

半導體薄膜材料有機金屬化學氣相沉積反應器之氣體動力特性與熱流設計

Gasdynamic Characteristics and Thermal-Flow Design of Metal Organic Chemical Vapor Deposition Reactors for Semiconductor Thin-Films

宋齊有

Chyi-Yeou Soong

有機金屬化學氣相沉積 (MOCVD) 或稱氣相磊晶 (MOVPE) 係製備化合物半導體薄膜之重要製程，反應器內製程之熱流管控是薄膜磊晶層品質之關鍵因素之一。本文以氣體動力學觀點以及作者近年相關之研究，針對各式 MOCVD 反應器說明熱流管控技術以及影響 MOCVD 反應器中磊晶層均勻度之熱流機制。此一論題對 MOCVD 磊晶製程設備之設計以及製程操作參數之設定與調變，提供跨領域之專業背景知識。本文所討論 MOCVD 製程中之流、熱、質耦合機制與各種解決方案可作為其他機電裝備、儀器中熱流管理與設計之參考。

Metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) or vapor phase epitaxy (MOVPE) is a critical process for preparation of compound semiconductor thin-films. Thermal-flow management in MOCVD reactors is one of the key factors for quality of the epilayer. In the present paper, thermal-flow management techniques of various MOCVD reactors and the mechanisms related to the epitaxial uniformity are manifested based on the gasdynamics viewpoint and the author's recent investigations in this area. This special topic provides interdisciplinary background knowledge for design of MOCVD epitaxial facilities and for determination and modulation of the operating parameters as well. The flow-thermal-mass coupling mechanisms and solutions disclosed in the present paper are also useful to thermal-flow management or design for other electronic/mechanical facilities and instruments.

一、引言—背景說明

半導體薄膜有機金屬化學氣相沉積 (metal organic chemical vapor deposition, MOCVD) 或稱有

機金屬氣相磊晶 (metal organic vapor phase epitaxy, MOVPE) 技術發展已逾卅年，目前已可利用氣相磊晶技術製備 IV 族材料如鑽石薄膜、碳化矽、介電材料如二氧化矽 (SiO_2) 與氮化矽 (Si_3N_4)、金屬薄

膜如鎢 (W)、銅 (Cu)、金屬化合物 (intermetallic compounds)、III-V、II-VI 族以及各種化合物半導體薄膜材料，尤其是 III-V 族化合物半導體如砷化鎵 (GaAs)、氮化鎵 (GaN)、氮化銦鎵 (InGaN) 等與藍綠光發光二極體 (light emitting diode, LED)、雷射相關之主流光電薄膜材料均以 MOCVD 製程磊晶生成。超高光度 LED 可應用於手機、全彩螢幕與顯示器、電子裝備指示器及光纖光源等方面。雖然分子束磊晶 (molecular beam epitaxy, MBE) 亦適用於薄膜磊晶，但 MOCVD 以其多樣性及較經濟等優勢取勝。

由於光電工業之快速進展，半導體材料之需求日殷，薄膜晶體之磊晶成長技術之研究與產品開發蓬勃發展。有關磊晶成長技術之開發極受重視，相關之專書亦相繼問世，例如：Hitchman and Jensen⁽¹⁾ 專論化學氣相沉積之原理與應用。Hurle 於 1993 至 1994 年發行其所編輯之晶體成長手冊⁽²⁾，其中廣泛論及晶體成長之動力學與熱力學、輸送現象與穩定性、塊晶 (bulk crystal) 成長與薄膜磊晶之基本技術、成長機制與動力學等。此外，薄膜磊晶技術之專文頗多，例如：Thompson⁽³⁾ 與 Juergensen⁽⁴⁾ 二文均對近年 MOCVD 技術發展有廣泛的討論，兩位作者分別隸屬 Emcore (美國) 與 Aixtron (德國) 生產 MOCVD 磊晶反應器之兩大公司。近期林蔚⁽⁵⁾ 在本刊以 Thomas Swan Scientific Equipment 公司 (英國) 之反應器為例，說明有機金屬磊晶反應器系統之基本原理、週邊設備及管線配置等論題。以上文獻資料對 MOCVD 技術之說明各有獨到之論述，值得一讀。由於磊晶反應器為一高溫梯度之設備，其中涉及之氣體流動、熱量與質量傳遞以及三者之耦合效應均為磊晶成功之關鍵因素，本文將以氣體動力學觀點以及筆者對相關主題之研究經驗評論 MOCVD 反應器之熱流機制與管控技術。

二、化學氣相磊晶機制

薄膜磊晶法之晶體成長程序一般可分為以下幾個步驟⁽¹⁾：(1) 反應物氣體以載子氣體由進口輸入傳輸至沉積區；(2) 氣態反應 (gas-phase reaction) 導致薄膜種源與反應生成物之形成；(3) 薄膜種源傳輸

至基板 (substrate)；(4) 薄膜種源於基板表面之吸附；(5) 薄膜種源表面擴散至成長點；(6) 磊晶層 (epilayer) 之核化與生長；(7) 表面反應生成物離開沉積面；(8) 多餘反應物與生成物隨主氣流由沉積表面傳輸至排出口。以上步驟均在磊晶之反應器 (reactor) 中完成。

薄膜之產生必須控制純度 (purity)、成分 (composition)、厚度 (thickness)、晶體結構 (crystalline structure) 及表面形態 (surface morphology) 等之性質。薄膜之沉積為一表面反應，其速率主要與化學反應動力學 (chemical reaction kinetics) 有關，相關參數為基板溫度、反應器壓力以及氣體成分。當反應溫度低時，化學反應速率 RR 由 Arrhenius 定律 $RR = A \exp(-EA/RT)$ 決定，其中 A 為一常數； EA 為活化能 (activation energy)； R 為氣體常數； T 為基板溫度。低溫情況時，化學反應之時間尺度大，反應速率受限於化學反應動力學，反應成分之質量傳輸相對較快。此時，反應氣體之供給無虞匱乏。反之，若基板溫度高，表面沉積反應速率高，相對地，反應成分之傳輸率限制磊晶層之生長率。此時，薄膜磊晶生長率與厚度之均勻度則由反應室內反應物之場性質與輸送現象 (transport phenomena)，包括：氣流之流動 (gas flow)、速度與溫度分布、熱傳 (heat transfer) 及質傳 (mass transfer) 等因素決定。氣體反應物之流速或流率 (gas flow rate)、進氣方式、基板與反應室內之溫度分布、反應室內之壓力、反應器之幾何形狀以及氣體之物性等各參數對反應物之輸送現象均有極重要之影響。

三、氣相磊晶之熱流動力學基礎

1. 通道流特性與邊界層內傳輸現象

一般之反應器在主流方向之長度均極有限，若以一通道流為例，其流場特性即為發展中之進口區熱流 (developing thermal flow in entrance region)。由傳輸理論可知：在晶圓表面與反應器壁面會出現動量 (代表變數為速度)、熱量 (代表變數為溫度) 與質量 (代表變數為濃度) 三種邊界層。晶圓表面之邊界層內對流與擴散現象影響速度、溫度、濃度之分布以及三者之梯度變化。其中濃度分布反映了反

應物至基板之傳輸，因而直接攸關磊晶之效率與品質；同時，由於動量傳遞、熱傳均與反應物之質量傳輸相互影響、環環相扣，因此反應器內之熱流質傳輸有相當之複雜性。

2. 熱流耦合－熱浮力與自然對流效應

在一通道內流問題中，由壓差驅動之氣流流速或流量可以一無因次之參數 Reynolds 數 (Re) 表徵，其定義為 $Re = VL_c/\nu$ ，其中 V = 通道內之截面平均速度， L_c = 特徵長度，一般為通道之水力直徑 (hydraulic diameter)， ν = 氣體運動黏滯係數。Reynolds 數之高低反映流體動量之大小以及流動之穩定性，低 Re 流動屬流動平穩之層流 (laminar flow)。當 Re 增高越過一臨界值時，流動性質轉為紊流 (turbulent flow)，速度會產生抖動 (fluctuation) 並進而影響整個流場，甚而發生流場振盪 (flow oscillation) 或出現紊度 (turbulence)。平直道中， $Re < 2000$ 可視為層流， $Re > 2000$ 即流場傾向發生層紊轉性 (laminar-to-turbulence transition)。一般而言，CVD 反應器內之 Re 均極低，其量階 (order) 在 10^{-2} 至 10^2 之間，可歸類為層流。然若有不規則之邊壁幾何形狀、高溫梯度或高速旋轉等外加效應介入，即使在低 Re 流況，亦會使系統提早進入紊流狀態。

反應器內具溫度梯度，流場中之熱效應可藉一特徵溫差 ΔT 表之，例如：基板溫度與氣流進口溫度之差值即為磊晶反應器之特徵溫差。熱浮力 (thermal buoyancy effect) 為磊晶反應器流場中最重要之熱效應，其強弱可由一無因次之 Grashof 數 ($Gr = g\beta\Delta TL_c^3/\nu^2$) 或 Rayleigh 數 ($Ra = g\beta\Delta TL_c^3/\nu\alpha = Pr \cdot Gr$) 為之，定義中 g 為重力加速度， β 為熱膨脹係數， α 為氣體熱擴散係數， Pr 表 Prandtl 數 = ν/α 。參數 Gr 或 Ra 正比於溫差，可視為反應器內溫差或溫度梯度之無因次表徵。一般反應器內氣流之 Gr 或 Ra 量階約在 $10^4 - 10^6$ 之譜 (以 H_2 為載子氣體、特徵長度量階 0.1 m、溫差 500–1000 K 為例估算)。依上所述， Re 與 Ra (或 Gr) 分別為主氣流之強制對流 (forced convection) 參數與熱浮力之自然對流 (natural convection) 參數。為量度熱浮力在壓力驅動流場中之相對強度，常用混合對流

(mixed convection) 參數 Gr/Re^n ($n = 1, 2$, 或 $3/2$) 作為指標，其值之高或低分別代表流場係由自然對流或強制對流所主導；而較中庸之 Gr/Re^n 值則表示混合對流。

3. 熱質傳耦合－擴散熱效應與熱擴散效應

MOCVD 磊晶反應器中，由於溫度梯度與反應氣體各成分之濃度梯度共存，因而有所謂之熱質傳耦合現象。其一為因濃度梯度存在導致反應氣體之擴散，粒子之移動使得所含熱能之傳輸，此稱之為擴散熱效應 (diffusion-thermal effect) 或稱 Dufour 效應。反之，非均勻溫度場之溫度梯度會影響氣體粒子之傳輸，進而影響濃度之分布，此即所謂之熱擴散效應 (thermal-diffusion effect) 或稱 Soret 效應。在此一熱擴散效應作用下，會導致氣體中較大之粒子被斥離高溫區，稱之為熱泳 (thermophoresis)。一般 MOCVD 反應器中 Dufour 效應不明顯，對磊晶之速率與品質無甚影響，然 Soret 效應則高溫度梯度情況下尤其明顯。以 GaAs 之磊晶而言，晶座上基板 (晶圓) 為高溫，而原料氣體與反應器壁均為低溫，溫度梯度所誘生之熱泳現象排斥較大之三甲基鎵 $Ga(CH_3)_3$ (TMGa) 分子接近基板，而相對地卻有助於較小之 H_2 分子趨近基板，造成基板附近反應物濃度降低，磊晶速率因而降低。雖然如此，熱泳現象可降低晶圓面高溫處之成長率，對磊晶之均勻度有些助益。

4. 磊晶反應器操作條件之考量

一般氣相磊晶之 (基板) 溫度約在 500–1500 K，例如：砷化鎵約 900 K、氮化鎵較高約 1100–1300 K 等。基板溫度愈高，反應器內氣流場之溫度梯度就愈高，非均溫流中之熱浮力與熱擴散 (熱泳) 效應就愈強，前者易造成磊晶層厚度之不均勻，後者則減緩磊晶之速率，兩效應均不利於磊晶效果。

就薄膜磊晶速率而言，基板溫度對薄膜生成率有非單調性之影響。以 $Ga(CH_3)_3$ 與 AsH_3 生成砷化鎵薄膜為例，基板溫度低於 860 K 之情況，化學反應速率受限於反應動力，依 Arrhenius 定律知其速率隨溫度升高成指數型增加。此時，薄膜磊晶速率

較低，晶層之均勻度有賴於基板溫度之均勻。低壓熱壁 (hot-wall) 反應器之條件較易減低基板溫度之變化，故較適用於此低溫情況。當基板溫度高至 860 K 與 1100 K 之間，基板溫度對反應速率之影響極弱，此時磊晶之速率主要係由反應物之質量傳輸 (至基板) 速率決定，可以使用冷壁 (cold-wall) 式反應器。如同 GaAs 一般，化合物半導體之 MOCVD 製程多操作於此種溫度範疇。若溫度高過 1100 K，則可能產生反應物過早沉積於反應器壁而導致基板上沉積率降低。

降低反應器內操作壓力可增強質量擴散，使得磊晶速率由晶圓表面反應率而非質量傳輸率決定，且密度亦隨壓力而下降，熱浮力效應將減弱，以上各點均有利於獲得較佳之磊晶層均勻度。氣體流量由低漸增時，邊界層內之傳輸率隨流量增加而增強，晶層之線性成長率 (linear growth rate) 亦隨之增加；且因熱浮力受壓制，晶層厚度均勻度可望提升。然當氣體流量足夠高時，磊晶層之反應成長率由反應動力學決定。過高之氣體流量會造成反應物無法即時完全反應而浪費原料。

四、磊晶反應器構形與熱流設計

氣相磊晶反應器之型式，以反應氣流與晶圓之相對方位而論，可概分為水平式、垂直滯流式與混合式反應器三大類。有關各型反應器構形之氣體動力特性與熱流管控設計分述如下。

1. 水平式磊晶反應器

層性熱進口區流之研究發覺：在加熱 (Ra) 超過臨界值時，浮力誘生之自然對流效應會使通道內產生對流不穩定現象 (convection instability)。實驗與數值計算驗證在不同 Re 數與 Ra 數組合時，會有橫向渦捲 (transverse rolls) 或縱向渦捲 (longitudinal rolls) 產生。Jensen⁽⁶⁾ 與 Nicolas and Mojtabi⁽⁷⁾ 也於其論文中述及矩形通道內流場結構之類別與發生之條件。綜合以往的研究可得知：在一水平式氣相磊晶反應器內，若相對於主氣流之慣性，熱浮力極弱，亦即低 Ra 高 Re 時，氣流型態如圖 1(a) 所示，弱浮力效應僅導致高溫晶圓表面

鄰近之流線偏折；然在高 Re 條件下增高 Ra ，高熱浮力與慣性大之主氣流結合使流動型態出現沿主流方向之縱向渦捲，見圖 1(b)；當高 Ra 低 Re 時，熱浮力效應相對較強，此時氣流型態轉為橫向渦捲如圖 1(c) 所示。由於氣相磊晶反應器內氣流之 Re 均極低，而晶圓表面與氣流間之高溫差造成高 Ra 值，故氣流型態出現橫向渦捲之可能性較高，數值模擬與實驗均證實此一事實⁽⁸⁾。無論是橫向渦捲或縱向渦捲之出現對反應器內之熱流穩定性以及傳輸現象等均為不利之因素。早期研究⁽⁹⁾ 發現， $Gr/Re^2 < 0.5$ 時，僅見高溫基板鄰近之流線上飄，但當 $Gr/Re^2 > 0.5$ 時出現主氣流與縱向渦捲合成之螺旋流線；同時，氣流溫度有 3—5 Hz、振幅高達 ± 30 °C 之漲落。即便是如圖 1(a) 無渦捲出現之情況，氣流因浮力作用而上揚將導致晶圓下游之沉積率降低。最近，Choi 等人⁽¹⁰⁾ 以水平式 MOCVD 反應器無摻雜之 GaN 磊晶說明各種不同氣流速度下熱浮力效應之影響。在其實驗中發現：若氣流速度低 (即低 Re)，則磊晶速率低且薄膜之表面形態 (surface morphology) 粗糙；當氣流速度升高至某值 (例如 0.32 m/s) 以上，磊晶速率高且薄膜展現似鏡面無瑕疵之表面形態。高進氣量確實可壓制熱浮力，但也可能浪費原料。

為增進水平式反應器之磊晶品質，必須改變或控制氣流型態。在受限於反應條件，基板溫度無法

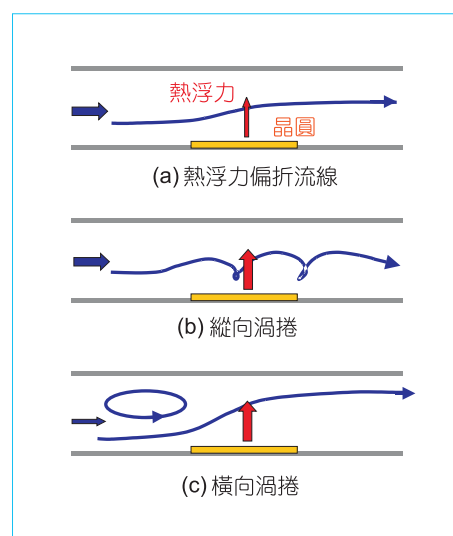


圖 1. 水平式 MOCVD 反應器流動型態示意圖。

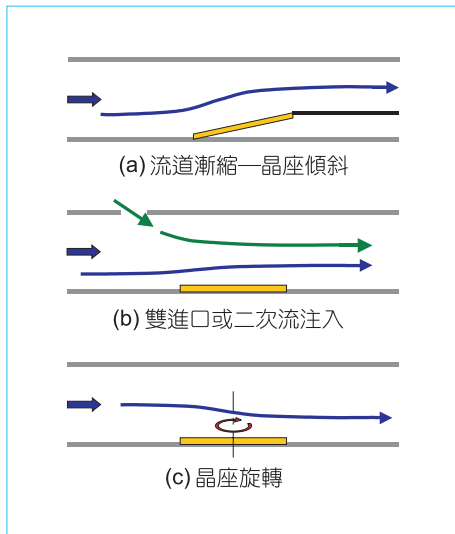


圖 2. 水平式 MOCVD 反應器熱流設計方案。

調變之情況下，則以改變流道或借助外加效應為之，圖 2 顯示以往之各式解決方案。圖 2 (a) 為傾斜晶座使沉積面貼近流線，此一流道局部縮小之設計可使晶圓下游之氣流加速、增加對流傳輸率以增高該處之磊晶成長率。為削弱熱浮力效應，亦可如圖 2(b) 所示，引二次氣流注入或採雙進口設計，藉以壓制浮力作用下之氣流上揚而達到提升晶圓上下游晶層之均勻度。最近 Tena-Zaera 等人⁽¹¹⁾ 探討利用雙進口水平式 MOCVD 反應器成長 II-VI 族化合物半導體 HgTe (mercury telluride)。上、下進口分別輸入不同成分反應物 (DIPTe 與氣態 Hg)，可避免發生過早反應，並可獲得較佳之流場控制以及較均勻之成長率。圖 2(c) 之晶座旋轉是另一種方案，以旋轉方式平均晶圓表面各處接觸反應物氣流之機會，可提升磊晶之均勻度。

2. 垂直式磊晶反應器

垂直反應器以滯流 (stagnation flow) 邊界層厚度均勻之觀念，動量傳輸之均勻性可能導致質傳率或磊晶層成長較均勻，且相對於平行流，滯流具有較高之傳輸速率。但由於晶圓中心直接接觸新進反應氣體，成長率高於晶圓外緣處之成長率，因此，晶圓內磊晶層之均勻度 (intra-wafer uniformity) 仍不如理想。圖 3 為基本圓柱形之直立滯流式反應器，反應器氣流與晶座之安排為衝擊滯流形式。圖 3(a)

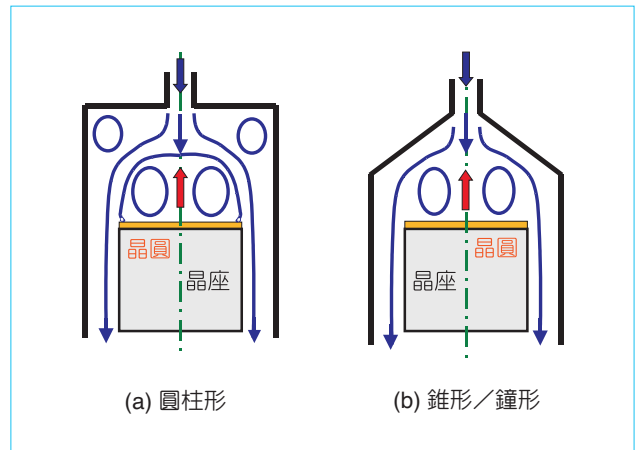


圖 3. 垂直滯流式 MOCVD 反應器基本構形示意圖。

為基本圓柱形之反應器，除晶圓上方之浮力誘生之迴流外，肩部亦會出現流道突張產生之迴流，後者可以圖 3(b) 之錐形或鐘形構形設計消除之。圖 3 中之流場結構亦會因反應器壁之溫度控制而有變化。

無旋轉效應之 MOCVD 反應器中之熱流結構，在某些條件下可能有遲滯 (hysteresis) 現象發生。Fotiadis 等人⁽¹²⁾ 針對 GaAs 之 MOCVD 磊晶程序，以二維及三維之流場計算探討反應器幾何、熱傳效應對流動與厚度均勻度之影響。其中亦對旋轉效應略有述及，更發覺非線性輸送現象導致多重定常流態 (multiple steady flow states) 之存在、非軸對稱性之出現以及純三維流場之發展。熱浮力效應亦是以上各種非線性流動結構變化之重要因素。為削弱熱浮力迴流對整體流動結構之影響，可縮小氣流入口與晶圓磊晶面之距離，亦可將磊晶面與氣流倒置安排消除熱浮力作用。圖 4 所示為所謂倒置式設計方案之示意圖，圖 4(a) 中高溫晶座在上，氣流由下升起，衝向晶圓並在其上反應磊晶。此時，無熱浮力迴流出現，但晶圓支撐系統較複雜。Hanser 等人⁽¹³⁾ 之 AlN 與 GaN 薄膜磊晶即採圖 4(a) 之安排加上晶座低速旋轉 (30 rpm)，亦以數值模擬瞭解幾何與操作參數對反應器內傳輸現象之影響。圖 4(b) 中，氣流由下升起，以氣壓平衡晶圓重量使晶圓浮升數毫米，此種以氣體舉升晶圓之設計稱為浮升式磊晶 (levitation epitaxy) 反應器。由於氣流之流量 (壓力) 受限於晶圓重量之平衡，無法自由調變，且

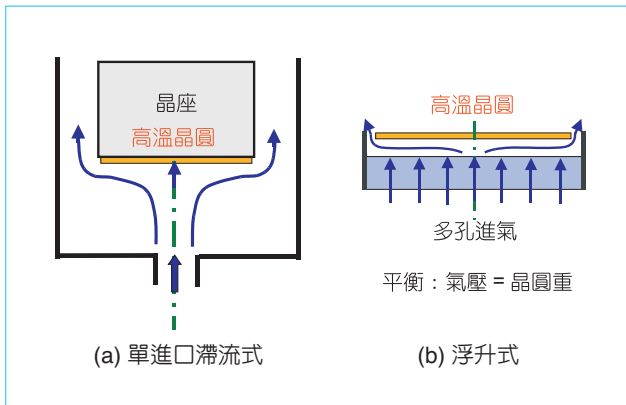


圖 4. 垂直 MOCVD 反應器氣流與晶座倒置設計。

沿晶圓外緣縫隙排出之廢流是否安定均勻攸關晶層之均勻度，需要有效之控制。

常用之滯流式反應器，其反應氣流之安排均由上而下衝擊晶圓，溫度梯度與熱浮力之出現均為必然，壓抑熱浮力迴流之形成，並作適當熱流管理以獲得均勻晶層之方案，是此種薄膜磊晶反應之關鍵。考量流動之穩定性、基板溫度反應率之均勻性、系統操作之條件等，具旋轉晶座 (substrates carrier or susceptor) 之轉盤式化學氣相沉積反應器 (rotating-disk CVD reactor) 為常用之設計。調變氣流結構亦可藉蓮蓬頭 (showerhead) 式之多孔板、晶

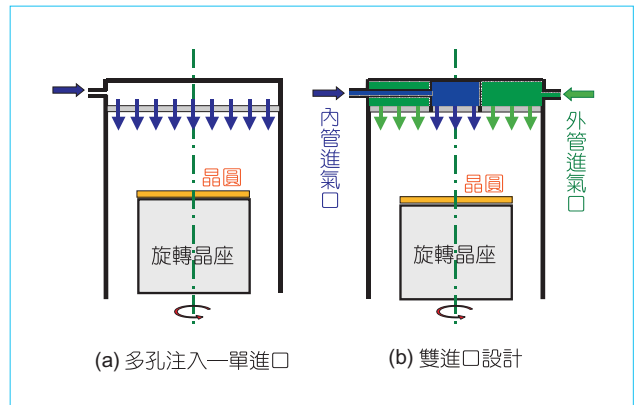
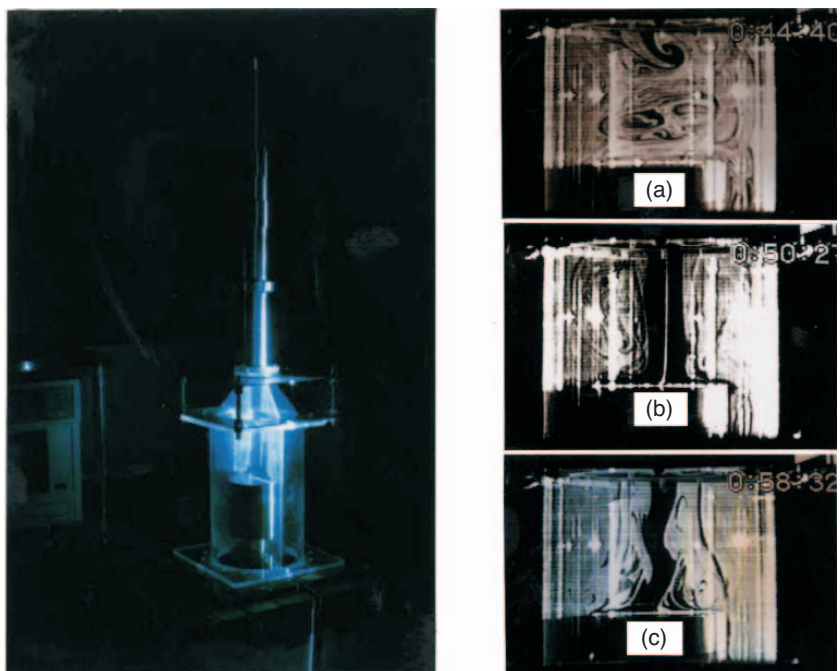


圖 5. 進口調變與旋轉晶座式 MOCVD 反應器示意圖。

座旋轉或兩者之結合設計來達成，如圖 5。晶座之轉動提供氣流之穩定作用、溫度之均勻性、增加磊晶之速率等優勢。以往諸多之研究結果證實：晶座旋轉可消除由對流所產生之迴流，因此可獲致較佳之磊晶品質。由流體動力學可知：晶座之旋轉效應可改變反應器內之流場結構，雖有穩定流場之作用，但過高之轉速亦可能導致流動之不穩定。圖 6 為 Soong 等人⁽¹⁴⁾ 提出晶座旋轉效應影響磊晶反應器內熱流場穩定之實驗驗證。圖左為視流觀測實驗儀，透明反應器模型內之氣流場含煙粒子，以雷射光頁照明顯像。右圖 (a) 顯示無旋轉效應時不規則

圖 6.

晶座旋轉效應對單進口 MOCVD 反應器內熱流場穩定之影響。左為視流觀測實驗儀，右圖 (a) 無旋轉效應；(b) 低轉速之穩定作用；(c) 高轉速誘發振盪。



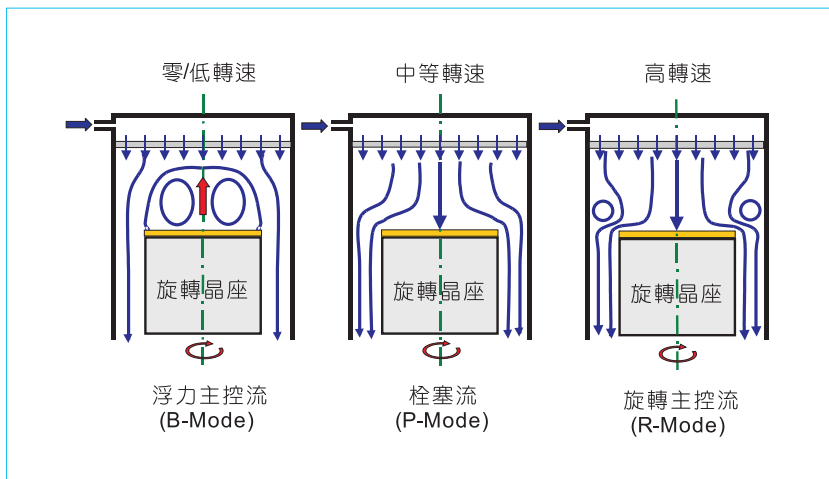


圖 7. 多孔進氣垂直式 MOCVD 反應器流動型態示意圖。

之流場；當晶座以一適當轉速旋轉，對流場產生一穩定作用，如圖 (b)；過高轉速則會誘發如圖 (c) 之流場振盪現象。晶座旋轉速率之快慢對垂直式 MOCVD 反應器內氣體流動之影響，可略分為三種模式⁽¹⁵⁾。Soong 等人⁽¹⁶⁾ 以圖 5(a) 所示之單晶座反應器為例，詳細說明熱流結構隨晶座轉速之變化以及圖 7 中三種流動模式特性如下。

(1) 熱浮力主控流動模式

熱浮力主控流動模式 (buoyancy-dominated flow mode, B-mode) 的流動結構之浮力流胞 (buoyant flow cell) 所覆蓋之晶圓表面僅能由擴散效應獲得反應氣流成分，晶層均勻度極差。當晶座旋轉速率漸增，由晶座之旋轉可將晶圓表面氣流徑向朝外推出，造成晶圓表面中央之局部低壓，因而吸引反應氣流向內趨向晶圓中心。此一作用壓制向上之熱浮力及其效應所產生之迴流，致使熱浮力迴流逐漸縮小。

(2) 栓塞流模式

晶圓表面之熱浮力效應隨晶座轉速增高而減弱。當晶座旋轉速率漸漸增高，達一臨界值，覆蓋晶圓表面之浮力流胞消失，氣流之結構為由上至下之氣幕，如同塞子般推向下，其間無迴流出現，即為栓塞流模式 (plug flow mode, P-mode)。

(3) 旋轉主控流動模式

晶座旋轉速率續增，則因離心力增強，在近晶

圓外緣之反應器壁上形成軸向壓力梯度，阻礙近壁氣流向內，發生流動分離現象並形成一環型渦 (toroidal vortex)。此時流場型態為旋轉效應所主控，稱之為旋轉主控流動模式 (rotation-dominated flow mode, R-mode)。此模式若轉速過高，則會由旋轉晶座之外緣處逐漸發源出流場之失穩現象，如：非定常渦 (unsteady vortex)，週期振盪 (periodic oscillation)，甚至紊流 (turbulence)。

為提高晶層品質，旋轉盤式 MOCVD 反應器亦有採雙 (多) 進口之設計。不同成分氣體輸入之 MOCVD 製程中，未達磊晶面前之氣態反應為寄生預反應 (parasitic pre-reaction)，會消耗原料，必須避免。設計上可採多進口成分分離式輸入，但也必須考慮使反應氣體在進口與晶圓間之行程中完成混合。例如：Safvi 等人⁽¹⁷⁾ 以同軸雙進口反應器成長 GaN 薄膜，其中內管輸入載子氣體 H_2 與 $TMGa$ ，外管輸入 H_2 與 NH_3 。此一分離式進氣之安排可避免 $TMGa$ 與 NH_3 在反應室內先行反應。Theodoropoulos 等人⁽¹⁸⁾ 探討 III-N 薄膜製程中雙、三、四進口之設計對成分分布與磊晶率之影響。

單成分原料輸入之 GaAs 薄膜磊晶無須考慮前述兩成分之預反應，但是雙進口設計可調變進氣之動量與成分分布，有利於磊晶均勻度之提升。Soong 等人⁽¹⁶⁾ 於其大晶圓磊晶熱流動力學研究中，首先提出雙進口質流調控於 12 吋大晶圓磊晶之應用，並有詳細之剖析。

3. 混合式磊晶反應器

混合式反應器此處定義為具垂直式構形、但具平行流特性之反應器。前述浮升式反應器亦可歸屬於此類。圖 8 所示之桶型 (barrel type) 反應器，此種設計早年用於矽磊晶，八〇年代小型之桶型反應器有用於 GaAs 薄膜之磊晶。由圖可知：為補上下游磊晶生長率之差，流道取類似傾斜晶座之漸縮型設計，不同的是，此一安排中，熱浮力之作用方向不同，對磊晶均勻度之害不若水平式設計嚴重。此外，為增進各晶圓間之晶層均勻度 (wafer-to-wafer uniformity)，亦可使晶座低速旋轉。

由於單一大面積晶圓磊晶之均勻度不易控制，多片小晶圓反應器之設計應運而生。多晶圓行星型反應器 (multi-wafer planetary reactors) 為近年發展之混合式薄膜磊晶反應器。圖 9 為一多晶圓、雙流進入之行星型反應器，此設計為以大型晶座作為多晶圓載台，例如：八片 6 吋晶圓。反應氣體可由反應器上蓋之中央單孔或雙進口進入後，以輻射狀徑向外流，經過各晶圓磊晶面。晶座以射頻感應加熱器 (RF induction heater) 加熱，並作低速旋轉 (例如：10 rpm)，而各晶圓亦作自轉。低轉速之公轉與自轉是為使晶圓表面均勻遍歷各處氣流流況，磊晶層可達高均勻度，長晶效率亦可提高；同時，低轉速與低進氣速度可得低紊度之層性氣流，可致使材料成分控制精確以及明確之晶格界面。此一雙旋轉、小面積磊晶 (一般均為 3 吋、5 吋、6 吋晶圓) 製程，較易得極高之磊晶均勻度；而多晶圓設計是

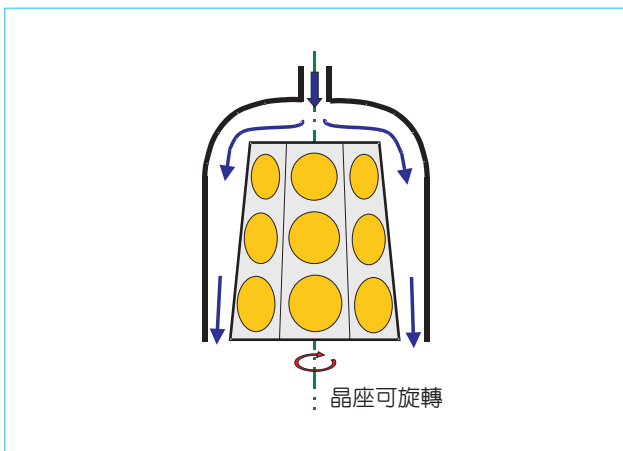


圖 8. 桶型氣相磊晶反應器。

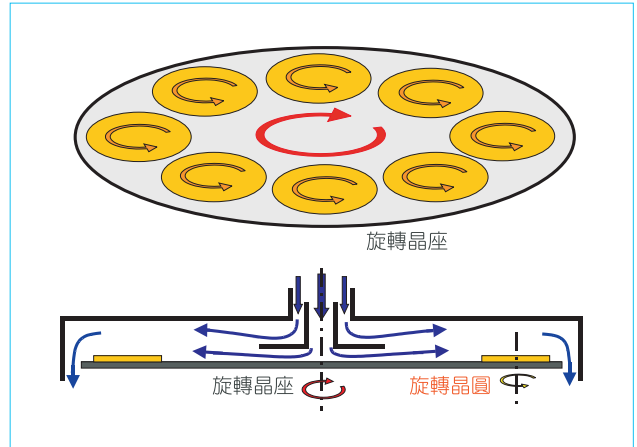


圖 9. 雙進口行星型多晶圓 MOCVD 反應器。

極有利於使此反應器成為主流量產設備。由 Juergensen⁽⁴⁾ 發表之實驗數據可知：以此種多晶圓行星型反應器作 *p*-HEMT 與 HBT 結構之成長，GaAs 之 *n*-型與 *p*-型摻雜在晶圓上之均勻度分別可達 1.24% 與 1.1%；同一運轉之晶圓—晶圓間可重複性 (wafer-to-wafer reproducibility) 可達 0.4% 與 0.7%；在 6 吋晶圓上成長厚度 2 μm 之 $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ 薄膜，其厚度均勻度可高達 0.17%。單片 12 吋與 16 吋晶圓面積分別等於四片與七片 6 吋晶圓，但是若欲由單晶座反應器執行此一大面積磊晶，從熱流動力學觀點而論，厚度均勻度在 1% 以內之晶層品質為極高之挑戰。另一方面，相較於單晶座旋轉盤式 MOCVD 反應器，多晶圓行星型反應器系統較為複雜、價格較昂貴，與晶圓自動處理裝備之整合性也不若單晶座設備佳。

五、大晶圓磊晶之熱流結構與磊晶均勻度

依前所述，反應器中之動量、熱量與質量傳輸表現於熱流結構之型態。由於氣流特性，大型晶圓之磊晶均勻度不易達到。欲於大面積磊晶獲得較佳之效果，須對大晶圓磊晶時之熱流結構與磊晶品質之關係有深入瞭解，以優越之熱流設計與適當之熱流調控技術方能奏效。本節中，筆者將以近年在 12 吋 (300 mm) 晶圓之旋轉盤式 MOCVD 製程相關研究結果為例，說明反應器中不同操作條件下之熱

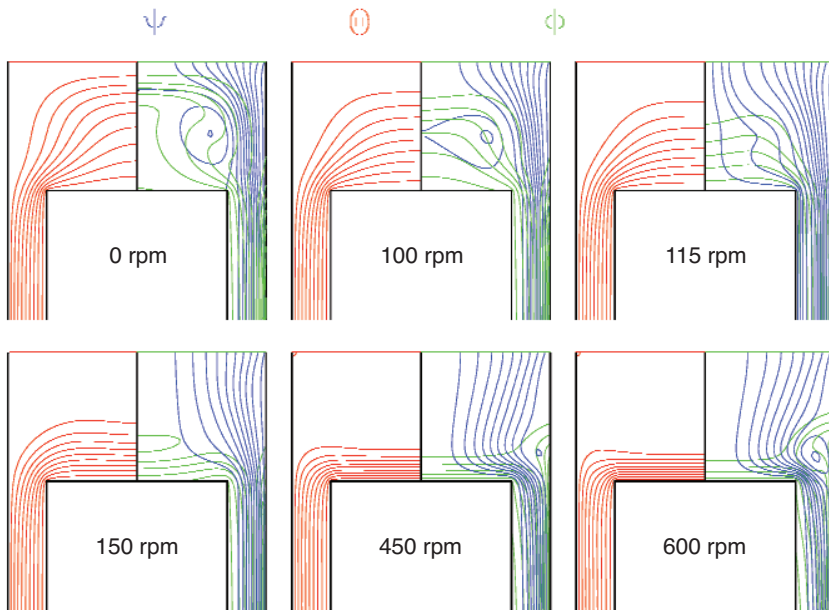


圖 10.

多孔注入垂直式晶座旋轉 MOCVD 反應器內 300 mm 晶圓 GaAs 磊晶程序之流線 (藍)、溫度 (紅) 與 TMGa 濃度 (綠) 分布。流量 = 60 slpm、進口壓力/溫度 = 0.05 atm/300 K，基板溫度 = 900 K。

流結構與傳輸性質，並述及熱流穩定性、磊晶速率與晶層均勻度等論題。

1. 熱流結構與傳輸性質

以圖 5(a) 之多孔注入垂直式晶座旋轉 MOCVD 反應器為例，考慮 GaAs 磊晶於 300 mm 晶圓之上，流量為 60 slpm、進口壓力與溫度分別為 0.05 atm 與 300 K，基板溫度為 900 K。圖 10 顯示數值模擬之流線 (Ψ) 型態、溫度 (Θ) 與 TMGa 濃度 (Φ) 分布等結果。此一模擬主要為探討晶座旋轉之效應。由結果可知轉速為 0 與 100 rpm 時，晶圓上方因熱浮力而生之對流胞阻礙新進反應氣體接觸磊晶面，溫度與 TMGa 濃度分布呈現等值線稀疏之低變化梯度，顯示磊晶率低，為典型之 B-mode 流場。當轉速增為 115、150 rpm 時，明顯看出氣流場屬無熱浮力對流胞之 P-mode，由 TMGa 濃度 Φ 之等值線圖可知晶圓面上梯度已有增高，但晶圓外緣之等濃度線上揚、梯度降低，因此外緣之磊晶速率明顯低於晶圓中央。將轉速提升至 450 與 600 rpm，離心力誘生之壁面渦出現，將外圍之進氣流線壓向盤緣，增高晶圓外緣磊晶面上質量傳輸之對流效應，進而提升其反應率以及磊晶層之均勻度。

轉速調變以增進磊晶品質之作法在 0.1 atm 或更低之低壓操作條件下極為有效，但在較高之操作

壓力，如圖 11 進口壓力增為 0.2 atm 時，無法奏效。壓力增高則密度亦增，熱浮力與離心力等與密度相關之效應均愈形顯著。較強之熱浮力效應需要較強之旋轉效應，Soong 等人⁽¹⁹⁾ 之研究結果顯示：轉速 250 rpm 尚未足以消除熱浮力胞，但其離心力已造成晶座外緣之非定常渦，導致流場不穩定。也由此可見，操作壓力如何影響旋轉盤式 MOCVD 製程，而為重要因素之一。

以上所述之熱浮力、離心力均與晶圓尺度有密切關聯。浮力參數 Ra 與特徵長度成三次方正比，除非刻意壓縮進口置晶座之高度 (如行星型多晶圓 MOCVD 反應器)，否則大晶圓之反應器尺寸較大，浮力作用較強。至於離心力與半徑成一次方正比，如果在低轉速時無法消除此強熱浮力，則逕行提高轉速可能先使流場產生振盪或不穩定現象。

2. 熱流結構轉變之臨界條件

早期旋轉晶座式 MOCVD 反應器之熱流管控觀念是以達到栓塞流模式為目的，Soong 等人 (1998)⁽¹⁶⁾ 之研究提出一重要觀念，即未失穩之旋轉主控流動所產生之環型渦可作為調整磊晶均勻度之用。圖 12 為單進口旋轉盤式 MOCVD 反應器熱流場結構與操作參數之關係，此處參數 $Gr = g\beta\Delta TR_0^3/\nu^2$ 為浮力參數， $Re_{eff} = (Re^2 + Re_\Omega^2)^{1/2}$ 為衡量主流與

旋轉流慣性合成之等效 Reynolds 數，而 $Re_{\Omega} = R_o^2 \Omega / \nu$ 為旋轉 Reynolds 數，代表旋轉力之效應，其中 R_o 為反應室半徑。此種無因次參數表示方式使得此一熱流結構變化準則有較大之適用性。圖中三流動模式有三條界線 (marginal Curves)：

$$I : Gr/Re_{eff}^2 = 20(Re_{eff}/Re)^{-1.2}$$

(B-mode 與 P-mode 之界線)

$$II : Re_{eff}/Re = 35$$

(P-mode 與 R-mode 之界線)

$$III : Gr/(Re_{eff}/Re) = 1.66 \times 10^{-4} (Re_{eff}/Re)^2 - 30 \exp[-0.081(Re_{eff}/Re - 35)]$$

(R-mode 與 B-mode 之界線)

分隔三區。最佳操作條件應為進入 R-mode 之後，又未達旋轉不穩定時，約在圖 12 斜線標示之區域。Weyburne and Paduado⁽²⁰⁾ 晚近改良 Brailand and Evans⁽²¹⁾ 之作法，提出一新熱流穩定準則，作為轉盤上流動浮力胞消失之臨界條件。此一準則與 Biber 等人⁽¹⁵⁾ 結果接近，但在某些情況時失效，其有效性尚待深究，但以其經實驗驗證之案例 (He 為載子氣體，620 torr 之操作壓力) 繪如圖 13，其顯示若基板盤面溫度愈高，達到流動穩定所需之轉速即愈高。原則上，此圖為一特定情況之結果，其量化數據並無普適性，但此定性趨勢合理，可供參考。

3. 熱流結構與磊晶層均勻度

由以往之研究可知：單晶座單進口 MOCVD 反應器中大面積之磊晶，即使採用多孔進氣與旋轉晶座，達到 1% 之晶層均勻度仍為一具難度之挑戰。本節將以 Soong 等人 (1998)⁽¹⁶⁾ 同軸雙進口氣流流量與濃度調變之設計說明之。研究目標為圖 5(b) 之雙進口旋轉晶座反應器，原料進口多孔板距晶座之距離等於反應器半徑 $R_o = 215$ mm，內管之半徑為 $0.3 R_o$ ，晶圓半徑為 $0.7 R_o = 150$ mm。圖 14 係其模擬結果，其中有不同內外進口流量、濃度以及晶座轉速之六個案例，但總進氣量均定為 60 slpm 作為比較之基礎。在此一晶座溫度 900 K 之高溫磊晶製程，薄膜成長率為傳輸速率決定，故反應物 TMGa 之質傳率可視為薄膜成長厚度之表徵。圖中質傳參數 Sh (Sherwood Number) 之定義為無因次之質量擴散係數與濃度梯度之乘積；RGR = $Sh/Sh_{r=0}$ 表磊晶層之相對成長率 (relative growth rate, RGR)，為局部質傳率與晶圓中心質傳率之比；而均勻度以 $flatness = (RGR - 1) \times 100\%$ 表之。圖 14 之 Cases 1 與 2 之內外管即對應均勻進氣之單進口，在此二轉速 (150、200 rpm) 條件下，流場均為 P-mode，但磊晶層之均勻度均未達 2% 以內。檢視 Cases 1 與 2 發覺晶圓外緣之成長率高於中心，若降低外管進口之流量 (流速) 應可改進。Cases 3 至 6 即將外管流率由 54.6 降為 45 slpm，磊

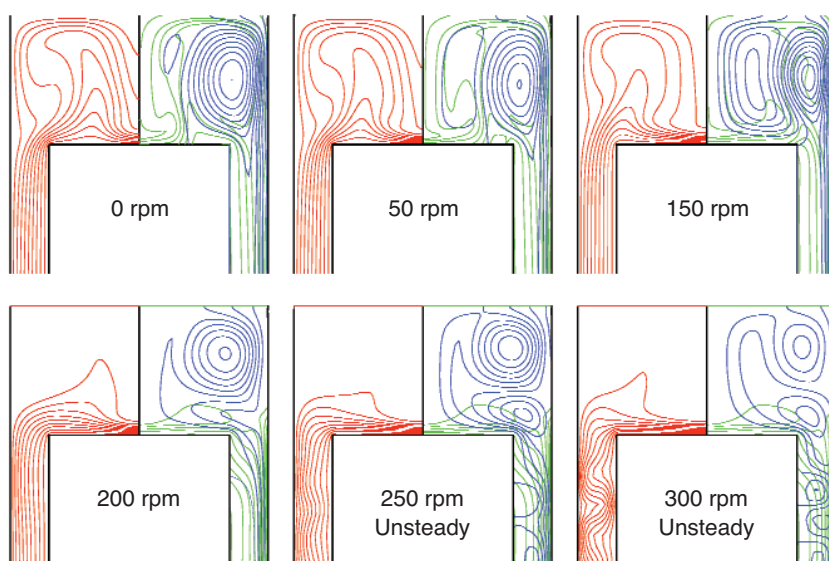


圖 11.

多孔注入垂直式晶座旋轉 MOCVD 反應器內 300 mm 晶圓 GaAs 磊晶程序之流線 (藍)、溫度 (紅) 與 TMGa 濃度 (綠) 分布。流量 = 60 slpm、進口壓力/溫度 = 0.2 atm/300 K，基板溫度 = 900 K。

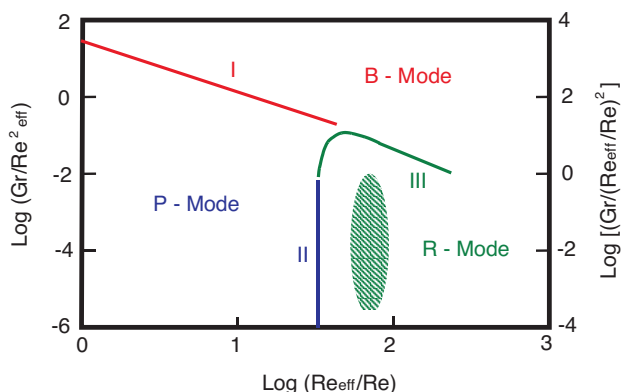


圖 12. 垂直式 MOCVD 熱流場結構與操作參數之關係⁽¹⁶⁾。

晶均勻度果然獲得改善；其中 Case 3 (200 rpm) 之晶層厚度在 90% 的晶圓面積 (即 0.63 R_0 範圍內) 之晶層均勻度均達 0.7% 以內。

此一研究結果顯示：300 mm 大晶圓之磊晶品質可藉雙進口進料之流量及濃度 (視需要) 之調變達成，晶座旋轉是必需之機制，以便將熱流場結構調至 R-mode，但由於晶座 (晶圓) 半徑大，旋轉速率無需太大。

六、結語

本文綜合評論各式 MOCVD 薄膜磊晶反應器內氣體動力特性以及熱流管控設計。反應器之設計、製程參數之決定均與反應器內流、熱、質之傳輸與耦合作用密不可分。適當之反應器構形設計、壓制熱浮力作用以及利用晶座旋轉與多進口設計等方式調控反應器內氣流之速度、溫度以及濃度分布可增進反應速率與磊晶層之均勻度。然而，高溫之 MOCVD 反應器中，速度、溫度、濃度之局部分布不易測得，數值模擬為熱流動力分析 (thermal-fluid dynamics analysis) 必要之分析工具⁽²²⁾。以上所論者為反應器尺度 (reactor-scale) 之巨觀性質，若考慮具階梯或溝渠等微結構之磊晶品質，微觀之氣體動力特性分析成為重點。DSMC (direct simulation monte carlo) 數值模擬 (如參考文獻 23) 或是分子動力模擬 (molecular dynamics simulation) 可作為探討前述微觀傳輸與磊晶程序之工具。在量測方面，速度、溫度、濃度局部分布在地量測技術 (*in-situ*

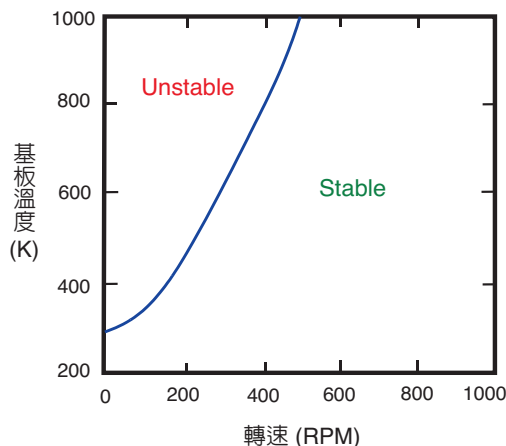


圖 13. 垂直式 MOCVD 反應器內載子氣體 He 壓力 260 torr 為例之熱流穩定準則⁽²⁰⁾。

measurement techniques) 之發展對獲得實際數據瞭解細部熱流動力特性甚有助益，並可作為數值模擬模式之驗證與分析評估。此外，Sujiono 等人⁽²⁴⁾ 在最近一項 YBCO 超導薄膜磊晶於 (100) MgO 基板之研究中發覺：不同基板溫度之磊晶結果顯示薄膜晶層之方向性相異，該文未能提出合理說明，但猜測與基板溫度之熱效應以及反應氣體之流動方向有關。此一製程熱流場參數對晶層結構之影響有待於前述微觀傳輸之研究深入探討之。

本文所述之各項論點有助於 MOCVD 磊晶設備之構形設計、製程熱流設計與參數調變，對未來 MOCVD 製程之持續精進極有意義。此外，文中所討論之流、熱、質耦合機制與各種解決方案亦可作為其他機電裝備、儀器中熱流管控設計之參考。

參考文獻

1. M. L. Hitchman and K. F. Jensen (editors), *Chemical Vapor Deposition - Principles and Applications*, Academic Press, London, UK (1993).
2. D. T. J. Hurle (editor), *Handbook of Crystal Growth*, 6 Volumes, Elsevier Science, Amsterdam, Netherlands (1993-1994).
3. H. Juergensen, *Materials Science in Semiconductor Processing*, **4**, 467 (2001).
4. A. G. Thompson, *Materials Letters*, **30**, 255 (1997).
5. 林蔚, 科儀新知, **24** (2), 13 (2002).
6. K. F. Jensen, Fundamentals of Chemical Vapor Deposition, in *Chemical Vapor Deposition - Principles and Applications*, M. L. Hitchman and K. F. Jensen (editors), Academic Press, London, UK, 31 (1993).

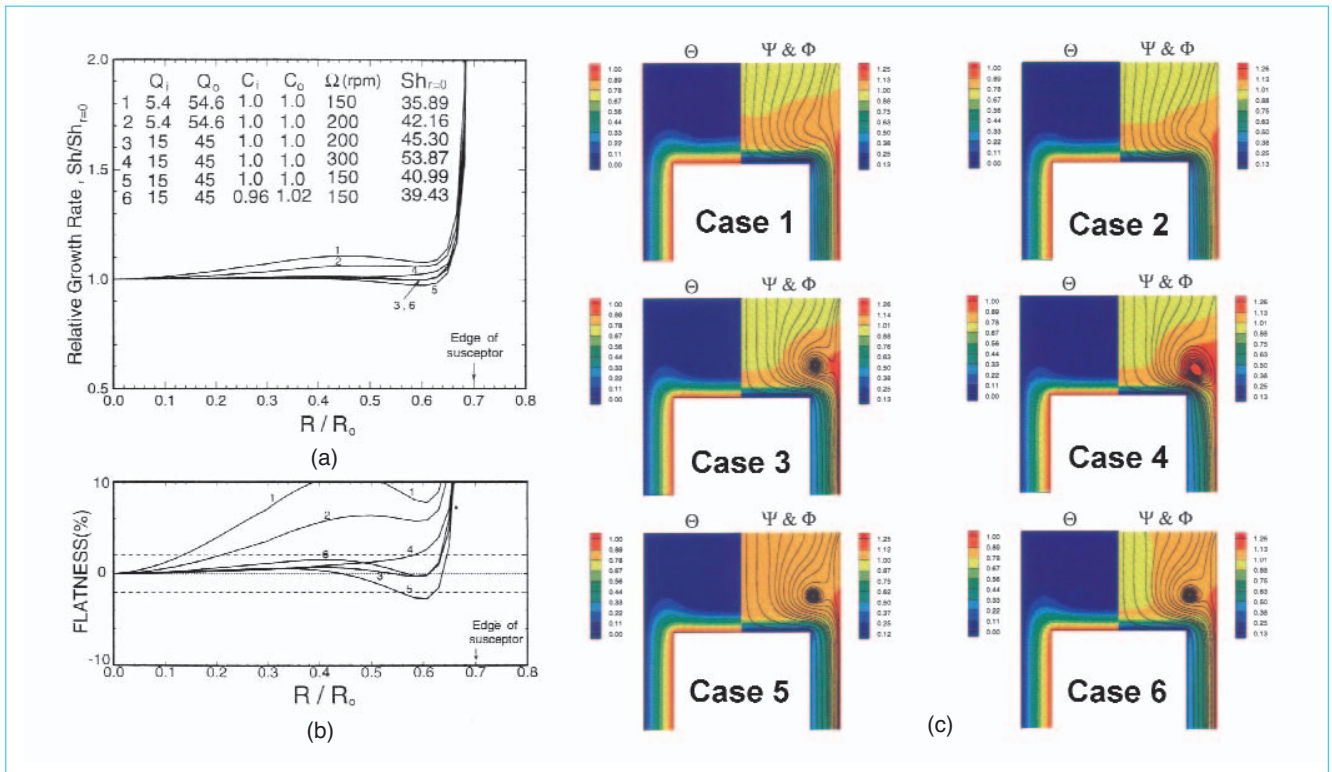


圖 14. 多孔注入垂直式晶座旋轉 MOCVD 反應器內 300 mm 晶圓 GaAs 磊晶雙進口氣流流量成分調變之磊晶生成率與均勻度。流量 = 60 slpm、進口壓力/溫度 = 0.1 atm/300 K，基板溫度 = 900 K⁽¹⁶⁾。

- X. Nicolas and A. Mojtabi, *Phys. Fluids*, **9** (2), 337 (1997).
- D. I. Fotiadis, M. Boekholt, and K. F. Jensen, *J. Crystal Growth*, **100**, 577 (1990).
- V. S. Ban, *J. Electrochem. Soc.*, **125** (2), 317 (1978).
- D. K. Choi, C. Y. Lee, and C. R. Lee, *J. Crystal Growth*, **236**, 113 (2002).
- R. Tena-Zaera, I. Mora-Sero, C. Martinez-Tomas, and V. Munoz-Sanjose, *J. Crystal Growth*, **240**, 124 (2002).
- D. I. Fotiadis, *Two- and Three-Dimensional Finite Element Simulations of Reacting Flows in Chemical Vapor Deposition of Compound Semiconductors*, Ph.D. Thesis, University of Minnesota, MN, USA (1990).
- A. D. Hanser, A. D., C. A. Wolden, W. G. Perry, T. Zheleva, E. P. Carlson, A. D. Banks, R. J. Therrien, and R. F. Davis, *J. Electronic Materials*, **27** (4), 238 (1998).
- C. Y. Soong, C. S. Jou, and C. H. Chyuan, *Proceedings of the First Pacific Symp. on Flow Visualization and Image Processing*, S. Mochizuki (editor), Pacific Thermal Fluids Engineering Center, 307 (1997).
- C. R. Biber, C. A., Wang, and S. Motakef, *J. Crystal Growth*, **123**, 545 (1992).
- C. Y. Soong, C. H. Chyuan, and R. Y. Tzong, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37** (10), 5823 (1998).
- S. A. Safvi, J. M. Redwing, M. A. Tischler, and T. E. Kuech, *J. Electrochem. Soc.*, **144** (5) 1789 (1997).
- C. Theodoropoulou, T. J. Mountaziaris, H. K. Moffat, and J. Han, *J. Crystal Growth*, **217**, 65 (2000).
- C. Y. Soong and R. Y. Tzong, *J. Flow Visual. Image Processing*, **7**, 9 (2000).
- D. W. Weyburne and Q. Paduano, *J. Crystal Growth*, **240**, 569 (2002).
- W. Brailand and G. Evans, *J. Electrochem. Soc.*, **138**, 1806 (1991).
- C. Y. Soong, *Invited Papers of Mini-Symposium - Industrial Applications of CFD*, The Sixth National CFD Conference, Taitung, Taiwan, ROC (1999).
- Y. Akiyama, S. Matsumura, and N. Imaishi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **34** (1-11), 6171 (1995).
- E. H. Sujiono, P. Arifin, and M. Barmawi, *Mat. Chem. Phys.*, **73**, 47 (2002).

• 宋齊有先生為國立清華大學動力機械工程博士，現任逢甲大學航太與系統工程學系教授。

• Chyi-Yeou Soong received his Ph.D. in power mechanical engineering from National Tsing Hua University. He is currently a professor in the Department of Aerospace and System Engineering at Feng Chia University.