

文章编号: 1000-7032(2022)07-1095-07

## 砷化镓热氧化法制备 $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 体块薄膜

刁肇悌, 陈 威, 董 鑫\*, 焦 腾, 李政达

(吉林大学电子科学与工程学院 集成光电子学国家重点联合实验室, 吉林 长春 130012)

**摘要:** 通过对 p 型砷化镓(p-GaAs)单晶衬底高温热氧化方法制备了  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  体块薄膜。探讨了高温氧化过程中  $\text{O}_2$  流量对  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  体块薄膜形貌的影响。通过对体块薄膜的晶体质量、结构特性、光致发光特性的测试分析, 可以发现在高温高氧环境下 GaAs 转变为  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  体块薄膜的过程与 Langmuir 蒸发相关。当  $\text{O}_2$  流量较低时 (0.2 L/min), GaAs 衬底处于缺氧状态, 所制备样品呈现纳米线状形貌; 而当通入  $\text{O}_2$  流量超过 0.4 L/min 时, GaAs 衬底被完全氧化为具有纳米岛状结构的  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  体块薄膜, 且晶体质量得到显著提高。本文提出的砷化镓单晶热氧化工艺可以高效、低成本地获得较高结晶质量的纳米结构  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  体块薄膜, 对于  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  材料的应用具有极大的丰富作用。

**关键词:** 热氧化; 纳米岛状体块薄膜;  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ; 氧气流量

中图分类号: O482.31 文献标识码: A DOI: 10.37188/CJL.20210399

## $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ Bulk Films Prepared by Thermal Oxidation of GaAs

DIAO Zhao-ti, CHEN Wei, DONG Xin\*, JIAO Teng, LI Zheng-da

(State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China)

\* Corresponding Author, E-mail: dongx@jlu.edu.cn

**Abstract:** In this paper,  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  bulk films were prepared by high-temperature thermal oxidation of p-type gallium arsenide (p-GaAs) single crystal substrate. The effect of  $\text{O}_2$  flow rate on the morphology of  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  bulk films was also discussed. By testing and analysing the crystal quality, structural characteristics and photoluminescence characteristics of the bulk films, we found that the transformation of GaAs into  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  bulk films was related to Langmuir evaporation. When the  $\text{O}_2$  flow rate was low (0.2 L/min), GaAs substrate was in anoxic state, and the prepared samples showed nanolinear morphology. However, when the flow rate of  $\text{O}_2$  exceeds 0.4 L/min, GaAs substrate is completely oxidized into  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  bulk film with nanometer island structure, and the crystal quality is significantly improved. The thermal oxidation process based on the GaAs single crystal proposed in this article can obtain nano-structured  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  bulk films of high crystal quality with high efficiency and low cost. This process enriches the application of  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  materials greatly.

**Key words:** thermal oxidation; nano island bulk film;  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ; oxygen flow rate

### 1 引 言

作为第三代半导体材料, 氧化镓( $\text{Ga}_2\text{O}_3$ )近年

来得到了业界广泛的关注。与传统半导体相比,  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  具有诸多优势。 $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  禁带宽度很大, 为 4.9 eV<sup>[1-3]</sup>,  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  的击穿场强理论值为 8 MV/cm<sup>[4]</sup>,

收稿日期: 2021-12-20; 修订日期: 2022-01-05

基金项目: 国家自然科学基金(61774072)资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(61774072)

巴利伽优值 ( $\epsilon\mu E_b^3$ ) 为 3 444<sup>[5]</sup>。以上特点使得 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 在高压功率器件的制备方面极具优势。另外, Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米结构薄膜具有更大的比表面积与亚尺度效应, 在光电和气体传感方面也表现出明显的优势<sup>[6]</sup>。目前纳米结构  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜制备方法较多, 常见的方法主要有水热法<sup>[7]</sup>、金属有机化学气相沉积 (MOCVD)<sup>[8-9]</sup>、热氧化法<sup>[10-12]</sup>、MBE<sup>[13]</sup>法和 CVD<sup>[14]</sup>法等。目前的报道中, 纳米线结构的  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 制备工艺复杂、成本高, 且未完全氧化的  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜与衬底材料间仍存在较大的晶格失配, 易与衬底产生分层, 晶体质量差<sup>[15-17]</sup>。与之相比, 热氧化法制备  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜工艺简单、成本较低, 且完全氧化的  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜具有纳米岛状形貌, 具有更高的晶体质量。本实验以 p-GaAs 单晶为衬底, 利用高温热氧化工艺将衬底完全氧化为  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜, 并总结了  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜的生长机理, 探讨了氧化过程中 O<sub>2</sub> 流量等对  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的晶体结构等特性的影响。该方法为制备  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 材料提供了一种新思路, 并为制备 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基器件提供了更多选择。

## 2 实 验

### 2.1 样品制备

本文以 (100) 晶向的 p 型 GaAs 晶片为衬底, 采用高温热氧化法制备  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜。由于 GaAs 是一种在高温下不稳定的半导体材料, 根据 Langmuir 蒸发效应, 当温度超过 600 °C 时, GaAs 晶格开始分解后, As 原子会从衬底表面优先析出<sup>[18]</sup>。同时, O 原子会根据浓度梯度取代 As 原子, 在高温下迁移到稳定的位置, 与 Ga 原子结合成  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 分子。

实验设备采用水平管式快速退火炉 (KJ-MTI, OTF 1200X-4-RTP)。采用高纯 O<sub>2</sub> (5N) 作为氧源, 高纯 N<sub>2</sub> (5N) 作为载气。实验操作过程如下: (1) 依次用丙酮、乙醇、去离子水清洁 GaAs 衬底 (清洗时间 5 min), 并用 N<sub>2</sub> 吹干, 去除衬底表面杂质; (2) 将 GaAs 衬底置于水平管式退火炉中, 用 N<sub>2</sub> 对反应腔进行洗气, 重复三次, 将腔内剩余氧气排出; (3) 分别在 0.2, 0.4, 0.6, 0.8 L/min 的 O<sub>2</sub> 流速下, 将 GaAs 衬底加热到 900 °C, 然后高温氧化 30 min。样品分别命名为 a、b、c、d。

### 2.2 样品表征

我们对制得的  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜进行了测试与表征。采用扫描电子显微镜 (SEM, JOEL, JSM-

7610) 研究样品表面形貌; 使用光学显微镜 (BX53M, OLMPUS) 观测样品截面形貌; 利用共聚焦显微拉曼光谱仪 (Raman, LabRAM HR Evolution, Horiba) 测定样品的晶体结构; 使用 X 射线衍射仪 (XRD, SmartLabSE, Rigaku) 测定  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的晶体质量; 通过 PL 光谱仪 (Horiba iHR550) 分析样品的光学特性。

## 3 结果与讨论

### 3.1 表面形貌与生长机理

为了分析样品的表面微观形貌, 我们对样品 a~d 进行扫描电子显微镜测试, 测试结果如图 1 所示。可以发现, 当 O<sub>2</sub> 流速为 0.2 L/min 时, 样品表面存在较多的 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米线 (图 1(a)), 纳米线直径约为 75 nm, 长度范围为 0.1 ~ 1.4  $\mu$ m。当 O<sub>2</sub> 流速超过 0.4 L/min 时, Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 主要以纳米岛状形式生长, 极少部分以较短的纳米线或纳米颗粒形式生长。 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米线的生长机理为气-液-固 (VLS) 模式<sup>[19]</sup>。在低氧气氛下, 反应速率较慢, 样品表面存在大量的 Ga 液滴, 与 O 原子缓慢结合, 有助于形成一维纳米材料。在高氧气氛下, 大量 O 原子迅速与 Ga 液滴反应, 生成 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 体块薄膜, 剩余极少数 Ga 液滴与 O 原子结合, 形成 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 纳米线或纳米颗粒。当 O<sub>2</sub> 流速升高至 0.8 L/min 时, 岛状结构增多, 高度升高, 表面缺陷增多。这表明在高氧气浓度下, O 原子与 Ga 原子反应剧烈, 造成表面粗糙度增大。

在 0.8 L/min 的氧气流速、900 °C 的温度下, 将 GaAs 衬底分别氧化 5, 10, 20, 30 min, 使用光学显微镜对 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 断面进行表征, 探讨了 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 厚度随氧化时间的变化。图 2(a) ~ (e) 为不同氧化时间的样品断面显微照片, 图 2(f) 为样品氧化过程示意图。从图 2(a) ~ (b) 中可以看出, 当氧化时间较短时, 样品断面光滑, 明亮部分为 GaAs, 图 2(b) 中较暗部分为 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。从图 2(c) ~ (e) 中可以看出, 当氧化时间较长时, 样品断面粗糙, 其中明亮部分为 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 较暗部分为 GaAs。测试结果表明, 热氧化反应呈现渗透与扩散的过程, GaAs 正面首先开始氧化, 随着氧化时间的延长, 与氧气接触较少的背面也逐渐开始与 O<sub>2</sub> 反应, 生成 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>; 氧化时间达到 30 min 时, GaAs 完全被氧化为 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 厚度为 425  $\mu$ m。

根据 Langmuir 理论, 当氧化温度高于 600 °C 时, As 会优先蒸发, 而在 GaAs 表面留下 Ga<sup>[20]</sup>。如

图 2(f)插图所示,在  $900\text{ }^\circ\text{C}$ 、压强  $133\text{ Pa}$  ( $1\text{ Torr}$ )下低氧退火  $30\text{ min}$  的样品表面产生了大量的 Ga 液滴。验证热氧化过程与 Langmuir 蒸发有关。另

外,从样品表面的痕迹可以得出, GaAs 表面连续分解生成的 Ga 原子是聚集的,并表现出特定的趋向性。

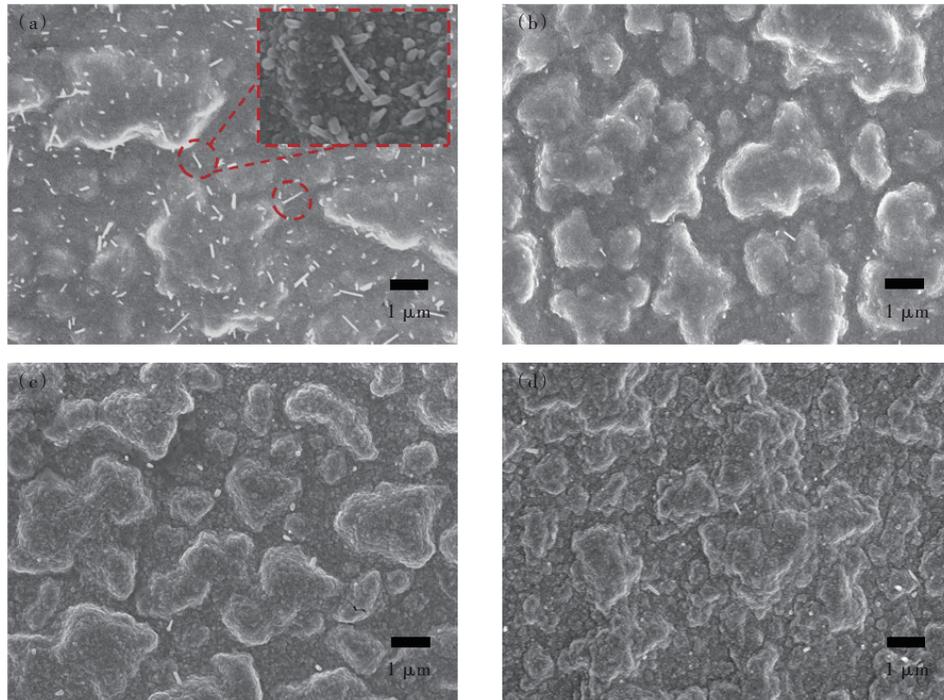


图 1 (a)~(d) $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 样品的 SEM 照片

Fig.1 (a)~(d)SEM images of  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  sample

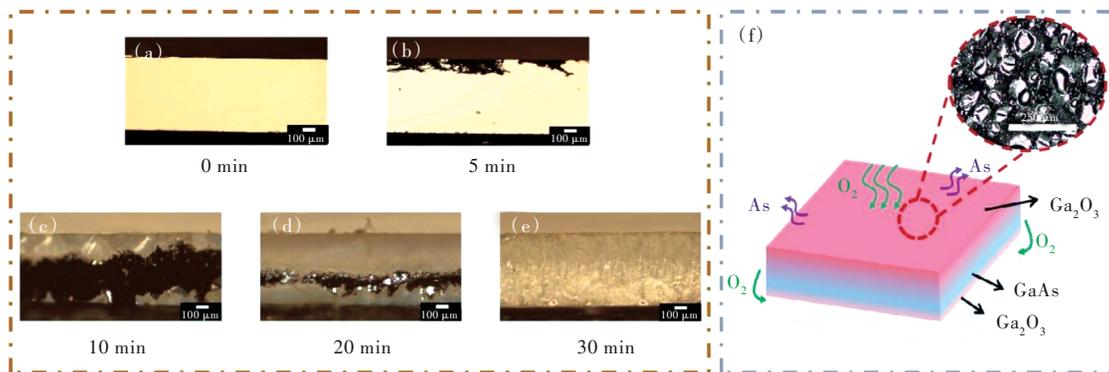


图 2 (a)~(e)不同氧化时间的样品断面显微照片;(f)样品氧化过程示意图。

Fig.2 (a)~(e)Micrographs of sample sections at different oxidation time. (f)Schematic diagram of sample oxidation process.

### 3.2 X 射线衍射结果

图 3 为样品 a~d 的 X 射线衍射图谱。从图中可以看出,当  $\text{O}_2$  流速为  $0.2\text{ L/min}$  时,样品 a 存在 4 个衍射峰。其中,位于  $29.6^\circ$ 、 $42.6^\circ$ 、 $45.3^\circ$  的衍射峰分别对应  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  的  $(400)$ 、 $(311)$  以及  $(\bar{3}12)$  晶面(JCPDS, No. 76-0573)。此外,样品 a 存在位于  $65.6^\circ$  的属于 GaAs 的衍射峰,说明在低氧气氛下, O 原子浓度较低、反应速率较慢,短时间内 O 原子无法取代全部的 As 原子,存在一定的 GaAs 残留。

而样品 b~d 只存在  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  对应的 3 个衍射峰,说明当  $\text{O}_2$  流速大于  $0.4\text{ L/min}$  时, GaAs 被全部氧化为  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ;另外,晶面取向少说明热氧化法将含镓衬底直接转化为  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ , 结晶质量高。当  $\text{O}_2$  流速由  $0.4\text{ L/min}$  提高到  $0.6\text{ L/min}$  时,  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  各晶面的衍射峰强度明显升高,晶体质量显著增强。这表明在  $0.4\text{ L/min}$  的  $\text{O}_2$  流速下, GaAs 虽然被全部转化为  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ , 但由于  $\text{O}_2$  浓度较低,结晶质量较差。当  $\text{O}_2$  流速提高到  $0.6\text{ L/min}$  时,各晶面生长

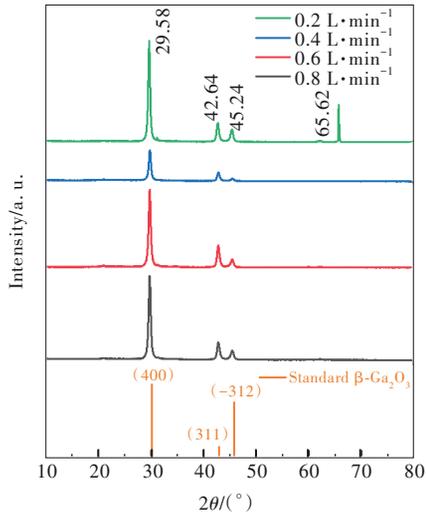


图3  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  薄膜的XRD测试图

Fig.3 XRD test image of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  films

速度加快,使得一些较弱的衍射峰强度迅速增强。当 $\text{O}_2$ 流速为0.8 L/min时,(400)晶面的衍射峰增强,而(311)以及 $(\bar{3}12)$ 晶面的衍射峰强度降低。 $\text{GaAs}$ 在热氧化的过程中,As原子被O原子取代形成 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ,因此 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 应该与 $\text{GaAs}$ 有着最小的晶格失配。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 在(400)晶向上的氧原子密度很高,排列呈近似的菱形或方形,这种排列与 $\text{GaAs}$ 中的Ga原子排列相对应<sup>[20]</sup>。在氧化过程中,O原子与 $\text{GaAs}$ 表面的Ga立方体成键,形成 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 。因此,在(100)  $\text{GaAs}$ 上生长的 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 的优选取向合理为(400)。此时(400)晶面的择优生长一定程度上削弱了其他晶面的生长。

### 3.3 拉曼光谱

为了进一步分析 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 纳米体块薄膜的结构特性,将样品a~d进行拉曼光谱测试,结果如图4所示。从图中可以看出,样品a~d的拉曼振动峰全部由 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 产生。将实验中得到的拉曼模频率与标准的 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 、标准的 $\text{GaAs}$ 拉曼模相比较,结果如表1、2所示。位于113.1, 144.2, 169.7, 200.5  $\text{cm}^{-1}$ 位置处的振动峰分别对应低频模 $B_g^{(1)}$ 、 $B_g^{(2)}$ 、 $A_g^{(2)}$ 、 $A_g^{(3)}$ ,位于321.1, 346.2, 417.2, 477.2  $\text{cm}^{-1}$ 位置处的振动峰对应中频模 $A_g^{(4)}$ 、 $A_g^{(5)}$ 、 $A_g^{(6)}$ 、 $A_g^{(7)}$ ,位于632.2, 651.2, 658.0, 767.5  $\text{cm}^{-1}$ 位置处的振动峰对应高频模 $A_g^{(8)}$ 、 $B_g^{(5)}$ 、 $A_g^{(9)}$ 、 $A_g^{(10)}$ <sup>[21-23]</sup>。氧气流速为0.2 L/min时,样品a未见 $\text{GaAs}$ 特征峰,这是由于测试取得信号位于光斑聚焦点所在薄层微区,可以观测样品同一层面内不同微区的拉曼光谱信号<sup>[24]</sup>;另外,样品a纳米结构表面强散射激发的表面增强拉曼散射效应也具有

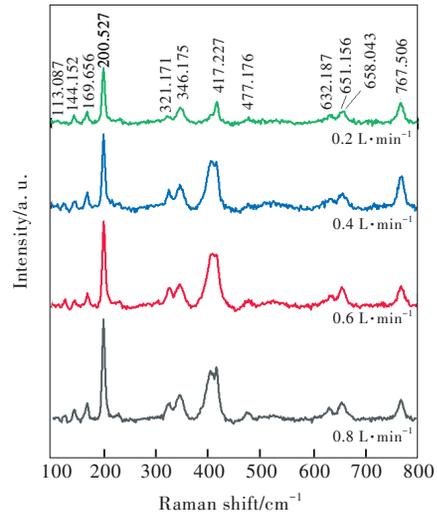


图4  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  薄膜的拉曼位移测试图

Fig.4 Raman shift test image of  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  films

表1 标准的 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 拉曼模频率与实验中得到的拉曼模频率比较

Tab.1 Comparison of the standard  $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$  Raman mode frequencies with those obtained from experiment

Phonon mode	Experiment/ $\text{cm}^{-1}$			Theory/ $\text{cm}^{-1}$	
	This work	Ref. 21	Ref. 22	Ref. 21	Ref. 22
$A_g^{(1)}$	n. o.	111.0	110.2	113.5	104
$B_g^{(1)}$	113.1	114.8	113.6	118.6	113
$B_g^{(2)}$	144.2	144.8	144.7	145.6	149
$A_g^{(2)}$	169.7	169.9	169.2	176.4	165
$A_g^{(3)}$	200.5	200.2	200.4	199.1	205
$A_g^{(4)}$	321.1	320.0	318.6	318.5	317
$A_g^{(5)}$	346.2	346.6	346.4	342.5	346
$B_g^{(3)}$	n. o.	353.2	n. o.	359.2	356
$A_g^{(6)}$	417.2	416.2	415.7	432.0	418
$A_g^{(7)}$	477.2	474.9	n. o.	472.8	467
$B_g^{(4)}$	n. o.	474.9	473.5	486.1	474
$A_g^{(8)}$	632.2	630.0	628.7	624.4	600
$B_g^{(5)}$	651.2	652.3	652.5	653.9	626
$A_g^{(9)}$	658.0	658.3	n. o.	655.8	637
$A_g^{(10)}$	767.5	766.7	763.9	767.0	732

表2 标准的 $\text{GaAs}$ 拉曼模频率

Tab.2 Standard  $\text{GaAs}$  Raman mode frequencies

Phonon mode	Theory/ $\text{cm}^{-1}$ <sup>[23]</sup>
TO	268
LO	291

放大样品表面的拉曼信号的现象<sup>[25]</sup>。当 $\text{O}_2$ 流速由0.4 L/min提高到0.8 L/min时, $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 各拉曼振动峰强度增大,特别是低频模200.5  $\text{cm}^{-1}$ 位置处的振动峰强度明显增强,与四面体-八面体链的释

放和平移程度有关<sup>[26]</sup>。表明O<sub>2</sub>浓度的增加改善了 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜的排列结构。同时,随着O<sub>2</sub>浓度的增加,样品的拉曼振动峰峰位偏移较小,与 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>标准拉曼模频率相吻合,表明样品的应变较小,晶体质量高。拉曼测试结果进一步验证了所制备的样品为 $\beta$ 晶相氧化镓体块薄膜。

### 3.4 光致发光性能

图5为在波长为235 nm的激光激发下样品的的光致发光谱。从图中可以看出,样品a~d在紫外光波段和蓝光波段均有明显的发光峰。位于357 nm处的紫外发光峰由 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>自陷激子复合产生<sup>[27]</sup>,位于410 nm处的蓝光发光峰由 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>内施主-受主对复合产生<sup>[28]</sup>。O<sub>2</sub>流速为0.2 L/min时,样品的发光峰较弱,且蓝光发光强度高于紫外发光,表明晶体质量差,具有更多的蓝光发射相关的缺陷能级。当O<sub>2</sub>流速从0.2 L/min提高到0.4 L/min时,光致发光峰强度增大,说明作为陷阱中心的O空位浓度降低,缺陷导致的非辐射复合低,晶体质量高。另外, $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的生长模式从纳米线生长转变为纳米岛生长,界面态密度降低,抑制了光生载流子的散射,发光峰强度增强,即 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>纳米岛薄膜相对于 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>纳米线薄膜具有更低的光生载流子的散射与陷阱中心浓度。当O<sub>2</sub>流速从0.4 L/min提高到0.8 L/min时,紫外发光峰强度没有

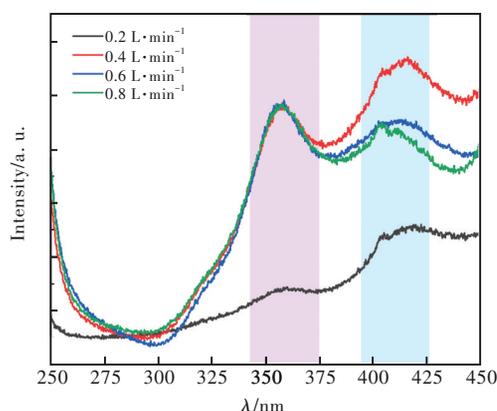


图5  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜的PL测试图  
Fig.5 PL test image of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films

明显变化,蓝光发光峰强度逐渐降低,此时外界环境中氧分压较高,抑制了薄膜中O原子的溢出<sup>[29]</sup>,降低了 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>中作为施主的氧空位浓度,施主-受主对复合减少,从而抑制了蓝光发射。O<sub>2</sub>流速为0.8 L/min时,样品的蓝光发射峰蓝移可能与过量氧气引起的新缺陷态的辐射复合有关。

## 4 结 论

我们利用p型GaAs单晶衬底的热氧化法制备了纳米岛状的 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜。其反应过程与Langmuir蒸发有关:当温度超过600 °C时,As原子从衬底表面优先析出,O原子顺浓度梯度取代As原子,在高温下迁移到稳定的位置,与Ga原子结合成 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>。探讨了O<sub>2</sub>流速对 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜晶体质量的影响。实验发现,当O<sub>2</sub>流速为0.2 L/min时,GaAs不能被完全氧化,所制备的 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>表面呈现为纳米线状结构,薄膜质量较差。当O<sub>2</sub>流速超过0.4 L/min时,GaAs被完全氧化为纳米岛状的 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜,薄膜质量得到改善。Raman测试发现,随着O<sub>2</sub>浓度增加,出现了新的振动峰,且振动峰强度逐渐增强, $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜的排列结构得到改善。通过XRD测试发现,所制备的 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>是以(400)晶面优先取向的多晶薄膜,随着O<sub>2</sub>浓度增加,各晶面衍射峰强度增大。Raman和XRD测试结果进一步验证了所制备的样品为 $\beta$ 晶相氧化镓体块薄膜。在235 nm波长激光激发下,在357 nm和410 nm处出现光致发光峰,且410 nm处的蓝光发光峰强度随O<sub>2</sub>流速增大而降低。本文提出的热氧化法制备 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>可以高效、低成本地获得较高结晶质量的 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>体块薄膜,为制备纳米结构 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>提供了一种新思路。

本文专家审稿意见及作者回复内容的下载地址:  
<http://cjl.lightpublishing.cn/thesisDetails#10.37188/CJL.20210399>.

## 参 考 文 献:

- [ 1 ] KIM S,ZHANG Y W,YUAN C,*et al.* Thermal management of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> current aperture vertical electron transistors [J]. *IEEE Trans. Compon.,Packaging Manuf. Technol.*, 2021,11(8):1171-1176.
- [ 2 ] JESENOVEC J,WEBER M H,PANSEGRAU C,*et al.* Gallium vacancy formation in oxygen annealed  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. *J. Appl. Phys.*, 2021,129(24):245701-1-9.
- [ 3 ] COOKE J,SENSALE-RODRIGUEZ B,GHADBEIGI L. Methods for synthesizing  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films beyond epitaxy [J].

- J. Phys. Photonics*, 2021, 3(3):032005-1-16.
- [ 4 ] WANG Y H, LI H R, CAO J, *et al.* Ultrahigh gain solar blind avalanche photodetector using an amorphous Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-based heterojunction [J]. *ACS Nano*, 2021, 15(10):16654-16663.
- [ 5 ] 郭道友, 李培刚, 陈政委, 等. 超宽禁带半导体 β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及深紫外透明电极、日盲探测器的研究进展 [J]. *物理学报*, 2019, 68(7):078501-1-36.
- GUO D Y, LI P G, CHEN Z W, *et al.* Ultra-wide bandgap semiconductor of β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and its research progress of deep ultraviolet transparent electrode and solar-blind photodetector [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2019, 68(7):078501-1-36. (in Chinese)
- [ 6 ] XING Y H, ZHANG Y, HAN J, *et al.* Research of nanopore structure of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film in MOCVD for improving the performance of UV photoresponse [J]. *Nanotechnology*, 2021, 32(9):095301-1-8.
- [ 7 ] ZHANG J H, JIAO S J, WANG D B, *et al.* Nano tree-like branched structure with α-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> covered by γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> for highly efficient detection of solar-blind ultraviolet light using self-powered photoelectrochemical method [J]. *Appl. Surf. Sci.*, 2021, 541:148380-1-8.
- [ 8 ] DE MELO R P JR, OLIVEIRA N T C, DOMINGUEZ C T, *et al.* Urchin-like artificial gallium oxide nanowires grown by a novel MOCVD/CVD-based route for random laser application [J]. *J. Appl. Phys.*, 2016, 119(16):163107-1-9.
- [ 9 ] LI J S, ZHANG X D, CAO X, *et al.* Self-catalyzed metal organic chemical vapor deposition growth of vertical β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowire arrays [J]. *Nanotechnology*, 2020, 31(2):02LT01-1-6.
- [ 10 ] ALHALAILI B, VIDU R, MAO H, *et al.* Comparative study of growth morphologies of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires on different substrates [J]. *Nanomaterials*, 2020, 10(10):1920-1-11.
- [ 11 ] LEONTIE L, SPRINCEAN V, UNTILA D, *et al.* Synthesis and optical properties of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires grown on GaS substrate [J]. *Thin Solid Films*, 2019, 689:137502-1-6.
- [ 12 ] PATIL-CHAUDHARI D, OMBABA M, OH J Y, *et al.* Solar blind photodetectors enabled by nanotextured β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown via oxidation of GaAs substrates [J]. *IEEE Photonics J.*, 2017, 9(2):2300207-1-10.
- [ 13 ] HE T, ZHAO Y K, ZHANG X D, *et al.* Solar-blind ultraviolet photodetector based on graphene/vertical Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowire array heterojunction [J]. *Nanophotonics*, 2018, 7(9):1557-1562.
- [ 14 ] LI Y B, TOKIZONO T, LIAO M Y, *et al.* Efficient assembly of bridged β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires for solar-blind photodetection [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2010, 20(22):3972-3978.
- [ 15 ] FILIPPO E, SICILIANO M, GENGA A, *et al.* Single crystalline β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires synthesized by thermal oxidation of GaSe layer [J]. *Mater. Res. Bull.*, 2013, 48(5):1741-1744.
- [ 16 ] ALHALAILI B, MAO H, DRYDEN D M, *et al.* Influence of silver as a catalyst on the growth of β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires on GaAs [J]. *Materials*, 2020, 13(23):5377-1-14.
- [ 17 ] KORBUTOWICZ R, STAFINIĄK A, SERAFIŃCZUK J. Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanowires preparation at atmospheric pressure [J]. *Mater. Sci. -Pol.*, 2017, 35(2):412-420.
- [ 18 ] ZHOU Z Y, ZHENG C X, TANG W X, *et al.* Congruent evaporation temperature of GaAs(001) controlled by As flux [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2010, 97(12):121912-1-3.
- [ 19 ] DING Y, GAO P X, WANG Z L. Catalyst-nanostructure interfacial lattice mismatch in determining the shape of VLS grown nanowires and nanobelts: a case of Sn/ZnO [J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2004, 126(7):2066-2072.
- [ 20 ] CHEN W, JIAO T, LI Z M, *et al.* Preparation of β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanostructured films by thermal oxidation of GaAs substrate [J]. *Ceram. Int.*, 2022, 48(4):5698-5703.
- [ 21 ] KRANERT C, STURM C, SCHMIDT-GRUND R, *et al.* Raman tensor elements of β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. *Sci. Rep.*, 2016, 6(1):35964-1-9.
- [ 22 ] MACHON D, MCMILLAN P F, XU B, *et al.* High-pressure study of the β-to-α transition in Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. *Phys. Rev. B*, 2006, 73(9):094125-1-9.
- [ 23 ] WAN K, YOUNG J F. Interaction of longitudinal-optic phonons with free holes as evidenced in Raman spectra from Be-doped p-type GaAs [J]. *Phys. Rev. B*, 1990, 41(15):10772-10779.
- [ 24 ] 伍林, 欧阳兆辉, 曹淑超, 等. 拉曼光谱技术的应用及研究进展 [J]. *光散射学报*, 2005, 17(2):180-186.
- WU L, OUYANG Z H, CAO S C, *et al.* Research development and application of Raman scattering technology [J]. *Chin. J. Light Scattering*, 2005, 17(2):180-186. (in Chinese)

- [ 25 ] 马腾宇, 李万俊, 何先旺, 等.  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>纳米材料的尺寸调控与光致发光特性 [J]. 物理学报, 2020, 69(10):108102-1-11.  
MA T Y, LI W J, HE X W, *et al.* Size regulation and photoluminescence properties of  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanomaterials [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2020, 69(10):108102-1-11. (in Chinese)
- [ 26 ] HU D Q, ZHUANG S W, DONG X, *et al.* Growth and properties of one-dimensional  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanostructures on *c*-plane sapphire substrates [J]. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, 2018, 75:31-35.
- [ 27 ] FRODASON Y K, JOHANSEN K M, VINES L, *et al.* Self-trapped hole and impurity-related broad luminescence in  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. *J. Appl. Phys.*, 2020, 127(7):075701-1-9.
- [ 28 ] HO Q D, FRAUENHEIM T, DEÁK P. Origin of photoluminescence in  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [J]. *Phys. Rev. B*, 2018, 97(11): 115163-1-4.
- [ 29 ] 冯艳彬. 蓝宝石衬底上氧化镓薄膜的生长与退火研究 [D]. 大连:大连理工大学, 2014.  
FENG Y B. *Growth and Annealing Study of Gallium Oxide Films on Sapphire Substrates* [D]. Dalian: Dalian University of Technology, 2014. (in Chinese)



刁肇悌(1998-),女,山东菏泽人,硕士研究生,2020年于山东大学获得学士学位,主要从事宽禁带半导体材料的研究。

E-mail: Diaozt20@mails.jlu.edu.cn



董鑫(1980-),男,吉林桦甸人,博士,教授,2008年于大连理工大学获得博士学位,主要从事宽禁带半导体材料及器件的研究。

E-mail: dongx@jlu.edu.cn