

# MOCVD 生产 GaN 气相、表面反应的数值模拟\*

高立华 杨云柯 陈海昕 符松†

(清华大学工程力学系, 北京 100084)

**摘要:** 采用计算流体力学方法对生长 GaN 的立式行星结构金属有机物化学气相沉积(MOCVD)反应室中的流场、空间气相反应和载片表面沉积速率进行了三维数值模拟,研究了载片旋转、反应室高度、氨气流量和基座不同温度布局方式对反应产物浓度分布和载片表面沉积速率等物理参数的影响,并对主要运行参数提出了优化建议,例如采用较低反应室高度、基座中心附近采用较低温度等。

**关键词:** CFD; GaN; MOCVD; 气相反应; 表面沉积速率

**PACC:** 4700; 7360F

**中图分类号:** TN304.02

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2007)S0-0245-04

## 1 引言

GaN 是第三代半导体材料的代表,具有优异的性能和广泛的用途,因此 GaN 的制备和器件开发已经成为世界范围内研究的热点。目前,金属有机物化学气相沉积(MOCVD)是主要的 GaN 制备技术,其基本原理为:将气态的金属有机物稀释于输运气流中注入到反应室内,在被加热的高温的载片表面反应物气体分解、反应、沉积,形成厚度从几纳米到几微米的晶体定向生长的薄膜<sup>[1,2]</sup>。

利用 MOCVD 技术制备 GaN 的机制非常复杂,如果仅仅依赖经验性实验来进行反应室的设计、改进和选取运行参数,将会耗费大量的时间和资金,正如 Emcore 公司反应室设计部总监 Alex Gurary 所说:“就目前反应室的设计水平和复杂程度而言,离开仿真而设计一套新的反应室是不可能的,‘试错-改进’的做法实在是太昂贵了。”因此,国外在 MOCVD 反应室数值模拟方面进行了大量研究,例如, Safvi 等人<sup>[3]</sup>和 Theodoropoulos 等人<sup>[4]</sup>曾提出不同的反应模型并进行了数值模拟。近些年国内在这方面的研究也逐渐增多,例如刘奕等人<sup>[5]</sup>对反应室内的流动传热现象进行了数值模拟,郭文平等<sup>[6]</sup>对 GaN 的表面沉积速率进行了数值模拟。

由于空间气相反应和表面对 GaN 的生长具有至关重要的影响,本文对某立式行星结构 MOCVD 反应室中的流场、空间气相反应和载片表面沉积速率进行了三维数值模拟,研究载片旋转、反应室高度等运行参数对反应产物浓度分布和载片表

面沉积速率等物理参数的影响,从而获得较为合理的运行参数,改善 GaN 成膜质量,并对 MOCVD 反应室的设计和运行提出了优化建议。

## 2 反应室几何结构与数值模拟方法

### 2.1 MOCVD 反应室几何结构

本文研究的某立式行星结构 MOCVD 反应室结构如图 1 所示, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub> 携带 MO 源, N<sub>2</sub> 分别从同轴圆管组成的内、中、外三层通道流入反应室,在高温载片表面沉积生成 GaN 薄膜。六个圆形载片沿同一圆周均匀分布在高温加热的基座上。

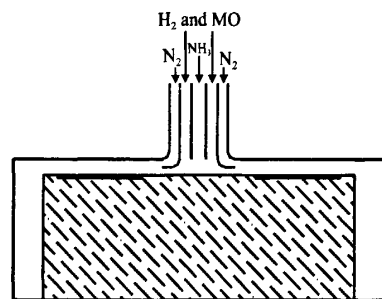


图 1 MOCVD 反应室结构

Fig.1 Schematic diagram of MOCVD reactor

### 2.2 气相反应和表面沉积模型<sup>[4]</sup>

如表 1 所示, MO 源(三甲基镓, TMGa)流入反应室后,发生分解、加合、聚合等 6 种气相化学反应。

\* 国家高技术研究发展计划资助项目(批准号:2002AA311240)

† 通信作者. Email: fs-dem@tsinghua.edu.cn

2006-12-02 收到, 2006-12-22 定稿

其中(G1), (G2), (G4)和(G5)四个反应满足 Arrhenius 定律;  $k = k_0 \exp(-E_a/RT)$ , 指前因子  $k_0$  的单位为  $(\text{cm}^3/\text{mol})^{n-1} \text{s}^{-1}$ ,  $n$  为反应级数; 活化能  $E_a$  的单位为  $\text{kcal/mol}$ . (G3)和(G6)反应的速率常数由简单分子碰撞理论确定.

表 1 气相反应式及与反应速率常数相关的参数

Table 1 Gas-phase kinetic scheme for MOCVD of GaN

Reaction	$k_0$	$E_a$
(G1) $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_2 + \text{CH}_3$	$3.5 \times 10^{15}$	59.5
(G2) $\text{Ga}(\text{CH}_3)_2 \rightarrow \text{GaCH}_3 + \text{CH}_3$	$8.7 \times 10^7$	35.4
(G3) $\text{Ga}(\text{CH}_3)_3 + \text{NH}_3 \rightarrow (\text{CH}_3)_3\text{Ga}; \text{NH}_3$	coll.	0
(G4) $(\text{CH}_3)_3\text{Ga}; \text{NH}_3 \rightarrow \text{Ga}(\text{CH}_3)_3 + \text{NH}_3$	$1.0 \times 10^{14}$	18.5
(G5) $(\text{CH}_3)_3\text{Ga}; \text{NH}_3 \rightarrow (\text{CH}_3)_2\text{Ga}; \text{NH}_2 + \text{CH}_4$	$1.0 \times 10^{14}$	49.0
(G6) $3(\text{CH}_3)_2\text{Ga}; \text{NH}_2 \rightarrow [(\text{CH}_3)_2\text{Ga}; \text{NH}_2]_3$	coll.	0

高温条件生长 GaN, 表面化学反应速率非常快, 主要依赖于反应物的运输<sup>[5]</sup>, 因此, 采用组分运输-扩散模型来模拟 GaN 的沉积速率和均匀性:

$$\text{沉积速率} = - \sum_{i=1}^n D(T) \frac{d\rho_i}{dz} \times \frac{k_i M_{\text{GaN}}}{M_i} \times (3600/\rho_{\text{GaN}}) \times 10^6 \quad (1)$$

式中  $D(T)$  为质量扩散系数;  $\rho$  为密度;  $M$  为分子量;  $k$  为分子中镓原子的个数;  $i$  代表第  $i$  种组分.

2.3 数值模拟的控制方程

本文基于非交错网格的有限体积法对反应室空间进行离散, 运用 Rhie 和 Chow<sup>[7]</sup>改进的 SIMPLE 算法计算流场, 并在此基础上对传热和化学反应进行求解. 本数值模拟采用的控制方程为:

连续方程:  $\frac{\partial \rho u_j}{\partial x_j} = 0 \quad (2)$

动量方程:  $\frac{\partial \rho u_i u_j}{\partial x_j} = - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \mu \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] + \rho g_i \quad (3)$

能量方程:  $\frac{\partial \rho c_p T u_j}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \frac{\mu c_p}{Pr} \times \frac{\partial T}{\partial x_j} \right] + \dot{q} \quad (4)$

组分方程:  $\frac{\partial \rho Y_s u_j}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \frac{\mu}{Sc} \times \frac{\partial Y_s}{\partial x_j} \right] + \dot{\omega}_s \quad (5)$

状态方程:  $\rho = p_b / (RT \sum Y_s / M_s) \quad (6)$

其中  $\rho$  是密度;  $u_i$  是速度矢;  $p$  是压力;  $g_i$  是重力加速度矢;  $\mu$  为动力粘性系数;  $c_p$  是等压比热;  $T$  是温度;  $\dot{q}$  为反应热源项;  $p_b$  为环境压力;  $M_s$ ,  $Y_s$  和  $\dot{\omega}_s$  分别为  $s$  组分的摩尔质量、质量分数和源项;  $R$  为通用气体常数; 普朗特数  $Pr = 0.70$ ; 施密特数  $Sc = 2.0$ .

3 结果与分析

基本工况如下: 反应室高度 10mm, 基座静止,

氨气、氢气、氮气流量均为 3slpm, MO 源由氢气携带, 流量为  $75 \mu\text{mol}/\text{min}$ , 基座表面温度 1323K, 载片转速 200r/min. 下文中除特殊声明外, 未加注明的参数均与基本工况的相应参数一致, 沉积速率的单位均为  $\mu\text{m}/\text{h}$ .

3.1 载片旋转的影响

图 2(a)给出了载片静止时 GaN 在载片上的沉积速率分布, 由于气流上游(图中左侧)反应物的浓度较高, 所以 GaN 的沉积速率较大; 随着气体向下游流动, 反应物被消耗, 浓度降低, 因此 GaN 的沉积速率也迅速下降. 通过与载片旋转的结果图 2(b)对比可知, 载片静止时, 载片上薄膜厚度分布很不均匀, 而载片旋转有显著的改善沉积均匀性的效果.

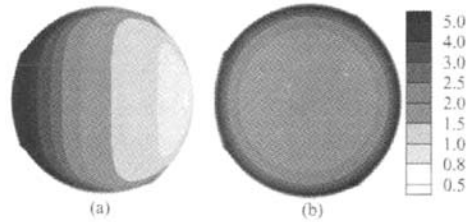


图 2 载片旋转对沉积速率的影响 (a) 0rpm; (b) 200rpm  
Fig.2 Effect of wafer rotation on growth rate of GaN (a)0rpm; (b)200rpm

3.2 反应室高度的影响

图 3 表明反应室高度增加使流场的均匀性变

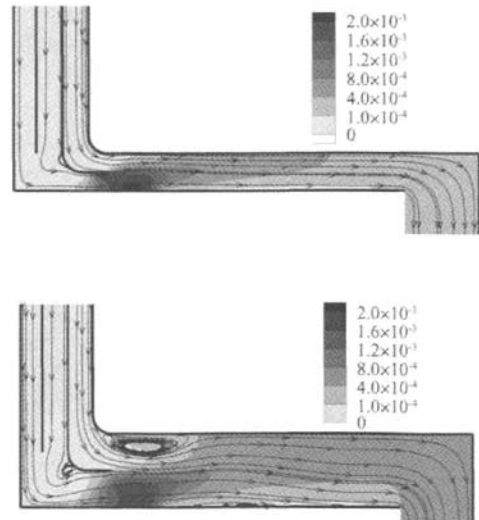


图 3 反应室高度对流场和  $[(\text{CH}_3)_2\text{Ga}; \text{NH}_2]_3$  浓度分布的影响  
Fig.3 Effect of reaction chamber height on flow field and contour of  $[(\text{CH}_3)_2\text{Ga}; \text{NH}_2]_3$  concentration

差,载片左上方有较大的涡结构出现,这会使三分子聚合物 $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 不能及时流向下游,从而容易形成长链大分子,涡团受扰动后,将这些大分子聚合物抛洒到载片上,对薄膜的生长质量产生不利影响。

图3还清楚地表明,应室高度增加使过多的原料从远离载片的区域流向出口,造成原料的浪费,这会引起沉积速率明显下降,图4沉积速率沿载片半径 $R$ 分布的对比结果证实了这一点。因此,在实际操作中应当降低反应室高度,以降低原料的浪费和改善成膜质量。

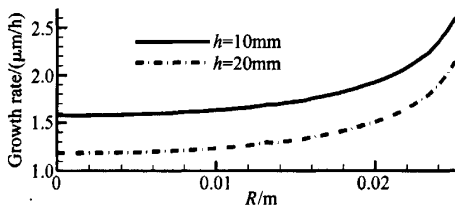


图4 反应室高度对沉积速率的影响

Fig. 4 Effect of reaction chamber height on growth rate of GaN

### 3.3 基座表面温度布局的影响

将基座表面的加热区只布置在载片附近,而中央区域不加热,即图5中Adiabatic标注的区域在计算中采用绝热边界条件。图5结果表明,这是一种较为有利的选择:与图3相比,它既明显降低了 $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 在导流板(图5绝热区上方的中、外通道之间弯向右侧的隔板)末端附近的浓度,避免其过多凝结在导流板上,延长了设备的维护周期;而且还明显降低了气相中难以分解的 $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 的浓度,有利于提高成膜质量。

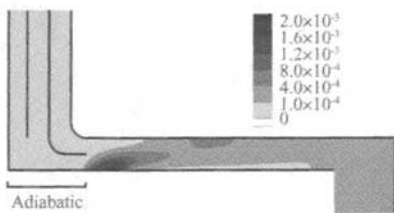


图5 基座表面中部绝热时 $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 浓度分布

Fig. 5 Contour of  $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$  concentration when center part of the substrate is adiabatic wall

### 3.4 氨气流量的影响

图6与图3对比表明,氨气的流量增加后,提高了氨气、氢气和MO源流入反应室的流速,抑制了

$[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 向上扩散,使其远离导流板末端,有利于减弱和避免导流板的污染。



图6 氨气流量为9slpm时 $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$ 的浓度分布

Fig. 6 Contour of  $[(CH_3)_2Ga:NH_2]_3$  concentration when ammonia influx is 9slpm

氨气流量增加还对MO源等起到稀释作用,所以使沉积速率有所降低,见图7,但是降低的幅度随载片半径的增大而增加,载片中心处降低16.8%,边缘处降低30.5%,曲线更加平缓,即改善了沉积厚度的均匀性。

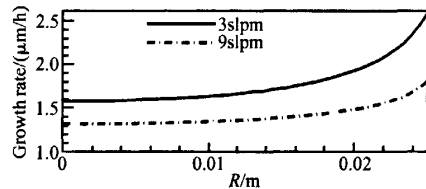


图7 氨气流量对沉积速率的影响

Fig. 7 Effect of ammonia influx on growth rate of GaN

## 4 结论

本文对某立式行星结构MOCVD反应室的流场、空间气相反应和载片表面沉积速率进行了数值模拟,研究了几个主要运行参数在GaN薄膜制备中的影响。通过研究得到如下结论和建议:在结构类似的立式MOCVD反应室和部分卧式反应室的设计、调试和运行中,可以采取载片旋转、增大氨气流量等方法提高GaN薄膜沉积的均匀度,采用在载片上游不加热的方法抑制空间寄生反应,通过降低反应室高度的方法获得均匀的流场,降低原料的浪费和提高成膜质量。

### 参考文献

[1] Zhang Qilin, Sun Wenhong, Liu Yanfei, et al. Study on growth of GaN material. Semiconductor Information, 1997, 34(5), 6(in Chinese)[章其麟,孙文红,刘燕飞,等. GaN材料生长研究. 半导体情报, 1997, 34(5), 6]

[2] Tokunaga H, Tan H, Arai T, et al. Performance of multiwafer reactor GaN MOCVD system. J Cryst Growth, 2000,

- 221;616
- [ 3 ] Safvi S A, Redwing J M, Tischler M A, et al. GaN growth by metallorganic vapor phase epitaxy. *J Electrochem Soc*, 1997, 144(5):1789
- [ 4 ] Theodoropoulos C, Mountziaris T J, Moffat H K, et al. Design of gas inlets for the growth of gallium nitride by metal organic vapor phase epitaxy. *J Cryst Growth*, 2000, 217:65
- [ 5 ] Liu Yi, Chen Haixin, Fu Song. CFD simulation of flow patterns in GaN-MOCVD reactor. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2004, 25(12):1639 (in Chinese) [刘奕, 陈海昕, 符松. GaN-MOCVD 设备反应室流场的 CFD 数值仿真. *半导体学报*, 2004, 25(12):1639]
- [ 6 ] Guo Wenping, Shao Jiaping, Luo Yi, et al. MOCVD process simulation of GaN. *Chinese Journal of Semiconductors*, 2005, 26(4):735 (in Chinese) [郭文平, 邵嘉平, 罗毅, 等. MOCVD 生长 GaN 材料的模拟. *半导体学报*, 2005, 26(4):735]
- [ 7 ] Rhie C M, Chow W L. Numerical study of the turbulent flow past an airfoil with edge separation. *AIAA Journal*, 1983, 21(11):1525

## Numerical Simulation of Gas Phase and Surface Reaction for Growth of GaN by MOCVD\*

Gao Lihua, Yang Yunke, Chen Haixin, and Fu Song<sup>†</sup>

(*Department of Engineering Mechanics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

**Abstract:** Computational fluid dynamics (CFD) simulation is performed three-dimensionally to study the flow field, gas phase reaction and growth rate in vertical metal organic chemical vapor deposition (MOCVD) reactor with rotating wafers for the growth of gallium nitride (GaN). The effects of wafers rotation, MOCVD reaction chamber height, ammonia influx and temperature distribution on the substrate surface are investigated which impact greatly on the flow field, gas phase reaction and the growth rate of GaN. The simulated results give some improvement suggestions to the operation parameters of the MOCVD reactor.

**Key words:** CFD; GaN; MOCVD; gas phase reaction; growth rate

**PACC:** 4700; 7360F

**Article ID:** 0253-4177(2007)S0-0245-04

\* Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2002AA311240)

<sup>†</sup> Corresponding author. Email: fs-dem@tsinghua.edu.cn

Received 2 December 2006, revised manuscript received 22 December 2006