

MOCVD 反应器的最佳输运过程及其优化设计*

左 然^{1,†} 李 晖^{1,2}

(1 江苏大学能源与动力工程学院, 镇江 212013)

(2 集美大学机械工程学院, 厦门 361021)

摘要: 根据 MOCVD 过程薄膜生长的基本要求, 总结出各种 MOCVD 反应器普遍适用的最佳输运过程的 5 个条件, 即均匀浓度边界层、均匀速度边界层、均匀温度边界层、分隔进口但反应前混合均匀、以及迅速排出尾气不再发生混合。对照最佳输运过程条件, 分别对水平式、行星式、垂直喷淋式、高速转盘式反应器进行了分析和讨论。水平式反应器的主要问题是反应物的沿程损耗、热对流涡旋以及侧壁效应, 造成基片沿横向和纵向的厚度和浓度不均, 因此只适合实验室应用。垂直式反应器通过高速旋转或近距离喷射, 可以均匀分配反应物浓度, 并抑制热对流涡旋。其主要困难是反应后的尾气不能及时排出, 从而仍存在径向浓度不均, 造成基片沿径向的厚度和浓度的波动。商用的垂直式反应器还面临托盘直径进一步扩大的难度。文章为 MOCVD 反应器的控制和设计提供了重要的参考依据。

关键词: 金属有机化学气相沉积; 薄膜生长; MOCVD 反应器设计; 输运现象; 优化条件

PACC: 8115H; 4725Q

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2008)06-1164-08

1 引言

金属有机化学气相沉积(MOCVD)是制备化合物半导体光电器件, 包括蓝光 LED、大功率激光器以及 GaAs 太阳能电池等的关键工艺^[1~3]。在 MOCVD 过程中, 反应气体从气源被引入反应腔, 利用加热、光照等引发化学反应, 从而在基片上生长单晶或多晶薄膜。MOCVD 的输运过程是指反应器中的热量、质量和动量的传输, 即传热、传质和流体流动。由于薄膜生长所需的反应前体必须依靠气体“输运”到达生长表面, 因此了解并控制 MOCVD 反应器的输运过程, 对于获得满足器件要求的薄膜质量和生长速率至关重要。

经过科研人员 30 多年不懈的努力, 对于 MOCVD 反应器内部的输运过程已经有了初步的了解^[3~8], MOCVD 反应器的设计也从单纯依靠经验积累变成在理论指导下的计算机仿真设计。但是迄今为止, 关于 MOCVD 反应器的输运现象和过程控制, 基本上分隔和局限在不同的反应器类型, 有必要对各种类型反应器的输运过程进行综合分析和对比, 由此提出统一的 MOCVD 反应器的输运过程的优化条件, 从而为 MOCVD 反应器的设计提供参考依据和指导。

本文首先根据薄膜生长的基本要求, 总结出 MOCVD 反应器应满足的几条最佳输运过程条件。然后针对传统的水平式和垂直式、以及近年来被业界广泛采用的行星式、垂直喷淋式和高速旋转式反应器, 逐一进行分析和讨论, 对比各种反应器的优劣, 验证其是否满

足最佳输运过程条件, 并从中寻找反应器设计的规律。在讨论中也介绍了作者近年来在行星式三重流反应器和反向流动垂直喷淋式反应器方面的研究。最后在上述讨论的基础上, 将目前广泛应用的 4 种反应器列表, 对它们是否满足最佳输运过程条件进行了概括。在讨论各种反应器的输运过程时, 引用的资料分别来自计算机模拟、流场可视化实验以及与实际薄膜沉积结果的对比。

2 MOCVD 反应器的最佳输运过程条件

根据主气流相对于基片的流动方向, 可以把 MOCVD 反应器分为两大类: 主气流平行于基片方向的水平式反应器(大多数 MOCVD 中的基片都是水平放置)和主气流垂直于基片方向的垂直式反应器。图 1 示出常用的 4 种 MOCVD 反应器类型, 其中行星式反应器可看作水平式反应器的改进形式。

无论是何种反应器, MOCVD 薄膜沉积过程都包含以下步骤(见图 2):

(1) 载气携带着反应物从反应器进口流向反应器出口, 此主气流流动受到温差、流道扩张、基片旋转等引起的二次流的强烈影响; (2) 主气流在基片上方形成平行于基片的 3 种边界层(流速、温度和反应物浓度明显变化的 3 个薄层), 在边界层内, 反应物被加热, 发生热解、置换等气相化学反应, 生成反应中间物; (3) 反应物或反应中间物通过对流和浓度扩散, 穿过边界层到达基片表面; (4) 反应物在基片表面吸附, 再通过表面扩散、结合入晶格等表面反应步骤完成薄膜沉积; (5) 反应物和反

* 国家自然科学基金资助项目(批准号: 60376006)

† 通信作者. Email: rzuo@ujs.edu.cn

2007-10-16 收到, 2007-11-14 定稿

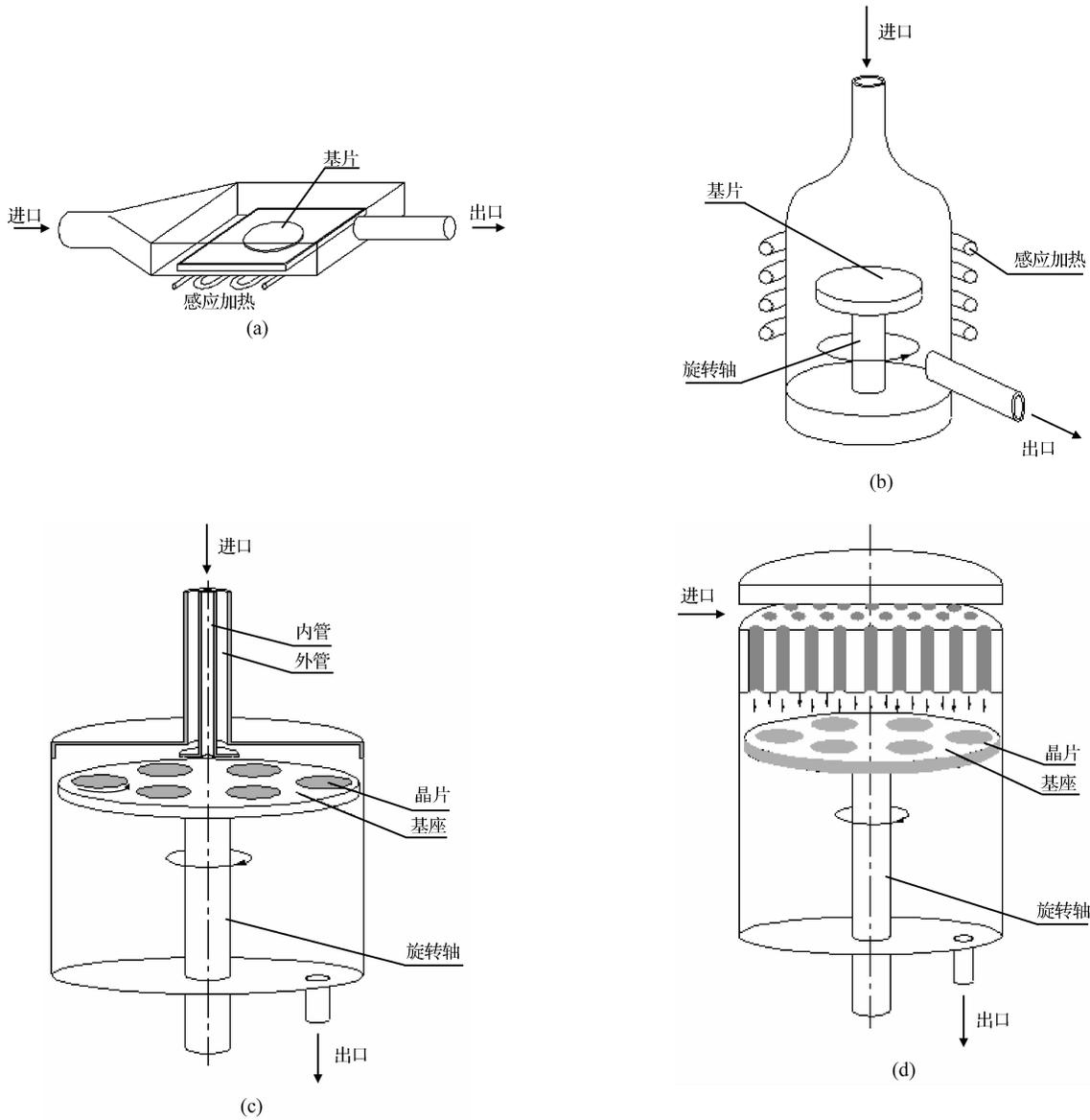


图 1 常用的 4 种 MOCVD 反应器类型 (a)水平式;(b)垂直式(RDR);(c)行星式;(d)垂直喷淋式

Fig.1 Schematic of four types of MOCVD reactors (a)Horizontal;(b)Vertical (RDR);(c)Planetary;(d)Showerhead

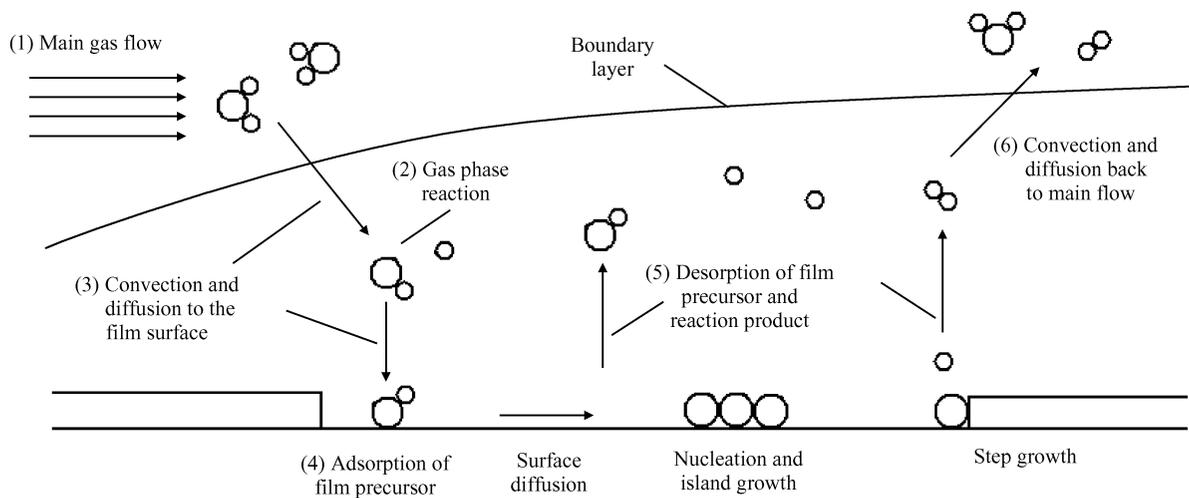


图 2 MOCVD 从气体运输到薄膜生长的主要步骤示意图

Fig.2 Main steps from gas transport to film growth in MOCVD process

副产物(尾气)在表面解吸(脱附);(6)解吸后的反应副产物再通过对流和浓度扩散,回到主气流,最终被带到反应室外。

在 MOCVD 过程中,表面化学反应速率通常远大于反应物的输运(对流和扩散)速率,因此薄膜的生长速率取决于分子量最大的反应物输运到表面的速率(例如在 GaN 生长中,生长速率取决于 TMGa 的输运速率);另一方面,薄膜生长的组分和厚度主要取决于基片上方的反应物浓度分布和温度分布.即无论薄膜生长的速率还是质量,都强烈地受气体输运过程的影响,因此称生长为输运过程控制.在讨论输运过程时,我们主要关注边界层内的对流和扩散,因为气体的各种物理和化学变化都主要发生在这一薄层内(实际为 3 个厚度相近的薄层).边界层是流动的而非滞止的,边界层内同时发生着宏观对流和微观的分子扩散、热量扩散和动量扩散。

根据薄膜生长所需的组分均匀、厚度均匀、缺陷少、生长速率高等要求,可总结出以下 5 条 MOCVD 反应器的最佳输运过程条件:

(1)必须在基片上方提供一个厚度薄而均匀的反应物浓度边界层,使足够量的反应粒子能够通过扩散源源不断地到达基片表面各点.因为在生长过程中,只有输运到基片各部位的反应粒子及掺杂粒子速率都相等时,才能满足薄膜的组分和厚度均匀性的要求.边界层厚度薄,则浓度梯度大,从而加快扩散速率。

(2)由于反应物浓度边界层强烈地受气体流动的影响,因此基片上方还需要维持一个厚度薄而均匀的速度边界层.速度边界层的流场应保持为均匀平行层流,避免任何波动、湍流和对流涡旋。

(3)由于气体的流速和浓度还与气体温度有关,因此还必须在基片上方提供一个厚度薄而均匀的温度边界层(对于气体来说,3 种边界层厚度相互关联而且近似相等),温度场应以大的温度梯度递减.基片及其紧邻上方的高温区是气相和表面化学反应发生的基本条件,而上壁保持低温可以避免在其上发生寄生反应;大的温度梯度还可产生热泳力,从而排斥大分子量的杂质粒子。

(4)反应后的尾气应尽快离开生长区,避免与反应气体再混合,从而产生有害的寄生反应.为此应减少气体的滞留时间,并消除回流涡旋.加大流速显然可以减少滞留时间并抑制涡旋,但却造成宝贵的源气体浪费,流速过大还将引起湍流.另一方法是降低压强,但该方法受到反应物平衡压强的限制.在 MOCVD 反应器中,压强通常大于 10^4 Pa。

(5)为避免反应物预沉积,不同的反应气体应采用分隔进口,而分隔进口的反应气体到达基片上方后应充分混合,以有利于气相和表面化学反应的发生。

除了上面提到的对输运过程的 5 条要求外,现代的 MOCVD 反应器^[3]还要求加热的基片表面温差极小(温差约 $\pm 1^\circ\text{C}$)、加热系统热惯性小、气体可瞬时切换(阀门切换时间约 0.1s,气体切换阀门应尽可能靠近反应器进口)、反应器内流动的死区最小化、低的反应气体消耗、

生长过程具备高可重复性、一次可生长多片等.显然, MOCVD 反应器是一种多学科交叉、技术密集型的高科技产品。

3 水平式反应器中的输运现象

水平式反应器是应用最早、使用最广泛的 CVD 反应器类型^[4~8].在这种反应器中(见图 1(a)),进口和出口分别位于水平管道的两端,反应气体从基片的一端流向另一端.其主要特点是结构简单、操作方便.但水平式反应器存在几个重要的缺陷:

(1)由于气体从基片一端流向另一端,反应气体在基片沉积而不断消耗.沿着流动的路径,反应物浓度逐渐降低,生成物浓度逐渐升高.因此水平式反应器很难产生薄而均匀的浓度边界层,存在着严重的反应物消耗,造成基片前缘的组分和厚度均高于后缘。

(2)由于气流在水平流动的过程中逐渐从底部加热,因此水平式反应器存在严重的热对流涡旋.最常见的热对流涡胞有两类(见图 3):一类是纵向对称涡胞(见图 3(a)和(b)),一双对称涡胞的两个旋转轴均沿着流动方向,它们发生在 Re 数较大时.另一类是横向涡胞(见图 3(c)),即涡胞的旋转轴位于与流动垂直的水平方向,它发生在 Re 数较小时.两种热对流涡胞都将造成基片上方浓度场的波动,影响薄膜生长组分和厚度的均匀性.热对流涡胞还将增加气体滞留时间,产生流动死区,造成寄生反应。

(3)水平式反应器的两侧壁产生两个侧向边界层,影响流动的均匀性,侧壁上还容易发生寄生反应或凝结沉积。

由于上述缺陷,水平式反应器难以满足前面总结的反应器最佳输运过程的前 4 项条件,即基片上方存在均匀分层的浓度场、流场、温场,以及反应尾气尽快离开生长区、避免与反应气体再混合.为解决水平式反应器中薄膜生长存在的问题,通常采用下列改进方法^[4~8]:

(1)加大气体流速,利用强迫对流抑制浮力对流,同时获得薄的边界层.该方法尽管简单有效,但增大流速意味着增大流量,因而耗费了宝贵的源气体。

(2)使基片后缘以一定的角度抬高放置,或将反应器的顶部设计成向下游方向倾斜.二种方法都使流道高度逐渐减小,从而使流动在基片上方逐渐加速,使边界层逐渐变厚的趋势减缓,并保持了更多的新鲜反应物流向下游.但这种方法要求严格的基片倾斜角度和流速的配合,并且只能部分地补偿反应物浓度的消耗。

(3)使基片旋转,通过旋转引发剪切流来抵消浮力对流,同时使基片周向各点轮流接受同样的反应气体浓度供给.但旋转只能获得沿基片圆周方向的均匀生长,从基片中心到边缘仍存在沿径向的不均匀生长.此外,由基片旋转引发的剪切流将在基片两翼边缘分别与主流叠加或抵消,造成基片上方两翼的流动非均匀。

对于最后一个输运过程条件,即不同反应物到达基片上方后应混合均匀,水平式反应器通过在进口端和反

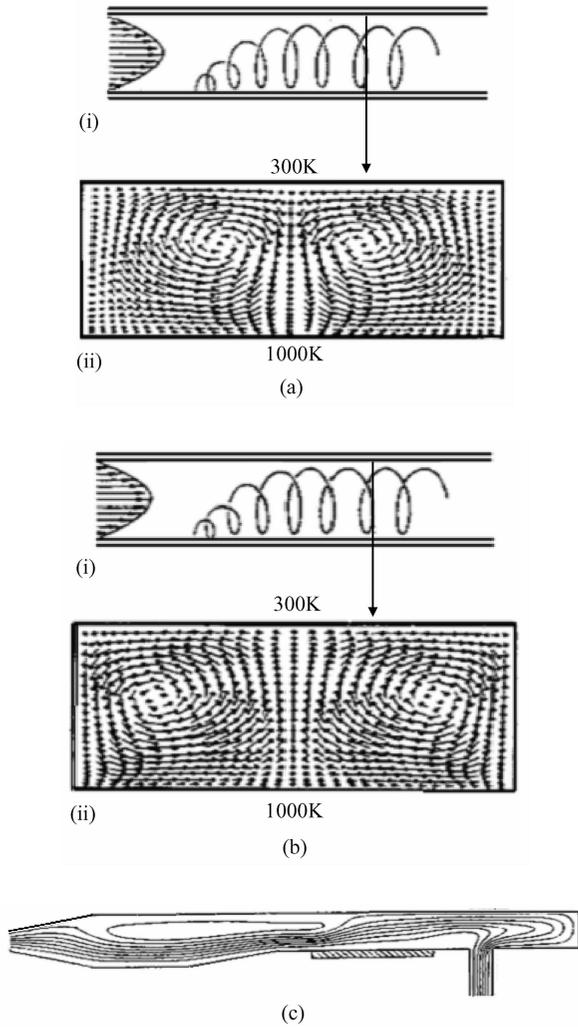


图 3 水平式反应器中的热对流涡胞(以 $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3$ 和 AsH_3 生长 GaAs 为例) (a)绝热侧壁;(b)冷侧壁(300K);(c)横向对流涡胞.其中(i)为纵向旋涡示意图;(ii)为反应器纵深 50mm 处的纵向旋涡
Fig.3 Convection rolls observed in horizontal reactors and the effect of the flow on deposition uniformity (a) Longitudinal convection roll in a reactor with insulated side wall;(b) Longitudinal convection roll in a reactor with cooled side wall;(c) Transverse convection roll^[4,5]

反应室之间连接混合管的方法,容易实现这一条件.但混合管(通常采用锥形管,长度 1m 以上)往往使水平式反应器长度过长.

由于水平式反应器存在的上述问题,显然这种反应器难以生长高质量的薄膜,也不能同时沉积多片晶片,故通常只用于实验室,不适合规模化工业生产.

4 行星式反应器中的运输现象

行星式反应器的原理最早由法国的 Frijlink^[9] 提出,德国 AIXTRON 公司将其产业化^[10,11].这种反应器属于水平式反应器的改进形式(见图 1(c)),它采用垂直多重进口、径向流动、托盘公转、晶片自转等措施,一次可沉积多达几十个晶片,并有较均匀的薄膜生长.其主要特点如下:

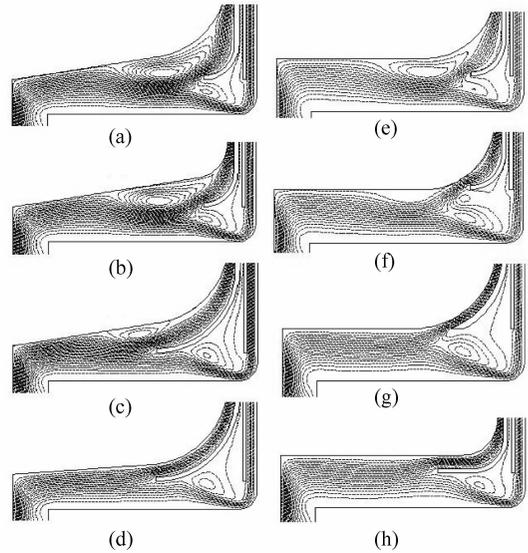


图 4 三重进口行星式 MOCVD 反应器的形状优化对流场的影响 (a)~(d)上壁稍有倾斜;(e)~(h)上壁水平 从上至下,反应器形状得到优化,上涡旋被完全抑制^[13].
Fig.4 Effect of reactor shapes on flow patterns (a)~(d) are for ceilings slightly tilted,and (e)~(h) are for horizontal ceilings. By optimizing the reactor shapes gradually from the top to the bottom,the upper convection rolls are depressed and finally disappear^[13].

(1)它可以看作是将水平反应器的两侧壁绕位于进口端附近的圆心同时向外旋转,形成一环形区域而成,从而等于取消了两个侧壁,原来单方向的水平流动演变成由中心向外圆的放射状径向流动.侧壁引起的流动停滞和寄生反应也随之消除.

(2)通过托盘的公转,使沿周向放置的多个晶片获得同样条件的来流(同样的速度、温度、浓度分布),即建立了沿托盘周向的均匀性,并且使不同的反应气体很快混合,缩短了混合长度.

(3)通过晶片的自转,获得沿晶片周向的均匀浓度混合.

(4)通过靠得很近的上下壁面,抑制对流涡旋,获得平滑层流.

(5)多重分隔进口法有效避免了反应粒子提前混合发生气相反应.

研究发现^[12~15],行星式反应器同样存在着两种类型的涡旋——由自然对流引起的涡旋和由流道截面突变引起的涡旋.自然对流引起的涡旋可通过降低压强,降低反应腔的高度,减小上下壁面的温差来削弱;而由流道扩张引起的涡旋,可通过对反应器形状和尺寸进行优化来削弱或消除.在优化过程中,应尽量使反应腔和导流管的轮廓线与流动的主气流方向平行(见图 4).模拟显示,在各种影响热对流涡旋的几何参数中,反应腔的高度以及反应腔和导流管的形状影响最大,而反应腔的直径影响较小.

由于行星式反应器的结构介于传统的水平式和垂直式反应器之间,因此它具有和上述两种反应器不同的

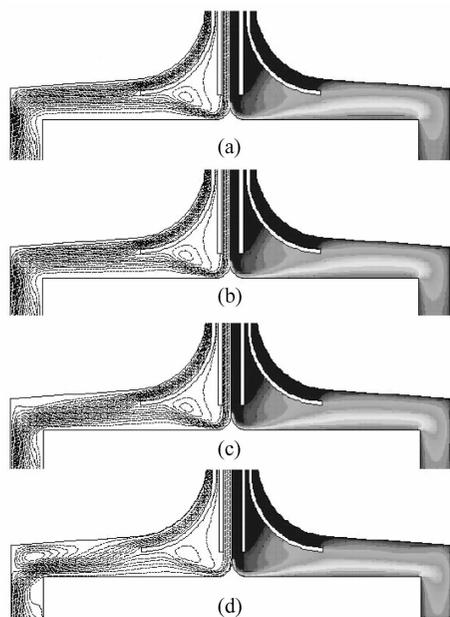


图 5 托盘旋转对三重进口行星式 MOCVD 反应器中的流场(左侧)和温场(右侧)的影响 (a) 无旋转;(b) 转速 100r/min;(c) 转速 300r/min;(d) 转速 500r/min^[13]

Fig.5 Effect of susceptor rotation on flow (left figure) and temperature (right figure) fields for an optimized reactor (a) No rotation;(b) 100r/min;(c) 300r/min;(d) 500r/min^[13]

输运特点^[13].例如对于传统的垂直式反应器,衬底的高速旋转可以产生更加均匀的边界层;而对于行星式反应器,衬底旋转虽然可以使温度梯度增大,温场均匀,但是当速度稍大(见图 5(c),(d)),衬底上方即出现从外缘向内部扩张的涡旋,不利于均匀生长.又例如对于传统的双层流水平式反应器,增大上层的流量通常可以抑制对流涡旋,使流场更均匀.而对于三重进口行星式反应器,增大内层和外层的流量均对涡旋产生促进作用,只有增大中层流量才能抑制对流涡旋.

5 垂直式反应器中的输运现象

垂直式反应器是应用最早的反应器之一^[3~7].在垂直式反应器中(见图 1(b),(d)),气体从基片的上方进入反应器,在基片的阻挡下折转 90°横穿基片,从反应器侧面或底部排出.垂直式反应器有两大特点:一是可以利用射流冲击在基片上方产生滞止流(stagnation flow);二是可以利用基片旋转产生一种吸引上方气体的泵效应(von Karman pump).二者都可以产生二维轴对称流动,抑制热对流涡旋.特别是在基片上方形成较均匀的速度、温度和浓度边界层.因此垂直式反应器比水平式反应器可获得更好的薄膜沉积.

当射流垂直打到平板上时,即产生所谓滞止流.滞止流的一个重要特性是^[16,17],基片上方各点的垂直速度分量仅是垂直距离的函数,与径向距离无关;而流动折转后水平速度构成的边界层厚度也与基片径向尺寸无关.于是利用这一特性可以在基片上方构造均匀的速度、温度和浓度边界层.但滞止流只发生在滞止点附近

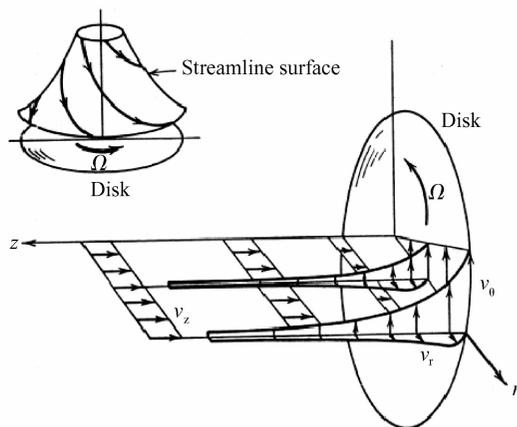


图 6 垂直反应器的旋转泵效应 对于等温流体和无限大平板, $v_r = f(z)$, $v_z = f(z)$, $v_\theta = f(r, z)$ ^[16]

Fig.6 Von Karman pump effect For isothermal and infinite plate, $v_r = f(z)$, $v_z = f(z)$, $v_\theta = f(r, z)$ ^[16]

小范围内,欲扩大滞止流的范围,必须加大流量并使射流喷口更靠近基片.

基片高速旋转产生的泵效应(见图 6)^[16,17],是流体的粘性力和旋转产生的离心力联合作用的结果.在流体粘性力的作用下,靠近基片表面的一层气体随同托盘一起转动,在离心力的作用下,气体不断地沿径向被抛向基片的边缘.与此同时,基片上方的气体沿轴向流入基片表面以补充失去的气体.对于等温流体和无限大平板的情况,基片上方的垂直速度分量 v_z 仅是距离基片的垂直距离 z 和平板角速度 Ω 的函数,与基片径向尺寸 r 无关.而由平板表面向流体内部延伸的粘性作用区即速度边界层,其厚度 δ 也与基片径向尺寸 r 无关,仅是平板角速度 Ω 的函数,即 $\delta = 5.5\sqrt{\frac{\nu}{\Omega}}$, ν 为流体的动量扩散系数.因此这种泵效应和滞止流的效应类似,可以在基片上方形成与半径无关的均匀来流速度和边界层厚度,从而使基片上方产生均匀的流场、温场和浓度场(温度边界层和浓度边界层的厚度分别与速度边界层厚度 δ 成正比关系),基片各点得到均匀的粒子浓度供给.

垂直式反应器通过滞止流和旋转泵效应可以获得二维轴对称流,得到与半径无关的均匀的边界层,但这只是对无限大平板和等温流动而言.由于实际的转盘为有限尺寸,在大的温度梯度、进口扩张、大转速等影响下,轴对称流动经常遭到破坏,使理想的二维轴对称流变为复杂的三维流,从而不能获得均匀沉积^[17~19].实际的垂直反应器通常存在着 4 种流动的相互作用:温差引起的浮力对流涡旋、流道扩张或流动转折引起的对流涡旋、进口强迫对流以及旋转引起的强迫对流.前两种为有害的流动,后两种则通常被利用来抑制前两种.

垂直式反应器的输运过程通常存在下列问题:

(1)由于冷气体从加热的基片上方喷入,因而基片上方存在不稳定的密度梯度,极易产生热对流涡旋,迭加在主流上形成二次涡旋;(2)除了温差引起的热对流涡旋,由于气流进口截面的突然扩张也将引起回流涡

旋.这两种二次涡旋都应该极力避免;(3)基片旋转可产生均匀的边界层,还可使基片上方的气体浓度得到混合,但转速分别超过某个临界值后,将引发侧壁涡旋甚至湍流;(4)对不同的反应气体,垂直反应器同样可以分隔进口.但与水平反应器相比,垂直反应器从进口端到生长区,距离一般很短(约1~10cm,对比水平反应器的混合区长度约1m),因此获得均匀混合较困难,需要更复杂的进口端设计;(5)由于从反应器中心进入的反应气体必须流到托盘边缘后才能排出(对比水平式反应器,气体从一端流到另一端后排出),导致反应物浓度从中心到边缘总是存在差异,即基片上方的浓度分布本质上仍是不均匀的;(6)传统的垂直反应器只适合一次生长单片,垂直喷淋式和高速转盘式反应器尽管可以生长多片,但随着托盘面积进一步扩大,容易产生流动失稳,使原来的二维轴对称流变为复杂的三维流.

垂直反应器的改进方法与水平式类似,包括降低压强(例如使反应室压强小于 10^4 Pa)、减少流道突扩、使反应室外壁和内部的导流管顺流方向、缩小进口喷嘴与基片的距离、加大托盘旋转等.

6 垂直喷淋式与高速转盘式反应器

为了消除垂直反应器存在的对流涡胞、在基片上方产生均匀浓度、减少气体的驻留时间、以及获得均匀混合,传统的垂直反应器演变成两种现代类型:垂直喷淋式(Showerhead)反应器和高速转盘式(RDR)反应器,这两种反应器的商用类型目前分别由德国 AIXTRON 公司和美国 VEECO 公司生产.

6.1 垂直喷淋式

垂直喷淋式(见图1(d))的主要特点是采用喷淋头和近距离喷嘴^[20~22],即利用大量密布的微小喷嘴(喷嘴直径为0.5mm量级)将反应气体从很近的距离内喷向基片.喷淋头将反应气体均匀分配到基片上方,从而使到达基片上方(边界层之外)各点的反应气体浓度基本相同.反应气体再通过浓度扩散,穿过边界层到达基片表面.由于喷嘴与基片距离很近(为1cm量级),缩小的间距能够抑制对流涡旋,减少气体的驻留时间,并且能更有效地利用反应气体.每个小喷嘴下方产生一个滞止流,从而使托盘面积可以放大,以利于多片生长.由于均匀的边界层是靠各喷嘴下方的滞止流来实现的,因此托盘只需缓慢旋转(每分钟大约几十转),起气体温度和浓度的周向混合作用.这种反应器一次可以沉积多个晶片,得到高质量的薄膜生长.垂直喷淋式反应器存在以下问题:

(1)由于从基片正上方喷入的所有反应气体都必须流到托盘边缘,再由排在反应器侧面或下部的出口排出,在托盘中心处喷入的反应气体和在托盘边缘处喷入的反应气体流经的距离明显不同.由于中心处的生成物尾气不能及时排出,因此,这种反应器的浓度分布本质上仍是不均匀的.

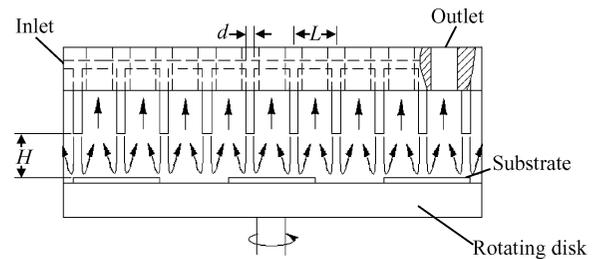


图7 反向流动垂直喷淋式MOCVD反应器原理图^[23]

Fig.7 Schematic of an inverse flow showerhead MOVPE reactor design^[23]

(2)亚毫米量级的喷嘴容易被寄生反应堵塞,清洗困难.而1cm左右的喷嘴与基片的距离对于上壁(喷淋头)提出很高的冷却要求.

(3)喷淋头的制造工艺过于精密和复杂,造价高.

左然和徐谦^[23]提出一种垂直喷淋式MOCVD反应器的改进形式,即将反应器的出口和进口同时置于托盘的上方,出口与进口交叉排布(见图7).这样一来,从每个小喷嘴喷出的反应气体在到达表面后,不再转 90° 沿托盘半径方向横穿基片,而是折转 180° 从小喷嘴周边返回,从而避免了反应物从托盘中心到边缘的径向浓度变化,使得浓度分布变为沿每个小喷嘴的周期性波动.这种方式既可以改善反应物浓度沿径向分布的均匀性,还可以减小气体的驻留时间,但工艺上有待进一步细化.

6.2 高速转盘式

前述的垂直式反应器(见图1(b))可以利用托盘高速旋转产生的泵效应来抑制对流涡旋,产生与半径无关的均匀速度、温度和浓度边界层.商用的高速转盘式(RDR)反应器即采用这种原理,托盘转速必须很高,通常在1000r/min以上.高速转盘式反应器具有以下特点:

(1)根据旋转泵效应,基片表面的气体沿径向被甩到托盘外缘,而基片上方的反应气体沿轴向被垂直吸引到基片表面各点(实际路径为螺旋型)来补充失去的气体.通过精心设计反应器的形状、进口和流量,气体流动可以被准确地预测和重复.而其他反应器则缺乏这种向基片各点补偿反应前体的能力.

(2)在基片上和其紧邻的上方发生反应后的气体不再与进口气体混合,而直接沿径向被甩出,于是浓度边界层可以被精确地控制,而不发生滞后或记忆效应.

(3)由于建立了均匀的浓度、速度和温度边界层,自然地获得了均匀组分和均匀厚度的薄膜生长,特别适合商业要求的大面积均匀生长.

(4)利用冯·卡门近似,反应器的传热传质过程可以简化为简单的一维近似数学关系式来描绘,从而使得气体的流动很容易用计算机来模拟,而且只需很短的模拟时间.

图8示出高速转盘式反应器在底部加热、托盘旋转时的流场可视化照片和根据实验总结的流动稳定性条件^[17].右上图为不稳定的流动,右下图为稳定且具有确

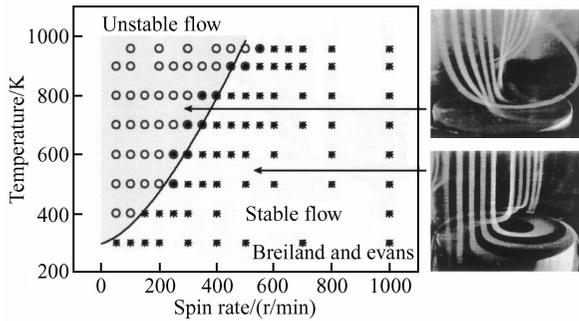


图 8 高速转盘式反应器在底部加热、托盘旋转时的流场可视化照片和根据实验总结的流动稳定性条件。左图中空心圆代表不稳定流动区域,星号代表稳定流动区域;右上图为不稳定的流动,右下图为稳定且具有确定路径的流动。从不稳定流到稳定流的转变由前述的 MCP 数判断^[17]

Fig.8 Plot of the flow visualization experiments for a heated, spinning disk. Asterisks indicate that the flow is stable with a steady-state, fixed pattern, as illustrated in the lower right photo. Open circles indicate unstable, time dependent flow patterns, as illustrated in the upper right photo. The transition from unstable to stable flow is characterized by the mixed convection parameter (MCP) defined above^[17].

定路径的流动。图中显示,增大温差不利于流场的稳定,增大转速则有利于流场的稳定(指在图中小于 1000r/min 范围,但转速过高将会造成流动失稳,在侧壁附近引发新的漩涡)。流场由稳定向不稳定过渡的判据由混合对流数(mixed convection parameter, MCP)来判断:

$$MCP = \frac{Gr}{Re^{3/2}} = \frac{g[(T_0 - T_\infty)/T_\infty]}{\sqrt{\Omega^{3/2} \nu_\infty}}$$

其中 Gr 为格拉晓夫数, $Gr = \frac{g(T_0 - T_\infty)r_d^3\Omega^{3/4}}{T_\infty\nu_\infty}$; Re

为旋转雷诺数, $Re = \frac{r_d^2\Omega}{\nu_\infty}$ 。MCP 数代表浮力对流强度与旋转对流强度之比。

6.3 输运过程条件对比

对比前述的 5 条输运过程条件,垂直反应器通过近

距离喷口(喷淋式)或基片高速旋转(高速转盘式),能够将浓度均匀分配到各点,抑制对流涡旋,获得比水平式更均匀的浓度、速度和温度边界层。利用托盘或基片的旋转,也可以使反应物在到达基片前获得充分均匀混合,即能够近似满足前 4 个条件。对于最后一个条件,即快速排出尾气、不与反应物再混合,垂直反应器仍较难满足。无论垂直喷淋式还是高速转盘式反应器,由于在托盘中心处和边缘处喷入的反应气体流经的距离明显不同,中心处的生成物尾气不能及时排出,因此,垂直反应器的浓度分布本质上仍是不均匀的,也导致基片沿径向的厚度和杂质浓度仍存在不均匀性。

对照前面总结的反应器最佳输运过程的 5 个条件,常用的 4 种 MOCVD 反应器的输运过程情况列于表 1 中。

7 总结

对照前面总结出的 MOCVD 反应器应满足的最佳输运过程的 5 个条件,垂直式反应器的表现明显优于水平式反应器。水平式反应器由于存在反应物浓度的沿程损耗、热对流涡旋和侧壁效应,容易造成基片沿横向和纵向的厚度和浓度不均,因此只适于实验室应用。垂直式反应器通过高速旋转或近距离喷射,可以抑制热对流涡旋,并均匀分配反应物浓度,因此更具有商用价值。但垂直反应器仍存在反应后的尾气不能及时排出,从而沿径向浓度不均,造成基片沿径向的厚度和浓度的波动。如何使反应后的尾气不再与新鲜反应来流重新混合,这是垂直式反应器进一步改进的难点。垂直喷淋式的密布小喷口和近距离喷射,高速转盘式的托盘高速旋转和磁流体密封等,都增加了制造和维护(包括清洗和冷却)的难度。无论是垂直喷淋式还是高速转盘式反应器,当托盘直径进一步扩大、或转速过大时,都将面临流动失稳和均匀度降低的问题。因此,为满足最佳输运过程条件, MOCVD 反应器还有很大的改进余地。

表 1 4 种 MOCVD 反应器最佳输运过程条件的对比

Table 1 Comparisons of the optimum transport processes for four types of MOCVD reactors

最佳输运条件	水平式	行星式	垂直喷淋式	高速转盘式
条件 1(均匀浓度边界层)	由于沿程损耗,较难实现,但利用渐缩流道和基片旋转可改善	利用公转和自转,可实现周向均匀,但径向仍有不均	利用喷淋头可将浓度均匀分配,但径向仍有不均	利用旋转泵效应可将浓度均匀分配,但径向仍有不均
条件 2(均匀速度边界层)	利用渐缩流道和基片旋转,可实现纵向均匀,但横向仍不均	利用小流道高度以及公转和自转可以实现	利用近距离小喷口,可获得与半径无关的滞止流	利用高速旋转,可获得与半径无关的垂直来流
条件 3(均匀温度边界层)	利用基片旋转可以实现	利用基片旋转可以实现	利用基片旋转可以实现	利用基片旋转可以实现
条件 4(分隔进口、反应前混合均匀)	利用渐缩混合段,可以实现	利用公转和自转可以实现	进口段太短,混合较难,但利用基片旋转可改善	进口段太短,混合较难,但利用基片旋转可改善
条件 5(迅速排出尾气、不再发生混合)	须通过加大流量来实现	须通过加大流量来实现	较难实现,但加大流量可改善	较难实现,但利用旋转泵效应可改善

参考文献

- [1] Stringfellow G B. Organometallic vapor-phase epitaxy: theory and practice. Boston: Academic Press, 1989
- [2] Herman M A, Richter W, Sitter H. Epitaxy-physical principles and technical implementation. Springer, 2004
- [3] Jürgensen H, Schmitz D, Strauch G, et al. MOCVD equipment for recent developments towards the blue and green solid state laser. Internet Journal of Nitride Semiconductor Research, 1996, 1: 26
- [4] Hitchman M L, Jensen K F. Chemical vapor deposition. Academic Press, 1993
- [5] Jensen K F, Einset E O, Fotiadis D I. Flow phenomena in chemical vapor deposition of thin films. Annual Review of Fluid Mechanics, 1991, 23: 197
- [6] Holstein W L. Design and modeling of chemical vapor deposition reactors. Progress in Crystal Growth and Characterization, 1992, 24: 111
- [7] Masi M, Stanislaw M D, Veneroni A. Fluid-dynamics during vapor epitaxy and modeling. Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, 2003, 47: 239
- [8] Cho W K, Choi D H. Optimization of a horizontal MOCVD reactor for uniform epitaxial layer growth. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2000, 43: 1851
- [9] Frijlink P M. A new versatile large size MOVPE reactor. J Cryst Growth, 1988, 93: 207
- [10] Beccard R, Protzmann H, Schmitz D, et al. A novel reactor concept for multiwafer growth of III-V semiconductors. J Cryst Growth, 1999, 198/199: 1049
- [11] Jurgensen H, Schmitz D, Strauch G, et al. MOCVD equipment for recent developments towards the blue and green solid state laser. MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research, 1996, 1: 26
- [12] Kepler G M, Hopfner C, Scroggs J S, et al. Simulation of a vertical reactor for high pressure organometallic chemical vapor deposition. Materials Science and Engineering, 1998, B57: 9217
- [13] Zuo R, Zhang H, Liu X L. Transport phenomena in radial flow MOCVD reactor with three concentric vertical inlets. J Cryst Growth, 2006, 293(2): 498
- [14] Zuo R, Zhang H, Liu X L. Numerical study of transport phenomena in a radial flow MOCVD reactor with three-separate vertical inlets. Chinese Journal of Semiconductors, 2005, 26(5): 977 (in Chinese) [左然, 张红, 刘祥林. 径向三重流 MOCVD 反应器输运过程的数值模拟研究. 半导体学报, 2005, 26(5): 977]
- [15] Zuo R, Zhang H, Xu Q. Numerical modeling and optimization of transport process for radial flow MOCVD reactor. Journal of Synthetic Crystals, 2005, 34(6): 1011 (in Chinese) [左然, 张红, 徐谦. 径向流动 MOCVD 输运过程的数值模拟和反应器优化. 人工晶体学报, 2005, 34(6): 1011]
- [16] Panton R L. Incompressible flow. John Wiley and Sons, Inc, 1984
- [17] Breiland W G, Coltrin M E, Creighton J R, et al. Organometallic vapor phase epitaxy (OMVPE). Mater Sci Eng, 1999, R24: 241
- [18] Thompson A G, Stall R A, Zawadzki P, et al. The scaling of CVD rotating disk reactors to large sizes and comparison with theory. J Electron Mater, 1996, 1(9): 1487
- [19] Mitrovica B, Gurarya A, Kadinski L. On the flow stability in vertical rotating disc MOCVD reactors under a wide range of process parameters. J Cryst Growth, 2006, 287: 656
- [20] Mihopoulos T G, Hummel S G, Jensen K F. Simulation of flow and growth phenomena in a close-spaced reactor. J Cryst Growth, 1998, 195: 725
- [21] Weyburne D W, Ahern B S. Design and operating considerations for a water-cooled close-spaced reactant injector in a production scale MOCVD reactor. J Cryst Growth, 1997, 170: 77
- [22] Yang Y K, Gao L H, Chen H X, et al. CFD numerical simulation and optimization of GaN-MOCVD reactor. Engineering Mechanics, 2007, 24(9): 173 (in Chinese) [杨云柯, 高立华, 陈海昕, 等. 喷淋式 GaN-MOCVD 反应室的 CFD 数值仿真及优化. 工程力学, 2007, 24(9): 173]
- [23] Zuo R, Xu Q. An inverse-flow showerhead MOVPE reactor design. J Cryst Growth, 2007, 298: 425

Optimization Design of the Transport Process in MOCVD Reactors^{*}

Zuo Ran^{1,†} and Li Hui^{1,2}

(1 School of Energy and Power Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China)

(2 School of Mechanical Engineering, Jimei University, Xiamen 361021, China)

Abstract: Based on the growth requirement in MOCVD processes, the five optimum transport conditions are summarized as: uniform concentration boundary layer, uniform velocity boundary layer, uniform temperature boundary layer, reactants mixed uniformly before entering the reaction zone, and the exhaust gas expelled quickly without remixing with the reactants. Compared with the optimum conditions, the current MOCVD reactors of horizontal, vertical, planetary, showerhead, and RDR types are discussed. The main problems in horizontal reactors are reactant depletion, thermal convection, and reactor side effects. Using injection from showerheads and high speed susceptor rotation, the vertical reactors can obtain much more uniform boundary layers. The main problems in vertical reactors are the difficulty in expelling the exhaust gas without remixing with reactants and the difficulty in further enlarging the diameter of the rotating susceptor.

Key words: MOCVD; thin film growth; transport phenomena; reactor design; optimum condition

PACC: 8115H; 4725Q

Article ID: 0253-4177(2008)06-1164-08

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 60376006)

[†] Corresponding author. Email: rzuo@ujs.edu.cn

Received 16 October 2007, revised manuscript received 14 November 2007