



# 行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

有機金屬氣相磊晶法成長砷化銦鎵與砷化銦量子點特性研究

## Preparation of NSC Project Reports

計畫編號：NSC90-2112-M-009-041

執行期限：90年8月1日至91年7月31日

主持人：李威儀 國立交通大學電子物理學系

計畫參與人員：李奇霖 國立交通大學電子物理學系

趙偉清 國立交通大學電子物理學系

黃坤洪 國立交通大學電子物理學系

李光立 國立交通大學電子物理學系

葉孟欣 國立交通大學電子物理學系

### 一、中文摘要

中文摘要：

在此實驗中，使用有機金屬氣相磊晶系統研究磊晶參數對 InGaAs 量子點光學性質與表面特性的影響，量子點的波長會隨著成長厚度、溫度、量子點成長後關掉 AsH<sub>3</sub> 時間的增加而增加，而與量子點 V/III、成長基板的傾斜角度成反比。量子點經熱退火處理會使得波長變短。利用 Strain-reducing Layer 與 MQDs 的結構可使得量子點波長拉長，尤其是 MQDs 可將波長拉長至 1238.3 nm。

關鍵詞：

砷化銦鎵、量子點、有機金屬氣相磊晶法、熱退火

### Abstract

In our experiment, the parameters involved in MOCVD system are utilized to research the influences of optical properties and surface morphology of InGaAs quantum dots. The wavelengths of quantum dots increase by increasing the thickness, growth temperature, and growth interruption time. Otherwise, the wavelengths of InGaAs

**Keyword** : InGaAs Quantum dot MQDs MOCVD anneal

### 二、緣由與目的

#### I. 緣由與目的

二十世紀以來，由於量子理論的發表，人類的世界就進入了原子的世界。也由於磊晶技術的進步，量子結構，如量子阱(quantum well, QW)、量子線(quantum wire)、量子點(quantum

dot, QD)也一一實現。

本計畫是研究 InGaAs 量子點,致力於量子點成長參數最佳化的研究及其光學性質。我們使用有機金屬氣相磊晶法,在 GaAs 基板上成長自聚式  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  量子點。改變量子點的成長參數,諸如磊晶的厚度[1]、成長的溫度[2]、V/III 比[3]、量子點成長後關掉  $\text{AsH}_3$  氣體的時間[4]、和成長在不同偏角度基板的影響[5-6],利用原子力顯微鏡來觀察量子點尺寸的大小與分佈的情形,光學技術中,則利用 PL 來量測量子點,由發光頻譜的峰值及半高寬的寬窄來研究其發光特性。最後,利用在量子點上覆蓋 InGaAs 披覆層[7]與成長多層量子點[3]的方法來拉長 PL 訊號的波長。

## 了 結果與討論

### 1.量子點厚度的影響

我們成長了四片不同 InGaAs 量子點厚度的結構,厚度分別是(a) 1.76ML、(b)2.11ML、(c)2.46ML、(d)2.81ML,樣品(a)、(b)、(c)、(d)成長的溫度皆為  $500^\circ\text{C}$ ,  $t_{\text{GRI}}$  為 30sec。圖 1 至圖 4 是沒有蓋披覆層(cap layer)的量子點樣品 AFM 觀測結果。所以我們歸納,磊晶到一定厚度時會產生量子

點,本實驗約 1.76ML~2.11ML 時形成,會隨著厚度的增加,因為相鄰量子點間有位能差而不易相互併合,故繼續形成量子點而使得密度增加,當超過所能承受的厚度(2.81ML)則產生缺陷。

圖 5 為這四片樣品在常溫下的 PL 量測頻譜圖。InGaAs 磊晶層由薄到厚的樣品所對應發光波長分別為 907、1079.5、1090.2、1164.6 nm,半高寬分別是 24、84.5、84.5、126.7nm。由圖中可看出,1.76ML 樣品還未成長到形成量子點的厚度,故可知量子點二維轉三維成長的臨界厚度約在 1.76ML 與 2.11 ML 之間,與 AFM 結果相對應。隨著厚度的增加,PL 訊號的波長也隨著增加。厚度由 2.11ML 成長至 2.46ML,發現其波長長度相差不大,但訊號強度則增強數倍,因為這期間量子點的尺寸改變不多,而是以形成高密度量子點為主。厚度 2.46ML 增加至 2.81ML,PL 的訊號變弱,波長拉長了約 70nm,而且半高寬亦變寬,與 AFM 對照可知隨著厚度的增加,相鄰量子點併合(coalescence)成大顆的島狀物使得波長拉長,但也產生缺陷影響 PL 訊號強度,而且在樣品中量子點的大小有很大的差距,不同尺寸量子點的量子能階並不一樣,所以總合效應造成光放射呈現

出比較寬的譜圖。當量子點厚度為 2.46ML 時，有較強的 PL 訊號，為最佳的量子點厚度。

## 2. 長晶溫度 $T_g$ 的影響

InGaAs 量子點可能的長晶溫度範圍大約在  $400^{\circ}\text{C}$ ~ $550^{\circ}\text{C}$  之間。我們成長三片樣品，其三片樣品的條件為厚度 2.46ML、 $t_{\text{GRI}}$  為 30sec、溫度分別為(a) $470^{\circ}\text{C}$ 、(b) $500^{\circ}\text{C}$ 、(c) $530^{\circ}\text{C}$ 。圖 6 至圖 8 是這三片樣品沒有蓋披覆層的 AFM 觀測結果。我們由圖中看到  $470^{\circ}\text{C}$  的樣品在大顆島狀物週圍分佈著小顆的島狀物，這可能是因為在較低的溫度下，生成缺陷的厚度低於生成量子點的厚度，也就是說成長過程中缺陷較量子點先產生，而缺陷會產生應變的鬆弛使得表面有不均勻的應變力梯度而有大的島狀物生成，大的島狀物旁有較高的應變力密度，所以在其周圍也較易促成集結粒子而分佈著小島狀物。當量子點成長溫度為  $500^{\circ}\text{C}$  時，量子點先形成，在不超過缺陷產生的臨界厚度前產生高密度的量子點。成長溫度再升高為  $530^{\circ}\text{C}$  時，我們發現量子點的密度降低，但是二樣品量子點基部的直徑約相等， $530^{\circ}\text{C}$  的高度較高，可能是因

為較高溫度使粒子擴散長度(diffusion length)增加而粒子聚集成高量子點，使得密度下降。

圖 9 為厚度 2.46ML，成長溫度分別為(a) $470^{\circ}\text{C}$ 、(b) $500^{\circ}\text{C}$ 、(c) $530^{\circ}\text{C}$ ，在常溫下的 PL 量測頻譜圖。(a)、(b)、(c)樣品所對應的放射波長分別為 1100、1090.2、1107.4nm，半高寬為 44、86.6、114.5nm。由放射波長來看，量子點對成長溫度的改變並不敏感，但  $470^{\circ}\text{C}$  樣品密度極低且產生缺陷則造成 PL 的訊號微弱。樣品  $500^{\circ}\text{C}$  雖然密度較  $530^{\circ}\text{C}$  為高，但從 AFM 立體圖上可看到樣品  $500^{\circ}\text{C}$  的量子點其實並不獨立，而會與相鄰量子點於基部互相連結，這可能產生非發光態的缺陷，促使 PL 強度不若樣品  $530^{\circ}\text{C}$  的強，但樣品  $530^{\circ}\text{C}$  因為溫度較高，使得粒子的游走距離長而有大的量子點產生，降低量子點高度的均勻性有較寬的半高寬。

## 3. V/III 比的影響

我們我們成長了三片不同 V/III 比的樣品(a) V/III 比為 18、(b) V/III 比為 36、(c) V/III 比為 108，三片的 InGaAs 磊晶厚度為 2.46ML、 $t_{\text{GRI}}$  為 30sec、溫度為  $500^{\circ}\text{C}$ 。圖 10 至圖 12

為利用 AFM 觀測這三個樣品的表面圖。由圖中可看出 V/III 比為 18 的樣品有很明顯的缺陷，這可能是因為五族 AsH<sub>3</sub> 的含量太少，以致於造成 In 聚集成大顆的粒子。V/III 為 36 時，量子點的形成良好，有高的密度，且沒有樣品(a)的缺陷。V/III 比再增加為 108，量子點的成長情形較樣品(b)獨立，即量子點與量子點間區隔較明顯，但是有些大顆島狀物形成造成磊晶層上有缺陷。

圖 13 為這三片樣品在常溫下的 PL 量測頻譜圖。V/III 比由低到高所對應的放射波長為 1120.3、1090.2、1080.0nm，半高寬分別是 98.8、86.8、70.7nm。由圖中可以很明顯地看到當 V/III 拉高則 PL 半高寬愈窄，這顯示量子點的有效密度較大且均勻性高。PL 積分強度隨著 V/III 增加而增強，至 V/III 等於 72 時為最強，V/III 再增高為 108 時，則強度下降，可能是 AsH<sub>3</sub> 含量太多而破壞結晶。V/III 為 18 的量子點 PL 波長雖然是三樣品中最長，但可能因為五族元素 AsH<sub>3</sub> 含量太少而產生缺陷使得 PL 訊號強度較弱，故總的來說以 V/III 為 36 的量子點最佳。

#### 4. 熱退火

我們將所成長的量子點拿來做熱退火(annealing)的實驗，熱退火的時間皆為 60sec，溫度為 800°C。

我們做了五個不同條件的樣品，分別為(a)厚度 2.11ML，成長溫度 500°C， $t_{\text{GRI}}$  為 30sec，V/III 比為 36、(b)厚度 2.11ML，成長溫度 500°C， $t_{\text{GRI}}$  為 60sec，V/III 比為 36、(c)厚度 2.46ML，成長溫度 500°C， $t_{\text{GRI}}$  為 30sec，V/III 比為 72、(d)厚度 2.46ML，成長溫度 530°C， $t_{\text{GRI}}$  為 30sec，V/III 比為 36、(e)厚度 2.81ML，成長溫度 500°C， $t_{\text{GRI}}$  為 30sec，V/III 比為 36。圖 14 至圖 18 依序為五個樣品，沒有熱退火與 800°C 熱退火在室溫的 PL 圖。我們發現到樣品(a)、(b)中的 Wetting layer 訊號都變強，符合量子阱受熱退火的影響。但是五個樣品的量子點訊號在經過 800°C 熱退火 60sec 後，其 PL 峰值皆比未經熱退火的樣品波長為短，而半高寬則變窄，

我們還對以上的五個樣品做溫度 900°C、975°C、1050°C，時間皆為 60sec 的熱退火，由實驗得出，量子點並不適合 800°C 以上的熱退火。

#### 5. 利用量子點成長長波長結構

我們利用二種不同方法來成長長波長的量子點。第一種是在成長完量子點後，於其上覆蓋  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  披覆層(稱爲 stain-reducing layer, SRL)來拉長量子點波長。圖 19 爲 SRL 如何造成較大顆的量子點的示意圖。我們成長厚度爲 2.11ML，溫度爲  $500^{\circ}\text{C}$ ， $t_{\text{GRI}}$  爲 30sec，在量子點上面覆蓋厚度爲 7.1nm 的  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  磊晶層，圖 20 是有蓋 SRL 與沒有蓋 SRL 層的 PL 圖。由圖中，我們發現到有蓋 SRL 的量子點較沒有蓋的波長長了約 40nm。我們之後又成長一些蓋不同厚度 SRL 的樣品，但是結果大都如圖 21 一樣，量子點的波長訊號並不受  $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$  磊晶層所影響，這可能是因爲利用有機金屬氣相磊晶法所生長的量子點，其尺寸的大小差距很大，而且各量子點間的成分也很難控制，所以不易顯現覆蓋 SRL 層的效果。

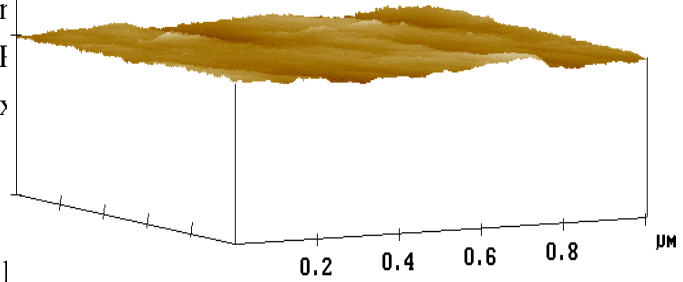
第二種方法就是成長多層量子點(MQD)，在每層量子點層間間隔夠薄的 GaAs 磊晶層，圖 22 是我們成長多層量子點的結構，我們成長了量子點的磊晶層數爲(a)一層、(b)二層、(c)六層的樣品，量子點的成長厚度爲 2.46ML、溫度  $530^{\circ}\text{C}$ 、V/III 比爲 72，量子點層間皆相隔 2nm 的 GaAs 磊晶層。圖 23 至圖 24 爲樣品(a)與(b)使用

AFM 觀測到的量子點平面圖與立體圖，其中我們發現到一個很有趣的現象，在一層量子點層的表面上，量子點似乎是隨機的分佈，但是成長二層量子點的第二層則有沿著基板偏角方向成長的趨勢。第二層量子點密度較第一層爲低，雖然大部分的量子點尺寸相似，但表面有較多高的量子點與大顆的島狀物。圖 25 爲這三片樣品的室溫 PL 圖，樣品(a)、(b)、(c)的量子點所對應的放射波長爲 1149.5、1176.8、1238.3nm，半高寬分別是 120.2、121.8、103.0nm。當量子點層數愈高則波長愈長，可推測是由於上下量子點的耦合成大量子點，或是上層受到應力而形成較高量子點的原因使得多層量子點較單層量子點的波長爲長。

#### 四、參考文獻

1. N.T.Yze, T.E.Nee, P.W.Shiao, M.N. Chang, J.I.Chyi, and C.T.Lee, "Photoluminescence Characteristics of Self-Assembled  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  Quantum Dots on Vicinal GaAs Substrates," J.Appl.Phys, vol.38, pp. 550-553, 1999.
2. G.B.Stringfellow, "Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice".(1989).

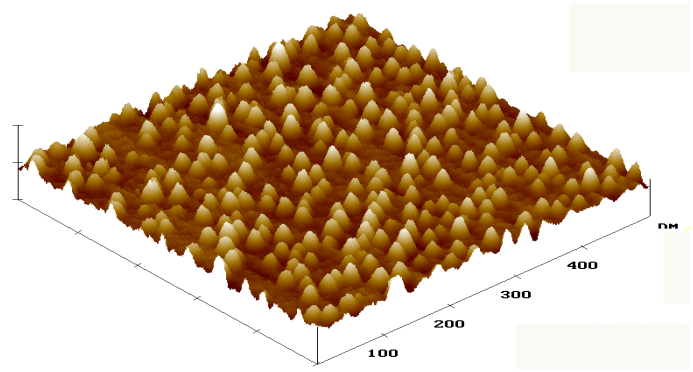
3. H.Hirayama,K.Matsunaga,M.Asaca,and Y.Suematsu,"Lasing action of GaInAs/GaInAsP/In tensile-strained quantum box lasers,"Electron.Lett,vol.30,pp.142-143.1994.



4. T.Marschner,L.Tapfer,N.Y.Jin-Philipp,F.Phillipp,S.Lutgen,M.Vold,W.Stolz,and E.O.Gogel,"Strain induced self organized grown of lateral periodic strained layer superlattices on off-oriented substrates by metalorganic vapour phase epitaxy,"Solid-State Electron,vol.40,pp.819,1996.

嘗 1 播厚(a)剝宥 1.75ML 軼乞韓狀 AFM 由蠱嘗

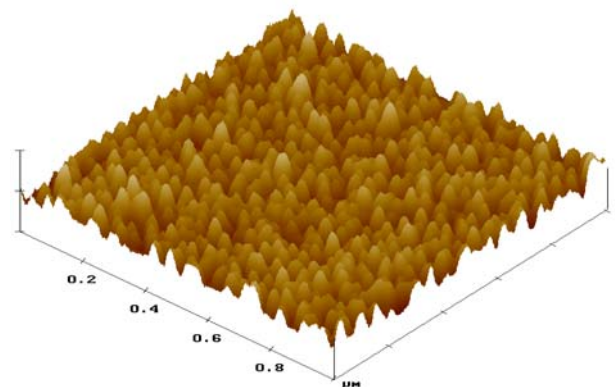
5. F.Heinrichsdroff,M.H.Mao,N.Kirstaedter,A.Krost,D.Bimberg,A.O.Kosogov and P.Werner,"Room-temperature continuous -wave lasing from stacked InAs/GaAs quantum dots grown by chemical vapor deposition,"Appl.Phys.Lett,vol.71, pp.22- 24,1997.



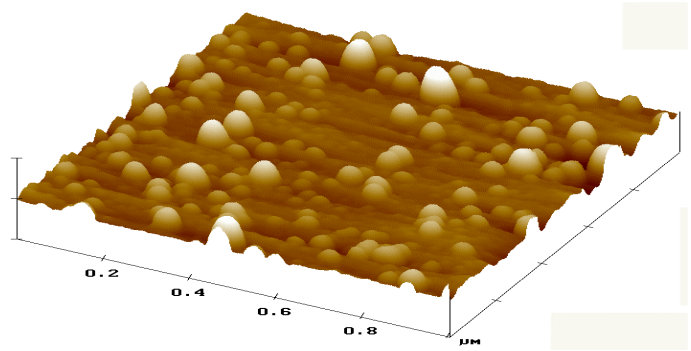
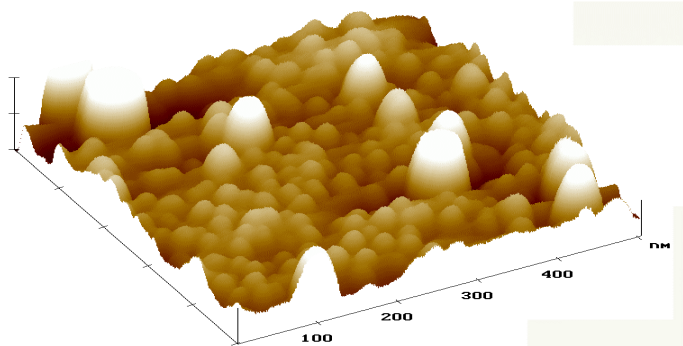
嘗 2 播厚(b)2.11ML 狀由蠱嘗

6. M.Sugawara,"Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots."1999

7. F.C.Frand,and J.H.van der Merwe,Proc.Roy.Soc.London A, vol.198,pp.205,1949.

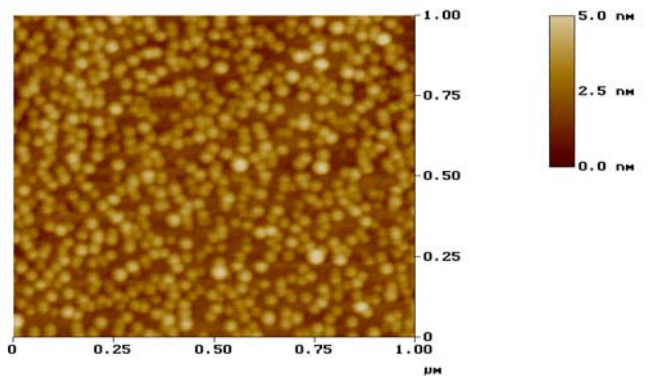
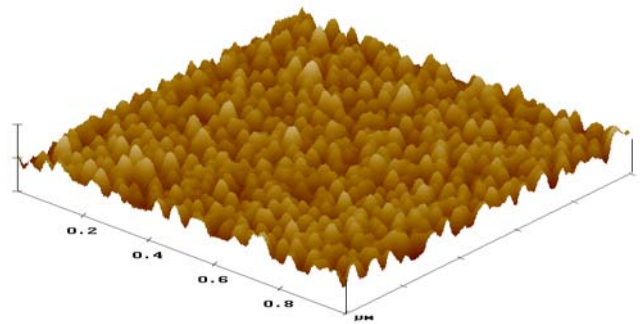
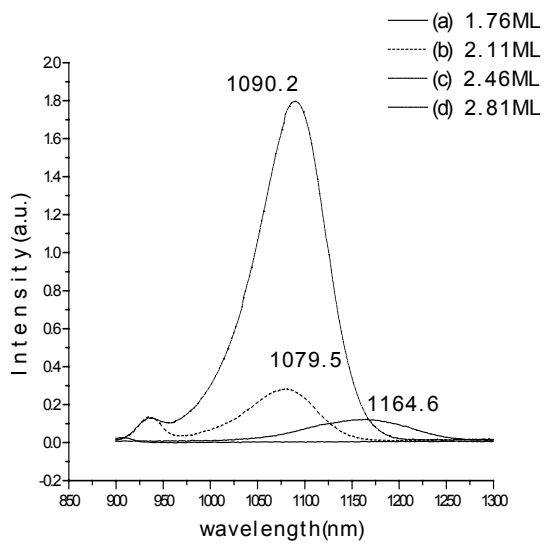


嘗 3 播厚(c)剝宥 2.46ML 軼乞韓狀 AFM 由蠱嘗



嘗 6 播厚(a)軼乞韓寺虎毬宥 470 狀 AFM 由蠱嘗

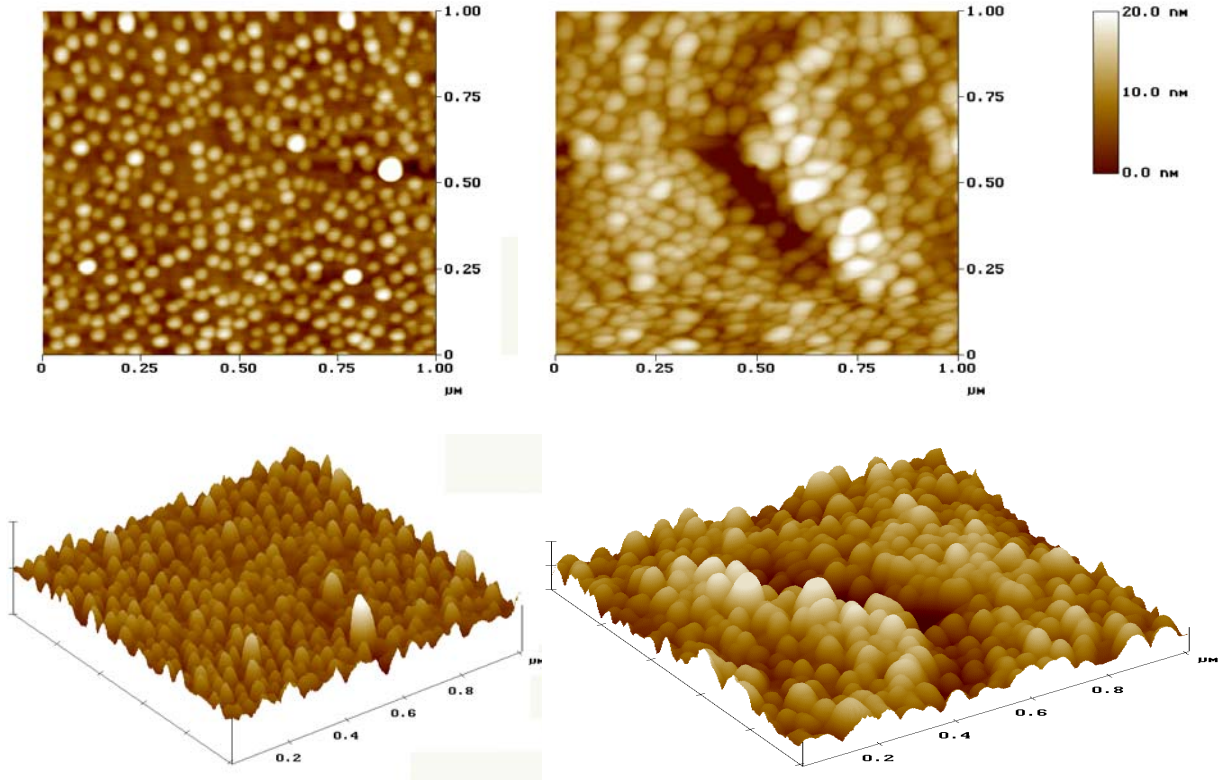
嘗 4 播厚(d)剝宥 2.81ML 軼乞韓狀 AFM 由蠱嘗



嘗 5 山冰軼乞韓剝宥狀 PL 嘗

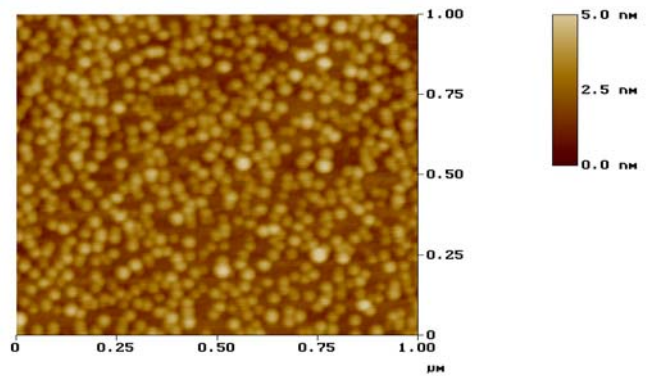
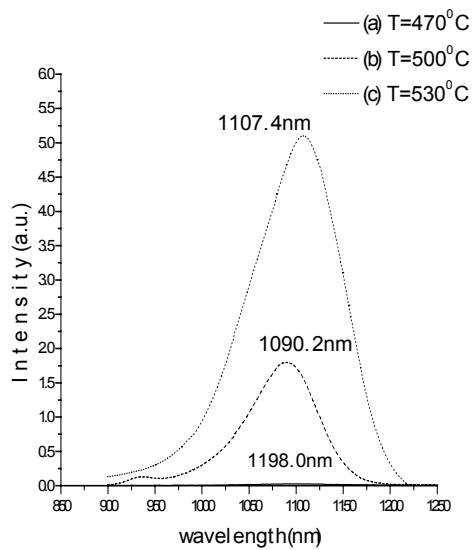
嘗 7 播厚(b)軼乞韓寺虎毬宥 500<sup>0</sup>C 狀 AFM 囚迺嘗翡由蠱嘗



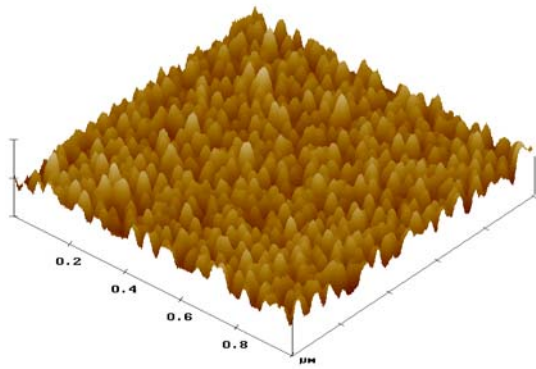


嘗 8 播厚(c)軼乞韓寺虎毬宥 530<sup>0</sup>C  
狀 AFM 囚迤嘗翡由疊嘗

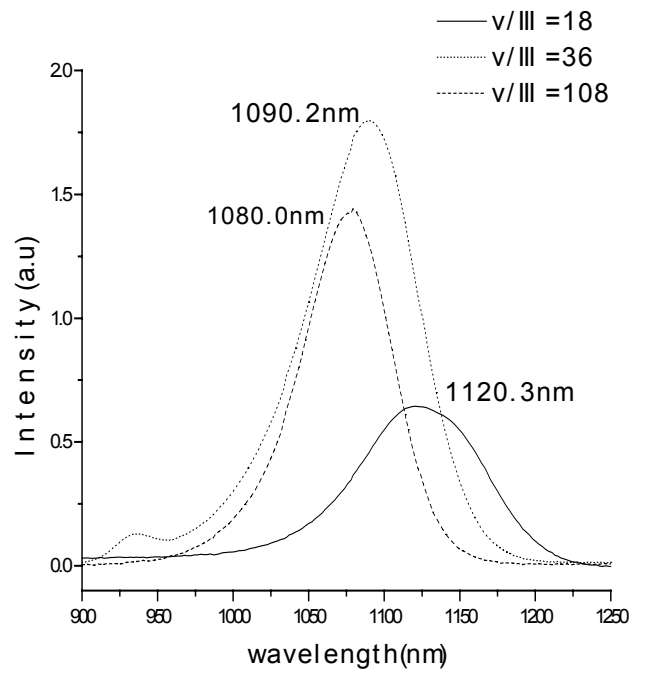
嘗 10 播厚(a)軼乞韓 V/III 扎冷 18  
狀 AFM 囚迤嘗翡由疊嘗



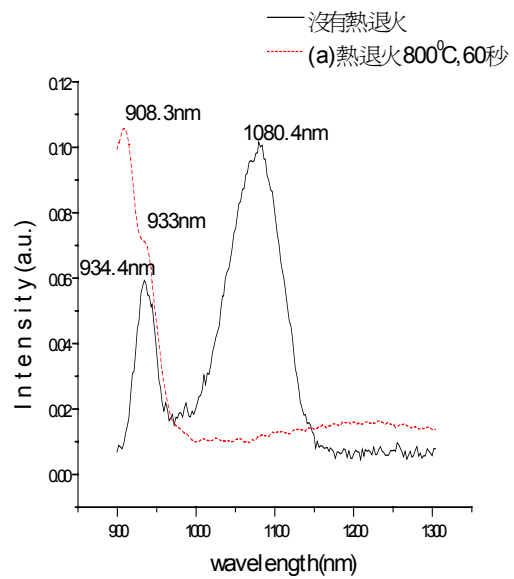
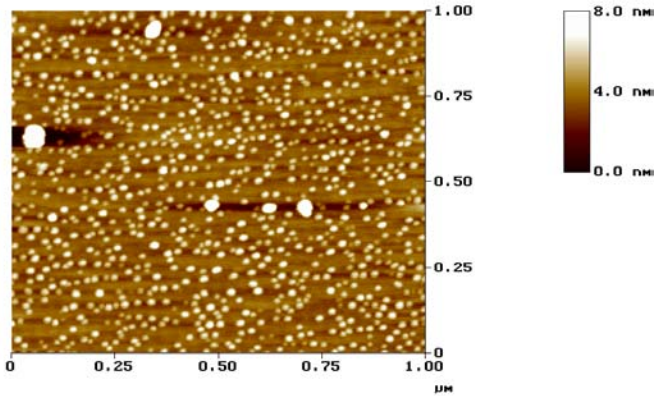
嘗 9 剝宥 2.46ML 軼乞韓山冰寺虎  
毬宥狀 PL 首



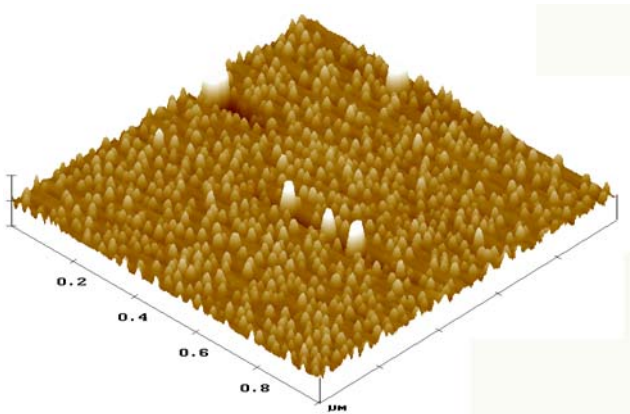
嘗 11 播厚(b)軼乞韓 V/III 扎洽 36 狀 AFM 囚迤嘗翳由盡嘗



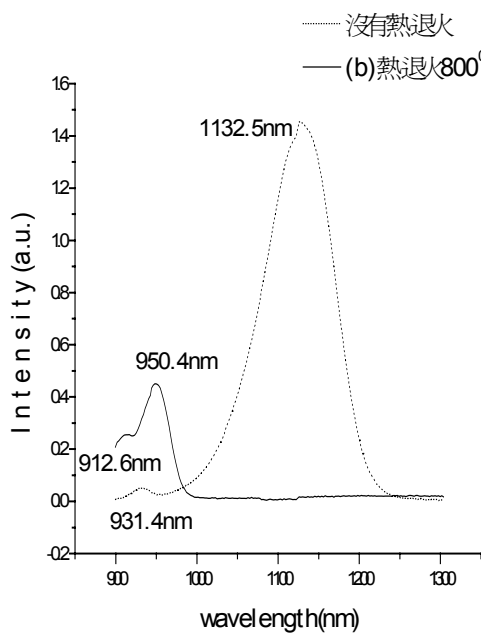
嘗 13 山冰軼乞韓 V/III 扎狀 PL 嘗



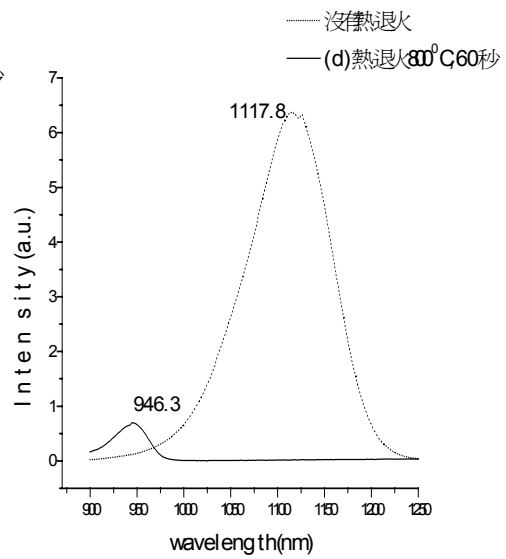
嘗 14 剝宥 2.11ML  $t_{GRI}=30$  軼乞韓 汞戎潛豈斤翳戎稠 60 盼  $800^{\circ}\text{C}$  潛豈 斤播厚(a)狀 PL 嘗



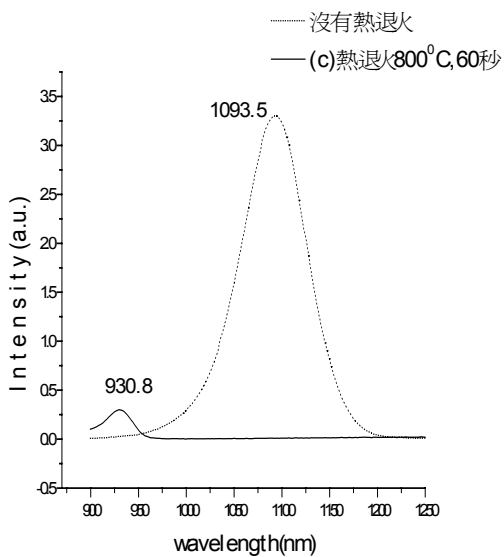
嘗 12 播厚(c)軼乞韓 V/III 洽 108 狀 AFM 囚迤嘗翳由盡嘗



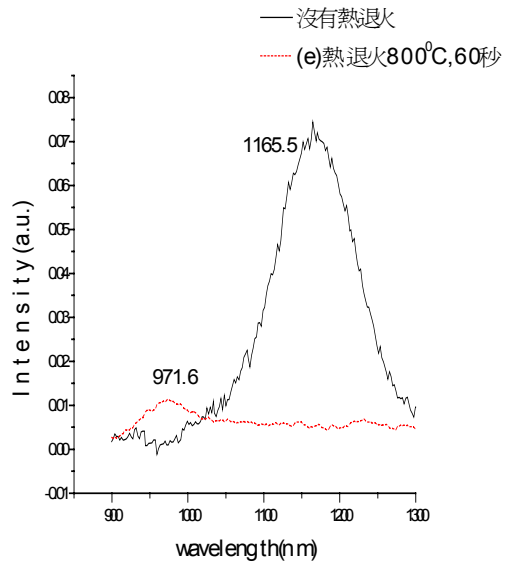
嘗 15 剝宥 2.11ML  $t_{GRI}=60$  狀軼乞  
 韓 汞戎潛豈斤翡戎稠 60 盼  $800^{\circ}\text{C}$   
 潛豈斤播厚(b)狀 PL 嘗



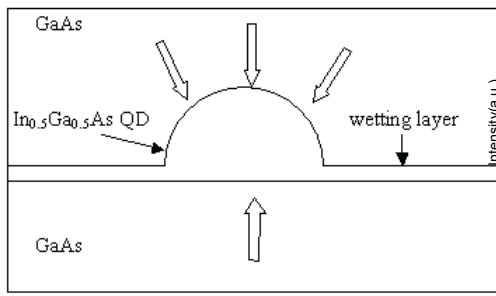
嘗 17 剝宥 2.46 寺虎毬宥  $530^{\circ}\text{C}$  軼  
 乞韓 汞戎潛豈斤翡稠 60 盼  $800^{\circ}\text{C}$   
 潛豈斤播厚(d)狀 PL 嘗



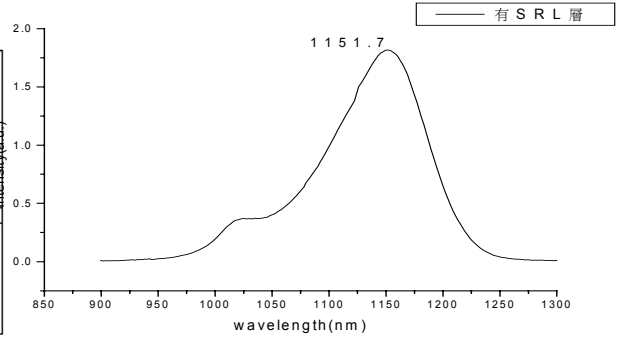
嘗 16 剝宥 2.46 寺虎毬宥  $500^{\circ}\text{C}$  軼  
 乞韓 汞戎潛豈斤翡稠 60 盼  $800^{\circ}\text{C}$   
 潛豈斤播厚(c)狀 PL 嘗



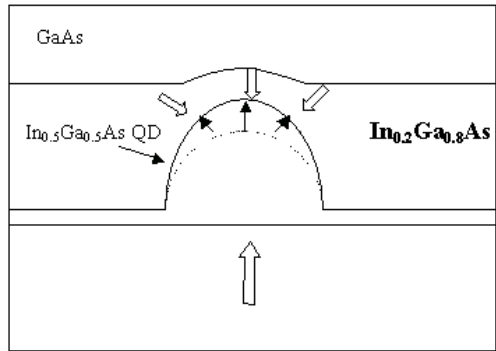
嘗 18 剝宥 2.81 寺虎毬宥  $500^{\circ}\text{C}$  軼  
 乞韓 汞戎潛豈斤翡稠 60 盼  $800^{\circ}\text{C}$   
 潛豈斤播厚(e)狀 PL 嘗



(a)



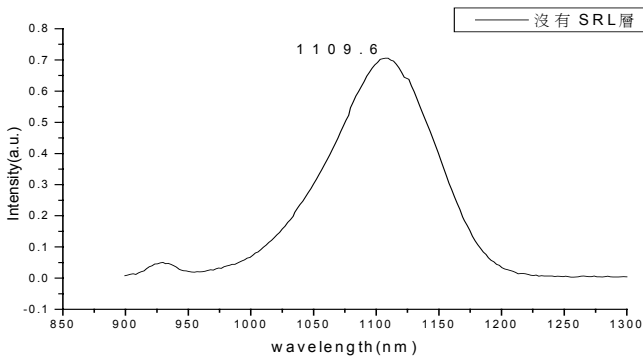
(b)



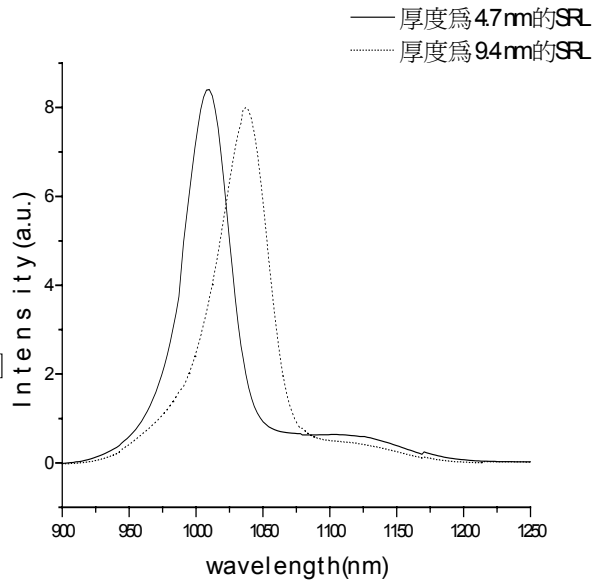
(b)

嘗 20 (a) 承戎臧 SRL 呵 (b) 戎臧 SRL 墮狀 PL 嘗

嘗 19 SRL 用媳嘗 (a) 幼仗 SRL (b) 仗 儿 SRL 阪帶壩乙毯午

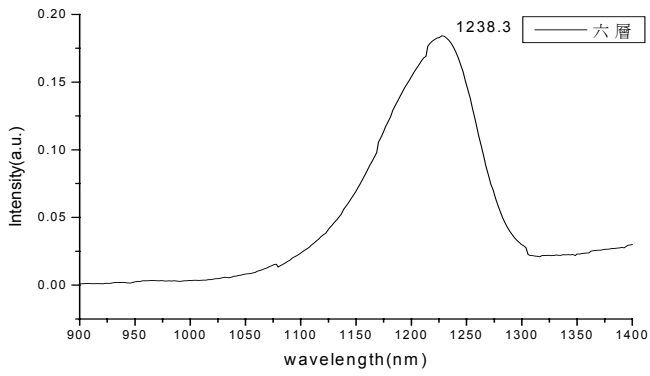
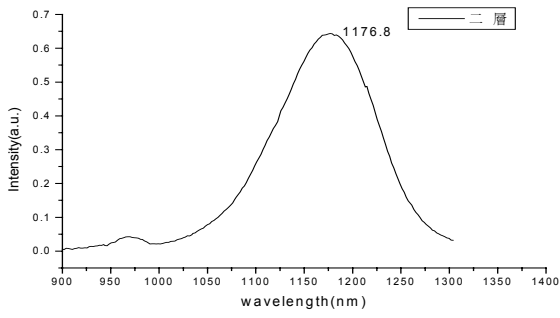
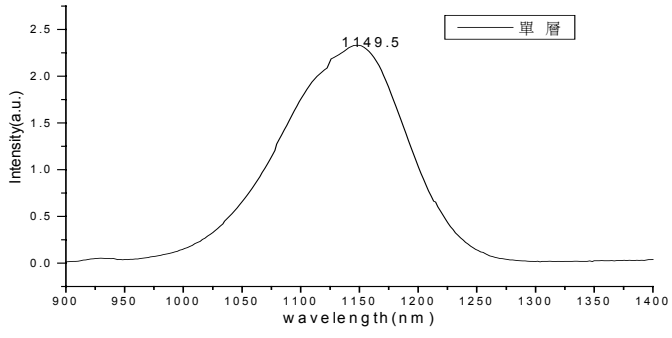


(a)



嘗 21 臧山冰剝宥 SRL 軼乞韓狀 PL 嘗





嘗 25 山冰軼乞韓墮狀 PL 嘗