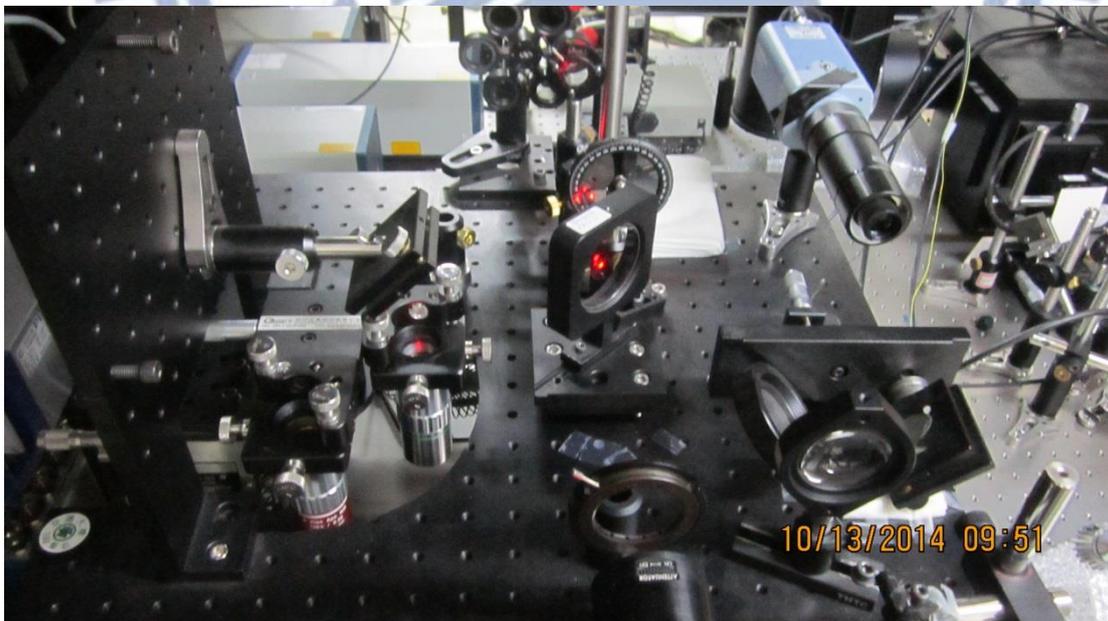


圖 4.3.2 微光激發螢光系統實際架構

本系統中，我們的激發光源使用的是 HeNe 氣體雷射，此雷射為 continuous wave 雷射，發光波長為 632.8nm。雷射光出光後，為了配合 lock-in amplifier，先經過 chopper 調變，其中 chopper 與 lock-in amplifier 同步。接著激發雷射光束在經過分光鏡後反射進入 100x 的長焦距紅外光物鏡，其焦距為 1.2cm。分光鏡在可見光波段以及紅外光波段分別有著 60/40 以及 80/20 的穿透/反射比。因為本實驗量子點發光波長大約在 1~1.2um 左右，選擇這樣的分光鏡較為理想。雷射光進入物鏡後便由物鏡聚焦。本實驗有兩個物鏡，分別為 20x 以及 100x，其中 20x 的物鏡用來定位出半導體微米捲管的位置，找到後切換至 100x 物鏡來將雷射光聚焦在目標捲管上量測其發光訊號。雷射光束在 100x 物鏡聚焦下可提供 2um 左右直徑的解析度。經過雷射光激發之後，樣品所發出的光使用相同的物鏡收光。

樣品置於低溫致冷器之中，而低溫致冷器裝置在一個電動的三軸馬達平台之上。此平台可以提供穩定性與高準確性，其步進馬達的解析度為 0.5um，由三軸控制器 ESP300 所控制。在使用雷射光激發樣品之前，必須先用可見光搭配控制器在樣品上尋找欲量測的元件。量測系統中有一組可移動式的白光分光鏡以及反射鏡，將白光光源導入物鏡中並將樣品的影像回傳至收可見光之 CCD，可見光範圍在 1um 以下。以此將雷射光光點精準對焦在捲管中心位置，垂直方向則用 100 倍物鏡調整雷射光聚焦位置。最後移開白光反射鏡，並且將白光光源關閉，使捲管放射光源進入單光儀並且加以量測與分析。

微米捲管所發出的光被同一個物鏡收光之後，經由 freespace 以及一些反射鏡反射後，不經過光纖耦合，直接進入單光儀，如此一來可大幅提高收光之效率。本實驗使用之單光儀為 SP2750，其光柵響應在量子點發光波長(~1100nm)大約是 60%~70%左右。而因為量子點發波長在 1100nm 左右，Si-CCD 光二維陣列偵測器在這波段量子效率過低(不到 10%)，所以我們必須使用 InGaAs 偵測器來測量，其響應波段位於 950nm~1650nm，並且經由 lock-in amplifier 處理。由 Labview 程式控制單光儀來轉動光柵，並且記錄當下 InGaAs 偵測器-Locking Amplifier 所偵測到的訊號。在單光儀入光口以及出光口分別有兩個狹縫可以用來決定入光量以及解析度，其中我們所用到的兩個大小分別為 1mm(對應光譜解析度 1nm)以及 0.5mm(對應光譜解析度 0.5nm)。

第五章 實驗結果及討論與分析

5.1 樣品光激發螢光光譜分析

我們對磊晶成長的樣品 Lm5403 與 Rn1390 先做光激發螢光(Photoluminescence, PL)的量測。藉由雷射光照射在樣品上產生電子電洞對，並且迅速復合放光，我們可以得到樣品主動層(量子點或是量子井)在室溫(300K)以及低溫(77K)下的發光頻譜。我們以此為依據，在使用微光激發螢光系統量測以這兩份樣品所製作之微米捲管之前，先選擇量測微米捲管所需要的光偵測器，使樣品主動區發光波段與該光偵測器響應較強的波段相符合，提高量測捲管時的偵測強度。另一方面，如果能在事前得知其發光波段，也可以在後續進行微光激發螢光量測時，不必掃描其他波段，而直接針對該樣品主動層發光波段作解析度較高的量測。

見圖 5.1.1(a)，黑線與紅線分別為 77K 與 300K 下，利用 Ar 雷射做為激發光源，對樣品 Lm5403 作光激發螢光所獲得的頻譜。在低溫 77K 下，量子點發光訊號的主峰值在 1066nm 左右，而在室溫 300K 時，峰值紅移至 1132nm。另外值得注意的是在低溫 77K 下，波長 970nm 左右隱含了 InGaAs 量子井的訊號。這是由於樣品磊晶完成後，雙層應變薄膜中的 InGaAs 被夾在上方的 GaAs 與下方 AlAs 犧牲層中間而形成量子井。而室溫時，InGaAs 量子井訊號紅移至 1088nm，這是室溫時樣品 Lm5403 訊號左邊比右邊稍寬的原因。

圖 5.1.1(b)為另一片樣品 Rn1390 與樣品 Lm5403 在低溫 77K 時的 PL 比較圖。在同樣的雷射光功率激發下，可以看到 Rn1390 的確如我們所預想的，訊號強度比單層量子點的 Lm5403 大，這裡大約是 Lm5403 的四倍左右，其訊號峰值在 1076nm。可清楚的看到，Rn1390 在 974nm 的地方也有 InGaAs 量子井的訊號。詳細的磊晶結構可以參考 3-1 節所述。

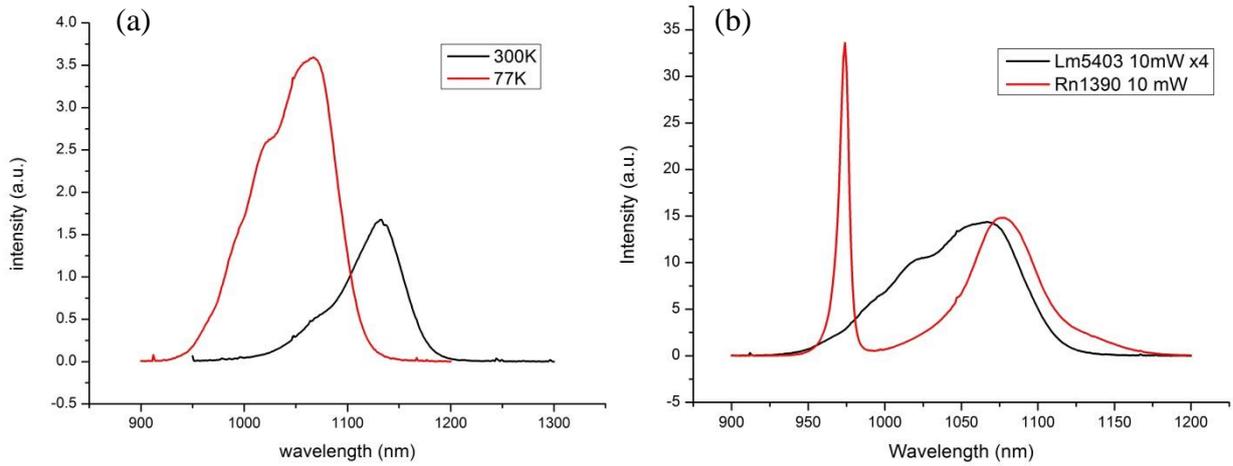


圖 5.1.1 (a)樣品 Lm5403 在低溫 77K 與室溫 300K 下之光激發頻譜圖

(b)樣品 Rn1390 與樣品 Lm5403 在低溫 77K 下之光激發頻譜比較

5.2 低溫微光激發螢光之量測光譜與分析

關於微光激發螢光系統，詳見第三章所述。

圖 5.2.1 為微螢光激發量測時，He-Ne 雷射光光點照射在微米捲管上的光學顯微影像，雷射光經由 100 倍物鏡照射在微米捲管的中央。在此情形下，雷射光焦點在主動區附近，更能夠有效激發電子電洞對復合發光，量測到最佳的光學特性，可測得捲管的光學共振模態。也因為此時雷射光對焦在管壁中的主動區，略低於捲管表面，因此雷射光光點呈現橢圓形。捲管的共振發光訊號對於雷射光激發的位置非常敏感，移開白光系統後量測時，還是得繼續微調 100 倍物鏡焦距以及三軸馬達平台，以期能夠測得最佳共振模態。

我們可利用衰減片調整激發微米捲管的雷射光強度，並利用雷射分光鏡將雷射光分光至功率計來測量雷射光光源的強度。因為雷射光光源經過了反射鏡、100 倍物鏡以及低溫致冷器的光窗，功率計所測得的雷射光強度並不是捲管實際上所受到的激發光強度。根據以往的經驗，實際上微米捲管所受到的功率是功率計的讀值除以十五。



圖 5.2.1 玻璃基板上之微米捲管在微光螢光激發系統下的光學顯微影像

5.3 微米捲管直徑與理論值比較

確認微米捲管的直徑大小對於本實驗非常關鍵。當捲管作為一個環形共振腔時，捲管管壁中形成共振的光波必須滿足週期性邊界條件(periodic boundary condition)，滿足公式 $n_{\text{eff}}(y) \cdot l = m\lambda$ ，其中圓周長為 $l = \pi D$ ， D 即為捲管直徑。

理論上，微米捲管的直徑是由雙層薄膜的材料以及兩層薄膜分別的厚度來調控。之後配合黃光微影、蝕刻(以及電子槍蒸鍍製程)，便可以製作出符合我們需求的捲管。捲管完成後，我們先初步利用光學顯微鏡確認捲管是否完好的立在基板上，是否精確地捲曲到我們定義的位置。接著利用掃描式電子顯微鏡(Scanning Electron Microscope, SEM)影像對捲管作更進一步的檢視，比方說可以透過 SEM 俯視圖確定捲管的形狀、尺寸與直徑大小。而透過 SEM 側視圖，除了也可以得知捲管直徑大小之外，更可以確定捲管本身有沒有變形，管壁貼合是否如我們所預期。

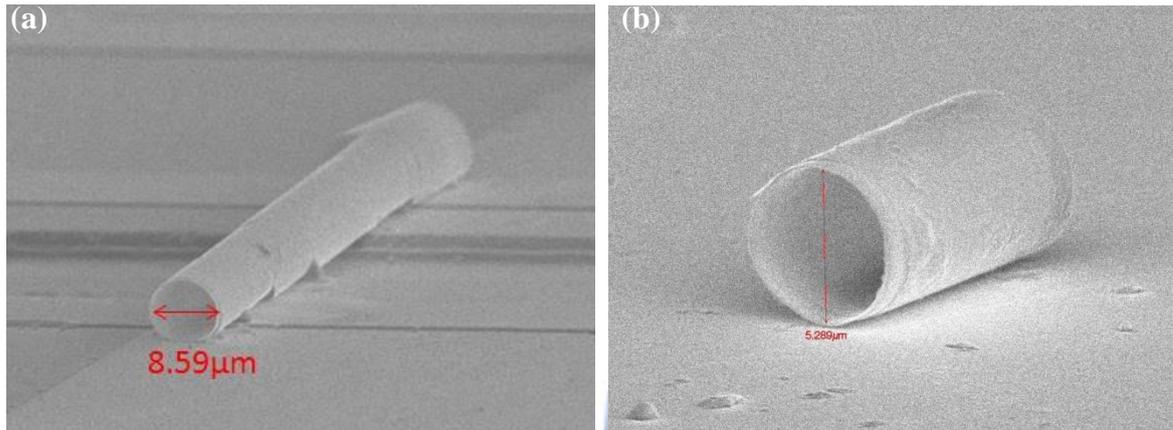


圖 5.3.1 樣品之掃描式電子顯微影像

(a)樣品 Lm5403 微米捲管，直徑 8.59 μm (b)樣品 Rn1390，直徑 5.29 μm

根據 2.2 節所述，可以由巨觀的連續力學模型得到計算半導體微米捲管直徑的公式。我們接下來利用此公式計算得到的捲管理論直徑與 SEM 觀測所得到微米捲管實際直徑相比較。

$$D = \frac{d[3(1+m)^2 + (1+m \cdot n)[m^2 + (m \cdot n)^{-1}]]}{3\varepsilon(1+m)^2}$$

模擬捲管直徑理論值所用到的半導體材料參數如表 5.3.1 所示，其中 a 為晶格常數， Y 為楊氏係數(Young's modulus)。根據 Vegard 定律，三元化合物參數與其組成元素的參數可以近似成線性關係，例 $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ 的晶格常數，可由 InAs 及 GaAs 的晶格常數線性組合而得到，即為 $a_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}} = xa_{\text{InAs}} + (1-x)a_{\text{GaAs}}$ 。

表 5.3.1 半導體材料參數

半導體材料	晶格常數	楊氏係數 Y(GPa)
GaAs	5.65325	85.9
InAs	6.0583	51.4
$\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$	5.73426	79.0

表 5.3.2 為實際樣品磊晶時所使用的參數、捲曲成捲管之後，利用公式所計算出來的捲管直徑理論值以及利用 SEM 所觀察到的捲管直徑實驗值。樣品 Lm5403 以及 Rn1390 應變雙層薄膜皆是由 GaAs 以及 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 所組成，所以平面雙軸向應變量 ϵ 以及楊氏係數比 n 皆相等。唯一的不同在於這兩個樣品的總膜厚度以及應變雙層薄膜的厚度比。根據公式(2.1)可知，當應變雙層薄膜總厚度與其膜厚比越大，其捲曲而成的捲管直徑也越大。

表 5.3.2 樣品參數：薄膜厚度、捲管直徑理論值以及實驗值

樣品	d_1 (GaAs) (nm)	d_2 ($\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$) (nm)	$m=d_1/d_2$	理論直徑值 (μm)	實驗直徑值 (μm)
Lm5403	50	15	3.33	8.77613	8.59
Rn1390	30	15	2	4.93467	5.29

$$\epsilon = \frac{a_2 - a_1}{a_1} = 0.0143298$$
 以及楊氏係數比 $n = \frac{Y_1}{Y_2} = 1.08734$ 為樣品的固定參數

5.4 溝槽上之單微米捲管發光特性

我們利用第二節所述之 U 形 mesa 圖樣，使用樣品 Lm5403 製作出長 $100\mu\text{m}$ 、懸空部分為 $60\mu\text{m}$ ，置於溝槽上之微米捲管。捲管的管壁厚度，我們可藉由光學顯微影像以及 SEM 影樣來推算，如圖 5.4.1。

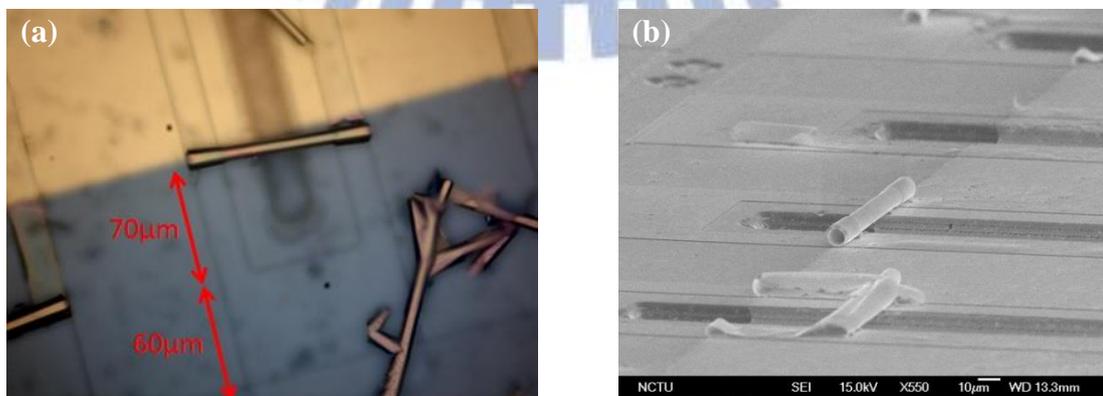


圖 5.4.1 溝槽上之樣品 Lm5403 微米捲管(a)光學顯微影像 (b) 掃描式電子顯微影像

從圖 5.4.1(a)上，我們可以得知捲管中間懸空部分捲曲長度為 60 μm 左右，且由 SEM 得知捲管直徑約為 8.59 μm 。將捲曲長度除以圓周長($\pi D=26.9863$)得到 2.22 圈。管壁厚度大約為單層 65nm 的兩倍，也就是 130nm。

使用 He-Ne 雷射作激發光源，在低溫 77K 下，微光螢光激發系統入光狹縫大小為 1mm(其對應解析度為 1nm)下可測得共振模態，如圖 5.4.3。我們在 3.3 μW 的功率下即可量測到共振模態。根據使用衰減片改變雷射光激發功率所測得的結果，隨著雷射激發功率的增加，共振峰值強度與激發功率呈現等比率增加。對於圖中的每一個尖峰，我們使用勞倫茲(Lorentz)分布函數來擬合，取得每一個模態的半高寬以及峰值對應波長位置。而使用勞倫茲函數的原因在於捲管是個環形共振腔，對應於一個有共振並且有損耗的系統。對於數值較高的 Q 值(quality factor)，在數學上可以用下列公式(4.1)求得，其中 λ_r 為共振波長，而 $\Delta\lambda_r$ 則為半高寬。

$$Q = \frac{\lambda_r}{\Delta\lambda_r}$$

對於一個理想的環形共振腔而言，其光學共振模態 Q 值理論上可以高達數千甚至一萬多。我們可以利用擬合量測結果所得到的 Q 值與理論上的 Q 值相比較，判斷共振腔的品質好壞。若捲管共振模態 Q 值較理論為低，大致上可歸咎於以下幾個原因：

1. 微米捲管若是捲一圈以上，管壁之間沒有緊密貼合。
2. 光波逸散至雷射激發點之外被周圍的半導體材質所吸收。
3. 捲管表面粗糙，不如我們所想像的平滑。
4. 光波經由某些途徑與基板耦合。
5. 微米捲管本身並不是完美的圓環，其為螺旋狀的管壁貼合。從微米捲管的剖面圖(如圖 5.4.2[21])，我們可以看到捲管有兩個缺口(notch)。光波從這兩個缺口逸散，造成損耗。經由 FDTD 的方式計算可以得知一個二維完美的環形共振腔與一個有兩處缺口的環形共振腔，其 Q factor 可以從幾十萬降低至幾千。

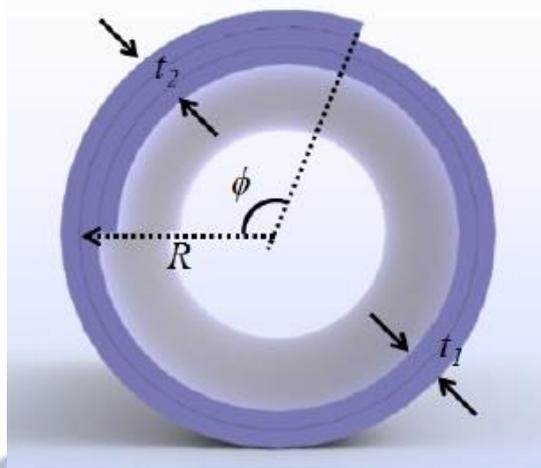


圖 5.4.2 不對稱之螺旋狀環形共振腔示意圖[21]

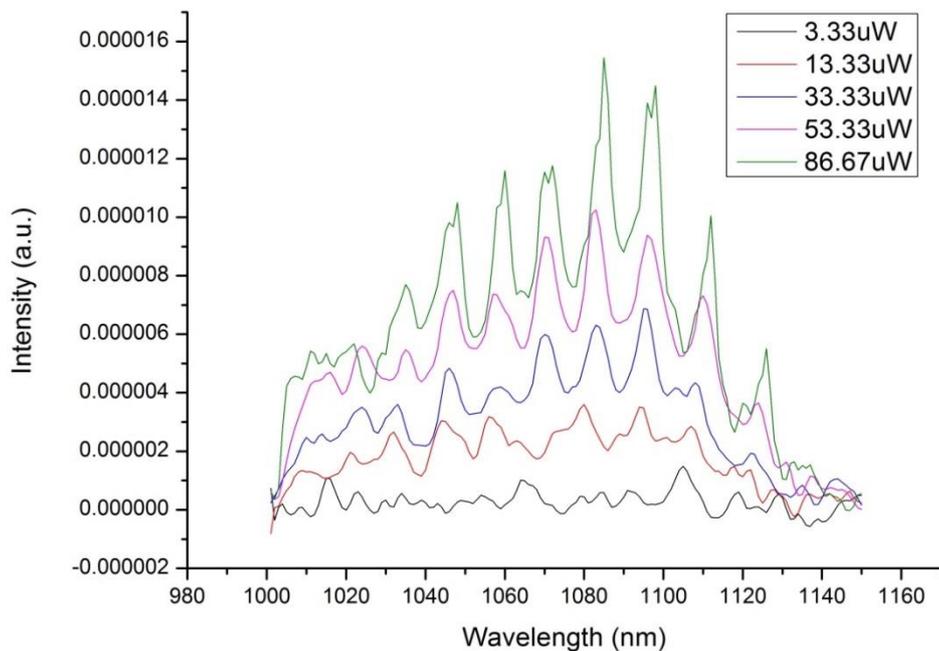


圖 5.4.3 低溫 77K 下，He-Ne 雷射激發下，溝槽上之樣品 Lm5403 微米捲管變功率微光激發螢光量測頻譜，狹縫大小為 1mm，解析度為 1nm

表為當雷射激發功率達到 86.67 μ W 時，根據圖 5.4.3 所擬合求得的各個模態半高寬以及峰值所在之波長。我們的確觀察到如同文獻[22]所述，隨著激發的功率上升，每個峰值的半高寬開始變小。例如中心波長在 1098nm 的峰值，半高寬從雷射激發功率 53.33 μ W 時的 7.59nm，激發功率 60 μ W 時的 6.44nm，激發功率 66.67 μ W 時的 5.6nm，

最後縮小至激發功率 $86.68\mu\text{W}$ 時的 1.78nm 。這很有可能是有受激輻射(stimulated emission)產生所致。我們將表 5.3.2 中求得的半導體捲管材料的等效折射率以及直徑實驗值 $8.59\mu\text{m}$ 代入公式(2.5)中，藉此求得與每一個共振模態相對應的方位角模數 (azimuthal mode)。我們設計起始窗口時，在捲管軸向(y 方向)上的並沒有圖樣變化，等效折射率在軸向上不會有變化，故可以將 $n_{\text{eff}}(y)$ 當作一個定值。

根據第二小節，光波在環形共振腔裡能夠產生共振的條件

$$n_{\text{eff}}(y) \cdot \pi D = m\lambda \quad (2.5)$$

此外模態間的間距可藉由下式估計

$$\Delta\lambda = \lambda^2 / \pi D \cdot n_{\text{eff}} \quad (2.6)$$

我們可以根據實驗所量測到峰值波長間的差距來回推 n_{eff} ，這裡 n_{eff} 值推算出來約為 3.417。同時表 5.4.1 也列出假設 $n_{\text{eff}}(y)$ 為一定值時，每個模態所對應的 azimuthal 模數。

值得注意的是，在激發功率為 $86.67\mu\text{W}$ 時，可以觀察到每個對應到 azimuthal mode 的峰值其周圍還有其他小峰值的存在。這些小峰值可能是因為軸向模態(axial mode)的產生所致。由於這裡狹縫大小為 1mm ，並不能夠很好的解析出頻譜上每一個峰值，不過表將能見到的小峰值也用勞倫茲函數擬合。根據文獻[23]，除了當光波在捲管管壁中行進時，因為繞著圓周方向共振所產生的 azimuthal mode 之外，捲管軸向也會有共振產生。因為捲管軸向邊緣是折射率相差很大的空氣，只要邊緣不平整，就會沿著軸向邊緣造成折射率的微擾。對於額外的軸向光場局限，可將其想像為箱中的量子化粒子。高階軸向共振數的能量較高，波長較短；低階軸向共振數的能量較低，波長較長，而頻譜中的每個主峰值沒有軸向共振，軸向共振數為零，波長最長。這也是這一系列的小峰值頻譜上都出現在主峰值的左邊的原因。

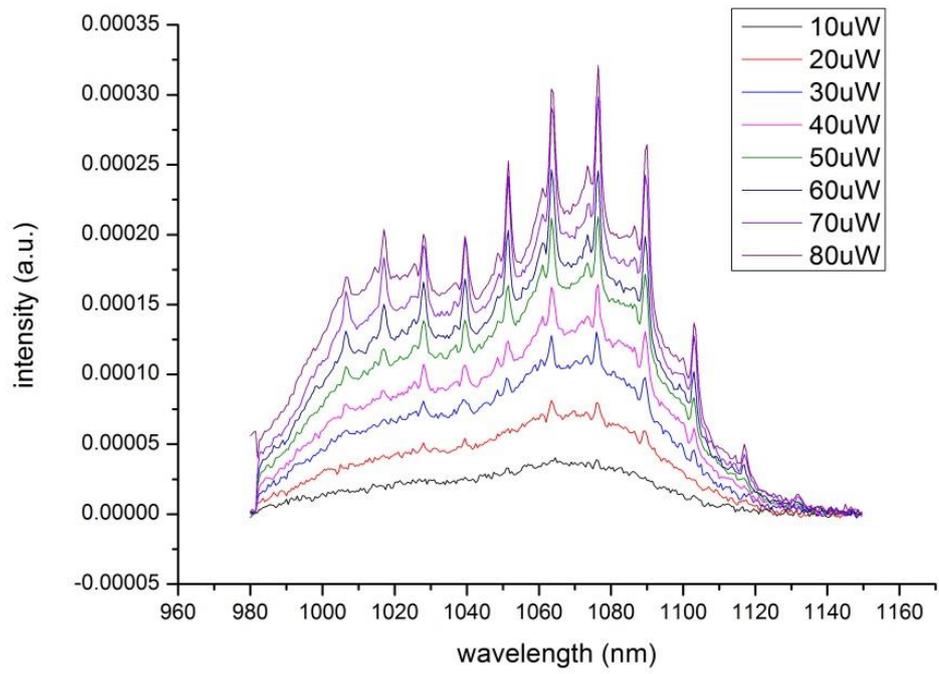
表 5.4.1: 根據圖 5.4.3，He-Ne 雷射激發功率 86.67 μ W 下，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數

λ (nm)	1047.9	1059.53	1072	1085.06	1098.09	1111.75	1126.16
m	88	87	86	85	84	83.	82
$\Delta\lambda$ (nm)		11.63	12.47	12.87	13.22	13.66	14.41
FWHM $\Delta\lambda_r$	60.6	4.51	1.67	4.49	4.62	33.56	11.12
(nm)	1.48	1.24	4.05	2.11	1.78	2.42	4.83
Q factor	708	854	265	514	617	459	233
等效折射率 $n_{eff}\sim 3.417$							

5.5 玻璃基板上之單微米捲管發光特性

接著我們量測轉移至玻璃基板上，以樣品 Lm5403 製作之微米捲管。利用光學顯微鏡觀察捲管捲曲長度距離起始窗口 50 μ m 左右，捲曲圈數約為捲曲長度 50 μ m 除以圓周長($\pi D=26.9863$)得到 1.85 圈，而捲管軸向長度為一百到數百微米不等。圖 5.5.1 顯示了在低溫 77K 下，單光儀入光狹縫大小 1mm 以及 0.5mm 所量測到的頻譜，其分別對應到解析度 1nm 以及 0.5nm。入光狹縫越大，入光量越多，不過解析度會越差，無法看到細微的模態；反之狹縫越小，解析度越高，但是入光量越少，需要較高的功率激發才能夠保證訊號不會被偵測系統本身的雜訊給覆蓋掉。根據圖 5.5.1(b)顯示，狹縫 0.5mm 的確需要較高的激發功率才能看到光學共振模態。表 5.5.1 顯示了幾個光學共振模態所在的位置、對應的 azimuthal mode、半高寬以及相對應的 Q 值。值得注意的是，因為這些模態的半高寬皆大於 1nm，所以解析度 1nm 所能解析的程度與 0.5nm 幾乎相當。

(a)



(b)

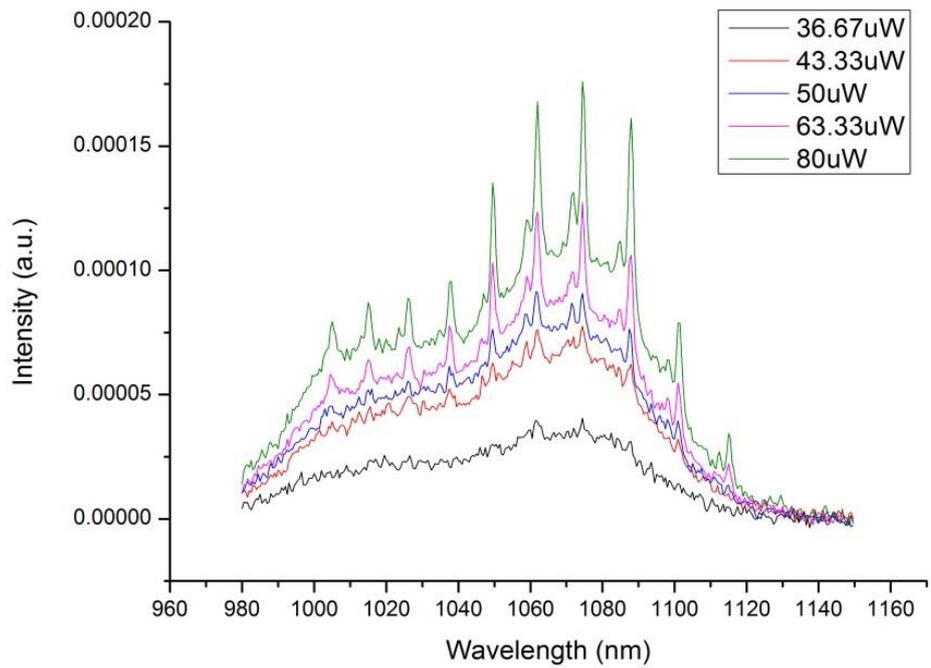


圖 5.5.1 低溫 77K 下，He-Ne 雷射激發下，玻璃基板上之樣品 Lm5403

微米捲管變功率微光激發螢光量測頻譜

(a)狹縫大小為 1mm，解析度為 1nm(b)狹縫大小為 0.5mm，解析度為 0.5nm

表 5.5.1: 根據圖 5.5.1，He-Ne 雷射激發功率 80 μ W 下，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數

$\lambda(\text{nm})$	1026.19	1037.83	1049.68	1061.96	1074.64	1087.88	1101.22
m	90	89	88	87	86	85	84
$\Delta\lambda(\text{nm})$		11.64	11.85	12.28	12.68	13.24	13.34
FWHM $\Delta\lambda_r$ (nm)	2.18	1.83	1.62	1.85	1.56	2.38	1.87
Q factor	471	567	648	574	689	457	589
等效折射率 $n_{\text{eff}} \sim 3.423$							

根據公式可算出等效折射率 $n_{\text{eff}} \sim 3.423$ ，與溝槽上的捲管等效折射率值差不多。此外我們更可以看到明顯的次級模態，也就是我們先前所推測的軸向模態(axial mode)。

如果我們將表 5.4.1 與表 5.5.1 作比較，可以發現溝槽上的捲管與玻璃上的捲管光學共振模態大約有 2nm~3nm 的偏差。不考慮溫度因素的話，可能的原因兩個，一是等效折射率的不同，這我們從表 5.4.1 以及表 5.5.1 即可看得出來。二是兩個捲管的直徑有些微的差異，同樣 azimuthal 模數下，30nm 以上的直徑差異即可造成 2nm 以上的波長偏差。

另外我們也在玻璃基板上放置了以樣品 Rn1390 捲曲 1.2 圈所製作的捲管。由於 Rn1390 的螢光激發訊號比 Lm5403 來的強，我們期望能夠觀察到更強的訊號。圖 5.5.2 為其在 77K 下，利用微螢光激發系統在狹縫大小 1mm 下，雷射光功率為 80 μ W 所獲得的頻譜。

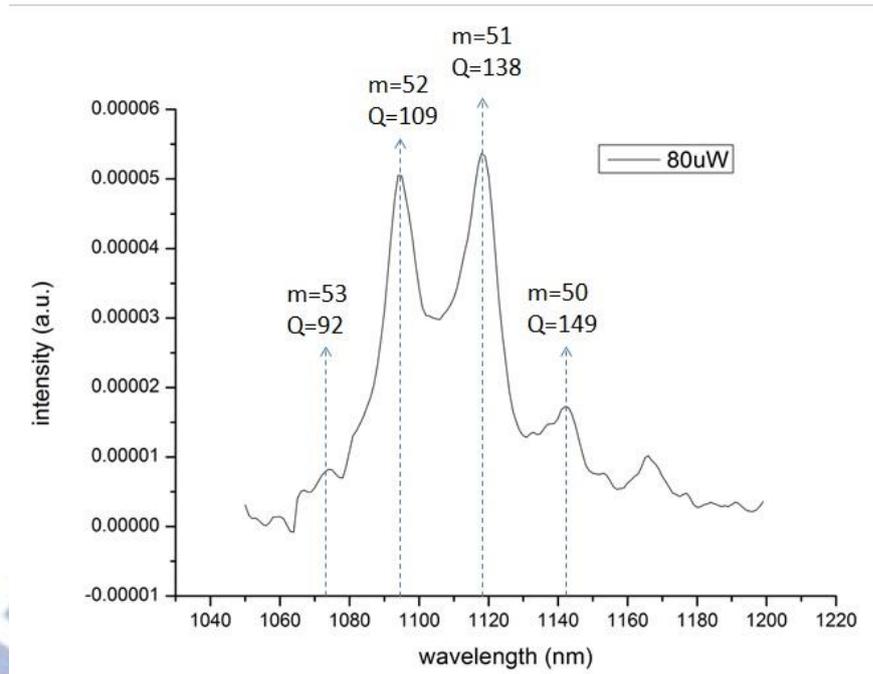


圖 5.5.2 低溫 77K 下，He-Ne 雷射激發下，玻璃基板上之樣品 Rn1390 微米捲管變功率微光激發螢光量測頻譜，狹縫大小 1mm，解析度 1nm

圖 5.5.2 顯示，利用 Rn1390 所製作的捲管，其頻譜強度並不如預期。首先，有可能是量測系統的量測效率不如之前來的高，校正時雷射光射入狹縫的位置跟之前有些微的差異；另外，偵測器與出光狹縫的相對位置也對於量測結果也有一定的影響。我們也可看到，每個峰值所對應的 Q 值並不高。這也許是因為環形共振的主模態(azimuthal mode)與次級軸向模態(axial mode)混合在一起，導致頻譜上主峰值的 Q 值下降。

無論如何，我們還是可以看到模態位置的間距能夠與公式(2.6)所計算出來的數值(以中心波長 1095.13nm 計算為 21nm)相符合，如表 5.5.2 第二列所示。

表 5.5.2: 根據圖 5.5.2，He-Ne 雷射激發功率 $80\mu\text{W}$ 下，將各峰值以勞倫茲函數擬合之共振模態參數

$\lambda(\text{nm})$	1074.88	1095.13	1117.88	1142.11
m	53	52	51	50
$\Delta\lambda(\text{nm})$		20.83	22.75	24.27
FWHM $\Delta\lambda_r$ (nm)	11.7	10.04	8.1	7.67
Q factor	92	109	138	149
等效折射率 $n_{\text{eff}} \sim 3.43$				

5.6 單微米捲管發光變溫量測及分析

要發展成能夠實際應用在積體光路上的元件，我們必須對於半導體微米捲管在改變溫度下的共振模態變化有更進一步的了解。我們將 Lm5403 製成的捲管放置於玻璃基板上，將溫度從低溫 77K 變化至室溫 $\sim(300\text{K})$ ，同時利用微螢光激發系統在入光狹縫大小為 0.5mm 時(解析度可達 0.5nm)，量測其光學共振模態。使用帶有回授機制的 Labview 程式使溫度控制儀控制降溫系統的氣流量，藉此調控灌入低溫致冷器的液態氮流量，同時溫度控制儀啟動低溫致冷器上的加熱器來達到控制溫度的目的。當溫度每增加 10K 時，一律利用 He-Ne 雷射光激發功率 $80\mu\text{W}$ 來激發微米捲管，如圖 5.6.1。這裡只顯示了從 77K 開始，每隔 50K 微米捲管的頻譜，而所有溫度的譜線均經過歸一化(normalized)。

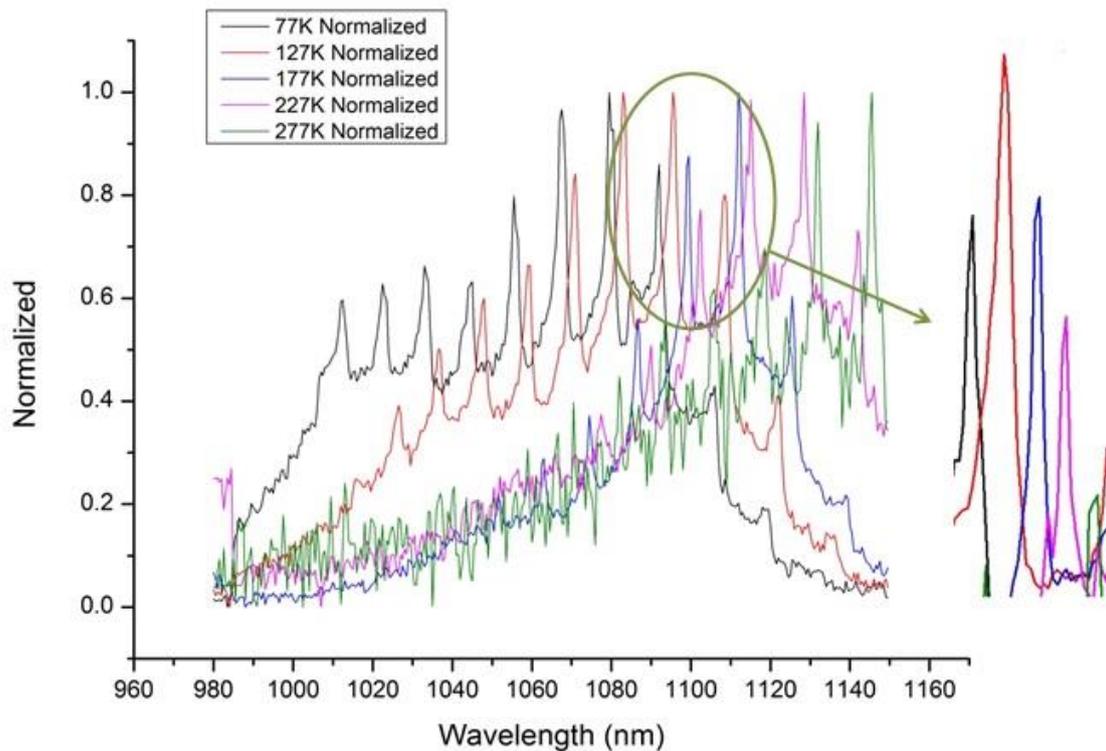
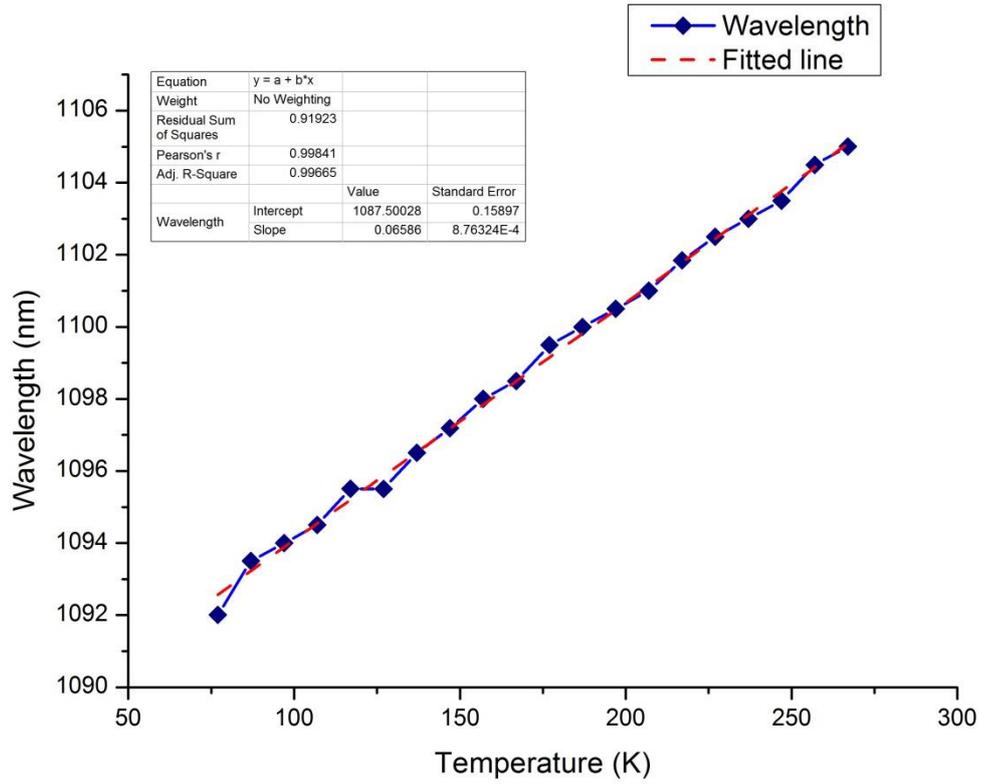


圖 5.6.1 He-Ne 雷射激發功率 $80\mu\text{W}$ 時，
玻璃基板上之樣品 Lm5403 微米捲管變溫微光激發螢光量測頻譜

必須注意到，實際上量測到的譜線在每個溫度強度都不一樣，明顯的趨勢是當溫度升高，譜線的強度會下降。原因是當溫度變化時，低溫致冷器內部與樣品玻璃基板接觸的銅座會熱脹冷縮，導致激發捲管的雷射經過 100 倍物鏡照射在捲管上時，並不能很好的聚焦在主動區上，另外因為玻璃基板並不是完全水平地黏貼在銅座之上，雷射對焦在捲管的水平面方向上隨著溫度的變化也會有位移，有時雷射光光點甚至會完全跑出捲管直徑的範圍。溫度變化範圍一但超過 100K 左右，譜線的強度會降到與系統雜訊差不多的等級，必須在改變溫度時利用白光光源注意雷射光對焦在捲管上的情形，並且手動微調雷射光焦距以及利用三軸電動馬達來將水平位置發生偏差的雷射光光點移回捲管的正中央。

可以看到圖 5.6.1 的右方顯示了從 77K 開始，波長位置在 1092nm 的共振波峰隨著溫度變化而開始紅移，如圖 5.6.2(a)。同理，圖 5.6.2(b)顯示了下一個模態 1106nm 的共振波峰隨著溫度的變化。

(a)



(b)

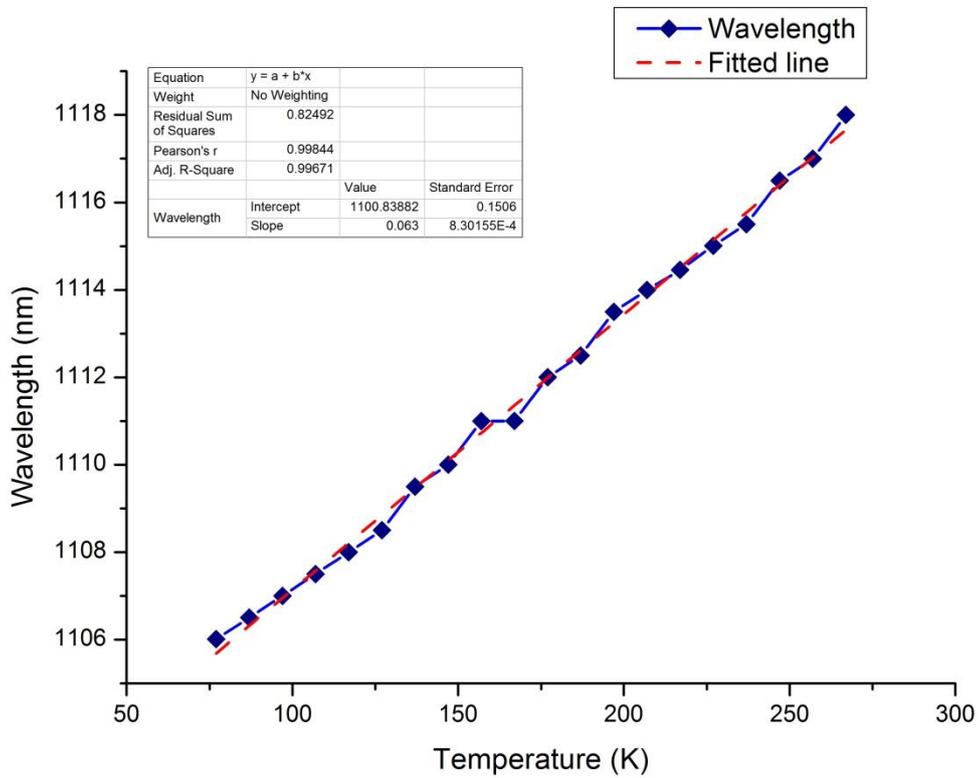


圖 5.6.2 從 77K 開始，微米捲管共振模態隨著溫度升高而紅移

(a)中心波長 1092nm(b)中心波長 1106nm

從 5-1 節的光激發螢光光譜(Photoluminescence, PL)圖 5.1.1(a)可得知，當溫度從低溫 77K 變化到室溫 300K 時，量子點發光訊號會紅移，其紅移量約為 66nm。不過假設波長紅移量為線性的情況下，變化量約為 0.3nm/K，遠遠超過這裡的 0.05nm/K。從圖 5.1.1 上的確可以看到因量子點發光波長變長而造成整體訊號紅移，但共振條件的改變才是峰值位置變化的主要原因。

而另外造成光學共振邊界條件改變的可能因素有兩個，一是捲管大小隨著溫度變化熱漲冷縮，進而導致共振波長變長。這裡為了簡化計算，我們將捲管本身當作單一砷化鎵(GaAs)材質，以估計捲管直徑的伸長量。不過根據文獻[24]所述，砷化鎵的線性熱膨脹係數 α 為 $5.73 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。根據公式(2.5)，固定 azimuthal mode 模數為 85，等效折射率 n_{eff} 為 3.423，得到波長在溫度變化間距為 10K 時變化量為 0.06nm，明顯與圖 5.6.2 所顯示的每 10K 對應 0.5nm 的變化率不相符。

另一個影響光學共振邊界條件的因素則是折射率的變化。如果忽略微米捲管的膨脹，我們根據公式(2.5)，可以得到

$$\Delta\lambda = \frac{\Delta n \cdot \pi D}{m} \quad (5.1)$$

其中 Δn (折射率變化)又可表示成 ΔT (溫度變化)與 dn/dT (折射率與溫度變化的斜率)的乘積，這裡忽略了二階以及更高階的溫度變化效應。同時我們也利用直線擬合的方式，從圖中獲得了波長對溫度的斜率 $\Delta\lambda/\Delta T$ 。所以根據以上的結果，我們可以推出圖 5.6.2(a)與圖 5.6.2(b)中， dn/dT 的數值分別為 $2.0744 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 與 $1.9843 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ ，與文獻[25]所測得的值非常相符。另外如果也將直徑變化考慮進來，可將公式(5.1)改寫成

$$\Delta\lambda = \frac{\Delta n \cdot \pi D}{m} + \frac{n \cdot \pi \Delta D}{m} \quad (5.2)$$

其中 ΔD 為直徑的變化量，可用 $\alpha \Delta T \cdot D$ 表示。修正過後的折射率與溫度變化斜率 dn/dT 分別為 $1.8783 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 與 $1.7882 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。

同樣的波長紅移也可以在以樣品 Rn1390 製成的微米捲管量測中觀察到，見圖 5.6.3。如同前面所述，隨著溫度上升銅座熱脹冷縮造成雷射光對焦失準，譜線強度有下降的趨勢。而由於 Rn1390 製成的微米捲管直徑較小，溫度變化時，在水平方向上雷射光光點

較容易跑出捲管直徑的範圍，且對雷射光光點激發位置較為敏感，所以此捲管變溫量測溫度變化範圍不能太大，取樣點不多。而利用 77K 時，峰值波長位置在 1118nm 的譜線紅移，我們同樣可以獲得 $\Delta\lambda/\Delta T$ ，進而利用公式(5.1)得到 dn/dT 為 $1.9333 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ ，利用公式(5.2)得到經熱脹冷縮修正之 dn/dT 為 $1.73719 \times 10^{-4} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ 。我們可以看到 Lm5403 與 Rn1390 所製成的微米捲管雖然直徑不同，光學共振模態波長與間距不一樣，不過其折射率對於溫度的變化卻具有高度一致性。

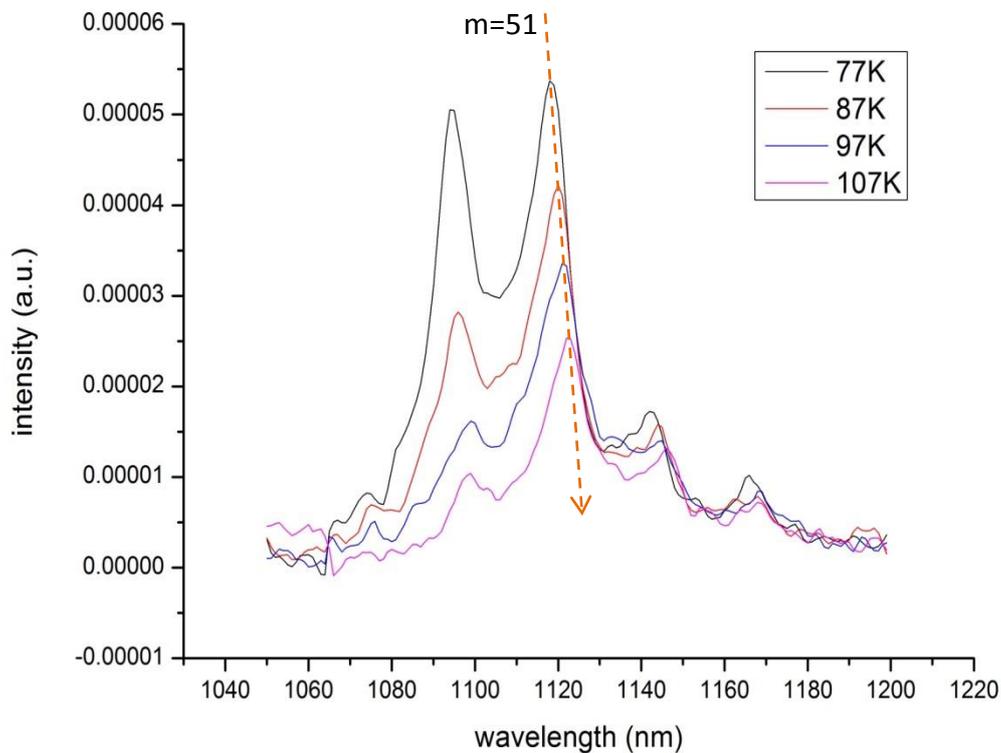


圖 5.6.3 He-Ne 雷射激發功率 $80\mu\text{W}$ 時，玻璃基板上之樣品 Rn1390 微米捲管變溫微光激發螢光量測頻譜

5.7 雙捲管耦合之理論計算與發光特性

經由前述 5.5 以及 5.6 小節的量測結果，我們得知半導體微米捲管的確能夠良好地展現其環形共振腔的特性。另一方面，為了能夠拓展其在積體光路方面的應用，我們也希望能夠得知當兩個微米捲管耦合在一起時，其共振特性的變化。

首先，我們必須先了解單個環形共振腔的共振特性。利用 Rsoft 模擬軟體，透過 FDTD(Finite Difference Time Domain)的方式，能夠得到環形共振腔的頻譜。Rsoft 軟體能夠讓使用者將欲模擬的二維或是三維結構設計好，定義元件的尺寸、各區域的折射率以及切割模擬網格(mesh)大小。網格切得越多，模擬越精細，不過模擬完成的時間就會越長；反之網格切得越少，模擬能夠越快完成，但模擬的精度就會下降。另一方面，雖然 Rsoft 軟體可以讓使用者定義出二維或是三維的結構，不過由於實際上我們所製作的半導體微米捲管(樣品 Lm5403)管壁厚度只有 130nm，半徑大約 $8\mu\text{m}$ ，而軸向長度卻長達 $100\mu\text{m}$ 以上。如果使用三維的結構，徑向的厚度與軸向長度過於不匹配，會造成模擬所需要的時間太過冗長，因此我們只設計了簡單的二維環形共振腔結構來模擬其頻譜。

我們假設環形共振腔的直徑為樣品 Lm5403 的理論值 $8.77\mu\text{m}$ ，管壁厚度為 130nm(兩圈)，管壁材質為單純的砷化鎵(GaAs)材質，其在樣品 Lm5403 發光波長 $1\mu\text{m}$ 附近時，折射率約為 3.4 左右。在下方管壁裡放置一個光源(Source)，並且在側邊的管壁裡放置偵測器(Monitor)，見圖 5.7.2(a)。光源使用脈衝模式(Pulse Mode)，其在頻譜上為一寬帶(Broadband)的光源，包含了許多頻率。隨著時間的演進，管壁內的偵測器記錄隨時間變化的電場，並透過傅利葉轉換(Fourier Transform)的方式將時域上的電場強度轉換成頻譜強度。事實上，哪些頻率能夠在環形共振腔裡共振，是由環形共振腔的幾何性質與邊界條件決定的。圖 5.7.1 顯示了在上述條件下，在波長利用 Rsoft 軟體所計算出來的共振頻譜。

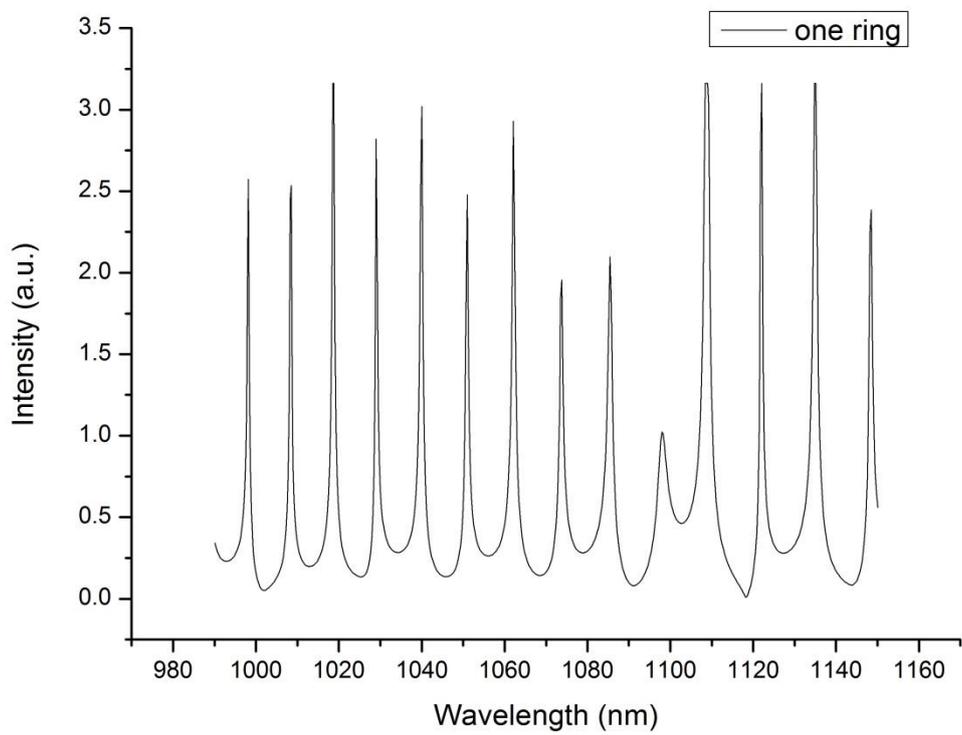


圖 5.7.1 單環形共振腔之模擬頻譜

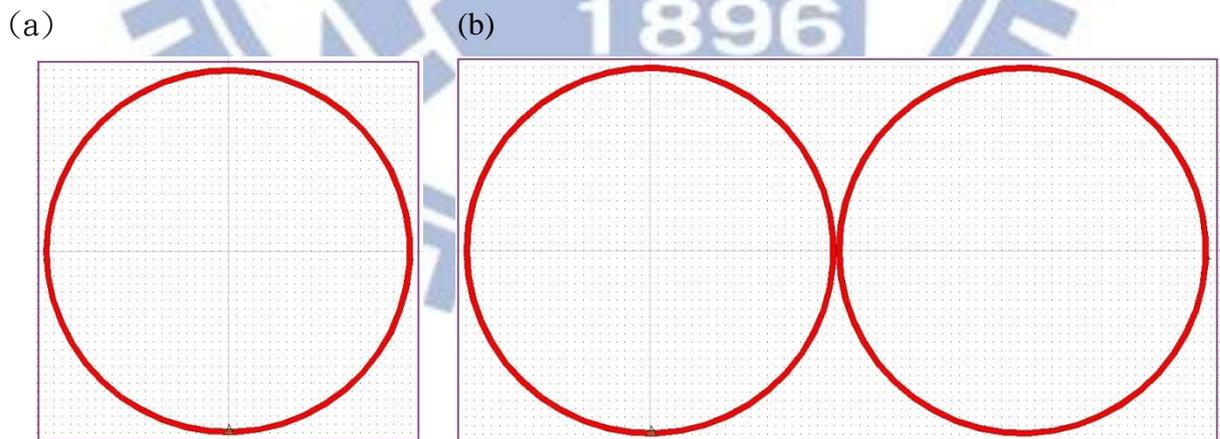


圖 5.7.2 Rsoft 環形共振腔(白色區域為空氣，紅色區域為砷化鎵)

(a)單環形共振腔(b)雙環形共振腔，間距為零

圖 5.7.1 上顯示了一系列的峰值，與 4-4 節與 4-5 節所量測到的單根微米捲管之發光特性幾乎一致。值得注意的是，Rsoft 模擬的頻譜圖如果不經過平移，與實驗量測的結果並不能恰好重疊。這是因為模擬時所代入的直徑長度是理論值(8.77 μm)較實驗值大，不過這樣的差異可以透過平移來消弭。就圖 5.7.1 探討的話，其在中心波長 1060 μm 的峰值間差距 $\Delta\lambda$ 約為 11nm，與圖 5.5.1 及表 5.5.1 所顯示之 $\Delta\lambda\sim 12\text{nm}$ 幾乎相等。這也表示模擬的共振條件符合式(2.5)

$$n_{\text{eff}}(y) \cdot \pi D = m\lambda$$

以及式(2.6)

$$\Delta\lambda = \lambda^2 / \pi D \cdot n_{\text{eff}}$$

而雙環形共振腔的幾何結構配置如圖 5.7.2(b)所示，兩個相同直徑(8.77 μm)、相同厚度(130nm)的環形共振腔擺放在一起，其間沒有任何間距。將脈衝光源置於左邊共振腔下方管壁內，並且在左邊共振腔的左邊管壁以及右邊共振腔的右側管壁內各放置一偵測器。模擬的結果顯示這兩個偵測器所測量到的共振頻譜並無二致，所以之後的頻譜只呈現左邊偵測器的譜線，如圖 5.7.3 裡的紅色線所示。我們可清楚地見到模分裂(mode splitting)的產生，峰值的數目變成兩倍，並且其在頻譜上的位置與單共振腔並不一樣。不過如果只參考這頻譜，並不能夠清楚地解釋模分裂的起源。所以我們接著改變兩共振腔間的距離，觀察模分裂的變化。圖 5.7.4 顯示了當兩個環形共振腔之間的距離與其共振頻譜間的關係，分別是 0~150nm、每隔 50nm 作一頻譜，波長顯示在 1045~1070nm 之間。

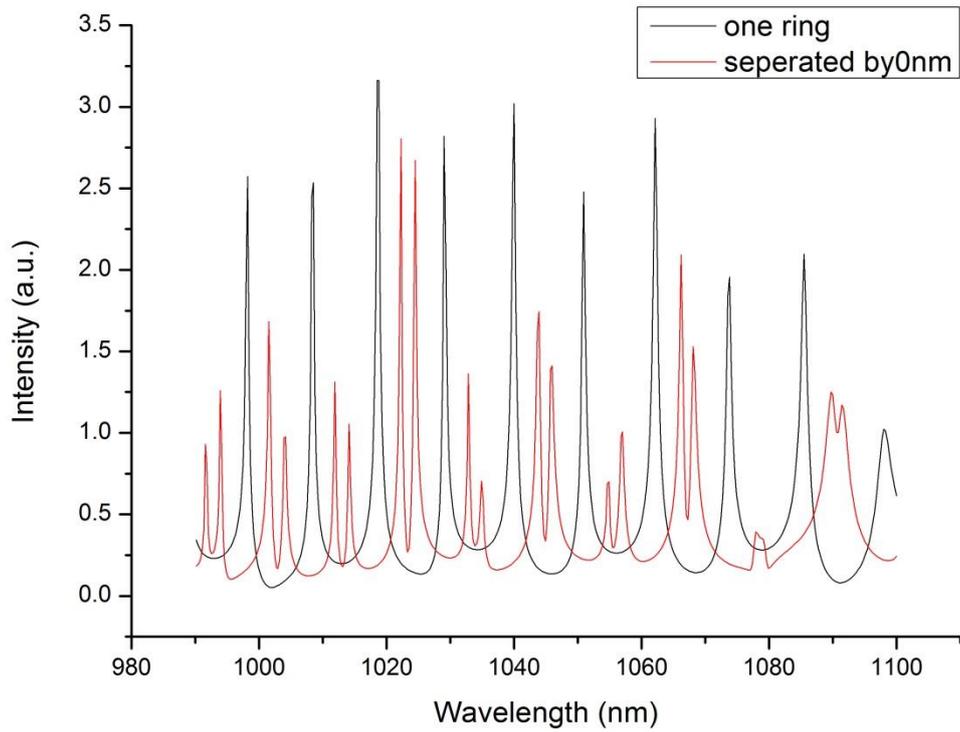


圖 5.7.3 單與雙環形共振腔之 Rsoft 模擬頻譜，顯示波長範圍約 1000~1100nm

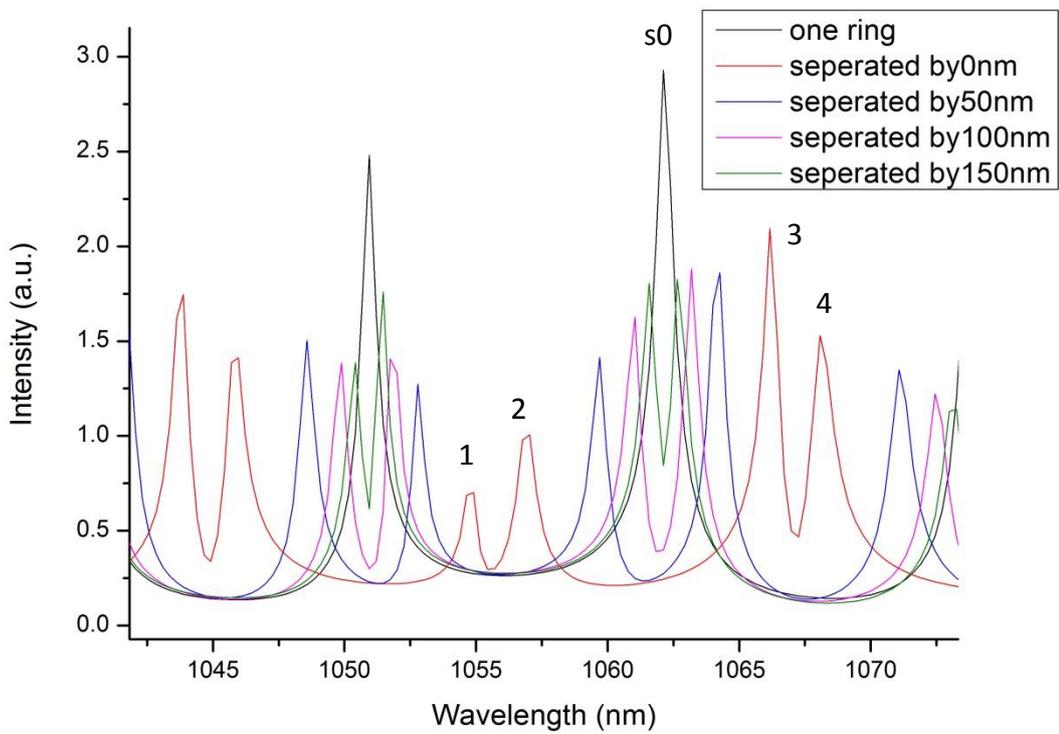


圖 5.7.4 雙環形共振腔隨間距變化之 Rsoft 模擬頻譜，放大顯示於 1062nm 附近

以單環形共振腔中心波長 1062nm 為例，當兩個共振腔在間距很小(~150nm)時，可以見到模分裂的性質。模分裂的產生與共振腔間光場的耦合有非常密切的關係。我們知道當環形共振腔間距越小，光場越容易發生重疊，其光場耦合程度提升，模分裂的程度提升;反之間距越大，光場越不易發生重疊，光場耦合程度下降，模分裂的程度減弱。我們將波長的分裂量對環形共振腔間距作圖，可得到如圖 5.7.5。接下來我們透過模擬電場場圖(圖 5.7.5~圖 5.7.8)，當時間演進到達場共振的穩態，來證明當兩個環形共振腔間距為零時，的確會從單模態分裂成雙模態。

觀察圖 5.7.5，共振波長在 1054.64nm 之下，可看見左右兩個共振腔的共振場型是反對稱(anti-symmetric)的。而接下來，1056.77nm 場型為對稱(symmetric)、1066.17nm 場型為反對稱以及 1068.07nm 為對稱。而其中，1056.77nm(標號 2)與 1066.17nm(標號 3)這兩個分別為對稱與反對稱的峰值，是從單環形共振腔共振波長 1062.12(標號 s0)所分裂出來的。峰值 1054.64nm(標號 1)是從單環峰值 1050.94nm 分裂出來的長波長對稱模態；而 1068.07nm(標號 4)則是從單環峰值 1073.81nm 所分裂出來的短波長反對稱模態。這可經由節點數目確認，分裂出來的兩個峰值理當具有相同的節點數。模擬共振電場裡，峰值 1 所具有的節點數目為 71；峰值 2 與峰值 3 具有節點數目 70，與單環峰值 1062.12nm(標號 s0，見圖 5.7.9(a))所具有的節點數目一樣；峰值 4 則具有節點數目 69。這裡所提到的節點數目，其實就是前面小節所提到的 azimuthal 數。

這個現象與兩個相同的有限深量子井耦合在一起時，場型的疊合非常相似(見圖 5.7.9(b))。當兩個相同的有限深量子井逐漸靠近時，波函數(wavefunction)會開始互相影響並且發生疊合。而疊合的方式恰分為兩種，對稱與反對稱，為這耦合雙量子井之薛丁格方程式(Schrödinger equation)的本徵態(eigenstates)，其所對應的本徵能量(eigenenergy)也分裂成兩個。對稱的本徵波函數等效波長變長，往低能量端移動；反對稱的本徵波函數等效波長變短，往高能量端移動。

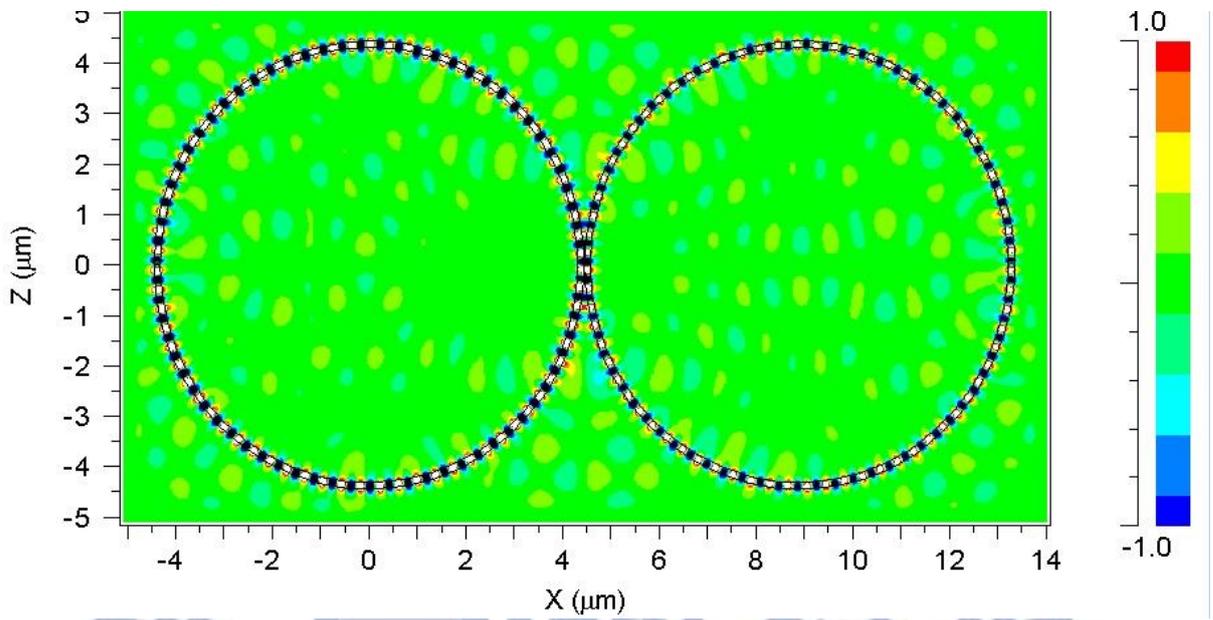


圖 5.7.5 間距為零之雙環形共振腔在 1054.64nm(標號 1)的 Rsoft 模擬共振場圖(對稱)

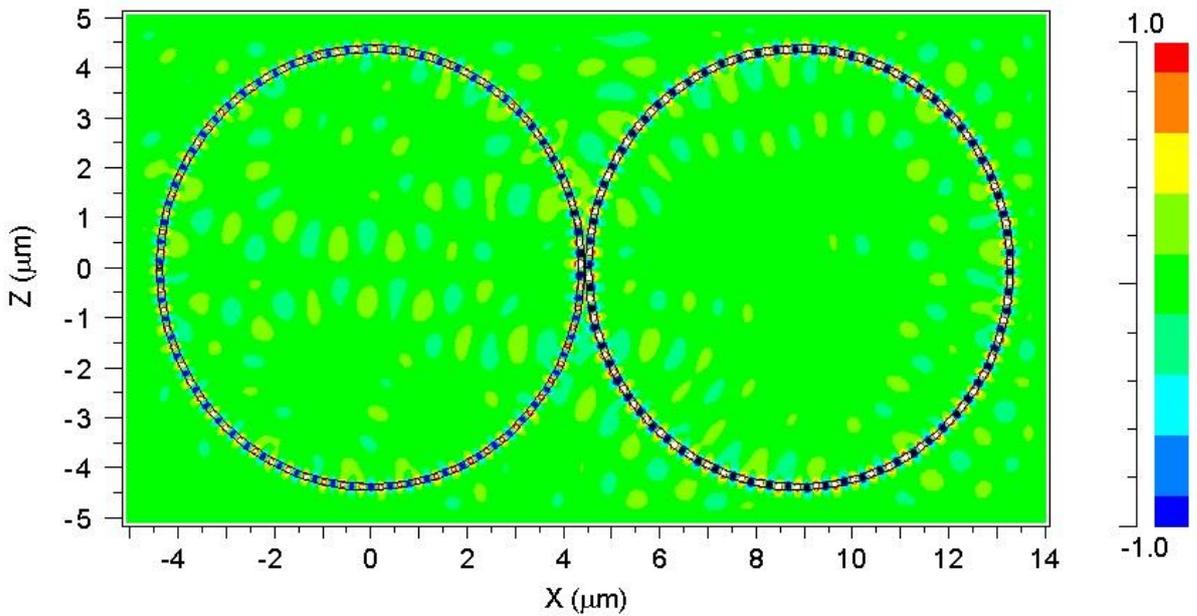


圖 5.7.6 間距為零之雙環形共振腔在 1056.77nm(標號 2)的 Rsoft 模擬共振場圖(反對稱)

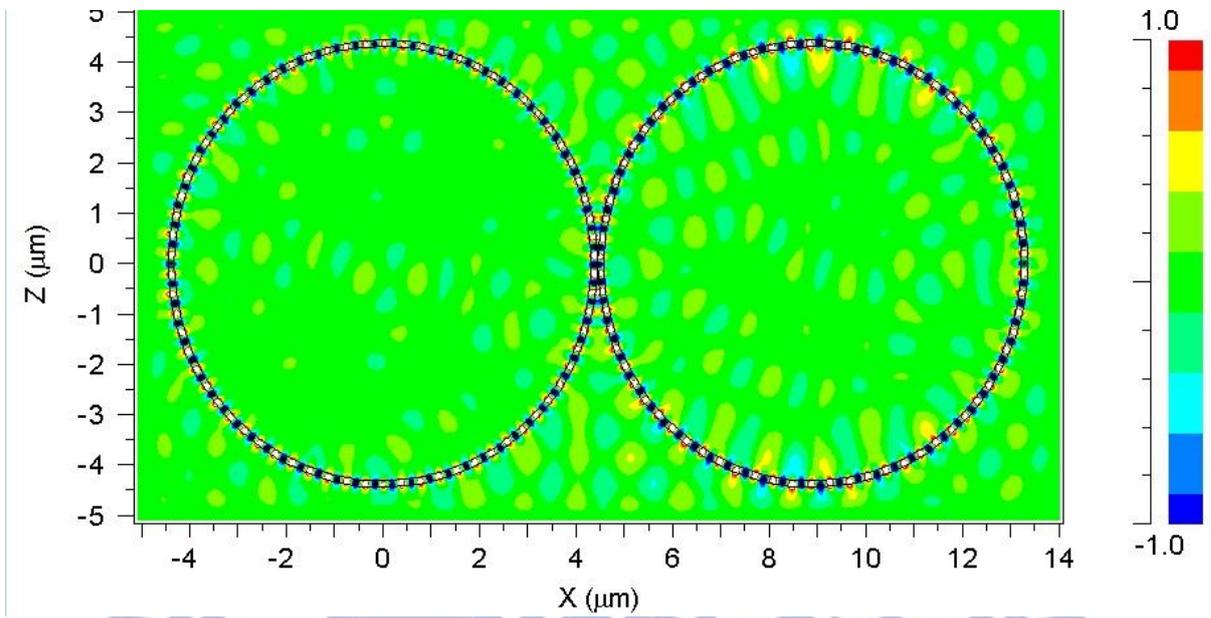


圖 5.7.7 間距為零之雙環形共振腔在 1066.17nm(標號 3)的 Rsoft 模擬共振場圖(對稱)

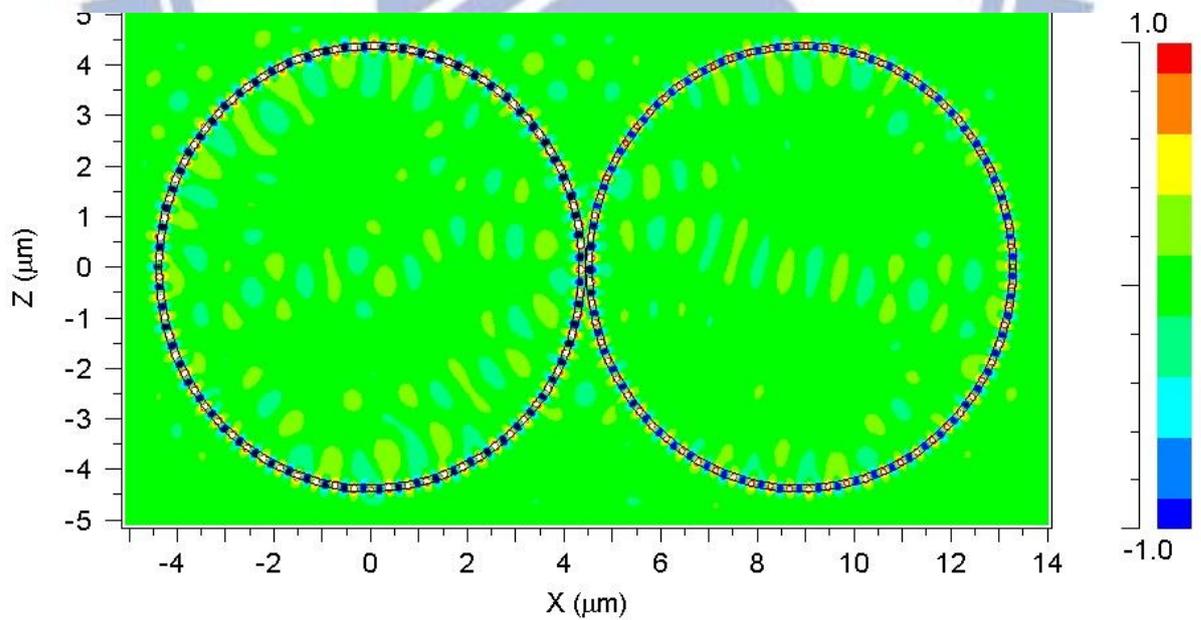


圖 5.7.8 間距為零之雙環形共振腔在 1068.07nm(標號 4)的 Rsoft 模擬共振場圖(反對稱)

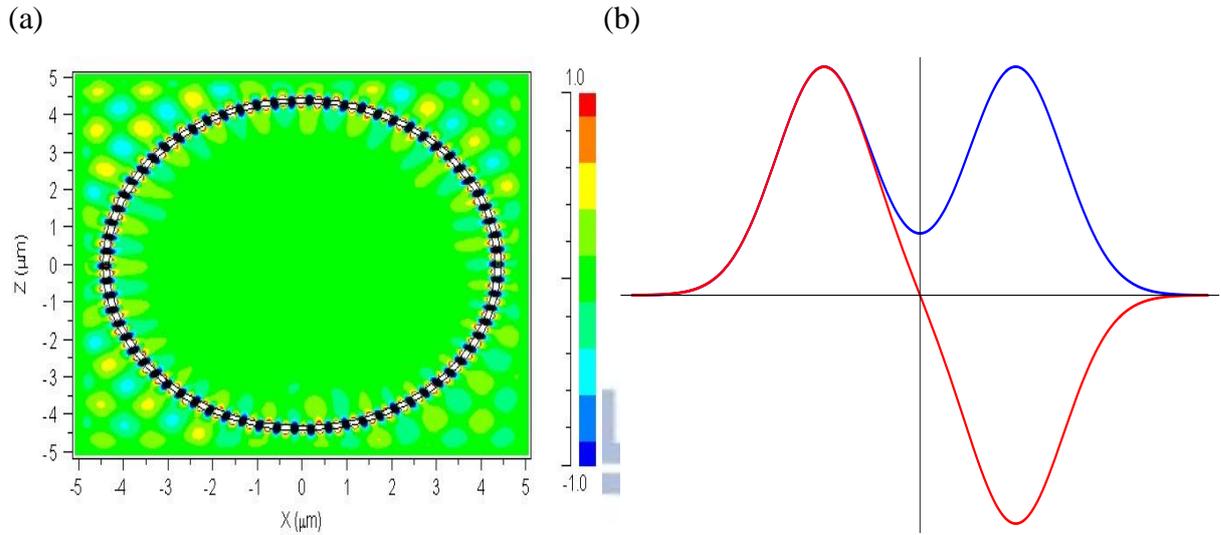


圖 5.7.9 (a) 單環形共振腔在 1062.12nm(標號 s0)之 Rsoft 模擬場圖

(b) 耦合雙量子井之波函數(對稱與反對稱)示意圖

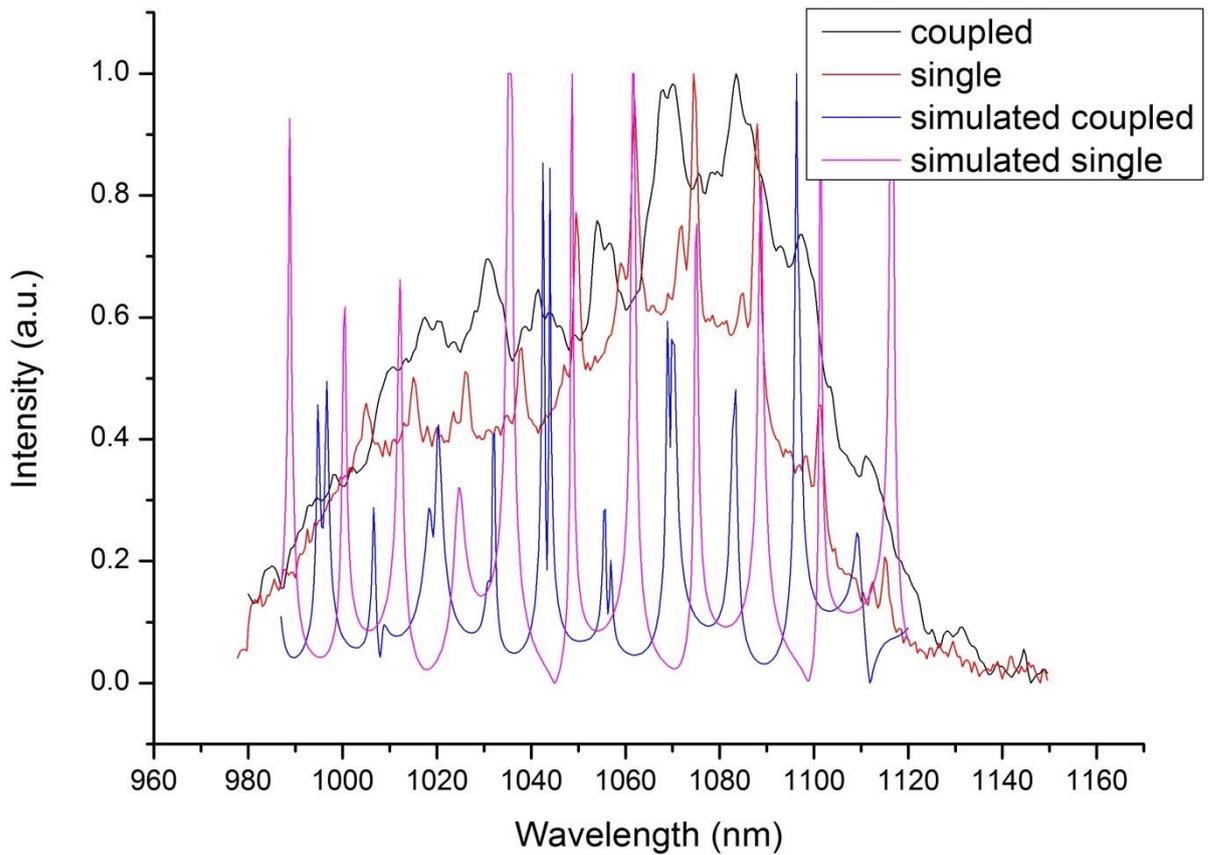


圖 5.7.10 單捲管與雙捲管的微光激發螢光頻譜、

單環共振腔與雙環共振腔的 Rsoft 模擬頻譜

我們也同樣地利用微光激發螢光系統來量測利用樣品 Lm5403 所製作之雙捲管。雙捲管如 3-2 節所述，捲曲前 mesa 寬度為 $100\mu\text{m}$ 。以捲管直徑 $8.59\mu\text{m}$ 來計算，會得到其中一邊捲管捲曲圈數為(寬度-直徑)除以兩倍圓周長，約為 1.7 圈，管壁可假設為兩圈厚，厚度約為 130nm 。我們也在低溫 77K 下，使用 He-Ne 雷射作激發光源，單光儀入光狹縫為 0.5mm (解析度 0.5nm)的條件下對其作量測，雷射光光點對焦於其中一根捲管之上，其頻譜見前頁圖 5.7.10 中的黑色線。另外也將 5.5 節單根捲管的頻譜、本節所提到的單環共振與雙環模擬頻譜都放在圖中一起比較。這裡紅色線(實驗單捲管)與粉紅色線(模擬單環)為第一組對照組；黑色線(實驗雙捲管)與藍色線(模擬雙環)另一組對照組。值得注意的是因為我們模擬所採用的直徑較實驗值來得大，所以峰值間距會來得較小，所以為了方便比較，我們將模擬頻譜一起向短波長稍做位移。

可以見到，單捲管頻譜的確與模擬頻譜對應的非常好，這證明公式(2.5)與(2.6)還有模擬頻譜的確與實驗結果吻合。另一方面，雙捲管的頻譜中，雖然每個共振峰值的 Q 值並不高，我們還是可以看到如同雙捲管模擬頻譜一般，在一些波長的附近有雙峰值的出現，雙環模擬與雙捲管實驗結果也有相當程度的吻合，詳見放大後的下圖 5.7.11。圖 5.7.11(a)裡可以看到有連續三群較明顯的由對稱、單環狀共振模態、反對稱所形成的組合，而在 5.7.11(b)實驗所量測的頻譜同樣也可以觀察到這樣連續三群的組合。

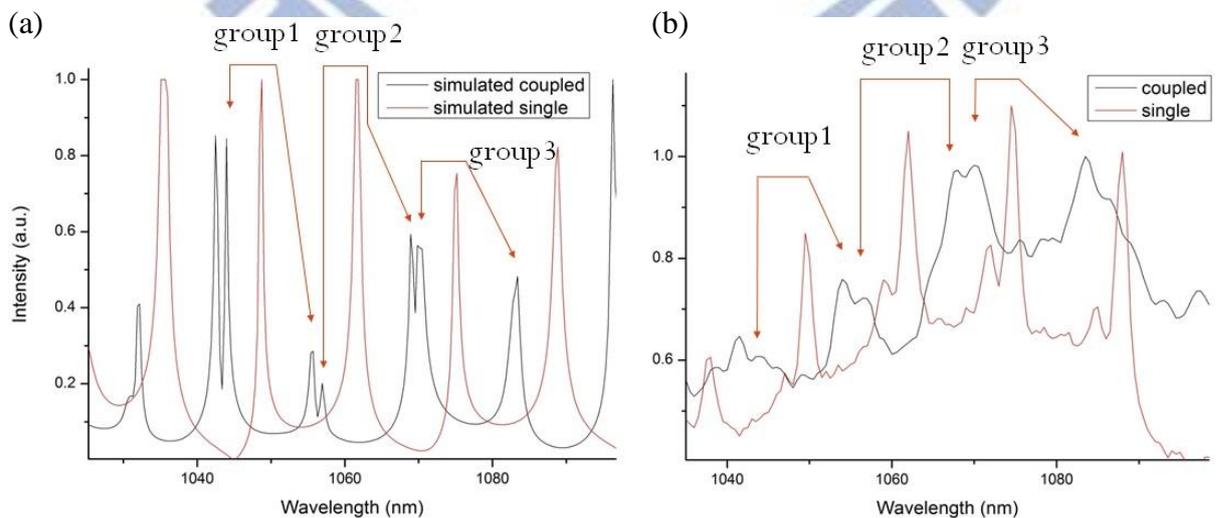


圖 5.7.11 (a)單與雙環狀共振腔模擬頻譜比較 (b)單根與耦合微米捲管量測頻譜比較

另一方面，雙峰值的趨勢與單捲管的軸向模態出現的模式完全不同：單捲管的軸向模態都出現在主峰值的短波長端，而且其強度有向短波長逐漸遞減的趨勢；而雙峰值卻沒有這樣的趨勢，在大多數情況兩個峰值強度差不多。這雙峰值的出現，在稍早已經解釋過，是由前一個單環主模態所分裂出來的長波長對稱模態，與下一個單環主模態所分裂出來的短波長反對稱模態所組成。另外值得注意的是雙捲管的頻譜上有些看似多餘的小峰值，我們推測其很有可能是單根捲管的軸向模態所貢獻的。

此模分裂特性對於未來應用在光學濾波器或是光篩取多工器時有很重要的應用，比方說能夠增加頻道(channel)的數目。而根據前述之 Rsoft 模擬，我們在未來也可以透過調變雙捲管之間的距離來控制模分裂的大小。



第六章 結論與展望

我們在利用分子束磊晶成長樣品時，根據理論調整樣品應變雙層薄膜的厚度以及材料比例，並且透過黃光微影以及蝕刻等製程，製作出符合我們需求、具有精確位置以及尺寸的微米捲管元件。接著我們利用微光激發螢光系統量測微米捲管之發光特性。

針對置於溝槽上以及置於玻璃基板上之單根微米捲管，在低溫 77K 之下，我們都能夠量到光波在捲管管壁全反射而造成的光學共振模態。除此之外，我們也針對置於玻璃基板上之單根微米捲管進行變溫的量測，觀察到共振峰值隨溫度上升而有紅移的現象。我們根據量測到的共振峰值隨溫度變化，擬合出折射率隨溫度變化的一次項係數，發現與文獻[25]相吻合。

接著我們在低溫 77K 下，量測置於玻璃基板上之雙捲管元件，並透過 Rsoft 模擬軟體，利用 FDTD 的方式來預測頻譜上出現的各個峰值所代表的意義。我們證明了在我們所設計的元件尺寸以及結構之下，模分裂的確會發生，並將模擬頻譜上的峰值對應到實驗量測到的頻譜之上。

我們期望未來能夠適當地改進元件的設計與製程，比方說增加軸向的光學侷限，能夠進一步提高雙捲管元件的 Q factor。另一方面，在積體光學的濾波器或是光篩取多功器之應用上，模分裂之特性能夠被用來增加頻道的數目，我們希望未來能夠精準地控制雙捲管之間的間距，藉以控制模分裂的大小，同時發展出能夠在不破壞捲管的前提下，另外在基板上製作出能與其相耦合的波導管，在積體光路方面能夠有實際上的應用。

參考文獻

- [1] Jean-Michel Gerard and Bruno Gayral, *Journal of Lightwave Technology*, vol. 17, No. 11(1999)
- [2] D. G. Deppe and H. Huang, *App. Phys. Lett.* vol. 75, No. 22 29(1999)
- [3] V. Ya. Prinz, et al., “Free-standing and overgrown InGaAs/GaAs nanotubes, nanohelices and their arrays”, *Physica E*, Vol. 6, pp. 828, 2000.
- [4] S. Mendach, et al., “Light emission and wave guiding of quantum dots in a tube”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 88, No. 11, pp. 111120, 2006.
- [5] F. Li and Z. Mi, “Optically pumped rolled-up InGaAs/GaAs quantum dot microtube lasers”, *OPTICS EXPRESS*, Vol. 17, No. 22, pp.19933, 2009.
- [6] T. Kipp, et al., “Optical Modes in Semiconductor Microtube Ring Resonators”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 96, pp. 077403, 2006.
- [7] Sishir Bhowmick, et al., “A quantum dot rolled-up microtube directional coupler”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 171111 (2012)
- [8] Sishir Bhowmick, et al., “Quantum dot rolled-up microtube optoelectronic integrated circuit”, *Optics Letters*, Vol. 38, Issue 10, pp. 1685-1687 (2013)
- [9] Ziyang Zhang, et al., “Resonance-splitting and enhanced notch depth in SOI ring resonators with mutual mode coupling”, *Optics Express*, Vol. 16, Issue 7, pp. 4621-4630 (2008)
- [10] Qiang Li, et al., “Coupled mode theory analysis of mode splitting in coupled cavity system”, *Optics Express*, Vol. 18, Issue 8, pp. 8367-8382 (2010)
- [11] Tymon Barwicz, et al., “Microring-resonator-based add-drop filters in SiN: fabrication and analysis, *Optics Express*, Vol. 12, Issue 7, pp. 1437-1442 (2004)”
- [12] V. Y. Prinz, “A new concept in fabricating building blocks for nanoelectronic and nanomechanic devices”, *Microelectron. Eng.*, Vol. 69, No. 2-4, pp. 466, 2003.
- [13] M. Grundmann, “Nanoscroll formation from strained layer heterostructures”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 83, No. 12, pp. 2444, 2003.

- [14] P. O. Vaccaro, K. Kubota, and T. Aida, "Strain-driven self-positioning of micromachined structures", Appl. Phys. Lett., Vol. 78, No. 19, pp. 2852, 2001.
- [15] C. Deneke, "Diameter scalability of rolled-up In(Ga)As/GaAs nanotubes", Semicond. Sci. Technol., Vol. 17, pp. 1278, 2002
- [16] M. Hosoda and T. Shigaki, "Degeneracy breaking of optical resonance modes in rolled-up spiral microtubes", Appl. Phys. Lett., Vol. 90, pp. 181107, 2007.
- [17] F. Li, Z. Mi, and S. Vicknesh, "Coherent emission from ultrathin-walled spiral InGaAs/GaAs quantum dot microtubes", OPTICS LETTERS, Vol. 34, No. 19, pp. 2915, 2009.
- [18] Z. Mi, et al., "Self-organized InAs quantum dot tube lasers and integrated optoelectronics on Si", Proc. of SPIE, Vol. 7943, pp. 79431C, 2011.
- [19] K. S. R. Koteswara Rao, "Optimum Atomic Spacing for AlAs Etching in GaAs Epitaxial Lift-Off Technology", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 39, pp. L 457, 2000.
- [20] J. Maeda, et al., "High-Rate GaAs Epitaxial Lift-Off Technique for Optoelectronic Integrated Circuits", Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 36, pp. 1554, 1997.
- [21] J. Heo, et al., "Threshold Condition and Modal Gain of Rolled-up Microtube Lasers," in Conference on Lasers and Electro-Optics 2012, OSA Technical Digest (online) (Optical Society of America, 2012), paper CTh4M.8.
- [22] 孫耘, et al., "III-V Semiconductor Rolled-up Microtubes and Their Optoelectronic Characteristics", 2012.
- [23] Ch. Strelow, et al., "Light confinement and mode splitting in rolled-up semiconductor microtube bottle resonators", Phys. Rev B 85, 155329, 2012.
- [24] Handbook Series on Semiconductor Parameters, by S. Rumyantsev, M. Shur, Vol. 2, 1996
- [25] J. Talghader, et al., "Thermal dependence of the refractive index of GaAs and AlAs measured using semiconductor multilayer optical cavities", Appl. Phys. Lett., Vol. 66, issue 3, pp.335-337, 1994.

簡歷 (Vita)

姓名：彭柏霖 (Po-Lin Peng)

性別：男

出生年月日：民國 79 年 5 月 5 日

籍貫：台灣省桃園市

學歷：

國立交通大學電機資訊學士班學士 (97.9~101.6)

國立交通大學電子所碩士班 (101.9~103.10)

碩士論文題目：

三五族半導體微米捲管耦合發光特性

III-V Semiconductor Rolled-up Microtubes and Their Coupled Mode Characteristics

