行政院國家科學委員會補助專題研究計畫成果報告

※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※
※　　※
※　　以分子束磊晶法成長氮化鎵系列材料（三）　　※
※　　※
※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※※

計畫類別：□個別型計畫

計畫編號：NSC　89－2215－E－002－054－

執行期間：　89 **年**　8 **月**　1 **日至**　90 **年**　7 **月**　31 **日**

計畫主持人：林浩雄

本成果報告包括以下應繳交之附件：

- □**赴國外出差或研習心得報告一份**
- □**赴大陸地區出差或研習心得報告一份**
- □**出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份**
- □**國際合作研究計畫國外研究報告書一份**

執行單位：國立臺灣大學電機工程學系

中　華　民　國　90 **年**　12 **月**　30 **日**

以分子束磊晶法成長氮化鎵系列材料（三）

計畫編號：NSC 89-2215-E-002-054
執行期限：89 年 8 月 1 日至 90 年 7 月 31 日
主持人：林浩雄　　國立臺灣大學電機工程學系
計畫參與人員：宋立偉、湯志偉　國立臺灣大學電機工程學系

一、中文摘要

於本研究中，我們使用射頻電漿輔助氣態源分子束磊晶法成長立方結構氮化鎵材料，以之探討其磊晶條件之最佳化與其相對應之磊晶層光學特性。於本研究的結果中顯示，立方結構氮化鎵其磊晶時三族元素與五族元素之最佳比例是位於三族比例高，但不致有三族元素於表面堆積之條件下,並不同於傳統三五族半導體之成長最佳化。

關鍵詞：立方結構氮化鎵材料、射頻電漿輔助氣態源分子束磊晶法、立方結構氮化鎵磊晶條件最佳化

Abstract

We report the investigation on the growth conditions and optical properties of cubic GaN films grown on (001) GaAs substrate by using RF plasma assisted gas source MBE. The cubic GaN films were deposited at different Ga to N flux ratios that were determined by deposition rates directly. Three growth regimes, namely, Ga droplet, intermediate Ga stable, and N stable regime, are defined in the growth diagram. Optical quality of these films was determined by using photoluminescence (PL). Micro-Raman scattering were performed to analyze the crystallinity of the films. Optimal growth condition of cubic GaN is on the boundary of intermediate Ga stable regime and Ga droplet regime.

Keywords: cubic GaN, RF plasma assisted gas source MBE

緣由與目的

在近年來高能隙半導體材料的研究中，氮化鎵不僅是最受注目的材料系統，且由於其磊晶成長方法的研究於這幾年來有著許多重大的突破，使氮化鎵材料系統在紫外光到綠光波段發光二極體、雷射、或檢光器、以及高溫高電壓元件應用上皆已有相當之成果。但因其受限於物理特性或所使用基板之限制，諸如低 P 型摻雜效率、低 P 型載子移動率以及不易劈裂等缺點，其運用上依然有所受限。

氮化鎵在晶格結構上，有兩種不同的晶格形態，分別是穩定態的烏采結構與亞穩態的閃鋅結構，其中烏采結構單位晶包是為六角柱型，目前所見關於氮化鎵之應用皆為此種晶格結構，亞穩態之立方結構氮化鎵則如同一般傳統三五族半導體般為立方形的閃鋅結構晶格，因晶格結構上較高的對稱性，閃鋅結構氮化鎵在理論預期上將有較烏采結構高的載子移動率(mobility)，P 型雜質摻雜效率，以及容易進行鏡面劈製等優點，可稍彌補氮化鎵材料不易達成 P 型摻雜與載子移動率偏低的缺憾[1,2,3]。另外相較於烏采結構氮化鎵磊晶時所普遍使用的非導電性單晶氧化鋁基板，可選擇導電或半絕緣基板進行磊晶成長也是此閃鋅結構氮化鎵材料的優點。

另外相較於烏采結構氮化鎵磊晶時所普遍使用的非導電性單晶氧化鋁基板，可選擇導電或半絕緣基板進行磊晶成長也是此閃鋅結構氮化鎵材料的優點。

但因立方結構氮化鎵亞穩態的特性，導至其磊晶條件之最佳化遠較烏采結構氮化鎵麻煩[3,4,5]，目前的相觀研究重點尚在磊晶成長方式的改善上，其相關磊晶最佳化條件尚未完全被清楚探討過。故於本研究中，我們主要探討方向即為磊晶條件之最

佳化。

結果與討論

本研究中, 我們使用射頻電漿輔助氣態源分子束磊晶法成長立方結構氮化鎵材料，以之探討其磊晶時，三族元素與五族元素比例之最佳化，並以光激螢光法量測其相對應之磊晶層光學特性，以及使用拉曼頻譜法量測其晶格結晶狀態。

於最佳化探討中, 我們在不同的三族元素與五族元素比例下成長了一系列的立方結構氮化鎵磊晶層，其對應的磊晶條件示於圖一中。由樣品 A 到樣品 F 其磊晶之三族流量為依序遞減，但其他磊晶參數如五族流量與磊晶溫度等則保持不變，以此探討三族元素與五族元素比例對磊晶層品質之影響。圖一中，我們將立方結構氮化鎵之磊晶成長區域分為三區[6]，其中 ”N-stable” 是為氮過量之狀況，”Intermediate Ga stable” 是為鎵過量但未於表面堆積之之狀況，”Ga droplet”則為鎵已於表面堆積之狀況。三者中氮過量之狀況已被廣泛證實不適於立方結構氮化鎵成長。故實驗點集中於另兩磊晶狀態下。

圖二為立方結構氮化鎵低溫光激螢光頻譜量測結果，其中放光波長位於 355nm 到 365nm 間放光訊號是為烏采結構氮化鎵相關之放光訊號，379nm 訊號是為立方結構氮化鎵激子放光，390nm 到 405nm 間放光則是立方結構氮化鎵之 D-A pair 放光。由圖二結果可見，當磊晶之三族流量較高時，立方結構氮化鎵激子放光強度也隨之上升，顯示樣品光學性質的改善，但如果三族流量提高至進入鎵已於表面堆積之狀況(sample A、B)，烏采結構氮化鎵相關之放光訊號也將隨之出現，顯示此時磊晶層之晶相純度迅速劣化。

圖三為拉曼頻譜量測結果，位於 740cm^{-1} 處的訊號是為立方結構氮化鎵的 LO 聲子散射訊號， 550cm^{-1} 的訊號則是 TO 聲子的散射[7]。在拉曼散射頻譜中，可由、頻譜半寬、與訊號位置偏移量的大小量測其晶格結構好壞。圖三中可見到當磊晶之三族流量提高時，拉曼訊號也隨之變窄、訊號強度也變強，顯示晶格結構也隨之改善，與光激螢光量測有相同結果。卻不見烏采結構氮化鎵相關之拉曼訊號存在。但當我們將量測光聚焦於鎵表面堆積處時(sample A)，如圖四所示，則可見明顯的烏采結構氮化鎵相關之拉曼訊號 E2 訊號，顯示當三族流量提高至進入鎵已於表面堆積之狀況時(sample A、B)，烏采結構氮化鎵是在鎵表面堆積處生成。故磊晶層之晶相純度隨表面堆積狀況之出現而迅速劣化。

對圖三拉曼頻譜量測結果中的 LO 聲子散射訊號，我們進一步使用有限晶體體積聲子侷限模型[9,10,11]進行擬和分析如下：

$$I(\mu) \cong \int_0^{2\pi/a} \frac{\exp(-q^2 L^2/4)\, 4\pi q^2\, dq}{(\mu-\mu(q))^2+(\Gamma/2)^2}$$

其中 $I(\mu)$ 是為拉曼頻譜形狀，L 是晶體大小， $\mu(q)$ 是 LO 聲子散射關係[12]，Γ 是當晶體體積無限大時之頻譜半寬。圖五為我們的擬和分析結果，由此分析我們可得平均晶體大小分佈、由低三族流量(sample F)的 5nm，改善至高三族流量(sample A、B)的 9nm，亦符合之前的量測結果。而此時Γ的最佳擬和值為 11cm^{-1} 。

總結此研究的成果, 我們在之前所完成的高相純度立方結構氮化鎵磊晶計術的成果上，更進一步繼續討論氮化鎵磊晶時三族元素與五族元素之最佳化。經由量測結果顯示，立方結構氮化鎵其磊晶時三族元素與五族元素之最佳比例是位於三族比例高，但不致有三族元素於表面堆積之條件下,並不同於傳統三五族半導體之成長最佳化。

計畫成果自評

對於有著優益物理性質的立方結構氮化鎵材料系統，其相關研究依然未被廣泛探討，主要因素即在於其磊晶技術尚未成熟。在本系列研究中，我們探討了立方結構氮化鎵成長的最佳化條件，並建立了適當的磊晶層品質評估方式，可為以後此材料系統的研究立下基礎。

參考文獻

[1] M. Funato, M. Ogawa, T. Ishido, Sz. Fujita, and Sg. Fujita, Phys. State. Sol. A 176 (1999) 509.

[2] E. Martinez-Guerrero, F. Chabuel, D. Jalabert, B. Daudin, G. Feuillet, H. Mariette, P. Aboughe-nze, and Y. Monteil, Phys. State. Sol. A 176 (1999) 479.

[3] G. Feuillet, H. Hamaguchi, K. Ohta, P. Hacke, H. Okumura, and S. Yoshida, Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 1025.

[4] A.P. Lima1, T. Frey, U. Kohler, C. Wang, D.J. As, B. Schottker, K. Lischka, D. Schikora, J. Crystal Growth 197 (1999) 31.

[5] K. H. Ploog, O. Brandt, H. Yang, B. Yang, and A. Trampert, J. Vac. Sci. Technol. B 16 (1998) 2229.

[6] B. Heying, R. Averbeck, L. F. Chen, E. Haus, H. Riechert, and J. S. Speck, J. Appl. Phys. 88 (2000) 1855.

[7] H. Yaguchi, J.Wu, B. Zhang, Y. Segawa, H Nagasawa, K. Onabe, and Y. Shiraki, J. Crystal Growth 195 (1998) 323.

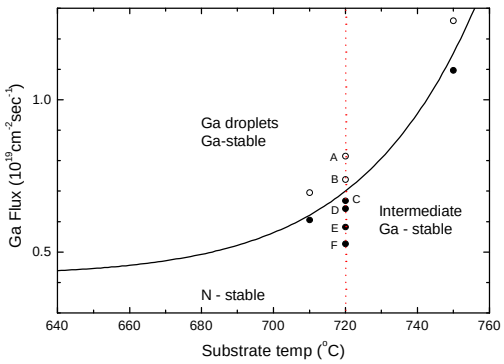
[8] M. S. Liu, S. Prawer and L. A. Bursill, D. J. As, and R. Brenn, Appl. Phys. Lett. 78 (2001) 2658.

[9] M. Yoshikawa, Y. Mori, M.Maegawa, G. Katagiri, H. Ishida, and A. Ishitani, Appl. Phys. Lett. 62 (1993) 3114.

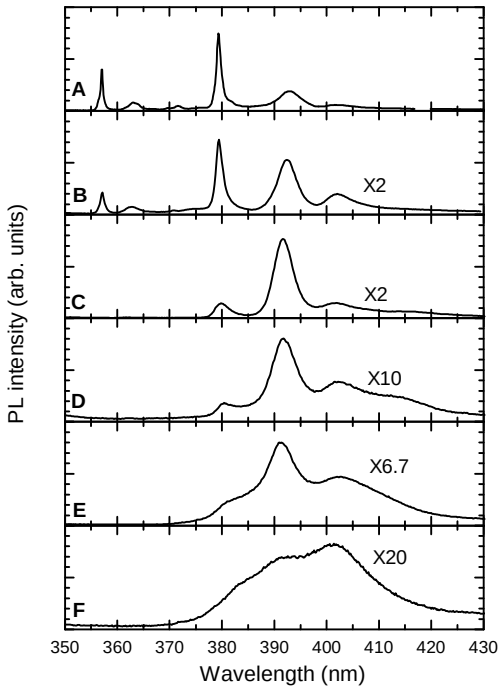
[10] G. Bentoumi, A. Deneuville, E. Bdaudin, G. Feuillet, E. Martinez, P. Aboughe, and Y. Monteil, Thin Solid Films 364 (2000) 107.

[11] P. M. Fauchet and I. H. Campbell, Crit. Rev. Solid State Commun. 39, (1981)625.

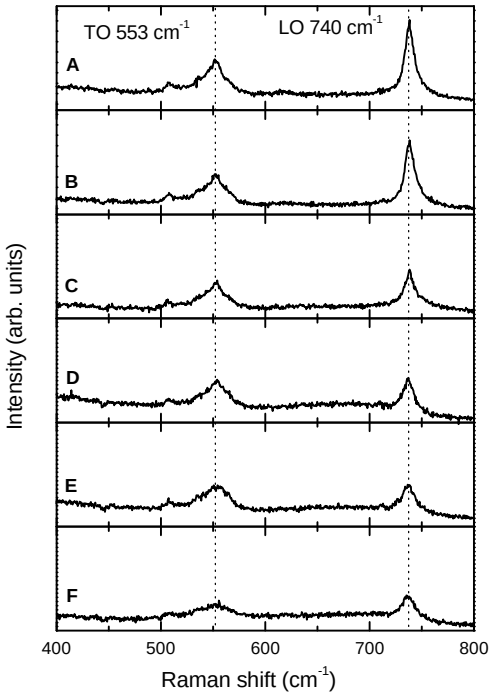
[12] H. M. Tutuncu, and G. P. Srivastava, Phys. Rev. B, 62,(2000)5028.



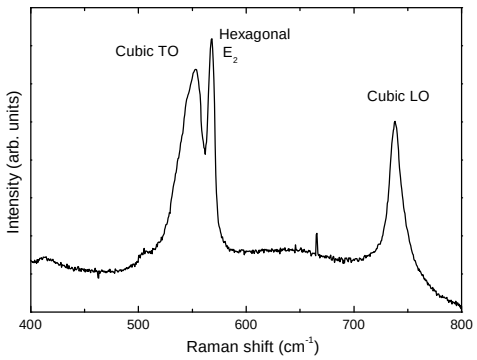
圖一、立方結構氮化鎵磊晶層的磊晶條件示意圖，由樣品 A **到樣品** F **其磊晶之三族流量為依序遞減，但其他磊晶參數如五族流量與磊晶溫度等則保持不變，以此探討三族元素與五族元素比例對磊晶層品質之影響。**



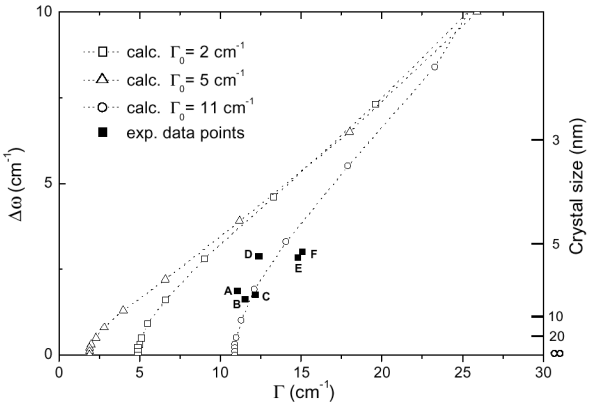
圖二、立方結構氮化鎵低溫光激螢光頻譜量測結果，其中放光波長位於 355nm **到** 365nm **間放光訊號是為烏采結構氮化鎵相關之放光訊號，**379nm **訊號是為立方結構氮化鎵激子放光，**390nm **到** 405nm **間放光則是立方結構氮化鎵之** D-A pair **放光。**



圖三、立方結構氮化鎵拉曼頻譜量測結果, 位於 740cm^{-1} **處的訊號是為立方結構氮化鎵的** LO **聲子散射訊號，**550cm^{-1} **的訊號則是** TO **聲子的散射。**



圖四、立方結構氮化鎵拉曼頻譜量測量測光聚焦於鎵表面堆積處時(sample A)**, 可見明顯的烏采結構氮化鎵相關之拉曼訊號** E2 **訊號，顯示當三族流量提高至進入鎵已於表面堆積之狀況時**(sample A、B)**，烏采結構氮化鎵是在鎵表面堆積處生成。。**



圖五、拉曼頻譜量測結果中的 LO **聲子散射訊號，我們進一步使用有限晶體體積聲子侷限模型**[9,10,11]**進行擬和分析結果。由此分析我們可得平均晶體大小分佈、由低三族流量**(sample F)**的** 5nm**，改善至高三族流量**(sample A、B)**的** 9nm**。**