

การปลูกและศึกษาลักษณะสมบัติของอินเดียมอาร์เซไนด์ควอนตัมดอทโมเลกุล
ที่มีลักษณะเป็นสายโซ่ยาว



นายณัฐภูมิ บุศยพลากร

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาวิศวกรรมไฟฟ้า ภาควิชาวิศวกรรมไฟฟ้า
คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2549
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

THE GROWTH AND CHARACTERIZATION OF LONG CHAINS OF InAs QUANTUM
DOT MOLECULES

Mr. Nuttawut Budsayaplakorn

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering Program in Electrical Engineering
Department of Electrical Engineering
Faculty of Engineering
Chulalongkorn University
Academic Year 2006
Copyright of Chulalongkorn University

491630

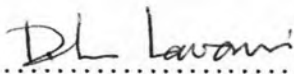
Thesis Title THE GROWTH AND CHARACTERIZATION OF LONG
 CHAINS OF InAs QUANTUM DOT MOLECULES

By Mr. Nuttawut Budsayaplakorn

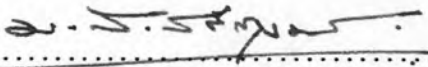
Field of Study Electrical Engineering

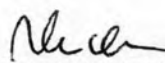
Thesis Advisor Professor Somsak Panyakeow, D.Eng.

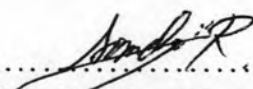
Accepted by the Faculty of Engineering, Chulalongkorn University in
Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

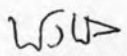

..... Dean of the Faculty of Engineering
(Professor Direk Lavansiri, Ph.D.)


THESIS COMMITTEE


..... Chairman
(Associate Professor Montri Sawadsaringkarn, D.Eng.)


..... Thesis Advisor
(Professor Somsak Panyakeow, D.Eng.)


..... Member
(Associate Professor Somchai Ratanathamplap, D.Eng.)


..... Member
(Associate Professor Songphol Kanjanachuchai, Ph.D.)


..... Member
(Doctor Adisorn Tuantranont, Ph.D.)

ณัฐวุฒิ บุศยพลากร: การปลูกและศึกษาลักษณะสมบัติของอินเดียมอาร์เซไนด์ควอนตัมดอตโมเลกุลที่มีลักษณะเป็นสายโซ่ยาว (THE GROWTH AND CHARACTERIZATION OF LONG CHAINS OF InAs QUANTUM DOT MOLECULES), อ. ที่ปรึกษา: ศ.ดร.สมศักดิ์ ปัญญาแก้ว, 65 หน้า.

อินเดียมอาร์เซไนด์ควอนตัมดอตโมเลกุล (quantum dot molecule, QDMs) ที่มีลักษณะเป็นสายโซ่ยาวถูกปลูกด้วยเครื่องปลูกผลึกแบบลำโมเลกุล เทคนิคการปลูกกลบบางและการปลูกซ้ำนำมาใช้ที่อุณหภูมิการปลูกผลึกต่ำเพื่อปลูกแม่แบบที่เรียกว่า นาโนพ้อปเพลเลอร์ (nanopropeller) เนื่องจากแม่แบบนี้เป็นโครงสร้างที่มีลักษณะยึดตัวออกในทิศทางโครงผลึก [1 $\bar{1}$ 0] โดยที่มีควอนตัมดอตอยู่ตรงกลางของโครงสร้างจึงสามารถนำแม่แบบนี้ไปใช้สร้างควอนตัมดอตโมเลกุลที่มีการเรียงตัวในทิศทางโครงผลึกนั้นได้ วิธีการปลูกกลบบางและการปลูกซ้ำหลายๆรอบด้วยความหนาในการปลูกกลบบางต่างๆได้รับการศึกษาเพื่อสร้างแม่แบบที่มีรูปร่างที่ยาวขึ้น การปลูกควอนตัมดอตลงบนแม่แบบทำได้โดยวิธีการปลูกควอนตัมดอตเกินความหนาวิกฤตในรอบสุดท้ายของการปลูกควอนตัมดอตซ้ำ ดังนั้นการปลูกควอนตัมดอตซ้ำในรอบสุดท้ายด้วยความหนาที่เหมาะสมบนนาโนพ้อปเพลเลอร์ที่มีรูปร่างยาวก็จะได้ควอนตัมดอตโมเลกุลที่มีลักษณะเป็นสายโซ่ยาว

ควอนตัมดอตโมเลกุลที่มีลักษณะเป็นสายโซ่ยาวทำให้การคัปปลิงระหว่างควอนตัมดอตในทิศทาง [1 $\bar{1}$ 0] กับทิศทาง [110] นั้นไม่เท่ากันซึ่งนำไปสู่การเปล่งแสงแบบมีโพลาไรซ์ซึ่งปรากฏการณ์นี้ไม่พบในกรณีของควอนตัมดอตและควอนตัมดอตโมเลกุลที่มีจำนวนดอตน้อย ระดับการโพลาไรซ์ของแสงที่ควอนตัมดอตโมเลกุลเปล่งนั้นสอดคล้องกับขนาดความยาวของควอนตัมดอตโมเลกุลเอง อย่างไรก็ตามเราพบว่าความหนาแน่นของควอนตัมดอตได้จำกัดระดับการโพลาไรซ์ของแสงที่มันเปล่งออกมาเนื่องมาจากการคัปปลิงระหว่างควอนตัมดอตในทิศทาง [110] มีค่าเพิ่มมากขึ้น

ภาควิชา วิศวกรรมไฟฟ้า
สาขาวิชา วิศวกรรมไฟฟ้า
ปีการศึกษา 2549

ลายมือชื่อนิสิต .. *ณัฐวุฒิ บุศยพลากร*
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา .. *Neel*

4870291621: MAJOR ELECTRICAL ENGINEERING

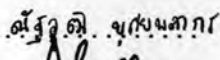
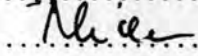
KEY WORD: QUANTUM DOT MOLECULE/ NANOPROPELLER/ POLARIZATION DEPENDENCE

NUTTAWUT BUDSAYAPLAKORN : THE GROWTH AND CHARACTERIZATION OF LONG CHAINS OF InAs QUANTUM DOT MOLECULES. THESIS ADVISOR : PROF. SOMSAK PANYAKEOW, D.Eng, 65 pp.

InAs quantum dot molecules (QDMs) are obtained from quantum dot (QD) overgrowth on nanopropeller templates which are grown by thin-capping-and-regrowth molecular beam epitaxy (MBE) process. The template structure is elongated along $[1\bar{1}0]$ crystallographic direction with QDs at the centre. They were used to grow QDMs aligned in that direction. Multi-cycles of thin-capping-and-regrowth with appropriate thin-capping thickness were investigated in order to create long nanopropeller templates. They are used as templates for the growth of long chain quantum dot molecules. By overgrowth of additional QDs in the final cycle of thin-capping-and-regrowth, satellite QDs are created on nanopropeller blades. With proper overgrowth thickness, long chain QDMs are successfully created on long nanopropeller templates.

Lateral alignment of long chain QDMs contribute to anisotropic coupling among QDs. They lead to different magnitudes of wave vectors between $[1\bar{1}0]$ and $[110]$ directions in the energy band structure of QDs ensembles. Hence, long chain QDMs demonstrate anisotropy of optical property, i.e. polarization dependence of PL spectrum, while as-grown QDs and small-group QDMs do not exhibit this property. The polarization degree of optical property agrees with the length of QDMs and their templates. However, high QD density limits the anisotropic property due to increased QD coupling along the $[110]$ direction.

Department ..Electrical Engineering..
Field of Study Electrical Engineering
Academic Year 2006

Student's Signature 
Advisor's Signature 

Acknowledgements

This thesis is financially supported by Asian Office of Aerospace Research and Development (AOARD), U.S. Air Force and Thailand Research Fund (TRF). Moreover, the author would like to acknowledge to his advisor: Prof. Somsak Panyakeow, senior, Ms. Suwaree Suraprapapich and Mr. Sirichai Ruangdet, SDRL researcher: Mr. Supachok Thainoi, and his colleagues, for their invaluable technical assistance.

Contents

Abstract(thai)	iv
Abstract(English)	v
Acknowledgements	vi
Contents	vii
List of tables	ix
List of figures	x
List of symbols	xiii
CHAPTER	
I INTRODUCTION	1
II THEORY	4
2.1 Quantum Dots	4
2.1.1 Introduction	4
2.1.2 Quantum Dots Fabrication by Stranski-Krastanov Growth Mode . . .	5
2.1.3 Energy Level	7
2.2 Self-Organized Strain Engineering	10
2.3 Optical Anisotropic Property in QDs	13
III EXPERIMENTAL DETAILS	15
3.1 An Introduction to Molecular Beam Epitaxy	15
3.2 Reflection High Energy Electron Diffraction	17
3.3 Growth Rate Calibration	18
3.3.1 Beam Equivalent Pressure (BEP)	18
3.3.2 RHEED Intensity Oscillation	18
3.3.3 RHEED Pattern Transition of Strain Relaxing	19
3.4 Substrate Temperature Calibration	20
3.5 Sample Characterization	21
3.5.1 Atomic Force Microscope (AFM)	21
3.5.2 Photoluminescence (PL)	22
3.6 Samples Preparation	23

CHAPTER

IV RESULTS AND DISCUSSIONS.....	26
4.1 Nanopropeller Structure Investigation	26
4.2 Quantum Dot Molecules	30
4.3 Photoluminescence of Quantum Dot Molecules	31
4.4 Polarization Dependence of Photoluminescence	35
V CONCLUSIONS.....	39
Reference.....	40
References.....	44
Appendix.....	44
Vitae.....	51

List of tables

4.1	The statistical summary of nanopropeller length	28
4.2	The statistical summary of quantum dot molecules	31
4.3	The degree of optical polarization anisotropy (DOPA) of quantum dot molecules	36

List of figures

1.1	Growth process of quantum dot molecule by thin-capping-and-regrowth method	3
2.1	Density of states for semiconductor structures for different degrees of confinement	5
2.2	Size- and material-dependent emission spectra of several surfactant-coated semiconductor nanocrystal QDs (NCQDs) in a variety of sizes. The blue series represents CdSe NCQDs with diameters of 2.1, 2.4, 3.1, 3.6, and 4.6 nm (from left to right). The green series is of InP NCQDs with diameters of 3.0, 3.5, and 4.6 nm. The red spectral lines are emitted by InAs NCQDs with diameters of 2.8, 3.6, 4.6, and 6.0 nm. Within each color the wavelength is fine tuned by controlling the size of the QDs. The inset shows schematically the dependence of the fluorescence energy on the size of the QD	6
2.3	The Stranski-Krastanov growth method: the deposition of a lattice mismatched layer on a substrate leads to the formation of a pseudomorphic layer followed by the islands growth	7
2.4	Schematic energy diagram of a quantum dot approximated as a harmonic potential, having equally-spaced energy levels. A radiative transition from the lowest level in the conduction band to the highest level in the valence band is indicated.	8
2.5	Schematic energy diagram for the quantum dot and barrier, and band structure showing the conduction band, heavy hole (HH), light hole (LH) and split-off (SO) bands.	9
2.6	Dependence on the temperature of the ground state emission of a single QD.	10
2.7	Comparison of strain distributions for an InAs QD calculated by AE and CE approximations. Figure (a) describes the model and crystal orientation. Figure (b) shows the diagonal strain components along 110 direction. Solid line corresponds to the AE method and the dashed line to the CE method.	11
2.8	Normalized radial strain energy distribution on the wetting layer surface above a buried island in isotropic medium at a depth z_0 by CE model.(b).. . . .	12

2.9	The schematic illustration of the vertical alignment process. (a) the uniform In deposition, (b) the accumulation of deposited adatoms at the place where GaAs has high tensile strain, (c) the island formation above the buried one. Cross-sectional TEM images of two samples with vertically aligned InAs islands separated by 46 (d) and 92 (e) monolayer thick GaAs spacer layers grown by MBE on GaAs (100) substrates. TEM image of a sample with a stack of 5 vertically aligned islands separated by 36 monolayer thick GaAs spacer layer (f)	13
3.1	A schematic of MBE growth chamber showing the essential growth sources, shutters, beam flux detector and the RHEED system for monitoring structure during growth.	16
3.2	The modified RIBER 32P MBE consists of three chambers, i.e., introduction chamber, transfer chamber, and growth chamber.	17
3.3	The schematic of RHEED system which consist of electron gun, RHEED screen and CCD camera connected to a computer.	18
3.4	a) Reciprocal lattice of two-dimensional array of lattice points, b) RHEED construction for a)	19
3.5	a) RHEED Pattern of GaAs at 580 °C, b) RHEED Pattern of 1.8ML InAs QDs	19
3.6	A Schematic diagram of the correlation of surface coverage of 2-D clusters with idealized RHEED oscillation.	20
3.7	RHEED intensity oscillations of the specular spot during GaAs (top) and AlAs (bottom) growth.	21
3.8	RHEED intensity as a function of InAs deposition time showing the increasing of intensity when the InAs layer has relaxed to form QDs	22
3.9	Temperature calibration process of GaAs substrate by RHEED pattern transition.	23
3.10	A schematic diagram of AFM	24
3.11	A schematic diagram of the polarization-dependence of PL measurement system	25
4.1	Block diagram and growth temperature of samples for nanopropeller investigation	27
4.2	The InAs regrowth thickness sufficient to form QDs on GaAs thin-capping layer whereby the thickness was estimated by observing RHEED transition into clear spotty pattern.	27
4.3	Summary of nanopropeller length as function of cycles of thin-capping-and-regrowth for thin-capping thickness of 6, 9, 12 and 15 ML	29

4.4	AFM images of as-grown QDs a) and nanopropeller from 1, 3, 5 and 7 cycles of thin-capping-and-regrowth b), c), d) and e), respectively	29
4.5	AFM images of QDMs from 5 cycles of 9ML-thin-capping-and-regrowth with final-regrowth thickness of 1.3, 1.6 and 1.8 ML (in a), b) and c),respectively), QDMs from 1 and 3 cycles (in d) and e)) of 9ML-thin-capping-and-regrowth with final-regrowth thickness of 1.2 ML and 1.6 ML, respectively. And QDMs from 5 cycles of 12ML-thin-capping-and-regrowth and final-regrowth thickness of 1.6 ML (in f))	30
4.6	Normalized PL Spectrum of as-grown QDs (Fig. 4.4 a)) and QDMs from 1 and 5 cycles of thin-capping-and-regrowth (Fig. 4.5 d) and b)) at 77 K .	33
4.7	a) PL spectrum of QDMs from 12ML-thin-capping-and-regrowth for 5 cycles and 1.6ML-final-regrowth (Fig.4.5 f)) and b) PL spectrum of QDMs from 9ML-thin-capping-and-regrowth for 5 cycles and 1.8ML-final-regrowth (Fig. 4.5 c))	33
4.8	Normalized PL Spectrum of QDMs with thin-capping of 9 ML for 1cycles with different excitation power at 77 K	34
4.9	Normalized PL Spectrum of as-grown QDs a) and QDMs from 12 ML-thin-capping-and-regrowth for 5 cycles b) with different excitation power at 77 K.	34
4.10	PL spectrum of QDMs from 9ML-thin-capping and regrowth for 5 cycles and 1.6MLfinal-regrowth which polarized in angle of 0° to 90° a) and in angle of 90° to 180° b). c) and d) show peaks intensity as a function of polarized angle in x-y coordinate and polar coordinate, respectively	35
4.11	Polarization dependence of peak intensity of QDMs from 9ML-thin-capping and regrowth for 5 cycles and 1.8MLfinal-regrowth a) 12ML-thin-capping and regrowth for 5 cycles and 1.6MLfinal-regrowth b)	36
4.12	AFM images of QDMs from 12ML-thin-capping and regrowth for 5 cycles and 1.6 ML of final-regrowth thickness	38
4.13	PL spectrum of QDMs from 12ML-thin-capping and regrowth for 5 cycles and 1.6ML of final-regrowth thickness which polarized in angle of 0° to 90° a) and b) show peaks intensity as a function of polarized angle, respectively	38

List of symbols

m^*	effective mass
\hbar	reduced Plank's constant
$r = (x, y, z)$	carrier position vector
$V(\mathbf{r})$	confinement potential due to band offset
$u(\mathbf{r})$	eigen-function
$\psi_e(\mathbf{r})$	wave function of electron
$f(\mathbf{r})$	envelope wave function
E	carrier energy level
E_0	ground-state carrier energy level
E_1	first excited-state carrier energy level
ΔE_0	energy splitting of ground-state
L	QD height
k	amplitude of wave vector
$\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$	wave vector of carriers
$V(r)$	confinement energy
n_x	quantum number in x-direction
n_y	quantum number in y-direction
n_z	quantum number in z-direction
a_0	lattice constant of substrate material
a	lattice constant of deposited material
$ M_b ^2$	bulk matrix element
$ M_x ^2$	optical matrix element in x-direction
$ M_y ^2$	optical matrix element in y-direction
P	degree of optical polarization