

利用氫化物氣相磊晶法在藍寶石基板上直接成長氮化鎵厚膜

研究生：陳仲葳

指導教授：李威儀 博士

國立交通大學電子物理研究所

中文摘要

本論文為了簡化製程及減少外來污染等目的，捨棄一般配合有機金屬氣相磊晶法的前置磊晶模板的製程，利用水平式自組之氫化物氣相磊晶系統直接在藍寶石基板上成長氮化鎵的厚膜，流程包括氣體淨化、氮化處理、低溫氮化鎵緩衝層成長、高溫氮化鎵厚膜成長等四個階段，且完全在同一個腔體中完成。在低溫緩衝層的部分，發現在低壓高五三比的環境有著較適合緩衝層成長的結果。而經由調整緩衝層參數更可以發現從拉曼光譜量測與蝕刻缺陷密度數據而知道，隨著厚度的增加，厚膜品質將隨之降低，但應力也有逐漸釋放的結果，因此必須以較低溫厚膜配合薄緩衝層故為較理想的參數，經過一連串的假設與嘗試，我們也終於成功製造出 1.8 吋的無明顯表面缺陷的氮化鎵厚膜，可供之後配合雷射剝離技術以製成獨立式氮化鎵基板。

Direct Growth of GaN on Bare Sapphire by HVPE

Student : Jhong-Wei Chen

Advisor : Wei-I Lee

Institute of electrophysics
National Chiao Tung University



Abstract

In this research, we deposit GaN thick films on bare sapphire directly substrate, without general template made by MOCVD, in a home-made horizontal system of hydride vapor phase epitaxy(HVPE). This alteration will simplify the process, lower the cost, and prevent pollution in the air. Basic process includes cleaning, nitridation, LT-GaN buffer-layer growth, HT-GaN thick-film growth. In the research of buffer-layer, we know that environment of low pressure and high V/III ratio will be beneficial to produce suitable GaN buffer layer. Besides, by analyzing the data of Raman spectrum and EPD, we found thicker buffer layer would lead to worst crystal quality and lower compressive stress. Finally after a series of experiments, we successfully produce 1.8" mirror-like GaN thick film on sapphire to provide the material of free-standing GaN substrate.

誌 謝

對很多人而言，寫一篇碩士論文是反掌折枝的事，但對我來說卻不是這麼一個檔次的難題。我曾想過寫它千百回，可卻只實實在在寫過那麼一回。

我非得要感謝我的家人不可，感謝爸爸媽媽，無論在甚麼樣的景況下，他們總在我無計可施的時候，給我無論是心理上或是經濟上無限量的援助。也感謝哥哥、姊姊，以及他們各自的小孩芊芊與牛牛仔，在我失意不開心的時候，總給我全力的支持和鼓勵。

在交大的這段時間，結交了很多朋友，也失去了很多朋友；失去了很多天真，但也學會了很多智慧。朋友們總為我捏把冷汗，也常問我關於這些到底值不值得。但我始終不後悔來這一遭，對這些無論是愉快或是辛苦的經歷，我心存感激，感激這些淬煉讓我成長，也感激那些崎嶇讓我堅強。

我一直不是一個懂得如何表示感激之情的人，但這篇論文的完成，卻有太多少不得的人。首要感謝博士班的信雄學長，在我最危急的時候拉了我一把，在學術上更是對我裨益良多。而奎銘學長，也在實驗方面給了我莫大的指教與協助，甚至親自幫我們做了不少量測。如果少了他們兩位的提攜，恐怕這篇論文我也沒本事完成，我由衷感激臨涕。

同時我也要謝謝在這裡遇到的好朋友：峰毅、書鴻、威宇、偉翔、士凱、家禎、阿吉，你們在光譜與物理上著實也教會了我不少，雖然陰錯陽差，我們都在不同的時間離開這個地方，但我始終很懷念那時一起在實驗室瞎扯的日子。同實驗室的定儒、偉誠、仲山、凱翔，無論是在實驗上或是生活上也填補了我許多的不足。我生活中的摯友們：冠凱、炯廷、光樺、琇婷，總不厭其煩聽我抱怨與嘮叨那些不順利的進度，雖然我總常常出言不遜，但心底卻由衷感謝你們的耐心；也感謝遠在倫敦工作的燕卿，給我的鼓勵與打氣，祝福你在地球的另一頭一切依然順利；與我最後在生死關頭互相扶持的好夥伴台大電機碩士阿甫，更是千萬不能忘。協助量測 SEM 的奈米中心陳聯珠小姐以及拉曼實驗室的學弟家和，總是盡你們所能幫我完成我不可能的任務，在這裡為了多次麻煩你們而致上我的歉意與謝意

也祝福下一屆的學弟妹：洪文、奎佑、文章、瑩珈，希望你們都可以學得比我更多更好，也能比我更輕鬆順利。

最後，我要感謝我的指導教授李威儀老師，雖然老師總說他甚麼都不會支援我們，也甚麼都不懂，但是實際上卻給與我們非常大的自由度與資源，方面的博學當然更不用說。我想，能在這樣的老師指導下做研究，我是何其幸運。

目 錄

中文摘要.....	I
英文摘要.....	II
誌謝.....	III
目錄.....	IV
表目錄.....	VI
圖目錄.....	VII

第一章 導論

1.1 研究背景.....	1
1.1.1 氮化鎵材料簡介.....	1
1.1.2 氮化鎵材料成長的歷史.....	1
1.1.3 氮化物氣相磊晶法在氮化鎵材料的應用.....	2
1.1.4 前置磊晶模板.....	2
1.2 研究動機與目的.....	3

第二章 實驗方法

2.1 氮化物磊晶系統.....	4
2.1.1 氮化鎵磊晶成長基板的選擇.....	4
2.1.2 磊晶原理.....	5
2.1.3 氮化物氣相磊晶機台簡介.....	7
2.1.4 實驗流程簡介.....	9
2.2 量測儀器簡介.....	12
2.2.1 拉曼光譜量測系統.....	12
2.2.2 光激螢光光譜量測系統.....	14
2.2.3 掃描式電子顯微鏡.....	15
2.2.4 X射線繞射儀.....	17
2.2.5 原子力顯微鏡.....	18

第三章 前置磊晶與厚膜品質研究

3.1 藍寶石基板氮化處理.....	20
3.2 低溫成長氮化鎵緩衝層.....	22
3.2.1 緩衝層成長參數調變與表面形貌分析.....	22
3.2.2 成長時間與表面形貌.....	27

3.3 緩衝層與厚膜磊晶差異.....	32
3.3.1 緩衝層對厚膜表面接平之影響.....	32
3.3.2 緩衝層對厚膜品質之影響.....	36
第四章 獨立式氮化鎵基板之研發	
4.1 界面應力與彎曲形變.....	41
4.2 邊緣效應.....	45
4.3 升溫過程差異.....	48
第五章 結論.....	52
參考文獻.....	54



表 目 錄

表 1-1-4-1 各種緩衝層與氮化鎵晶格不匹配差異表.....	2
表 2-1-1-1 氮化鎵與藍寶石熱膨脹程度差異表.....	4
表 2-1-1-2 GaN 及常用基板熱膨脹係數、晶格常數比較.....	5
表 2-1-1-1 III V 族半導體材料拉曼選擇規則表.....	13
表 3-1-1 氮化處理及後續磊晶參數表.....	20
表 3-2-1 低溫緩衝層成長參數表.....	22
表 3-3-2-1 拉曼光譜等效應力比較圖.....	36
表 3-3-2-2 PL 光譜等效應力比較圖.....	37
表 3-3-2-1 緩衝層厚度與各量測趨勢整理表.....	39
表 4-1-1 厚膜成長參數表.....	41
表 4-1-2 GaN 橫截面拉曼峰值與應力釋放.....	43
表 4-2-1 厚膜成長參數表.....	45
表 4-2-2 拉曼峰值與應力整理表.....	46
表 4-3-1 升溫流量變化參數表.....	48



圖 目 錄

圖 2-1-1-1 因彎曲過大而破裂的 DGS 氮化鎵厚膜.....	4
圖 2-1-1-2 氮化鎵晶格示意圖.....	5
圖 2-1-2-1 HVPE 反應構造示意圖.....	6
圖 2-1-3-1 自組式 HVPE 機台構造圖.....	7
圖 2-1-3-2 反應腔體內部構造圖.....	8
圖 2-1-4-1 箭頭處為石英隨著多晶或非晶 GaN 剝落.....	10
圖 2-1-4-2 磊晶流程示意圖.....	11
圖 2-2-3-1 電子躍遷圖.....	14
圖 2-2-3-2 雜質所造成的能量差異.....	14
圖 2-2-3-3 光激發螢光系統示意圖.....	15
圖 2-2-3-1 掃描試電子顯微鏡構造示意圖.....	16
圖 2-2-3-2 高能電子射束與物質交互作用示意圖.....	16
圖 2-2-3-3 二次電子訊號與表面關係示意圖.....	17
圖 2-2-4-1 X 光繞射儀結構圖.....	18
圖 2-2-5-1 原子力顯微鏡的架構簡圖.....	18
圖 3-1-1 氮化處理溫度差異比較圖.....	20
圖 3-1-2 不同氮化處理溫度所得之基板表面形貌 AFM 圖.....	21
圖 3-1-3 不同氮化處理溫度所得之基板表面形貌 XRD 圖.....	21
圖 3-2-1-1 低溫 GaN 緩衝層照片.....	23
圖 3-2-1-2 低溫 GaN 緩衝層 SEM 切面及表面成長形貌圖.....	23
圖 3-2-1-3 低溫 GaN 緩衝層厚度與成長時間關係圖.....	24
圖 3-2-1-4 內部流場示意圖.....	24
圖 3-2-1-5 低溫 GaN 緩衝層 SEM 切面及表面初期成長形貌圖.....	25
圖 3-2-1-6 不同五三比成長低溫緩衝層之初始表面形貌.....	26
圖 3-2-2-1 MOCVD 低溫 GaN 緩衝層表面形貌 AFM 圖.....	27
圖 3-2-2-2 低溫 GaN 緩衝層隨成長時間形貌變化 SEM 圖.....	28
圖 3-2-2-3 低溫 GaN 緩衝層隨成長時間形貌變化 AFM 圖.....	29
圖 3-2-2-4 低溫 GaN 緩衝層隨成長時間厚度變化.....	30
圖 3-2-2-5 低溫 GaN 緩衝層隨成長時間表面 RMS 變化.....	30
圖 3-2-2-6 低溫 GaN 緩衝層升溫後形貌變化 SEM 圖.....	31
圖 3-2-2-7 低溫 GaN 緩衝層隨不同升溫速率形貌變化 SEM 圖.....	31
圖 3-3-1 漸進式升溫成長法.....	32

圖 3-3-2 二階段升溫成長法.....	32
圖3-3-1-1 不同參數緩衝層成長之高溫厚膜表面形貌圖.....	33
圖3-3-1-1 不同參數緩衝層成長之高溫厚膜表面形貌圖.....	34
圖 3-3-1-2 不同參數緩衝層成長之高溫厚膜側面形貌.....	35
圖 3-3-2-1 不同緩衝層成長 GaN 厚膜之拉曼光譜.....	36
圖 3-3-2-2 不同緩衝層成長 GaN 厚膜之 PL 光譜圖.....	37
圖 3-3-2-3 不同緩衝層成長 GaN 厚膜 EPD 量測之 AFM 圖.....	38
圖 3-3-2-4 不同緩衝層成長 GaN 厚膜之 X 光繞射光譜.....	38
圖 3-3-2-5 MOCVD 模版成長 GaN 厚膜 EPD 量測之 AFM.....	40
圖 4-1-1 不同緩衝層厚度成長之厚膜.....	42
圖 4-1-2 氮化鎵厚膜界面緩衝層 SEM 圖.....	42
圖 4-1-3 不同厚度緩衝層之橫截面拉曼光譜.....	43
圖 4-1-4 不同厚度緩衝層之表面 X 光繞射光譜.....	44
圖 4-2-1 邊緣效應量測位置示意圖.....	45
圖 4-2-2 氮化鎵厚膜與藍寶石交界橫向拉曼光譜.....	46
圖 4-2-3 環狀破裂與放射狀破裂差異.....	47
圖 4-3-1 不同升溫流量緩衝層之表面形貌圖.....	49
圖 4-3-2 不同流量升溫之能量分析光譜.....	50
圖 4-3-3 不同升溫流量成長之 GaN 厚膜.....	51
圖 5-1 1.8 吋 GaN 厚膜樣品.....	53

