

化學束磊晶系統成長氮化銦磊晶薄膜之製程研究

Investigation of InN Epilayer Grown on Ga-face GaN by RF-CBE

陳維鈞、田志盛、吳岳翰、郭守義、賴芳儀、蕭健男、張立

Wei-Chun Chen, Jr-Sheng Tian, Yue-Han Wu, Shou-Yi Kuo, Fang-I Lai, Chien-Nan Hsiao, Li Chang

III-V 族半導體中的氮化銦 (Indium nitride, InN) 在光電與電子元件中是具有相當潛力的材料，如高載子遷移率、高漂移速度峰值、低電子質量與 0.65–0.7 eV 之能隙等優點。而目前大多數的 InN 樣品是使用分子束磊晶 (MBE) 與有機金屬氣相沉積 (MOCVD) 方式製備，但受限於 InN 本身之物理性質，要成長高品質 InN 是具有挑戰性的，由於 InN 之熱裂解溫度約為 600 °C，無法於高溫中成長，因此目前成長高品質 InN 仍然是以 MBE 為主要鍍膜方法。本研究中使用的磊晶方式為電漿輔助化學束磊晶系統，可結合 MBE 與 MOCVD 兩者之優點成長 InN，使用三甲基銦與電漿解離之氮原子做為 V 族與 III 族之來源，而影響 InN 結晶品質優劣的重要因子有基板種類、緩衝層、製程溫度與 V/III 流量比等。因此成長極性 InN 薄膜，並分析其結構與光電特性。實驗結果指出，在 V/III 流量比於 1.81 時有最佳結晶品質，其 (0002) 與 (10 $\bar{1}2$) x-ray rocking curve 半高寬分別為 455 arcsec 與 1070 arcsec。由穿透式電子顯微鏡 (TEM) 之分析，可知 InN 與 GaN 緩衝層之磊晶關係為：(0002)_{InN}//(0002)_{GaN} 與 [11 $\bar{2}0$]_{InN}//[11 $\bar{2}0$]_{GaN}，並且 InN 中含有高密度之基面疊差。另一方面，當 V/III 流量比約為 1.81 時，InN 有較高之沉積速率，約為 1.9 $\mu\text{m/h}$ ，並且會隨著 V/III 流量比減少而增加。

Indium nitride is a III-V semiconductor which is potential for optoelectronics and electronics application due to its high electron mobility, high peak drift velocity, low effective electron mass and narrow bandgap of 0.65–0.7 eV. InN has been grown using metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) and molecular beam epitaxy (MBE). It has been known that InN has a low dissociation temperature at 600 °C, such that the growth temperature is limited by the desorption of nitrogen and the thermal decomposition of the films. Therefore, the high-quality InN is usually obtained by using MBE. Various processing parameters may affect the quality of InN, such as substrate, buffer layer, substrate temperature, pressure, and V/III flow ratio. In this study, polar and semipolar InN films were prepared by plasma-assisted metal-organic molecular beam epitaxy (PA-MOMBE) which can have a high growth rate. Detailed characterizations of structural and optical properties of the grown polar InN films were carried out. The results indicated that In-polar InN films grown with the V/III ratio of ~1.81 has the smallest full width at half maximum (FWHM) value of 455 arcsec for (0002) X-ray rocking curve (XRC) and FWHMs value of 1070 arcsec for (10 $\bar{1}2$). The epitaxial relationship of InN with GaN substrate is (0002)_{InN}//(0002)_{GaN} and [11 $\bar{2}0$]_{InN}//[11 $\bar{2}0$]_{GaN} as determined by selected area electron diffraction. Additionally, the InN growth rate decreases from 1.9 to 1.4 $\mu\text{m/h}$ when the ratio increases from 1.81 to 4.

一、前言

現今蓬勃發展的科技時代中，材料的研發是當前重要的一環，不論於能源、光電產業中，開發新穎材料是現今學者專家所極力研究的。而目前 III-V 族氮化物材料為半導體產業中的熱門材料，因 III-V 族光電半導體化合物材料同時具有高發光效能、生命週期長、能隙調變範圍大、元件結構小與價格低廉等優點，逐漸成為光電材料應用上之主流。由於其能隙分佈極廣，如圖 1 所示，從氮化銦 (0.7 eV) 到氮化鎵 (3.4 eV) 再到氮化鋁 (6.2 eV)，近乎涵蓋了全光譜。因此 III-V 族化合物材料受到光電產業青睞。

而目前以氮化物材料為主流的發光元件主要是可見光波段的氮化鎵材料 (GaN) 具有其優勢，並且於能源方面也逐漸慢慢地受到重視；隨著應用層面的延伸，從可見光延伸至紅外光已是現今發展的趨勢，因此具有窄能隙的氮化銦材料逐漸受到重視，InN 能隙於近年來被證實期能隙約為 0.7 eV，此光學能隙幾近涵蓋太陽光譜，更能衍生出紅外波段之光電元件。例如，以 GaN、AlN 與 InN 三者所互相搭配之 III-V 族三元混晶材料 $\text{In}_x\text{Ga}_y\text{Al}_z$ 系統，可藉由改變銦 (In) 的成分比例進而得到各種不同的發光波長，調變範圍涵蓋可見光至紅外光及部分紫外光。由於此一特殊性質，使得 III-V 族半導體材料成為最有潛力的光電材料，可應用於全光譜太陽能電池 (solar cell) 與發光二極體 (LEDs)。

早期 InN 在發展初期主要是以濺鍍或蒸鍍為主要製程方式，透過 PVD 製程方式所得到的 InN 量測到其能隙約為 2.0 eV，主要是受到真空背景中的氧所影響，進而形成氧化銦 (In_2O_3)；另外，受限於薄膜與基板之間的晶格錯配 (lattice mismatch) 與磊晶技術及系統的問題，無法成長出高品質 InN 薄膜。隨著磊晶技術與方式不斷地精進，在 1970 年初由貝爾實驗室的 John Arthor 及華裔的卓以和博士⁽¹⁾共同發展分子束磊晶系統後正式開啟了高品質氮化物材料門檻。隨著分子束磊晶的發展，高品質的 InN 亦隨之被驗證是一具有窄能隙之 III-V 族化合物半導體材料，因此開拓了全光譜光電元件的夢想。隨後更有利用電將輔助分子束磊晶⁽²⁾，脈衝雷射蒸鍍法⁽³⁾，金屬有機化學氣相沉積⁽⁴⁾、物

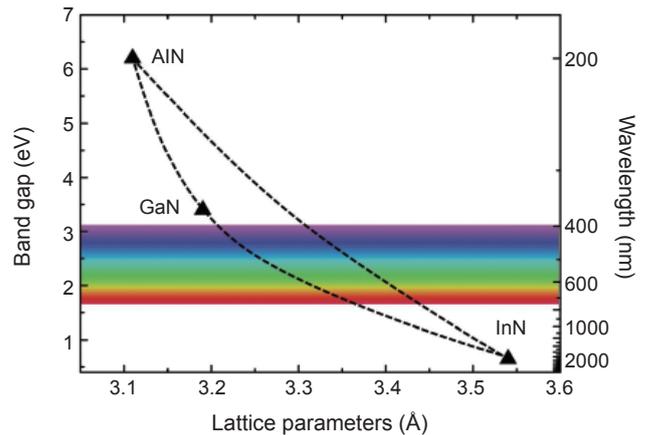


圖 1. III-V 族半導體能隙分布圖。

理氣相沉積⁽⁵⁾與電漿輔助金屬有機分子束磊晶系統 (RF-MOMBE)⁽⁶⁾等方式製備 InN 薄膜。另外，InN 亦具有低載子濃度與高電子遷移率特性，在室溫下之理論值可達 $4000 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ ，可應用於高速電子元件與高頻元件等等，而在 Lu 等人⁽⁷⁾的研究論文中，更指出 InN 材料可應用於化學與生物感測器。但是要成長出高品質的 InN 材料是相當不容易的，除了基板不匹配度與機台因素外，其裂解溫度相較於其他化合物半導體偏低 ($\sim 600^\circ\text{C}$)，因此在長晶過程中，需外加即時監控設備，藉以掌控磊晶成長。

III-V 族半導體中常見的磊晶基材為 SiC、GaAs、ZnO 與 Al_2O_3 等，研究報告指出⁽⁸⁾，SiC 可提供高品質的氮化物磊晶成長，因其具有與多數的氮化物較低之晶格差異，但因其成本過高，使得無法大量生產，因此較不受到青睞；而 III-V 族光電半導體材料較常使用藍寶石 (Al_2O_3) 做為基材，其原因是因為藍寶石具有高能隙值 (8.8 eV)，其穿透光譜從 145 nm 一直延伸到 5200 nm⁽⁹⁾，因此在此區間的光波長並不會被藍寶石吸收，由此一特性延伸得知，藍寶石基材對於 III-V 族氮化物的發光波長具有一種不吸光的性質。因此，許多研究人員以及廠商便以藍寶石為基板來成長織新礦 (Wurtzite) 結構的氮化物發光元件，但是因為藍寶石基材與 III-V 族半導體材料具有較大的晶格不匹配度，不易成長出高品質的材料，近幾年多數的研究人員投入如何使用藍寶石基材提升 III-V 族磊晶材料品質的研究，由研究結果得知，利用二階段式

(Two step) 長法⁽¹⁰⁾ 或是引入同質及異質緩衝層⁽¹¹⁾ 可有效減低晶格差異；再者，可利用具有斜切角度 (miscuting) 基板⁽¹²⁾ 亦可成長出高品質磊晶。而 Si 晶圓基板雖有較佳的導熱係數，但因 III-V 族氮化物製程皆為高溫製程，其兩者之間的熱膨脹差異甚大，易使磊晶在降溫過程中崩裂，因此使用 Si 晶圓成長磊晶是一項極具挑戰的技術。

然而，目前有許多適合成長 III-nitride 族半導體的基板材料，因氮化物材料與 Al_2O_3 基材之間的晶格差異相當大，以 Al_2O_3 基材來說，當 InN 成長於 Al_2O_3 基板上時，其在水平方向晶格不匹配度就高達 25.5%，因此若是直接成長在 Al_2O_3 基材上的話，會因為晶格不匹配度造成高密度的缺陷，形成不完整晶體或是多晶結構。而目前最普遍使用 Al_2O_3 基板進行磊晶成長的是氮化鎵 (Gallium nitride, GaN) 相關的發光二極體元件，雖然 GaN 與 Al_2O_3 之間的晶格差異甚大，不過已經可以透過緩衝層 (buffer layer) 引入與二階段式成長法，克服晶格不匹配的問題。由晶格參數來看，InN 與 GaN 在水平軸上的晶格不匹配度約為 10%，比起 InN 與 Al_2O_3 在水平軸上的晶格不匹配度 25.5% 小許多，因此產生的錯配差排密度亦會較低。而且目前已知利用 MOCVD 可成長出對稱軸 (0002) 半高寬約 288 arcsec 與非對稱軸 ($10\bar{1}2$) 半高寬約 733 arcsec 之高品質 GaN 薄膜，並利用 RF-MBE 系統將 InN 成長於 GaN 上，亦可得到對稱軸 (0002) 半高寬約 385 arcsec 與非對稱軸 ($10\bar{1}2$) 半高寬約 1364 arcsec 之品質甚佳的 InN 磊晶薄膜，且其自由電子濃度與遷移率分別為 $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 與 $1910 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ ，在光學上也得到近能帶邊緣放射訊號 (near band edge, NBE) 約為 0.67 eV ⁽¹³⁾。透過缺陷分析可以知道，InN 成長於 GaN 上之貫穿式差排密度約為 $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ⁽¹⁴⁾。

同時也有文獻指出，In/N 的流量是成長高品質 InN 磊晶的極重要參數⁽¹⁵⁾，以 RF-MBE 成長 InN 為例，當成長溫度低於 520°C 、In/N 流量比低於 1 時，因解離率低於成長速率，則可讓 InN 繼續成長⁽¹⁶⁾，然而往往影響磊晶薄膜的光電性質是因為製程中無意摻雜的 C、H 與 O 原子⁽¹⁷⁾，將於未來討論之。由於 V/III 流量比是成長高品質

InN 薄膜一項重要的參數，Singh 等人⁽¹⁸⁾ 指出，當使用較高的 V/III 流量比可填滿多數的氮空缺，因此可提升 InN 電性的表現。反之，隨著 TMIn 的增加，亦會使薄膜中 C 與 H 含量增加，因此呈現高電子濃度。另外，低 V/III 流量比會減少 In 在基板表面的擴散長度，因此會影響 InN 在基板表面的成核密度；反之，高 V/III 流量比會提高 InN 在基板表面的成核密度⁽¹⁹⁾。Wang 等人於 500°C 將 InN 沉積在 GaN 上，以不同流量比進行 InN 成核密度之結果顯示，在低的 V/III 流量比時，InN 成核密度低，但卻有較大的晶粒尺寸，隨著 V/III 流量比的增加，會逐漸提高成核密度及減小晶粒尺寸⁽²⁰⁾。另一方面，由 RHEED 觀察在高 V/III 流量比時薄膜在成長初期會呈現三維結構 (2–3 ML)，當厚度增至 10 ML 時，會發現薄膜呈現多晶結構，且晶粒為奈米尺寸⁽²¹⁾。另外，V/III 流量比對結晶品質的影響亦可以由 Jain 等人的研究報告中看見，當 TMIn 流量增加時，可有效地提升 InN 薄膜品質與沉積速率⁽²²⁾。

因此，藉由以上文獻說明，溫度與 V/III 流量比對於 InN 薄膜的結構與光電特性相當重要，而透過基板溫度的實驗後得到 500°C 為適合成長高品質 InN 的成長溫度，因此本研究使用電漿輔助化學束磊晶系統 (RF-CBE) 成長高品質磊晶 InN 薄膜於氧化鋁 (Al_2O_3) 基材上，並以 GaN 異質緩衝層降低磊晶成長時的應力累積效應，同時討論 InN 薄膜於不同 V/III 流量比下所表現出之結構、表面形貌與微結構，並加以分析，進而了解其流量比對成長 InN 的影響。

二、實驗設備與製程

化學束磊晶技術係 1984 年由 AT&T Bell Laboratories 之華裔科學家曾煥添博士 (Dr. W. T. Tsang) 發展成功的一項新技術，它係結合分子束磊晶成長法 (molecular beam epitaxy, MBE) 及有機金屬氣相磊晶法 (metal organic chemical vapor deposition, MOCVD) 之多項優點而成的一項新技術，是屬於較特殊之系統，其 III-V 族來源皆使用氣態進行沉積，因此可有效且快速地沉積磊晶材

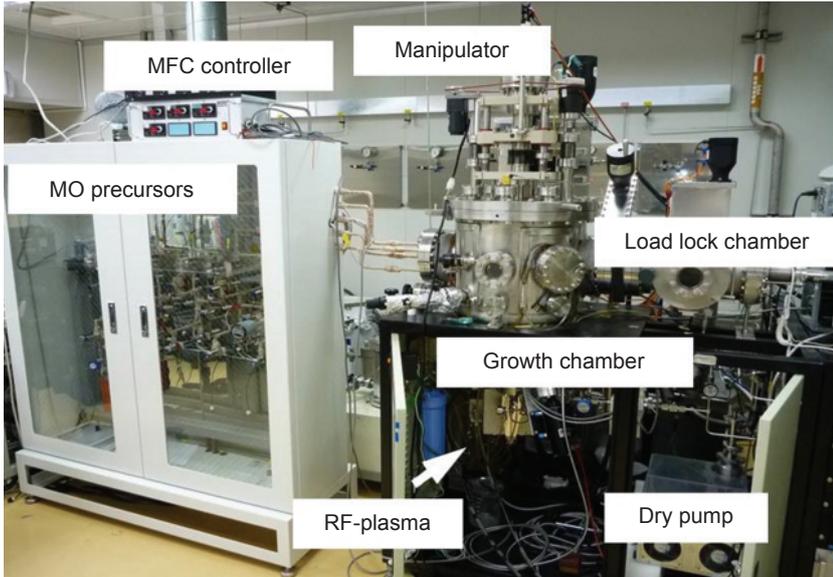


圖 2. 電漿輔助化學束磊晶系統實體圖。

料。本論文所闡述之磊晶機台為國研院儀器科技研究中心之 CBE 系統 (圖 2)，此套系統為自行設計，並結合分子束磊晶系統與金屬有機化學氣相沉積系統優點組裝而成，同時具有高真空環境與高沉積速率。化學束磊晶系統其 III 族與 V 族均為氣態分子源，III 族氣體來源使用有機金屬氣體，V 族則為活化氮原子 (N^*)，經由氣體輸送環，可有效地將氣體源以特定角度輸出至基板上沉積出磊晶薄膜，其主要為化學反應方式沉積薄膜，故定名為化學束磊晶系統。該套磊晶系統背景壓力值可達約 9×10^{-10} torr，其中 V 族活化氮原子來源是採用射頻氮氣電漿源取代傳統 MOCVD 設備中使用的氨氣 (NH_3)，此舉不僅一次解決氨氣需高溫裂解及效率不彰的問題，且高潔淨度的反應腔體，更可確保磊晶品質的優越性。依據系統可概分為下列幾個部分：

1. 傳輸腔

化學束磊晶系統所使用的樣品輸送腔，使用高抽氣效率之渦輪分子幫浦，並搭配乾式幫浦，進行前級抽氣，並能快速將氣體從 1 大氣壓抽至高真空環境，約為 1×10^{-9} torr。使用乾式幫浦，可避免油氣回滲的問題，進而使傳輸腔中保持乾燥與高真空環境；與樣品輸送腔結合另有一試片支撐承載座，經過特殊設計，可在輸送腔與成長腔之間快速取放試片。

2. 磊晶室

本套磊晶系統主要進行 III-V 族氮化物，如 GaN、AlN 及 InN 等，系統組件包括氮氣電漿源、基板加熱裝置、自行設計之氣體源環 (source ring) 與氮氣光譜監測系統等等，如圖 3 所示。在 V 族元素的來源是高度純化過的氮氣，經由電漿產生器提供活化的氮原子電漿 (N^*)；而 III 族元素所使用的金屬有機氣體 (MO source)，經由自行設計之氣體源環，以特定角度將 III 族有機金屬氣體分子，以環形束狀引導至被加高溫的基板表面和氮原子電漿進行反應，而成長出高品質磊晶薄膜。此種成長方式可以提供足夠及均勻的活化反應物到達反應區，因此可以提供接近 MOCVD 系統的磊晶速度。另外，成長腔體以 MBE 系統超高真空環境為設計基礎，可提供極高品質與純度的薄膜，亦可成長奈米級的精細結構，例如量子井 (quantum well)、量子點 (quantum dot) 結構或成長氮化物半導體元件結構中用來抑制磊晶缺陷的超晶格 (superlattice) 結構。此外，本系統採用高抽氣速率的真空渦輪幫浦，在氮氣電漿源及有機氣體皆通入腔體內的情況下，主腔體的真空度仍能保持在低於 3×10^{-5} torr 的環境下。

在磊晶基板的支撐座，是一可穩定控制基板加熱溫度及精細調整位置的承載模組，以配合由輸送腔體將基板傳送至主腔體的基板支撐座時，能精準

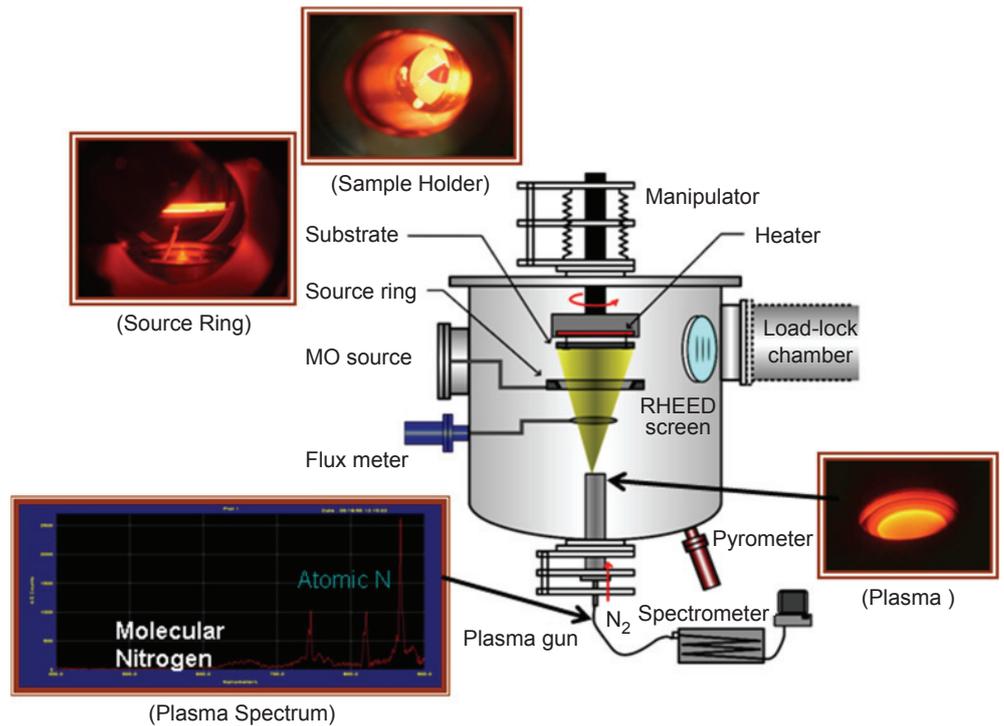


圖 3. 電漿輔助化學束磊晶系統示意圖。

對位及固定。氮氣電漿源建置在磊晶基板的正下方，與基板的距離將配合有機金屬氣體源環的位置與環上氣孔，將氣體引入腔體時的角度，以確保膜層厚度的均勻性。氮氣電漿產生的同時，下方另有一視窗將電漿光譜經由光纖傳送至個人電腦的光譜卡進行監測與分析，以確保磊晶品質，圖 4 與圖 5 是透過各種功率與流量的條件下所得到的電漿光譜圖，由於磊晶成長時，無法由肉眼得知氮氣電漿解離資訊，因此通常會架設一組由光纖頭、訊號處理卡與電腦所組成的光譜儀，藉由氮氣電漿解離後所發出的光訊號聚焦到光纖頭，然後將光由光纖導入光譜儀中，由光譜儀分析電漿組態，因此可以得到清楚的電漿組態資訊。由不同電漿功率與氮氣流量的光譜圖中顯現了數根訊號峰，並分別標示了分子氮與原子氮躍遷的訊號峰，而在幾個明顯的主要波長為 740、820、860 nm 是屬於原子氮的訊號峰，因此透過光譜的監控，使用者可以知道通入的 N_2 大部分被射頻電漿解離成氮化物磊晶薄膜所需的原子氮，可知所輸送氮氣已大部分轉化為磊晶薄膜中所需要的氮原子，特別是高流量 N_2 可解離出較多的活化氮。

3. 人機介面控制

本系統透過圖案化控制軟體 Labview 進行介面控制撰寫，透過軟體的連結，可由人機介面控制所有閥門的開關與管路溫度，並監控管路的溫度，如圖 6 所示，系統共區分為五組獨立管路，目前配置三甲基銻、三甲基鋁與三乙基鎘，此三種管路上的閥門可單獨作動。同時由介面上可同步讀出管路壓力值與管路溫度，不需額外使用壓力讀表，可減少系統體積與成本。並且第二頁 program 選單中可寫入製程方式，主要控制尾端進氣閥門開啟與關閉的時間，如圖 7，當沉積單一化合物時，若需要先成長一層緩衝層時，可先設定緩衝層氣體種類及沉積時間，以及沉積完後停留時間，最後再依序通入所需成長材料的氣體源，並且可選擇連續進氣成長或間歇性進氣成長等方式；而成長多元合金時，則可以選擇同時進氣、輪流進氣與交互進氣等方式，並可以迴圈 (loop) 的形式設定次數來達到所需的製程時間。

而成長 InN 材料，影響其結晶性之優劣有許多因素，如：工作壓力、基板溫度、V/III 流量比、基板、氣環及電漿源之間的距離等。而利用 CBE 製備 InN 氮化物磊晶具有高沉積速率之優

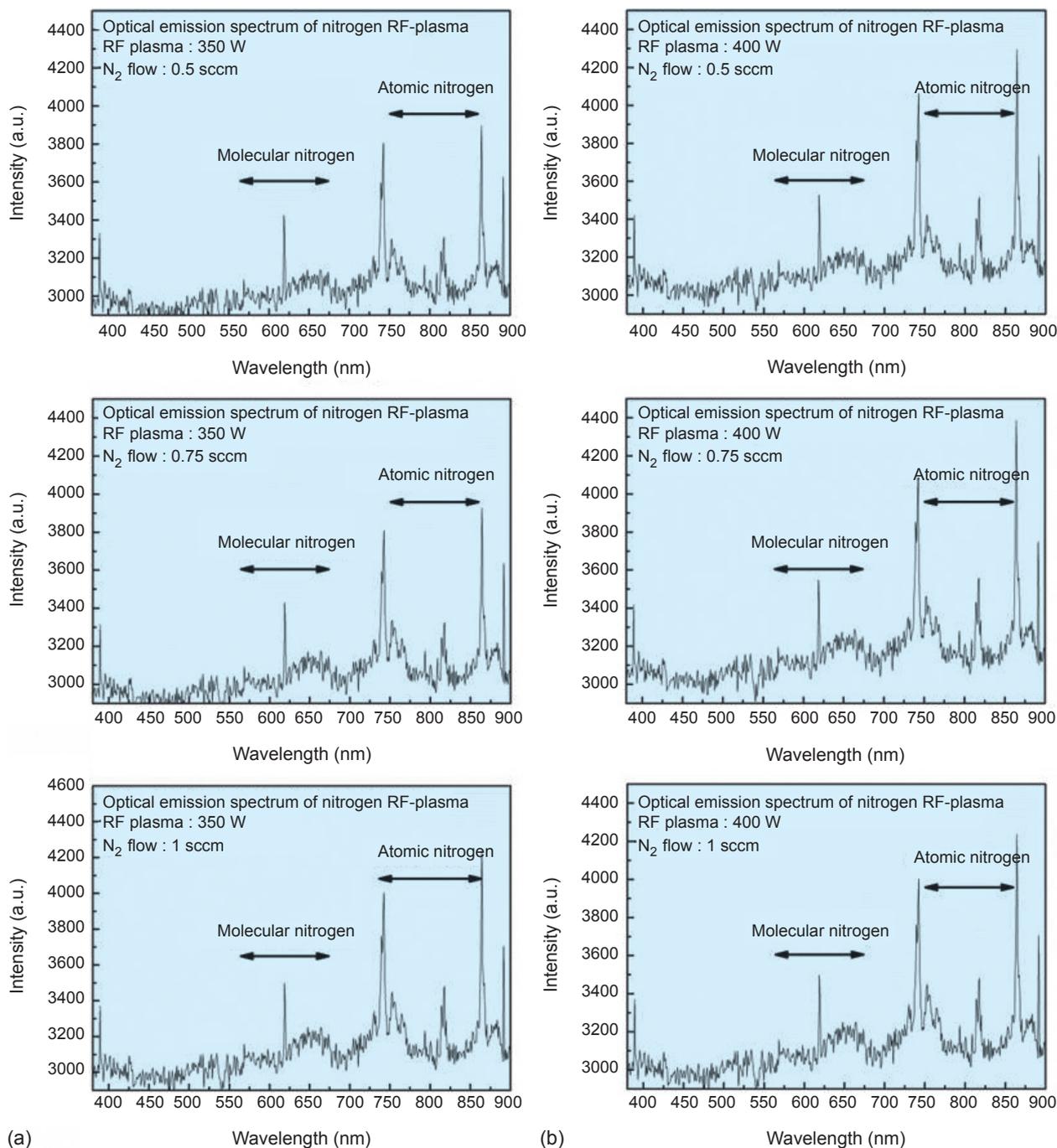


圖 4. 電漿功率 (a) 350 W 與 (b) 400 W 分別通入 0.5 ~ 1 sccm 氮氣流量之電漿 OES 光譜圖。

點，因相同溫度下，氮氣電漿源更能提供成長時所需要之活化氮，而利用高溫解離氮氣除效率不彰外，更無法於高溫中成長 InN 磊晶。除此之外，在成長磊晶薄膜時，基板的選擇是一個相當重要的實驗參數。對於大部分之半導體材料而言，要找到晶格常數匹配的基板並不容易，所以一般在晶格常

數不同的基板上之磊晶過程大都可歸類為異質磊晶 (heteroepitaxy)。異質磊晶所造成的晶格錯配 (lattice mismatch)，往往容易造成磊晶製程之困難。

目前有關 III-V 族氮化物磊晶之研究的最大的癥結仍在於基板選擇的問題，良好的基板材料必須在晶格常數、結晶結構及熱膨脹係數上都能和薄膜

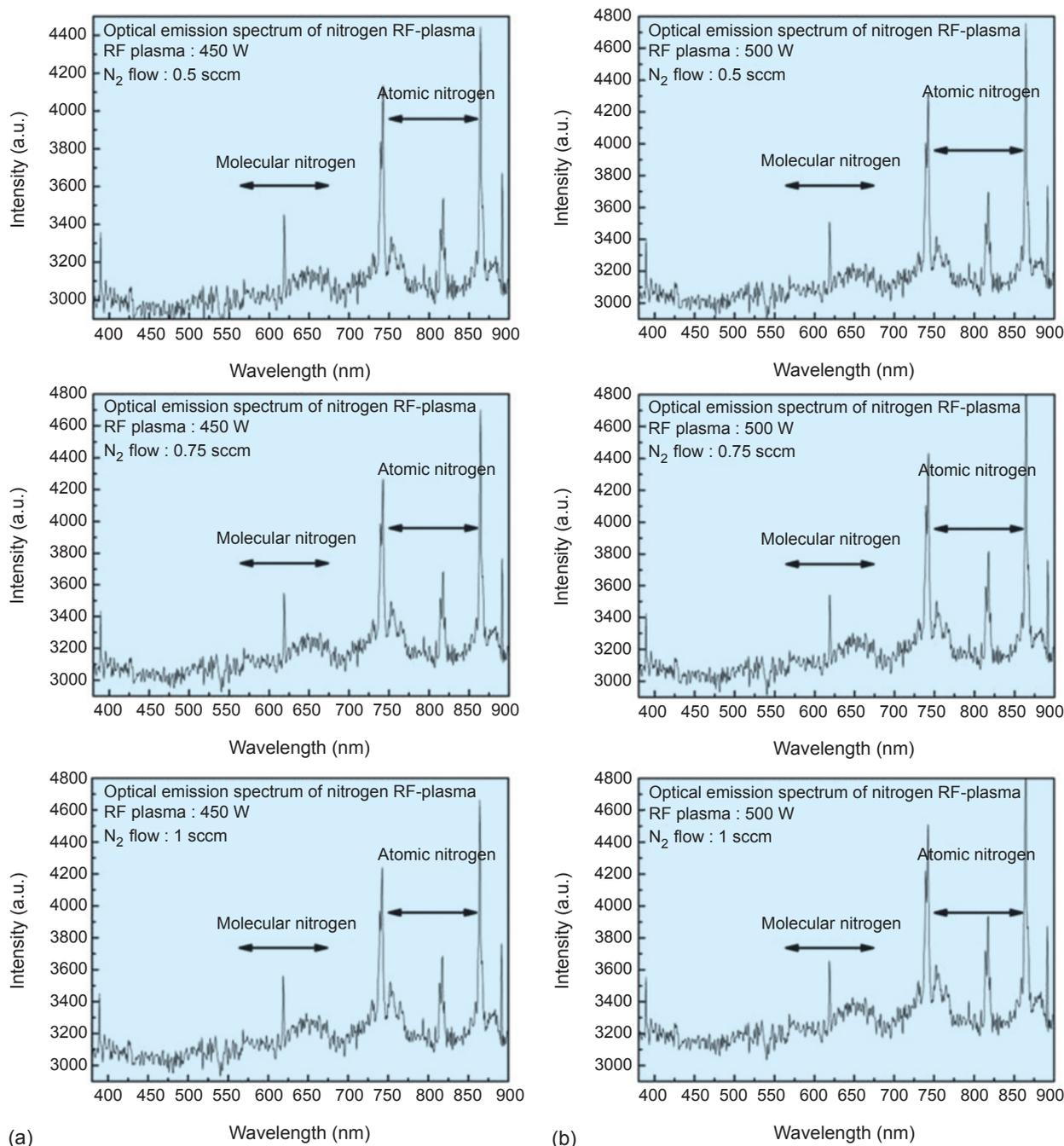


圖 5. 電漿功率 (a) 450 W 與 (b) 500 W 分別通入 0.5 ~ 1 sccm 氮氣流量之電漿 OES 光譜圖。

有很好的搭配。由於大尺寸的 InN 尚無法大量製造生產，此類材料在磊晶基板的選擇上仍都採用有相當晶格錯配量的六方晶系 *c*-sapphire (藍寶石) 與 SiC。由於考慮到價格與耐熱性質的特點，因此在磊晶製程實驗中仍以藍寶石為主要研究基板。但因藍寶石基材導熱較矽基材差，且晶格錯配也較大，而 InN 在氮化物系統中具有較低之熱裂解溫度

度，因此較不適宜以 MOCVD 方式進行成長，然而，本文所利用的電漿輔助化學束磊晶系統 (RF-CBE) 是利用環束型氣流設計，可將金屬有機氣體均勻地分布於基板表面，以及使用射頻電漿源可於低溫將氮氣解離為製程所需之活化氮，如此可免去解離氮氣之高溫製程。因此透過 RF-CBE 系統磊晶成長模式，可有效的製鍍高品質大面積且均勻性良

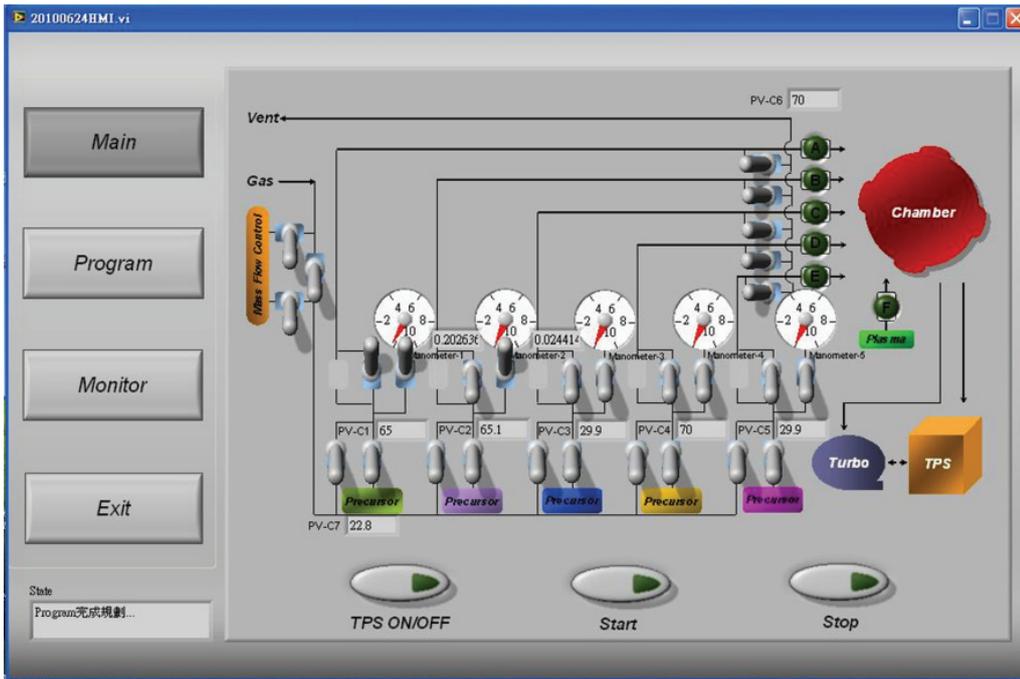


圖 6. RF-CBE 磊晶系統人機介面與壓力、溫度監控程式介面。

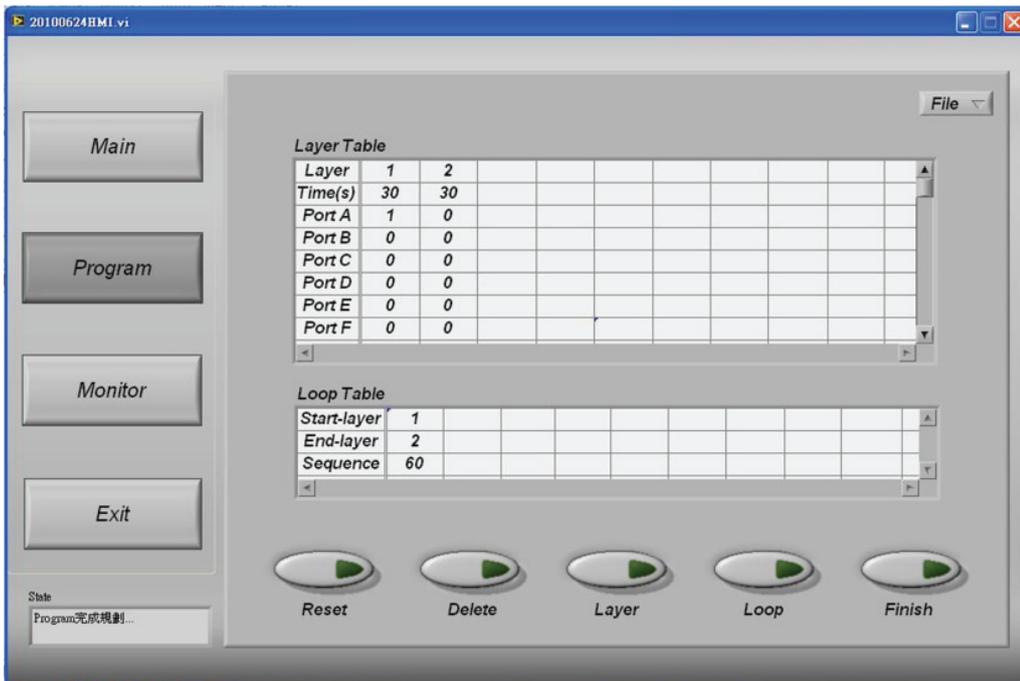


圖 7. 磊晶製程進氣方式程式控制介面。

好之 InN 磊晶片。

本研究中使用 (0002)Ga-face GaN 磊晶薄膜為製備 InN 磊晶之緩衝層。GaN 是利用 MOCVD 於 2 吋 Al₂O₃ 基材上成長出。經分析儀器量測後，確認為六方晶系纖鋅礦結構之 GaN 晶體，厚度約為 4 μm，半高寬約為 340 arcsec。並將分別切割成 2

吋之 1/4 片，共四片。成長 InN 磊晶薄膜前將 GaN 磊晶片置入 RF-CBE 系統的試片，準備腔體預抽至背景壓力約為 5 × 10⁻⁹ torr 約一天，待腔體壓力達到平衡時，將連接成長腔體之閘閥開啟，運用機械手臂將 GaN 磊晶基板推入成長腔體後即可準備進行 InN 磊晶成長。成長 InN 磊晶的三族來源

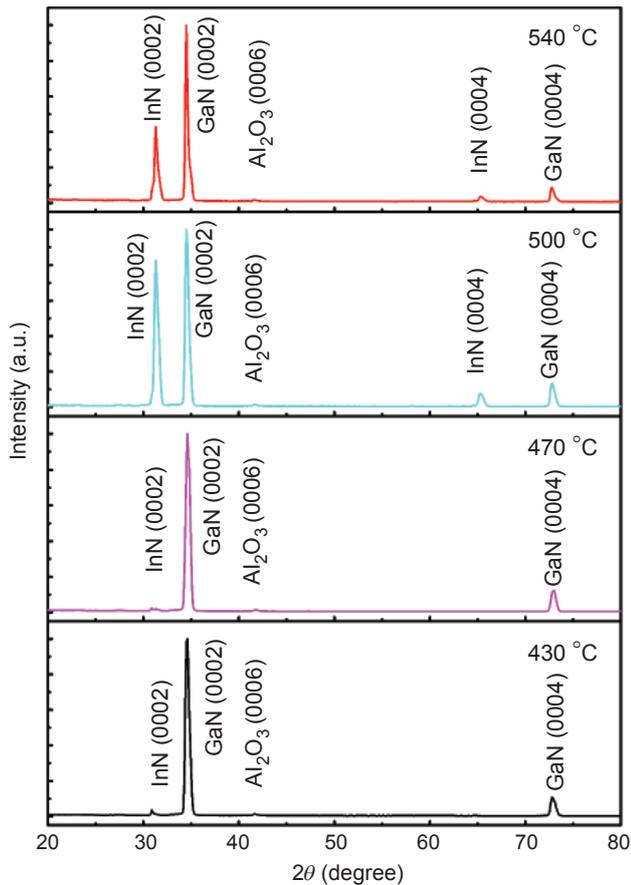


圖 8. 430–540 °C 不同製程溫度下成長 InN 薄膜 XRD 分析。

為賽孚思公司所生產之有機金屬氣體 99.9999% 的三甲基銦 (trimethylindium, TMIIn)，由於 TMIIn 之蒸氣壓在 0–50 °C 時較高，經不同溫度測試其蒸氣壓後如表 1 所示。鋼瓶使用恆溫水槽保持在 50 °C。TMIIn 傳輸方式未靠任何載流氣體 (carrier gas)，單純使用兩端壓力差的方式，由氣體源高壓力端流向高真空壓力端磊晶腔體；而 N₂ 則是使用 13.56 MHz 射頻電漿源將通入的高純度氮氣 (N₂) 解離成活化氮 (N*)，以提供製程所需的原子氮。成長 InN 磊晶前，先將腔體預熱至 600 °C，進行表面熱清潔約 30 分鐘，待時間到達後，使用通入 N₂ 流量為 1 sccm (約為 1 × 10⁻⁵ torr)、電漿功率為 350 W 的參數，進行基板表面處理約 10 分鐘，隨即降至 500 °C 準備進行 InN 磊晶成長，依照不同的製程溫度成長 InN 所得到的結果如圖 8 與圖 9 可知，以 RF-CBE 系統成長 InN 材料其製程溫度

表 1. TMIIn 於不同溫度對應之蒸氣壓 (torr)。

Temperature (°C)	18.6	20	25	30	35	40	45	50
Vapor Pressure (Torr)	2.87	3.05	3.56	4.41	5.41	7.2	8.8	10.6

低於 500 °C 時，InN 薄膜沉積速率較慢，而當溫度在 500 °C 時可得到高指向性且品質較優之 InN 薄膜，而溫度於 540 °C 時，(0002) 與 (10 $\bar{1}2$) 半高寬數值則輕微地增加，不同基板溫度所成長之 InN 所使用之製程條件與此實驗不盡相同，但基於使用同樣系統與 GaN 薄膜，因此該實驗結果具有相當程度的參考價值。因此本次實驗將固定成長溫度在 500 °C。成長時，分別設定 TMIIn 流量為 0.25、0.35、0.45 與 0.55 sccm 四個條件，通入氣體時間為 30 分鐘。同時透過電漿光譜即時監控可得知，在本實驗設定的參數之下，可得到超過 50% 的活化氮。

另外，由圖 4 可以發現，當 N₂ 流量設定在 1 sccm 時，從不同的電漿功率光譜圖，可觀察到較強的原子氮訊號，且差異不大；而當 N₂ 流量低於 0.75 sccm 時，其解離效率就明顯降低。另一方面，雖然較高的電漿功率通入較低的 N₂ 流量亦可得到相同結果，但考慮到電漿使用壽命與其工作壓力 (< 5 × 10⁻⁵ torr)，因此將本研究的 N₂ 流量與電漿功率分別固定為 1 sccm 與 350 W。

4. 實驗參數

本章節所沉積之 InN 磊晶薄膜參數如表 2 所示，為確定 InN 薄膜沉積時所受到之變數最小，

表 2. 成長 InN 磊晶的實驗參數。

以不同 V/III 流量比成長 InN 磊晶	
Substrate	GaN/Al ₂ O ₃ (0001)
Base pressure (Torr)	5 × 10 ⁻⁹
Substrate temperature (°C)	500
Radio frequency power (W)	350
Growth time (min)	30
Nitrogen gas flow to trimethylindium (TMIIn)	1.81, 2.22, 2.86, 4

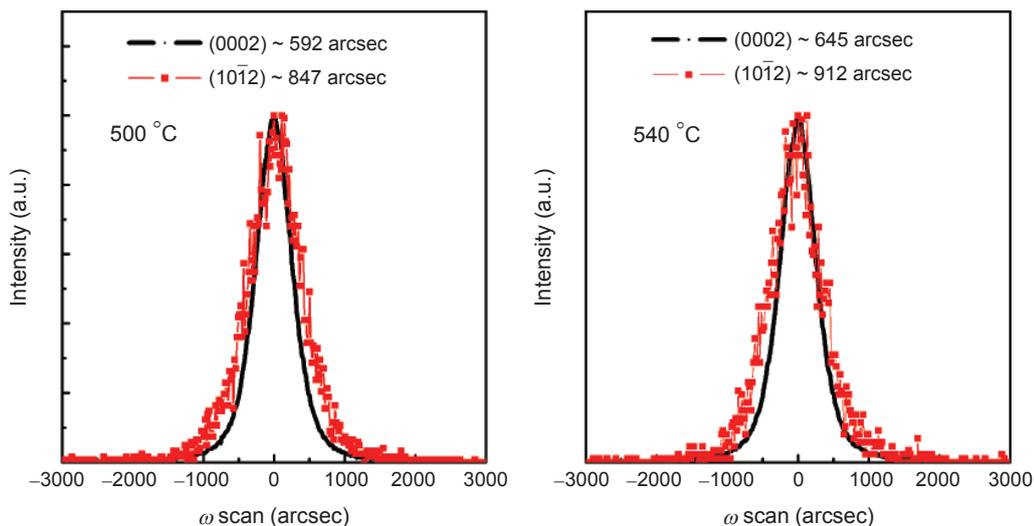


圖 9. 500 與 540 °C 之 InN 薄膜 (0002) 與 (10 $\bar{1}2$) XRC 分析。

因此實驗中僅改變 V/III 流量比，也就是不同 TMIn 流量。其於條件如基板溫度、電漿功率、工作距離、成長時間與氮氣流量等皆是固定數值。

三、結果與討論

經由 RF-CBE 系統以不同 V/III 流量比將 InN 沉積於 GaN 上，並將成長溫度固定於 500 °C，同時利用各式分析技術進行薄膜特性分析，將其各項分析結果整理後，並於以下章節逐項討論。

1. 薄膜晶體分析

由於基板或緩衝層材料品質的優劣會直接影響後續薄膜的磊晶品質，因沉積物最先接觸的是基板／緩衝層表面，因此若是基板／緩衝層的表面粗糙度過大，且薄膜晶體品質不佳，會使沉積物原子在表面遷徙受到阻礙，而造成磊晶缺陷增加或呈現多晶成長，故在沉積 InN 前先行使用 XRD 進行 GaN 晶體結構確認。

圖 10 為 GaN 磊晶薄膜經 X 光搖擺曲線 (x-ray rocking curve, XRC) 量測後結果，可觀察到在 GaN 對稱面 (0002) 的半高寬約為 320 arcsec；而非對稱面 (10 $\bar{1}2$) 的半高寬約為 380 arcsec，相較於一般以 HVPE 製備的 GaN 基板，其對稱面 (0002) 約為 90–100 arcsec⁽²³⁾ 來看，二維形式成長的 GaN，其結晶品質已是甚佳。因此以不同 V/III 流量比所沉積的 InN 薄膜晶體分析如圖 11。結果顯示在圖

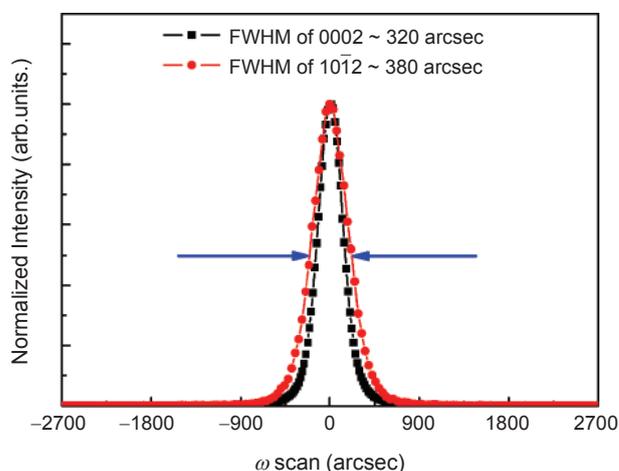


圖 10. GaN 緩衝層對稱面 (0002) 與非對稱面 (10 $\bar{1}2$) 之 XRC。

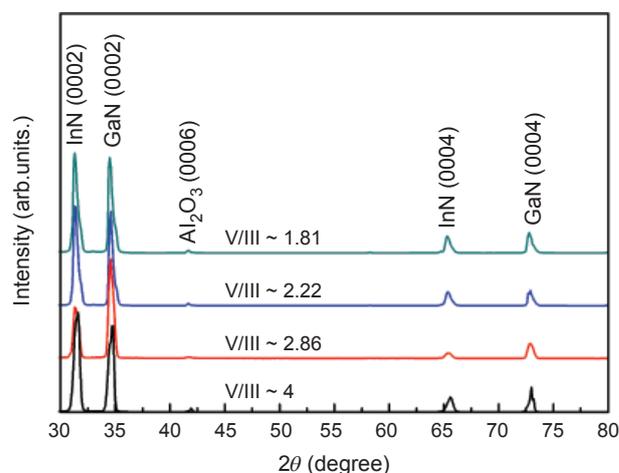


圖 11. 不同 V/III 流量比沉積之 InN 薄膜於 GaN 緩衝層上的 θ - 2θ X 光繞射圖。

譜中只看見 InN(0002)、InN(0004)、GaN(0002)、GaN(0004) 與 Al₂O₃(0006) 五根繞射峰，因此可以判定在所有的 V/III 流量比條件下所成長的 InN 薄膜都以 *c* 軸為主要生長方向，同時圖譜中並無看見銻金屬 (Indium metal) 的訊號 ($2\theta \sim 32^\circ$)，代表此製程條件下用來沉積 InN 所使用的 III 族前驅物-TMIn，都能與製程腔體中的活化氮進行反應，因此從繞射圖譜中沒有發現銻金屬的訊號。相較於 Wu 等人的結果⁽²⁴⁾，以 RF-MBE 系統成長 InN 之後，發現氮原子數量無法滿足 In 的需求，因此發現其表面有 In 金屬堆積的現象。藉由 XRC 量測模式之量測結果可由圖 12 所知，在所有條件下所成長的 InN 磊晶薄膜顯示對稱面 (0002) 的半高寬數值與非對稱面 (10 $\bar{1}2$) 的半高寬分別為 455–1167 arcsec 與 1070–1170 arcsec 之間，當 V/III 流量比固定在 1.81 時，顯示 InN 擁有比其他條件小的半高寬值，其 (0002) 與 (10 $\bar{1}2$) 分別為 455 arcsec 與 1070 arcsec，此值略高於 GaN 緩衝層，可能的原因是因為 InN 薄膜在沉積時因與 GaN 之間的晶格不匹配所產生的錯配差排所影響。然而 Tuna 等人⁽²⁵⁾ 利用 MOCVD 與 Wang 等人⁽²⁶⁾ 以 RF-MBE 成長 InN 於 GaN 上所得到的半高寬分別為 InN (0002)–750 arcsec、InN(10 $\bar{1}2$)–2900 arcsec 與 InN (0002)–350 arcsec、InN(10 $\bar{1}2$)–1750 arcsec。與文獻結果相比較可知，以 CBE 成長的 InN 其結晶品質與目前發表高品質 InN 的結果相似。

另外，當 V/III 流量比在 2.86 時，所得到 InN 之半高寬數值最大，因此可推論，在該條件下的 InN 晶體內部的原子堆疊與排列較為雜亂，因此其結晶性較差。然而，透過 XRC 量測雖然可以得知 InN 晶體的結晶品質與缺陷，但由於缺陷型態包含點、線與面缺陷，因此利用 XRD 分析儀器測得的 XRC 數值包含了上述提到的缺陷型態，然而缺陷密度的高低不單純只是差排的影響，故只能利用 XRC 結果粗略地計算薄膜內的差排密

度。由於 XRC 所測量的半高寬數值包含著貫穿式差排 (threading dislocation) 密度的訊息⁽²⁷⁾，而貫穿式差排通常包含：螺旋差排 (screw dislocation) 通常沿著 *c* 軸產生並垂直於基板表面，其伯格斯向量 (Burgers vectors, \bar{b}) 為 $\bar{b} = \langle 0001 \rangle$ ，而當 *c* 軸方向傾斜 (tilt) 角度過大時，則 XRC 所測得的半高寬值就會越大；同理，刃差排 (edge dislocation) 通常沿著 *a* 軸產生並平行於基板表面，其 $\bar{b} = 1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ ，當扭轉 (twist) 角過大時，則 XRC 所測得的半高寬值就會越大；另外，還有混合 (mixed dislocation) 差排，其伯格斯向量為 $\bar{b} = 1/3\langle 11\bar{2}3 \rangle$ ，其是由螺旋與刃差排所組合而成的。

而傾斜角與扭轉角可分別透過以下公式⁽²⁸⁾ 求得：

$$\alpha^{\text{tilt}}[\varphi] = \cos^{-1}[\cos^2(\varphi)\cos(\alpha_\Omega) + \sin^2(\varphi)] \quad (1)$$

$$\alpha^{\text{twist}}[\varphi] = \cos^{-1}[\sin^2(\varphi)\cos(\alpha_\phi) + \cos^2(\varphi)] \quad (2)$$

式中 α_Ω 為傾斜角、 α_ϕ 為扭轉角與 φ 為 Lattice plane inclination，並且將得到的數值代入公式 (3) 與 (4)⁽²⁹⁾ 可以概略地求得貫穿式差排的密度。

$$N_s = \frac{\alpha_\Omega^2}{4.35\bar{b}^2} \quad (3)$$

$$N_e = \frac{\alpha_\phi^2}{4.35\bar{b}^2} \quad (4)$$

上式中 α_ϕ 為扭轉角、 α_Ω 為傾斜角， \bar{b} 為伯格斯向量，Heinke 指出⁽³⁰⁾，以 φ 的搖擺曲線可以作為扭轉角的指標，因此在計算式中將使用 InN (10 $\bar{1}2$) 的搖擺曲線值代入公式 (2) 式計算後所得到的值。

根據公式 (3) 與 (4) 式計算後，可估算出螺旋差排與刃差排密度，分別為列於表 3 中，由列表中發現，螺旋差排密度約為 3.8×10^8 至 2.1×10^9

表 3. 螺旋差排與刃差排密度。

V/III	Screw component dislocation (cm ⁻²)	Edge component dislocation (cm ⁻²)
4	2.13×10^9	5.15×10^{10}
2.86	2.73×10^9	5.29×10^{10}
2.22	6.63×10^8	4.43×10^{10}
1.81	3.77×10^8	4.23×10^{10}

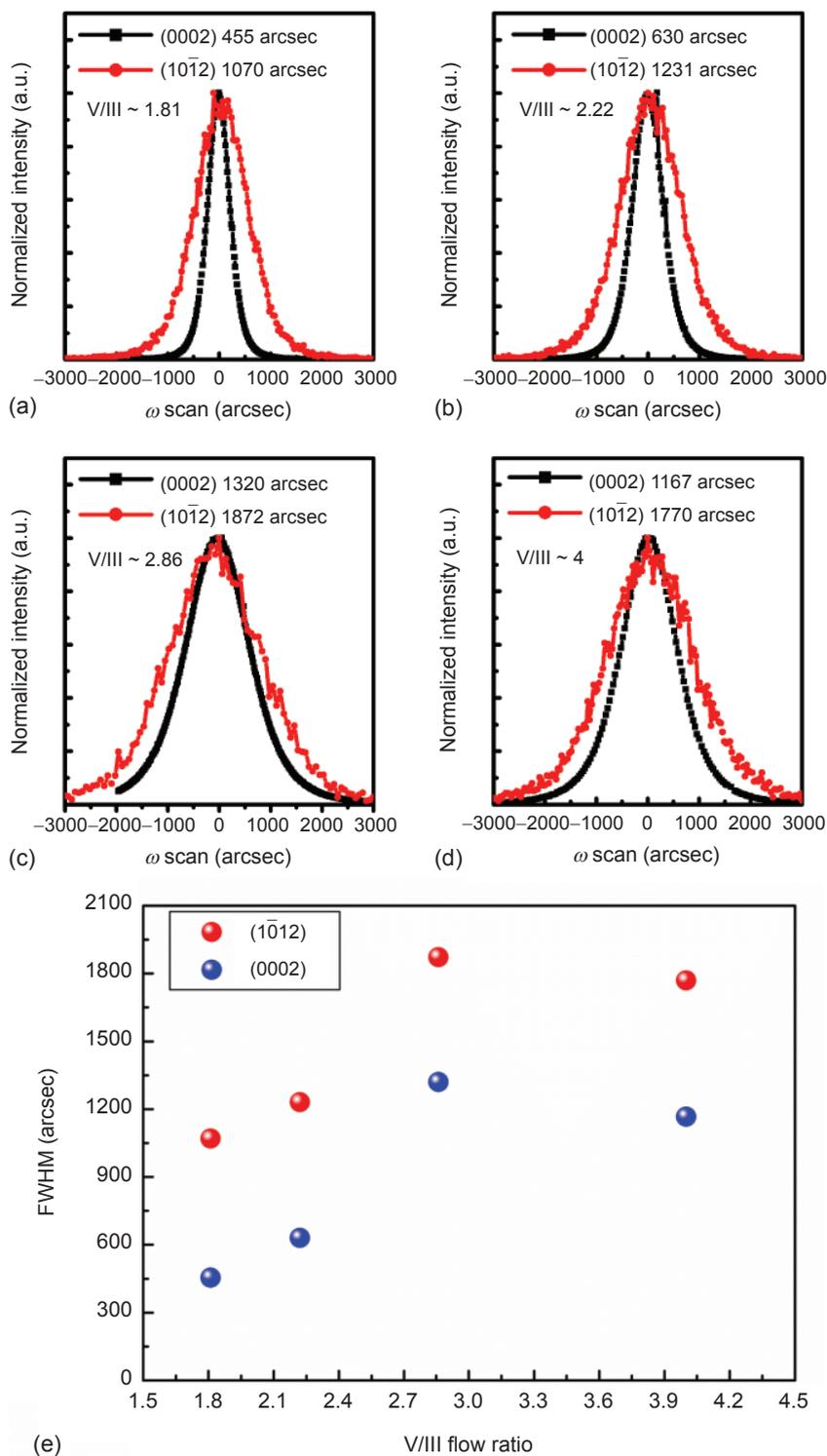


圖 12. 不同 V/III 流量比 (a) 1.81、(b) 2.22、(c) 2.86 與 (d) 4 之條件下所沉積之 InN 薄膜於 GaN 緩衝層的 XRC 結果；(e) 為 XRC 數值與 V/III 流量關係圖。

cm^{-2} ；而刃差排密度約為 4.2 至 $5.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ，當 V/III 流量比在 2.86 時，由 XRC 量測可知，其晶體在傾斜角與扭轉角值均為最大，由此可判定，材料內部的晶格所受到的應變程度較大，因此差排

密度最高；反之，而當 V/III 流量比較低時，可間接減少 InN 中的差排密度。

另外，同樣是透過 $2\theta-\omega$ 量測所得到的值可透過公式 (5) 計算出六方晶系 InN 之 a 軸與 c 軸晶格

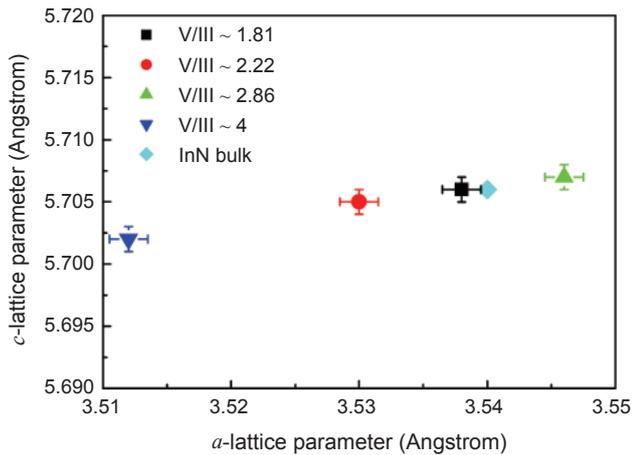


圖 13. 不同 V/III 流量比所沉積之 InN 薄膜 a 軸與 c 軸晶格參數。

參數，如下所示：

$$\frac{1}{d_{(hkl)}^2} = \frac{4}{3} \frac{h^2 + hk + k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (5)$$

上式中， $d_{(hkl)}$ 表示繞射晶面， a 與 c 為晶格參數。

經計算後結果如圖 13 所示，當 V/III 流量比在 1.81 時，成長的 InN 薄膜其 a 與 c 軸晶格參數分別 5.706 Å 與 3.538 Å，此值相當接近化學計量比 (stoichiometry)⁽³¹⁾，因此可知在該條件下所成長的 InN，具有高品質結構，並且在成長初期所承受的應變 (strain) 已幾乎在成長後期鬆弛 (relaxed)，當提高 V/III 流量比至 2.22 與 4 時，顯示此條件下的 InN 薄膜的 a 與 c 軸皆呈現被壓縮，使晶格體積減小，推論可能的原因是由於 InN 在此條件下為非化學計量比的成長，因此晶體內可能有大量的 In 空缺⁽³²⁾，而導致晶格體積呈現三個方向的收縮；另一方面，透過縱深元素的分析可以發現 (未顯示於文中)，此兩個條件所沉積之 InN 薄膜含 C 量濃度均偏高，因此有可能是 C 原子在 InN 薄膜中而影響了其晶體品質。雖然 Duan⁽³³⁾ 透過理論計算可以得知，置換型碳原子佔據 N 位置 (substitutional carbon on N sites, C_N) 其是一個低形成能之淺層受體 (shallow acceptor)，但因為 C^{4+} 與 N^{3+} 之離子半徑均為 0.016 nm，因此 C_N 的存在應是屬於少數，並且這種情況下，其晶格參數改變程度通常會較低。

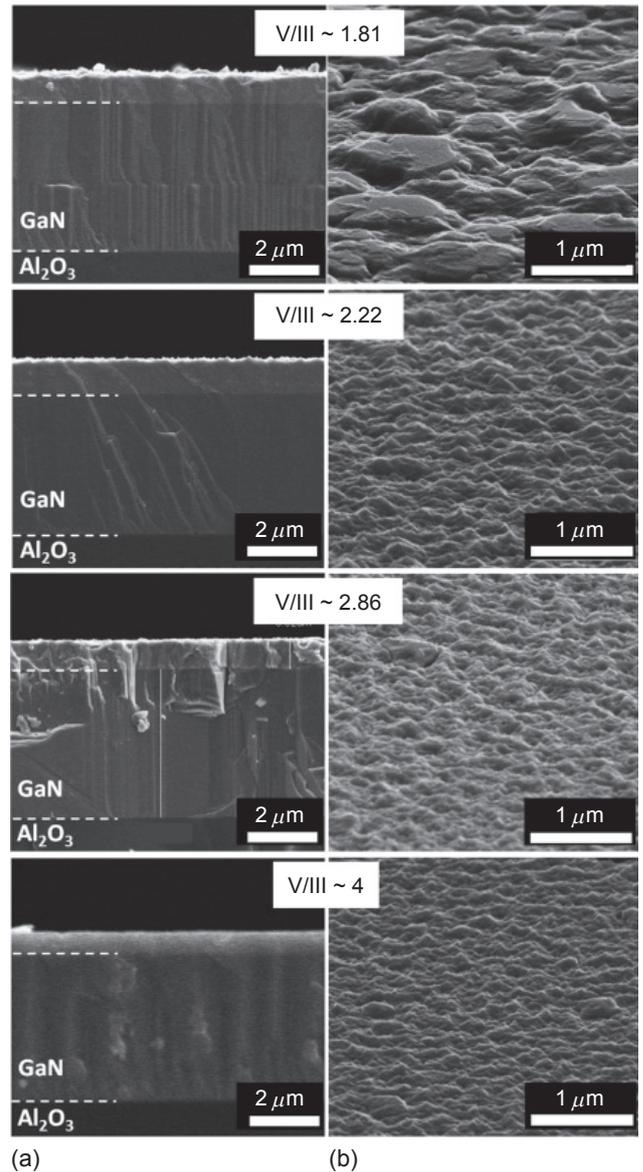


圖 14. 各 V/III 流量比所成長之 InN 以 SEM 觀測 InN 之 (a) 表面與 (b) 橫截面形貌。

特別在 V/III-2.86 時，可以發現趨勢與其他條件不同，其晶格參數顯示三個方向的膨脹，有可能在成長的過程中，產生多餘之 N 空缺 (Nitrogen vacancy)，進而提高疊差密度，而使 a 軸與 c 軸晶格參數變大。

2. 表面與橫截面形貌

圖 14 顯示各條件下所成長之 InN 薄膜表面與斷面形貌。由圖中清楚地發現，薄膜表面沒有明顯的 In 金屬堆積現象，此結果與 XRD 分析結果一

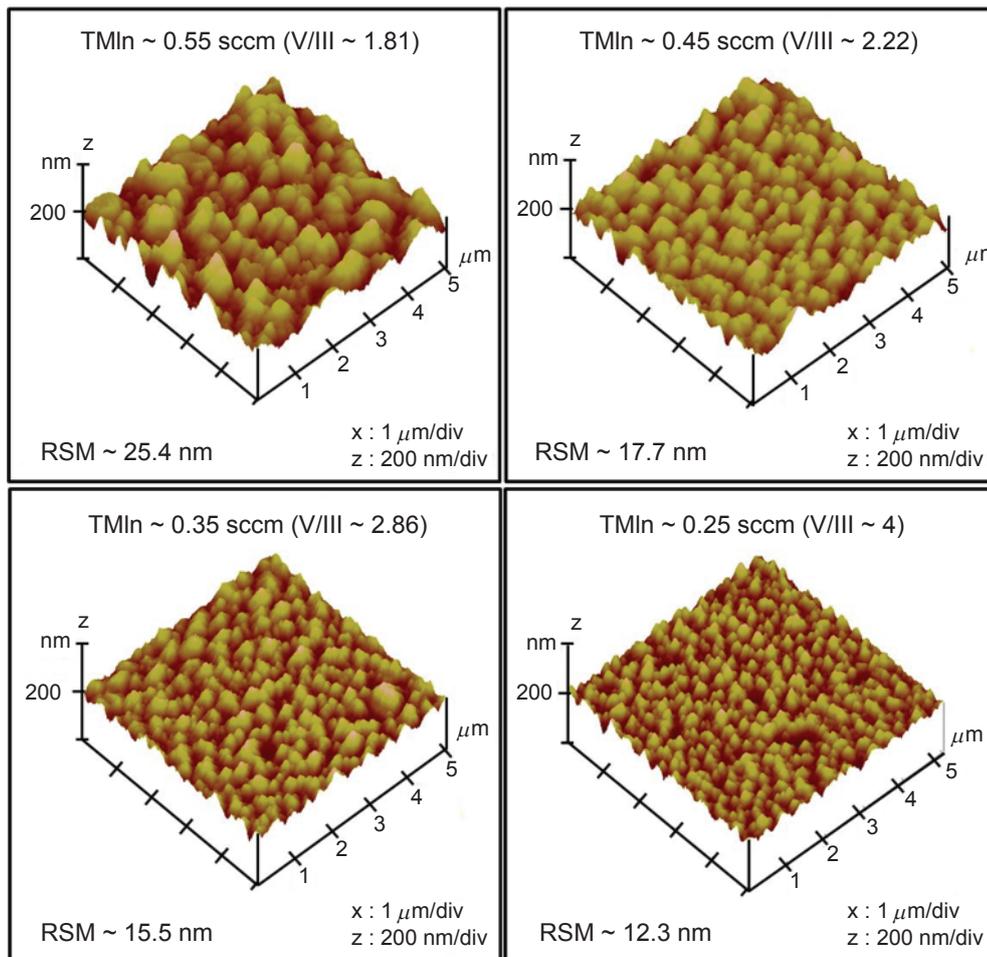


圖 15. AFM 影像及不同 V/III 流量比所成長之 InN 表面粗糙度。

致。另外，薄膜表面呈現相當粗糙，且為不規格島嶼狀，推測 InN 可能以三維島狀成長，而較大島嶼的形成是當通入流量較大的 TMIn 時 (V/III-1.81)，In 原子停留在基板表面的數量亦會相對較多，進而形成 In 團簇的數量與體積就會更大而形成三維團簇，當 In 團簇不斷的與表面的 In 或 N 原子碰撞與聚集到臨界值時，就會以島嶼狀成長，並銜接鄰近的團簇而形成連續膜。

為了進一步了解表面形貌特徵，可由圖 15 原子力顯微鏡所測量的 $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ 均方根 (root-mean-square, RMS) 表面粗糙度得知，當 V/III-1.81 時，RMS 值約為 25.4 nm；反之，V/III-4 時，InN 之 RMS 值約為 12.3 nm，因此可知，當 InN 薄膜表面粗糙度 RMS 值隨著 V/III 流量比增加而減少。當低 V/III 流量比時，顯示 InN 晶粒尺寸較大，且成核密度較低，此結果與多數文獻所看到的趨勢相

似。然而，較大的表面粗糙度可能是因為 InN 島嶼的密度較低、尺寸較大，因此在成長時有晶粒彼此間有較大的深寬比所造成。

另一方面，由斷面形貌可以知道，InN 薄膜的厚度隨著 TMIn 的流量增加而增加，在 V/III-1.81 與 2.22 時，厚度約為 $1 \mu\text{m}$ ；在 V/III-2.86 時，約為 850 nm；在 V/III-4 時，約為 730 nm。依據得到不同流量比成長的 InN 厚度，根據圖面標示尺度換算了各流量比率之沉積速率，並繪製在圖 16，由圖可知，沉積速率從 1.4 至 $1.9 \mu\text{m}/\text{h}$ ，並且會隨著 TMIn 流量增加而增加，主要是因為在製程中提供了更多的 III 族來源與 V 族反應，然而當進一步的增加 TMIn 流量時 (V/III < 2.22)，沉積速率就不再增加，是由於活化氮的不足，而無法使由 TMIn 裂解後多餘的 In 與 N* 形成 InN 分子。

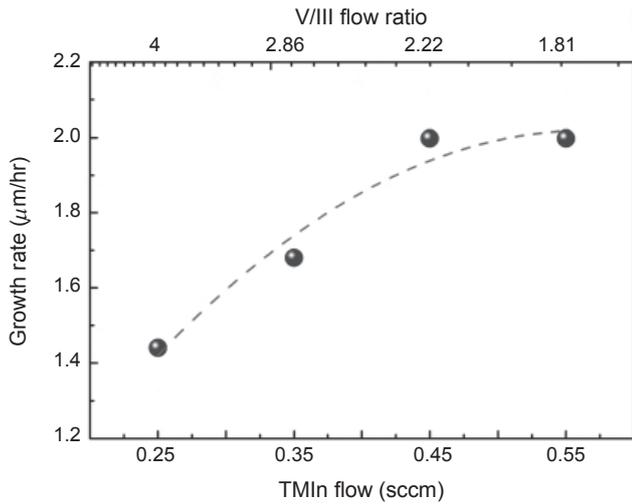


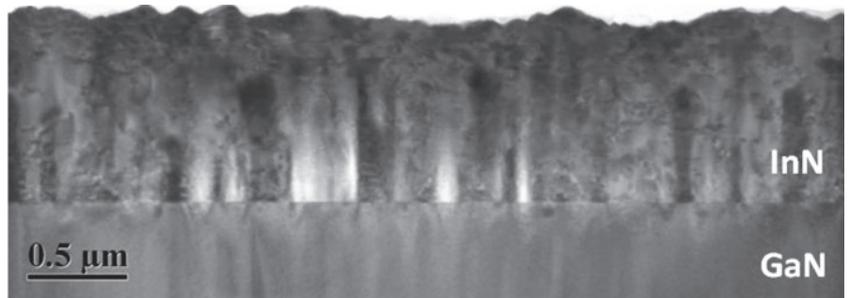
圖 16. 500 °C 所成長之 InN 薄膜在不同流量比下之沉積速率。

3. 晶體缺陷與微結構分析

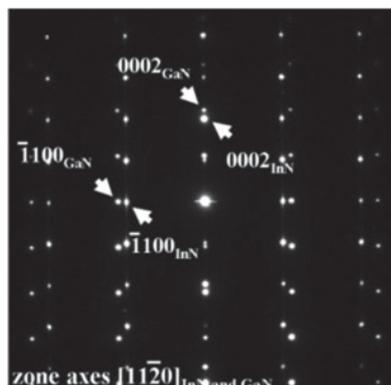
圖 17(a) 為 V/III 流量比 1.81 所沉積之 InN/GaN 的穿透式電子顯微鏡 (TEM) 明視野橫斷面圖 (near two-beam condition with $g = 11\bar{2}0$ InN)，由圖可觀察到 InN 薄膜表面相當粗糙與量測的膜厚約為 $1\ \mu\text{m}$ ，相同於由 SEM 所得到的表面與斷面影像所測量的厚度值。並且 InN 與 GaN 之間的界面清

晰，確認沒有界面反應層的生成，同時觀察在 InN 膜層中亦沒有明顯的 In 金屬團簇，對應到與 XRD 的分析結果沒有出現 In 金屬繞射訊號一致，表示該條件以下所成長的 InN 薄膜並沒有因為大量的金屬前驅物而使 In 金屬過飽和析出，而膜層中有部分對比顯示較暗的區域，可能是晶體產生了小角度的旋轉，而偏離區軸所產生的影像對比。同時可發現底層 GaN 的貫穿式差排被異質界面阻斷而沒有延伸進入 InN 晶體中，因此可初步判定，InN 薄膜大多數的缺陷是來自於成長初期與 GaN 之間的晶格不匹配與後期 InN 薄膜成長時所產生的。

另外，圖 17(b) 是 InN/GaN 之擇區繞射圖譜 (selected-area electron diffraction, SAED)，當入射電子束沿著 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 晶軸方向時可清楚地看到，所有的繞射點都清楚地被呈現，並無發現其他繞射雜點，因此可再次確認橫截面圖沒有發現界面反應層的生成與 In 金屬的堆積，同時 InN 的繞射點呈現一組規則的陣列，並且是對準著 GaN 的繞射點往外沿伸，因此可確認 InN 是單晶晶體，並與 GaN 之間是磊晶關係，其 in-plane 磊晶關係為： $(0002)_{\text{InN}} // (0002)_{\text{GaN}}$ 、 $(\bar{1}100)_{\text{InN}} // (\bar{1}100)_{\text{GaN}}$ 與 $\langle 11\bar{2}0 \rangle_{\text{InN}} // \langle 11\bar{2}0 \rangle_{\text{GaN}}$ 。然而，從 SAED 圖譜中觀察到沿著



(a)



(b)

圖 17.

(a) V/III 流量比在 1.81 下所沉積之 InN/GaN 薄膜明視野橫截面 TEM 圖，
(b) InN/GaN 薄膜之擇區繞射圖。

c 軸方向出現明亮的條紋線，此現象代表在 InN 薄膜中存在著高密度的平面缺陷。

圖 18 為 V/III 流量比 1.81 之 InN 於高倍率 TEM 影像，並以 $g = 0002$ 與 $g = \bar{1}100$ 雙電子束繞射 (two-beam) 條件為主。在圖 18(a) 中，當 $g = 0002$ 為繞射條件時，可以清楚地看到高密度的貫穿式差排聚集在 InN 的底層；同時由圖 18(b)，當 $g = \bar{1}100$ 為繞射條件時，可以觀察到平面缺陷，如基面疊差 (basal stacking fault, BSFs) 或差排環 (dislocation loops) 等，當經過估算後，其密度約為 $1.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ ，相比於 RF-MBE 所沉積高品質之 GaN 其平面缺陷密度約為 10^5 cm^{-1} ，此條件下所成長之 InN 薄膜中的基面疊差約高 GaN 一個級量，而產生如此高密度的基面疊差的原因，推測是來自於空孔的團簇與高濃度的雜質所引起的。

圖 19 是以 $[11\bar{2}0]_{\text{InN and GaN}}$ 為晶軸方向觀察之高解析橫截面 TEM 晶格條紋 (lattice fringes) 影像與快速傅立葉轉換圖 (fast-Fourier-transform pattern, FFT)。由 $(0002)_{\text{InN}}$ 的晶格條紋圖中，可以清楚地看到 In 原子是隨著...ABABAB...之堆疊順序做有序推疊與排列，此堆疊方式符合六方晶系堆疊方式，因此可確認其為六方晶系纖鋅礦結構；由 $(0002)_{\text{InN}}$ 的晶格條紋圖中，可得知 c 軸晶格參數約為 0.57 nm，此值相當接近 InN 塊材之晶格參數⁽³⁴⁾，且與 XRD 量測並計算後所得到的值相似。此外，進一步從晶格條紋影像中觀察可以發現，當...ABABABAB...堆疊順序轉換成...ABABCBCB...的堆疊順序，是由於轉換成基面疊差的緣故，並且透過疊差型態的分析後，可確

認其為 I_1 type。而反傅立葉快速轉換影像顯示，錯配差排均勻地分布在 InN 與 GaN 的界面，而這些錯配差排彼此之間的平均距離約為 2.76 nm，與理論計算 InN 成長在 GaN 上之間晶格錯配 (~9%) 的結果相同。此一結果說明，錯配差排的產生有效地容納大部分因晶格錯配所引起的錯配應變 (misfit strain)。

四、結論

本文利用 RF-CBE 以四種不同條件之 V/III 流量比成長 InN 薄膜於 GaN 緩衝層上，並針對四種不同條件所成長的 InN 薄膜針對表面形貌、結構特性、光電特性分別進行分析與探討。

InN 表面粗糙度會隨著 TMIn 流量增加而增加，且沉積速率範圍約為 1.4 至 1.9 $\mu\text{m/h}$ 。XRD 與 TEM 結果顯示，當 V/III 流量比於 1.81 時，InN 有最佳的結晶品質，並且可知 InN 是單晶晶體與 GaN 之間是磊晶關係，其 in-plane 磊晶關係為： $(0002)_{\text{InN}} // (0002)_{\text{GaN}}$ 、 $(\bar{1}100)_{\text{InN}} // (\bar{1}100)_{\text{GaN}}$ 與 $(11\bar{2}0)_{\text{InN}} // (11\bar{2}0)_{\text{GaN}}$ ，平均總差排密度為 $4.26 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ 。

綜合以上得知，以 RF-CBE 所沉積之 InN 結晶品質與 RF-MBE 方法所沉積之 InN 結晶品質相似，甚至在沉積速率上優於 RF-MBE，但相對 C、H 污染相對嚴重許多，使得薄膜載子濃度高於 RF-MBE 所成長之 InN，因此未來需透過製程調整，以減少雜質元素濃度，如：沉積前腔體預抽與熱清潔時間增加、加大晶片與氣體環之間距離與降低 TMIn 與 N_2 流量等。

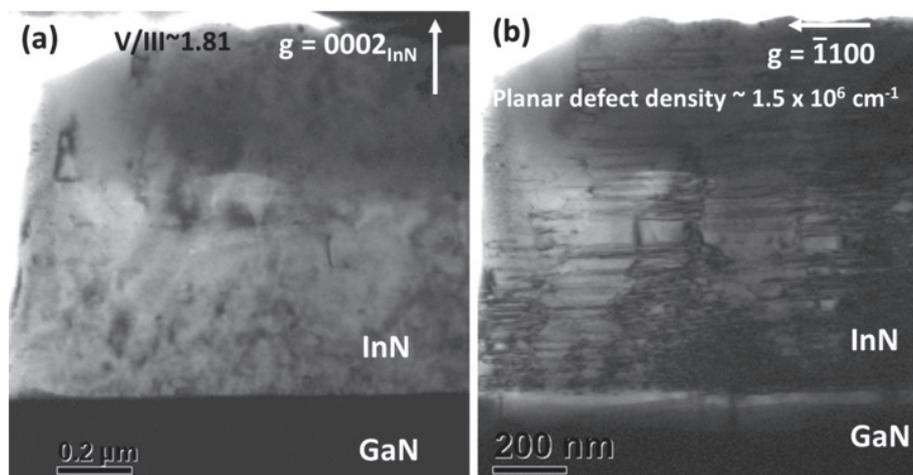


圖 18. V/III 流量比 1.81 所沉積之 InN 橫截面明視野 TEM 影像圖，並以 (a) $g = 0002$ 與 (b) $g = \bar{1}100$ 雙電子束繞射 (two-beam) 為拍攝條件。

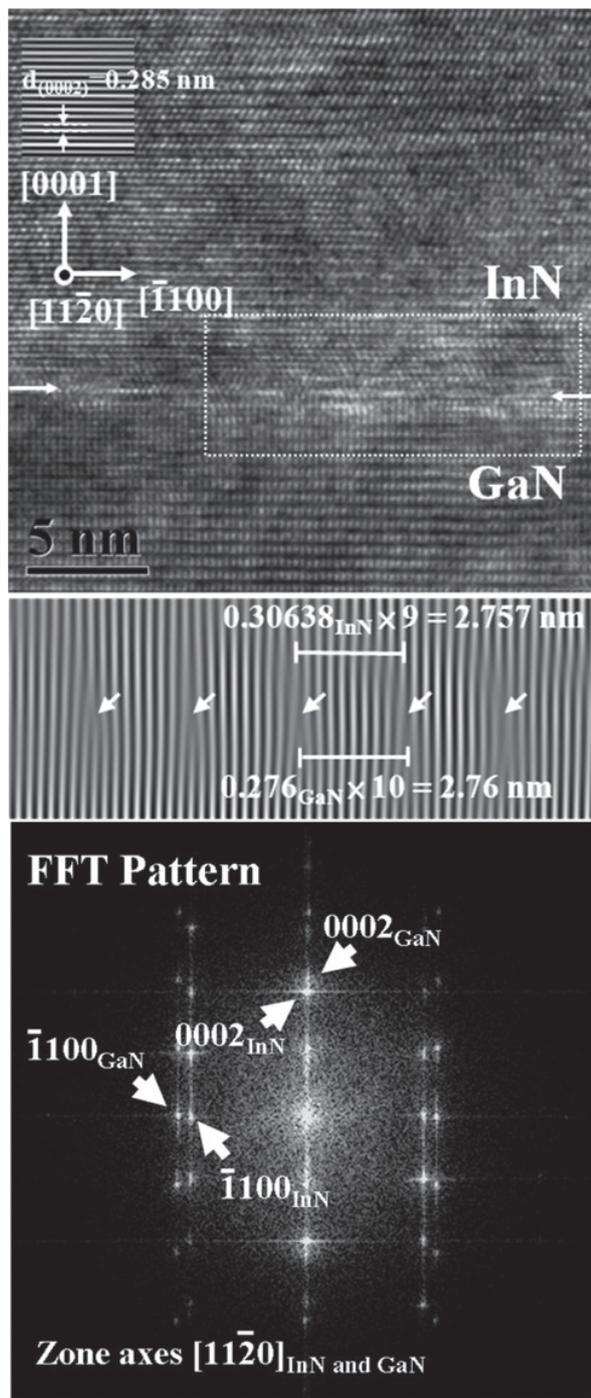


圖 19. (a) V/III 流量比 1.81 所沉積之 InN/GaN 界面高解析 TEM 影像圖，(b) 為圖 (a) 之快速傅立葉轉換，(c) 選用圖 (a) 白色虛線矩形框中之 InN 與 GaN 的 $\pm(1\bar{1}00)$ 之 FFT 訊號點所形成的 IFFT 影像，顯示錯配差排平均間距約為 2.76 nm。

參考文獻

1. A. Cho and J. Arthur, *Prog. Solid-State Chem.*, **10**, 157 (1975).
2. H. Lu, W. J. Schaff, J. Hwang, H. Wu, G. Koley, and L. F. Eastman, *Appl. Phys. Lett.*, **79**, 1489 (2001).
3. J. Ohta, H. Fujioka, T. Honke, and M. Oshima, *Thin Solid Films*, **457**, 109 (2004).
4. P. Singh, P. Ruterana, M. Morales, F. Goubilleau, M. Wojdak, J.F. Carlin, M. Ilegems, and D. Chateigner, *Superlattices Microstruct.*, **36**, 537 (2004).
5. S. Nobuo and I. Yasuhiro, *Journal of the Vacuum Society of Japan*, **43**, 296 (2000).
6. S. Y. Kuo, W. C. Chen, C. N. Hsiao, F.-I. Lai, and *J. Cryst. Growth*, **310**, 4963 (2008).
7. H. Lu, W. J. Schaff and L. F. Eastman., *J. Appl. Phys.*, **96**, 3577 (2004).
8. John T. Torvik, C. h. Qiu, M. Leksono, and J. I. Pankove, *Appl. Phys. Lett.*, **72**, 945 (1998).
9. W. J. Tropsf and M. E. Thomas, in *Handbook of Optical Constants of Solids III*, edited by E. D. Palik, Academic, New York, 653 (1998).
10. H. K. Cho, D. C. Kim, H. J. Lee, H. S. Cheong, and C. H. Hong, *Superlattices Microstruct.*, **36** 385 (2004).
11. T. Ive, O. Brandt, M. Ramsteiner, M. Giehler, H. Kostial, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.*, **84**, 1671 (2004).
12. P. Brückner, M. Feneberg, K. Thonke, F. Habel, and F. Scholz, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, 892 (c) 2006 Materials Research Society
13. A. Knubel, R. Aidam, V. Cimalla, L. Kirste, M. Baeumler, C. C. Leancu, V. Lebedev, J. Wallauer, M. Walther, and J. Wagner, *Phys. Status Solidi C*, **6**, 1480 (2009).
14. C. J. Lu, X. F. Duan, Hai Lu, and W. J. Schaff, *J. Mater. Res.*, **21**, 1693 (2006).
15. Y. Nanishi, Y. Saito, and T. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, 2549 (2003).
16. E. Dimakis, G. Konstantinidis, K. Tsagaraki, A. Adikimenakis, E. Iliopoulos, and A. Georgakilas, *Superlattices Microstruct.*, **36**, 497 (2004).
17. N. Khan, A. Sedhain, J. Li, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 172101 (2008).
18. P. Singh, P. Ruterana, M. Morales, F. Goubilleau, M. Wojdak, J. F. Carlin, M. Ilegms, and D. Chateigner, *Superlattices Microstruct.*, **36**, 537 (2004).
19. D. P. Norman, L. W. Tu, S. Y. Chiang, P. H. Tseng, and P. Wadekar, *J. Appl. Phys.*, **109**, 063517 (2011).
20. H. Wang, D. S. Jiang, J. J. Zhu, D. G. Zhao, Z. S. Liu, Y. T. Wang, S. M. Zhang, and H. Yang, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **42**, 145410 (2009).
21. R. A. Oliver, C. Nöorenberg, M. G. Martin, M. R. Castell, L. Allers, and G. A. D. Briggs, *Surf. Sci.*, 532-535, 806 (2003).
22. A. Jain and J. M. Redwing, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, **798**, Y12.8.1 (2004).

23. B. Łuczniak, B. Pastuszka, I. Grzegory, M. Boćkowski, G. Kamler, J. Domagała, G. Nowak, P. Prystawko, S. Krukowski, and S. Porowski, *Phys. Status Solidi C*, **3**, 1453 (2006).
24. C. L. Wu, C. H. Shen, H. Y. Chen, S. J. Tsai, H. W. Lin, H. M. Lee, S. Gwo, T. F. Chuang, H. S. Chang, and T. M. Hsu, *J. Cryst. Growth*, **288**, 247 (2006).
25. Ö. Tuna, H. Behmenburg, C. Giesen, H. Kalisch, R. H. Jansen, G. P. Yablonskii, and M. Heuken, *Phys. Status Solidi C*, **8**, 2044 (2011).
26. X. Wang, S. B. Che, Y. Ishitani, and A. Yoshikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, L730 (2006).
27. B. Heying, X. H. Wu, S. Keller, Y. Li, D. Kopolnek, B. P. Keller, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 643 (1996).
28. V. Srikant, J. S. Speck, and D. R. Clarke, *J. Appl. Phys.*, **82**, 286 (1997).
29. T. Metzger, R. Hopler, E. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stommer, M. Schuster, H. Gobel, S. Christiansen, M. Albrecht, and H. P. Strunk, *Philos. Mag. A*, **77**, 1013 (1998).
30. H. Heinke, V. Kirchner, S. Einfeldt, and D. Hommel, *Phys. Status Solidi A*, **176**, 391 (1999).
31. P. Rinke, M. Winkelkemper, A. Qteish, D. Bimberg, J. Neugebauer, and M. Scheffler, *Phys. Rev. B*, **77**, 075202 (2008).
32. F. Reurings, F. Tuomisto, C. S. Gallinat, G. Koblmuller, and J. S. Speck, *Appl. Phys. Lett.*, **97**, 251907 (2010).
33. X. M. Duan and C. Stampfl, *Phys. Rev. B*, **79**, 035207 (2009).
34. T. L. Tansley and C. P. Foley, *J. Appl. Phys.*, **59**, 3241 (1986).



陳維鈞先生為國立交通大學材料科學與工程博士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心副研究員。

Wei-Chun Chen received his Ph.D. in materials science and engineering from National Chiao Tung University. He is currently an associate researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



田志盛先生為國立交通大學材料科學與工程博士，現任台灣積體電路製造股份有限公司主任工程師。

Jr-Sheng Tian received his Ph.D. in materials science and engineering from National Chiao Tung University. He is currently an engineer at Taiwan Semiconductor Manufacturing Company, Ltd.



吳岳翰先生為國立交通大學材料科學與工程博士，現任聯華電子股份有限公司主任工程師。

Yue-Han Wu received his Ph.D. in materials science and engineering from National Chiao Tung University. He is currently an engineer at United Microelectronics Corporation, Ltd.



郭守義先生為國立交通大學光電工程博士，現任長庚大學電子工程系副教授。

Shou-Yi Kuo received his Ph.D. in electro-optical engineering from National Chiao Tung University. He is currently an associate professor in the Department of Electronic Engineering at Chang Gung University.



賴芳儀小姐為國立交通大學光電工程博士，現任元智大學光電工程系副教授。

Fang-I Lai received his Ph.D. in electro-optical engineering from National Chiao Tung University. She is currently an associate professor in the Department of Photonics Engineering at Yuan-Ze University.



蕭健男先生為國立台灣大學材料科學博士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心研究員。

Chien-Nan Hsiao received his Ph.D. in material science at National Taiwan University. He is currently a researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



張立先生為英國牛津大學材料科學博士，現任國立交通大學材料科學與工程系教授。

Li Chang received his Ph.D. in materials science and engineering from Oxford University, UK. He is currently a professor in the Department of Materials Science and Engineering at National Chiao Tung University.