

國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文

低溫氮化鎵薄膜磊晶與物理特性之研究

Growth and Characterizations of Low Temperature GaN
Epilayers Using Two-Heater MOCVD Reactor

研究生：陳永翔

指導教授：陳衛國 教授

中華民國一零一年七月

低溫氮化鎵薄膜磊晶與物理特性之研究

**Growth and Characterizations of Low Temperature GaN
Epilayers Using Two-Heater MOCVD Reactor**

研究生：陳永翔

Student：Yung-Hsiang Chen

指導教授：陳衛國 教授

Advisor：Prof. Wei-Kuo Chen

國立交通大學

電子物理系

碩士論文

A Thesis

Submitted to Department of Electrophysics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master

in

Electrophysics

July 2012

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一零一年七月

低溫氮化鎵薄膜磊晶與物理特性之研究

研究生：陳永翔

指導教授：陳衛國 教授

國立交通大學電子物理研究所

中文摘要

本論文中使用自組式雙加熱有機金屬化學氣相沉積(MOCVD)系統成長氮化鎵(GaN)薄膜，在低磊晶溫度 850 °C 下成長變五三比(V/III)系列樣品，並利用霍爾量測、X 光繞射以及光激螢光光譜，對於薄膜的電學與光學特性進行分析。

在變五三比系列中，V/III ratio 從 7500 增加至 20000，從霍爾量測得知 GaN 薄膜之最佳 V/III ratio 為 10000，此時的載子濃度與載子遷移率分別為 $3.9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以及 $146 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ，而低溫(19K)光激螢光光譜亦為近能帶邊緣發光主導。為了進一步釐清影響 GaN 薄膜載子遷移率的主要散射機制，進行 X 光繞射與變溫霍爾量測實驗，探討不同散射機制的影響性。從 X 光繞射頻譜得知差排密度並未隨著 V/III ratio 改變有明顯變化，約在 2.0×10^9 到 $4.9 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 之間，顯示差排散射並非影響低溫 GaN 薄膜載子遷移率的主因。透過變溫霍爾實驗，量測載子遷移率隨溫度變化與 $T^{-1/2}$ 呈現線性關係，推測影響低溫 GaN 薄膜載子遷移率的主因為本質缺陷散射。

Growth and Characterization of Low Temperature GaN Epilayers Using Two-Heater MOCVD Reactor

Student : Yung-Hsiang Chen

Advisor : Prof. Wei-Kuo Chen

Department of Electrophysics
National Chiao Tung University

Abstract

In this theses, we use the home-made two-heater MOCVD reactor to grow low-growth temperature(850 °C) GaN (LT-GaN) thin films. The electrical and optical properties of these samples were investigated by Hall, X-ray diffraction and photoluminescence measurements.

Hall measurement results indicate that the optimized V/III ratio of LT-GaN thin films grown by two-heater MOCVD reactor is 10000. The carrier concentration and carrier mobility of LT-GaN thin films is $3.9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ and $146 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. The LT-photoluminescence (19 K) result shows that the emission is dominated by near band emission.

The X-ray diffraction and temperature dependent Hall measurement (TD-Hall measurement) are employed to confirm the scattering mechanism. The X-ray diffraction spectra show that the dislocation density does not change significantly with the various V/III ratios, implying that the dislocations scattering is insignificant in V/III series of GaN films. The TD-Hall measurements indicate that the native defects scattering is the dominated scattering mechanism.

誌謝

坐在圖書館看著交大風景回想在交大以及新竹生活的點點滴滴，在這將近六年半時光裡的實在有太多珍貴的回憶值得我一輩子記得。不過許多風景依舊但諸多人事已非。大學時期的許多好友有些出國深造、有些進入職場，現在換我即將踏上人生另一段旅程了！

從大三開始專題研究到碩士畢業這將近四年半的時間，真的是我心態以及觀念最大改變的階段。在這期間要感謝的人非常的多，因為有這些人的幫助才讓我能夠堅持下去並且邁向終點。首先感謝的人是我從大學專題到碩士班一直以來的指導教授陳衛國老師，是老師的指導以及教誨讓我徹底蛻變。陳老師不僅僅是我的經師，更是我的人師。從研究精神的學習、做事方法的改善、到建立正面積極的人生觀，是老師讓我知道一個成熟的人該用什麼樣的心態面對人生所有事情。是老師給我成長的機會並且帶領我成長，真的非常謝謝老師。

另外，也要感謝周武清老師、張文豪老師以及柯文政老師在口試時提的許多建議。更謝謝老師們在我大學以及碩士班期間的諸多幫助，像是儀器設備的提供，實驗室開會時的建議等。特別要再一次感謝柯文政老師，在實驗室電性量測技巧與分析失傳的情況下，是柯老師的幫助才讓我能夠有系統的學習。

再來要感謝博士班李芳葦學長，謝謝學長教導我許多氮化物磊晶上的知識還有 MOCVD 系統整體以及各零件運作的原理。也謝謝學長每次都很有耐心的聽我講一堆毫無系統的分析，並且幫我找出邏輯以及方向。謝謝學長!也感謝博士班傅少甫學姊，謝謝學姊在我研究上遇到挫折或是心情低落時總是給我許多鼓勵以及建議，讓我有勇氣和信心可以堅持下去。也要感謝 WK 實驗室的夥伴玗愷學長、勃亨學長、蒼泯(毛毛)、思仔(思仔)、文傑(溫呆)、柏維、峻宏、佩玟、于恬。謝謝各位一直以來的許多幫助。也謝謝固態量子光子實驗室的所有學長姊、同學與學弟妹在我碩士期間光學量測上的幫助。特別是林萱學姊、韋辰、翊瑩還有權峰(阿 Co)，碩士期間有你們的陪伴真的是十分快樂!也要感謝許多已畢業的學長如李寧學長、陳京玉學長、楊子德學長、翁嘉駿學長(毛頭)，謝謝學長們於實驗以及系統維護上的許多幫忙。還要感謝元智大學機械系薄膜太陽能電池實驗室廖宜峰學長、志安、偉中等，謝謝各位在霍爾量測實驗上幫我許多忙。

最後要感謝我的家人，隻身在外求學才讓我更加明白家人的重要與可貴。因為有你們所以我才能無後顧之憂的在新竹求學，謝謝你們!

目錄

中文摘要.....	i
Abstract	ii
誌謝.....	iii
目錄.....	v
圖目錄.....	vii
表目錄.....	ix
一、 前言.....	1
二、 量測系統原理.....	5
2.1 X 光繞射.....	5
2.2 光激螢光光譜.....	6
2.3 霍爾量測.....	12
2.4 變溫霍爾量測.....	15
三、 樣品製備與分析儀器.....	24
3.1 樣品製備.....	24
3.2 X 光繞射儀.....	27
3.3 光激螢光光譜系統.....	28
3.4 霍爾量測儀.....	30

四、 結果與討論.....	31
4.1 霍爾量測實驗討論.....	32
4.2 X 光繞射實驗討論.....	36
4.3 變溫霍爾實驗討論.....	40
4.4 低溫光激螢光實驗討論.....	52
五、 結論.....	55
參考文獻.....	56



圖目錄

圖(2.2-1) 直接能隙躍遷圖.....	8
圖(2.2-2) 氮化鎵載子複合行為圖.....	8
圖(2.2-3) 歐傑效應圖.....	11
圖(2.3-1) 霍爾量測圖.....	14
圖(2.4-1) 氮化鎵薄膜相關深階缺陷示意圖.....	18
圖(2.4-2) 載子散射示意圖.....	19
圖(2.4-3) 游離雜質散射與短範圍深階缺陷散射之影響範圍示意圖.....	20
圖(3.1-1) WK2008 自組式雙加熱 MOCVD 系統反應腔簡圖.....	25
圖(3.1-2) 樣品結構圖.....	25
圖(3.2-1) Bruker AXS D8 ADVANCE 系統圖.....	27
圖(3.4-1) Ecopia HMS-300 Hall Measurement System 圖.....	30
圖(4.1-1) 霍爾量測結果與 V/III ratio 關係圖.....	34
圖(4.1-2) 鎵空缺濃度與 V/III ratio 關係圖.....	34
圖(4.1-3) 各團隊長晶溫度與載子遷移率關係整理圖.....	35
圖(4.2-1) 差排彎曲延伸圖(TEM 圖像).....	38
圖(4.2-2) 改變 V/III ratio 之 μ_{dis} 與 $\frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 關係圖.....	38
圖(4.3-1) 改變 V/III ratio 系列變溫霍爾量測之載子遷移率與溫度關係圖.....	44

圖(4.3-2) 改變 V/III ratio 系列變溫霍爾量測之載子濃度與溫度關係圖	44
圖(4.3-3) 載子濃度與載子遷移率和溫度關係圖.....	45
圖(4.3-4) 擬合 V/III ratio 為 7500 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖	45
圖(4.3-5) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖	46
圖(4.3-6) 擬合 V/III ratio 為 15000 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖	46
圖(4.3-7) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜 $\ln(nT^{-3/2})$ 與 T^{-1} 關係圖.....	47
圖(4.3-8) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜載子濃度對溫度圖	47
圖(4.3-9) 各本質缺陷形成能量與費米能階關係圖.....	48
圖(4.3-10) 鎵吸附原子擴散長度與成長溫度關係圖.....	48
圖(4.3-11) O_N 與 O_{Ga} 之形成能量與費米能階關係圖	49
圖(4.3-12) C_N 與 C_{Ga} 之形成能量與費米能階關係圖	49
圖(4.3-13) 不同載子濃度之補償比例對載子遷移率圖.....	50
圖(4.4-1) 改變 V/III ratio 系列 19K 光激螢光譜圖	54
圖(4.4-2) 改變 V/III ratio 系列近能帶邊緣發光與黃光發光強度圖	54

表目錄

表(2.4-1) 相關常數表.....	16
表(2.4-2) 深階缺陷與游離雜質與深階缺陷缺陷影響散射程度概況表	19
表(2.4-3) 短範圍深階缺陷濃度對應載子遷移率數值表.....	22
表(3.1-1) V/III ratio 系列成長參數表	26
表(4.2-1) 改變 V/III ratio 系列霍爾量測結果與差排密度整理表	39
表(4.2-2) 改變 V/III ratio 系列 $\frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 數值表.....	39
表(4.3-1) 改變 V/III ratio 系列擬合變溫霍爾量測結果表	50
表(4.3-2) 各缺陷游離能與影響機制表.....	51



一、前言

氮化鎵 (GaN) 和其相關氮化物合金是目前製做發光二極體 (Light-emitting diode, LED)、雷射二極體 (Laser diode, LD)、以及高電子遷移率電晶體 (High electron mobility transistor, HEMT) 等元件的熱門材料。可在高溫和高功率等情況下運作是其主要賣點，代表此材料在較嚴苛的環境下仍可使用。對 LED 而言，藉由調配氮化鎵與氮化銦固相組成的氮化銦鎵 (InGaN) 合金，可以使發光波長範圍從 340 奈米調變至 1800 奈米。這波長範圍涵蓋了從紫外光、可見光到近紅外光。如此寬的波長範圍突顯了三族氮化物 (III-nitride) 材料在 LED 元件應用上的優勢。

早期在製備氮化鎵材料時，由於沒有匹配的晶格常數與熱膨脹係數的基板。所以無法成長出高品質的氮化鎵材料。為了克服不匹配的問題，1983 年 S. Yoshida 團隊 [1] 以分子束磊晶系統 (MBE) 將氮化鎵成長於覆蓋有氮化鋁 (AlN) 材料的藍寶石基板 (Sapphire substrate) 上。但是材料品質的提升很有限，室溫下的載子遷移率 (Carrier mobility) 只有 $35 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 。1985 年 H. Amano 與 I. Akasaki 團隊 [2][3] 以金屬有機化學氣相沉積系統 (Metal organic chemical vapor deposition, MOCVD) 將氮化鎵沉積在氮化鋁緩衝層 (Buffer layer) 上，成功提升氮化鎵材料的薄膜品質。其室溫載子濃度為 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ，載子遷移率為 $400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 。1991 年 S. Nakamura 團隊 [4][5] 使用低成長溫度

氮化鎵作為緩衝層，並以自組式雙氣流 MOCVD 系統(Two-flow MOCVD, TF-MOCVD)磊晶出具有元件品質的氮化鎵材料。其薄膜表面平整且載子濃度為 $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ，載子遷移率更高達 $900 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 。S. Nakamura 團隊更進一步以此方式製作 p-n 接面等相關元件，其雷射二極體的生命期(Life time)為 10,000 小時，都是相當高水準的元件等級。此種以低成長溫度氮化鎵作為緩衝層的兩階段成長方式(Two step growth)，之後更成為了製作氮化鎵薄膜的標準製程步驟。

然而傳統的製程溫度(約 1000°C)仍然屬於高溫製程，如同前面提到沒有與氮化鎵熱膨脹係數匹配的基板，因此在製程上必須面臨到熱應力釋放的問題。在大尺寸基板製程時，高成長溫度容易造成基板熱翹曲(Curvature)使基板溫度不均勻，造成製程良率降低。再者，更高的製程溫度也不利於氮化鎵材料應用於其他基板(塑膠基板或鍍基板)或是與其他生物類元件結合。當然高製程溫度也會使得電力消耗增加，提高了製程成本。因此降低製程溫度是相當重要的議題。

低溫成長還有一項優勢，如前面第一段提到氮化銦鎵是 LED 元件的主要材料，其元件結構主動發光層中一般以氮化銦鎵/氮化鎵多層量子井($\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ multiple quantum well, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{GaN}$ MQWs)構成。其中氮化銦鎵在高溫製程時容易遇到銦脫附(Indium desorption)現象，所以氮化銦鎵量子井發藍光波長在製程上通常以 780°C 作為成長溫度。而發綠光波長

更以 680°C 作為成長溫度。不論是 680°C 或是 780°C 都是遠低於氮化鎵成長溫度(一般是 1000 到 1100°C 之間)。但為了避免銦脫附造成組成下降，氮化鎵阻擋層(Barrier)在氮化銦鎵發藍光波長時以 880°C 成長。而在發綠光波長時以 780°C 成長。一般在如此低成長溫度下磊晶氮化鎵薄膜的品質都不太理想。在光激螢光(Photoluminescence, PL)光譜量測上，根據文獻統計，成長溫度低於 900°C 的氮化鎵薄膜其 2.2 eV 的黃光發光都佔有很高的比重，甚至普遍比近能帶邊緣發光強度大[6][7][8]。載子濃度大多落在 10^{18} cm^{-3} 到 10^{19} cm^{-3} 之間，載子遷移率則多半只有 $50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 左右[9][10][11]。若能開發在相對較低的成長溫度下成長出與高溫成長接近的氮化鎵薄膜品質，並將此技術用於氮化銦鎵多層量子井上，將可進一步提升元件特性。LED 元件中 p 型氮化鎵(p-type GaN)在製程溫度上也會和 barrier 層類似的問題。其成長溫度一般是在 900°C，同樣的比量子井的成長溫度高。所以若能降低 p-type 氮化鎵的製程溫度也將會對氮化銦鎵量子井的組成維持有幫助。

以目前能蒐集到的文獻資料，低成長溫度氮化鎵最好的光性發表是 H. Y. Wang 團隊[9]以自組式交替五、三族供應的原子層磊晶機台，在 900°C 下成長的氮化鎵薄膜。其發光峰值為 3.475 eV 的近能帶邊緣發光，且低溫 PL 半高寬(Full width of half maximum, FWHM) 為 9 meV。而以 MOCVD 系統成長氮化鎵薄膜在低成長溫度下通常會遇到氨(NH_3)分解不足或是與三甲基鎵(Trimethylgallium)碰撞不夠的情況[10]。為了提升氨的分解量，

H. J. Kim 團隊[12]族管線進入反應腔體前端加裝預熱裝置(Preheating)。但提高分解率的位置距離長晶表面仍有一段距離，致使額外分解的氮氫鍵活性複合物(N-H radicals)實際參與反應量有限。

為了進一步提高氮氫鍵活性化合物參與反應，本實驗室自組式 MOCVD 系統採用雙加熱且可獨立控溫的設計。其反應腔體除了一般基板加熱源外，於上方建置了可另外單獨控溫的加熱來源，我們稱之為上蓋板溫度(Ceiling temperature, T_c)。本文樣品即是以此特殊設計的 MOCVD 系統製備，並探討低溫成長氮化鎵的光電特性。

本論文所安排的第一章為前言，第二章是量測系統原理，第三章是樣品製備與分析儀器，第四章是結果與討論，最後第五章是結論。



二、量測系統原理

2.1 X 光繞射

X 光繞射是用來分析薄膜結晶品質的首選工具。主要根據布拉格定律 (Bragg's law)，其公式如下式(2.1-1)。 d_{hkl} 為選定平面方向中相鄰的兩平面距離。 θ 為 X 光入射方向與晶體平面夾角。 λ 為 X 光的波長， n 值通常為 1。

$$2d_{hkl} \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda \quad \text{式(2.1-1)}$$

本實驗需要測定的面分別有(002)面與(102)面。針對此兩平面分別以 $2\theta/\omega$ 、rocking curve 兩種方式檢測。將所得到的 rocking 譜線半高寬代入下式(2.1-2)可以得到差排密度(Dislocation density)[13]。其中 D 是差排密度、 β 是 rocking 譜線半高寬、 b 是 Burger vector。對螺旋差排(Screw dislocation)而言 b 為 0.3189 nm，對刃型差排(Edge dislocation)而言則是 0.5185 nm[14]。

$$D = \frac{\beta^2}{9b^2} \quad \text{式(2.1-2)}$$

2.2 光激螢光光譜

光激螢光光譜(Photoluminescence spectra)，是非破壞性檢測半導體光學特性的方法。當雷射光打在半導體樣品上時，若是雷射光的能量大於或是等於樣品能隙，則在價電帶(Valance band)的電子會吸收雷射光子所給的足夠能量，而能夠從價電帶躍遷到傳導帶(Conduction band)上。在傳導帶的電子和價電帶的電洞會透過聲子與載子間的相互作用，在能帶邊緣(Band-edge)附近重新分布，最後電子落回基態與電洞復合發出螢光，這發出光子的行為就是所謂的輻射躍遷(Radiative transition)。一般雷射入射光子的能量可以代表價電帶頂端到傳導帶底部的能量差。但若是樣品中有缺陷(Defect)與雜質(Impurity)，則此入射光子能量就代表缺陷之間的能量差。不同的躍遷情況會直接在光激螢光光譜上呈現，由於缺陷和雜質有可能成為非輻射復合中心(Non-radiative centers)。電子與電洞在非輻射復合中心復合時不會產生光子，固發光效率會降低當電子電洞以此方式復合。接下來便描述一些會影響光激螢光光譜的主要輻射與非輻射復合過程。

(一) 輻射躍遷 (Radiative transition)：

如同前面所說，電子由高能態落至低能態與電洞結合時會放出光子，這就稱為輻射躍遷。而不同的輻射躍遷方式會產生不同能量的光子，以下說明三種輻射躍遷方式。

(1) 帶間躍遷 (Band to band transition)

帶間躍遷通常發生在能帶結構為直接能隙(Direct bandgap)的半導體上，例如 III-V 族的半導體。被雷射光激發而躍遷的電子會分布在導電帶最底部，而電洞會在價電帶的最頂部，如下圖(2.2-1)。之後電子和電洞會複合發出光子，而復合率與電子及電洞的濃度有關。復合率正比於電子和電洞濃度的乘積，故半導體內的電子和電洞的濃度越高，就會有較快的復合率。

(2) 激子躍遷 (Exciton transition)

導電帶的電子與價電帶的電洞彼此之間因為受到庫倫力的作用而形成電子電洞對，稱之為激子(Exciton)。激子躍遷能量為 $h \cdot \nu = E_g - E_n$ ，其中 h 為普朗克常數(Planck's constant)， ν 為光子頻率， E_g 為半導體能隙， E_n 是激子的束縛能。

而 E_n 的數學形式如下式(2.2-1)

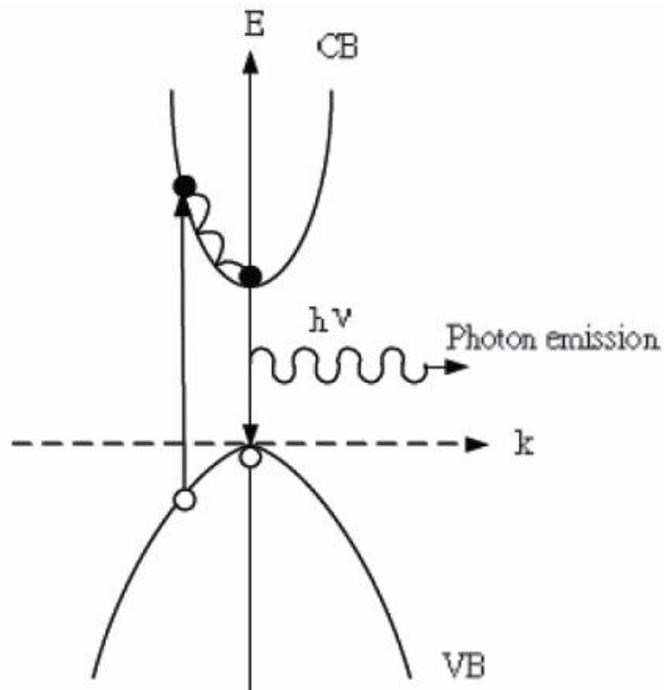

$$E_n = \frac{2\pi^2 \mu \cdot e^4}{h^2 \epsilon^2 n^2} \quad \text{式(2.2-1)}$$

μ 為有效減縮質量(Reduced mass)， n 為量子數(Quantum number)， ϵ 為介電常數(Dielectric constant)。

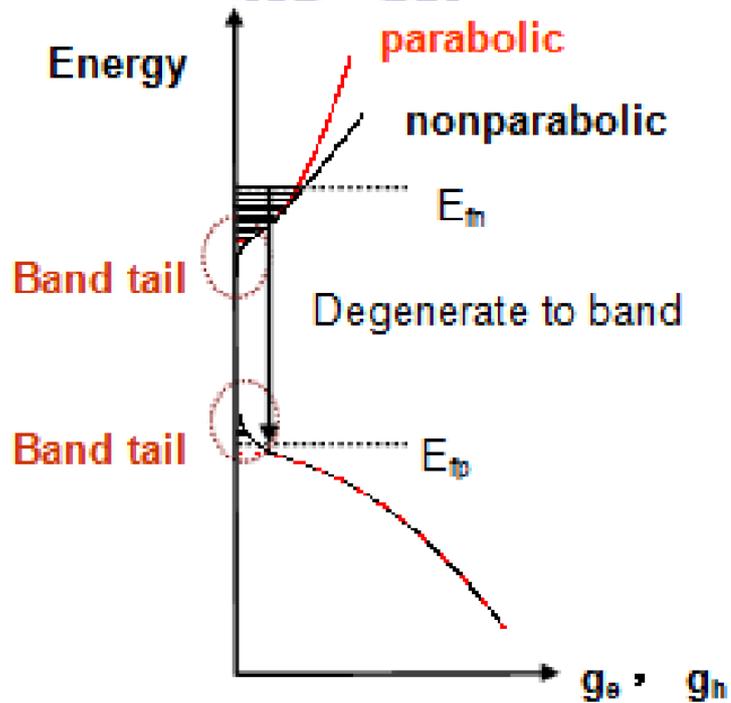
(3) 自由-束縛態躍遷 (Free-to-bound transition)

自由載子(電子或電洞)與被束縛或捕獲的載子(電子或電洞)產生在結合的過程稱為自由-束縛態躍遷。在高載子濃度或高摻雜的半導體中，因為雜質濃度在空間中分布不均勻會導致導電帶與價電帶的能帶邊緣在空間的分佈產生差異。因而使導電帶與價電帶的狀態密度(Density of State)產生帶

尾(Band tail)，如下圖(2.2-2)。



圖(2.2-1) 直接能隙躍遷圖



圖(2.2-2) 氮化鎵載子複合行為圖

(二) 非輻射躍遷 (Non-radiative transition)

當發生非輻射躍遷，由於不會放出光子，故對發光效率是負面的影響，

下面說明一些造成非輻射躍遷的原因。

(1) 聲子放射 (Phonon emission)

電子與電洞的復合不一定以產生光子來放出能量，有可能是由聲子的方式放出能量，這種由聲子放出能量的方式，會使晶體發熱，稱之為聲子放射。

(2) 表面復合 (Surface recombination)

在長晶過程，表面與介面容易形成缺陷，電子在移動時有機會被這些缺陷能階所捕捉，使得電子電洞在表面復合，並且經由電子在缺陷周圍的大量震動釋放出熱能。

(3) 歐傑效應 (Auger effect)

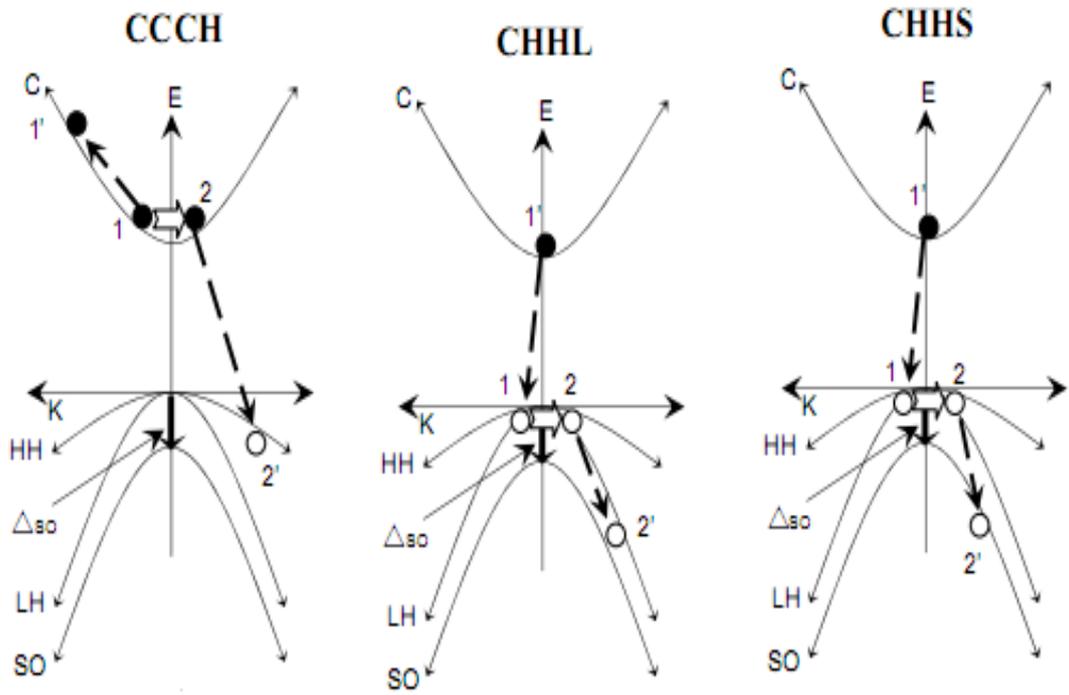
一般歐傑效應主要分為三種，分別如下：

1. 在導電帶(C)裡的兩個電子與價電帶(H)裡的一個電洞所進行的復合過程(CCCH)，如圖(2.2-3)。CCCH過程主要發生在導電帶裡的電子1(C)由於庫倫交互作用力撞擊另一個電子2(C)，電子1(C)本身因為反作用力彈向高能階處1'(C)，另一電子2被撞擊後跑到價帶2'(H)與電洞進行復合，所以稱為CCCH。而在高能階處1'的電子由於位能高，容易在導電帶中將能量轉

換為聲子，而掉至導電帶的基態，這釋放給聲子的能量稱之為歐傑臨界能量(Threshold energy)。

2. 在導電帶裡的一個電子與重電洞帶裡的兩個電洞進行複合，可以是(CHHS)以及(CHHL)兩種。CHHL過程與CCCH相反，在價電帶裡的兩個電洞1(H)與電洞2(H)由於庫倫交互作用力，會互相碰撞，帶能量的電洞2'(L)跑至輕電洞帶(Light hole band)，而電洞1(H)吸引導電帶的電子1'(C)與被撞擊的電洞進行複合，所以稱為CHHL。再轉換能量回到價電帶的基態，此轉換能量也是歐傑臨界能量，此能量與能隙成正比。CHHS與CHHL相似，只是將輕電洞帶換為分離帶。同樣的，專換過程中所放出的能量是歐傑臨界能量，與能隙成正比，與分離帶分離能量(Δ_{so})成反比。





圖(2.2-3) 歐傑效應圖



2.3 霍爾量測

在半導體上外加一個垂直於電流方向的磁場會產生一個方向垂直於電流和磁場的電場，若是考慮一個 P 型半導體如下圖(2.3-1)，電流 I 沿著+X 軸方向，也就是電子由右往左邊方向流動，而電洞則是由左往右邊方向流動，外加的磁場 B 是沿著+Z 軸方向，因此，電流可以表示成如下式(2.3-1)

$$I = qApv_x = qwdpv_x \quad \text{式(2.3-1)}$$

其中 p 是電洞濃度，而延著 X 軸方向的電壓大小 V_ρ 為

$$V_\rho = \frac{\rho s I}{wd} \quad \text{式(2.3-2)}$$

由式(2-1)與式(2-2)可以將電阻 ρ 表示如下式(2.3-3)

$$\rho = \frac{wd}{s} \frac{V_\rho}{I} \quad \text{式(2.3-3)}$$

現在考慮電洞在一均勻磁場 B 中的運動，作用在電洞上的電力與磁力的表示如下式(2.3-4)

$$F = q(\varepsilon + V \times B) \quad \text{式(2.3-4)}$$

此電力與磁力會使一些電洞可以再樣品的底部被偵測到，如下圖(2.3-1)。

若是討論 N 型半導體，電子則是在樣品底部會被偵測到，不過電流方向仍和圖(2.3-1)的電流方向一樣，是由於電子是帶負電以及電子流的方向和電流相反。

回到 P 型半導體的討論，由於電洞累積在底部表面，所以對電洞而言，Y 軸方向所受到的總力為零，使得在 Y 方向上沒有電流，因此 $F=0$ ，可以將

Y 軸方向的電場表示如下式(2.3-5)

$$\varepsilon_y = Bv_x = \frac{BI}{qwdp} \quad \text{式(2.3-5)}$$

因此 Y 軸方向上的電場所產生的霍爾電壓可表示如下式(2.3-6)

$$\int_0^{V_H} dV = V_H = -\int_w^0 \varepsilon_y dy = -\int_w^0 \frac{BI}{qwdp} dy = \frac{BI}{qdp} \quad \text{式(2.3-6)}$$

霍爾係數 R_H 定義如下式(2.3-7)

$$R_H = \frac{dV_H}{BI} \quad \text{式(2.3-7)}$$

根據上式(2.3-5)、(2.3-6)以及(2.3-7)可以推得電洞濃度 p 表示如下式(2.3-8)

$$p = \frac{1}{qR_H} \quad \text{式(2.3-8)}$$

而電流 I 若用電流密度 J 表示，可以表示如下式(2.3-9)

$$J = qp\mu_p \varepsilon \quad \text{式(2.3-9)}$$

其中 μ_p 是電洞遷移率(Hole mobility)，而式(2.3-9)可以替換成下式(2.3-10)

$$\frac{I}{wd} = \frac{qp\mu_p \varepsilon}{s} \quad \text{式(2.3-10)}$$

最後可以再得到 μ_p 如下式(2.3-11)

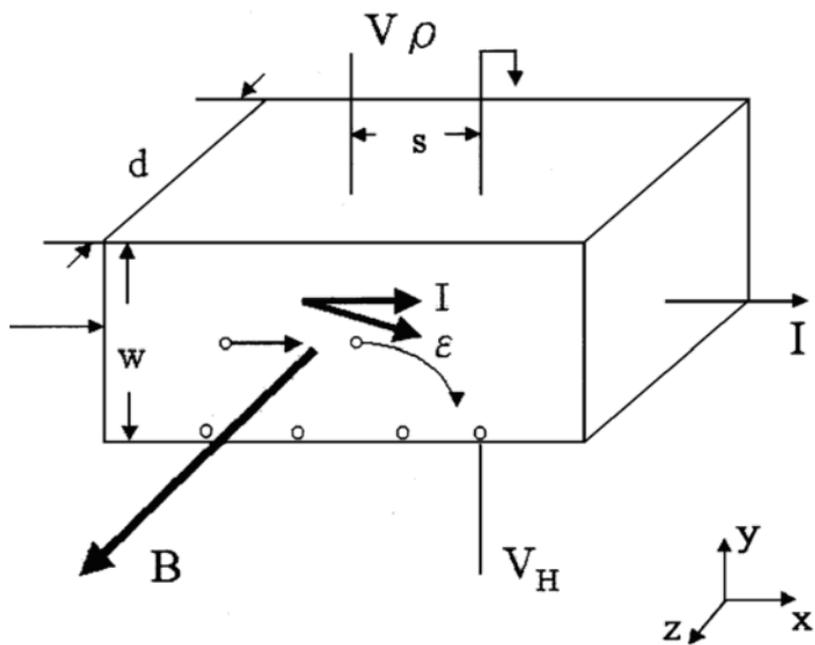
$$\mu_p = \frac{Is}{qpV_\rho wd} \quad \text{式(2.3-11)}$$

同樣地，若是討論 N 型半導體，可以得到電子濃度 n 以及電子遷移率 μ_n 表

示如下式(2.3-12)和式(2.3-13)

$$n = -\frac{1}{qR_H} \quad \text{式(2.3-12)}$$

$$\mu_n = \frac{Is}{qnV_\rho wd} \quad \text{式(2.3-13)}$$



圖(2.3-1) 霍爾量測圖



2.4 變溫霍爾量測

變溫霍爾量測即是將樣品降溫(或升溫)在各個溫度下進行霍爾量測，其量測範圍通常是 77 K 到 300 K。根據量測結果可以進一步擬合出授子濃度 (Acceptor concentration, N_A)、施子濃度 (Donor concentration, N_D)、施子活化能 (Activation energy of the donor, E_D) 以及短範圍散射濃度 (Short-range scattering density, N_s) (註 1) 等資訊。一般會先針對載子遷移率之變溫霍爾量測結果擬合來得到授子濃度，之後再對載子濃度之變溫霍爾量測結果擬合得到施子濃度與施子活化能。由於總體載子遷移率為各項載子遷移率之總和 (Matthiessen's rule) [15][16][17][18][19]，公式如下式 (2.4-1)

$$\mu_{\text{total}} = \left(\frac{1}{\mu_{\text{lattice}}} + \frac{1}{\mu_{\text{dislocation}}} + \frac{1}{\mu_{\text{impurity}}} + \frac{1}{\mu_{\text{short-range}}} \right)^{-1} \quad \text{式(2.4-1)}$$

其中 μ_{lattice} 為晶格振動聲子散射、 $\mu_{\text{dislocation}}$ 為差排散射、 μ_{impurity} 為游離雜質缺陷 (註 2) 中游離載子散射、 $\mu_{\text{short-range}}$ 為短範圍散射。個別散射機制對溫度以及各項濃度關係式如下式 (2.4-2)、(2.4-3)、(2.4-4)、(2.4-5)

$$\mu_{\text{lattice}} = \frac{2\sqrt{2\pi}\rho s^2 \hbar^4 e}{3E_1^2 (kT)^{3/2} m^{*5/2}} \quad \text{式(2.4-2)}$$

$$\mu_{\text{dislocation}} = \frac{30\sqrt{2\pi}\varepsilon^2 d^2 (kT)^{3/2}}{N_{\text{dis}} e^3 f^2 \lambda_d \sqrt{m}} \quad \text{式(2.4-3)}$$

$$\mu_{\text{impurity}} = \frac{128\sqrt{2\pi}\varepsilon^2 (kT)^{3/2}}{N_I e^3 m^{*1/2} [\ln(1+y) - y/(1+y)]} \quad \text{式(2.4-4)}$$

$$\mu_{\text{short-range}} = \frac{9\hbar^4 e (kT)^{-1/2}}{16\sqrt{3}\pi m^{*5/2} N_s U_0^2 a^6} \quad \text{式(2.4-5)}$$

將各散射機制代入式(2.4-1)與實驗值進行擬合可以得到授子濃度(N_A)與短範圍散射濃度(N_s)。接下來對載子濃度之變溫霍爾量測結果進行擬合，由於載子濃度與施子活化能關係式如下式(2.4-6)。先將 $\ln(nT^{-3/2})$ 與 T^{-1} 做圖。圖中斜率絕對值即為施子活化能(E_D)，將其值與前面擬合出之授子濃度代入電中性公式(Charge-balance equation)下式(2.4-7)擬合載子濃度與溫度關係式即可得到施子濃度(N_D)。其中 $\phi_D = \frac{1}{2} N_c e^{-E_D/kT}$ 。

載子濃度與活化能關係式： $n = N_c T^{3/2} \exp\left[-\frac{E_D}{kT}\right]$ 式(2.4-6)

電中性公式： $n + N_A = \frac{N_D}{1 + \frac{n}{\phi_D}}$ 式(2.4-7)

相關常數整理為表(2.4-1)

Symbol (units)	Literature value
S (m s ⁻¹)	6.59x10 ³
ϵ (F m ⁻¹)	10.4 ϵ_0
T _{po} (K)	1044
ρ (kg m ⁻³)	6.1x10 ³
m [*]	0.22m ₀
E ₁ (eV)	9.2

表(2.4-1) 相關常數表

註 1.

短範圍散射(Short-range scattering)是指散射中心的游離能較高之缺陷，如深階缺陷(Deep level，游離能約大於 75 meV)[18][19][20]，這些缺陷只在缺陷中心(Defect core)造成散射而在其他位置則不造成散射。也因為游離能高使得這些深階缺陷大都保持著電中性狀態。根據載子遷移率根據下式(2.4-8)可以看出與側向捕捉面積(cross-sectional area, σ)[17]。其中側向捕捉面積和位能(ΔV)有關因此在計算各散射機制時必須先找出該項散射機制的位能型式。一般游離離子散射(Ionized-impurity scattering)其游離載子與缺陷中心可以根據 Bohr 氫原子理論計算出庫倫位能(式(2.4-9))，但短範圍散射指在缺陷中心造成散射因而不適用 Bohr 氫原子理論來計算位能。近年來文獻記載認為位能井(Square-well potential)最滿足短範圍散射條件下式(2.4-10)，此種位能型式在缺陷中心不會造成發散且只在缺陷中心附近存在位能[18][19][20]。透過位能井的使用可以計算出短範圍散射所造成的載子遷移率與溫度之間關係如下式(2.4-11)。從此公式中可看出此散射機制與

溫度開根號並倒數成正比， $\mu_{\text{short-range}} \propto \frac{T^{-1/2}}{N_s}$ 。

載子遷移率式計算公式： $\mu = \frac{e}{m^*} \tau_c = \frac{e}{m^*} \left(\frac{1}{CN} \right) = \frac{e}{m^*} \left(\frac{1}{v\sigma N} \right)$ 式(2.4-8)

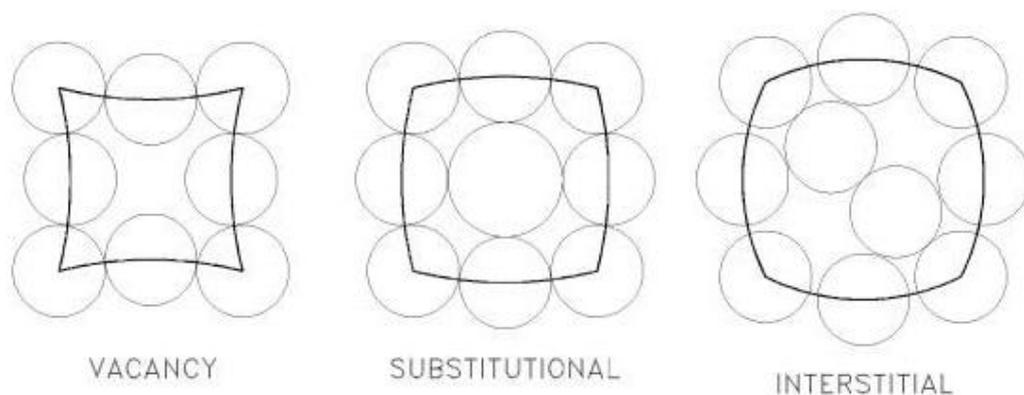
庫倫位能： $\Delta V = \frac{-e^2}{4\pi\epsilon} \cdot \frac{1}{r_n}$ 式(2.4-9)

$$\text{位能井： } \Delta V = \begin{cases} U_0 & r \leq |a_0| \\ 0 & r > |a_0| \end{cases} \quad \text{式(2.4-10)}$$

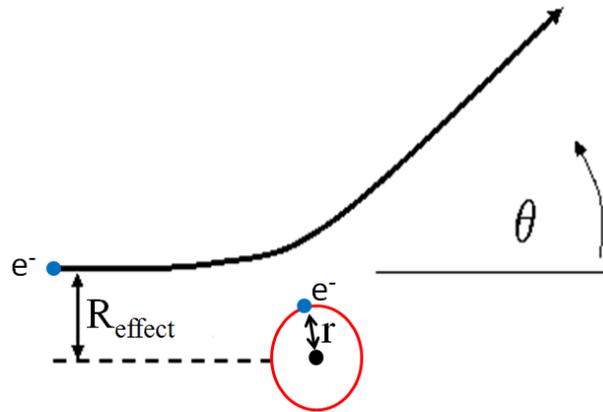
$$\text{短範圍散射公式： } \mu_{\text{short-range}} = \frac{9h^4 e(kT)^{-1/2}}{16\sqrt{3}\pi m^{*5/2} N_s U_0^2 a^6} \quad \text{式(2.4-11)}$$

氮化鎵薄膜中容易形成的深階缺陷有空缺(Vacancy)、替換(Substitutional)、間隙(Interstitial)等缺陷。這些缺陷不單使得原子排列順序改變，也會使化學鍵結受到影響至使鍵結能改變，也因為鍵結能改變導致缺陷位置的位能產生變化[21]。於註 1.第一段有提到造成載子散射的捕捉面積是由該處的位能決定，因此深階缺陷造成位能的改變勢必會影響載子遷移狀況(表(2.4-2)列出深階缺陷與游離雜質缺陷影響散射程度概況)。

如圖(2-4.2)可以得知當具有特定動能(E)的移動載子經過缺陷附近，缺陷本身與周圍(此範圍定義為影響半徑, R_{effect})的位能變會影響載子移動。若載子的動能不足以克服位能便無法通過缺陷周圍而被散射，故載子之遷移能力與缺陷位能有關且眾多文獻中計算通過機率與捕捉面積也是從位能開始計算[17][18][19]。



圖(2.4-1) 氮化鎵薄膜相關深階缺陷示意圖



圖(2.4-2) 載子散射示意圖

	缺陷位能	缺陷濃度	等效單位缺陷捕捉面積
游離雜質缺陷	30 meV	$1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	24.97 nm²
短範圍深階缺陷	1.6 eV	$1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$	0.27 nm²

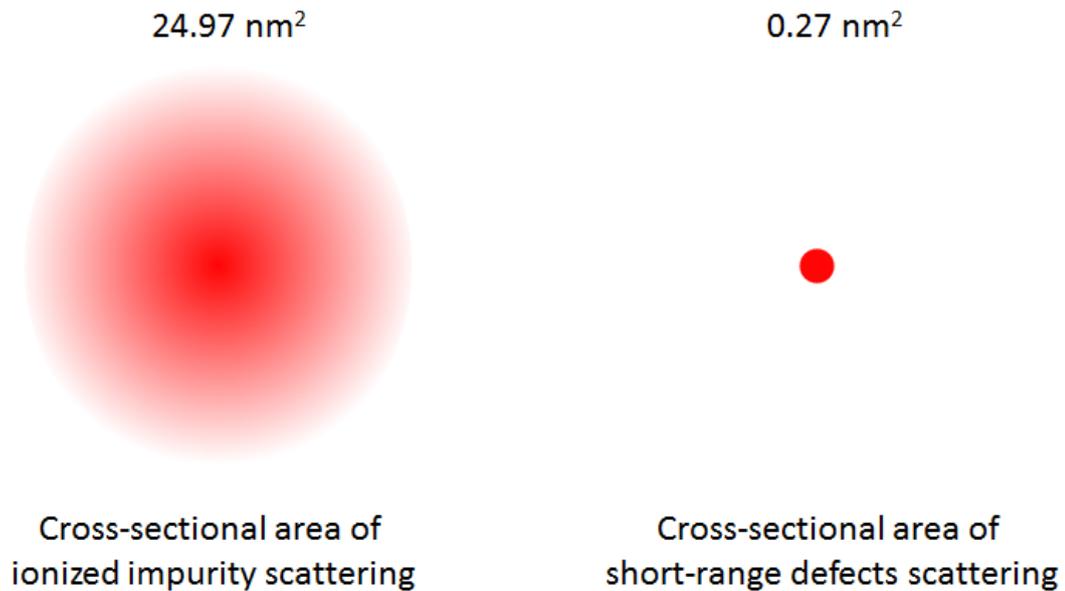
表(2.4-2) 深階缺陷與游離雜質與深階缺陷缺陷影響散射程度概況表

* 游離雜質等效捕捉面積公式： $\sigma = \pi \cdot r^2$ ， r 為游離半徑 2.82 nm。

$$\text{短範圍深階缺陷等效捕捉面積公式：} \sigma = \frac{16\pi^2 a^6}{9} \left[\frac{m^* U_0}{\hbar^2} \right]^2, [18]$$

a 為晶格常數 0.3 nm， U_0 為位能 1.6 eV。

深階缺陷由於游離能較高所以這些深階缺陷大都保持著電中性狀態，因此造成散射之位能並非帶電載子之間的庫倫位能。散射的機制是由於深階缺陷造成結構排列不完美至使原子之間原本的化學鍵結受到破壞，而此鍵結能的改變會造成位能對載子移動造成影響。



圖(2.4-3) 游離雜質散射與短範圍深階缺陷散射之影響範圍示意圖

由圖(2-4.3)可發現游離雜質散射影響範圍較大(24.97 nm^2)但各處的庫倫位能大小呈輻射狀遞減(圖中顏色越深代表位能越大)，在位能較低的位置只能造成載子移動方向部分的改變。短範圍深階缺陷散射雖影響範圍較窄(0.27 nm^2)但範圍內各處的位能皆很大，移動載子通過時會造成大角度方向偏移。從此可知雖然游離散雜質散射的捕捉面積比短範圍深階缺陷散射的捕捉面積大了將近 100 倍，但仍然需要考慮位能扮演的角色才能決定各散射缺陷的影響程度。

載子遷移率反應外加電場下載子的平均速度($\langle v \rangle = \mu \cdot E$)，當移動方向偏移越大代表通過單位空間所需的時間會增加，致使平均速度減少(載子遷移率下降)。因此計算載子遷移率要考慮整體影響因素，如捕捉面積與位能等。從散射機率 $S(r)$ 開始計算[17][18][19]，(如公式(2.4-12))，其中 $A(r)$ 代

表是干擾位能，其公式如式(2.4-13)，整合位能造成散射機率與捕捉面積得到影響散射程度(將散射機率積分)並計算出各散射機制影響遷移率公式(2.4-14)、公式(2.4-15)。從上述公式可以得到散射機率大小中需要考慮位能平方倍的影響。游離雜質缺陷的位能為 30 meV 而短範圍深階缺陷的為能為 1.6 eV，平方倍後短範圍散射受到位能影響會比游離雜質多將近 3000 倍。因此考慮整體散射效果時位能項彌補了捕捉面積大小差異(游離散射的捕捉面積約是短範圍散射的 100 倍)，可看出短範圍散射在濃度到達一定比例時會對材料的載子遷移率造成影響。

$$\text{散射機率公式： } S(r) = \frac{V_c}{8\pi^3} \int \frac{2\pi}{\hbar} |A(r)|^2 dr \quad \text{式(2.4-12)}$$

$$\text{干擾位能公式： } A(r) = \frac{1}{V_c} \int \Delta V \cdot e^{-iqr} dr \quad \text{式(2.4-13)}$$

$$\text{短範圍缺陷載子遷移率公式： } \mu_{\text{short-range}} = \frac{9h^4 e (kT)^{-1/2}}{16\sqrt{3}\pi m^{*5/2} N_s U_0^2 a^6} \quad \text{式(2.4-14)}$$

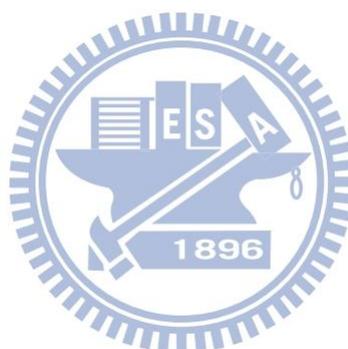
$$\text{游離缺陷載子遷移率公式： } \mu_{\text{impurity}} = \frac{128\sqrt{2}\pi \varepsilon^2 (kT)^{3/2}}{N_i e^3 m^{*1/2} [\ln(1+y) - y/(1+y)]} \quad \text{式(2.4-15)}$$

如同前面提到綜合考慮捕捉面積以及缺陷濃度時，得到的短範圍散射需達到一定濃度才會對載子遷移率造成實際的影響。表(2.4-3)根據公式(2.4-14)計算短範圍深階缺陷濃度對應載子遷移率的理論數值。從表中可知當短範圍深階缺陷濃度到達 $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 時，該項散射才會對材料的載子

遷移率造成影響。

短範圍深階缺陷濃度 (cm^{-3})	載子遷移率 (cm^2/Vs)
1×10^{13}	7263066
1×10^{14}	726307
1×10^{15}	72631
1×10^{16}	7263
1×10^{17}	726
1×10^{18}	73

表(2.4-3) 短範圍深階缺陷濃度對應載子遷移率數值表



註 2.

游離雜質散射公式中為 N_I 游離雜質濃度，其包含著施子濃度與授子濃度，關係式如下式(2.4-12)[17][20]。

$$N_I = N_D + N_A \quad \text{式(2.4-12)}$$

而載子濃度 n 為施子濃度扣掉授子濃度，關係如下式(2.4-13)[17][20]。

$$n = N_D - N_A \quad \text{式(2.4-13)}$$

因此可將游離雜質濃度替換為授子濃度與載子濃度關係(式(2.4-14))。

$$N_I = 2N_A + n \quad \text{式(2.4-14)}$$

將式(2.4-14)代入式(2.4-4)可以得到游離雜質散射與溫度關係式如下式(2.4-15)。

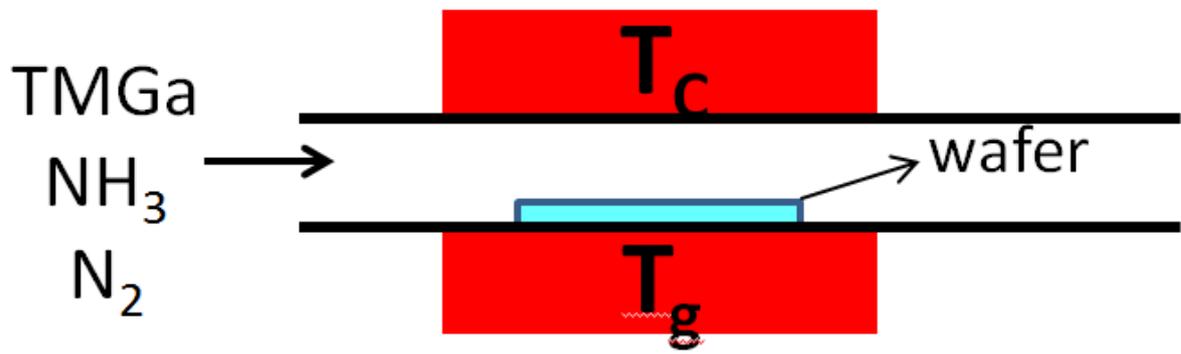

$$\mu_{\text{impurity}} = \frac{128\sqrt{2\pi}\epsilon^2(kT)^{3/2}}{(2N_A + n)e^3 m^{*1/2}} \quad \text{式(2.4-15)}$$

前面註 1.有提到載子遷移率式計算公式為 $\mu = \frac{e}{m^*} \tau_c = \frac{e}{m^*} \left(\frac{1}{v\sigma N} \right)$ ，而在計算游離雜質散射載子遷移率時，其散射來源是載子與游離雜質碰撞或是載子受到游離雜質的庫倫位能影響導致載子遷移率下降。當載子本身的移動速度(v)增加時，載子碰撞到游離雜質的機會較少或是受到游離雜質庫倫位能影響的時間較短，因此載子遷移率會提升[21]。由於熱能會使得載子本身移動速度提升，因此游離雜質散射在溫度較高時比較不會是散射的主要機制。

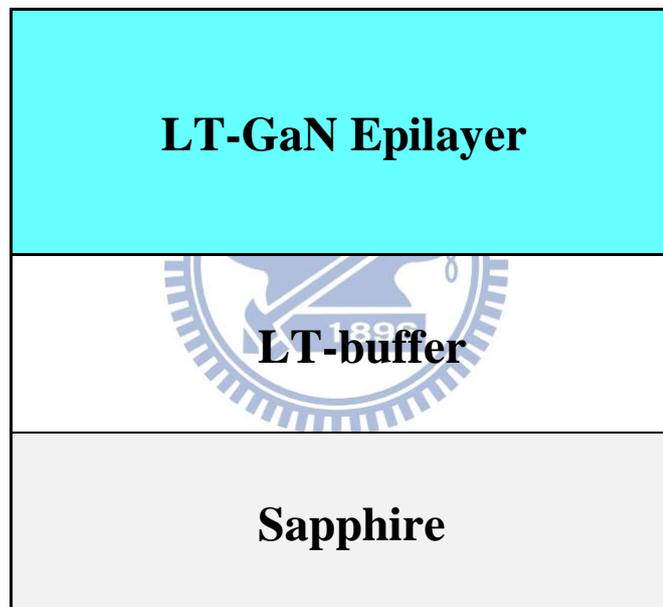
三、樣品製備與分析儀器

3.1 樣品製備

本實驗樣品以 WK2008 自組式雙加熱 MOCVD 系統成長。為討論低成長溫度(850°C)氮化鎵薄膜(Low temperature growth GaN thin films, LT-GaN)的光電特性，因而成長了改變 V/III ratio 系列。使用標準氮化鎵薄膜磊晶之兩階段成長[4][5]方式，以(0001)面之藍寶石作為成長基板。使用氨、三甲基化鎵以及三甲基化銦(Trimethylindium, TMIIn)作為樣品材料來源，並以氮氣(N₂)來作為載流氣體(Carrier Gas)。而在成長主要磊晶層(Epilayer)時，除了一般機台的基板溫度(Substrate Temperature, T_g)外，還有一個上層溫度(Ceiling Temperature, T_c)來幫助低溫成長，反應腔簡圖如下圖(3.1-1)。樣品結構圖皆如下圖(3.1-2)而成長參數表如表(3.1-1)。



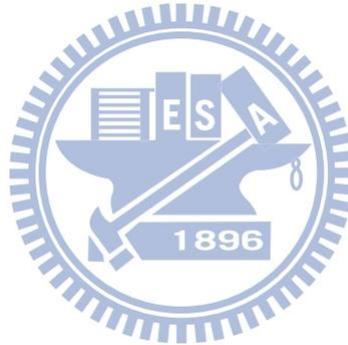
圖(3.1-1) WK2008 自組式雙加熱 MOCVD 系統反應腔簡圖



圖(3.1-2) 樣品結構圖

Step	Temperature	Time/ Thickness	Flow Rate		V/III ratio	Carrier Gas
			TMGa ($\mu\text{mol}/\text{min}$)	NH ₃ (SLM)		
Thermal cleaning	1150 °C	13 min	--	--	--	H ₂
GaN buffer layer growth	530 °C	29.4 nm	47.12	2.7	2500	
Temperature ramping rate	97.5 °C/min		--	2.7	--	
GaN epilayer growth	850 °C	1.18-1.32 μm	23.56	5.25	7500-20000	N ₂

表(3.1-1) V/III ratio 系列成長參數表



3.2 X 光繞射儀

為了得知樣品結構特性，所以進行 X 光繞射實驗。本實驗所使用的 X 光繞射儀為 Bruker AXS D8 ADVANCE 系統。其 X 光光源波長為 15.406 奈米，可操作的實驗方式有 Locked Couple、 $2\theta/\omega$ 、rocking curve、以及 detector scan 等。由於想得知樣品的晶粒大小(Grain size)、差排密度(Dislocation density)等結構特性。所以需要針對(002)面以及(102)面進行 rocking curve 實驗。系統圖如下圖(3.2-1)。



圖(3.2-1) Bruker AXS D8 ADVANCE 系統圖

3.3 光激螢光光譜系統

本實驗所使用的光激螢光系統是使用拉曼光譜實驗室裡可見光部分的光激螢光系統。首先先介紹雷射光源。使用波長為 325 nm 的氦鎘雷射 (He-Cd Laser, Kimmon IK552R-F) 作為激發光源，此雷射的功率密度約 $35 \text{ mW}/\text{m}^2$ 。雷射光射出機器後會經過反射鏡，再經過一片可調式濾光片，這片濾光片可以調整雷射強度。本實驗使用的雷射強度為 10 mW，通過濾光片後，穿過一片焦距為 15 cm 的透鏡將雷射聚焦到樣品的表面，此聚焦光點的直徑約為 0.5 mm。雷射光打在樣品上的會產生光激螢光光子，這些產生的光會再通過焦距為 5 cm 的透鏡，再穿過一片濾光器。此濾光器是長波長通過的濾光器 (Long-pass filter)，為了避免之後收光會收到雷射光源的光 (波長 325 nm 的光會被擋下)。接下來光會進入單光儀 (Monochromator) 來進行分光。通過單光儀的光會進入光電倍增管 (Photomultiplier tube, PMT, Hamamatsu R955) 來放大訊號，此處 PMT 所使用偏壓為 1900 V，並將訊號導至光子計數器 (Photocounter)，最後經由電腦處理成為光激螢光光譜圖。

本實驗之低溫光激螢光，所採用的降溫方式為氦氣封閉循環式低溫系統。須先使用抽真空機將樣品環境壓力降至 4 mtorr 以下，接著打開循環水系統，之後開啟壓縮機將樣品降低溫。此套系統適用溫度為 13 K 到 300 K。實驗時將雷射光打在樣品上後，需要針對樣品光譜之峰值波長位置校正光路，調整焦距及收光。首先調整聚焦透鏡 (將光源聚焦至樣品上的透鏡)，

於電腦 Labview-search 介面出現最大光子數，接下來調整另一片聚焦透鏡 (將激發光子聚焦至單光儀的透鏡)。此透鏡有三個調整處，分別是 X、Y、Z 方向。其中 X 與 Y 方向的調整是使激發光子完全進入單光儀，而 Z 方向同樣的是調整聚焦。必須使峰值波長位置的光子數到達最大值，於峰值處有最大值可以避免峰值波長外其他波長位置的光子數太少而無法解析。



3.4 霍爾量測儀

為了量測樣品的載子濃度與載子遷移率等電學特性，所以需要進行霍爾量測實驗。實驗前先以銾球(Indium Ball)作為電極壓在 1 cm x 1 cm 的樣品四個角落形成歐姆接觸(Ohmic Contact)，之後將樣品與電路板連接，再將電路板放入霍爾量測系統(Ecopia HMS-300 Hall Measurement System)進行霍爾量測實驗。每次實驗重複五次，將各次所得到的結果平均做為最後的霍爾量測數據。系統圖如下圖(3.4-1)。



圖(3.4-1) Ecopia HMS-300 Hall Measurement System 圖

四、結果與討論

本章針對利用 WK2008 雙加熱 MOCVD 系統於較低磊晶溫度下成長氮化鎵(LT-GaN)薄膜，進行樣品磊晶品質與光電特性探討。分別以 X 光繞射分析磊晶品質；以霍爾量測研究電學特性；光激螢光光譜探討發光特性。藉此得知低成長溫度下氮化鎵薄膜之磊晶成長與特性。

使用 MOCVD 系統成長氮化鎵薄膜，V/III ratio 是一重要磊晶參數，其影響包括氮氫鍵活性複合物提供、吸附原子於磊晶表面移動能力、薄膜成長速度[22]、側向成長速度[23][24][25]、缺陷濃度[26][27]、光電學特性以及結構特性(X-ray 特性)[28]等。這些特性也同時是影響氮化鎵薄膜品質的重要因素。因此藉由 X 光繞射與光電特性實驗分析不同 V/III ratio 對低成長溫度氮化鎵造成的影響，並且找出雙加熱系統低溫磊晶氮化鎵薄膜之最佳 V/III ratio。改變 V/III ratio 系列樣品之詳細磊晶參數請參照第三章樣品製備與分析儀器。

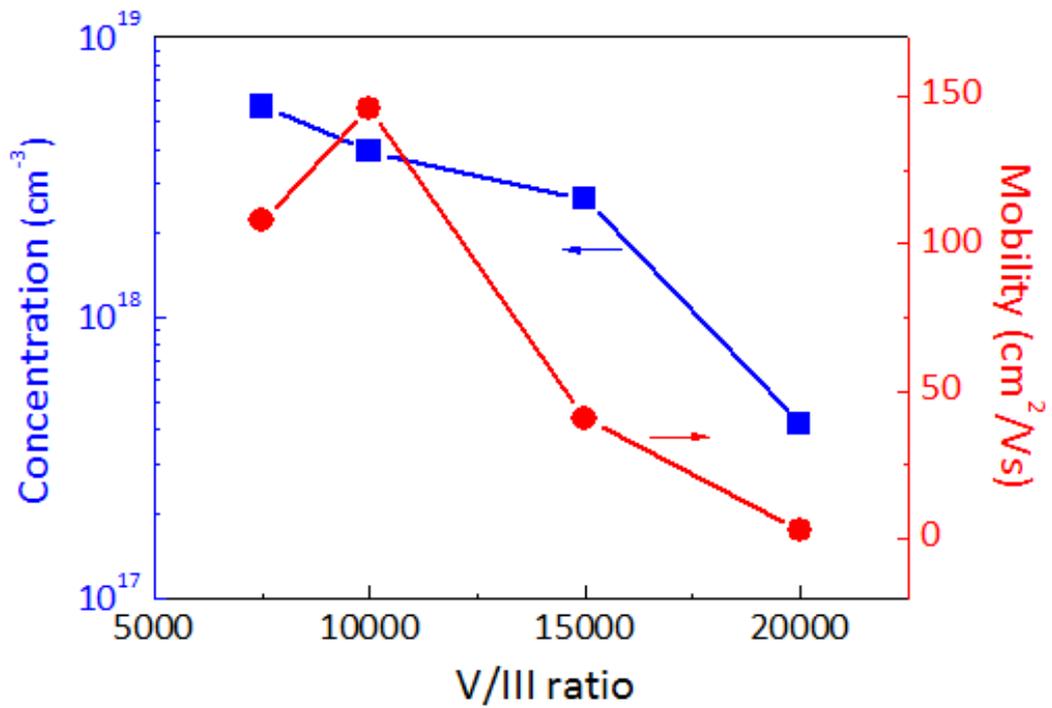
4.1 霍爾量測實驗討論

霍爾量測實驗可以快速得到薄膜之載子濃度、載子遷移率、n 型或 p 型等資訊，是電性量測最基本的實驗。應此先以室溫霍爾量測分析不同 V/III ratio 對電學特性的影響，其實驗結果整理成圖(4.1-1)。從圖中可以得知，在 V/III ratio 為 10000 時明顯可分為兩個區域，當 V/III ratio 從 7500 增加至 10000，載子遷移率從 $108 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 提升至 $146 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ，而載子遷移率從 $5.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 下降至 $3.90 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 。一般認為載子濃度下降同時載子遷移率提升是整體氮化鎵薄膜電學特性優化的現象，而先前提到到低成長溫度下之傳統 MOCVD 系統無法將氨氣有效分解，使得氮氫鍵活性複合物不足，造成大量氮缺陷產生而成為高電子濃度之 n-type GaN，進一步扮演了散射機制的角色讓電學品質低落。雙加熱 MOCVD 系統雖然額外提供氨氣分解，但仍需要一定的 V/III ratio 才能提供較為充足的氮氫鍵活性複合物，因此 V/III ratio 由 7500 提升至 10000 造成電學特性優化的初步原因可推測是較為充足的氮氫鍵活性複合物造成的結果。然而，當 V/III ratio 進一步由 10000 提高至 15000 以及 20000，電學特性沒有再連帶優化反而品質低落，其載子遷移率由原本 $146 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 下降為 $41 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ，而 V/III ratio 為 20000 情況下甚至只有 $2.7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 。載子濃度隨著 V/III ratio 提高而由 $3.90 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 下降至 $2.66 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以及 $4.16 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。雖然載子濃度下降至接近一般高成長溫度($1100 \text{ }^\circ\text{C}$)氮化鎵薄膜的等級(約 $1 \pm 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$)，但載

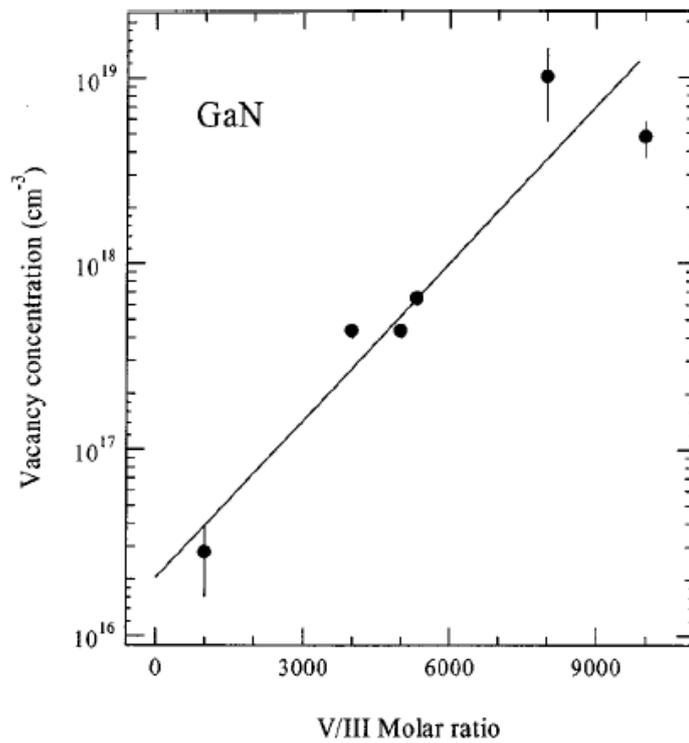
子遷移率卻是一直下降，此情況不能說明更高 V/III ratio 使氮化鎵薄膜品質再進一步提升，反而是在更高 V/III ratio 情況下產生補償型授子缺陷 (Acceptor defects)。這些授子缺陷補償了未摻雜氮化鎵薄膜原本的背景載子濃度，同時也扮演著散射中心(scattering centers)的角色使載子遷移率下降。

K. Saarinen et al.[26]藉由陽離子正電湮滅頻譜 (Positron annihilation spectroscopy)發現 V/III ratio 由 1000 提升至 10000，鎵空缺濃度會由 10^{16} cm^{-3} 提高至 10^{19} cm^{-3} ，其實驗結果整理為圖(4.1-2)，且載子濃度亦會由 10^{20} cm^{-3} 下降至 10^{16} cm^{-3} 。也有團隊認為過高 V/III ratio 情況下，過量氮原子會使減少鎵吸附原子在磊晶表面的移動能力，這也是鎵空缺在高 V/III ratio 情況下更容易產生的因素之一。

此改變 V/III ratio 系列中電學特性最佳的磊晶條件是 V/III ratio 為 10000，此時載子遷移率到達了 $146 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ，是目前在低成長溫度下傳統 MOCVD 系統尚未達到的等級(載子遷移率與傳統 MOCVD 系統比較圖整理成圖(4.1-3))[9][29][30][31][32][33]。先前提及目前高成長溫度氮化鎵薄膜載子遷移率已達到 $400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上且載子濃度為 $1 \pm 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ，因此低成長溫度氮化鎵薄膜仍有相當大的進步空間。一般認為造成載子遷移率下降的散射中心有本質缺陷、差排缺陷、雜質缺陷等。接下來將使用 X 光繞射、變溫霍爾量測、以及光激螢光光譜實驗來進一步釐清低成長溫度氮化鎵薄膜中散射載子的主要因素。

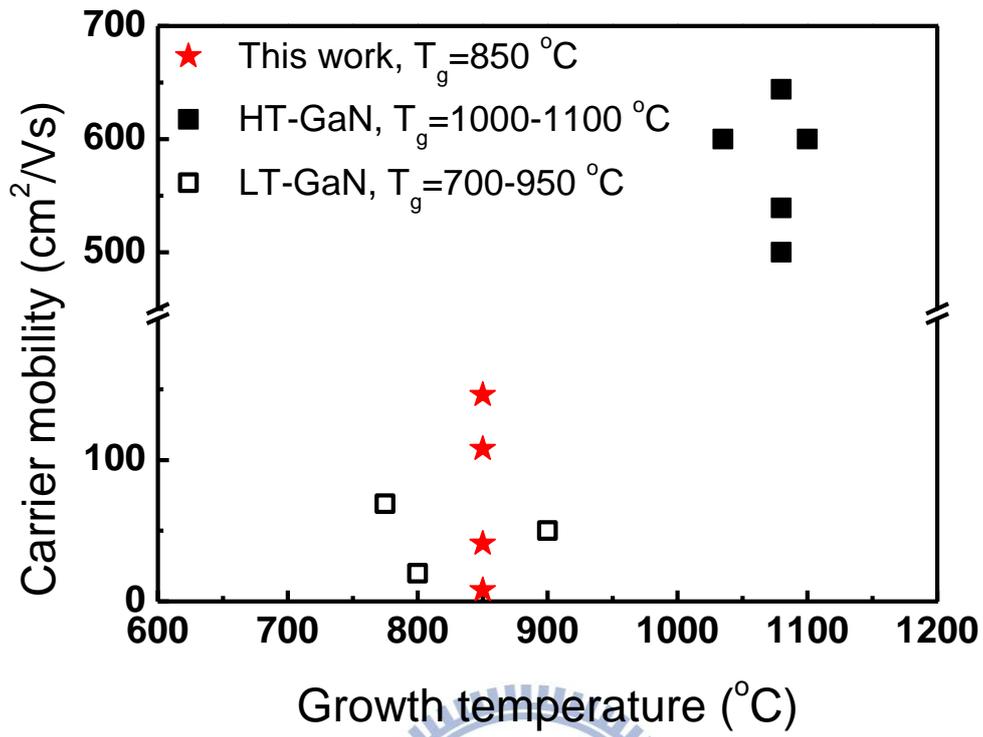


圖(4.1-1) 霍爾量測結果與 V/III ratio 關係圖

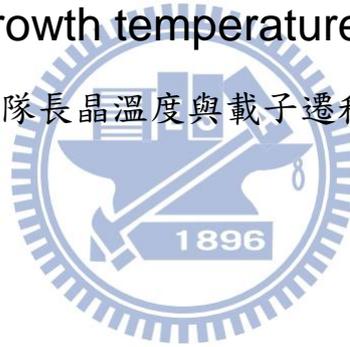


圖(4.1-2) 鎵空缺濃度與 V/III ratio 關係圖

K. Sarrinen et al., APL 73 3253 (1998)



圖(4.1-3) 各團隊長晶溫度與載子遷移率關係整理圖



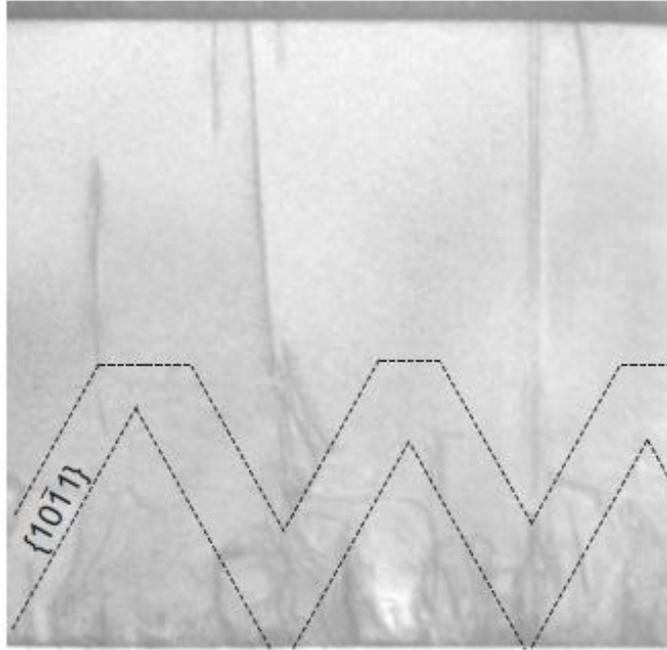
4.2 X 光繞射實驗討論

X 光繞射實驗中 θ - 2θ scan 隨著薄膜之組成以及鍵結方式改變會在不同 2θ 位置得到峰值訊號。而 ω -scan 可以針對特定平面進行檢測，如 (002)、(102)、(211) 等。再從此特定面的掃描譜圖計算相關資訊，如結晶大小 (Grain size)、結晶之間排列之翹起 (Tilt) 與扭曲 (Twist) 程度以及薄膜之刃型差排 (Screw dislocation) 與螺旋差排 (Edge dislocation) 密度等。因此接下來將改變 V/III ratio 系列進行 X 光繞射實驗並針對 (002) 以及 (102) 面進行 ω -scan。將所得頻譜中半高寬代入公式計算得到 screw 差排密度以及 edge 差排密度 (計算方式請參照第二章量測系統原理)，其計算結果整理成表 (4.2-1)。從表中得知隨著 V/III ratio 增加，screw 差排密度由 $5.25 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ 下降至 $2.76 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ ；edge 差排密度在 V/III ratio 為 10000 情況下減少至的 $2.35 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ，V/III ratio 再次增加時提升至 $4.86 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ，但此兩種差排密度隨 V/III ratio 之改變都在誤差範圍內。B. Heying et al. [34] 在 1996 年發表文章提到，V/III ratio 增加會提高反應原子側向成長速度 (Lateral growth rate)，因此會加速長晶初期之島狀物 (Island) 相互接合 (Coalescence) 的速度。但 edge 差排減少主要是藉由差排延伸至島狀物斜面時會傾向側向成長而與另一方向延伸過來之差排相互結合，或是隱沒在空隙 (Void) 中如圖 (4.2-1) [35]。然而在島狀物快速接合的情況下，無法讓更多的差排缺陷到達島狀物斜面使得差排密度相對較高。

一般對電性而言會認為散射載子的主要差排缺陷是 edge 差排，screw 差排變化和載子遷移率並無關聯性。但從實驗結果中可發現此二種差排在 V/III ratio 改變系列變化階不明顯。H. W. Choi et al.[36]於 2001 年 Materials Science in Semiconductor Processing 期刊計算了差排散射影響載子遷移率與差排密度關係式為 $\mu_{dis} \propto \frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 。其中 μ_{dis} 為差排散射影響之載子遷移率，n 為載子濃度， N_{dis} 為差排密度。並依照此關係式作圖於(4.2-2)，進一步將系列樣品之 $\frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 比例整理成表(4.2-2)。從圖(4.2-2)可以看出本系列樣品 μ_{dis} 與

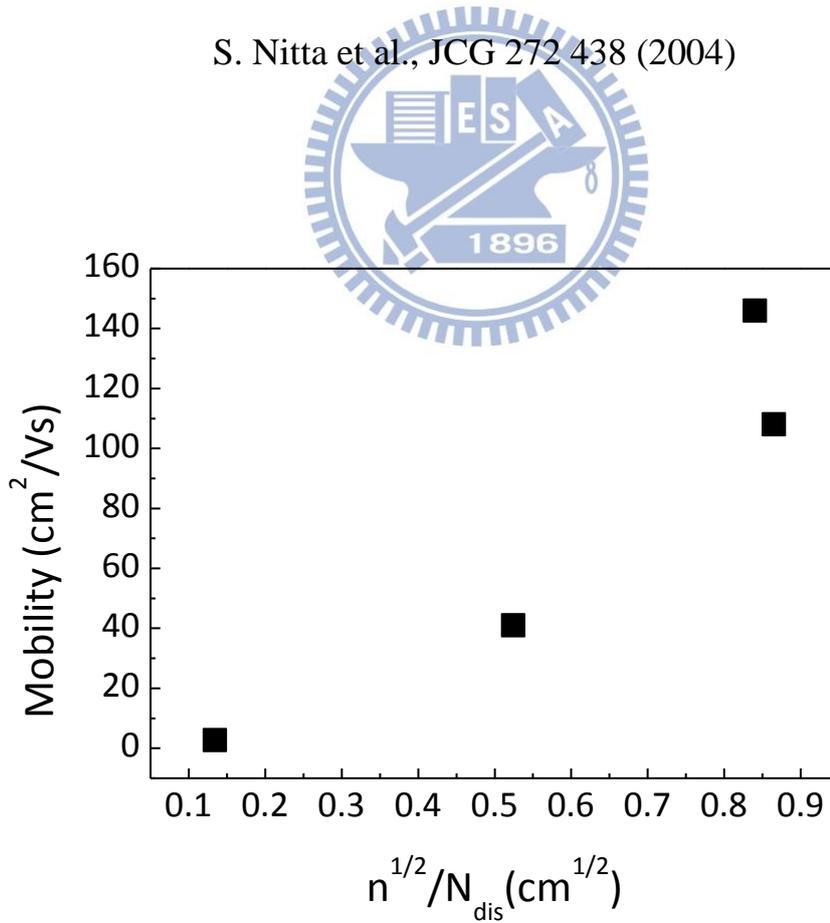
$\frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 並未呈現線性關係，因此推測差排散射並非影響低成長溫度氮化鎵薄膜載子遷移率的主因。





圖(4.2-1) 差排彎曲延伸圖(TEM 圖像)

S. Nitta et al., JCG 272 438 (2004)



圖(4.2-2) 改變 V/III ratio 之 μ_{dis} 與 $\frac{\sqrt{n}}{N_{dis}}$ 關係圖

V/III ratio	Hall data		Dislocation density	
	n (cm^{-3})	μ (cm^2/Vs)	Screw (cm^{-2})	Edge (cm^{-2})
7500	5.66×10^{18}	108	5.25×10^8	2.75×10^9
10000	3.90×10^{18}	146	5.25×10^8	2.35×10^9
15000	2.66×10^{18}	41	3.71×10^8	3.11×10^9
20000	4.16×10^{17}	2.7	2.76×10^8	4.86×10^9

表(4.2-1) 改變 V/III ratio 系列霍爾量測結果與差排密度整理表

V/III ratio	$n^{1/2}/N_{\text{dis}}$ ($\text{cm}^{1/2}$)
7500	0.865
10000	0.840
15000	0.522
20000	0.134

表(4.2-2) 改變 V/III ratio 系列 $\frac{\sqrt{n}}{N_{\text{dis}}}$ 數值表

4.3 變溫霍爾實驗討論

變溫霍爾量測可以檢測薄膜載子濃度與載子遷移率在不同的溫度下的變化，更可以分別從載子濃度對溫度關係圖與載子遷移率對溫度關係圖擬合出授子濃度(Acceptor concentration, N_A)、施子濃度(Donor concentration, N_D)、以及施子活化能(Activation energy of the donor, E_D)等。從各項指標中可以得知薄膜摻雜情況以及載子補償比例(Compensation ratio, $r = N_A/N_D$)等資訊。

因此將本系列樣品進行變溫霍爾量測實驗，溫度由 40K 量測至 350K，其實驗結果整理成圖(4.3-1)與(4.3-2)。由於 V/III ratio 為 20000 之樣品本身電阻率過大，所以無法量測其載子遷移率與載子濃度隨溫度變化關係。從圖(4.3-1)可以得到除了 V/III ratio 為 10000 之氮化鎵薄膜之外，其他 V/III ratio 薄膜之載子遷移率並不隨著溫度變化有改變。而 V/III ratio 為 10000 之氮化鎵薄膜隨著量測溫度由 40K 提升至 300K，載子遷移率由 $90 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 提升至 $114 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 。諸多團隊皆認為氮化鎵薄膜載子遷移率隨著溫度變化在 140K 會達到一個峰值，高於 140K 主要會受到晶格震動造成的聲子散射(Phonon scattering)主導，而在低於 140K 則主要由游離載子散射主導，如圖(4.3-3)之 sample A[37]。但本系列 V/III ratio 為 10000 之氮化鎵薄膜變溫霍爾量測並不依照此趨勢變化，而 S. Keller et al. 團隊[37]認為這種情況是有其他在高溫下主導散射的機制存在，如圖(4.3-3)之 sample B。各個散射

機制所影響之載子遷移率和溫度皆有其關係式(詳細關係式請參照第二章量測系統原理之變溫霍爾章節)。其中短範圍散射(Short-range scattering)和溫度呈現 $T^{-1/2}$ 關係，游離雜質散射(Ionized impurity scattering)和溫度呈現 $T^{3/2}$ 關係，晶格振動聲子散射和溫度呈現 $T^{-3/2}$ 關係[16][18][38]。一般氮化鎵樣品進行變溫霍爾量測討論時只引入游離雜質散射與晶格振動聲子散射兩者，且認為低溫時是游離雜質散射主導而高溫則是晶格振動聲子散射主導。而游離雜質散射中主要認為游離載子的半徑遠大於波爾半徑也大於晶格常數且存在著庫倫電位在散射載子。此庫倫電位屬於長範圍散射並不能代表著一些缺陷如深階缺陷。而這些短範圍缺陷游離能量較大屬於 Localized 缺陷，因此 square well potential 是較合適的位能型式而非庫倫位能。在本系列樣品中深階缺陷扮演著很重要的角色，將於下一段繼續討論。

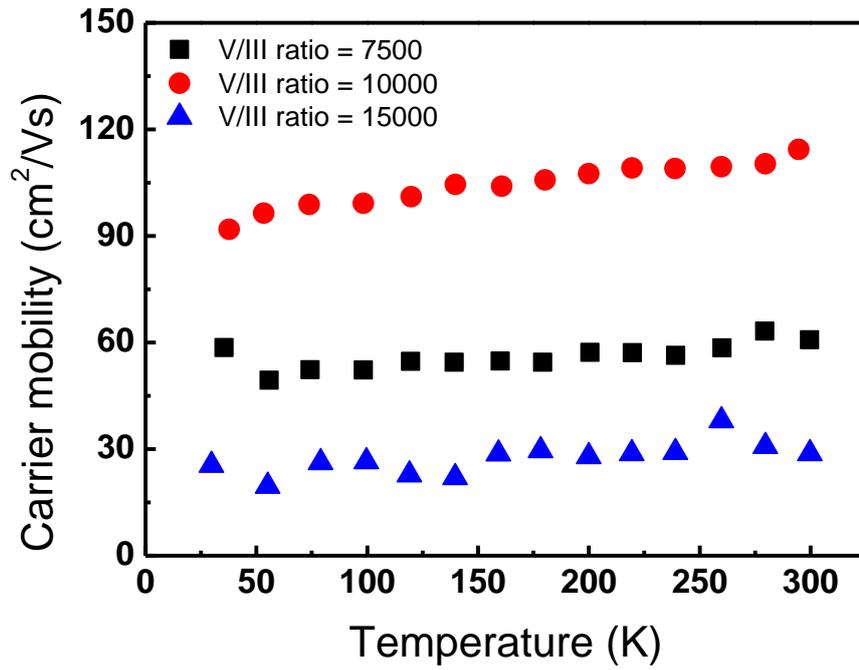
接下來針對各樣品的變溫霍爾量測結果進行擬合來得到授子濃度、施子濃度、施子活化能以及氮空缺濃度等資訊(詳細擬合方式請參照第二章量測系統原理之變溫霍爾章節)。擬合的結果整理成表(4.3-1)，各樣品擬合的圖分別為(4.3-4)、(4.3-5)、(4.3-6)、(4.3-7)、(4.3-8)。從圖中可得知差排散射與晶格振動聲子散射其數值都比實驗值高一個數量級以上，從 Matthiessen's rule (公式 2.4-1)可以得知這兩項散射機制對實驗所量測到之載子遷移率較無影響。由從表中可以得知 V/III ratio 為 10000 之氮化鎵薄膜有最低的授子濃度 $4.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、施子濃度 $9.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、以及短範圍散

射缺陷浓度 $8.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。當 V/III ratio 提高至 15000 時，各個浓度分別提
升至授子浓度 $2.2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、施子浓度 $2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 、以及短範圍散射缺陷
浓度 $3.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 。在此扮演短範圍散射的深階施子缺陷可能有 Ga_i 、 N_{Ga} ，
而深階授子缺陷可能有 Ga_{N} 、 V_{Ga} 以及 N_i 三種，各缺陷游離能整理成表
(4.3-2)。S. Limpijumnong et al.[39]於 2004 年發表了各種本質缺陷的形成能
量，如圖(4.3-9)。從圖(4.3-9)可以得知上述深階缺陷的形成能量，由於未摻
雜氮化鎵薄膜屬於 n 型材料，因此費米能階(Fermi level)會在靠近導電帶位
置(圖中右半部)，而形成能量(Formation energy)較低的深階缺陷只有鎵空
缺比較有機會出現在本樣品中。D. D. Koleske et al.[40]於 1998 年發表各成
長溫度對應鎵吸附原子表面漂移長度，如圖(4.3-10)。從圖中得到當基板溫度
由 1100°C 降至 850°C ，不論成長速度快慢其鎵吸附原子表面漂移長度皆會
減少約一個數量級。在鎵吸附原子表面移動能力較差的情況下，鎵吸附原
子無法到達最佳成長位置(或是最低能量位置)，故鎵相關缺陷容易形成。
於 4-1 小節也有提到 V/III ratio 增加也會增加鎵空
缺的形成，如圖(4.3-2)
[26]。若要確切得知是何種深階缺陷以及缺陷浓度，則必須進行其他相關
實驗如深層能階暫態頻譜或陽離子正電湮滅頻譜等確認缺陷來源。

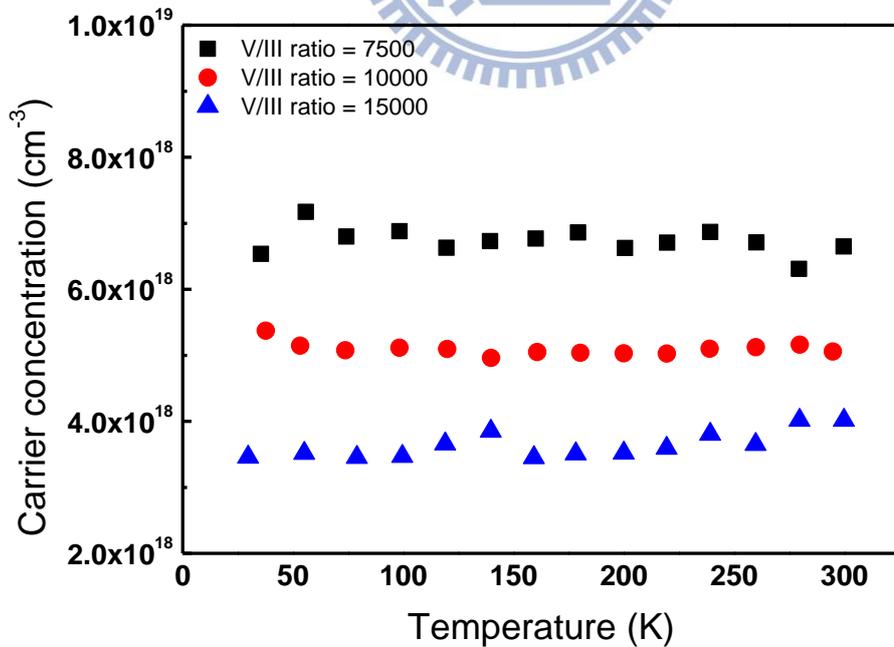
而影響施子浓度的淺階缺陷包含 Si_{Ga} 、 V_{N} 、 O_{N} 以及 C_{Ga} 等，一般高溫
成長未摻雜氮化鎵薄膜亦屬於 n 型材料以及載子浓度为 $1 \pm 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 也多
歸因於氮空
缺的出現。雖然本實驗已使用上加熱源來幫助其氮氣分解，但

氮氫鍵活性複合物量仍然不夠充足，或是環境溫度過低情況下沒有使反應物朝向氮化鎵薄膜生成的途徑反應至使氮空缺因而產生。 O_N 缺陷從圖(4.3-12)可以看出不論是 Ga-rich 或是 N-rich 的長晶條件， O_N 的形成能量都是相對較低[41]。而前面也提到氮來源不充足的情況下，氧原子更有機會填補到氮空缺的位置來形成 O_N 缺陷。而影響授子濃度的淺階缺陷包含 Si_N 、 C_N 等。同樣的從形成能量來看如圖(4.3-13)， C_N 在 Ga-rich 有著較低的形成能量，因此在較低 V/III ratio 的長晶情況下授子濃度增加的來源可能是 C_N 所造成[42]。高 V/III ratio 情況下授子濃度增加則可能來自於複合型缺陷，如 $V_{Ga}O_N$ 或是 $V_{Ga}Si_{Ga}$ 。其中 $V_{Ga}O_N$ 的鍵結能為 1.8 eV 而 $V_{Ga}Si_{Ga}$ 的鍵結能為 0.23 eV，代表著 $V_{Ga}O_N$ 較為穩定也比較可能產生。

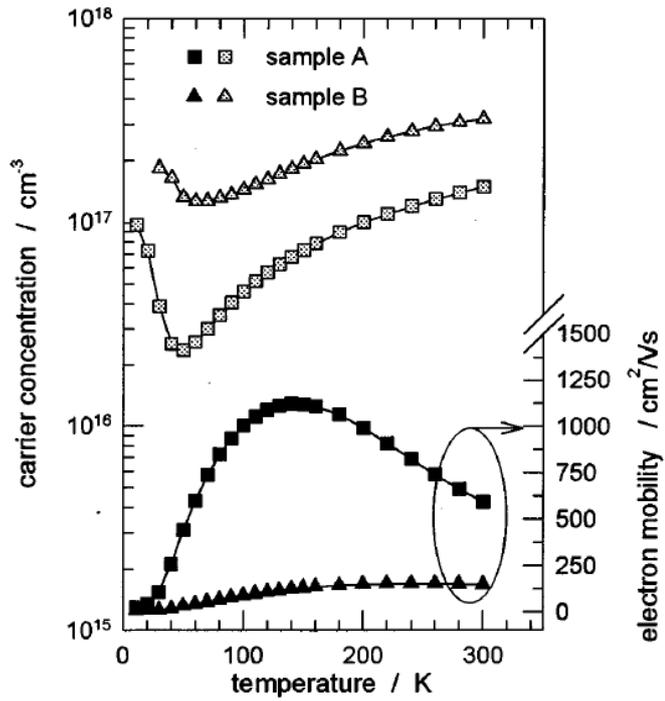
M. N. Gurusinge et al.[43]於 2003 年發表的文章模擬了各載子濃度在不同補償比例下之載子遷移率大小，如圖(4.3-14)。表(4.3-1)提到 V/III ratio 為 75000 時補償比例為 0.67、V/III ratio 為 10000 時補償比例為 0.46、V/III ratio 為 20000 時補償比例為 0.87。將此結果帶入圖(4.3-14)中都相當接近模擬的數值。從圖(4.3-14)中亦可得知一般高溫成長氮化鎵材料霍爾量測結果對應出的補償比例約在 0.2 以下。因此若要進一步提升低成長溫度氮化鎵樣品的電性結果，勢必要抑制補償機制的產生。至於是何種缺陷扮演著補償的角色則必須進行其他實驗才可得知。



圖(4.3-1) 改變 V/III ratio 系列變溫霍爾量測之載子遷移率與溫度關係圖

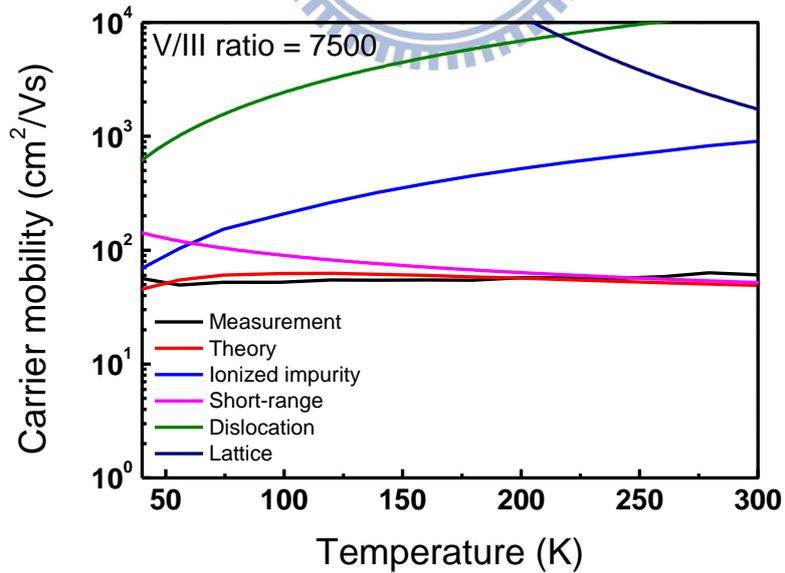


圖(4.3-2) 改變 V/III ratio 系列變溫霍爾量測之載子濃度與溫度關係圖

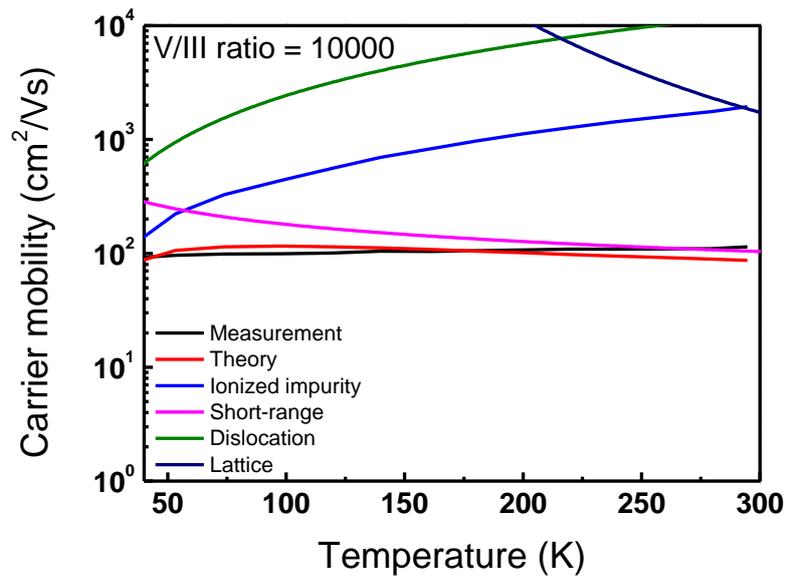


圖(4.3-3) 載子濃度與載子遷移率和溫度關係圖

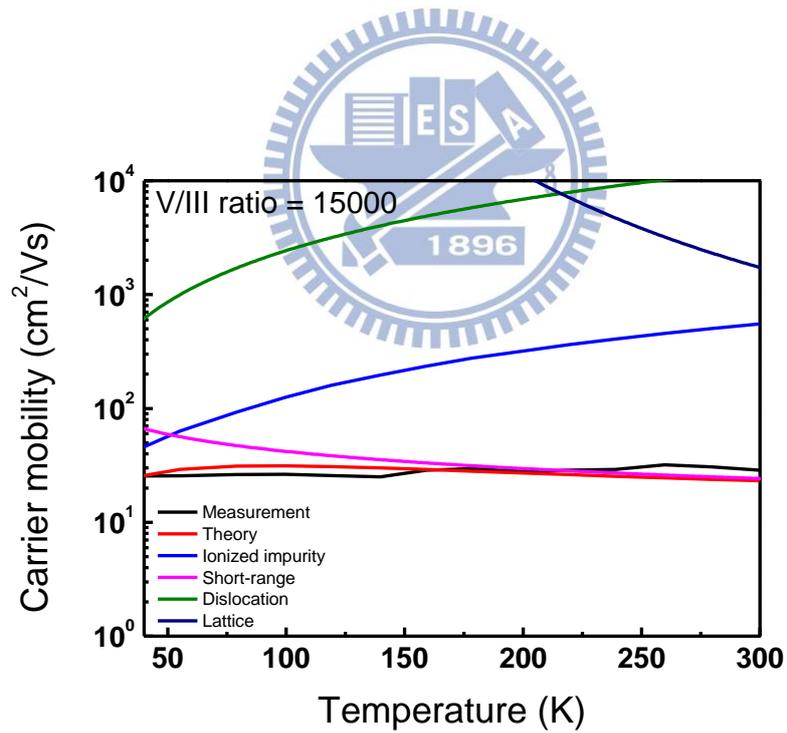
S. Keller et al., APL 68 1525 (1996)



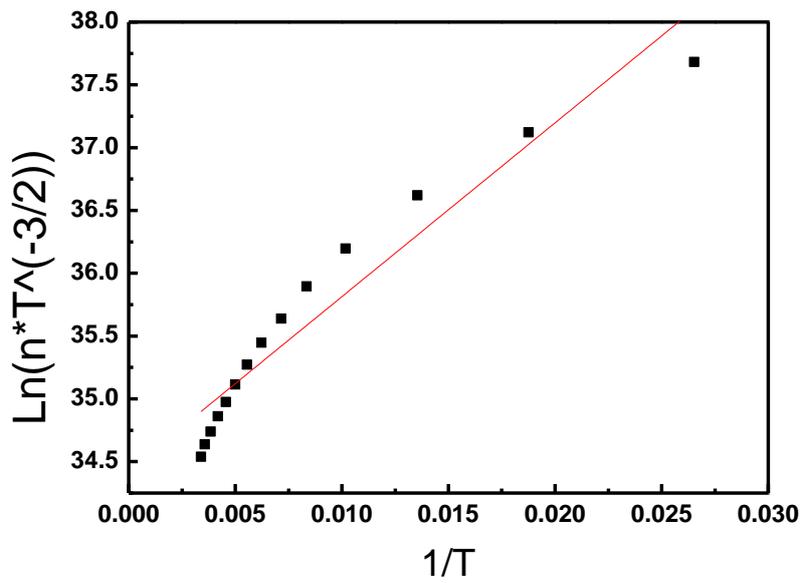
圖(4.3-4) 擬合 V/III ratio 為 7500 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖



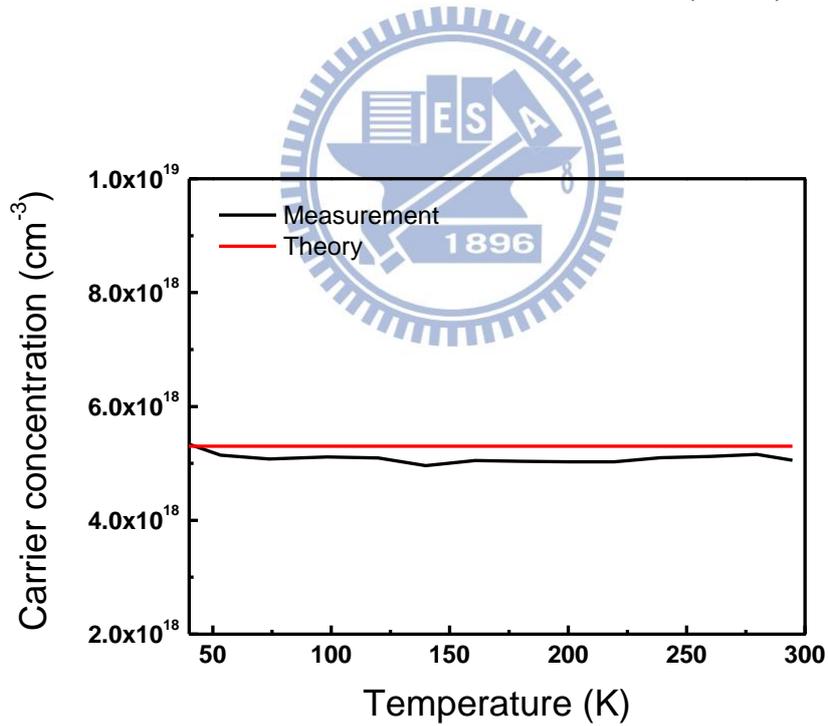
圖(4.3-5) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖



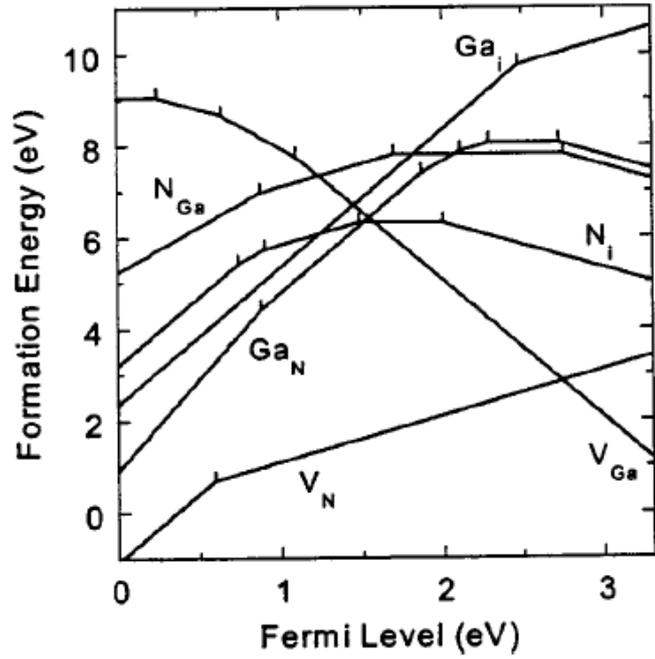
圖(4.3-6) 擬合 V/III ratio 為 15000 氮化鎵薄膜載子遷移率對溫度圖



圖(4.3-7) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜 $\ln(nT^{-3/2})$ 與 T^{-1} 關係圖

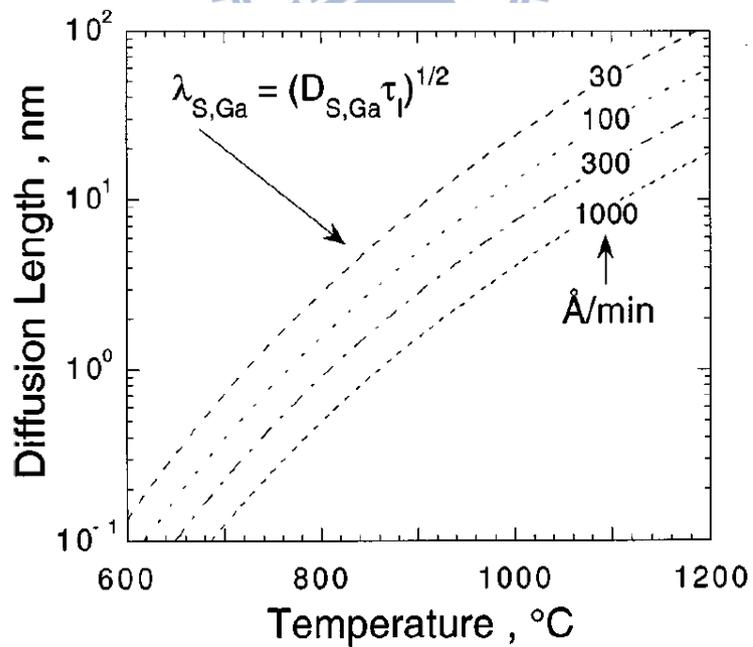


圖(4.3-8) 擬合 V/III ratio 為 10000 氮化鎵薄膜載子濃度對溫度圖



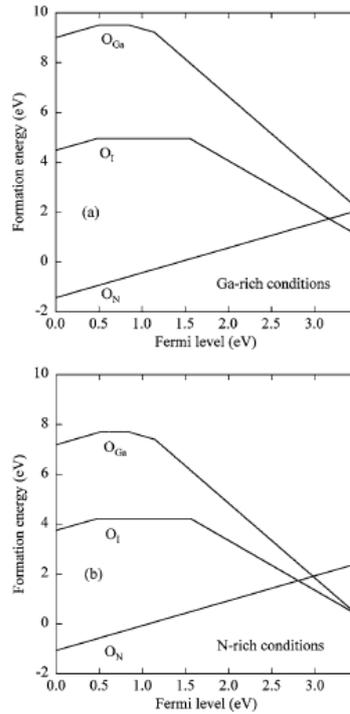
圖(4.3-9) 各本質缺陷形成能量與費米能階關係圖

S. Limpijumnong et al., PRB 69 035207 (2004)



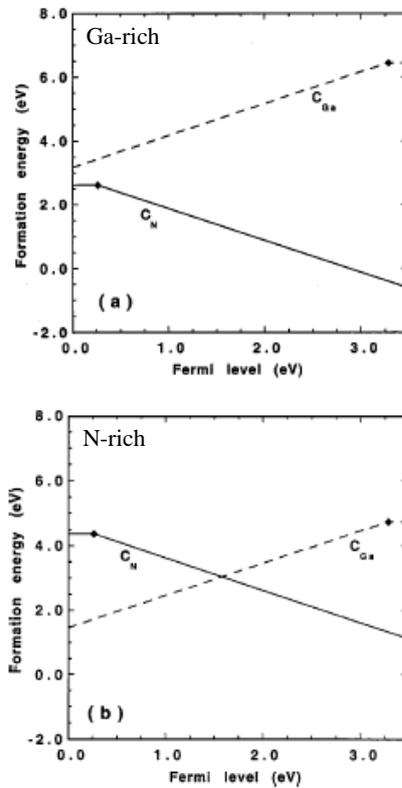
圖(4.3-10) 鎵吸附原子擴散長度與成長溫度關係圖

D. D. Koleske et al., JAP 84 1998 (1998)



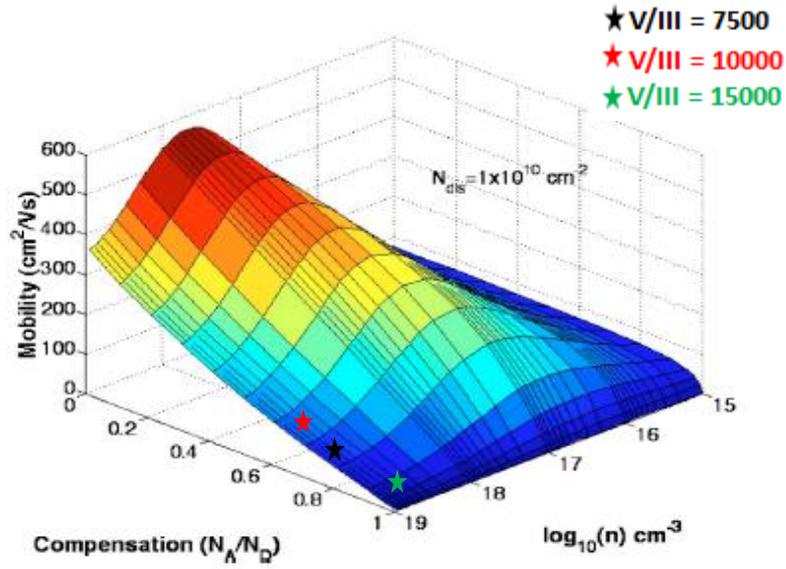
圖(4.3-11) O_N 與 O_{Ga} 之形成能量與費米能階關係圖

A. F. Wright, JAP 98 103531 (2005)



圖(4.3-12) C_N 與 C_{Ga} 之形成能量與費米能階關係圖

A. F. Wright, JAP 92 2575 (2002)



圖(4.3-13) 不同載子濃度之補償比例對載子遷移率圖

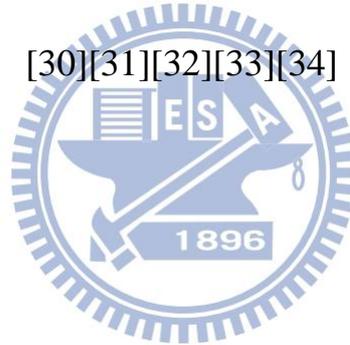
M. N. Gurusinghe et al., PRB 67 235 (2003)

V/III ratio	N_S (cm^{-3})	N_A (cm^{-3})	N_D (cm^{-3})	Compensation Ratio
7500	1.1×10^{18}	1.2×10^{19}	1.7×10^{19}	0.70
10000	9.0×10^{17}	4.5×10^{18}	1.0×10^{19}	0.45
15000	3.4×10^{18}	2.0×10^{19}	2.2×10^{19}	0.90

表(4.3-1) 改變 V/III ratio 系列擬合變溫霍爾量測結果表

Defect	Symbol	Ionized energy	Type	Level	Effect
Nitrogen vacancy	V_N	21 meV	donor	shallow	N_D
Silicon substituted gallium	Si_{Ga}	25.7 meV			
Oxygen substituted nitrogen	O_N	30 meV			
Carbon substituted gallium	C_{Ga}	200 meV	donor	deep	N_{Short}
Gallium interstitial	Ga_i	0.9 eV			
Nitrogen substituted gallium	N_{Ga}	1.2 eV			
Carbon substituted nitrogen	C_N	152 meV	acceptor		
Silicon substituted nitrogen	Si_N	203 meV			
Gallium substituted nitrogen	Ga_N	0.9 eV			
Gallium vacancy	V_{Ga}	1 eV			
Nitrogen interstitial	N_i	1.5 eV			

表(4.3-2) 各缺陷游離能與影響機制表



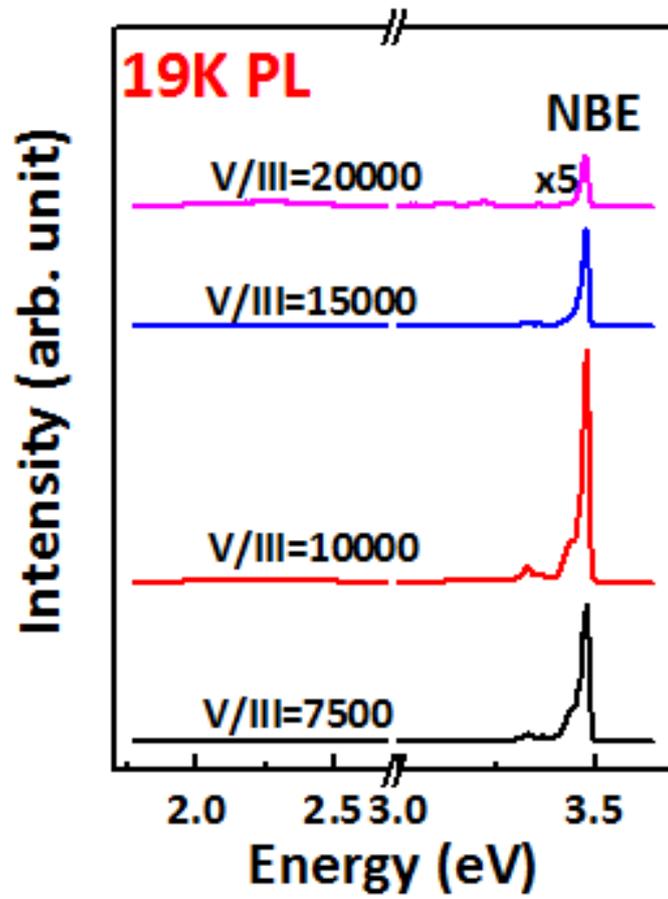
4.4 低溫光激螢光實驗討論

光激螢光光譜實驗是一項非破壞性的實驗，可以得知薄膜的發光波段與發光強度。氮化鎵薄膜可進一步從頻譜中近能帶邊緣發光與黃光發光的消長探討薄膜品質與磊晶參數之間的關係。因此將改變 V/III ratio 系列進行 19K 光激螢光光譜實驗，實驗結果整理於圖(4.4-1)。從圖中得知當 V/III ratio 為 10000，近能帶邊緣發光強度有最大值；而當 V/III ratio 增加至 20000，近能帶邊緣發光強度比 V/III ratio 為 10000 時減弱將近 20 倍。近能帶邊緣發光和薄膜中非輻射複合中心具有相當程度的關係，當薄膜中缺陷濃度越高，則載子被捕捉形成非輻射複合的可能亦會越高。前面有提到當 V/III ratio 由 10000 提高至 20000，edge 差排密度會從 $2.35 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ 提升至 $4.86 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ，並且 V/III ratio 提高亦較容易形成鎵空缺，這些缺陷都有可能非輻射複合中心。

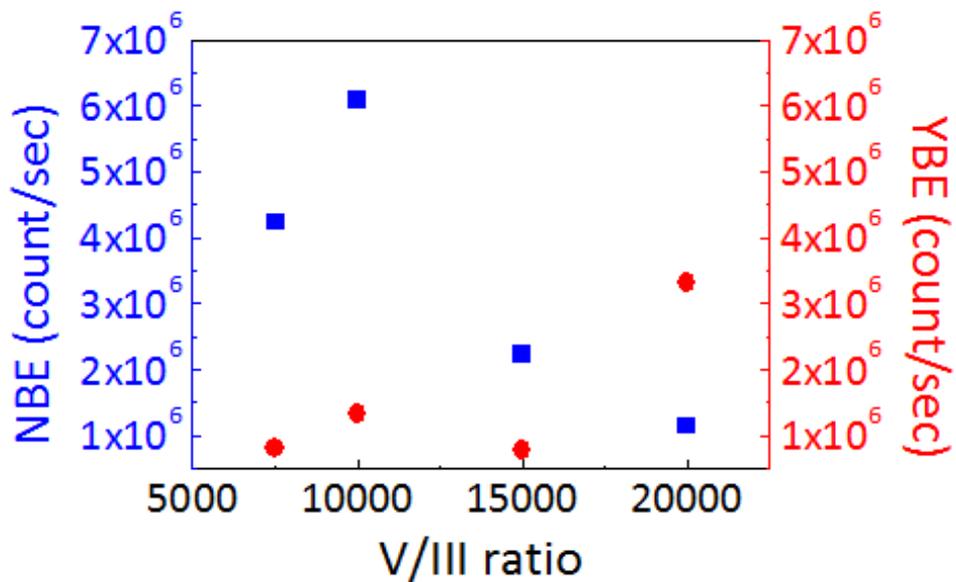
氮化鎵薄膜光激螢光光譜中的黃光發光反應了樣品品質。從圖(4.4-2)近能帶邊緣發光與黃光發光強度比較圖可以得知，V/III ratio 為 20000 時氮化鎵薄膜會有最強的黃光激發。一般認為黃光激發來自於本質缺陷或本質缺陷相關複合型缺陷(Native defects related complex defects)以及雜質等。前面討論提到當 V/III ratio 提高，鎵空缺濃度將會提升，因此推測黃光激發增加的原因最有可能是鎵空缺或鎵空缺相關複合型缺陷。先前電學特性討論認為鎵空缺是補償電子的主要授子缺陷，與這邊光學特性討論黃光激發

來自於鎵空缺的推論一致，皆是認為在高 V/III ratio 長晶情況下，鎵空缺較容易產生且影響光電特性。





圖(4.4-1) 改變 V/III ratio 系列 19K 光激螢光譜圖



圖(4.4-2) 改變 V/III ratio 系列近能帶邊緣發光與黃光發光強度圖

五、結論

本實驗利用自組式雙加熱MOCVD系統在低成長溫度磊晶氮化鎵薄膜，其最佳化磊晶條件下得到相較於傳統MOCVD機台所無法達到地高品質。可歸因於雙加熱系統克服了傳統MOCVD機台單一加熱源造成氨氣分解不足以及反應原子表面移動能力不足等問題。從變溫霍爾量測實驗可以得知低成長溫度氮化鎵薄膜之載子遷移率受到的主要散射機制是短範圍深階缺陷散射，且最可能造成散射的深階缺陷為鎵空缺或其相關複合式缺陷。從光激螢光光譜實驗中黃光激發隨著 V/III ratio 提高而增加地趨勢也反應鎵空缺是可能的一項缺陷。

若要提升低成長溫度氮化鎵薄膜之電學特性以達到匹配高成長溫度氮化鎵薄膜之電學特性，必須進一步減少本質缺陷密度以及差排密度。再將此高品質之低成長溫度氮化鎵薄膜應用於氮化銦鎵多層量子井結構將有助於維持銦組成，更能有效減少製程程序使整體成本降低，如此對氮化銦鎵材料用於各種元件都是一大助益。

参考文献

- [1] S. Yoshida, S. Misawa, and S. Gonda, *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983) 427.
- [2] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, *Appl. Phys. Lett.* **48** (1985) 353.
- [3] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) 2112.
- [4] S. Nakamura, Y. Harada, and M. Seno, *Appl. Phys. Lett.* **58** (1991) 2021.
- [5] S. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** (1991) 1705.
- [6] P. De Mierry, O. Ambacher, H. Kratzer, and M. Stutzmann, *Phys. Stat. Sol.* (a) **158** (1996) 587.
- [7] A. Dissanayake, J. Y. Lin, H. Z. Jiang, Z. J. Yu, and J. H. Edgar, *Appl. Phys. Lett.* **65** (1994) 2317.
- [8] M. A. Khan, J. N. Kuznia, J. M. Van Hove, D. T. Olson, S. Krishnankutty, and R. M. Kolbas, *Appl. Phys. Lett.* **58** (1990) 526.
- [9] H. Y. Wang, S. C. Huang, T. Y. Yan, J. R. Gong, T. Y. Lin, Y. F. Chen, *Materials Science and Engineering B* **57** (1999) 218.
- [10] B. Shen, Y. G. Zhou, Z. Z. Chen, P. Chen, R. Zhang, Y. Shi, Y. D. Zheng, W. Tong, W. Park, *Appl. Phys. A.* **68** (1999) 593.
- [11] N. H. Karam, T. Parodos, P. Colter, D. McNulty, W. Rowland, J. Schetzina, N. EI-Masry, S. M. Bedair, *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 94.
- [12] H. J. Kim, S. Y. Kim, S. Yim, H. Na, B. Kee, E. Yoon, J. Kim, S. H. Park, H. Jeon, S. W. Kim, J. H. Seo, K. Park, M. S. Seon, C. Sone, O. H. Nam, and Y. Park, *Current Applied Physics* **3** (2003) 351.
- [13] M. A Moram, and M. E. Vickers, *Rep. Prog. Phys.* **72** (2009) 036502.

- [14] J. S. Xue, Y. Hao, J. C. Zhang, and L. A. Yang, *Phys. Stat. Sol. (c)* **7** (2010) 2371.
- [15] H. Tang, W. Kim, A. Botchkarev, G. Popovici, F. Hamdani, and H. Morkoc, *Solid-State Electronics* **42** (1998) 839.
- [16] D. C. Look, J. R. Sizelove, S. Keller, Y. F. Wu, U. K. Mishra, and S. P. DenBarrs, *Solid State Communications* **102** (1997) 297.
- [17] D. C. Look, *Electrical Characterization of GaAs Materials and Devices*, p. 74 Wiley, New York, 1989.
- [18] Q. S. Zhu and N. Sawaki, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 1594.
- [19] Z. Chen, H. Yuan, D. C. Lu, X. Sun, S. Wan, X. Liu, P. Han, X. Wang, Q. Zhu, and Z. Wang, *Solid-State Electronics* **46** (2002) 2069.
- [20] J. W. Klos and I. V. Zozoulenko, *Physical Review B* **82** (2010) 081414.
- [21] Donald A. Neamen, *Semiconductor Physics and Devices*, p.13 McGraw.Hill, New York, 2003.
- [22] F. S. Juang and T. K. Chu, *Journal of Crystal Growth* **225** (2001) 145.
- [23] Y. H. Song, J. -H. Kim, H. J. Jang, S. R. Joon, J. W. Yang, K. Y. Lim, and G. M. Yang, *Journal of the Korean Physical Society* **38** (2001) 242.
- [24] D. G. Zhao, D. S. Jiang, J. J. Zhu, Z. S. Liu, S. M. Zhang, H. Yang, and J. W. Liang, *Journal of Crystal Growth* **303** (2007) 414.
- [25] S. W. Kim, J. Oh, J. S. Kang, D. J. Kim, J. H. Won, J. W. Kim, and H. K. Cho, *Journal of Crystal Growth* **262** (2004) 7.
- [26] K. Sarrinen, P. Seppala, J. Oila, P. Hautojarvi, C. Corbel, O. Briot, and R. L. Aulombard, *Appl. Phys. Lett.* **73** (1998) 3253.
- [27] G. Koblmuller, F. Reurings, F. Tuomisto, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **97** (2010) 191915.
- [28] S. Suresh, S. Lourudoss, G. Landgren, and K. Baskar, *Journal of Crystal*

- Growth* **312** (2010) 3151.
- [29] S. Keller, D. Kapolnek, B. P. Keller, Y. Wu, B. Heying, J. S. Speck, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (1996) 285.
- [30] K. S. Kim, C. S. oh, K. J. Lee, G. M. Yang, C. H. Hong, and A. Yoshikawa, *J. Appl. Phys.* **85** (1999) 8441.
- [31] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *J. Appl. Phys.* **71** (1992) 5543.
- [32] T. Wang, T. Shirahama, H. B. Sun, H. X. Wang, J. Bai, S. Sakai, and H. Misawa, *Appl. Phys. Lett.* **76** (2000) 2220.
- [33] P. A. Grudowski, A. L. Holmens, C. J. Eiting, and R. D. Dupuis, *Journal of Electronic Materials* **26** (1997) 257.
- [34] B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kapolnek, B. P. Keller, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.* **68** (1995) 643.
- [35] S. Nitta, J. Yamamoto, Y. Koyama, Y. Ban, K. Wakao, and K. Takahashi, *Journal of Crystal Growth* **272** (2004) 438.
- [36] H. W. Choi, J. Zhang, and S. J. Chua, *Materials Science in Semiconductor Processing* **4** (2001) 567.
- [37] S. Keller, B. P. Keller, Y. F. Wu, B. Heying, D. Kapolnek, J. S. Speck, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 1525.
- [38] H. M. Ng, D. Doppalapudi, T. D. Moustakas, N. G. Weimann, and L. F. Eastman, *Appl. Phys. Lett.* **73** (1998) 821.
- [39] S. Limpijumnong and C. G. Van de Walle, *Physical Review B* **69** (2004) 035207.
- [40] D. D. Koleske, A. E. Wickenden, R. L. Henry, W. J. DeSisto, and R. J. Gorman, *J. Appl. Phys.* **84** (1998) 1998.
- [41] A. F. Wright, *J. Appl. Phys.* **98** (2005) 103531.
- [42] A. F. Wright, *J. Appl. Phys.* **92** (2002) 2575.

[43] M. N. Gurusinghe, and T. G. Andersson, *Physical Review B* **67** (2003) 235208.

