

ZnO-MOCVD 水平反应室几何结构的模拟*

刘松民 顾书林[†] 朱顺明 叶建东 刘伟 张荣 郑有料

(江苏省光电信息功能材料重点实验室, 南京大学物理系, 南京 210093)

摘要: 采用基于计算流体力学(CFD)的数值计算方法, 对自制的生长 ZnO 的 MOCVD(金属有机物化学气相沉积)反应室内的流场进行了三维数值模拟和分析. 数值模拟采用有限体积差分方法对系统的控制方程进行离散. 通过解决流体的能量、动量、质量和物种守恒方程, 研究了气体入口的倾斜角度对衬底表面淀积的 ZnO 分布的影响, 并研究了不同的衬底位置对生长速率的影响. 计算结果对 ZnO-MOCVD 系统结构的优化提供了一个有力的参考依据.

关键词: ZnO; MOCVD; 数值模拟

PACC: 8115H; 7360F

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)S0-0309-03

1 引言

MOCVD 技术是制备微电子和光电子材料的一项关键工艺, 已经成功地生长了多种半导体薄膜材料, 如今已经有相当成熟的商用设备来生长 III 族氮化物半导体材料. 但是要设计和优化 MOCVD 系统, 需要花费科研人员大量的时间, 并且会耗费大量的资金. 而用计算机模拟的方法不仅可以降低设计成本, 而且还可以节省时间, 从而大大减轻工作量. 因此, 近年来有不少研究都是采用数值模拟的方法来优化 MOCVD 系统的几何形状、运行参数等^[1-6]. 但是关于 ZnO 薄膜材料的模拟研究工作很少, 而 ZnO 作为一种具有纤锌矿结构直接带隙的宽禁带半导体材料, 是发展短波段光电子器件的优选材料, 已成为当今光电材料领域中的研究热点. 由于 ZnO 材料生长的不少机理仍然在探索之中, 目前还没有非常成熟的用于 ZnO 外延的商用 MOCVD 设备. 因此, 我们自主开发设计了专门用于 ZnO 薄膜材料外延的低压 MOCVD 系统.

薄膜材料的生长除了受到衬底温度、反应室压力、气体流量等一些参数的影响, 反应室的几何形状以及反应腔体内的流场分布对材料的生长也有很大的影响. 本文的主要目的就是采用数值模拟的方法, 研究气体的输运性质对 ZnO 薄膜外延所产生的影响. 利用三维模型, 通过对入口角和衬底位置的调整, 优化了反应室的结构.

2 模型描述

图 1 为本文模拟的 ZnO-MOCVD 水平反应室结构示意图. MO(金属有机物)源 DEZn(二乙基锌)由 Ar 气携带, 流量为 30sccm; 氧源为 O₂, 流量为 30sccm, 由 Ar 气稀释后通入反应腔. O₂ 管道在 DEZn 管道下方, 其入口与水平方向的夹角分别假定为 α 和 β . 此外, 左侧通入主载气 Ar, 流量为 120sccm 左右. 更详细的描述请参考文献[7, 8]. 为了减小计算量, 数值模拟中只计算了两个管道倾斜处附近到出口的这一部分.

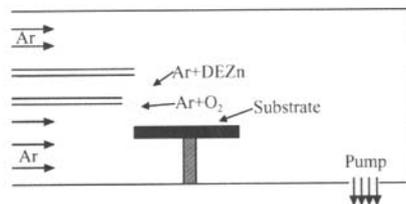


图 1 MOCVD 反应室设备结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the MOCVD reactor

3 结果与讨论

3.1 气体入口倾角对衬底表面淀积的 ZnO 分布的影响

图 2 显示了 ZnO 在衬底表面淀积速率的等值

* 国家重点基础研究发展规划(批准号:G001CB3095)和国家自然科学基金(批准号:60576017, 60390073, 50532100)资助项目

[†] 通信作者. Email: ZnO@nju.edu.cn

2006-11-20 收到, 2006-12-15 定稿

线分布.可以看出,不同的入口倾角对衬底表面淀积的 ZnO 分布有很大的影响.水平反应室薄膜的生长主要靠反应物气体扩散到衬底表面进行化学反应来完成,而采用单一进气管管道,且低压条件进行生长时,气体在反应室内的停留时间较短,因此扩散到衬底表面的反应物分布不均匀,生长出的样品均匀性较差.图 2(a)为两个管道都是水平方向时衬底表面 ZnO 的分布情况(即 $\alpha=0, \beta=0$),从淀积速率的等值线分布可以看出,最大的淀积速率出现在衬底的边缘附近,这是由于气体的流速较大,反应物沿流动方向经过一定距离后才扩散到衬底表面引起的,这对实际的材料生长非常不利.为此,我们做了以下改进,让两个管道在衬底附近倾斜一定的角度,以加大气体到达衬底的速率,从而增加气体的利用效率.图 2(b)显示的是 α 和 β 都为 30° 时衬底上 ZnO 的分布,可以看出,最大淀积速率增大了近 4 倍,并已经向衬底中心移动,但还没到衬底的中心附近.保持 α 为 30° ,增大 β 至 45° ,通过图 2(c)可以看出, ZnO 的最大淀积速率已经移动到衬底中心附近,且中心处淀积速率又增大了 1.8 倍.继续增大 β 至 60° ,通过图 2(d)可知,最大的淀积速率已经偏移到中心的另一侧,中心处淀积速率增加约 10%.但是如果气体入口的倾角太大,可能会引起气体在反应室内流

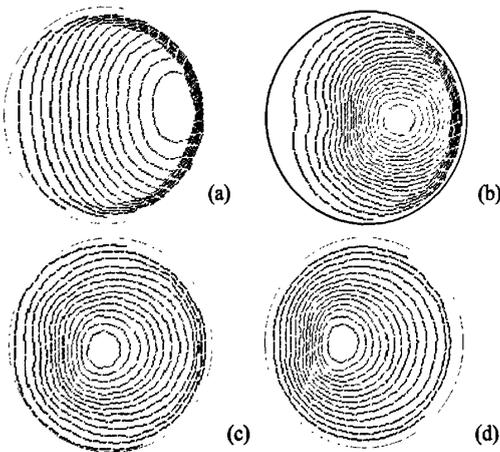


图 2 不同的气体入口角度对应的 ZnO 在衬底表面的淀积等值线 (a) $\alpha=0, \beta=0$; (b) $\alpha=30^\circ, \beta=30^\circ$; (c) $\alpha=30^\circ, \beta=45^\circ$; (d) $\alpha=30^\circ, \beta=60^\circ$ 共 15 条等值线,等值线边缘的淀积速率为零,中心环处淀积速率最大,最大值分别为 80, 300, 560 和 600nm/h.

Fig. 2 Contours of ZnO deposition on the substrate for different gas inlet angles (a) $\alpha=0, \beta=0$; (b) $\alpha=30^\circ, \beta=30^\circ$; (c) $\alpha=30^\circ, \beta=45^\circ$; (d) $\alpha=30^\circ, \beta=60^\circ$ 15 contours are drawn, ranging from 0 (edge) to the maximum deposition rates (center) of 80, 300, 560, and 600nm/h, respectively.

通不畅,导致一些涡流的存在,进而影响材料的晶体质量.因此,在我们的实验条件下,最佳的倾斜角度为氧气管道与水平方向夹角 30° ,有机源管道与水平方向夹角 45° .

3.2 衬底位置对淀积速率大小的影响

衬底与气体入口的距离对薄膜的生长也有很大的影响.图 3 显示了基座的 3 个不同位置对衬底表面 ZnO 淀积速率的影响.其中 h 表示氧气管道到衬底表面的竖直距离,入口倾角为上述的优化角度,横坐标为衬底直径上各点的位置坐标.从图 3 可以看出,随着气体入口到衬底距离的增大,薄膜的淀积速率下降,但是薄膜的均匀性增加.在腔体内,衬底的温度较气体入口和外壁高,反应物气体必须克服热浮力的作用才能到达衬底表面.因此,气体入口与衬底的距离较小时,气体到达衬底的速度较大,扩散到衬底表面的气体分子也较多,因此,薄膜的淀积速率较大,但是均匀性较差.反之,当气体入口与衬底的距离较远时,气体受到热浮力的作用越显著,其到达衬底的速度也较小,因此,到达衬底的反应物气体也会减少,造成了淀积速率的下降,有机源的利用效率也相应降低.然而,较大的入口与衬底的距离将会使气体在到达衬底前的扩散时间增大,因此,气体在衬底附近的扩散将会更加均匀,这导致了大的 h 值条件下获得的薄膜均匀性较好.但是考虑到腔体内可能会出现气相预反应,气体到达衬底表面需要的时间越长,越容易发生气相反应.因此, $h=0.5\text{cm}$ 时更适合 ZnO 薄膜的生长.

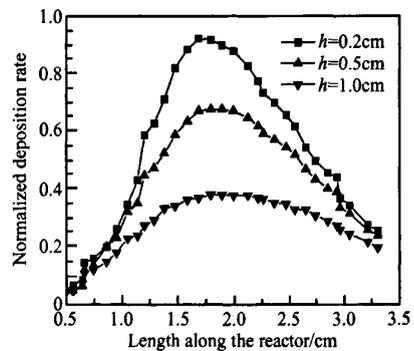


图 3 入口到衬底距离对淀积速率的影响
Fig. 3 Calculated deposition rate versus inlet-substrate distance

4 结论

通过数值模拟的方法,对 ZnO-MOCVD 反应室内的流场进行了计算分析.计算结果表明,选择合

适的气体入口倾角——有机源管道与水平方向夹角 45° , 氧源管道与水平方向夹角 30° , 能够使衬底中心附近的薄膜淀积速率最大, 气源的利用效率也较高。选择合适的气体入口至衬底的距离, 能够得到淀积速率较大, 均匀性较好的外延薄膜。

参考文献

- [1] Zuo Ran, Zhang Hong, Xu Qian. 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]
- [2] Zuo Ran, Zhang Hong, Liu Xianglin. 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. *半导体学报*, 2005, 26(5): 977]
- [3] 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]
- [4] Chae Y K, Egashira Y, Shimogaki Y, et al. Chemical vapor deposition reactor design using small-scale diagnostic experiments combined with computational fluid dynamics simulations. *J Electrochemical Society*, 1999, 146(5): 1780
- [5] Shin C Y, Baek B J, Lee C R, et al. Numerical analysis for the growth of GaN layer in MOCVD reactor. *J Cryst Growth*, 2003, 247(3/4): 301
- [6] Kadinski L, Merai V, Parekh A, et al. Computational analysis of GaN/InGaN deposition in MOCVD vertical rotating disk reactors. *J Cryst Growth*, 2004, 261(2/3): 175
- [7] Ye J D, Gu S L, Zhu S M, et al. Comparative study of diethylzinc and dimethylzinc for the growth of ZnO. *J Cryst Growth*, 2005, 274(3/4): 489
- [8] Ye J D, Gu S L, Qin F, et al. MOCVD growth and properties of ZnO films using dimethylzinc and oxygen. *Appl Phys A*, 2005, 81(4): 809

Simulation of the ZnO-MOCVD Horizontal Reactor Geometry*

Liu Songmin, Gu Shulin[†], Zhu Shunming, Ye Jiandong, Liu Wei, Zhang Rong, and Zheng Youdou

(Key Laboratory of Advanced Photonic and Electronic Materials, Department of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

Abstract: A three-dimensional model based on the computational fluid dynamics (CFD) is put forward to study the flow patterns in a homemade horizontal MOCVD reactor for ZnO growth. The governing equations are discretized by employing the control-volume-based finite difference method. By solving the conservation equations of the energy, momentum, mass and chemical species, and the effect of the various angles in the gas inlets on the ZnO growth distribution on the substrate is mainly investigated. In addition, the influence of the position of the substrate on the growth rate is also analyzed. Computational results afford a powerful tool for the configuration optimization of the MOCVD reactor.

Key words: ZnO; MOCVD; numerical simulation

PACC: 8115H; 7360F

Article ID: 0253-4177(2007)S0-0309-03

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (No. G001CB3095) and the National Natural Science Foundation of China (Nos. 60576017, 60390073, 50532100)

[†] Corresponding author. Email: ZnO@nju.edu.cn

Received 20 November 2006, revised manuscript received 15 December 2006

©2007 Chinese Institute of Electronics