

# 氮化鎵磊晶成長與光電特性之研究

曾偉豪、武東星

E-mail: 8809450@mail.dyu.edu.tw

## 摘要

本篇論文主要是在探討氮化鎵緩衝層對磊晶膜特性的影響。我們利用水平式有機金屬化學氣相磊晶系統(metal-organic chemical vapor deposition, MOCVD), 在氧化鋁( $Al_2O_3$ )的基板上成長氮化鎵磊晶膜。氮化鎵的成長是採用二階段成長(two-step growth)的方式, 先成長一層薄的氮化鎵緩衝層, 以減緩氮化鎵磊晶膜與基板間的晶格常數與熱膨脹係數差異所造成應力的影響, 進而成長出品質較好的連續磊晶膜。綜合歸納最佳的成長壓力是在100 Torr。在反應管的設計上, 為避免 III 族元素與 V 族元素有氣相反應(prereaction)的情況發生, 我們利用石英板將反應管前半部分成上下二層, 設計出雙層氣體通道結構, 使 III 族元素與 V 族元素得以分別進入反應管, 其中 III 族反應物在下層流動, V 族反應物在上層流動, 並且在接近於石墨舟之前充份混合, 由研究成果証實氣相反應現象得以克服。關於緩衝層對磊晶膜品質的影響, 藉由原子力顯微鏡的觀察, 我們發現在成長緩衝層至成長磊晶層的升溫過程中, 升溫速率與 $NH_3$  或 $N_2$ 摻入反應的多寡, 將會影響到緩衝層的表面平坦度, 進而影響到氮化鎵磊晶膜的品質, 因此, 在 $NH_3$ 為大流量(= 4 SLM)以及不通入氮氣進行快速熱處理的情況下, 我們可以保持低溫成長GaN緩衝層的表面平坦度。最後我們的氮化鎵試片會有X光繞射(X-ray diffraction)、光激發光(photo-luminescence)、原子力顯微鏡(atomic force microscopy)、掃描式電子顯微鏡(scanning electronic microscopy)等的實驗分析, 決定出良好的氮化鎵成長條件。目前以大流量 $NH_3$ 環境下, 我們得到像鏡面一樣(mirror-like)的磊晶膜, 其表面平坦度為9 angstrom, 成長速率為0.6 micro\*meter / hr, 在(0002)平面繞射峰的半高寬為0.05度, 低溫(77K)PL量測未摻雜GaN磊晶膜的半高寬為34 meV, 以van der Pauw method量得載子濃度為 $10e17-18 cm^{-3}$ 。

關鍵詞: 氮化鎵; 緩衝層; 有機金屬化學氣相磊晶系統; 雙層氣體通道結構; 原子力顯微鏡; 分離; 氣相反應; 二階段成長

## 目錄

封面內頁 簽名頁 授權書.....	iii	中文摘要.....	v
Abstract.....	vi	誌謝.....	viii
目錄.....	xii	表目錄.....	xiii
第一章 簡 述.....	1	1.1 氮化鎵發展沿革.....	1
1.2 一些雙層流反應管的比較.....	2	第二章 有機金屬化學氣相沉積系統設計.....	5
2.1 流量與控壓系統設計.....	5	2.2 加熱系統設計.....	5
2.2 加熱系統設計.....	5	2.3 反應管設計.....	6
第三章 實驗步驟.....	8	3.1 基板的清洗.....	8
3.1 基板的清洗.....	8	3.2 反應物.....	8
3.2 反應物.....	8	3.3 實驗流程設計.....	8
3.3 實驗流程設計.....	8	3.4 量測方法.....	10
3.4 量測方法.....	10	3.4.1 SEM觀察.....	10
3.4.1 SEM觀察.....	10	3.4.2 AFM觀察.....	10
3.4.2 AFM觀察.....	10	3.4.3 XRD量測.....	10
3.4.3 XRD量測.....	10	3.4.4 霍爾量測.....	11
3.4.4 霍爾量測.....	11	3.4.5 PL量測.....	11
3.4.5 PL量測.....	11	第四章 結果與討論.....	13
第四章 結果與討論.....	13	4.1.1 GaN緩衝層的成長速率.....	14
4.1.1 GaN緩衝層的成長速率.....	14	4.1.2 厚的緩衝層表面形貌觀察.....	14
4.1.2 厚的緩衝層表面形貌觀察.....	14	4.1.3 厚的緩衝層表面形貌觀察.....	15
4.1.3 厚的緩衝層表面形貌觀察.....	15	4.2 升溫速率對GaN緩衝層表面平坦度的影響.....	16
4.2 升溫速率對GaN緩衝層表面平坦度的影響.....	16	4.2.1 升溫時氣氛因素影響GaN緩衝層表面的形態.....	17
4.2.1 升溫時氣氛因素影響GaN緩衝層表面的形態.....	17	4.2.2 $N_2$ 與 $NH_3$ 不同比例的升溫氣氛對緩衝層表面形貌的影響.....	18
4.2.2 $N_2$ 與 $NH_3$ 不同比例的升溫氣氛對緩衝層表面形貌的影響.....	18	4.2.3 XRD分析不同氣氛熱處理GaN緩衝層試片的結晶狀態.....	19
4.2.3 XRD分析不同氣氛熱處理GaN緩衝層試片的結晶狀態.....	19	4.2.4 升溫時 $NH_3$ 流量GaN緩衝層表面形貌的影響.....	20
4.2.4 升溫時 $NH_3$ 流量GaN緩衝層表面形貌的影響.....	20	4.3 摻入 $N_2$ 成長GaN緩衝層對GaN磊晶層的比較.....	21
4.3 摻入 $N_2$ 成長GaN緩衝層對GaN磊晶層的比較.....	21	4.3.1 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的表面狀態的比較.....	21
4.3.1 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的表面狀態的比較.....	21	4.3.2 不同緩衝層成長時間對磊晶層的表面狀態的比較.....	22
4.3.2 不同緩衝層成長時間對磊晶層的表面狀態的比較.....	22	4.3.3 磊晶成長溫度對磊晶層結晶特性的影響.....	23
4.3.3 磊晶成長溫度對磊晶層結晶特性的影響.....	23	4.4 使用大流量 $NH_3$ 成長GaN磊晶層的比較.....	23
4.4 使用大流量 $NH_3$ 成長GaN磊晶層的比較.....	23	4.4.1 不同緩衝層成長時間對磊晶層的影響.....	24
4.4.1 不同緩衝層成長時間對磊晶層的影響.....	24	4.4.2 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的表面狀態的比較.....	24
4.4.2 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的表面狀態的比較.....	24	4.5 反應氣體流速對GaN磊晶膜的影響.....	25
4.5 反應氣體流速對GaN磊晶膜的影響.....	25	4.6 厚度對磊晶膜品質的影響.....	26
4.6 厚度對磊晶膜品質的影響.....	26	第五章 結論.....	28
第五章 結論.....	28	參考文獻.....	30
參考文獻.....	30	圖 目 錄 圖1.1 III - V材料能帶與晶格常數關係圖.....	32
圖 目 錄 圖1.1 III - V材料能帶與晶格常數關係圖.....	32	圖1.2 GaN在有無緩衝層的基板成長示意圖.....	33
圖1.2 GaN在有無緩衝層的基板成長示意圖.....	33	圖1.3 GaN成長在適當緩衝層厚度的過程圖.....	34
圖1.3 GaN成長在適當緩衝層厚度的過程圖.....	34	圖1.4 (a) S. Nakamura et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)該反應管氣體流向圖.....	35
圖1.4 (a) S. Nakamura et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)該反應管氣體流向圖.....	35	圖1.5 (a) K. Nishida et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)該反應管氣體流向圖.....	36
圖1.5 (a) K. Nishida et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)該反應管氣體流向圖.....	36	圖1.6 (a) C. R. Lee et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)H. Tokunaga et al.用來成長GaN的反應管結構圖.....	37
圖1.6 (a) C. R. Lee et al.用來成長GaN的反應管結構圖;(b)H. Tokunaga et al.用來成長GaN的反應管結構圖.....	37	圖2.1 MOCVD系統.....	38
圖2.1 MOCVD系統.....	38	圖2.2 反應管結構圖.....	39
圖2.2 反應管結構圖.....	39	圖3.1 氮化鎵成長流程圖.....	40
圖3.1 氮化鎵成長流程圖.....	40	圖3.2 光激發光量測系統.....	41
圖3.2 光激發光量測系統.....	41	圖4.1 直接在 $Al_2O_3$ 基板上磊晶成長GaN的SEM圖(a)斜視圖;(b)俯視圖.....	42
圖4.1 直接在 $Al_2O_3$ 基板上磊晶成長GaN的SEM圖(a)斜視圖;(b)俯視圖.....	42	圖4.2 氮化鎵緩衝層成長流程圖.....	43
圖4.2 氮化鎵緩衝層成長流程圖.....	43	圖4.3 GaN緩衝層成長溫度與厚度的關	

係.....	44	圖4.4 不同溫度成長GaN緩衝層1小時的表面形態:(a)500 ;(b)550 .....	45
長GaN緩衝層1小時的表面形態:(c)600 .....	46	圖4.5 不同溫度成長GaN緩衝層的表面平坦度.....	47
圖4.6 不同緩衝層成長溫度的XRD圖.....	48	圖4.7 氮化鎵緩衝層熱處理流程圖.....	49
圖4.8 用AFM觀察不同升溫速率處理GaN緩衝層表面平坦度.....	50	圖4.9 AFM觀察不同NH <sub>3</sub> :N <sub>2</sub> 比例熱處理GaN緩衝層的表面平坦度.....	51
圖4.10 不同氣氛下升溫熱處理GaN緩衝層試片的XRD圖.....	52	圖4.11 用AFM觀察不同NH <sub>3</sub> 流量對GaN緩衝層作升溫熱處理後的表面平坦度:(a)沒有經過升溫熱處理.....	53
圖4.11 用AFM觀察不同NH <sub>3</sub> 流量對GaN緩衝層作升溫熱處理後的表面平坦度:(b) NH <sub>3</sub> 流量為2 SLM.....	54	圖4.11 用AFM觀察不同NH <sub>3</sub> 流量對GaN緩衝層作升溫熱處理後的表面平坦度:(c) NH <sub>3</sub> 流量為4 SLM.....	55
圖4.12 SEM觀察不同GaN緩衝層成長溫度對 GaN磊晶層表面影響:(a)500 .....	56	圖4.12 SEM觀察不同GaN緩衝層成長溫度對 GaN磊晶層表面影響:(c)550 ;(d)600 .....	57
圖4.13 低溫(77K)PL分析緩衝層(通入N <sub>2</sub> )成長溫度對 磊晶層的影響.....	58	圖4.14 GaN磊晶層表面形貌與緩衝層成長時間關係: (a) 30 sec;(b) 40 sec.....	59
圖4.14 GaN磊晶層表面形貌與緩衝層成長時間關係: (c) 1 min 40 sec.....	60	圖4.15 不同溫度磊晶成長比較:(a)1000 ;(b)1050 .....	61
圖4.16 不同磊晶成長溫度的GaN薄膜的室溫PL量測: (a) 1050 ;(b) 1000 .....	62	圖4.17 不同磊晶成長溫度的GaN薄膜的低溫(77k)PL量測:(a) 1050 ;(b) 1000 .....	63
圖4.18 不同溫度成長GaN磊晶膜的XRD分析.....	64	圖4.19 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的影響:(a) 500 ;(b) 550 .....	65
圖4.19 不同緩衝層成長溫度對磊晶層的影響:(c) 600 .....	66	圖4.20 XRD分析緩衝層成長溫度對磊晶層的影響.....	67
圖4.21 二片Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 在石墨舟同時成長GaN不同位置 比較圖.....	68	圖4.22 比較Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 在石墨舟不同位置成長氮化鎵表面SEM照片:(a)置於石墨舟前方;(b)置於石墨舟後方.....	69
表目錄表1.1 不同材料的晶格常數與熱膨脹係數比較.....	70	表3.1 氮化鎵在低溫的螢光主峰狀態.....	71

## 參考文獻

1. S. Nakamura, and G. Fasol, THE BLUE LASER DIODE, Springer, 1997.
2. S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matushita, Ysugimoto and H. Kiyoku, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. 36,L1059(1997).
3. S. Strite and H. Morkoc, J. Vac. Sci. Technol. B, 10, 1237 (1992).
4. K. Hiramatsu, S. Itoh, H. Amano, and I Akasaki, J. Crystal Growth, 115, 628(1991).
5. K.Nishida, S. Haneda, K. Hara, H. Munekata, and H. Kukimoto, J. Crystal Growth, 170, 312(1997).
6. K.Nishida, S. Haneda, K. Hara, H. Munekata, and H. Kukimoto, Appl. Surf. Scie. 117/118, 530(1997).
7. C. R. Lee, S. J. Son, I. H. Lee, J. Y. Leem, and Sam Kyu Noh, J. Crystal Growth, 182, 11(1997).
8. H. Tokunaga, I.Waki, A. Yamaguchi, N. Akutstu, and K. Matsnmoto, J. Crystal Growth, 189/190, 519(1992).
9. Z. J. Yu, J. H. Edger, A.U. Ahmed, and A. Rys, J. Electrochem. Soc. 138, 196(1991).
10. K.Ito, K. Hiramatsu, H. Amano , and I.Akasaki, J. Crystal Growth, 104, 553(1990).
11. CHEMISTRY OF THE SEMICONDUCTOR INDUSTRY, p.248,1986.
12. S. Keller, B. P. Keller, Y. F. Wu, B. heyng, D. Kapolnek, J. S. Speck, U. K. Mishra, And S. P. DenBaars, Appl. Phys. Lett. 68(11), 1525(1996).
13. J.C. Ramer, K. Zheng, C.F. Kranenberg, M. Banas, and S.D. Hersee, MATERIALS RESEARCH SOCIETY SYMPOSIUM PROCEEDING VOLUME 395, 225(1996).