

國立交通大學

電子物理學系

碩士論文

應力鬆弛引發之缺陷效應下的

InAs/InGaAs 量子躍遷機制

**Electron emission of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots
containing a misfit defect state**

研究生：徐榕鎂

指導教授：陳振芳 博士

中華民國九十七年七月

應力鬆弛引發之缺陷效應下的 InAs/InGaAs 量子躍遷機制

Electron emission of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots

containing a misfit defect state

研究生：徐榕鎂

Student : Rong-Mei Hsu

指導教授：陳振芳 博士

Advisor : Dr. Jenn-Fang Chen

國立交通大學



A Thesis

Submitted to the Institute of Electrophysics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master of Science

in

Electrophysics

July 2008

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十七年七月

應力鬆弛引發之缺陷效應下的 InAs/InGaAs 量子躍遷機制

研究生：徐榕鎂

指導教授：陳振芳 博士

國立交通大學電子物理研究所

摘 要

本論文主要是藉由光性及電性的量測，包括光激發螢光頻譜(PL)、電容電壓(C-V)、導納頻譜(C-F&G-F)、深層能階暫態頻譜儀(DLTS)及暫態電容(transient)的量測、還有 TEM 表面分析技術，來探討 InAs/InGaAs 這種 DWELL 結構的量子點在應力鬆弛後所展現的特殊現象，主要著重在量子躍遷機制的改變。樣品是 InAs 量子點成長 3.3 ML 的厚度，並予以熱退火 650°C 和 700°C 1 分鐘作為進一步研究。

由 TEM 得知此 3.3ML 的樣品因為量子點成長超過臨界厚度，應力鬆弛後在量子點內部及底層產生差排缺陷。而 DLTS 的量測顯示此缺陷捕捉載子濃度小於 TEM 觀測到的缺陷濃度及量子點濃度，表示缺陷不足以完全空乏量子點中的電子；且與 2.7 ML 的樣品比較下，3.3 ML 樣品的 PL 頻譜在低溫仍有很明顯量子點訊號存在，顯示應力鬆弛並未完全破壞量子點特性，量子躍遷仍可被觀測到。

在量子點區域附近隨著偏壓的加深，C-F 高溫量測到活化能從 0.091 eV 變化到 0.213 eV 一系列寬的能帶頻譜，表示載子分別依序由較淺的激發態和較深的基態跳出，而 C-V 量測所轉的縱深濃度圖也估算出載子至少填滿到第一激發態的 QD 能階，且此能帶頻譜的寬度與 PL 頻譜之 FWHM 是可比擬的，這些初步證明了 C-V 和 C-F 所量的量子訊號。

C-F 的分析顯示：電子躍遷在高溫是熱激發跳躍，而低溫載子熱能不足，被迫以

穿遂形式出去。由低溫穿遂時間帶入公式所擬合的能障(barrier height)，與高溫活化能差不多相符，高溫活化能亦與低溫能障對穿遂時間的關係式相符，這啟發了載子在高溫是直接跳上 GaAs 導帶的說法，而此論述也由捕捉截面積所估算出載子穿遂前的能障來支持。由縱深濃度圖來看，正常無缺陷的量子點是由基態躍遷至激發態再穿遂出去，相較於應力鬆弛而在下方 GaAs 引發缺陷的樣品，後者產生很大的載子空乏區，增加了空乏的寬度，阻止量子點中的電子穿遂到下方 GaAs 層，所以高溫才會直接跳到 GaAs 導帶。

熱退火處理樣品的比較是另一個主要的研究重點，發現底層缺陷產生之空乏效應仍存在，影響著 C-V 與 C-F 的量測結果。由 C-F 量測結果得知，熱退火會減低低溫穿遂時間與高溫活化能，與 PL 藍移結果相符，這是由於原子在量子點界面的擴散效應造成的量子點能階提升，實驗結果也更加證實 C-F 量測數據的來源是量子躍遷。



Electron emission of InAs/InGaAs self-assembled quantum dots containing a misfit defect state

Student: Rong-Mei Hsu

Advisor: Dr. Jenn-Fang Chen

Department of Electrophysics
National Chiao Tung University

Abstract

We investigate the properties of strain relaxed InAs/InGaAs dot-in-well (DWELL) quantum dots (QDs) by optical and electrical measurement. This research emphasizes the mechanism of the electron emission from the QDs containing a misfit defect state. The QD samples are grown by molecular beam epitaxy (MBE) with and without rapid thermal annealing (RTA).

Because the InAs thickness of the 3.3 ML sample exceeds the critical thickness, strain relaxation is observed to introduce misfits in the QD and neighboring GaAs bottom layer. The DLTS spectra show the concentration of the defect state is not high enough to completely deplete the electrons in the QD states. Besides, the photoluminescence quality for 3.3 ML sample is comparable to that of the non-relaxed 2.7 ML sample, and the quantum emission (Q.E.) in the 3.3 ML sample can be measured, suggesting that relaxation doesn't degrade the QD.

From C-F measurements, electron emission from the 3.3 ML QDs exhibits a relatively long emission time with a very broad energetic spectrum from 0.091 to 0.213 eV due to the depopulation of the QD first excited and ground states. The spectral broadness

is also comparable to the broadness of the PL spectrum. Moreover, from the area under the peak of the depth profiles, electrons are filled up at least to the QD first excited state.

From C-F analysis, electron emission from the QDs shows a thermal emission at high temperatures, and because of the insufficient thermal energy, the tunneling emission prevails at low temperature. The energy barrier height evaluated from the tunneling time is consistent with the thermal emission energy which also agrees with the formula for the tunneling barrier versus tunneling time, suggesting that electrons are thermally activated from the QD states to the GaAs conduction band. Furthermore, the relationship between the capture cross section observed from the thermal emission at high temperatures and electric field yields a negligible triangular barrier height seen by the electrons before tunneling. In contrast to defect-free QD samples which show a thermal activation from the QD ground state to the first-excited state and then tunneling to the GaAs conduction band, the relaxation-induced defects create additional carrier depletion which significantly increases the depletion thickness in the neighboring bottom GaAs layer, preventing the electrons in the QDs from tunneling to the bottom GaAs layer. As a result, electrons escaping out of the QD states would have to occur via a thermal emission to the GaAs conduction band at high temperature.

The results of the C-V and C-F show that the effect of tunneling suppression due to the additional carrier depletion still exists after annealing 650 °C and 700 °C. RTA is found to decrease the electron-emission time and emission energy, consistent with the optical blueshift due to the interdiffusion of atoms across the QD interface.

致 謝

研究生的生涯是個說長不長，說短不短的歲月。在兩年的這段日子裡，除了基本的修課及實驗專業知識的獲取外，對我來說，最重要的還是面對事情的處理態度，及人格的養成。首要致謝的對象，是碩班指導過我的所有老師，尤其是指導教授陳振芳老師，和老師相處越久越能感受到老師值得尊崇的地方：除了對知識追求上的熱愛外，對學生更能耐心的指導。真的很感謝老師能不厭其煩的為我解惑，導正我偏向的思考及某些固執的想法，每次和老師討論完都有種豁然開朗的輕鬆。我覺得自己最該向老師學習的地方是做人處事及研究方面態度。

另外感謝各屆學長姐辛苦傳承下來的研究，及協助 TEM 技術的材料所吳岳翰學長及樣品熱退火的光電所紀東煒學長，當然還有實驗室一起努力的夥伴：江振豪學長讓整個實驗室有融為一體的向心力，就像實驗室的中心支柱，跟你聊天很開心，佩珍學姐知識上的傳授及生活上對我挺貼心的，王俞授學長很懷念你以前在交大的日子！還有政鴻學長不厭其煩的幫我解決許多模擬上的問題，很感謝！謝孟謙也為機台盡了很多力，雖然有點機車，但我欣賞你的熱心。另外我的同屆黃正皓及黃英子也感謝你們的協助，還有學弟妹們：達叔其實你很有魅力，要有信心！一起誤人子弟的傅昱翔很有自己的想法，嘉葳有常不在狀況內的天真，怡帆有你的陪伴還有生活上的分享真的很開心，你們未來都要好好努力呦！實驗室有你們讓我在碩士生涯增添不少有趣的回憶。除此之外，已經畢業的上屆學長汪炎宗雖然常虧我，但我能感受到你對我的好，很感動喔！余之周學長很高興有緣一起度過我碩一的日子，還有柯忠廷學長想對你說：你真是個好男人！

最後還有我親愛的家人及男友的鼓勵，提供了我另一個避風港，每次最幸福的時刻就是回到家吃媽媽的料理，男友更是包容我很多固執的地方。還有研究所期間認識的朋友，很高興有緣一起在交大成長！雖然研究生活沒有大學那麼豐富多樣化，但人有此段執著於研究上的經歷，或許也是種不同的體驗吧！

2008/06 于交大工六

目 錄

| | |
|-------------------------------------|------|
| 中文摘要..... | i |
| 英文摘要..... | iii |
| 致謝..... | v |
| 目錄..... | vi |
| 圖表目錄..... | viii |
| 第一章 緒論..... | 1 |
| 1-1 InAs/GaAs 量子點材料簡介..... | 1 |
| 1-1-1 量子點簡介及其特性..... | 1 |
| 1-1-2 Dot-in-well (DWELL)簡介..... | 2 |
| 1-2 研究動機..... | 3 |
| 1-3 論文架構..... | 3 |
| 第二章 樣品製備與量測系統簡介..... | 6 |
| 2-1 樣品製備..... | 6 |
| 2-1-1 樣品成長..... | 6 |
| 2-1-2 電極製作..... | 6 |
| 2-2 量測系統簡介..... | 7 |
| 2-2-1 光激發螢光量測系統(PL)..... | 7 |
| 2-2-2 電流電壓量測(I-V)..... | 9 |
| 2-2-3 電容電壓量測(C-V)..... | 9 |
| 2-2-4 導納頻譜量測(C-F & G-F)..... | 10 |
| 2-2-5 暫態電容量測(C(t) measurement)..... | 10 |
| 2-2-6 深層能階暫態頻譜量測(DLTS)..... | 11 |
| 第三章 應力鬆弛後量子訊號的存在與否..... | 13 |
| 3-1 缺陷的探討..... | 13 |

| | | |
|-------|-----------------------------------|----|
| 3-2 | 未鬆弛 InAs/InGaAs 到鬆弛 QD 光性的演變..... | 14 |
| 第四章 | 熱退火的效應與量子躍遷的探究..... | 19 |
| 4-1 | 熱退火對光及缺陷的效應..... | 19 |
| 4-1-1 | PL 光性分析..... | 19 |
| 4-1-2 | 缺陷的演變..... | 20 |
| 4-2 | 電容電壓量測與能帶頻譜探討..... | 22 |
| 4-2-1 | 熱退火之電容電壓比較..... | 22 |
| 4-2-2 | 導納頻譜分析及能帶頻寬..... | 23 |
| 4-3 | 高溫躍遷與低溫穿遂..... | 25 |
| 第五章 | 總結..... | 49 |
| 5-1 | 結論..... | 49 |
| 5-2 | 未來展望..... | 50 |
| 參考文獻 | | 51 |



圖 表 目 錄

| | | |
|----------|--|----|
| 圖 1-1 | 不同維度侷限顯示不同態密度對能量的關係..... | 5 |
| 圖 1-2 | 三種長晶模式，由左至右分別: F-vdM、V-W 及 S-K mode..... | 5 |
| 圖 2-1 | 樣品結構及所對應之能帶圖..... | 12 |
| 圖 2-2 | PL 系統架構圖..... | 12 |
| 圖 3-1 | 3.3 ML 樣品之 TEM 傅立葉轉換圖與缺陷分佈..... | 16 |
| 圖 3-2 | 3.3 ML as grown 樣品不同填充偏壓之 DLTS..... | 16 |
| 圖 3-3(a) | 鬆弛與未鬆弛樣品低溫 50K PL 比較..... | 17 |
| 圖 3-3(b) | 鬆弛與未鬆弛樣品室溫 PL 比較..... | 17 |
| 圖 3-4(a) | 2.7 ML 樣品歸一化之變功率室溫 PL..... | 18 |
| 圖 3-4(b) | 3.3 ML 樣品歸一化之變功率室溫 PL..... | 18 |
| 圖 4-1 | 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度之室溫 PL..... | 28 |
| 圖 4-2(a) | 3.3 ML as grown 樣品之室溫大功率 PL..... | 28 |
| 圖 4-2(b) | 3.3 ML anneal 650°C 樣品之室溫大功率 PL..... | 29 |
| 圖 4-2(c) | 3.3 ML anneal 700°C 樣品之室溫大功率 PL..... | 29 |
| 圖 4-3 | 3.3 ML anneal 650°C 與 700°C 樣品室溫 PL..... | 30 |
| 圖 4-4 | 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度背面訊號 PL..... | 30 |
| 圖 4-5(a) | 3.3 ML as grown 樣品 0.13 mW 之變溫 PL..... | 31 |
| 圖 4-5(b) | 3.3 ML anneal 650°C 樣品 0.13 mW 之變溫 PL..... | 31 |
| 圖 4-5(c) | 3.3 ML anneal 700°C 樣品 0.13 mW 之變溫 PL..... | 32 |
| 圖 4-6 | 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度半高寬隨溫度變化圖..... | 32 |
| 圖 4-7(a) | 3.3 ML As grown 樣品不同偏壓範圍下 DLTS..... | 33 |
| 圖 4-7(b) | 3.3 ML anneal 650°C 樣品不同偏壓範圍下 DLTS..... | 33 |
| 圖 4-7(c) | 3.3 ML anneal 700°C 樣品不同偏壓範圍下 DLTS..... | 34 |

| | | |
|-----------|--|----|
| 表 4-1 | 3.3 ML 系列樣品 DLTS 分析之活化能及捕捉截面積..... | 34 |
| 圖 4-8(a) | 3.3 ML As grown 樣品不同溫度 C(t)量測..... | 35 |
| 圖 4-8(b) | 3.3 ML 熱退火 650°C 樣品不同溫度 C(t)量測..... | 35 |
| 圖 4-8(c) | 3.3 ML 熱退火 700°C 樣品不同溫度 C(t)量測..... | 35 |
| 圖 4-9 | 3.3 ML 系列樣品缺陷之 Arrhenius plot 與其他材料比較..... | 36 |
| 圖 4-10 | 3.3 ML 熱退火 700°C 樣品表面處不同填充偏壓之 DLTS..... | 36 |
| 圖 4-11 | 3.3 ML 系列樣品低溫電容電壓變頻量測..... | 37 |
| 圖 4-12 | 3.3 ML 系列樣品低溫變頻縱深圖..... | 38 |
| 圖 4-13 | 3.3 ML 系列樣品 C-F(左)與 G/F vs. F(右)之量測..... | 39 |
| 圖 4-14 | 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測各偏壓之 Arrhenius plot..... | 40 |
| 表 4-2 | 3.3 ML 系列樣品 C-F 分析之活化能與捕捉截面積..... | 41 |
| 表 4-3 | 3.3 ML 系列樣品 C-F 與 PL 量測之能帶寬對照..... | 42 |
| 圖 4-15(a) | 2.7 ML 樣品低溫變頻電容電壓量測..... | 42 |
| 圖 4-15(b) | 2.7 ML 樣品低溫變頻縱深圖..... | 42 |
| 圖 4-16(a) | 3.3 ML 樣品低溫變頻電容電壓量測..... | 43 |
| 圖 4-16(b) | 3.3 ML 樣品低溫變頻縱深圖..... | 43 |
| 圖 4-17 | 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測之躍遷時間對溫度關係..... | 44 |
| 圖 4-18 | 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測載子躍遷之公式擬合..... | 45 |
| 圖 4-19 | 3.3 ML 樣品捕捉截面積對電場倒數關係..... | 46 |
| 圖 4-20 | 3.3 ML 系列樣品穿遂時間對活化能關係與公式擬合..... | 46 |
| 圖 4-21 | 2.7 ML 樣品縱深濃度分布及能帶示意圖..... | 47 |
| 圖 4-22 | 3.3 ML 樣品縱深濃度分布及能帶示意圖..... | 47 |
| 圖 4-23 | 2.7 ML 樣品室溫能帶結構圖..... | 48 |
| 圖 4-24 | 3.3 ML 樣品室溫能帶結構圖..... | 48 |

第一章 緒論

1-1 InAs/GaAs 量子點材料簡介

量子點特殊的性質成為很多光電半導體材料研究的重心，而本研究就是著重在 InAs/GaAs 量子點特性的探討，以下先針對量子點及延伸的 Dot-in-well 結構做簡介。

1-1-1 量子點簡介及其特性

(1). 量子點特性與應用：

量子點是一種奈米晶體(nanocrystals)，其直徑僅在數個~數十奈米間，而如果材料的特徵尺寸在三個維度上都與電子的 de Broglie 波長或電子平均自由路徑相近或更小，電子的能量將被量化，所以就造成了：似 δ function 的態密度&能階分立不連續的特性[1,2]，圖 1-1 即自由度分別為三維、二維、一維及零維的塊材、量子井、量子線及量子點之態密度，很明顯看出量子點態密度的不連續特性[3]。這種特性導致以量子點為作用區的半導體雷射具有較窄的增益頻譜(gain spectrum)、低臨界電流(threshold current)[4]、較高飽和材料增益(saturation material gain)等優點。已經在電子或光電元件被使用，如半導體雷射[5,6]、電晶體[7]、光二極體(LEDs)[8]等，近幾年在電荷量子訊息上[9]和生物感測上[10]也有潛在的應用。而量子點亦可拉長以 GaAs 為基底元件的放射波長，以達到光通訊所需的波長範圍(1.3~1.55 μm)(此範圍剛好符合光纖的透明視窗，而 1.3 μm 為最小散射的波長；1.55 μm 為最小吸收的波長)。

(2). 異質接面三種磊晶模式的成長機制：

早期的自聚式量子點是在 1988 年由 T. Itoh、Y. Iwabuchi、及 M. Katanoka 在玻璃上成長 CdSe、CdS、和 CuCl 等的微小結晶體，來觀察其量子點光與電的特性[11]。而利用應力誘發原理來成長量子點的磊晶方法主要有二：

1. 有機金屬氣相磊晶(Metal Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD)是一種單向的化學反應，成長速度較快且維護方便，較適合大量生產，但成長高品質的量子

點則較具挑戰性。

2. 分子束磊晶(Molecular Beam Epitaxy, MBE)成長均勻和密集的量子點，此種成長方式中，表面能對於量子點的成核作用很重要。優點為在成份及厚度上具有良好的操控性，磊晶速率可精確到每秒低於一個分子層(ML/s)，品質及均勻度佳，且可利用反射高能電子繞射(reflection high energy electron diffraction, RHEED)對材料表面做即時的監控。

接著簡單介紹異質接面的三種磊晶模式[12](如示意圖1-2)，這些成長模式的機制就是系統的演變總會傾向最低的能量：

1. 層接式(F-vdM mode, Frank-van der Merwe mode)[13]：磊晶材料的表面能小於或等於基板的表面能時，有利於此種成長模式。
2. 島嶼式(V-W mode, Volmer-Weber mode)[14]：磊晶材料的表面能大於基板的表面能時，則利於島嶼式的模式。
3. 層接而後島嶼式(S-K mode, Stranski-Krastanow mode)[15]：成長幾個單層後，會先在 GaAs 上形成沾濕層(wetting layer)，然後自我聚集形成島狀物，所以也稱為自聚式量子點 (self-assembled QDs)。此種成長方式有效的提供高密度、高均勻度及無缺陷的量子點。但當厚度繼續增加，應力鬆弛後就會有插排等缺陷產生。

1-1-2 Dot-in-well (DWELL)簡介

Dot-in-well 顧名思義是指量子點埋在量子井中，也就是量子點與基板間多了緩衝層，此結構好處是可減緩量子點與基板的應力及晶格不匹配，量子點中的能階也因多加了這層產生平移、拉長波長，相關的研究如在 InAs 和 GaAs 之間加入 InGaAs 層[16,17]，成功的將波長延伸至 1.3 μm 以上，另外提高 InGaAs 層中的 In 含量和增加 InGaAs 層的厚度，可以將波長拉得更長[18]，除此之外，在 2000 年中 D. Deppe 的研究團隊就證實了 InGaAs 的量子點成長在 InGaAs 的緩衝層上比直接成長在 GaAs 基板上密度要高上兩倍[19]，量子點尺寸與形狀也較均勻與完美[20]。

1-2 研究動機

研究 DWELL 這個結構，最原始的目的是為了減緩晶格間的不匹配、拉長量子點波長、以及成長更均勻更高密度的量子點。但我們發現此結構，在量子點成長厚度超過其臨界值後，因為上方 InGaAs 這層緩衝層的存在，導致應力鬆弛所產生的差排缺陷，只在 InAs 內部及下方產生，而在上方並無發現缺陷。所以隨著逆偏及空乏區的加大，下方缺陷造成的載子空乏區，會影響載子由量子點穿遂出去的效應，使得原本因為穿遂時間太快而量測不到的量子訊號得以被觀察到。一般正常的量子點在室溫 300K 時，穿遂時間約在 ps 等級，受限於儀器而無法測量；但此應力鬆弛樣品在室溫下，受到缺陷空乏的影響，已經不再以穿遂主導，反而以直接跳到 GaAs 導帶為主要逃脫方式，而低溫下亦可量到大於 μs 的穿遂時間，整個載子躍遷的機制已經改變了，所以可藉著調變空乏區域，控制穿遂時間，做為記憶元件的儲存、讀寫以及抹除等應用[21,22]。因為應力鬆弛所形成的特性，使我們能突破以前所無法量測的瓶頸，而更進一步去分析與探討，發現更多有趣的現象，這是最主要的研究動機。

另一方面，半導體奈米結構在各個層面上被廣泛的應用，但其實奈米結構下成長的半導體材料其特性與一般的塊材結構迥然不同，由於結構尺度相近於電子物質波波長，無法再適用於古典力學的解釋方法，須以量子力學取代之。這種特殊的結構就牽涉到內部的量子能階，而除了理論上的研究外[23,24]，鮮少有人針對 InAs/GaAs 異質接面能階做實驗上的探討[25,26]，而我們的樣品特性剛好能量測到載子跳躍的訊號，可藉此觀測到量子點能階的深度，進而估算出量子點中能階的位置。

1-3 論文架構

本論文主要是利用光性(PL)及電性(C-V、C-F、DLTS、transient 等)的量測，研究 InAs/InGaAs 這種 DWELL 結構的量子點，成長厚度 3.3ML，超過臨界厚度而應力鬆弛後，產生缺陷對量子躍遷的影響，並對未鬆弛的 2.7ML 樣品做比較，另外更進

一步以熱退火 650°C 和 700°C 來驗證量子躍遷的現象。以下簡介本論文的章節安排：

第一章緒論部份，簡介量子點的成長及應用，並對研究的 DWELL 樣品做簡單介紹，以及此研究的動機。

第二章樣品的製備與量測系統部分，包括了實驗樣品的成長結構及電性量測所需之電極製作，另外針對本論文所用到的量測系統做簡介。

第三章首先針對缺陷的研究及 PL 量測來做分析，著重在應力鬆弛後產生的缺陷，對量子躍遷的影響程度，以及光性上的演變和波長的變化，來說明量子躍遷仍可被觀察到。

第四章接著以其他電性的量測結果，及針對數據延伸出的分析，來說明及證實我們所推論的量子躍遷訊號，由高溫到低溫的變化，另外熱退火的效應也在本章中提供更多的佐證。

第五章對這篇論文的研究結果做一個簡單的總整理，並對後續的研究提供可研究的方向。



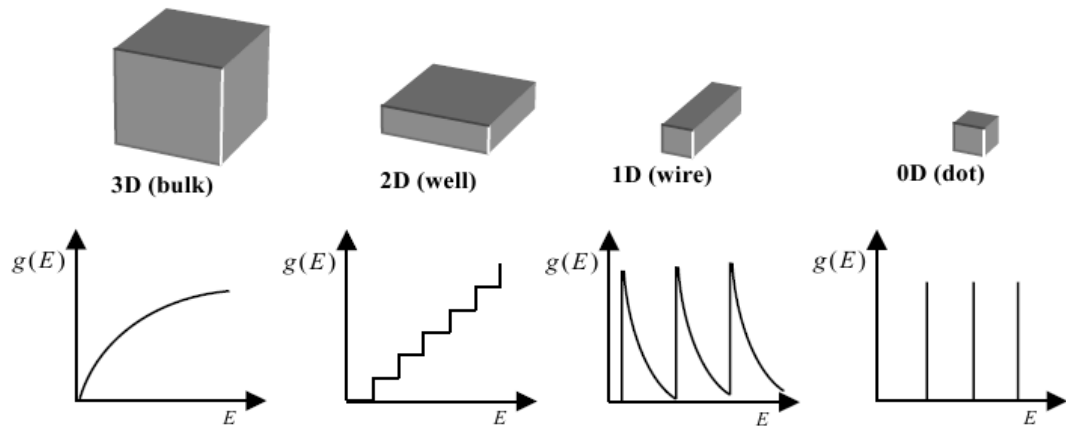


圖 1-1 不同維度侷限顯示不同態密度對能量的關係



圖 1-2 三種長晶模式，由左至右分別: F-vdM、V-W 及 S-K mode

第二章 樣品製備與量測系統簡介

2-1 樣品製備

樣品製備分為量子點樣品的成長與正極蕭基界面(Schottky contact)及負極歐姆界面(Ohmic contact)的電極製作

2-1-1 樣品成長

樣品是由工研院所提供，由分子束磊晶(Molecular beam epitaxy)成長的，長晶所使用的基板為(100)方向的 n^+ -GaAs(10^{18}cm^{-3})，基板成長溫度固定在 600°C ，而 QD、QW 的長晶溫度則設定為 $485\sim 500^\circ\text{C}$ 。成長的步驟：

- (1). 先在 GaAs 基板上成長一層 $0.2 \mu\text{m}$ GaAs 緩衝層(buffer layer, Si doping: 10^{17}cm^{-3})
- (2). 之後成長不同厚度 InAs QD，分別為 2.7 ML 及 3.3 ML
- (3). 接著再以相同溫度覆蓋上一厚度為 60\AA 的 $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ QW
- (4). 然後低溫(500°C)成長 20 秒的 GaAs
- (5). 最後升回 600°C ，覆蓋 $0.2 \mu\text{m}$ GaAs cap layer(Si doping: 10^{17}cm^{-3})。

本論文成長的樣品結構圖及所對應的能帶圖如圖 2.1 所示。

2-1-2 電極製作

成長完的樣品由於電性量測的需求，有製作電極的必要。主要是利用熱蒸鍍方法在樣品的正面鍍上 Al 形成蕭基界面，利用逆偏壓來調變蕭基界面所形成的空乏區，來量測樣品不同區域的特性。除此之外仍然需要在樣品的背面製作歐姆界面，以便做訊號的量測。另外在製作電極前還需要一連串清理的步驟，以免影響半導體與金屬的界面，造成實驗的誤判。主要步驟如下：

- (1). 配合使用石英震盪器，沖泡去離子水(D.I water)約 3 分鐘(去除表面一般雜質)，

並用氮氣吹乾。

- (2). 將試片浸泡於丙酮溶液(Acetone)中約 2~3 分鐘，去除表面油漬。
- (3). 沖泡去離子水，約 3 分鐘(去除殘留之 Acetone)，並用氮氣吹乾。
- (4). 置入稀釋過的鹽酸溶液(HCl : H₂O = 1 : 1)中約 2~3 分鐘(去除陽離子及氧化層)。
- (5). 沖泡去離子水約 3 分鐘(去除殘留的酸液)，並用氮氣吹乾。
- (6). 經過清理後的樣品，於其上覆蓋所需要的 mask 來決定金屬接面的面積大小。(本篇論文中所量測的面積大小為 0.005024 cm³)
- (7). 置入蒸鍍機內，使用機械幫浦(mechanical pump)及擴散幫浦(diffusion pump)，待抽真空至 2~3x10⁻⁶ torr 以下，再開始以熱蒸鍍的方式鍍上 Al。
- (8). 另外歐姆接面則是使用 In，先在樣品的背面上點上兩個 In ball，經過高溫爐管約 300 的加熱後，量測兩個 In ball 間的電阻值使低於 10 Ω，具有歐姆特性，再將之置於均勻塗滿 In 的 Si 基板上。以上為電性量測所需的樣品製備。



2-2 量測系統簡介

本研究主要分為光性量測與電性量測，分別在 2-1-1 節及 2-2-2 節以後做介紹。

2-2-1 光激發螢光量測系統(PL)

本論文使用的 PL (Photoluminescence)量測系統是楊賜麟老師實驗室所提供的，其中依實驗需求所使用的儀器設備包含：

- (1). 固態雷射(solid-state laser)：為 Excel 公司生產，型號為 LOC-VENTUS 1000 SERIES，為 CW 雷射，波長 532 nm，最大輸出功率 1.3 mW，雷射穩定度在 1.9% 以內，RMS 平均雜訊為 0.7%，驅動電流 6 安培，主要利用此雷射來激發樣品發出螢光而偵測。
- (2). 衰減濾光片組(Variable Neutral Density Filter)：利用衰減片來控制、調整想要的雷射輸入功率。

- (3). 光遮斷器(Optical chopper)：目的在於使連續波的雷射形成方波的形式，所使用的型號為 NEW FOCUS 3501，7/5 孔型式，固定頻率在 500 Hz。
- (4). 聚焦透鏡(Focus Lens)：利用聚光透鏡將雷射光聚焦在樣品上。
- (5). 溫控裝置：主要為了量測低溫與變溫的光學特性而設置，包含真空腔體(chamber)、降溫用壓縮機(compressor)、機械幫浦(mechanical pump)、冷卻水系統以及溫控器(temperature controller)。系統的最低溫約在 10 K，可利用循環 He 的壓縮機與溫控器的加熱器相互配合以便控制所想要的溫度進行量測。
- (6). 高通濾光片(Long-pass filter)：我們所使用的是 695 nm 的濾光片，目的為濾掉雷射光，避免其進入光偵測器中(因為螢光相較於雷射光是屬於非常微弱的光)。
- (7). 分光儀(monochromator)：型號為 ARC Spectro-275，聚焦長度為 27.5 cm，內部含有有三塊光柵，為 600 groove/mm(BLZ=1000 nm)，主要是根據實驗所需的波段範圍來選擇。
- (8). 光偵測器(photodetector)：使用 Electro-Optical Systems 公司所生產的 InGaAs 光偵測器，在 300 K 時所適用的波長為 800 nm 到 1800 nm。
- (9). 訊號放大器(multi-meter)：將光偵測器所接收到的訊號放大。
- (10). 鎖相放大器(Lock-in Amplifier)：儀器型號為 STANFORD RESEARCH SYSTEM SR850，目的在量測微小的交流訊號。

PL 設備架設如圖 2.2 所示，首先由固態雷射發射波長為 532 nm 的雷射光，經由實驗需要調整好倍率的衰減片，來降低雷射輸出功率，然後經由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，進而激發樣品放射出螢光，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，另外使用一片 695 nm 的高通濾光片以濾掉雷射光，以避免其對訊號產生干擾，之後螢光再經由光偵測器去接收，傳送至鎖相放大器處理後再傳回電腦而存檔。利用 PL 系統在各溫度下可以針對我們

的樣品做量測，也可以利用不同衰減倍率的濾光片針對不同的雷射激發強度做量測。

2-2-2 電流電壓量測(I-V)

以下介紹本研究的電性量測系統。首先，樣品的電流與電壓特性是電性量測實驗中的首要步驟，可利用 I-V 特性的量測了解我們樣品在成長與經過熱蒸鍍等電極製備後其特性是否良好，作為其他電性量測的參考依據。主要是利用蕭基接面的電流特性，來擬合樣品的漏電流(leakage current)、串聯電阻 r_s (series resistance) 與理想因子 n (ideal factor)，Schottky 電流公式如下：

$$I = I_s \left\{ \exp \left[\frac{q(V - I r_s)}{nkT} \right] - 1 \right\} \quad (2-1)$$

上式中 I_s 為逆向飽和電流(saturation current)， V 為順向偏壓， k 為波茲曼常數(Boltzmann's constant)。本篇論文利用 KEITHLEY 236 作 I-V 量測，本量測的樣品其理想因子大約在 1.0~1.4 之間，Schottky 特性算不錯，而漏電流大約在 10^{-10} mA，串聯電阻約在 100~500 Ω 。



2-2-3 電容電壓量測(C-V)

在蕭基接面下可以藉由調變其空乏區，控制樣品的費米能階(Fermi level)去量測樣品所反映出來的電容特性，接下來的量測都與樣品的電容與導納值有關。首先，C-V 量測主要是利用外加逆偏壓來空乏半導體內自由載子，配合交流頻率的調變做電容電導量測，不同 DC 偏壓下的電容值可得出各區域的載子濃度變化，再利用縱深變化圖初步了解樣品是否存在有載子侷限，或存有大量缺陷空乏大量載子。主要利用到的公式有平行板電容公式(2-2)與載子濃度隨空間分佈公式(2-3)：

$$C = \frac{\epsilon \epsilon_0 A}{W} \quad (2-2)$$

$$N(W) = \frac{2}{q \epsilon \epsilon_0 A^2 [d(\frac{1}{C^2})/dV]} \quad (2-3)$$

其中 W 為空乏區寬度， ϵ 為半導體介電係數(permittivity)， A 為元件面積(0.005024 cm^2)， $N(W)$ 為空乏區為 W 時的載子濃度。

2-2-4 導納頻譜量測(C-F & G-F)

若由 C-V 量測發現某逆偏下載子對不同頻率有不同電容值的響應，則可進一步作 C-F 與 G-F 量測，更深入去探討被侷限的載子對外加偏壓的反應時間。調變 ac 的頻率由 100 Hz 到 15 MHz，理論上不同的溫度之下，載子的反應時間常數也不同(與其熱動能有關)，因此可藉由量測 C-F 與 G-F 頻譜，針對不同偏壓(對應到不同區域)的量測，進而畫出阿瑞尼斯圖(Arrhenius plot)，由圖中的斜率與截距，推算缺陷或侷限能階的活化能(activation energy)及捕捉截面積(capture cross section)。根據數學推導的結果，電容及電導對應頻率的公式如下[27,28]：

$$C_p = \frac{\epsilon\epsilon_0}{x_d} + (2e_n)^2 C_0 \left[\frac{1}{\omega^2 + (2e_n)^2} \right] \quad (2-4)$$

$$G_p(\omega) = 2e_n C_0 \left[\frac{\omega^2}{\omega^2 + (2e_n)^2} \right] \quad (2-5)$$

其中 ω 為量測頻率， e_n 為電子放射率(emission rate)，由式子看出當 $\omega \ll e_n$ 時，缺陷可隨交流偏壓來捕捉或放射電子，缺陷對電容便有貢獻；當 $\omega \gg e_n$ 時，則對量測頻率無響應。另外由(2-4)式電容對 $\log(\omega)$ 的關係圖中，反曲點會落在 $\omega = 2e_n$ 上，(2-5)式 $\omega = 2e_n$ 時也會得到最大的 $G(\omega)/\omega$ 值 $C_0/2$ ，可藉此得出不同溫度的 e_n 。使用 HP4194 阻抗/增益相位分析儀做以上的量測，C(t) measurement 的量測也是使用此分析儀。

2-2-5 暫態電容量測(C(t) measurement)

暫態電容量測的原理：利用調變蕭基的空乏區，來控制載子進出缺陷，以量測缺陷釋放載子或捕捉載子的時間。例如量測缺陷放射載子時：

1. 首先樣品處於一逆向偏壓，建立一段空乏區。
2. 加入一順向脈衝(減小逆向偏壓值)，注入載子，空乏區減小，電容變大，載子被空乏區內的缺陷捕捉住。

3. 經過一段填充時間(filling pulse width)後，恢復原先的逆偏，被捕捉的載子還來不及被激發，因此為了維持電中性電場平衡，空乏區會比原先大，電容也因而更小。
4. 足夠時間後，多數載子由於熱激發慢慢被釋放，電容也隨之增加，慢慢飽和呈現指數變化(point defect 的特性)。

但如果缺陷濃度極高如 dislocation...等，則電容值將不會飽和而 C(t) measurement 將呈現對數的圖形。另一方面量測缺陷捕抓載子時，只需將前面所加的偏壓交換即可。藉由量測完的圖形則利用下面的公式去擬合缺陷放射與捕捉時間：

$$y = y_0 + A_1 \exp\left(\frac{-t}{\tau_1}\right) \quad (2-6)$$

上式中 τ_1 是量測到的時間常數，當缺陷放射載子時 $A_1 < 0$ ，反之當其捕抓載子時 $A_1 > 0$ 。當存在不只單一個缺陷被量測到時，可以增加後面的指數項，代表著同時有兩個時間常數被量測到。

2-2-6 深層能階暫態頻譜量測(DLTS)

DLTS 技術在 1974 年首先由貝爾實驗室的 D. V. Lang 在 J. A. P. 提出[29]，主要機制與 C(t) measurement 相同：利用週期性變化電壓施加於樣品上，改變樣品空乏區的大小，在連續不斷的暫態電容量測中，找出隨溫度變化時的最大電容變化值的溫度，來獲得深層缺陷的資訊[30]。優點：靈敏度高(可到 10^{10}cm^{-3} 之濃度偵測範圍)、能測多數與少數載子、觀測 defect 能階範圍廣、尤其是較深層的缺陷能階(emission time 在毫秒等級的)也能夠被精準量測到，提高信號對雜訊的比值(S/N ratio)等。DLTS 技術主要是給定兩時間 t_1 與 t_2 ，固定 t_2/t_1 ，改變 t_1 與 t_2 來設定不同速率窗(利用雙開訊號平均器設定)，電子發射速率 e_n 隨著系統溫度變化而改變，只有當 e_n 剛好落在所設之速率窗中，量測系統才達到峰值，即有 $e_{n,\max} = \frac{\ln(t_2/t_1)}{t_2 - t_1}$ 。當溫度很低時， ΔC 變化幅度很小($\Delta C \sim 0$)，當溫度很高時， ΔC 變化幅度又太快($\Delta C \sim 0$)，只有當溫度在特定範圍， ΔC 變化才最大，與我們所設定的時間常數最接近。設定不同 t_1 與 t_2 來改變不同速率窗(rate window，即 $e_{n,\max}^{-1}$)，獲得多組不同 $e_{n,\max}$ 與峰值溫度數據，可同樣求出缺陷活化能與捕捉截面積。

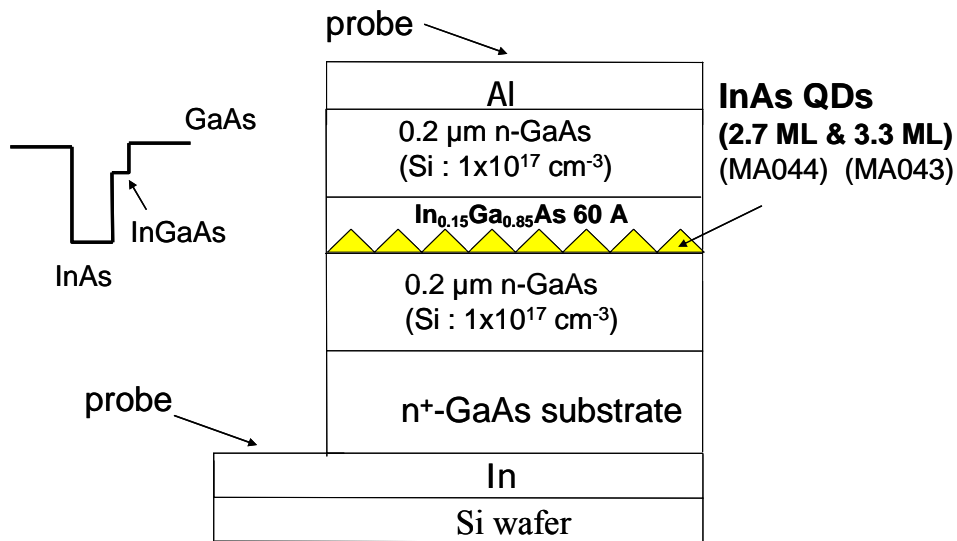


圖 2-1 樣品結構及所對應之能帶圖

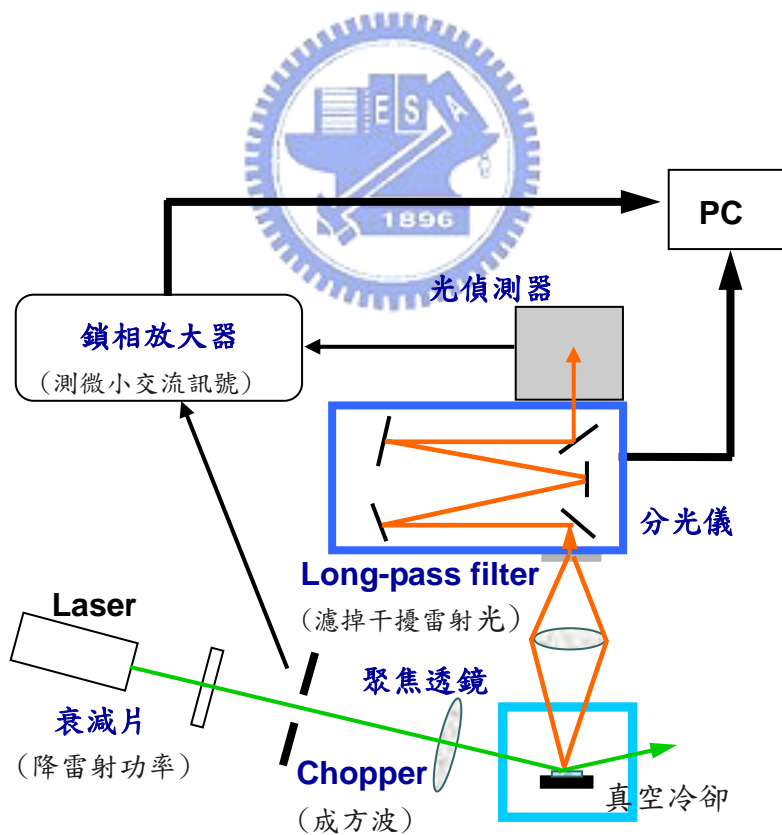


圖 2-2 PL 系統架構圖

第三章 應力鬆弛後量子訊號的存在與否

由先前的研究[31]得知，量子點磊晶厚度的臨界值約在 2.7 ML~3.0 ML，超過臨界厚度會引發應力鬆弛而產生缺陷。在本章節中，先針對缺陷的探討及應力鬆弛後光性的演變，做一簡單的說明以及回顧，來強調本研究所著重的量子訊號。

3-1 缺陷的探討

磊晶厚度超過臨界厚度的 3.3 ML 應力鬆弛樣品，由圖 3-1 的 TEM 分析技術證明了此樣品的插排缺陷存在於量子點內部與底層 GaAs 處，圖中已經由傅立葉轉換技術，讓我們更清楚看到樣品晶格的排列，缺陷也更顯而易見。圖中斜直線為 wetting layer 的位置，虛線框出之橢圓形為量子點的區域，而其餘不規則曲線圈出的即為插排缺陷的分佈。

在第一章已經有說明此 DWELL 樣品在 QD 上方有 InGaAs 這層緩衝層的存在，導致樣品應力鬆弛後，所產生的差排缺陷只在 InAs 內部及下方產生，而在上方並無發現缺陷，由 TEM 可很清楚支持這項說明。

另外，圖 3-2 所示為固定 rate window 2.15 ms，偏壓範圍在 -1.3 V~-2.3 V，變換不同 filling pulse，對 3.3 ML 樣品做的 DLTS 量測，圖中說明此缺陷是屬於會飽和的缺陷，利用其飽和峰值 $\Delta C = 0.3$ pF，經由理論計算公式 $N_T = N_D(\Delta C/C_0^2)\epsilon A$ ，得到捕捉載子而被 DLTS 量測到的缺陷濃度 N_T 約為 $2.35 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ，其中樣品參雜濃度 $N_D = 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、初始電容值 $C_0 = 270$ pF、本樣品介電常數 $\epsilon = 1.14 \times 10^{-10}$ F/m、金屬接面量測面積 $A = 5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ ，將此缺陷濃度 $2.35 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 與量子點濃度 $3 \sim 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [32] 比較後，顯示此缺陷捕捉載子濃度小於量子點濃度，說明此樣品中的缺陷還不足以完全空乏量子點中的電子[33]。因此，雖然此為應力鬆弛的樣品，但量子躍遷訊號仍可被量測到。

3-2 未鬆弛 InAs/InGaAs 到鬆弛 QD 光性的演變

接著我們利用光激發螢光頻譜(PL)的量測，來分析 3.3 ML 應力鬆弛的樣品的特性。在本節中，先針對未鬆弛 2.7 ML InAs/GaAs 樣品與鬆弛後的 3.3ML 樣品的比較做說明。

圖 3-3(a)與(b)分別是 2.7 ML 與 3.3 ML 樣品在低溫與室溫的 PL 比較，(a)圖在低溫 50K 下顯示：3.3 ML 樣品在光性上仍有不錯的載子侷限性，所以應力鬆弛後 PL 特性並不會比未鬆弛的樣品差，表示 QD 特性仍然存在。低溫與室溫都可看出 PL 峰值的波長有藍移的現象，如圖中箭頭所示。圖(b)室溫下 PL，3.3 ML 樣品發光強度明顯比 2.7 ML 樣品弱，是由於應力鬆弛後波長藍移，QD 中的能階抬升，所以侷限載子能力變差，而且又由於溫度上升導致載子得到更多熱能、容易從量子點中逃脫，因此發光效率會很明顯變低[34]，但在低溫方面 3.3 ML QD 的載子侷限性不差是不容置疑的。(兩片樣品峰值的對應及藍移現象在下面幾段及下章節有進一步做說明)

在此我們先以不同材料相接後的異質界面，所受的應力造成 band gap 的變化來說明應力鬆弛後的藍移現象。一般的情況下，材料會隨著晶格常數變大而 band gap 減小的趨勢，發光波長也相對的會紅移，且不同的材料與成分，其晶格常數與 band gap 的關係通常會遵守 Vegard's Law 而呈線性關係。就水平方向的晶格(垂直長晶方向的面)來說，晶格常數較大的 InAs 成長到 GaAs 上時，為了晶格相匹配，在水平方向會受到一壓縮應力，減小 InAs 的晶格常數、造成水平方向的 band gap 變大；應力鬆弛後，InAs 晶格舒張，晶格常數恢復，水平方向的 band gap 因而變小。

但是我們所研究的 QD，相較於水平方向，垂直方向(沿著長晶方向)的侷限性是較強的，影響也較大，因此重點是長晶方向上的應力分析。InAs 與 GaAs 相接後，InAs 長晶方向的晶格常數反而因為水平方向的壓縮應力擠壓而變大，導致 band gap 變小，相較於原本塊材 InAs 有紅移的效應；而當 QD 成長大顆時，band gap 不太變化，但由於 QD 中的能階會下降，也會造成紅移現象；當 QD 成長超過臨界厚度而應力鬆弛後，晶格常數恢復的結果，造成長晶方向晶格常數變小，band gap 變大，藍移

因而產生，另一方面，應力鬆弛後 QD 會變小顆，高度變小，使量子能階提升，除了更促成藍移的效應外，能階間距也會因此變得較大。順帶一提的是，QD 成長超過臨界厚度而鬆弛後，為了更加釋放應力，QD 界面處的 In 和 Ga 原子會有 intermixing 的現象[35,36]，這也是應力鬆弛後藍移的因素之一。

接著比較的是 2.7 ML 與 3.3 ML 樣品室溫下變功率 PL 的量測，如圖 3-4(a)(b)所示，為了比較樣品 PL 波長的消長情形，我們分別對圖形做歸一化的動作，圖 3-4(a)中 2.7 ML 樣品針對(1)號 peak 做歸一化後，可發現(2)號與(3)號 peak 強度有隨著激發功率變大而成長的比(1)號快的趨勢，其中(2)號 peak 強度在某些功率下甚至超越(1)號 peak，(3)號 peak 雖然不太明顯，但仍可看出些微的成長幅度，由此推估這三個 peak 為同一群 QDs 的基態與激發態訊號[37]，其中(3)號 peak 由於能階較淺、載子易逃脫，且為第二激發態，在峰值強度上相對顯得較微弱。

同樣的，我們也對 3.3 ML 做變功率 PL，如圖 3-4(b)箭頭方向所示，可看出(1)(2)(3)號 peak 消長情形與 2.7 ML 相同，但(4)號 peak 成長速率卻比前三號 peak 慢，因此我們猜測這可能是不均勻(部分)的鬆弛形成兩群大小不同 QDs，也就是 3.3 ML 樣品中仍殘留小部份長波長未鬆弛的 QDs，造成(4)號 peak 的存在，其強度相對較弱、特性也較差。

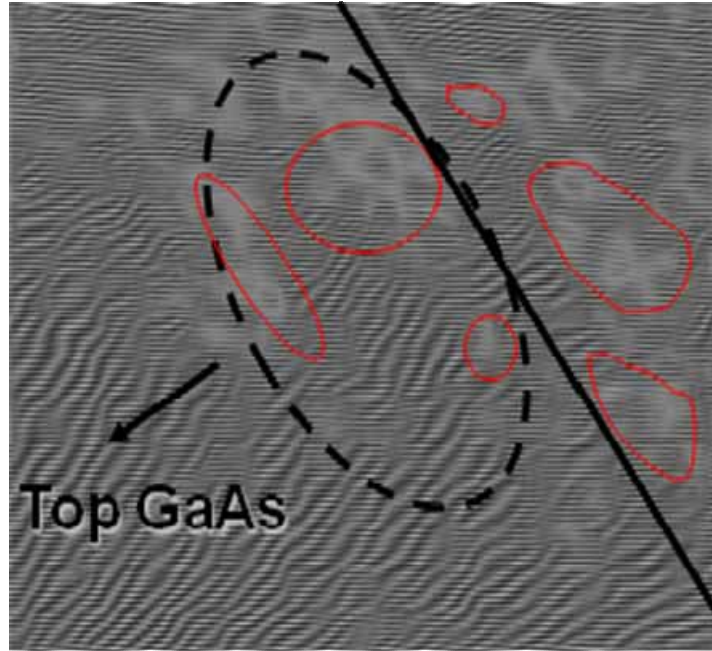


圖 3-1 3.3 ML 樣品之 TEM 傅立葉轉換圖與缺陷分佈

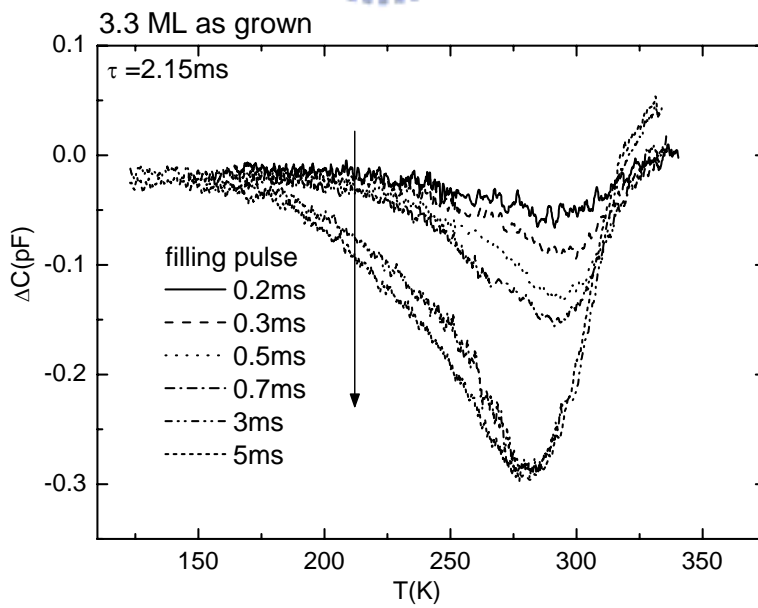


圖 3-2 3.3 ML as grown 樣品不同填充偏壓之 DLTS

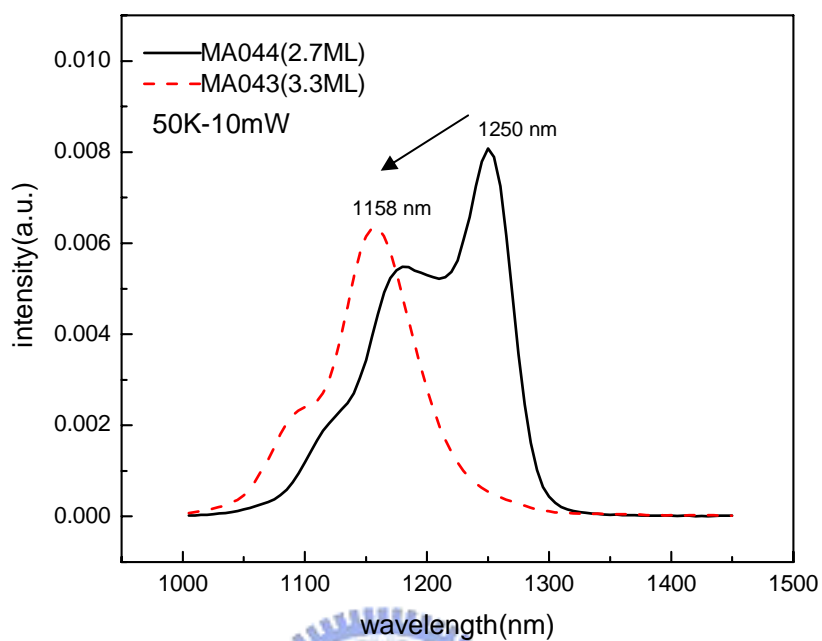


圖 3-3(a) 鬆弛與未鬆弛樣品低溫 50K PL 比較

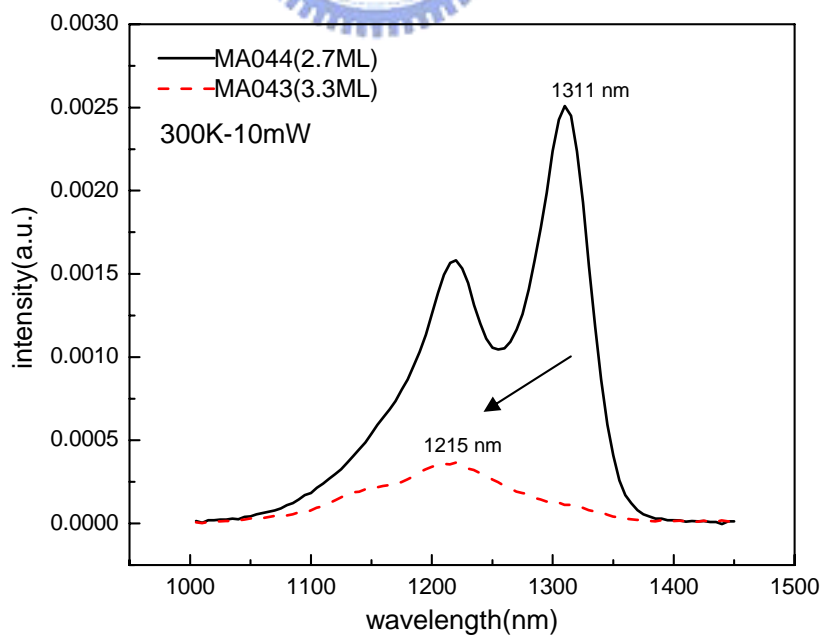


圖 3-3(b) 鬆弛與未鬆弛樣品室溫 PL 比較

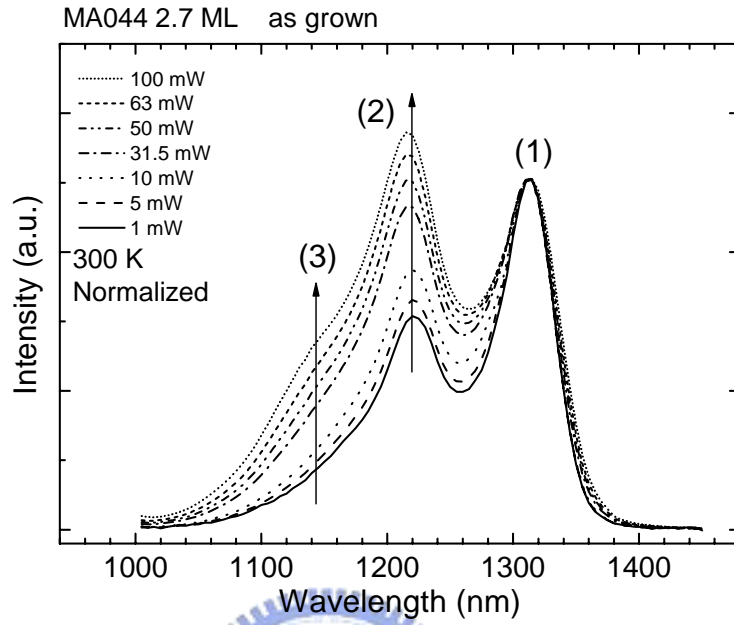


圖 3-4(a) 2.7 ML 樣品歸一化之變功率室溫 PL

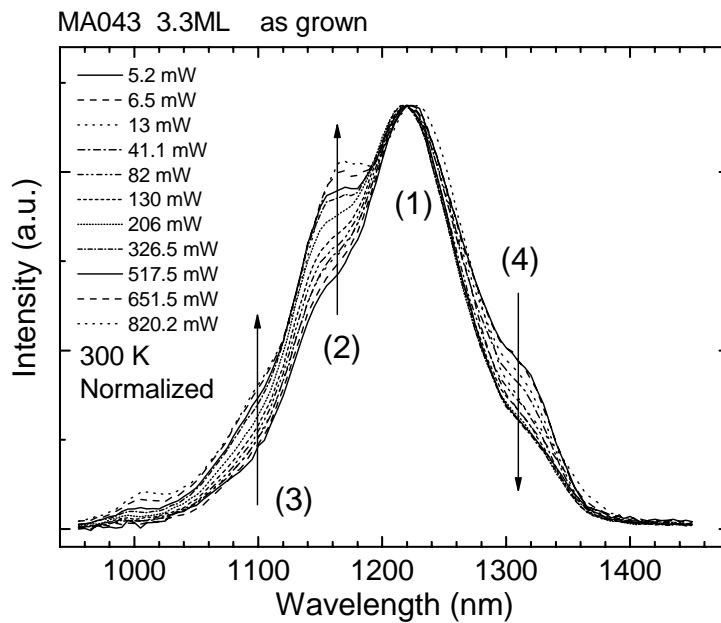


圖 3-4(b) 3.3 ML 樣品歸一化之變功率室溫 PL

第四章 熱退火的效應與量子躍遷的探究

本章是主要討論的重點，首先針對熱退火在光性與缺陷特性的影響作一初步的分析，缺陷的延伸探討並非本論文的重點，在此只是用來附加說明缺陷的演變及對量子躍遷的影響。接著分別做了一系列電性的量測與分析，進一步提出量子躍遷的證明，及其由高溫到低溫，躍遷機制的變化。

4-1 熱退火對光及缺陷的效應

4-1-1 PL 光性分析

以下我們將 3.3 ML 分別加以熱退火 650°C 及 700°C，共三片樣品去做光性及電性的比較。圖 4-1 為三片樣品之室溫 PL 比較，光激發功率皆為 3.3 mW，就強度與發光波長來說，三片樣品皆隨著熱退火溫度而有強度減弱與波長藍移的現象，這是由於熱退火造成 QD 界面處 In 與 Ga 原子的擴散(interdiffusion)，除了使能帶變的圓滑外，也使 QD 能階提升，因而侷限能力變差，PL 強度減弱，發光波長也藍移，這很符合 QD 的 PL 特性。另外由圖中也可得知熱退火 650°C 及 700°C，QD 基態波長藍移量與 as grown 比較分別約有 14.5 meV 與 39.2 meV。

圖 4-2(a)~(c)是三片樣品室溫大激發功率下的 PL 圖，經由 Gaussian 分布的擬合可分別得到各個能階相對應的波長，能階間的能量差距也顯示在圖中。圖 4-2(a) As grown 樣品分成最長波長那群與波長較小的另外一群，約有 71 meV 的差距，而三片樣品最多皆可擬合到第二激發態，能量差距也大約介在三十幾到五十幾 meV 等正常 quantum level 的差距，當然也隨著熱退火有能階提升以及間距縮小的現象。另外三片樣品都有一個最小波長微弱訊號，與前一波長有一百 meV 左右的差距，依據其發光波長與能帶的對應，推測是 cap layer 上的能階所發出的波段。

接下來說明 As grown 樣品長波長那一群經由熱退火後的效應：圖 4-3 為熱退火 650°C 及 700°C 室溫下 PL 圖，箭頭指出在長波段處有延伸的發光訊號，比 As grown

所見長波長那群寬的多，我們將三片樣品做背面訊號 PL 量測如圖 4-4，發現背景訊號在相同功率下也有一定的訊號強度，可對應到圖 4-3 長波長那段，因此此延伸的訊號應為背景訊號，這也可在圖 4-2(b)與(c)觀察到，而由於 As grown 本身 QD 訊號較強，背景訊號相形之下變的渺小。因此可歸納出 As grown 長波長那包 QDs 經由熱退火後，提高整體 QD 均勻度而被破壞掉，更加確定應力鬆弛後分成兩群 QDs。

接著圖 4-5(a)~(c)為三片樣品 0.13 mW 之變溫 PL 量測，在波長上皆有隨溫度升高而紅移以及強度減弱的現象，原因已曾探討過是由於 band gap 會隨溫度升高而變小，所以溫度上升波長會紅移，且高溫載子較活躍，易逃脫 QD 的侷限，減低 PL 強度。經由圖 4-5(a)~(c)不同溫度下半高寬的擬合，將結果呈現在圖 4-6，趨勢顯示熱退火會使 QD 均勻性增加，造成 PL 半高寬變小[38]，高溫則由於載子受熱跨到缺陷能階，經歷非輻射複合(nonradiative recombination)，造成強度減弱與半高寬增加[39]。

4-1-2 缺陷的演變

在此藉由 DLTS 與 C(t) measurement 來分析缺陷的特性及經由熱退火的演變。之前已分析過關於 3.3 ML As grown 樣品缺陷的特性[40]，是屬於會飽和的 point defect 而非 threading dislocation，在此就不再詳加說明。以下主要討論熱退火對缺陷的影響：

圖 4-7(a)~(c)分別是 3.3 ML As grown 與熱退火 650°C 及 700°C，固定 rate window 與 filling pulse，由表面的區域掃到較裡面超過 QD 區域的 DLTS 量測，不同偏壓範圍代表不同深淺的探測。圖 4-7(a)(b)所示，rate window 為 0.86 ms，filling pulse 為 80 ms，As grown 與熱退火 650°C 樣品上方 GaAs 均無缺陷訊號，直到 -2 V~-2.5 V 與 -1.5 V~-2 V 開始，才在溫度約 300 K 與 280 K 左右出現 peak，且訊號強度慢慢隨著量測範圍的深入而變大，到 -3 V~-3.5 V 有最強的缺陷訊號約為 0.3 pF，表示缺陷幾乎分佈在此偏壓區域；而圖 4-7(c)熱退火 700°C 的樣品則與前兩片樣品差距頗大，且 rate window 高達 215 ms，猜測由於熱退火溫度太高造成表面處形成一訊號很強的缺陷，濃度高達 0.8 pF，慢慢隨著偏壓的深入而減低強度，由於樣品本身特性不好，所以無

法再加大偏壓量測，但由之後其他電性的分析，我們斷定原先存在於 As grown 與熱退火 650°C 樣品的 GaAs 下層 misfit 缺陷仍然存在，影響載子躍遷。

接著我們針對 As grown 與熱退火 650°C 樣品在偏壓 -3 V~-3.5 V 的範圍，以及 700°C 樣品表面往下到 -2.5 V，每 0.5 V 間距，固定 filling pulse，變換不同 rate window 以求取相對應的 peak 溫度值，並將每組數據以 Arrhenius plot 求取每個偏壓範圍對應的活化能及捕捉截面積，所得之數據整理在表 4-1，由表中 As grown 與熱退火 650°C 在 -3 V~-3.5 V 之缺陷特性差不多，活化能也大約接近 400 meV 左右，但熱退火 700°C 表面附近所量到的缺陷，一直延續到 -2.5 V 以上，活化能都有 600 meV 以上，捕捉截面積也大得多，推測應該是個很深層、捕陷能力很強的缺陷。

接著對三片樣品做 C(t) 的量測，如圖 4-8(a)(b)(c)，先填充載子再空乏之，量測載子放射的過程。As grown 樣品及熱退火 650°C 為 -3 V~-3.5 V，由溫度 85.5 K~300 K 及 78K~100K 量測，熱退火 700°C 樣品為 -1.5 V~-2 V，在溫度 220 K~260 K 下量測。在此說明 As grown 與熱退火 650°C 樣品在 C(t) measurement 上看不到載子放射的過程，電容值隨著時間並無變化，可能的原因是缺陷在低溫不單純只有熱激發跳躍的情況，熱能不足可能導致穿遂等效應，也許缺陷穿遂得太快(ms 等級)，C(t) measurement 級數(s 等級)讀不到訊號。而圖 4-8(c)熱退火 700°C 之 C(t)量測到的缺陷在 Arrhenius plot 上與 DLTS 量測數據可相連接，因此為同一來源，猜測也因為穿遂效應使得分析出的活化能較 DLTS 量測值小；而在 C(t)的圖形上也看出熱退火 700°C 的暫態電容值會隨時間趨向一定值，表示此缺陷捕捉載子有飽和的程度。

我們把三片樣品與之前研究的整理[41]互相比較如圖 4-9，發現 As grown 與熱退火 650°C 樣品在 -3 V~-3.5 V 處的缺陷類型較接近之前定義的 E2 misfit 缺陷，而熱退火 700°C 樣品表面處的缺陷雖然接近 E1 threading 缺陷，缺陷也有由表面往裡層延伸的現象，但 Arrhenius plot 仍有一小段差距，且圖 4-10 對熱退火 700°C 不同填充偏壓的 DLTS 分析中顯示此缺陷會達飽和，因此判斷非 E1 threading 缺陷，有可能是過於熱退火導致表面處生成 As 的點缺陷(point defect)。針對以上缺陷還必須作進一步探討。

4-2 電容電壓量測與能帶頻譜探討

在本節中首先比較熱退火後的三片樣品電容電壓的量測，來探究缺陷的影響及量子躍遷的變化。接著利用 C-F 量測，討論 QD 能帶寬度，並配合光性及電容電壓上量測的結果，加以證明導納頻譜量測到的量子躍遷訊號。

4-2-1 熱退火之電容電壓比較

圖 4-11 為 3.3 ML As grown 與熱退火 650 及 700°C 三片樣品低溫 110K 下不同頻率的 C-V 圖，而經由其轉化的縱深分佈圖則如圖 4-12 所示。不討論剛開始偏壓下隨頻率變大串聯電阻影響造成的電容值下降的話，可發現三片樣品在 -2 V~-3V 左右及末端的大偏壓下都有平台的現象，表示此處有載子堆積的情形，從縱深圖可以很清楚看到。先討論前面那個有頻率響應的平台：頻率響應的情形代表三片樣品所侷限載子躍遷的頻率在高頻時會趕不上，已經失去原本正常 QD 所有頻率皆可趕上的躍遷特性，而且隨著熱退火溫度升高，平台起始偏壓也較早，較早掃到 QD，且侷限載子的偏壓起始大致上由 As grown 的 -2 V、熱退火 650°C 的 -1.8 V 到熱退火 700°C 的 -1.75 V，所有載子都被掃出之偏壓則取在平台整個結束之處[42,43]，分別為 As grown 的 -3.4 V、熱退火 650°C 的 -3.2 V 到熱退火 700°C 的 -2.6 V，此時才恢復正常 Schottky band，由此可合理以量子侷限解釋：熱退火使量子能階提升，侷限載子能力變弱，致使偏壓較早掃到 QD 處，且平台較短，載子累積在 QD 較少。另一方面，以 As grown 樣品來舉例，當載子在 -3.4 V 全被掃出後，很快就馬上空乏到缺陷能階，所以 DLTS 在 -3~-3.5V 掃出最大的缺陷訊號。

而圖 4-12 的縱深分佈圖則顯示在 QD 位置約 0.2 μm 左右(電性量測容易受到樣品電阻或漏電流影響，QD 位置些許偏移)有隨頻率消長的 peak，表示載子在高頻有跟不上量測頻率的現象，躍遷的速率並不像量子躍遷快，而趕不上頻率的載子在之後的空乏區中被 DC bias 掃出，之後我們所做的量測都支持此 peak 為量子躍遷的說法，而這些樣品存在的缺陷正是影響量子躍遷的一大主因。Peak 位置往後移是串聯

電阻效應，而且缺陷捉住自由載子除了造成後面產生一大範圍的空乏區外，在 0.35 μm 左右也出現缺陷訊號，載子濃度急遽上升。

4-2-2 導納頻譜分析及能帶頻寬

本節之後開始進入研究重點，我們在 C-V 量測所看到的電容平台及頻率響應的現象，因此進一步在此偏壓範圍進行 C-F 導納頻譜量測，並畫成 G/F vs. F，如圖 4-13，每個偏壓都將會得到多組頻率的 C-F 反曲點及 G-F 峰值，配合量測的溫度，來探討此區域的載子躍遷情形，圖 4-14 即三片樣品 C-F 量測所繪之 Arrhenius plot，三片樣品都可以大致區分為高溫與低溫兩部份，差別只在斜率與截距的不同，高溫部份與一般量測所見之 Arrhenius plot 分析相同，可針對不同偏壓以公式求出活化能及捕捉截面積，結果列於表 4-2 中，三片樣品皆有活化能隨著偏壓的深入而升高的趨勢，就載子被侷限的整體區域範圍來看：活化能有隨著熱退火溫度升高而變小的趨勢，與熱退火對量子點的影響相符，量子能階的抬升初步顯示 C-F 所量測到的量子訊號。捕捉截面積相較於 DLTS 量測到的缺陷訊號稍小，也隨偏壓加大造成的電場變化而改變，在下節將進一步分析；而低溫部份則斜率轉為負值，已無跳躍而上的活化能，之後針對高低溫也會更加詳細的探討。

由於量子點的均勻性及應力鬆弛後 QD 變的較粗糙等因素，每一 QD 中的能階位置皆不同，因此能階會變寬(broaden)似能帶，能階太靠近的甚至可能會 overlap，造成隨著偏壓的深入，C-F 的量測掃到的是準連續變化的能帶，基態與激發態很難解析出來。以下接著討論能帶頻譜寬度各個量測上的對應：

首先把前面量測過的室溫 C-V 轉縱深分佈圖中 QD 的 peak 下的面積，以較符合的 Lorentz 公式來擬合，求出所侷限載子的濃度，由 As grown 到熱退火 650°C 與熱退火 700°C 分別為 $2.78 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 、 $2.69 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 與 $2.06 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 。而與 QD 密度 $3 \sim 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 比較下，可得每顆 QD 可侷限的載子數，另外量子力學對對稱的 QD 公式 $E = \hbar^2(n_x^2 + n_y^2 + n_z^2) / 2m$ 計算出每個能階所佔電子數(考慮自旋)：基態 2 顆電子、第一

與第二激發態接 6 顆電子，對應之下 As grown 與熱退火 650°C 大約填 2~3 個 QD level，熱退火 700°C 則約填 2 個 level，這與 PL 上所激發的 2~3 個 peak 相符。另外表 4-3 也說明了 PL 與 C-F 量測上相呼應之處(單位皆是 meV)，在 QD 偏壓附近，C-F 量測到的活化能分別為 As grown 樣品的 90.6 meV~212.7 meV、熱退火 650°C 的 86.3 meV~192.7 meV、及熱退火 700°C 的 51.7 meV~164.3 meV，推論是由激發態往下掃到基態的能量範圍；而由圖 4-1 室溫 PL 量測所擬合的基態與激發態的半高寬以及總和的能帶寬也分別列於表 4-3 中，與 C-F 總和的能帶寬相比較，寬度皆在一百 meV 上下。另外若針對不同熱退火溫度之間來比較：C-F 量測掃完基態的活化能(as grown:212.7 meV)經由熱退火分別有藍移 20 meV 與 28 meV 的現象，也大致與圖 4-1 室溫 PL 基態的藍移量 14.5 meV 與 24.7 meV 呼應，以上說明了光與電量測上相符合之處。

另一方面，電性量測並不像 PL 可以很容易解析出基態與激發態的躍遷，樣品本身及電極好壞等因素，影響到電性量測上的解析度，以致縱身分布上的 quantum peak 通常混為一包。圖 4-15(a)(b)即為 2.7 ML 之 C-V 與縱深圖，由於樣品大偏壓會有漏電流的效應，我們在鍍電極前將樣品表面做蝕刻的動作，因此約在 0.5 V 就掃到 QD 區域，圖 4-15(b)的縱深圖顯示的 quantum peak 並不對稱，混有基態與激發態的訊號，如箭頭所指，但無法明顯的解析出來；而應力鬆弛後的 3.3 ML 卻可由低溫的電性量測解析出兩個 peak，如圖 4-16(b)，參考文獻[42,43]，分析 C-V 量測兩個平台尾端位置約 -2.25 V 與 -3.4 V，如圖 4-16(a)箭頭處，配合 C-F 量測到的活化能在 -2.2 V 與 -3.4 V 分別是 119.35 meV 與 212.74 meV，大致對應到第一激發態與基態能帶尾端位置，配合表 4-2 C-F 量測一系列偏壓的活化能，估計 QD 中的能帶插於圖 4-16(a)中。在此說明 QD 中能帶的寬度，在電性上很難準確解析確切的能階。

4.3 高溫躍遷與低溫穿遂

為了更進一步探討載子的躍遷機制，我們藉由之前 C-F 的量測數據，首先對三片樣品做躍遷時間對溫度倒數關係圖，如圖 4-17 所示，其中縱軸取對數以方便分析。而 emission rate 可由兩部分組成，即 $e_n = e_{\text{tun}} + e_{\text{th}}$ [44]，其中 e_{tun} 為低溫的穿遂率[45]，而 e_{th} 則為熱激發率，分別由以下公式表示：

$$e_{\text{th}}(T, F) = \gamma T^2 \sigma_n \exp\left[-\frac{E_a}{kT}\right] \quad (4-1)$$

$$e_{\text{tun}} = \frac{qF}{4\sqrt{2m^*E_h}} \exp\left[-\frac{4}{3} \frac{\sqrt{2m^*E_h^3}}{q\hbar F}\right] \quad (4-2)$$

其中對 n-type GaAs， γ 為 $2.28 \times 10^{20} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-2}$ (與溫度無關的常數)、 F 為電場、 E_h 為穿遂能障(tunneling barrier height)，由上面公式得知：固定某一偏壓，即固定電場時，低溫穿遂率 e_n 為一定值， e_{th} 則是溫度的函數，而且隨溫度降低對 e_{th} 效應減小，轉由 e_{tun} 主導，圖 4-17 很清楚說明高溫時載子熱激發而上，溫度下降後慢慢轉為時間固定的穿遂現象，低溫又大偏壓下會因為穿遂時間過長儀器無法量測。我們利用上面提到的公式，以及 Mathematica 繪圖軟體，針對圖 4-17 數據來擬合，結果如圖 4-18，其中電場是以金半接面結構的理論來計算，普遍約在 10^6 V/m 的等級，小偏壓下擬合結果與實驗數據是符合的，但有些偏壓溫度轉折處也許因載子躍遷機制並非如此單純，所以擬合結果較不符合。將低溫穿遂時間的數據帶入(4-2)式後，所求得之 tunneling barrier height E_h 與高溫 C-F 量測所求得之活化能數據相去不遠，表示此確實為高低溫不同機制的量子躍遷：高溫時載子有足夠熱能跳上導帶，而低溫則以穿遂現象為主。因此我們藉由一系列不同偏壓量測之高溫活化能數據，帶入低溫穿遂公式，以彌補實驗上無法量測低溫大偏壓的不足，求得低溫穿遂的時間，列於圖 4-18 右側。大體看來，偏壓由大到小，穿遂時間由 $10^{-3} \text{ s} \sim 10^{-6} \text{ s}$ ，分別是由基態與激發態穿遂出去，且隨熱退火溫度上升導致的能階提升，時間些微減小，但等級是差不多的，也與文獻上低溫 40 K 下量子躍遷時間 $\sim 10 \text{ ms}$ 數量級差不多[46]。

為了更加證明以上所論述的量子躍遷機制，我們參考其他文獻進一步去分析。

首先在高溫熱激發公式(4-1)中的捕捉截面積 σ_n 有以下關係式[47]：

$$\sigma_n = \sigma_{F=\infty} \exp\left[-\frac{4}{3\hbar Fq} \sqrt{2m^* E_B^3}\right] \quad (4-3)$$

$\sigma_{F=\infty}$ 是與電場無關的捕捉截面積， E_B 為載子穿遂前所見之三角形狀的能障(triangular barrier)，將(4-3)式做簡單的數學運算後，改為下面形式：

$$\ln \sigma_n = \ln \sigma_{F=\infty} - \frac{1}{F} \frac{4}{3\hbar q} \sqrt{2m^* E_B^3} \quad (4-4)$$

再利用表 4-2 C-F 高溫量測求得不同偏壓(對應不同電場)下的捕捉截面積，取對數後對電場倒數做圖 4-19，則可以用直線擬合出能障 E_B 及 $\sigma_{F=\infty}$ ，所求分別為 As grown 的 $E_B=5.97 \times 10^{-6}$ meV、 $\sigma_{F=\infty} = 2.98 \times 10^{-16}$ cm²，及熱退火 650°C 的 $E_B = 3.44 \times 10^{-6}$ meV、 $\sigma_{F=\infty} = 2.22 \times 10^{-16}$ cm²，一般量子躍遷都是先往上跳躍再穿遂出去的兩階段式躍遷 [43,48]，所以會有一穿遂能障 E_B ，如圖 4-19 插於右上之能帶示意圖，文獻上以(4-4)式算法估計出的能障約為 48 meV[48]，但 3.3 ML 樣品估出之 E_B 小到幾乎可忽略，因此可說載子高溫幾乎無穿遂現象。

另外我們也將低溫穿遂時間對 C-F 量測之高溫活化能做圖，如圖 4-20 所示，考慮(4-2)式，其實低溫的穿遂率受 tunneling barrier height E_h 的影響較電場大，因此若不考慮電場的變數，可用(4-2)式擬合圖 4-20 的數據，且大致符合，因此也可說明其實低溫的 tunneling barrier height E_h 與高溫活化能 E_a 是相對應的。由以上皆證明了載子高溫直接上跳至導帶的說法。

至於缺陷改變載子躍遷機制的因素，由圖 4-21 與圖 4-22 的縱深濃度分布以及簡單的能帶示意圖很容易區分出未鬆弛與鬆弛的樣品差別，最主要是鬆弛後的 3.3 ML 樣品產生的缺陷空乏了 QD 的載子，在縱深圖(箭頭處)產生一很大空乏區，有別於正常 QD 空乏載子的量。如此大的空乏區造成能帶突起，阻止了原本 quantum emission 的特性，載子無法穿遂出去，於是高溫時便直接跳上至 GaAs 導帶；低溫載子熱能不足便顯現穿遂的特性。

最後我們根據以上光性及電性量測，配合其他參考資料及數學運算，繪出室溫下 2.7 ML 及 3.3 ML 能帶結構圖 4-23 及圖 4-24，其中虛線箭頭是光性量測結果、

Conduction band offset 值 $\Delta E_c=0.69$ eV[49]。圖 4-23 中 E_{e1} 到 GaAs 導帶距離 0.230 eV 是參考 Grundmann 文獻上[23]的理論計算值(使用 CM mode, QD base length 18 nm)、基態激發態能階差 57 meV 為電性量測值[50]；而圖 4-24 中 E_{e0} 到 GaAs 導帶距離 0.213 eV 是由 C-F 電性量測高溫活化能得來、基態激發態能階差 61 meV 為之前 C-F 量測之活化能對照 C-V 平台尾端偏壓所估之值。由之前室溫下 PL 量測 2.7 ML 到 3.3 ML 基態能量約藍移 71 meV 左右，若忽略價帶能階的值，對應到圖 4-23 與圖 4-24 中 E_{e0} 到 GaAs 導帶距離差距約 74 meV 可謂相當接近。



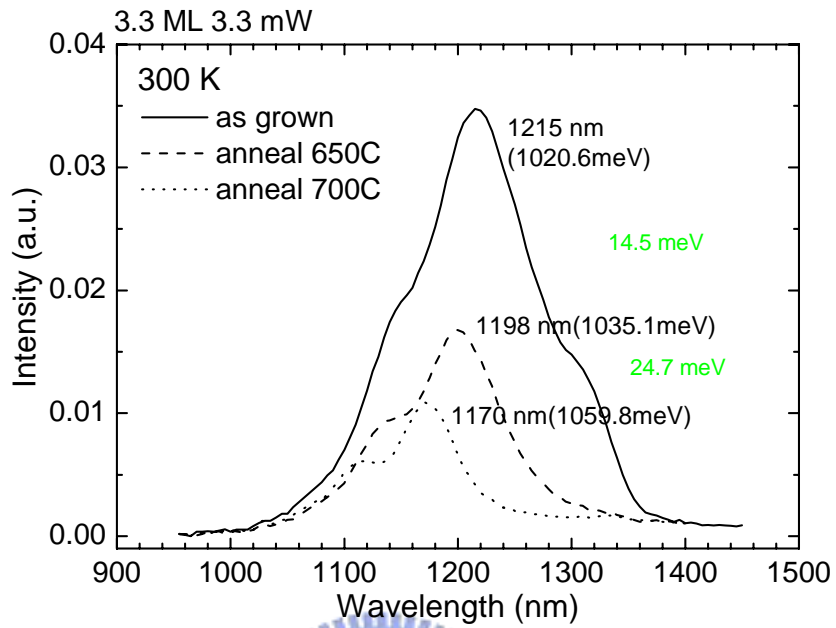


圖 4-1 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度之室溫 PL

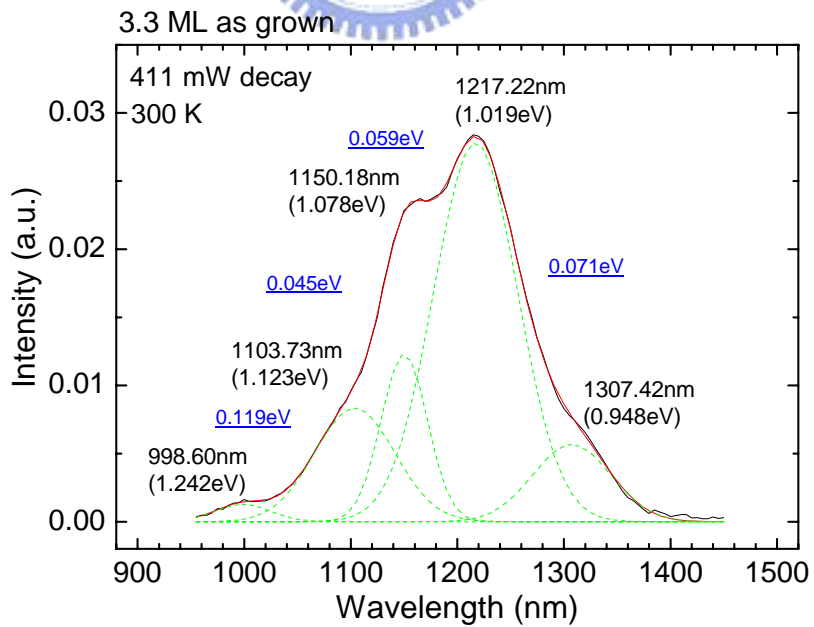


圖 4-2(a) 3.3 ML as grown 樣品之室溫大功率 PL

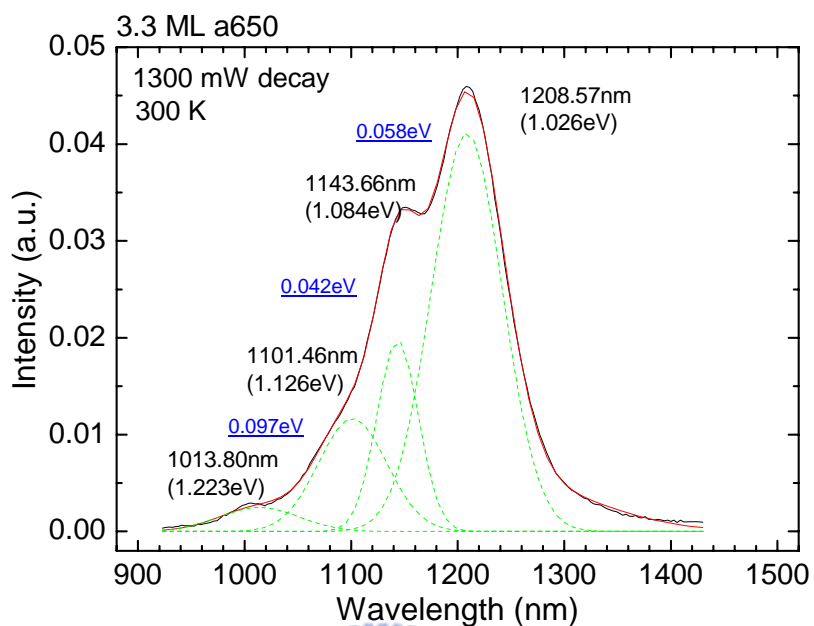


圖 4-2(b) 3.3 ML anneal 650 樣品之室溫大功率 PL

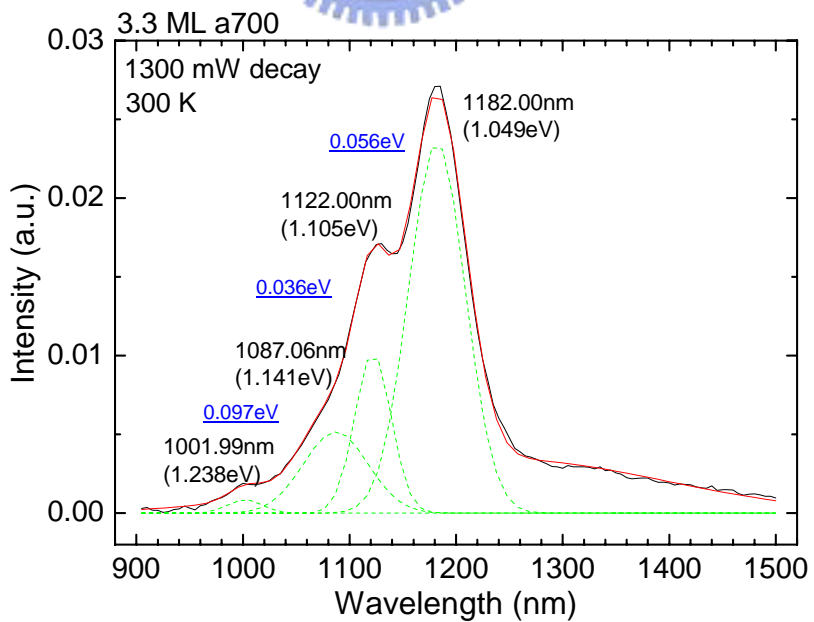


圖 4-2(c) 3.3 ML anneal 700 樣品之室溫大功率 PL

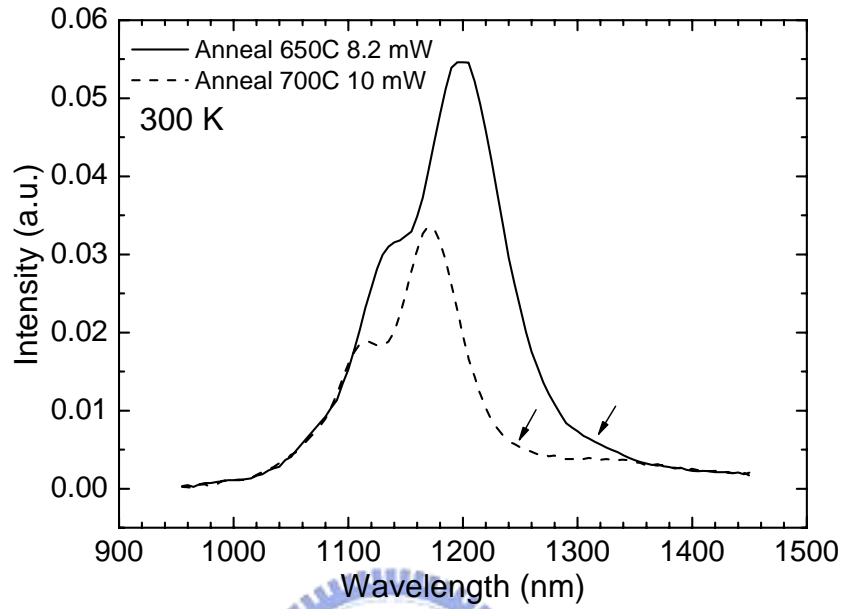


圖 4-3 3.3 ML anneal 650 與 700 樣品室溫 PL

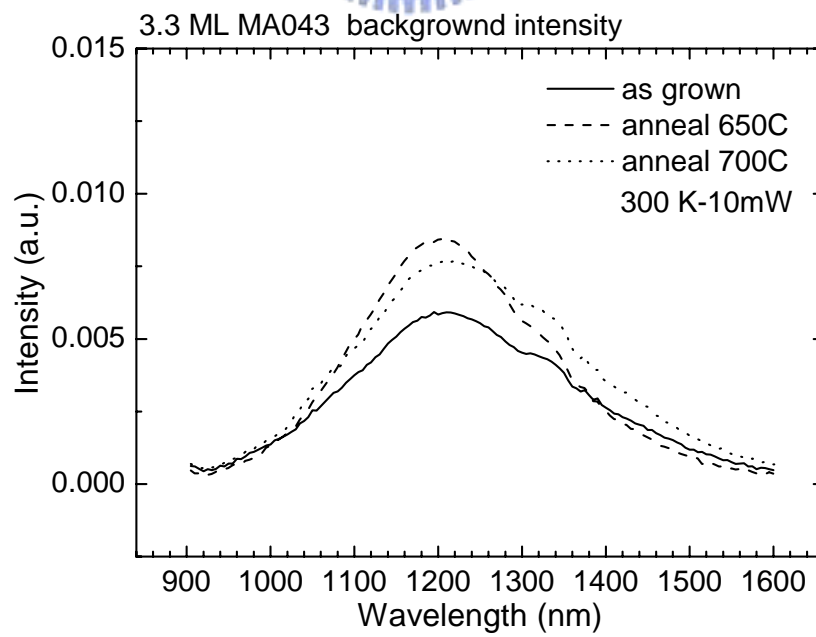


圖 4-4 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度背面訊號 PL

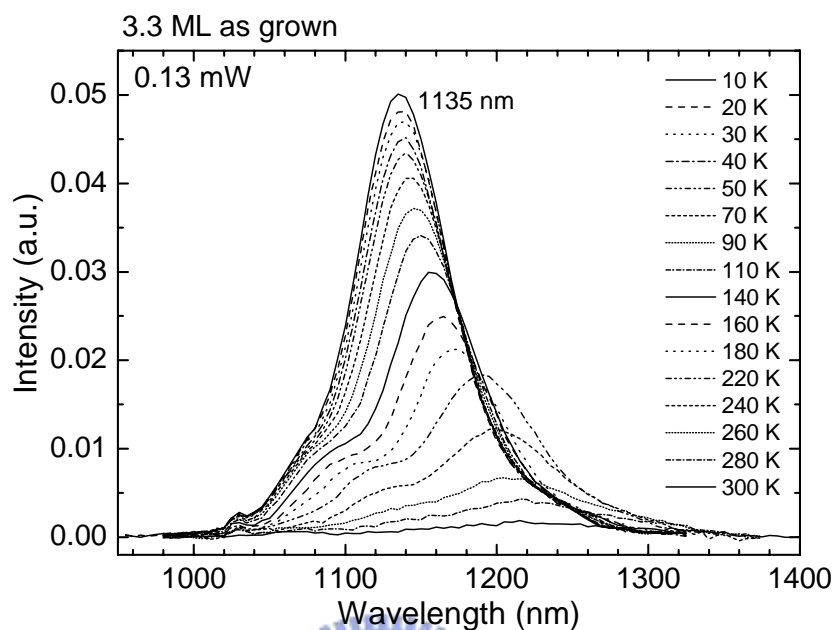


圖 4-5(a) 3.3 ML as grown 樣品 0.13 mW 之變溫 PL

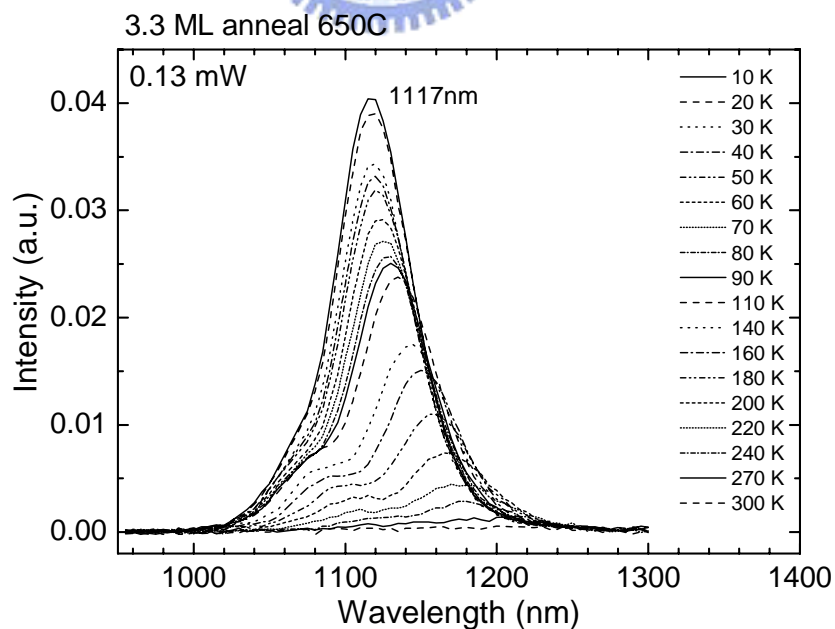


圖 4-5(b) 3.3 ML anneal 650 樣品 0.13 mW 之變溫 PL

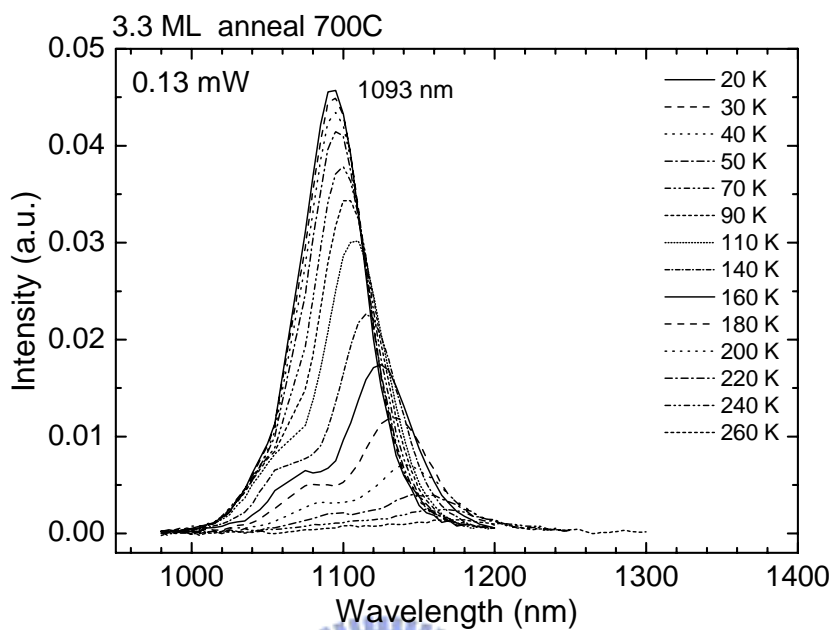


圖 4-5(c) 3.3 ML anneal 700 樣品 0.13 mW 之變溫 PL

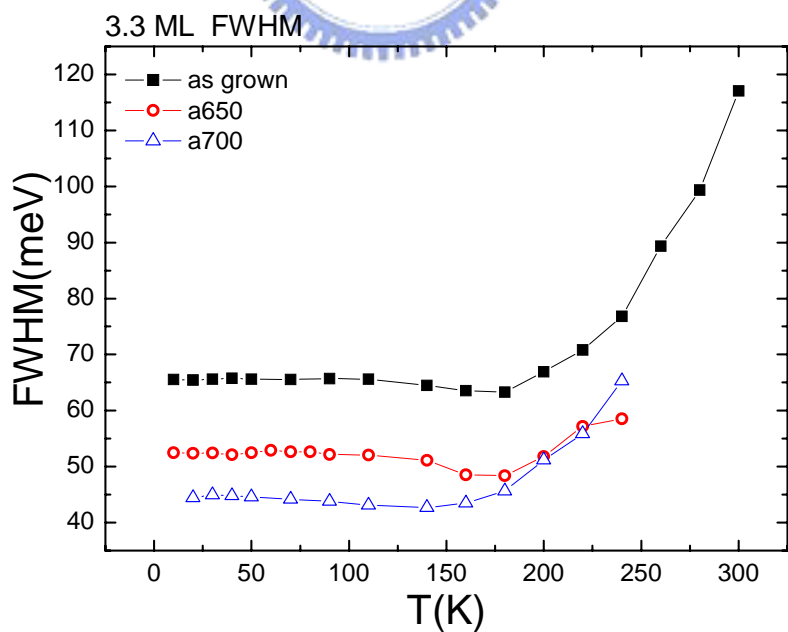


圖 4-6 3.3 ML 樣品不同熱退火溫度半高寬隨溫度變化圖

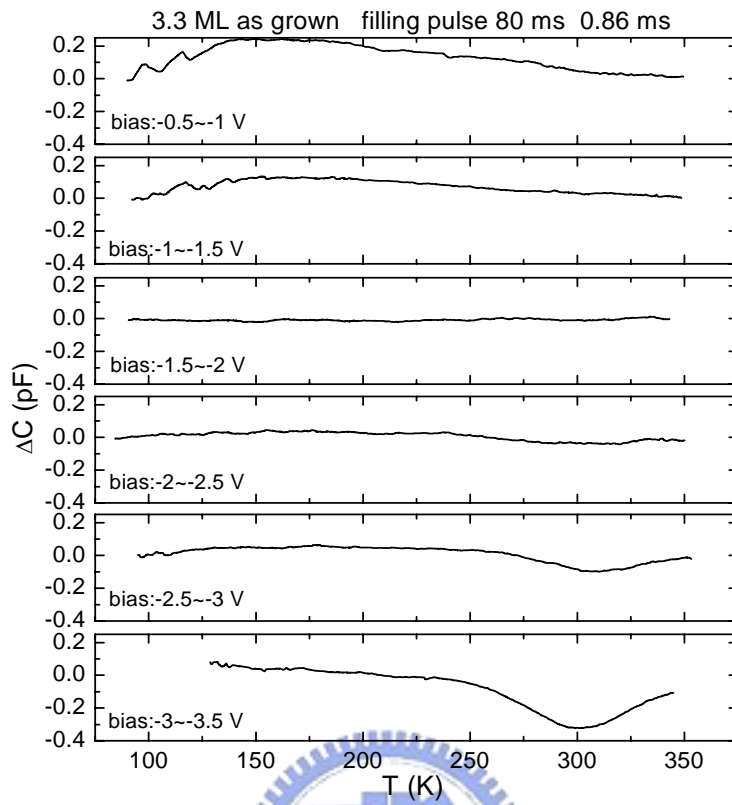


圖 4-7(a) 3.3 ML As grown 樣品不同偏壓範圍下 DLTS

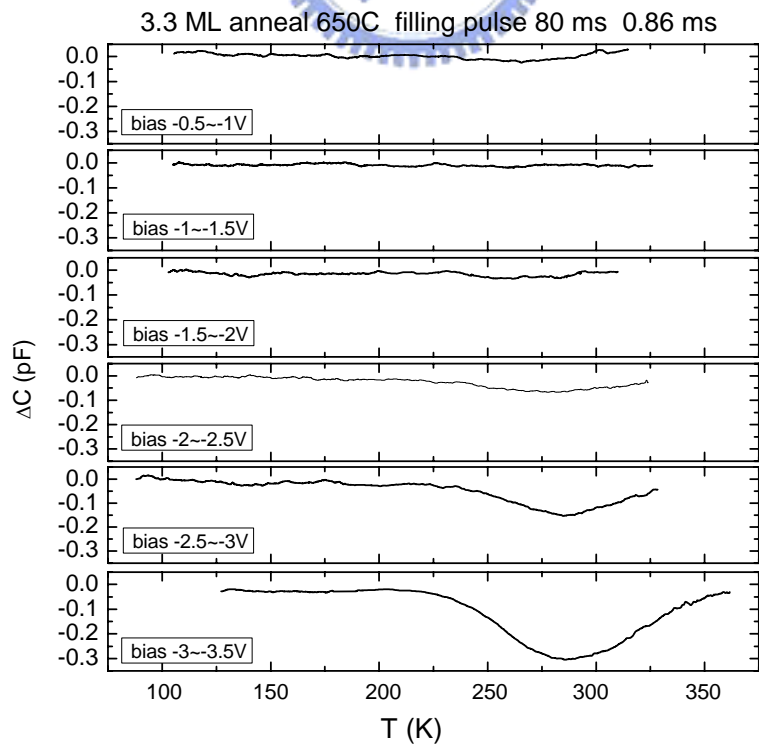


圖 4-7(b) 3.3 ML anneal 650 樣品不同偏壓範圍下 DLTS

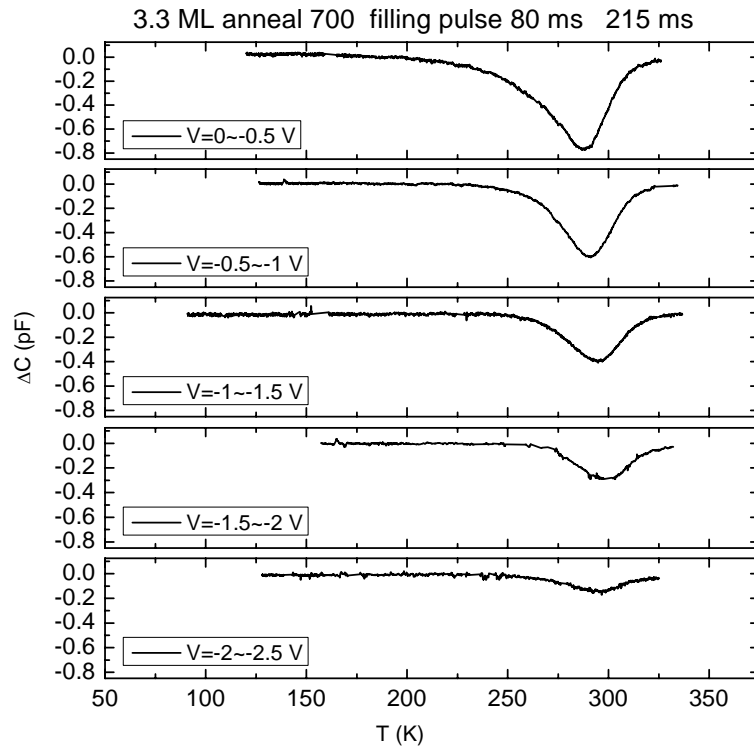


圖 4-7(c) 3.3 ML anneal 700 樣品不同偏壓範圍下 DLTS

表 4-1 3.3 ML 系列樣品 DLTS 分析之活化能及捕捉截面積

| MA043 (3.3 ML) | Bias (V) | Ea (meV) | Capture Cross section(cm ²) |
|-------------------|-------------|-------------|--|
| As grown | -3~-3.5 | 383 | 1.42×10 ⁻¹⁶ |
| A 650C | -3~-3.5 | 355 | 8.05×10 ⁻¹⁷ |
| A 700C | 0~-0.5 | 609.5 | 1.170×10 ⁻¹⁴ |
| | -0.5~1 | 627.8 | 1.823×10 ⁻¹⁴ |
| | -1~-1.5 | 638.0 | 1.893×10 ⁻¹⁴ |
| | -1.5~-2 | 627.3 | 9.142×10 ⁻¹⁵ |
| | -2~-2.5 | 651.4 | 3.420×10 ⁻¹⁴ |

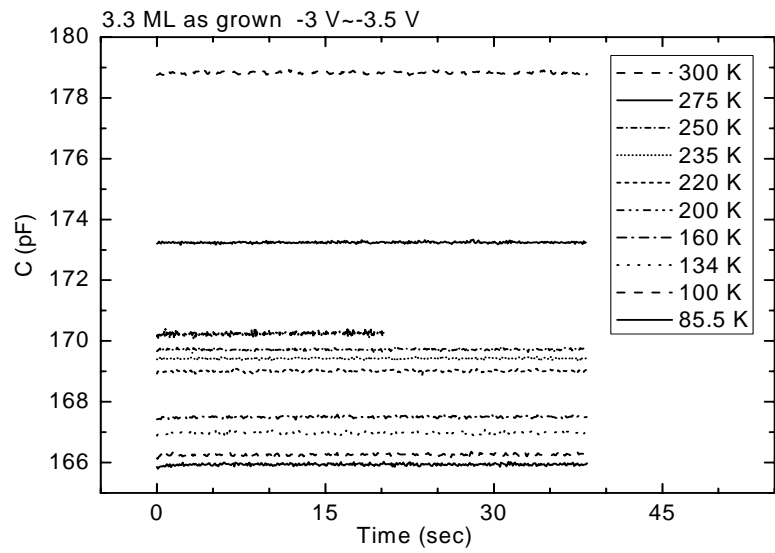


圖 4-8(a) 3.3 ML As grown 樣品不同溫度 C(t)量測

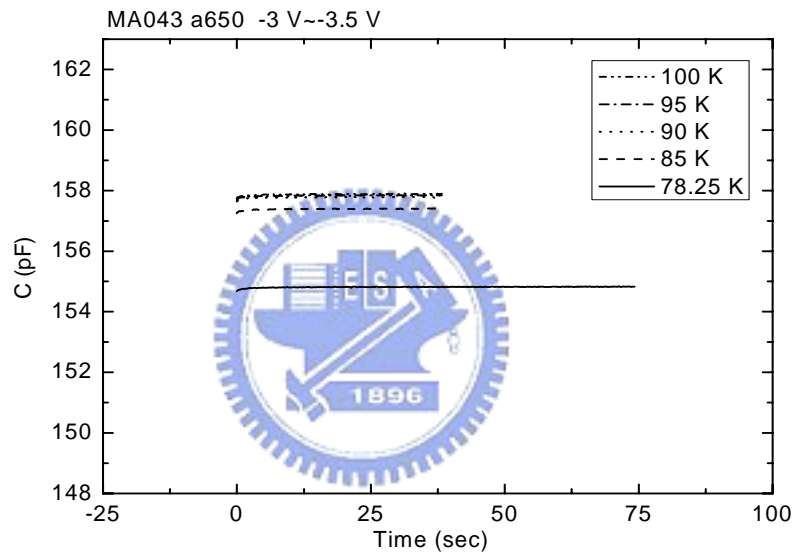


圖 4-8(b) 3.3 ML 熱退火 700°C 樣品不同溫度 C(t)量測

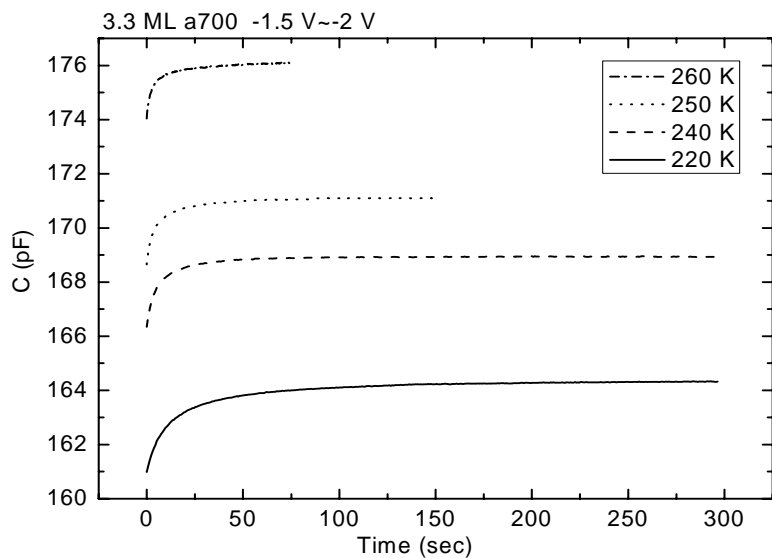
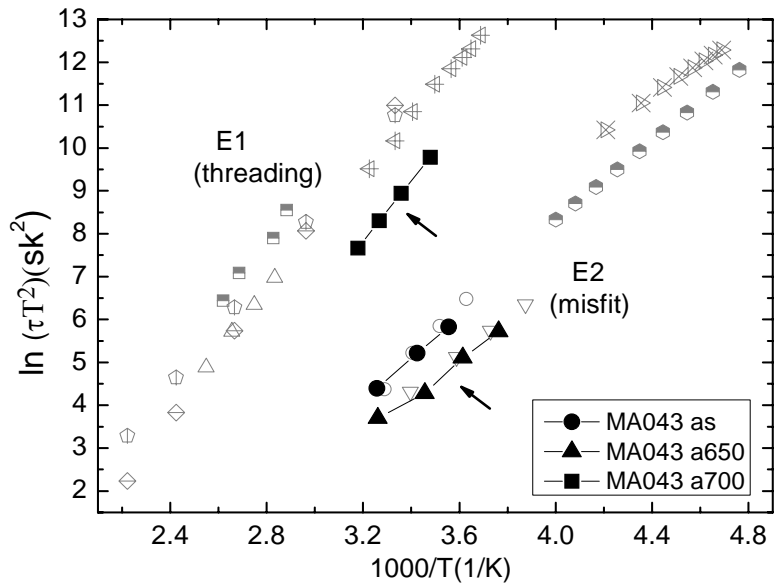


圖 4-8(c) 3.3 ML 熱退火 700°C 樣品不同溫度 C(t)量測



- 2.8ML InAsSb QDs(E1:0.64eV,2.11e-15cm²)
- 2.8ML InAsSb QDs(E2:0.35eV,1.18e-17cm²)
- △ 3.4ML InAs QDs(E1:0.63eV,3.9e-15cm²)
- ▽ 3.4ML InAs QDs(E2:0.37eV,1.26e-16cm²)
- ⊕ 1000A In_{0.2}Ga_{0.8}As QW(EA:0.53eV,1.1e-12cm²)
- ⊗ 1000A In_{0.2}Ga_{0.8}As QW(ED:0.33eV,1.4e-18cm²)
- ◇ Wosinski et al. GaAs bulk(ED1:0.68eV,2e-14cm²)
- ⊕ Buchwald et al. 1000A In_{0.083}Ga_{0.917}As QW(0.58eV,5.3e-16cm²)
- ⊕ Uchida et al. 700A In_{0.2}Ga_{0.8}As QW(0.395eV,1e-16cm²)

圖 4-9 3.3 ML 系列樣品缺陷之 Arrhenius plot 與其他材料比較

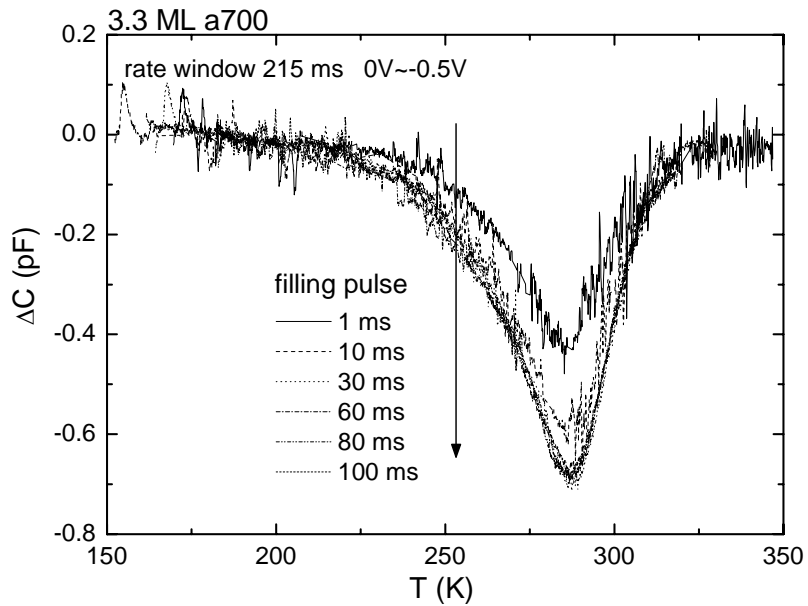


圖 4-10 3.3 ML 熱退火 700°C 樣品表面處不同填充偏壓之 DLTS

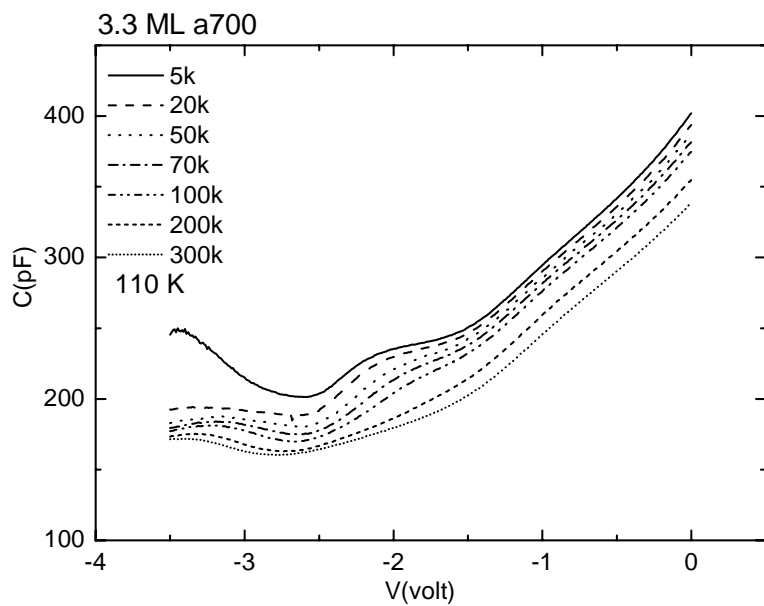
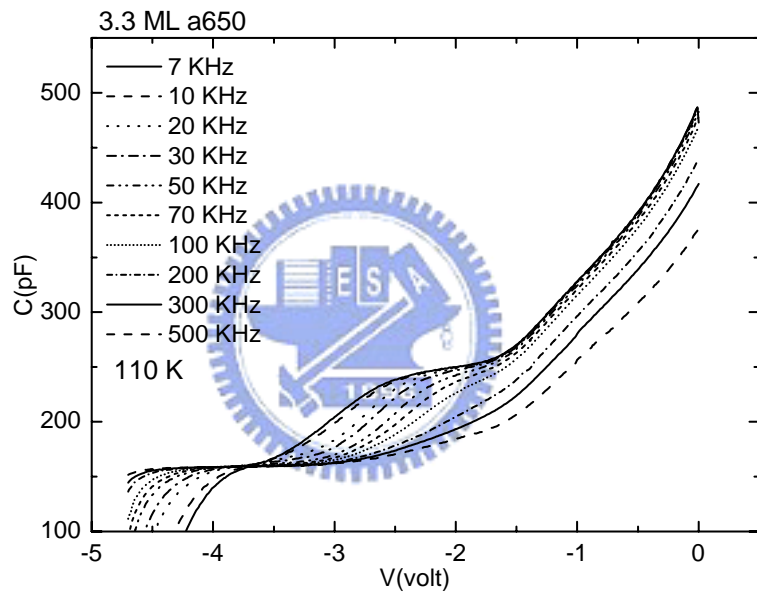
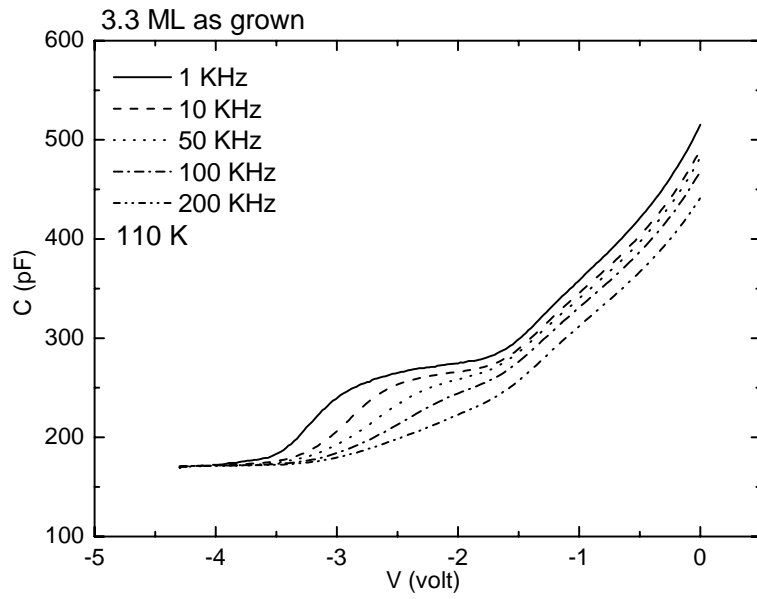


圖 4-11 3.3 ML 系列樣品低溫電容電壓變頻量測

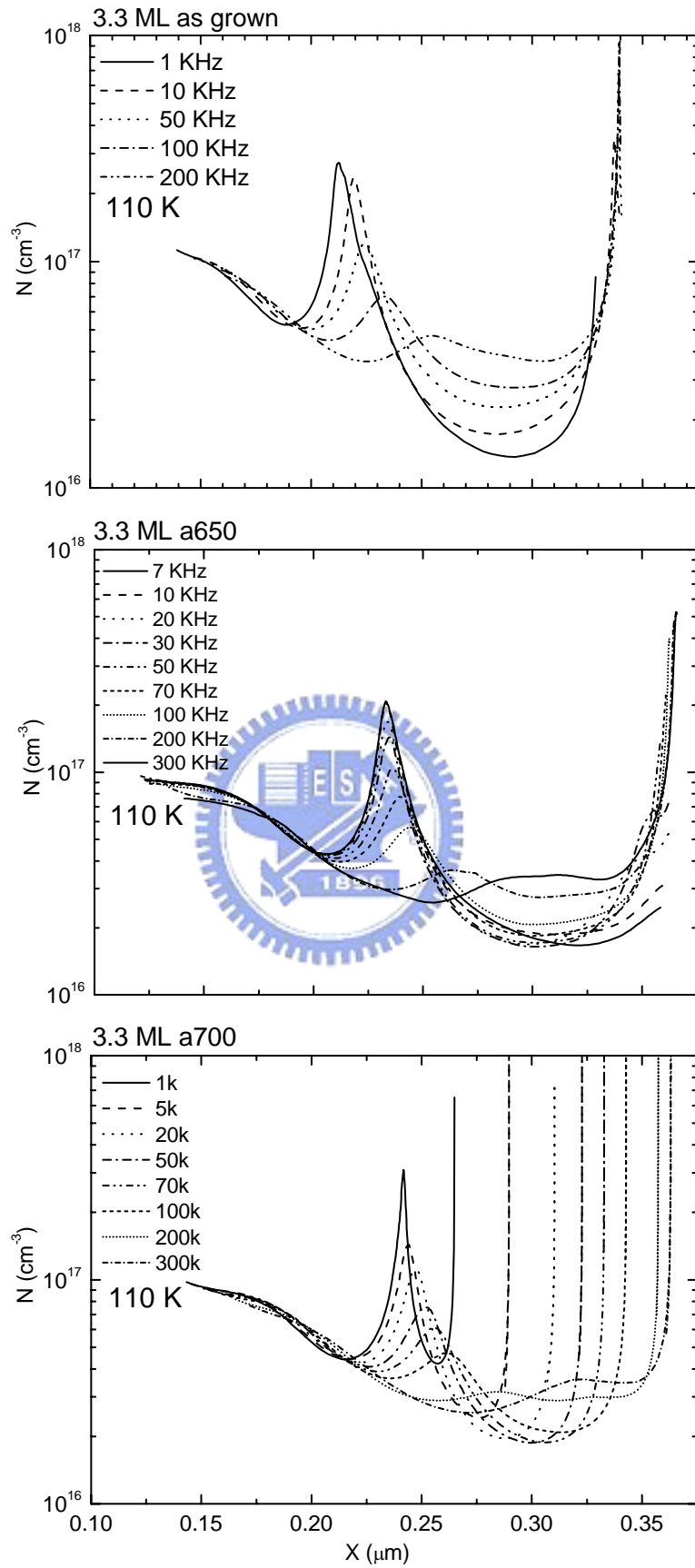


圖 4-12 3.3 ML 系列樣品低溫變頻縱深圖

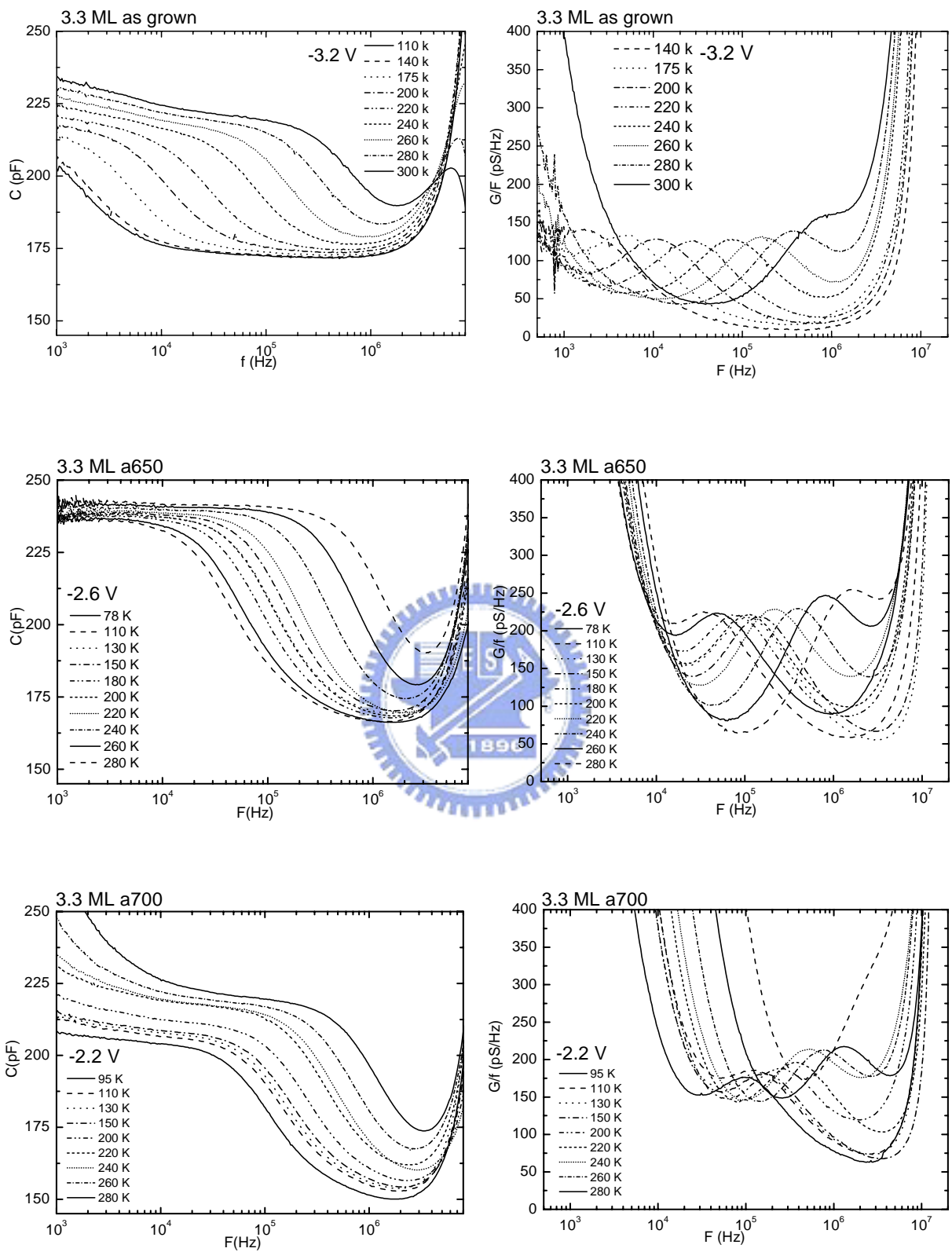


圖 4-13 3.3 ML 系列樣品 C-F(左)與 G/F vs. F(右)之量測

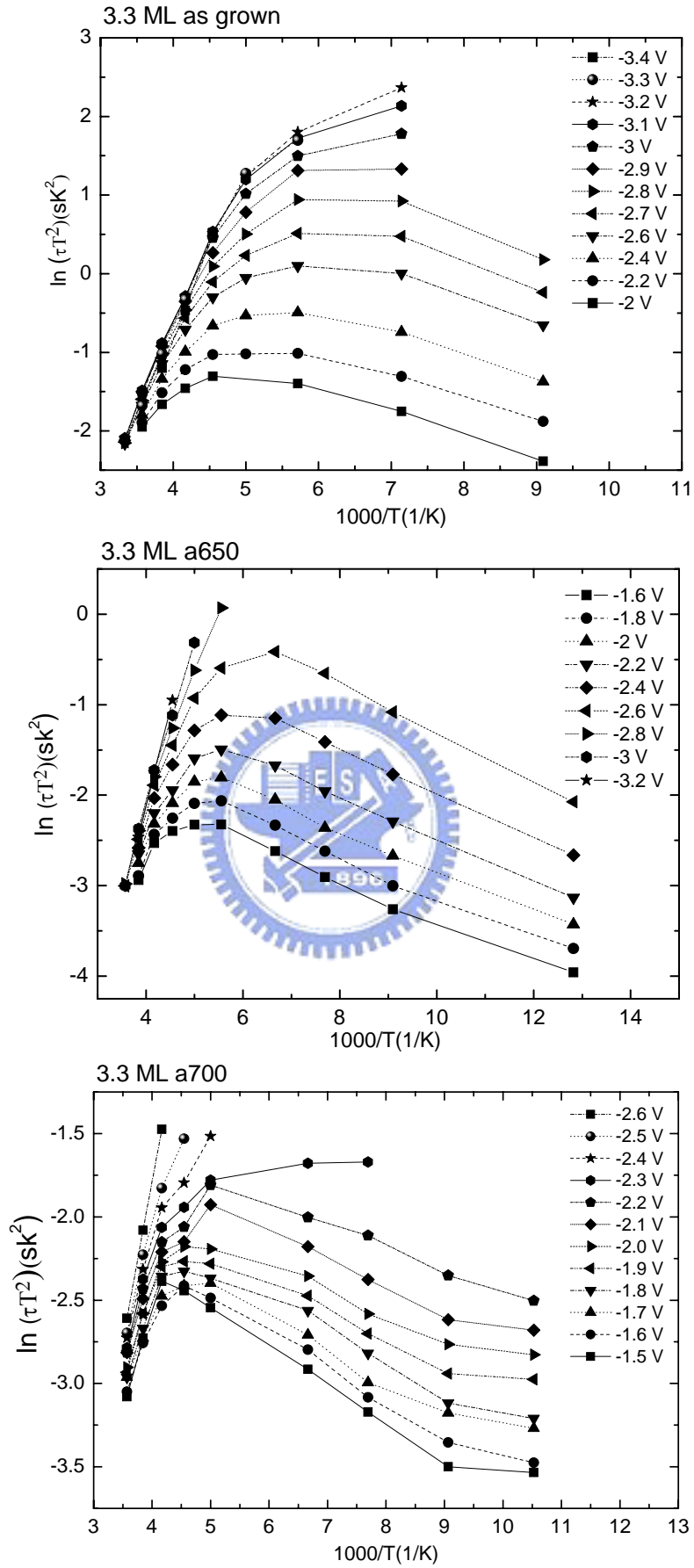


圖 4-14 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測各偏壓之 Arrhenius plot

表 4-2 3.3 ML 系列樣品 C-F 分析之活化能與捕捉截面積

3.3 ML As grown

| Bias (V) | Ea (meV) | Capture Cross section (cm²) |
|-----------------|-----------------|---|
| -2 | 90.64 | 1.97×10^{-20} |
| -2.2 | 119.35 | 4.09×10^{-18} |
| -2.4 | 144.03 | 1.03×10^{-17} |
| -2.6 | 169.47 | 2.64×10^{-17} |
| -2.8 | 191.56 | 6.18×10^{-17} |
| -3.0 | 200.27 | 8.11×10^{-17} |
| -3.2 | 201.88 | 8.75×10^{-17} |
| -3.4 | 212.74 | 1.96×10^{-16} |

3.3 ML Anneal 650°C

| Bias (V) | Ea (meV) | Capture Cross section (cm²) |
|-----------------|-----------------|---|
| -1.3 | 86.3 | 2.81×10^{-18} |
| -1.4 | 92.77 | 3.66×10^{-18} |
| -1.6 | 109.87 | 1.11×10^{-17} |
| -1.8 | 122.61 | 1.87×10^{-17} |
| -2.2 | 122.61 | 1.48×10^{-17} |
| -2.4 | 148.10 | 4.29×10^{-17} |
| -2.6 | 161.21 | 7.00×10^{-17} |
| -2.8 | 171.22 | 1.02×10^{-16} |
| -3.0 | 184.92 | 1.84×10^{-16} |
| -3.2 | 192.71 | 2.78×10^{-16} |

3.3 ML Anneal 700°C

| Bias (V) | Ea (meV) | Capture Cross section (cm²) |
|-----------------|-----------------|---|
| -1.5 | 51.67 | 2.91×10^{-19} |
| -1.7 | 70.42 | 1.56×10^{-18} |
| -1.8 | 87.45 | 3.15×10^{-18} |
| -2.0 | 91.60 | 3.51×10^{-18} |
| -2.2 | 95.53 | 3.72×10^{-18} |
| -2.4 | 112.78 | 7.02×10^{-18} |
| -2.6 | 164.30 | 5.36×10^{-17} |

表 4-3 3.3 ML 系列樣品 C-F 與 PL 量測之能帶寬對照

| (meV) | as grown | a650 | a700 |
|------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| C-F | 90.6(e.s.)~212.7(g.s.) | 86.3(e.s.)~192.7(g.s.) | 51.7(e.s.)~164.3(g.s.) |
| (Ea) | 共 122.1 meV | 共 106.4 meV | 共 112.6 meV |
| PL | 68.2(g.s.) & 41.1(e.s.) | 77.3(g.s.) & 30.0(e.s.) | 67.2(g.s.) & 30.6(e.s.) |
| (FWHM) | 共 109.3 meV | 共 107.3 meV | 共 97.8 meV |

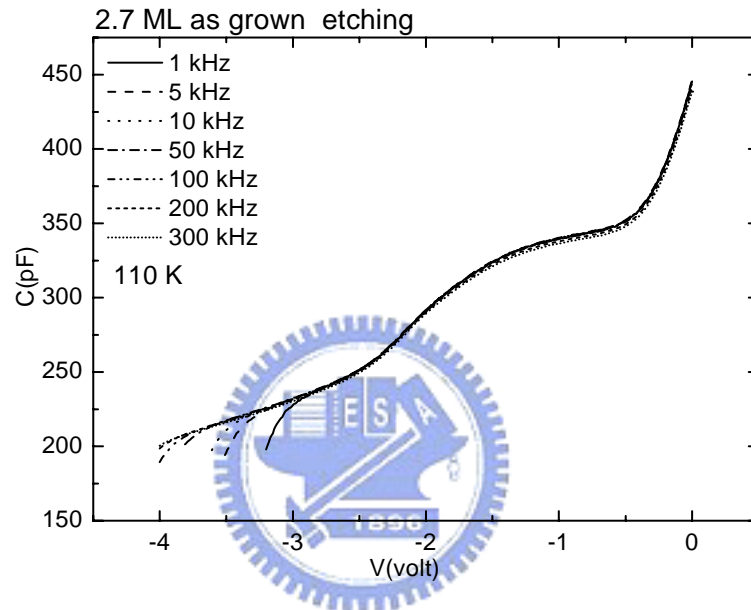


圖 4-15(a) 2.7 ML 樣品低溫變頻電容電壓量測

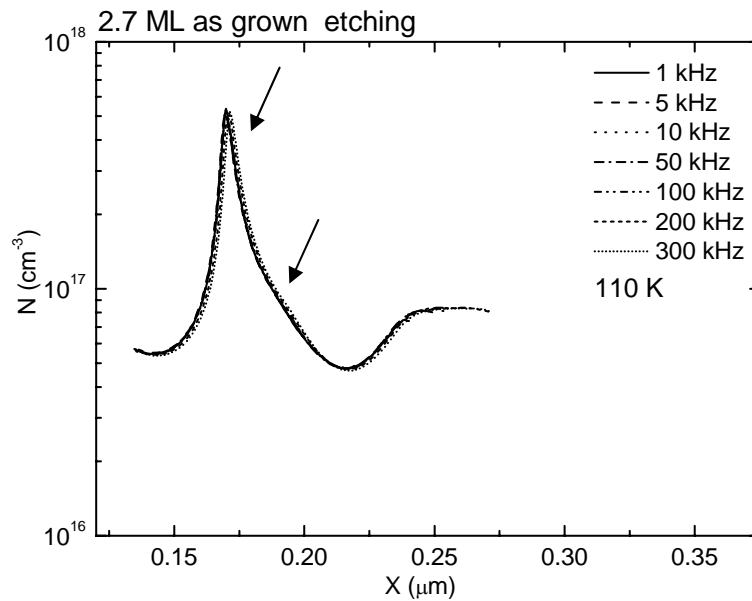


圖 4-15(b) 2.7 ML 樣品低溫變頻縱深圖

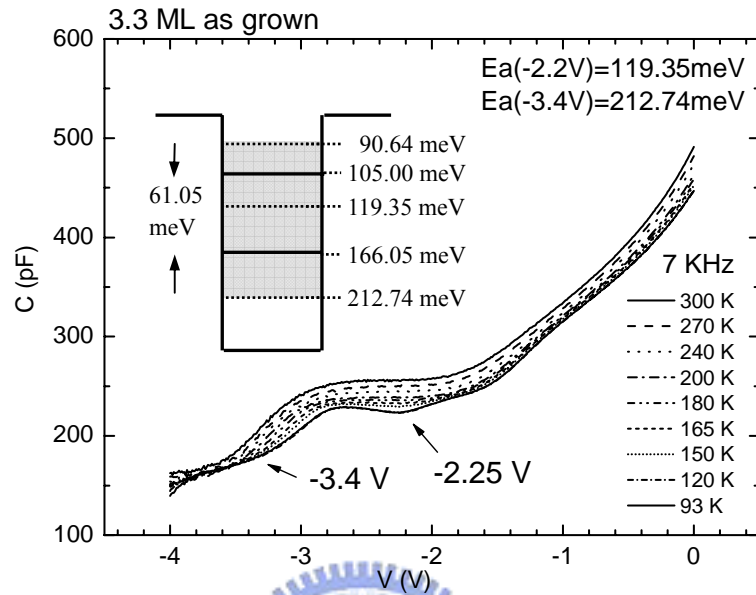


圖 4-16(a) 3.3 ML 樣品低溫變頻電容電壓量測

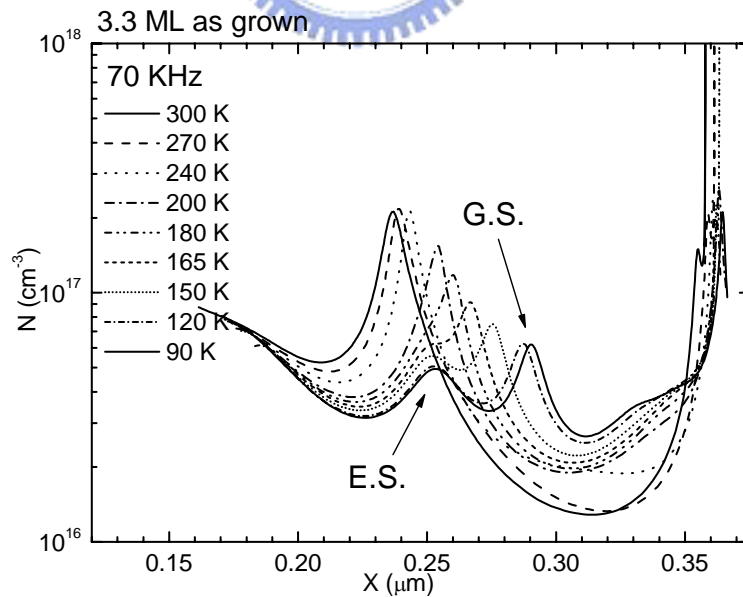


圖 4-16(b) 3.3 ML 樣品低溫變頻縱深圖

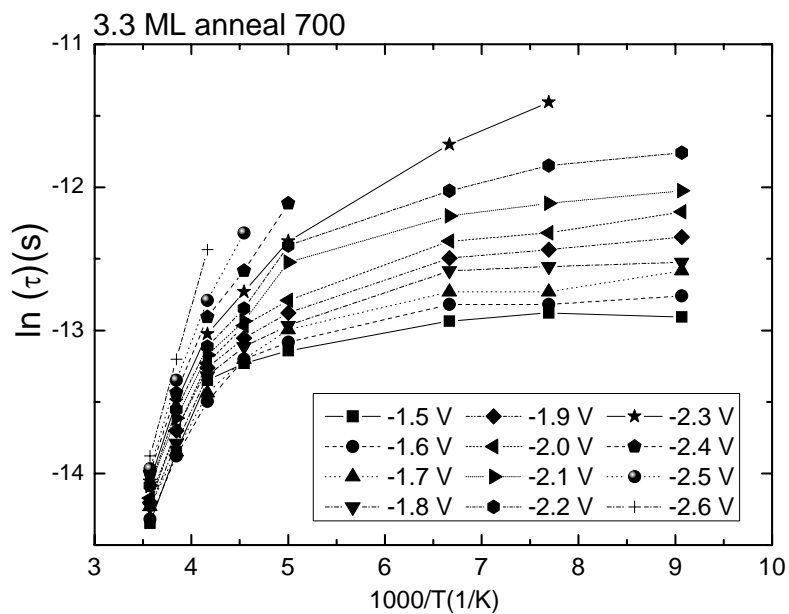
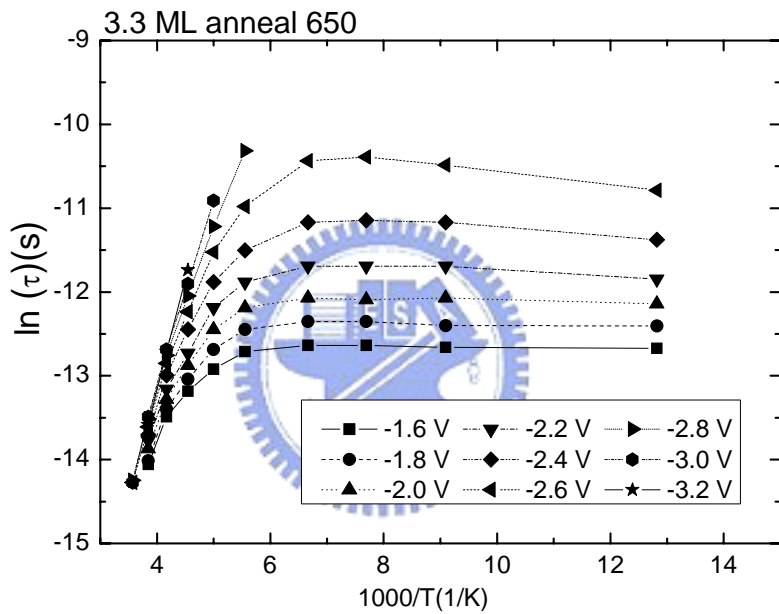
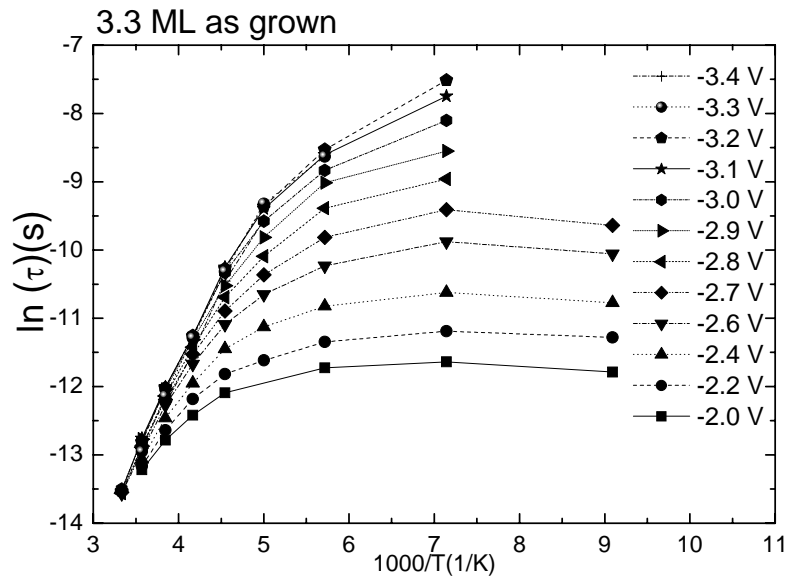


圖 4-17 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測之躍遷時間對溫度關係

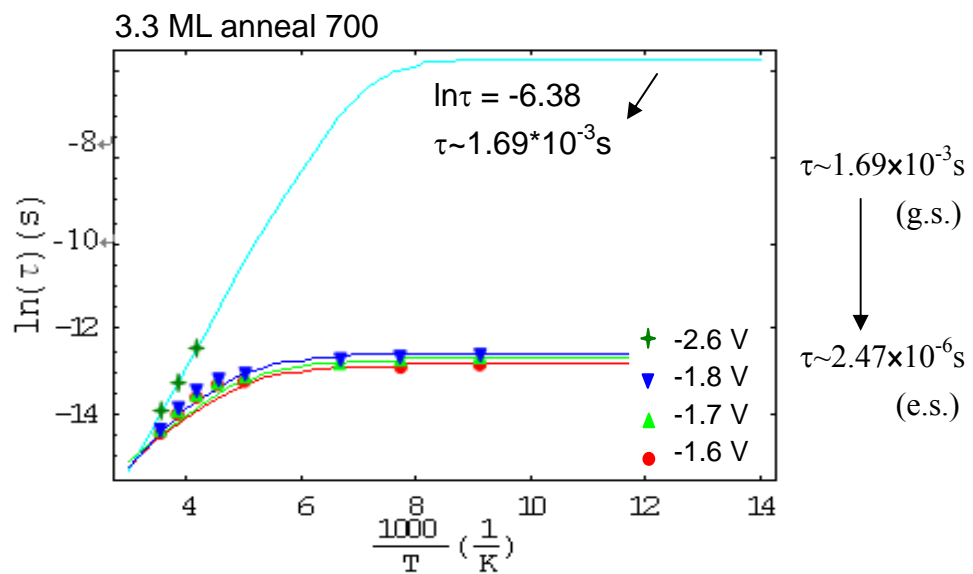
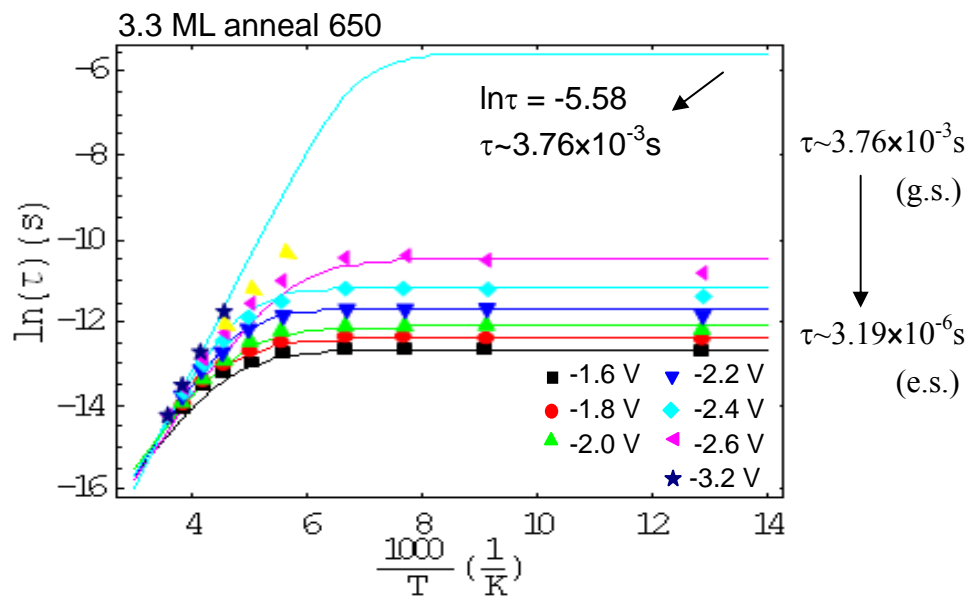
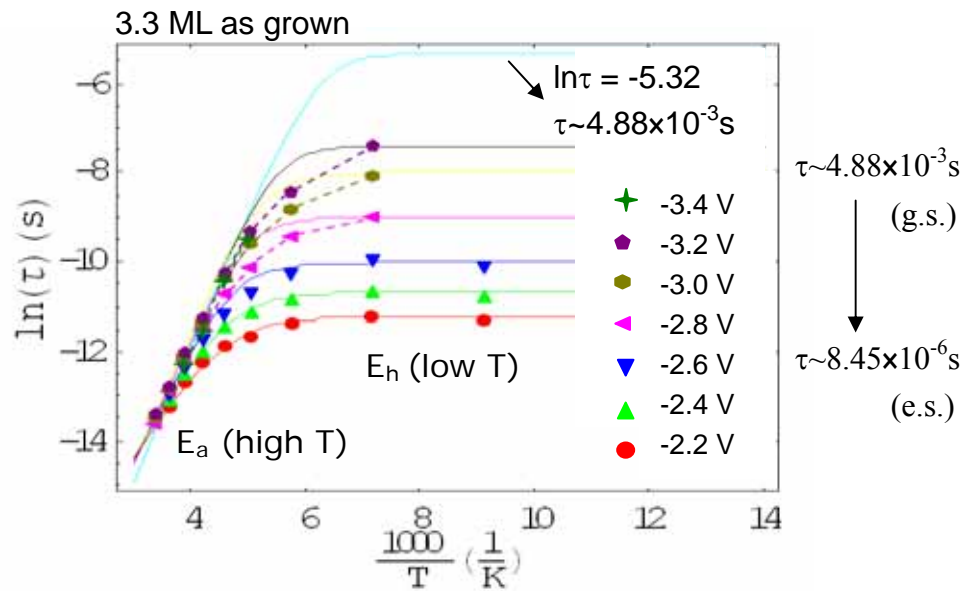


圖 4-18 3.3 ML 系列樣品 C-F 量測載子躍遷之公式擬合

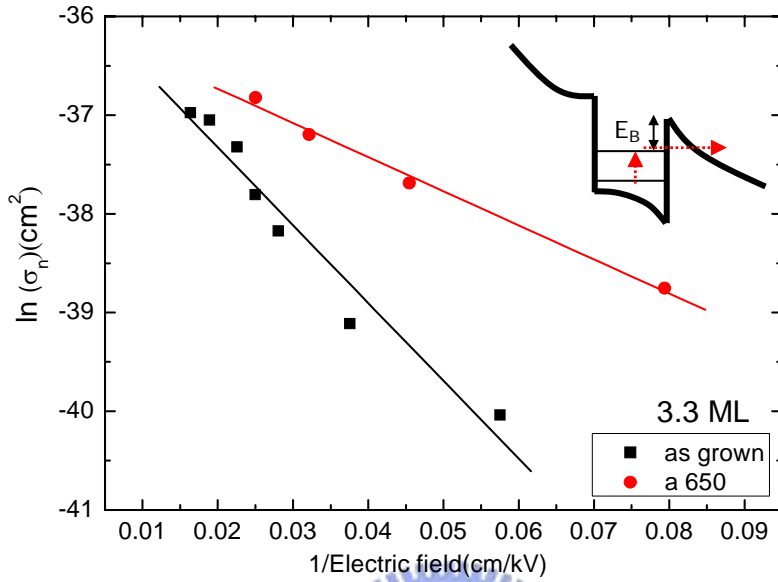


圖 4-19 3.3 ML 樣品捕捉截面積對電場倒數關係

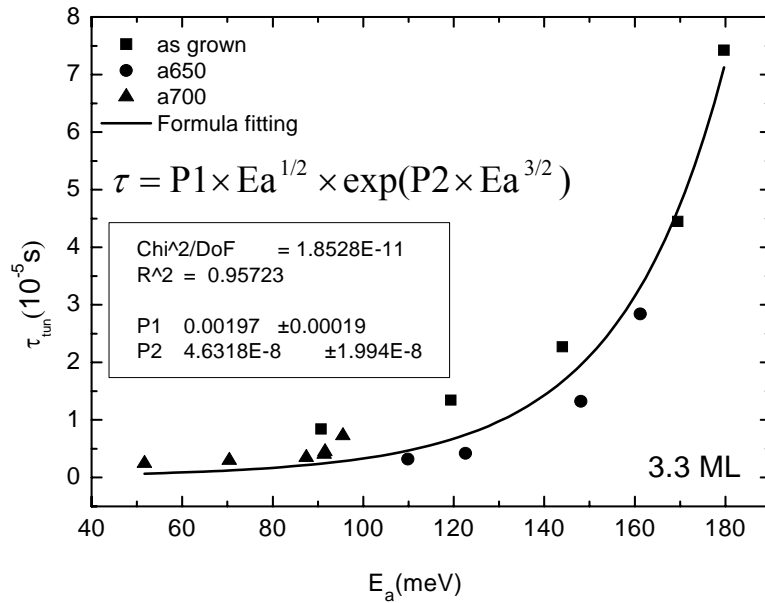


圖 4-20 3.3 ML 系列樣品穿隧時間對活化能關係與公式擬合

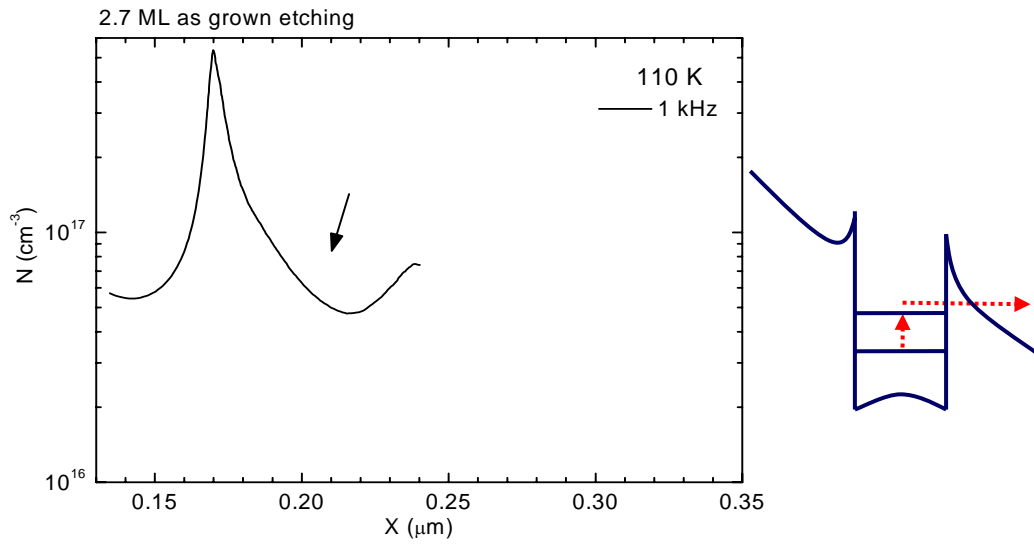


圖 4-21 2.7 ML 樣品縱深濃度分布及能帶示意圖

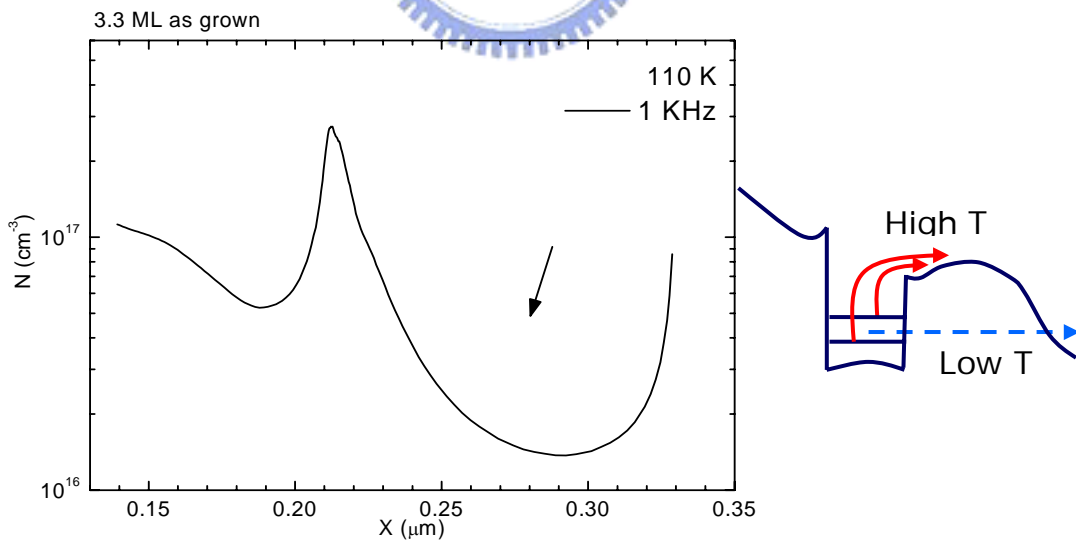


圖 4-22 3.3 ML 樣品縱深濃度分布及能帶示意圖

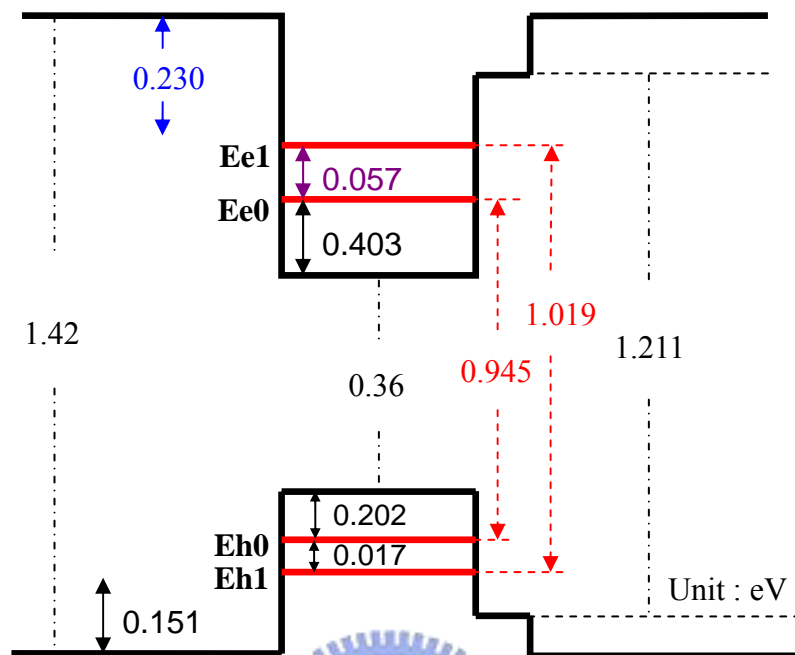


圖 4-23 2.7 ML 樣品室溫能帶結構圖

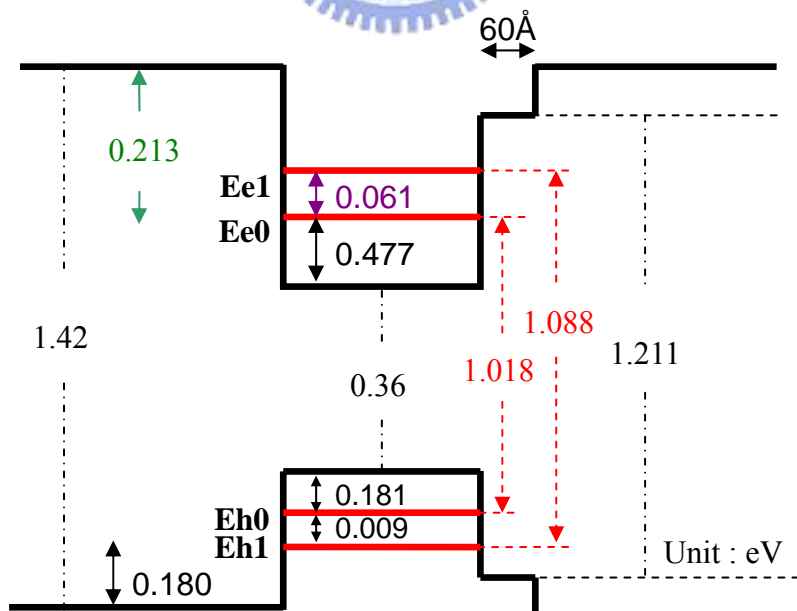


圖 4-24 3.3 ML 樣品室溫能帶結構圖

第五章 總結

5-1 結論

本篇論文經由光性與電性的量測，探討 3.3 ML 應力鬆弛產生缺陷而引發載子空乏的 InAs/InGaAs DWELL 結構特性，並予以熱退火 650°C 和 700°C 作為進一步研究，主要針對量子躍遷機制的改變來討論。

首先 DLTS 的量測顯示此缺陷捕捉載子濃度小於 TEM 觀測到的缺陷濃度及量子點濃度，表示缺陷不足以完全空乏量子點中的電子；且在光性的分析中比較了未鬆弛到鬆弛 QD 的演變，發現 3.3 ML 樣品的 PL 頻譜在低溫仍有很明顯量子點訊號存在可被量測到。

此外也探討熱退火效應的影響，致使 PL 頻譜分別有藍移 15 meV~39 meV 的現象。另外也經由一系列的電性量測來探討應力鬆弛後的量子躍遷現象，首先我們配合 PL 與 C-V、C-F 量測，初步證明所量測的量子躍遷訊號。接著針對 C-F 量測與理論公式的擬合做延伸的討論，發現載子在高溫不像一般正常 QD 兩階段式的躍遷，而是直接跳上鄰近的導帶，並隨著偏壓由淺到深能階跳出，As grown 樣品約由 120 meV~210 meV，隨熱退火溫度升高導致的能皆提升，也造成跳出的能階變淺。低溫熱能不足便直接穿遂，並估算低溫的穿遂時間，由基態 ms 變化到激發態 μs 等級。此外也說明低溫穿遂前看到的 tunneling barrier height 即是高溫躍遷而上的活化能，所有數據分析都能相互印證配合我們所提出的論點。而會造成此機制的改變，是因為應力鬆弛產生缺陷造成 QD 下方形成一很大的空乏區抑制載子的穿遂現象。

另外在缺陷探討上，As grown 與熱退火 650°C 樣品在 -3 V~-3.5 V 處的缺陷類型較接近之前定義的 E2 misfit 缺陷，而熱退火 700°C 樣品表面處的缺陷由於會隨 DLTS 填充偏壓達飽和，因此初步判定非 threading 缺陷，可能是過於熱退火導致的 As 點缺陷。

5-2 未來展望

未來可以朝以下方面更深入的去研究：首先是關於缺陷的部分，在本篇論文並沒有詳細的去探討，因此針對缺陷更深入的分析可能要尋求其他方式才算完整，考慮到一系列熱退火時間的比較，造成缺陷能帶越來越寬，使能階淺的那一部分被量測到。另外，熱退火 700°C 後在表面產生的缺陷，也需要更多的佐證。而針對樣品做照光的研究，去分析載子在缺陷與量子點能階之間的遷移，也是增進缺陷特性探討的方式。

在 3.3 ML 樣品曾經分析過存在一約 0.22 eV 的 capture barrier[31]，若將此 barrier 以 Schottky 接面公式來計算空乏寬度，再利用經由縱深分布圖所模擬出的能帶看出的空乏寬度，兩者亦可做個比較。

另一方面可以深入研究的，是關於實驗室另一項針對 QD 樣品的研究[51]：在 QD 中加入 N 產生缺陷，再經由熱退火造成 emission time 的變化，與本篇論文所探討的應力鬆弛產生缺陷不同來源，但都可以藉此來調變躍遷時間，在未來 QD 記憶元件的應用方面，或許是個有發展性的初步研究。

參考文獻

- [1] P. Hawrylak, Phys. Rev. B 60, 5597 (1999).
- [2] U. Banin, Y. Cao, D. Katz, O. Millo, Nature 400, 542 (1999).
- [3] Tzy-Rong Lin, Mao-Kuen Kuo, Bo-Ting Liao and Kuo-Pin Hung, "Mechanical and optical properties of InAs/GaAs self-assembled quantum dots," Bulletin of the College of Engineering, N.T.U., No. 91 (2004).
- [4] M. V. Maximov, B. V. Volovik, D. A. Bedarev, A. Yu. Egorov, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, N. A. Bert, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, I. P. Soshnikov, and P. Werner, Appl. Phys. Lett. vol. 75, 2347 (1999)
- [5] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O.B Shchekin, and D.G. Deppe, "1.3 μ m room-temperature GaAs-based quantum dot laser," Appl. Phys. Lett. vol. 73, pp. 2564-2566 (1998).
- [6] Y. Arakawa and K. Sakaki, "Evanescent-light guiding of atoms through hollow optical fiber for optically controlled atomic deposition," Appl. Phys. Lett. vol.40, pp.939-941 (1982).
- [7] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. p. Kotthaus, and P. M. Petroff, "Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots," Phys. Rev. Lett. 73, pp.2252-2255 (1994).
- [8] D. L. Huffaker and D.G. Deppe, "Electroluminescence efficiency of 1.3 μ m wavelength InGaAs/GaAs quantum dots," Appl. Phys. Lett. vol. 73, pp. 520-522 (1998).
- [9] National Science and Technology Program for Nanoscience and Nanotechnology, research plan, 2004.01.18
- [10] Seongsin M. Kim, "Review on recent development of quantum dots: From optoelectronic devices to novel bio-sensing applications," Proc. of SPIE, Vol. 4999, 423 (2003).
- [11] T. Itoh, Y. Iwabuchi, M. Katanoka, Physica Status Solidi B vol. 145, 567 (1988).
- [12] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, "Quantum Dot Heterostructures," (Wiley, 1999)
- [13] F. C. Frank, and J. H. van der Merwe, Proc. Roy. Soc. London A, vol. 198, pp.205 (1949).
- [14] M. Volmer, and A. Weber, Z. Phys. Chem., vol. 119, pp.277 (1926).
- [15] I. N. Stranski, and L. Von Krastanov, Akad. Wiss Lit. Main Math. Natur. K1. Iib, vol. 146, pp.797 (1939).
- [16] F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg, A. O. Kosogov and P. Werner, "InAs/InGaAs/GaAs quantum dots with high lateral density grown by MOCVD," Appl. Surf. Scie, vol.123, pp.725-728 (1998).

- [17] V. M. Ustinov, N. A. Maleev, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, A. Yu. Egorov, A. V. Lunev, B. V. Volovil, I. L. Krestnikov, Yu. G. Musikhin, N. A. Bert, P. S. Kop'ev, Zh. I. Alferov, N. N. Ledentsov and D. Bimberg, "InAs/InGaAs quantum dot structures on GaAs substrates emitting at $1.3 \mu\text{m}$," Appl. Phys. Lett. vol. 74, pp. 2815-2817 (1999).
- [18] M. V. Maximov et al., "Quantum dots formed by activated spinodal decomposition of InGa(Al)As alloy on InAs stressors," Physica E, vol. 7, pp. 326-330 (2000).
- [19] D. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, and D. Deppe, J. Select. Topics Quantum Electron. vol. 6, 452 (2000).
- [20] S. Kim, H. Mohseni, M. Erdtmann, E. Michel, C. Jelen, and M. Razeghi, Appl. Phys. Lett. vol. 73, 963 (1998).
- [21] C. Balocco et al., "Room-temperature operations of memory devices based on self-assembled InAs quantum dot structures," Appl. Phys. Lett. 85, 5911 (2004)
- [22] M. Geller et al., "A write time of 6 ns for quantum dot-based memory structures," Appl. Phys. Lett. 92, 092108 (2008)
- [23] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg, "Electric and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band $k \cdot p$ theory," Phys. Rev. B 59, 5688 (1999).
- [24] Ming Gong, Kaimin Duan, Chuan-Feng Le, Rita Magri, Gustavo A. Narvaez, and Lixin He, "Electronic structure of self-assembled InAs/InP quantum dots: Comparison with self-assembled InAs/GaAs quantum dots," Phys. Rev. B 77, 045326 (2008).
- [25] A. Persano, A. Cola, A. Taurino, M. Catalano, and M. Lomascolo, "Electronic structure of double stacked InAs/GaAs quantum dots: Experiment and theory," J. Appl. Phys. 102, 094314 (2007).
- [26] W. Lei et al., "Probing the band structure of InAs/GaAs quantum dots by capacitance-voltage and photoluminescence spectroscopy," Appl. Phys. Lett. vol. 92, 193111 (2008).
- [27] D. L. Losee, J. Appl. Phys. 46, 2204 (1975).
- [28] G. Vicent, D. Bois, P. Pinard, J. Appl. Phys. 46, 5173 (1975).
- [29] D. V. Lang, "Deep-level transient spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors," J. Appl. Phys. 45, 3023 (1974).
- [30] Dieter K. Schroder, "Semiconductor Material and Device Characterization"-2nd ed. (New York :Wiley 1998).
- [31] 林士傑, 交通大學電子物理研究所碩士論文, "砷化銦厚度對砷化銦/砷化銦鎵量子點中電子放射與捕捉影響研究" (2003)
- [32] 蕭茹雄, 交通大學電子物理研究所博士論文, "分子束磊晶法於砷化鎵基板製作 $1.3 \mu\text{m}$ 半導體雷射" (2005)
- [33] J. F. Chen et al., "Relaxation-induced lattice misfits and their effects on the emission properties of InAs quantum dots," Nanotechnology, 18, 35 (2007)
- [34] 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)

- [35] P. B. Joyce et al., “Optical properties of bilayer InAs/GaAs quantum dot structures: Influence of strain and surface morphology”, *Phys. Rev. B* 66, 075316 (2002).
- [36] M. O. Lipinski, H. Schuler, O. G. Schmidt, and K. Eberl, “Strain-induced material intermixing of InAs quantum dots in GaAs”, *Appl. Phys. Lett.* 77, 1789 (2000)
- [37] A. Markus, J.X. Chen, C. Paranthoen, and A. Fiore, ”Simultaneous two-state lasing in quantum-dots lasers”, *Appl. Phys. Lett.* 82, 1818 (2003).
- [38] R. Leon, Yong Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou, and D. J. H. Cockayne, *Appl. Phys. Lett.* 69, 1888 (1996)
- [39] A. Chahboun et al., “Further insight into the temperature quenching of photoluminescence from InAs/GaAs self-assembled quantum dots”, *J. Appl. Phys.* 103, 083548 (2008).
- [40] 汪炎宗, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ”InAs 量子點應力鬆弛所引發缺陷對量子躍遷之影響”(2007)
- [41] 黃文鎬, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ”InAsSb/GaAs 自聚式量子點之電性研究”(2005)
- [42] C. M. A. Kapteyn et al., “Hole and electron emission from InAs quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.* 76, 1573 (2000)
- [43] C. M. A. Kapteyn, F. Heinrichsdorff, O. Stier, R. Heitz, M. Grundmann, N. D. Zakharov, and D. Bimberg, “Electron escape from InAs quantum dots”, *Phys. Rev. B* 60, 14265 (1994)
- [44] J. Ibañez, R. Leon, D. T. Vu, S. Chaparro, S. R. Johnson, C. Navarro, and Y. H. Zhang, “Tunneling carrier escape from InAs self-assembled quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.* 79, 2013 (2001)
- [45] E. N. Korol et al., “Ionization of impurity states in semiconductors by an electric field”, *Sov. Phys. -Solid State*, 19, 1327 (1977)
- [46] C. M. A. Kapteyn et al., ”Carrier emission processes in InAs quantum dots”, *Physica E*, 7, 388 (2000)
- [47] M. Geller et al., ”Hole capture into self-organized InGaAs quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.* 89, 232105 (2006)
- [48] W. -H. Chang et al., “Hole emission processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots”, *Phys. Rev. B*, vol.66, 195337 (2002)
- [49] Raffaele Colombelli et al., “Conduction-band offset of single InAs monolayers on GaAs”, *Appl. Phys. Lett.* 76, 1146 (2000)
- [50] 謝明芳, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ”自聚式 InAs 量子點上覆蓋 InAlAs/InGaAs 複合層之研究”(2004)
- [51] 余之周, 交通大學電子物理研究所碩士論文, ”熱退火隊攙入氮砷化銦量子點電子放射率之影響”(2007)