

第一章 緒論

1.1 InAs/GaAs 量子點材料介紹

半導體的量子奈米結構一開始是由 Esaki 與 Tsu 於 1969 年研究超晶格 (superlattices) 開始的，他們在厚度小於電子平均自由路徑的一維週期結構上觀察到量子效應，此後也開啟了奈米結構的研究熱潮。由於隨著長晶技術不斷的進步下，量子線、量子井與量子點結構也分別被發展出來，量子線為一維束縛，量子井與量子點各為二維與三維束縛，由於如此的束縛效應，使得電子在某些方向上的運動受到限制，而導致在其方向上能量的量子化。

常見的異質接面長晶模式可分為三種：(1)層接式(F-vdM mode, Frank-van Merwe mode) [1]；(2)島嶼式(V-W mode, Volmer-Weber mode) [2]；(3)層接而後島嶼式(S-K mode, Stranski-Krastanow mode) [3]。當磊晶材料的表面能大於基板的表面能時，是利於島嶼式的成長模式，反之，若磊晶材料的表面能小於基板的表面能時，則利於層接式的成長模式，至於層接而後島嶼成長模式是先成長一層 wetting layer 的薄膜，之後再聚集形成島嶼模式。

長晶模式牽涉於基板材料和磊晶材料之間表面能的差異，及晶格常數間的匹配程度，由於晶格常數的不匹配會產生彈性應變能的問題。若磊晶材料的表面能較基板的表面能小，且它們之間存在晶格不匹配時，則最初的成長會趨向於層接式，但是當磊晶厚度超過一定程度，因為彈性應變能的增加，使得晶格會藉由晶格鬆弛降低彈性應變能，造成系統總能量的下降，至於成長模式則轉換成島嶼式，當磊晶厚度在一定的臨界值內，晶格鬆弛不會產生出缺陷，若繼續增加磊晶厚度，就會有差排(dislocation)、堆疊錯誤(stacking fault)等缺陷產生。

InAs 的晶格常數大於 GaAs，所以 InAs 成長在 GaAs 材料上時，會在平行

的方向上產生壓縮應變(compressive strain)，因此在適當的磊晶厚度下，就可以形成三維島嶼式的長晶模式。

根據參考文獻[4]，Goldstein 在 1985 年提出 InAs Islands 以 S-K 成長模式在 GaAs 基板上會出現量子點的特性，若成長參數控制適當，將可長出無缺陷的量子點結構，從此之後，以 S-K 方式成長的量子點，成為製作量子點的主要方法。

量子點為一個三維小體積的奈米結構，在其中的電荷載子被三維空間的位能障侷限住了，因此在數學上具有 δ 函數的態密度，所以理論上用量子點結構為作用區的半導體雷射具有超低的起始電流密度[5]、高特徵溫度(characteristic temperature, T_0)[6]、高材料增益(gain)[7]、較窄的譜線寬度、操作條件對溫度不敏感... 等優點，因此對於光電元件的應用上具有很大的貢獻。利用量子點的這些特性所做成的元件有量子點雷射[8~9]、電晶體[10]、光檢測器[11]、量子點記憶體元件(quantum dots memory device)等。

1.2 Dots in Well(DWELL)結構介紹

在 InAs 量子點上成長 InGaAs 量子井，形成所謂的 DWELL(dots-in-well)，利用此種成長方法的量子點，其發光波長為 $1.3\mu\text{m}$ ，有些可以拉長到 $1.35\mu\text{m}$ 、減少晶格不匹配程度、降低臨界電流密度[12]、光激發螢光(photoluminescence, PL)的強度增強和半高寬(Full Width at Half Maximum, FWHM)變窄等優點[13-16]。但是因為 InGaAs 量子井材料會使量子點周遭的位能障降低，造成以使用 DWELL 結構的雷射元件在溫度的穩定性上會變得不佳。

1.3 研究動機

近年來的研究發現把 antimony(Sb)加入 InGaAs 及 InGaAsN 量子井中，可使得其發光波段拉長至 1.3 μm 甚至 1.55 μm 附近[17-22]，由文獻記載得知：antimony(Sb)的功用可以增加二維的成長模式且抑制三維的成長模式，所以二維轉變為三維的臨界厚度會增加，此外可減輕磊晶層材料的表面能，保持界面穩定平整，延後差排(dislocation)缺陷的形成，進而可使量子結構長得更厚，發光波段可拉得更長，我們稱這個現在為銻表面活化效應(Surfactant Effect of Sb) [23-24]，於是我們將 Sb 應用在 InAs 量子點，研究 Sb 含量的多寡對 InAs 量子點的影響，本論文即採用此結構，成長了三片不同 Sb 含量的 InAs(Sb)/InGaAs 量子點，配合電性、光性及表面的量測技術，希望可以更明瞭這種新穎的量子點結構。

1.4 論文架構

本論文主要是研究 InAs(Sb)/InGaAs Dots inWell 結構之 quantum dots，改變不同含量的 Sb，利用電性、光性及表面特性的量測方法，研究此種結構的特性。而論文的章節安排如下：

第二章：樣品製備與量測系統簡介，簡述樣品的製作過程與介紹所使用的量測系統。

第三章：光性量測與分析，對樣品作 PL 量測，再對其結果進行分析與討論。

第四章：電性量測與分析，對樣品作電性量測，包括 I-V 及 C-V，再對其實驗數據加以分析與討論。

第五章：表面量測與分析，使用 SIMS、AFM 及 TEM 對樣品表面進行分析。

第六章：由電性、光性及表面量測所得到的數據加以彙整而得到最後結論。

第二章 樣品製備與量測系統簡介

2.1 樣品製備

分子束磊晶技術(molecular beam epitaxy, MBE)其原理類似一個超高真空蒸鍍的系統，與蒸鍍系統不同的是，在磊晶過程基板會加熱到一定的高溫，使分子沈積於基板表面後有足夠的熱能移動到適當的位置，形成高品質的單晶薄膜。分子束是由已加熱的坩鍋中，從液化元素或固態元素蒸汽壓得來的，利用蒸汽壓將分子束射向磊晶基板，故名為分子束磊晶。在磊晶過程可由改變坩鍋的溫度以控制分子束的通量，即磊晶速率。我們也可以使用 RHEED(Reflection High Energy Electron Diffraction)來監視薄膜成長的好壞，確保薄膜成長的品質。分子束磊晶之所以會採用超高真空系統，主要是為了減少其他雜質融入磊晶層中，影響材料的光、電特性。

本論文所研究的樣品是以分子束磊晶方式成長，成長的方式採用 S-K 長晶模式。長晶步驟如下<一>使用(100)方向 n-type GaAs substrate <二>先成長 0.3 μm 矽參雜 GaAs buffer layer ($3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$) 長晶溫度 600°C 長晶速率 (G.A.) $2.23 \text{\AA}/\text{sec}$ ，並且在 n-type GaAs substrate 和 GaAs buffer layer 介面處作 delta doping($\text{si}=10^{19}$) 目的在優化電性量測特性。<三>將基板溫度下降至 485°C 以 G.A.= $0.265 \text{\AA}/\text{sec}$ 成長厚度為 2.72ML 的 quantum dots。<四>為了行成 Dot in well(DWell)結構我們在 InAs QDs 以相同的長晶溫度 485°C 及 G.R.= $1.88 \text{\AA}/\text{sec}$ 成長 50\AA InGaAs(In:14.4%)。<五>最後再將基板升溫至 600°C G.R.= $2.23 \text{\AA}/\text{sec}$ 成長 0.3 μm 矽參雜 GaAs Cap layer。<六>為了作原子力顯微鏡(Atomic force microscope)掃描，我們在表面處 GaAs Cap Layer 上成長與結構一樣的量子點。此為實驗樣品 InAs 的長晶狀況，而 InAsSb(1.8)、InAsSb(6)樣品設定銻分子束的等效壓力(Beam Equivalent Pressure, BEP)分別為 1.8×10^{-8} torr 與 6×10^{-8} torr，其於長晶條件與 InAs 相同，如圖 2-1、圖 2-2 所示。而各個樣品的長晶條件則列於<表 1-1>。

<表 1-1>樣品的長晶條件表

樣品編號	量子點的 Sb BEP	QDs 厚度
InAs	0	2.72ML
InAsSb(1.8)	1.8×10^{-8}	2.72ML
InAsSb(6)	6×10^{-8}	2.72ML

2.2 電極的製作

分為蕭基界面(Schottky contact)及歐姆界面(Ohmic contact)兩個部分。

2.2-1 蕭基界面的製作

經由 MBE 成長樣品後，需在樣品表面蒸鍍金屬圖形(pattern)，使其形成蕭基界面(Schottky contact)，再進一步量測元件的電性，元件的直徑為 $800\mu\text{m}$ (面積為 0.005024cm^2)。蒸鍍的金屬與樣品黏著是否良好，關係金屬與半導體界面的電性，影響著我們一連串的量測結果的準確性，所以蒸鍍前清洗樣品的工作是非常重要的。

以下簡述樣品的清洗步驟：

- (1)將樣品置入 D.I water(去離子水)中，用超音波震盪器震盪約 5 分鐘→
去除樣品表面的一般雜質。(D.I water 阻值需 $>15\text{M}\Omega$)
- (2)將樣品浸泡於 A.C.E(丙酮溶液)中，用超音波震盪器震盪約 5 分鐘→
去除樣品表面的油漬。
- (3)置入 D.I water 中用超音波震盪器震盪約 5 分鐘→去除樣品殘留的 A.C.E。
- (4)將樣品放入稀釋過的鹽酸溶液($\text{HCl}:\text{H}_2\text{O}=1:1$)中，約 15 秒鐘→去除樣品

表面的氧化層。同時將鋁條放入稀釋過的鹽酸溶液中用夾子刮至乳白色以去除表面氧化鋁。

(5)再浸泡於 D.I water 中，用超音波震盪器震盪約 5 分鐘→去除樣品殘留的鹽酸溶液。

(6)Etching：使用 $H_2O:H_2O_2:H_2SO_4(10:1:1)$ 隔水降溫後再 etching，時間約 1~2 秒。目的在 etching 掉表面的 quantum dots(為了量 AFM 表面所長的 quantum dots)

(6)最後使用氮氣吹乾樣品。

樣品經過清洗之後，將其置於載具上，以金屬光罩(mask) 覆蓋固定(事先將載具及 mask 皆用丙酮擦試並用氮氣吹乾)，然後將之與欲鍍物(鋁)一起放入 chamber 中，然後用 mechanic pump 和 diffusion pump 將 chamber 內壓力抽至 3×10^{-6} torr 以下，即可利用電流(約 50A) 加熱鋁使其汽化鍍在樣品上，如此便完成蕭基接面的製作。



2.2-2 歐姆接面的製作

完成蕭基接面的製作後，接著在樣品背面做歐姆接面。我們在已蒸鍍完成的樣品背面黏上 2~3 點銻(Indium)球，送入通有氮氣的高溫爐管($340^{\circ}C$)約 120 秒，為了避免背面電阻對本實驗的影響，對背面銻球做 I-V 量測，確定電阻小於 10Ω 之後，再將矽基板放在加熱平台上加熱至 $200\sim 250^{\circ}C$ ，便可在矽基板上均勻塗抹一層銻，最後再將樣品背面黏在矽基板上，即完成歐姆接面的製作。

2.3 量測系統簡介

量測系統分為光性與電性兩個系統。

2.3-1 光性量測系統

本實驗所使用的 PL(Photoluminescence)量測系統的儀器設備有：

- (1) 固態雷射(solid-state laser)：此儀器為 Excel 公司所產，型號為 Excel 1000，波長為 532 nm，驅動電流 6 安培，雷射穩定度 1.9%內，RMS 平均雜訊 0.7%，最大輸出功率為 1.3W，此雷射的目的是用來激發樣品發光。
- (2) 衰減濾光片組(Variable Neutral Density Filter)：配合雷射功率依需要使用適當的衰減片(filter)來達到所要的入射功率。
- (3) 光遮斷器(Optical chopper)：型號為 NEW FOCUS 3501，我們選擇的葉片形式為 7/5 孔，所使用的頻率為 500HZ，其目的在使雷射激發光源調制成方波的形式。
- (4) 聚光透鏡組(Focus lens)：用來聚焦雷射光與 PL 訊號。
- (5) 溫控裝置：包含真空腔體(chamber)、降溫用壓縮機(compressor)、機械幫浦(mechanical pump)、溫控器(temperature controller)。在降溫之前，先以機械幫浦將真空腔體抽至粗真空(10^{-3} torr)，避免因為水氣凝結，造成溫度無法下降，然後再使用氬氣作為冷媒的壓縮機降溫，因為此壓縮機是水冷式的，所以在開壓縮機之前，必須先開冷卻水，以防止壓縮機過熱造成損害。等溫度降至最低，再使用溫控器去設定想要量取的環境溫度。
- (6) 冷卻水冷凍系統：冷卻水系統是 Firstek Scientific 公司出產，型號 CF-100，主要用來冷卻壓縮機與固態雷射。
- (7) 高通濾光片(long-pass filter)：本實驗所使用的是 695 nm 的

long-pass filter，其目的為濾掉雷射光，避免使雷射光進入光偵測器中。

(8)分光儀(monochromator)：此儀器的型號為 ARC Spectro-275，其焦距長度為 27.5 cm，內部裝置三塊光柵，光柵的選擇是依據實驗所量測的波長範圍而定，而本實驗皆屬長波長範圍，因此使用的光柵為 600 groove/mm (BLZ=1000 nm)。

(9)光偵測器(photodetector)：此儀器是由 Electro-Optical Systems 公司所生產的砷化銦鎵(InGaAs)光偵測器，其在 300K 的適用波長範圍為 800nm 至 1800nm。

(10)訊號放大器(multi-meter)：將光偵測器的訊號整理放大再傳給鎖相放大器。

(11)鎖相放大器(Lock-in Amplifier)：此儀器的型號為 STANFORD RESEARCH SYSTEM SR850，其參考頻率限制在 105kHz 以下，參考頻率的電壓必須在 400mV 以上，其目的在於測量微小的交流訊號。

如圖 2-3[25-26]所示為整個 PL 量測系統之架構圖，首先由最大輸出功率為 1.3W 固態雷射(solid-state laser)發射出波長為 532 nm 的雷射光，經由一片或兩片衰減片(VNDF)降低雷射功率(視實驗需要)，然後將雷射光通過光遮斷器，對雷射光進行調變，並將光遮斷器的頻率送至鎖相放大器作為參考頻率，經過光遮斷器的雷射光經由第一面透鏡聚焦在樣品上，對樣品進行激發(excitation)。而樣品被激發所放射的螢光再經由第二片透鏡聚焦在分光儀的狹縫中進行分光，且在光進入狹縫前，使用一片 695 nm 的高通濾光片(long pass filter)，其目的即在於濾掉雷射光，以避免其對訊號產生干擾(因為螢光相較於雷射光是屬於非常微弱的光)，之後螢光會由分光儀背後的狹縫射出，再經由光偵測器去接收，最後將偵測到的訊號送至鎖相放大器處理之後再傳回電腦，我們在電腦上進行操控動作。

2.3-2 電性量測系統

1. Keithley 236：用來量測電流-電壓(I-V)特性曲線。
2. DLTS 系統(SULA Technology 製造)：包含脈衝產生器、溫控系統、雙開關訊號平均器、電容計、降溫系統及水平垂直紀錄器等。其 $t_2/t_1=11.5$ 是固定的，量測頻率是 1MHz。
3. HP 4194(阻抗/增益相位分析儀)：用來量測電容-電壓(C-V)、電容-頻率(C-F，又稱 Admittance Spectroscopy)、暫態電容(Transient Capacitance)與深層能階暫態頻譜(Deep Level Transient Spectroscopy)的特性曲線。
4. 溫控器：型號為 LakeShore330。
5. 變溫量測系統：變溫系統是 open cycle 型式的，利用液態氮降溫，最低溫可達 80K；另一種是利用液態氮降溫，最低可降至 20K 的溫度。系統總共包括 Cryogenic、抽真空 Pump、液態氮鋼瓶、真空腔體內有加熱平台與三軸探針台等。其中真空腔體為 CRYO 製造，型號為 CMP-1487。

所有實驗量測數據，都是藉由電腦透過 GPIB 介面控制卡來控制儀器與讀取數據，之後再利用軟體處理與作圖。

2.3-3 AFM 量測系統

2.3.3.1 掃描探針顯微鏡(Scan Probe Microscope, SPM)歷史發展

最早發明的光學顯微鏡，能觀察我們肉眼看不見的生物細胞，後來發明電子顯微鏡，能進一步看到細胞內部的結構。1982年IBM公司蘇黎士研究實驗室的兩位科學家比尼西(G. Binnig)和盧勒(H. Rohrer)利用原子之間的穿隧電流效應發明了掃描穿隧顯微鏡(Scanning Tunneling Microscope, STM)，進入到奈米層次，奈米相當於頭髮絲的幾十萬分之一，使人們第一次直觀地看到了原子、分子，使兩位科學家獲得了1986年的諾貝爾物理學獎。為克服樣品需為導體的缺點，其後1986年原子力顯微鏡(AFM)誕生，拓寬了應用範圍，對物質表面的微結構資訊，如成分、溫度、硬度、表面電位勢和電容以及磁、電、黏滯、摩擦等資訊進行測量和分析。

2.3-3-2 原子力顯微鏡(Atomic Force Microscope, AFM)工作原理

圖 2.4(a)所示，是由針尖附在懸臂樑前端所組成，一般成份為 Si 或 Si₃N₄，尖端直徑 20 至 100 奈米。當探針與樣品接觸時，針尖原子與樣品表面原子的作用力使探針在垂直方向移動，簡單的說就是樣品表面高低起伏使探針偏移，而偏移量的偵測如圖 2.4(c)所示，光由二極體雷射出來後，聚焦在鍍有金屬膜的探針尖端背面，然後光束被反射至四象限光電二極體，再經過放大電路轉成電壓訊號後，便可同時得到上下及左右偏移量，轉換成相對應的表面型態圖。

2.3-3-3 凡得瓦力(Vander Waals Force)

原子力顯微鏡乃是利用原子與原子間的凡得瓦力(Vander Waals Force)來促使 AFM 懸臂樑產生偏斜，利用此偏斜程度轉換成相對應的表面型態圖。當 AFM 探針尖端與試片材料表面間的距離小到只有幾個奈米距離時，探針尖端的

原子與試片材料表面原子間會產生相互吸引力，這種力就是所謂的凡得瓦力。AFM 針尖與試片表面間的凡得瓦力與距離的關係曲線，如圖 2.4(b)所示。凡得瓦力來源主要是電偶極(dipole)間的交互作用，力的大小與距離的七次方成反比。當 AFM 操作在接觸模式(Contact mode)時，針尖與試片表面的距離小到 1Å 到 5Å 時，針尖與試片表面之間會產生排斥力，此乃是因為針尖原子的波函數與試片表面原子的波函數產生重疊，即針尖原子與試片表面原子的外層電子佔有相同的量子狀態，依據泡立不相容原理(Pauli exclusion principle)得知，其中必須有電子躍遷至較高的能態，如此系統位能就會增加，產生排斥力。

2.3.3.4 原子力顯微鏡工作模式

一般 AFM 模式依工作距離如圖 2.4(b)分為：

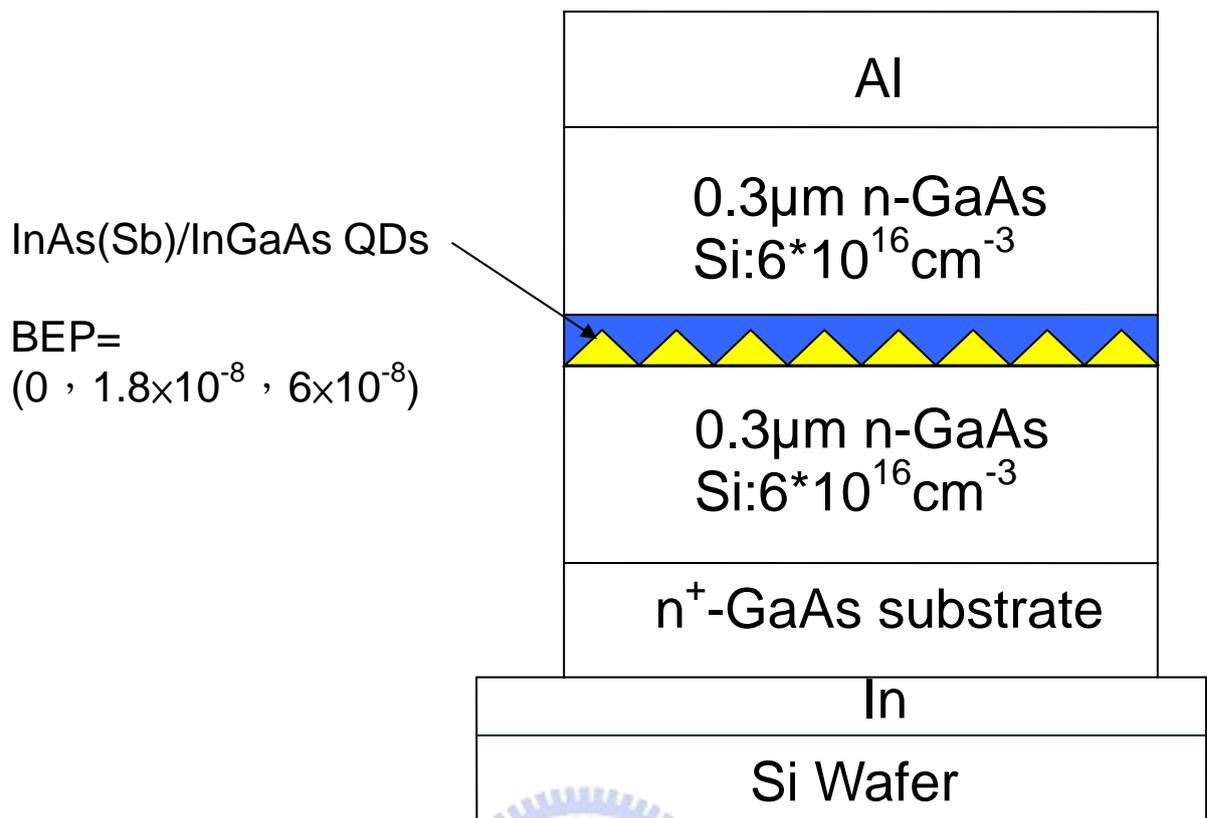
- (1)接觸式(contact mode)：利用排斥力，一般的接觸式量測，探針和試片材料間的作用力約為 0.1nN ~ 100nN 之間，但是當掃描的接觸面積極小時，容易形成過大的作用力損壞探針與試片。
- (2)非接觸式(non-contact mode)：利用吸引力，一般而言，AFM 在大氣中操作，試片表面會吸附一層水膜，對於距離的變化較不靈敏，解析度差。
- (3)間歇式接觸或稱輕拍式(tapping mode)：操作在前二者之間，有不錯的解析度，也較不會刮傷樣品，我們採用此模式。

2.3.3.5 原子力顯微鏡設備簡介

本實驗所採用的原子力顯微鏡原為 Digital Instruments(DI)公司生產(現為 Veeco Instruments 公司)的 Dimension 3100 機型，如圖 2.4(c)所示，原子力顯微鏡的主要結構可分為探針、探針懸臂樑、一組雷射光學設備、掃描控制器(scanning head)、回授電路、防震系統，以及控制用電腦等。掃描控制器包含壓電材料掃描器(PZT scanner)、探針針座以及偏移偵測器

(deflection sensor)。其中偏移偵測器包含一個雷射二極體、一面反射鏡面，以及極高靈敏度的位置感測器(PSPD)。





QDs : 

Growth temperature : 485°C

Growth rate : 0.265 \AA / s

Layer thickness : 2.72ML

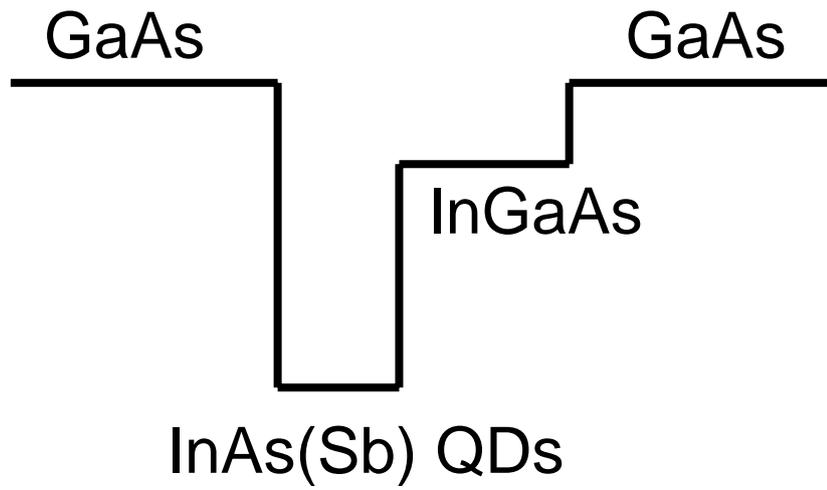
InGaAs layer : 

Growth temperature : 485°C

Growth rate : 1.88 \AA / s

Layer thickness : 50 \AA

圖 2-1 樣品結構圖



樣品編號	量子點的 Sb BEP	QDs 厚度
InAs	0	2.72ML
InAsSb(1.8)	1.8×10^{-8}	2.72ML
InAsSb(6)	6×10^{-8}	2.72ML

圖 2-2 樣品能帶圖

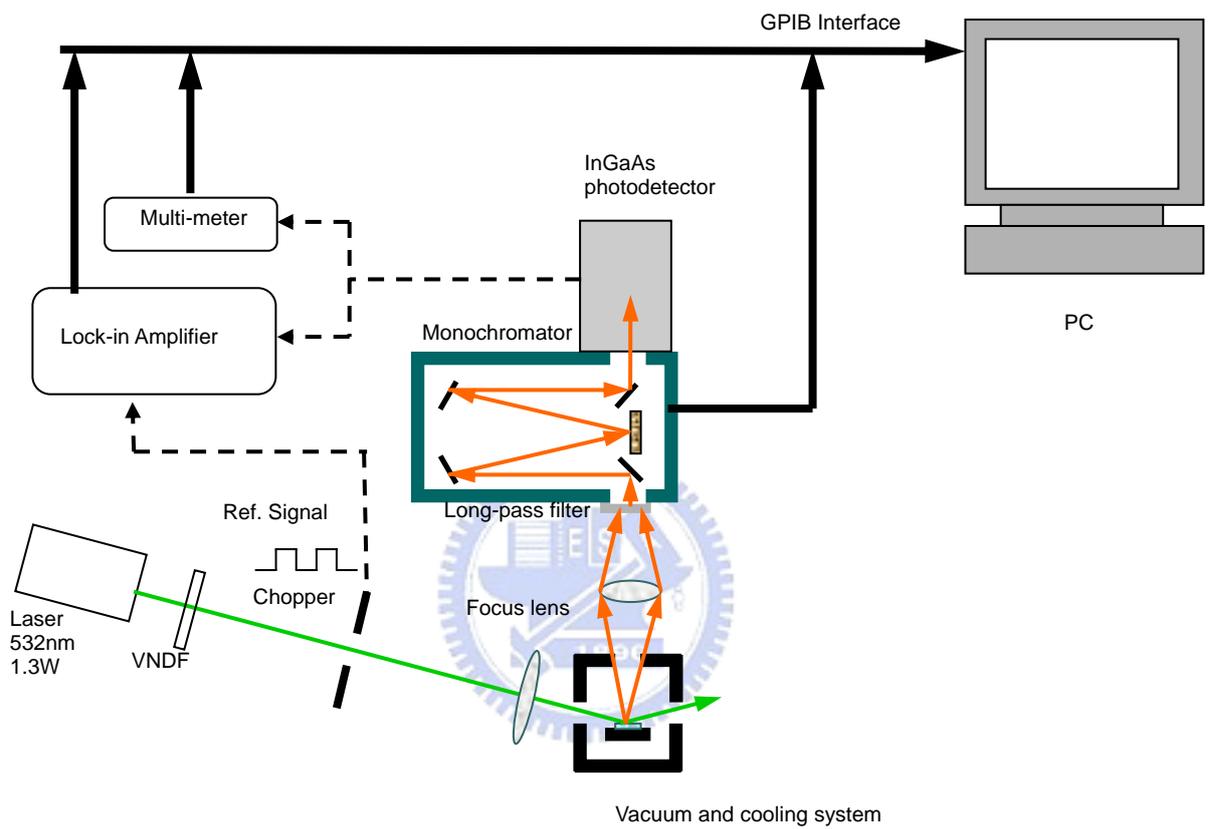


圖 2-3 PL 量測系統架設圖

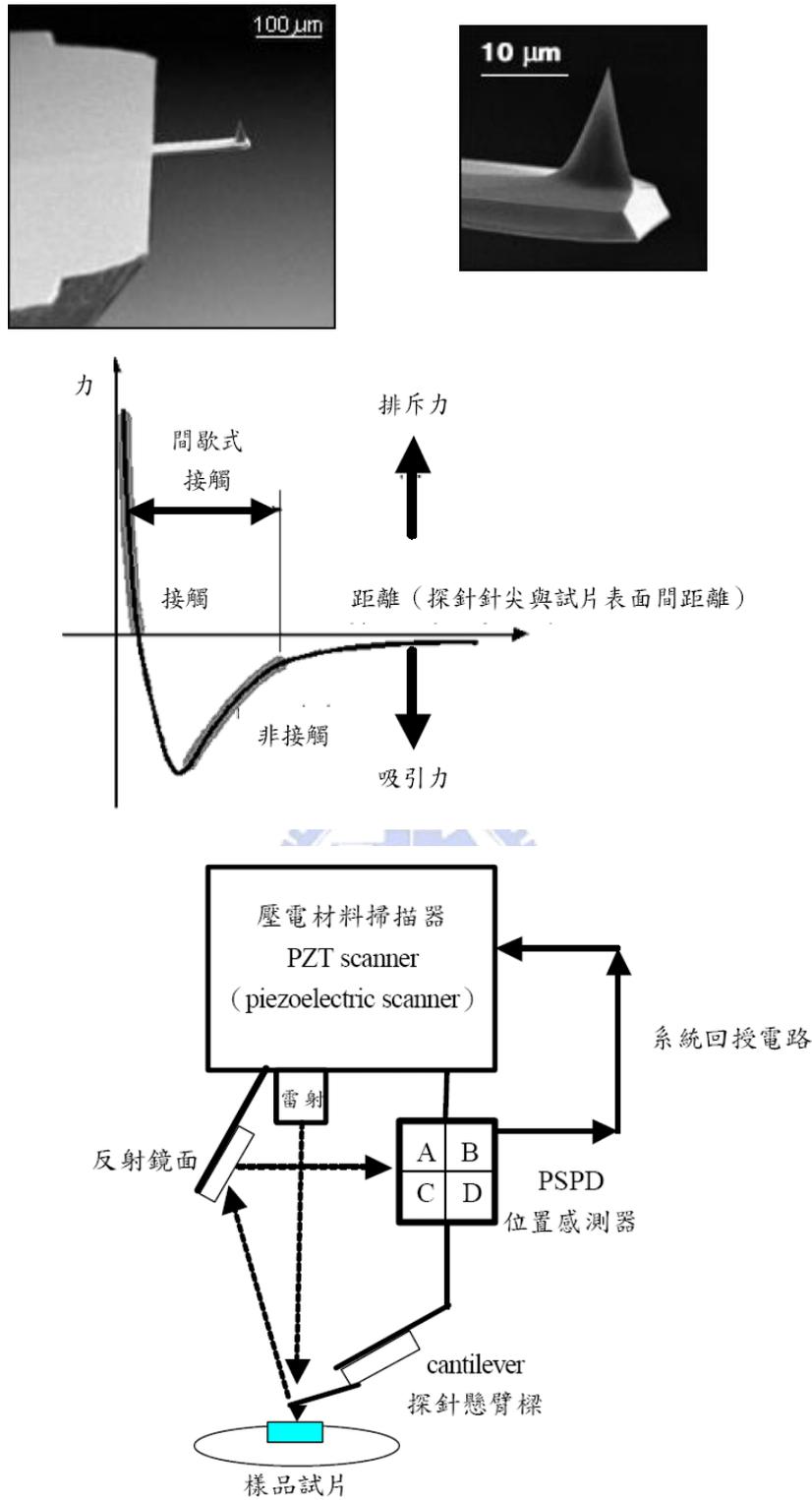


圖2.4 (a)AFM懸臂樑及針頭TEM圖(圖片來源Ultrasharp公司網站)

(b)凡得瓦力與距離的關係圖

(c)AFM示意圖

第三章 光性量測結果與分析

3-1 三片樣品室溫及低溫比較

圖 3-1(a)及圖 3-1(b)分別為三片樣品之室溫(300K)及低溫(30K)PL 圖，在室溫 300K 我們以雷射激發功率 1.3mW 進行量測，發現 InAsSb quantum dots 隨著銻(Sb)含量增加發光波長從 1323nm(ground state)與 1227nm(excited state)藍移至 1295nm 與 1200nm，在低溫 30K 雷射激發功率 0.13mW 進行量測，發光波長從 1245nm(ground state)與 1165nm(excited state)藍移至 1200nm 與 1100nm，從室溫低溫 PL 圖均可明顯看出隨著銻(Sb)含量增加發光波長有藍移(blue shift)的現象，顯示 quantum dots 變小顆或應力(strain)變大的效應。InAs InAsSb(1.8)這兩片樣品的發光強度和發光波長在室溫及低溫趨勢相似，顯示 Sb 含量少對 quantum dots 的影響並不大，相較 InAsSb(6)所量測出發光強度明顯變小和發光波長明顯變短，是因為 InAsSb(6) quantum dots 密度低的原因(在後續討論中會加以證明)，因為 quantum dots 密度低使的 PL 量測時所量測到的 quantum dots 個數較少，發光強度變小；圖 3-1(b) InAsSb(6)的樣品在低溫 30K excited state 比 ground state 大許多，明顯與室溫的現象相反，因為 quantum dots 密度低相對的 ground state 數量少，ground state 容易被填滿進而填 excited state。

當 InAs quantum dots 摻入 Sb 後，會產生銻表面活化效應(Surfactant Effect of Sb)，這個效應會延長 wetting layer 的成長，增加 2D 轉 3D 長晶模式的臨界厚度，抑制 quantum dots 的形成，使得 quantum dots 密度下降，這個效應也造成 quantum dots 成長過程有延遲形成的現象，成長出的 quantum dots 屬於初步成長，所以 Size 有普遍小顆的現象。

3-2 三片樣品定功率(0.13mW)變溫 PL 圖

圖 3-2(a)圖 3-2(b)及圖 3-3(a)分別為功率 0.13mW InAs、InAsSb(1.8)及 InAsSb(6)樣品之變溫 PL 圖，當溫度由室溫 300K 降至低溫 30K，peak 隨溫度下降往短波長移動，且 PL 強度隨溫度下降而上升，是因為隨溫度下降所能侷限的載子增多；InAs 發光波長從 1325nm 藍移至 1243nm，InAsSb(1.8)發光波長從 1323nm 藍移至 1235nm，隨著 Sb 含量增加發現原本在室溫藍移不明顯的 ground state 訊號，在低溫下藍移幅度更大，顯示 quantum dots Size 變小，再比較 InAsSb(6)發光波長從 1288nm 藍移至 1205nm，更凸顯出摻入 Sb 到 InAs quantum dots 所造成的 Sb surfactant effect。

為了更清楚比較三片樣品峰值對溫度的變化(圖 3-4)，我們重新細掃 InAsSb(6) 圖 3-3(b)樣品的變溫 PL 圖，以 Gauss 法擬合變溫 PL 圖；圖 3-4 顯示三片樣品 Peak position(eV)對溫度變化圖，〈表 3-1〉為 Excited state 及 Ground state Peak position(eV)值：

〈表 3-1〉

		InAS	InAsSb(1.8)	InAsSb(6)
室 溫	Excited state(meV)	1011.65	1011.65	1045.66
	Ground state(meV)	935.65	938.25	964.47
	E. S. -G. S. (meV)	76	73.4	81.19
低 溫	Excited state(eV)	1039.61	1047.73	1129.1
	Ground state(eV)	997.06	1002.56	1036.42
	E. S. -G. S. (meV)	42.55	45.17	93.74

由上表我們發現 InAs 及 InAsSb(1.8) ground state 和 Excited state 的能階差在室溫與低溫差不多，相較於 InAsSb(6)就有很大的差異，尤其在低溫能階差約一倍；InAs 及 InAsSb(1.8)之(G. S. 與 E. S.)能階差在室溫約 75meV 和低溫的 45meV，顯示隨溫度下降能階差有變小的趨勢，但在 Sb 含量多的樣品裡，我們發現能階差有變大的趨勢(81.19meV~93.74meV)，這些現象都顯示出 Sb 摻入對能階的影響，會造成這樣的差異最主要是來自於 InAsSb(6)的 excited state 與 ground state 在 160K 到 80K 之間急遽增加的原因，其中 excited state 的變化程度比 ground state 大，這個現象在圖 3-5(a)(b)中可以明顯的呈現出來，推測會有一段急遽爬升的現象，是因為當 InAs quantum dots 摻入 Sb 後使的 quantum dots 長的較小顆，以能帶圖的角度來分析，當 quantum dots Size 變小相對能帶圖會比較窄(能隙上升)，此時 ground state 及 excited state 能階會往上提，因為能隙較窄當溫度下降 ground state 及 excited state 能階往上提升的幅度會加大，因為 quantum dots Size 與能帶的寬窄成正比，能帶的寬窄直接影響能隙的高低，就是這個原因解釋了前面說的當放射波長 (ground state)變短，相對的能隙(E_g)變大，代表著 quantum dots Size 變小。

圖 3-6 為三片樣品在雷射功率 0.13mW 下積分強度對溫度倒數變化圖，溫度由 30K~120K InAs 的積分強度都還可以維持在一定值，InAsSb(1.8)在 30K~70K 積分強度也可以維持在一定值，到了 70K 以後積分強度開始下降，InAsSb(6)在 30K 後每當溫度一升高積分強度就有明顯下降的趨勢，由此可知 InAs 及 InAsSb(1.8) quantum dots 隨溫度升高載子侷限力比較好，不容易受溫度影響，InAsSb(6)的載子侷限力比較差，只要溫度一變動就直接影響被侷限的載子數量，會有這樣的現象我們認為是跟 quantum dots Size 有關，因為 Sb 含量最多的 quantum dots，dots Size 最小，ground state 與 excited state 能階最靠近砷化鎵導帶，當溫度一升高載子獲得較多熱動能而跑掉，所以 Sb 含量增加將使溫度升高載子侷限力下降。

3-3 三片樣品室溫 300K 及低溫 25K 變功率 PL 圖

3-3-1 室溫 300K 變功率 PL 圖

圖 3-7(a)及圖 3-7(b)為 InAs InAsSb(1.8)室溫 300K 之變功率 PL 圖，隨著雷射功率由 130mW 增加至 1300mW，可以發現 InAs 樣品 ground state 漸漸被填滿進而填 excited state，但在 1300mW 時 PL 強度不增反減，是因為雷射功率太強使的樣品發熱，所量測到的環境溫度大於室溫 300K，以至於波型有紅移(red shift)強度有變小的趨勢，就像變溫 PL，由於我們分析的是在不同功率下 PL 圖形變化及 excited state 與 ground state 比值，所以這個紅移現象對我們的分析沒有太大影響。在圖 3-7(a)及圖 3-7(b)發現在大功率 1300mW 下，excited state peak 強度逼近 ground state 甚至 second excited state 都被激發出來，可知這些訊號都是來自於同一群 quantum dots，且顯示 ground state 與 excited state 都接近飽和。



3-8(a)及圖 3-8(b)為 InAsSb(6)在室溫之變功率 PL 圖，不同的地方在，雷射功率在 82mW 時 excited state 的強度就與 ground state 相同，在 325mW 時 excited state 的強度就明顯超過 ground state，顯示出這些訊號也是來自於同一群 quantum dots，且 ground state 能階比較容易被填滿(比起其他兩片樣品)；圖 3-8(b)當功率持續不斷增強，excited state 不斷的增加，到 1300mW 時所呈現的 PL 圖形幾乎看不見 ground state 訊號的 peak。

3-3-2 低溫 25K 變功率 PL 圖

進行了室溫變功率 PL 實驗，接下來我們對這三片樣品做低溫 25K 變功率 PL 量測實驗，圖 3-9(a)及圖 3-9(b)為低溫 25K InAs、InAsSb(1.8) 變功率 PL 圖，隨著雷射功率由 130mW 增加至 1300mW，所量測到的訊號趨勢比室溫更顯著，原本 InAs、InAsSb(1.8)在 1300mW 室溫下 excited state 皆比 ground state 來的低，但在 1300mW 低溫下 excited state 皆比 ground state 來的高，代表 ground state 在低溫 25K 比室溫 300K 更容易填滿，在 1300mW 下也看到 second excited state 的出現，這現象與室溫相同。由圖 3-8(a)知道當雷射功率 82mW 時 excited state 與 ground state 的強度可以達到一樣，且低溫時 ground state 比室溫更容易填滿，我們推測低溫下 InAsSb(6)變功率 PL 圖 excited state 會比 ground state 大很多，這個推測與實驗值是相符合的(圖 3-10)，PL 訊號圖幾乎呈現一個大 peak 的情況，這個訊號絕大部份都是來自於 excited state，此時的 ground state 訊號幾乎太小到看不清楚。

為了更進一步分析室溫低溫變功率 PL 與 quantum dots 密度的關係，我們將圖 3-7 圖 3-8 圖 3-9 圖 3-10 以 Lorentz 擬合法[27](三個 peak)進行擬合分析，會以三個 peak 進行擬合分析 ground state 與 excited state 的原因，是因為在大功率激發下 second excited state 已被明顯激發出，用三個 peak 擬合更能精準將 ground state 與 excited state 從 PL 圖分析出來。

圖 3-11 為三片樣品在室溫變功率的擬合圖，能量最小的是 ground state peak，其次是 excited state peak second excited state peak，InAs、InAsSb(1.8)在功率增加的過程可以明顯的看到 second excited state 的 peak 漸漸變大，證明我們以三個 peak 擬合的想法是正確的，以下的表格是擬合後所得到 excited state/ground state(E./G.)強度的比值。

<表 3-2>300Kexcited state/ground state(E./G.)強度的比值

E. s/G. s(300K)	InAs	InAsSb(1.8)	InAsSb(6)
1300mW	1.06	1.147	7.057
520mW	0.901	0.944	3.891
325mW	0.831	0.879	3.286
130mW	0.72	0.078	2.069

<表 3-3>25Kexcited state/ground state(E./G.)強度的比值

E. s/G. s(25K)	InAs	InAsSb(1.8)	InAsSb(6)
1300mW	1.532	1.822	28.88
820mW	1.308	1.529	3.891<
325mW	0.759	0.996	3.286<
130mW	0.583	0.828	2.069<

由<表 3-2>數據顯示，當雷射功率由 130mw 逐步增加到 1300mW，InAs E./G. 強度比值從 0.72 增加到 1.06，InAsSb(1.8) E./G. 強度比值從 0.078 增加到 1.147，InAsSb(6) E./G. 強度比值從 2.069 增加到 7.057，這些強度比值增加的現象是因為激發功率增加 ground state 漸漸被填滿進而填 excited state，使 excited state peak 逐漸加大，E./G. 強度的比值也就比較大。在相同雷射激發功率下做比較，我們可以發現隨著 Sb 含量增加 E./G. 強度的比值有增加的趨勢，130mW 時比值由 0.72 增加至 2.069，1300mW 時由 1.06 增加至 7.057，

表示 InAsSb(6) 樣品所含 ground state 的數量比其他兩片樣品明顯較少，這裡指的 ground state 數量就是 InAsSb quantum dots 的數量，所以由室溫 PL 擬合得到的 E./G. 強度比值，在同一功率下比值隨著 Sb 含量增加而增加，證明了摻雜 Sb 進入 InAs/InGaAs quantum dots 可以有效的抑制 quantum dots 的形成。

為了更進一步印證我們的分析，圖 3-11 為三片樣品在低溫 25K 變功率的擬合圖，下表格是擬合後所得到 E./G. 強度比值。可以發現在每個樣品隨激發功率增加，E./G. 強度比值增加的趨勢都比室溫明顯，在定功率(1300mW)下隨著 Sb 含量增加，E./G. 強度比值增加的趨勢也都比室溫明顯，至於 InAsSb(6) 在功率 820mW、325mW、130mW 下我們用推測的方式來表示 E./G. 強度比值，是因為 ground state 與 excited state peak 強度相差太大，以至於不容易擬合或擬合結果誤差很大，但可以確定的是低溫 E./G. 強度比值是比室溫大。由以上室溫低溫變功率 PL 分析結果顯示，變化雷射激發功率量測的 PL 圖，可以有效的分辨出 quantum dots 的激發光是來自於同一群(Size 大小相同)或不同群，及探討 quantum dots 的濃度大小。

第四章 電性量測結果與分析

4.1 電流-電壓(I-V)量測與分析

在做電性量測之前，必須先對樣品作正向 I-V 量測，可以得知樣品的 ideal factor、串聯電阻大小、逆向飽和電流以及 Schottky barrier height，以了解 Schottky contact 的好壞，以及對樣品作反向 I-V 量測，以得到漏電流大小，這些數據將是未來對樣品作其他電性量測時的重要參考依據。詳細原理見 [28-29]。

根據 Schottky 的電流公式：

$$I = I_s \left\{ \exp\left[\frac{q(V - I r_s)}{nkT}\right] - 1 \right\} \quad (4.1) \text{ 其中}$$

I_s 為逆向飽和電流(saturation current)， r_s 為串聯電阻(series resistance)， n 為理想因子(ideal factor)， k 為波茲曼常數(boltzmann's constant)， T 為溫度， V 為順向偏壓。由 n 的大小可以判斷 Schottky 特性的好壞，當 n 值愈接近 1 代表 Schottky 特性愈好。

利用最小平方差法，將三片樣品之室溫正反向 I-V 曲線，如圖 4-1 所示，以(4.1)式做擬合，求取最佳化的逆向飽和電流，理想因子及串聯電阻。

另外由逆向飽和電流密度(reverse-saturation current density)跟蕭特基障礙高度(Schottky barrier height)的關係式：

$$J_{sT} = A^* T^2 e^{\frac{-e\phi_{bn}}{kT}} \quad (4.2)$$

其中 A^* 為 effective Richardson constant，對於 n-type 的 GaAs 材料來說 $A^*=0.41\text{A/K}^2\text{-cm}^2$ ， ϕ_{bn} 為蕭特基障礙高度。由(4.1)式所求得的逆向飽和電流 I_s 代入(4.2)式可求得蕭特基障礙高度(Schottky barrier height)，這裡所求得的 ϕ_{bn} 可以跟電容-電壓(C-V)量測所得到的值互相比較。各片樣品經由正向 I-V 曲線

所求得的參數整理如〈表 4-1〉：

〈表 4-1〉

	n	$r_s(\Omega)$	$I_s(A)$	$\phi_{bn}(V)$
InAs	1.25	84	6.2×10^{-9}	0.625
InAsSb(1.8)	1.28	105	1.4×10^{-9}	0.663
InAsSb(6)	1.22	81	5.3×10^{-9}	0.629

由上表可以發現，三片樣品的 ideal factor 都很接近理想值 1，且串聯電阻介於 80~100 Ω 之間，逆向飽和電流也都差不多，表示 Schottky 特性皆不錯，初步判斷隨著 Sb 含量增加對 InAs/InGaAs quantum dots 的結構沒有太大的變化，在稍後的電性分析可以證實沒有缺陷的存在。

4.2 電容-電壓(C-V)量測與分析

4.2-1 C-V 量測的基礎理論

電容-電壓(C-V)量測是利用外加逆向偏壓來空乏半導體內的自由載子，藉此改變其空乏區寬度。詳細原理見[30]。

假設空乏區為一平行板電容：

$$C = \frac{\epsilon \epsilon_0 A}{W} \quad (4.3)$$

其中 W 為空乏區寬度， ϵ 為半導體介電係數($\epsilon=13.1$ for GaAs)，A 為元件面積 ($A=0.005024\text{cm}^2$)。所以改變不同的偏壓就能改變空乏區寬度，而量測到的電容值也會隨之改變。

C-V 量測常用來偵測半導體內多數載子濃度隨空間分佈的情形：

$$N(W) = \frac{2}{q\epsilon\epsilon_0 A^2 \left(\frac{dC^{-2}}{dV} \right)} \quad (4.4) \text{所以}$$

只要將所量到的 C-V 曲線利用上式便能得到載子分佈的情形。

空乏區寬度與反向偏壓的關係為下式：

$$W = \left[\frac{2\epsilon\epsilon_0 (V_{bi} + V_R)}{eN_d} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.5)$$

其中 N_d 為摻雜濃度， V_{bi} 為內建位勢障礙， V_R 為逆向偏壓。

改變外加逆向偏壓，元件空乏區寬度會改變，同時調變電容，利用

$$C = dQ/dV$$

$$= A \left[\frac{e\epsilon\epsilon_0 N_d}{2(V_{bi} + V_R)} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.6) \text{所以}$$

將上式 C-V 關係換算成 $1/C^2$ -V 關係即可由斜率得到摻雜濃度 N_d 。而從截距可得到內建位勢障礙 V_{bi} 。

又蕭特基障礙高度與內建位勢障礙的關係如下：

$$\phi_{bn} = V_{bi} + \phi_n, \quad \phi_n \text{ 為 } E_c - E_f \quad (4.7) \text{其中}$$

$$\phi_n = \frac{KT}{e} \ln \left(\frac{N_c}{N_d} \right) \quad (4.8) \text{因此從}$$

C-V 量測曲線可以得到內建位勢障礙 V_{bi} 及摻雜濃度 N_d ，再將 N_d 代入(4.8)式可得到 ϕ_n ，進而得到蕭特基障礙高度 ϕ_{bn} 。

各片樣品經由 C-V 曲線所求得的參數整理如〈表 4-2〉：

<表 4-2>

	$N_d(\text{cm}^{-3})$	$V_{bi}(\text{V})$	$\phi_n(\text{meV})$	$\phi_{bn}(\text{V})$
InAs	6.75×10^{16}	0.904	48.55	0.953
InAsSb(1.8)	7.45×10^{16}	0.951	46	0.997
InAsSb(6)	7.26×10^{16}	0.894	46.67	0.941

在作 C-V 量測時，除了給予一直流的外加偏壓外，還會給一 AC 小訊號(osc level=0.05V) 來調變。若量子能階或缺陷能階的放射速率跟得上 AC 訊號的調變，則對電容有貢獻，反之，量子能階或缺陷能階的放射速率跟不上 AC 訊號的調變，則對電容沒有貢獻。所以從變頻 C-V 量測，就可得到量子能階或缺陷能階載子發射的速率為何。



4.2-2 C-V 量測結果與分析

在經過 I-V 量測確定 Schottky contact 很好後，我們進一步量測三片樣品的電容-電壓特性圖(C-V)如圖 4-2(a)，經過(4.8)式轉換後得到縱深分佈特性圖如圖 4-2(b)，可以看到在室溫 300K 頻率 10KHz 下，三片樣品隨著逆偏電壓的加大均有平台出現，平台的產生代表當逆偏電壓加大電容值遞減的幅度變緩，此時代表有載子累積的現象，反映在縱深分佈圖上就形成濃度的 peak。圖 4-2(b)所顯示的濃度 peak 有深淺不一的現象，是因為我們在蝕刻時所產生的誤差所致，並不影響樣品本身的特性。

圖 4-3(a)及圖 4-3(b)為低溫 83K 頻率 3KHz 電容-電壓特性圖和縱深分佈特性圖，與室溫比較後得到隨著 Sb 含量增加，在縱深分佈圖所呈現的載子侷限力有增加的趨勢，半高寬有變窄的現象，顯示 dots 較均勻(在後續的分析會

加以證明)，不同的地方在室溫時三片樣品之縱深分佈圖的 peak 較對稱，低溫時 peak 變的不對稱，為了探討這個現象我們將三片樣品做室溫變頻分析，圖 4-4(a)(b) 圖 4-5(a)(b) 分別為 InAs、InAsSb(1.8)、InAsSb(6) 室溫電容-電壓特性圖和縱深分佈特性圖，在不同頻率下量測得到的縱深分佈圖沒有太大的變化，表示載子從能階跳出來的時間很快，均趕的上儀器的量測頻率。於是我們把溫度降低是著做低溫變頻 C-V，圖 4-6(a)(b)、圖 4-7(a)(b)、圖 4-8(a)(b) 分別為三片樣品在低溫 83K 之變頻 C-V 圖及縱深圖，在低溫下以不同頻率進行量測，均發現有不對稱 peak，但改變頻率縱深分佈圖幾乎不便，表示 InAs、InAsSb(1.8) 載子跳出的時間跟的上量測頻率(100KHz)，特別在 InAsSb(6) 的樣品，隨著量測頻率降低原本不對稱 peak 漸漸分離出兩個 peak，這個現象在其他兩片樣品沒有出現，於是我們推測是 Sb 摻入所造成的現象。

圖 4-9(a)(b)、圖 4-10(a)(b)、圖 4-11(a)(b) 分別為三片樣品在低頻 5KHz 之變溫 C-V 圖及縱深圖，InAs、InAsSb(1.8) 量測結果顯示，隨著溫度由 350K 至 83K，peak 漸漸變大且往更深的地方移動，因為在低溫時局限較多的載子所以濃度 peak 會上升，此時需用較大的偏壓才可以完全趕出載子，導致 peak 往後移，同時也發現 peak 由對稱漸漸變的不對稱。以 InAsSb(6) 為例隨著溫度降底原本在高溫不明顯的 peak 跟著變大變明顯，綜合以上的低溫變頻縱深分佈圖及定頻變溫 CV 縱深分佈圖，我們發現這個小 peak 只出現在低溫(83K) 低頻(5KHz 以下) 的條件下。由 PL 圖我們已經知道這三片樣品仍然具有量子點的結構，所以這三片樣品載子堆積的 peak 應該為載子從量子能階放射出來所形成的 quantum peak，由圖 4-11(b) 我們推測這兩個 peak 是由 D.C bias 將載子從不同深度的量子能階趕出來所形成的，即第一個峰值是來自較淺量子能階的載子(Excited state)，而第二個峰值則是載子從較深的能階(Ground state) 被 D.C bias 出來趕出來的訊號。

知道了在低溫低頻量測到的不對稱縱深分佈圖，為 ground state 及 Excited state 兩個訊號的疊加，我們將圖 4-3(b) 做 Gaussian 擬合如圖 4-12，

<表 4-3>為擬合後的結果。

<表 4-3>

T=83K	InAs	InAsSb(1.8)	InAsSb(6)
E. s/G. s	0.6937	0.6911	1.2102
G. s FWHM(nm)	18.64	17.05	12.09
E. s FWHM(nm)	6.91	5.95	3.86
Peak separation(nm)	9.58	9.19	5

由上表得到的數據，我們可以發現 E. s/G. s 的濃度比值，隨著 Sb 含量增加比值從 0.6937 增加到 1.2102，顯示 Sb 含量最多的樣品 InAsSb(6) Excited state 侷限載子多於 Ground state，亦及 Ground state 容易被填滿進而填 Excited state，這個結果與光性分析的一致。隨著 Sb 含量增加 G. s. 半高寬從 18.64 減少到 12.09 E. s. 半高寬從 6.91 減少到 3.86，peak 看起來變的修長陡峭，表示 dots Size 變的更均勻。由縱深分佈圖擬合出的 Ground state 與 Excited state 峰值間距(Peak separation)，從 9.58nm 減小到 5nm。之所以 InAsSb(6) 在低溫低頻條件下可以明顯的量測出基態的變化，是因為量子點密度低與均勻度好，因此我們針對 InAsSb(6) 樣品，在低溫 83K、90K、100K、120K 作變頻的電容-電壓特性圖，以微量變頻量測，想找出 Ground state 濃度 peak 與頻率關係圖。圖 4-13 為低溫 83K 變頻縱深分佈特性圖，可以看到當量測頻率由 100KHz 下降至 4KHz，原本平滑的 peak 在濃度 $2 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ 以上的地方慢慢變窄，濃度 $2 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ 以下的地方慢慢變寬，顯示在高頻時載子從 ground state 跳出去的速度趕不上，所以 ground state 的 peak 幾乎量測不到，但當量測頻

率下降，載子從 ground state 跳出去的速度漸漸可以趕的上量測頻率，ground state 的 peak 就漸漸變大，所以可以觀察到隨頻率降低 ground state 濃度上升。圖 4-14、圖 4-15 及圖 4-16 分別為 90K、100K 及 120K 之變頻縱深分佈特性圖，均可看到隨頻率降低 ground state 濃度上升的現象，以圖 4-15 為例量測頻率為 800Hz 時可以明顯看到此時的 ground state 濃度是 $5.3 \times 10^{17}/\text{cm}^3$ 、700Hz 時是 $4.55 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ ，600Hz 時以達到 $2.68 \times 10^{19}/\text{cm}^3$ 。接下來我們將已上的 DATA 整理出 Ground state 濃度 peak 與頻率關係圖，由圖 4-17(a) 我們發現當量測頻率大於 1500Hz 溫度介於 83K~120K ground state 能度都差不多，4-17(b) 是擷取頻率 300Hz~1000Hz 的關係圖，4-17(c) 平均後的關係圖，我們發現 ground state 濃度隨頻率下降而升高，顯示載子從 ground state 跳出的速度慢，且在溫度 90k 時量測到的 ground state 濃度最大。



第五章 AFM 和 TEM 量測結果與分析

在前述章節 PL 量測結果與分析中我們發現了，在 InAs quantum dots 長晶過程中加入 Sb，由於 Sb 表面活化效應，使得 quantum dots 密度下降 Size 變小，為了更進一步探討這個現象，我們將三片樣品做表面型態分析，以原子力顯微鏡技術(AFM)來深入研究 Sb 效應對 InAs quantum dots 的影響。

再進行 AFM 及 TEM 量測時，我們先將 InAsSb(6)樣品做 SIMS 分析，分析結果顯示(如圖 5-1)發現 Sb 確實有參與進入 quantum dots 內，由橫軸為縱身分布縱軸為原素含量強度，發現在表面與深度 $0.3\mu\text{m}$ 附近 Sb 元素有比較多的現象，是因為這兩處是 InAsSb quantum dots 的結構區，這與我們的長晶結構是一致的，顯示 quantum dots 內確實有 Sb 元素反應。

在樣品制備方面，為了 AFM 量測的需要，我們在樣品表面以相同長晶條件成長與內部相同的 InAs(Sb)/InGaAs quantum dots，圖 5-2 為三片樣品之 AFM 平面圖與立體圖，我們以 $1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$ 的掃描尺寸(Scan size)、0.5Hz 的掃描速率(Scan rate)及 256 的解析度(number of samples)進行掃描，明顯看到 InAs 樣品的 quantum dots 密度約為 $3.5\times 10^9/\text{cm}^2$ ，InAsSb(1.8)為 $6\times 10^8/\text{cm}^2$ ，InAsSb(6)因為密度很低所以在我們掃描的範圍內沒有看到 quantum dots，我們推測密度在 $1\times 10^8/\text{cm}^2$ 以下(因為當 $1\mu\text{m}\times 1\mu\text{m}$ 面積內有一顆 quantum dot 密度就是 $1\times 10^8/\text{cm}^2$)，這個結果證明了 Sb 表面活化效應可以有效抑制 quantum dots 的形成；從樣品表面的平整度來看，InAs 樣品最不平整，其次是 InAsSb(1.8)，在來是 InAsSb(6)，證明了 Sb 表面活化效應延長 wetting layer 的成長，增加 2D 轉 3D 長晶模式的臨界厚度。〈表 5-1〉為三片樣品 Sb 含量與 AFM 測得 dots 密度比較表。

〈表 5-1〉

	InAs	InAsSb(1.8)	InAsSb(6)
Sb BEP(torr)	0	1.8×10^{-8}	6×10^{-8}
Dots density(/cm ²)	3.5×10^9	6×10^8	小於 1×10^8

接下來我們將對 AFM 圖做剖面分析 圖 5-3(a)(b)，分析結果顯示 InAs quantum dots 直徑約 55~60nm 高度約 3.5nm，InAsSb(1.8) quantum dots 直徑約 31~35nm 高度約 2.7nm，證明了 quantum dots Size 有變小顆，與 PL 量測結果一致；因為 InAsSb(6) 密度低要在小範圍內找 quantum dots 並不容易，於是我們試著以大範圍掃描來尋找 quantum dots，一方面可以進一步剖析 dots 直徑與高度，另一方面可更精準的估計出 dots 密度，圖 5-4 為同一位址不同掃描尺寸的 AFM 圖，隨著掃描尺寸加大我們發現量測結果呈現橢圓形的形貌，並且在 $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ 的掃描下發現有點狀物，圖 5-5 圖 5-6 在經過剖析後我們得到的結果是，這個點狀物不是 quantum dots，點狀物的寬為 175nm 長為 450nm 比一般的 quantum dots 大很多，而橢圓形的寬為 1328nm 長為 4531nm 高為 9.318nm，顯示這個橢圓形的物體實際的形狀類似一層薄薄的 quantum well 分布在表面上，我們推測來源是 InAsSb 成長在 GaAs 材料上時所產生的 Wetting layer。

為了能在 InAsSb(6) 樣品中找到 quantum dots，我們更進一步使用 TEM 分析深入研究，藉由 TEM Cross section View 技術尋找 quantum dots 並探討 Sb 對 InAs quantum dots 的影響，圖 5-7 為 InAsSb(6) 樣品之 TEM 剖面分析圖，雖然在 AFM 量測下因為 quantum dots 的濃度太低以致於我們無法明確的看到，但在 TEM 中我確實看到 quantum dots 的存在，這說明了 InAsSb(6) 的樣品還是存在著 quantum dots 的結構，這與 PL 量測下的推斷是吻合的(圖 3-1)，顯示 Sb 參入 InAs quantum dots 的長晶可以有效的抑制 quantum dots 的成長，延

長 2D 轉 3D 的臨界厚度。圖 5-7 從 RHEED(Reflection High Energy Electron Diffraction) patterns 來監視薄膜成長的好壞，確保薄膜成長的品質，在我們的長晶過程中 RHEED patterns 呈現點狀這代表結構是屬於 quantum dots，若 RHEED patterns 呈現條狀則代表結構是屬於 quantum well。所以我們知道 Sb 參入抑制 quantum dots 的形成，使得 quantum dots 密度下降，同時也增加的 quantum well 的成長。



第六章 結論

在光性的 PL 量測上，三片樣品均具有 quantum dots 的結構，在室溫 300K 及低溫 30K 下，隨著 Sb 含量增加波長平均藍移 28nm~45nm，顯示 quantum dots size 變小顆，這個現象在我們的 AFM 量測上也清楚的發現到，剖面分析得到直徑從 60nm 減少到 35nm，高度從 3.5nm 減少到 2.7nm，証明了 Sb 摻入增加了 2D 轉 3D 長晶模式的臨界厚度，使 quantum dots 在初步成長階段，故 size 比較小顆，這個現象亦導致 Sb 含量多的樣品基態和第一激發態離砷化鎵導帶較近，使得溫度升高載子侷限力較差。在變溫 PL 量測我們發現，隨著 Sb 含量增加第一激發態/基態(E./G.)強度的比值增加的現象，室溫時從 1.06 增加到 7.057 低溫(25K)從 1.532 增加到 28.88，顯示出基態容易被填滿進而填第一激發態，証明了 quantum dots 密度下降，在 AFM 的量測下我們也看到相同的現象，密度從 $3.5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 下降到小於 $1 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ，減小的幅度達到二個數量級，証明了 Sb 表面活化效應可以有效延長 wetting layer 的成長，增加 2D 轉 3D 長晶模式的臨界厚度，抑制量子點的形成。Sb 常被應用在 InGaAs 及 InGaAsN 量子井中，使 quantum well 長的較厚較平整，在我們的 AFM 的量測也發現相同的現象，隨著 Sb 含量增加樣品的表面變的比較平整，推斷這個現象對 quantum dots 的均勻度是有幫助的，在電性量測之縱深分佈圖上，我們擬合出基態與第一激發態的半高寬，結果顯示隨著 Sb 含量增加基態與第一激發態的半高寬都變小，証明了 quantum dots size 變的均勻。

在電性量測我們發現，在低溫低頻的條件下電性量測之縱深分佈圖，有兩個峰值出現，這兩個峰值的來源是 quantum dots 的基態與第一激發態，在低溫低頻條件下所量測到的濃度鋒值是基態，隨著頻率越低濃度鋒值有明顯增加的趨勢，其中第一激發態因為離砷化鎵導帶較近，載子直接從能階穿遂出去，而這一個穿遂的過程太快(在溫度 83K 時間常數小於 10^6 秒)，導致我們量測不到載子對頻率的響應，而基態離砷化鎵導帶較遠載子從能階穿遂出去的速度

度較慢，所以在低頻下載子的速度漸漸趕的上量測頻率，所以基態濃度鋒值隨頻率下降而明顯增加。我們推斷可以在 Sb 含量最多的的樣品量測到基態的濃度鋒值，是因為 quantum dots 密度低的緣故，這個結果與光性分析及 AFM 量測所得到的是一致的。

綜合以上的分析我們得到，成長 InAs/InGaAS quantum dots 時隨著 Sb 摻雜量增加，quantum dots size 變小顆、均勻度變好、表面平整度變好及濃度下降約二個數量級。



参考文献

- [1] F.C.Frank, and J.H.van der Merwe,Proc.Roy.Soc..London A 198,205 (1949).
- [2] M.Volmer, and A. Weber,Z.Phys.Chem. 119,277 (1926).
- [3] I.N.Stranski, and Von L.Krastanow,Akad.Wiss.Lit.Mainz Math.Natur.K1.Iib 146,797 (1939).
- [4] L.Goldstein,F.Glas,J.Y.Marzin,M.N.Charasse, and G.Le Roux, “Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices” ,Appl. Phys. Lett. 47,1099 (1985).
- [5] A. Stintz, and G.T.Liu , “Low-Threshold Current Density 1.3 μ m InAs Quantum-Dot Lasers with tht Dots-in-a-Well(DWELL) Structure” , IEEE Photon Technol. Lett. 12,591 (2000).
- [6] Y. Arakawa and H. Sakaki, “Multidimensional quantum well lasers and temperature dependence of its threshold current” ,Appl. Phys.Lett. 40, 939 (1982).
- [7] M. Sugawara, “Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots.”, Academic Press, 241-249 (1999).
- [8] D.L.Huffaker,G.Park,Z.Zou,O.B.Shchekin and D.Deppe, “1.3 μ m room-temperature GaAs-based quantum-dot laser” ,Appl. Phys. Lett. 73,2564 (1998)..
- [9] G.Park,D.L.Huffaker,Z.Zou,O.B.Shchekin and D.Deppe, “Temperature Dependence of Lasing Characteristics for Long-Wavelength(1.3 μ m) GaAs-Based Quantum-Dot Lasers” ,IEEE Photon Technol. Lett. 11,301 (1999).
- [10] Rudin AM, Guo LJ, Glazman LI et al., Appl. Phys. Lett. 73,3429 (1998).
- [11] Xu SJ, Chua SJ,Mei T et al.,Appl. Phys. Lett. 73,3153 (1998).
- [12] A. Stinitz, G. T. Liu, H. Li, L. F. Lester and K. J. Malloy, “Low-Threshold Current Density 1.3- μ m InAs Quantum-Dot Lasers with the Dots-in-a-Well(DWELL) Structure” IEEE Photonics Technology Letters 12 (6) (2000).
- [13] Kenichi Nishi, Hideaki Saito, Shigeo Sugou, and Jeong-Sik Lee, “A narrow

photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μ m from strain-reduced InAs quantum dots covered by In_{0.2}Ga_{0.8}As grown on GaAs substrates” ,Appl. Phys. Lett. 74, 1111 (1999).

- [14] H. Y. Liu, M. Hopkinson, C. N. Harrison, M. J. Steer, and R. Frith, “Optimizing the growth of 1.3 μ m InAs/InGaAs dots-in-a-well structure” , Appl. Phys. Lett. 93, 2931 (2003).
- [15] K. Mukai, Y. Nakata, K. Otsubo, M. Sugawara, N. Yokoyama, and H. Ishikawa, “High characteristic temperature of near-1.3- μ m InGaAs/GaAs quantum-dot lasers at room temperature” , Appl. Phys. Lett. 76, 3349 (2000).
- [16] F. Y. Chang, C. C. Wu, and H. H. Lin, “Effect of InGaAs capping layer on the properties of InAs/InGaAs quantum dots and laser” , Appl. Phys. Lett. 82, 4477 (2003).
- [17] J. C. Harmand, L. H. Li, G. Patriarche, and L. Travers, “GaInAs/GaAs quantum-well growth assisted by Sb surfactant: Toward 1.3 μ m emission” , Appl. Phys. Lett. 84, 3981 (2004).
- [18] T. Kageyama, T. Miyamoto, M. Ohta, T. Matsuura, Y. Matsui, T. Furuhashi, and F. Koyama, “Sb surfactant effect on GaInAs/GaAs highly strained quantum well lasers emitting at 1200nm range grown by molecular beam epitaxy” , J. Appl. Phys. 96, 44 (2004)
- [19] X. Yang, J. B. Heroux, L. F. Mei and W. I. Wang, “InGaAsNSb/GaAs quantum wells for 1.55 μ m lasers grown by molecular-beam epitaxy” , Appl. Phys. Lett. 78, 4068 (2001).
- [20] H. D. Sun, S. Calvez, and M. D. Dawson, “Role of Sb in the growth and optical properties of 1.55 μ m GaInN(Sb)As/GaNAs quantum-well structures by molecular-beam epitaxy” , Appl. Phys. Lett. 87, 181908 (2005).
- [21] H. Shimizu, K. Kumada, S. Uchiyama and A. Kasukawa, “High performance CW 1.20 μ m GaInAsSb-SQW ridge lasers” , Electron. Lett. 36, 1701 (2000).
- [22] X. Yang, M. J. Jurkovic, J. B. Heroux and W. I. Wang, “Molecular beam epitaxial growth of InGaAsN:Sb/GaAs quantum wells for long-wavelength semiconductor lasers” , Appl. Phys. Lett. 75, 178 (1999).
- [23] Tetsuya MATSUURA, Tomoyuki MIYAMOTO, Takeo KAGEYAMA,

Masataka OHTA, Yasutaka MATSUI, Tatsuya FURUHATA and Fumio KOYAMA, “Surfactant Effect of Sb on GaInAs Quantum Dots Grown by Molecular Beam Epitaxy”, Japanese Journal of Applied Physics Vol. 43, No. 5A, 2004, pp. L 605–L 607

- [24] Yi-An Chang, Hao-Chung Kuo, a_ Ya-Hsien Chang, and Shing-Chung Wang “Improved photoluminescence of 1.26 μ m InGaAs/GaAs quantum wells assisted by Sb surfactant and indium-graded intermediate layers”, APPLIED PHYSICS LETTERS 87, 061908 (2005)
- [25] 黃任鋒, 交通大學電子物理研究所碩士論文, “InAs/GaAs 自聚式量子點摻入銻與氮之特性研究” (2005).
- [26] 陳宜屏, 交通大學電子物理研究所碩士論文, “氮含量與砷化銦厚度對砷化銦/砷化鎵量子點光性影響” (2003).
- [27] Andrew P. Ongstad , Gregory C. Dente , Michael L. Tilton and Donald Gianardi , and George Tumer, “Linewidth analysis of the photoluminescence from InAs/GaSb/InAs/AlSb type-II superlattices”, J. Appl. Phys. 87, 7896 (2000).
- [28] Y. Kribes, I. Harrison, B. Tuck, T.S. Cheng and C T Foxon, “Investigation of Au Schottky contacts on GaN grown by molecular beam epitaxy”, Semicond. Sci. Technol. 12, 913 (1997).
- [29] L. S. Yu, Q. Z. Liu, Q. J. Xing, D. J. Qiao, S. S. Lau and J. Redwing, “The role of the tunneling component in the current-voltage characteristics of metal-GaN Schottky diodes”, J. Appl. Phys. 84, 2099 (1998).
- [30] Donald A. Neamen, “SEMICONDUCTOR PHYSICS AND DEVICES Basic Principles”.