

# 径向三重流 MOCVD 反应器输运过程的数值模拟<sup>\*</sup>

左 然<sup>1</sup> 张 红<sup>1</sup> 刘祥林<sup>2</sup>

(1 江苏大学能源与动力工程学院, 镇江 212013)

(2 中国科学院半导体研究所, 北京 100080)

**摘要:** 对径向三重流 MOCVD 反应器的输运过程进行了二维数值模拟研究. 在模拟计算中, 分别改变反应腔几何尺寸、导流管位置、流量、压强、温度等条件, 得到反应器流场、温场、浓度场的相应变化. 根据对模拟结果的分析, 发现反应腔内涡旋首先在流动的转折处产生, 上下壁面温差的加大使涡旋增大, 中管进口流量的增加对涡旋产生抑制作用, 内管和外管流量的增加对涡旋产生扩大作用. 得出输运过程的优化条件为: 反应腔上下壁靠近, 导流管水平延长, 中管进口流量尽量大于内、外管流量, 压强尽量低于  $10^5$  Pa, 上下壁面温差尽量减小等.

**关键词:** MOCVD; 输运过程; 热对流; 数值模拟

**PACC:** 8115H; 4725Q

**中图分类号:** TN304.054

**文献标识码:** A

**文章编号:** 0253-4177(2005)05-0977-06

## 1 引言

金属有机化学气相沉积 (MOCVD) 通常发生在高温 (约  $800 \sim 1000$  ) 和常压至低压 ( $10^5 \sim 10^4$  Pa) 下. 在此条件下, 化学反应和表面动力学速率都大大高于反应粒子的输运速率. 因此, 薄膜生长速率主要取决于反应粒子输运到生长表面的速率, 即生长受输运过程控制. 在反应器中, 同时存在着强迫对流、热对流、浓度扩散、热扩散等输运过程, 它们之间相互作用, 并且与气相和表面化学反应耦合在一起, 造成生长界面附近气体温度和反应粒子浓度随时间和空间变化, 成为薄膜生长的组分和厚度不均匀的主要原因. 深入了解反应器内部的输运过程, 对控制薄膜生长的速率和质量, 优化反应器设计, 至关重要.

自上世纪八十年代以来, 国外科研人员利用计算机数值模拟和光学测量等方法, 对 CVD 和 MOCVD 反应器内部流场、温场、浓度场的分布与外部参数的关系进行了大量的研究, 获得了反应器内部输运过程的初步图像. 但迄今为止, CVD 反应器的模拟和实验, 大都针对传统的卧式和立式反应

器<sup>[1-3]</sup>, 对于近年来迅速发展且特别适用于 MOCVD 的行星式反应器内部的输运过程仍缺乏了解, 研究仅局限在特定的反应器结构和生长过程 (如商用的 Aixtron 反应器), 缺少各种参数的变化对反应器的影响<sup>[4-6]</sup>. 特别是对于不同的反应腔结构和进口流量如何影响反应器的输运过程, 至今未见报道.

本文介绍利用 CFD 计算软件 FLUENT, 对中国科学院半导体研究所自行设计的垂直三重进口径向流动 MOCVD 反应器的输运过程进行二维数值模拟研究的初步结果. 在模拟计算中, 分别改变反应器托盘直径、流道高度、导流管位置和形状、载气进口流量、气体压强、壁面温度等条件, 得出反应器中流场、温场和浓度场的相应变化. 根据模拟结果并应用流体力学和传热学知识, 对这类 MOCVD 反应器中输运过程与外部参数的关系进行分析和讨论. 研究结果不仅适用于径向多重流反应器的输运过程及生长参数确定, 也可为一般的 CVD 反应器的优化设计提供重要的参考依据.

<sup>\*</sup>国家自然科学基金 (批准号: 60376006) 和国家高技术研究发展计划 (批准号: 2002AA311242) 资助项目

左 然 男, 博士生导师, 教授, 从事工程热物理与半导体材料生长交叉研究. Email: rzuo@uj.s.edu.cn

2004-05-23 收到, 2004-09-20 定稿

## 2 反应器结构和模拟参数确定

MOCVD 反应器有两种基本的几何形式:卧式与立式.近年来国外研制了行星式反应器<sup>[4~6]</sup>,它属于卧式反应器的改进形式.这种反应器采用垂直二重进口、径向流动、衬底作行星式转动等.二重进口有效避免了反应粒子提前混合发生气相反应,基片的公转和自转使反应粒子在基片上方得以充分混合,并基本上抑制了热对流涡旋.这种反应器一次能沉积多至十几片 50 或 75mm 高质量的晶片,适合于较大规模生产.中国科学院半导体研究所设计的径向三重流 MOCVD 反应器,借鉴了国外的行星式反应器设计,但增加了气体进口通道(三重同心套管)和可上下移动的导流管,从而提供了更加灵活的控制方式.

图 1 示出径向三重流 MOCVD 反应器的基本结构.气体从反应器上端三重同心套管进入,垂直向下喷入反应腔,在导流管和底面的约束下转一直角,然后水平流过衬底上方后排出.

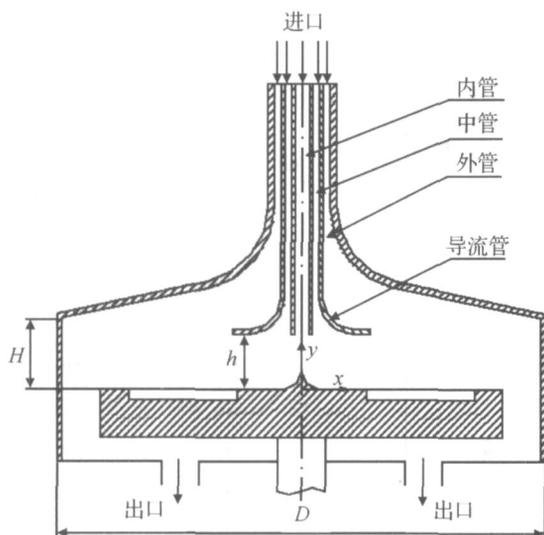


图 1 垂直三重进口径向流动 MOCVD 反应器示意图

Fig. 1 Schematic of a radial flow MOCVD reactor with three separate vertical inlets

在模拟计算中,反应器托盘直径从 14cm 变到 20cm;反应腔边缘高度从 1cm 变到 2cm;导流管与腔底距离从 1cm 下降到 0.5cm 及水平延长 1cm;三重同心进口气体流量分别以 1, 3, 5, 10slm 不同大小组合;反应腔压强分别取  $10^5$  和  $10^4$  Pa;反应腔底面温度固定为 1323 K;反应腔上壁和侧壁温度分别取

300(冷壁), 600, 900 K 和绝热. 模拟中采用的几种温度条件分别代表了几种极端:最易产生浮力对流的条件(温差最大);最不易产生浮力对流的条件(温差最小)以及绝热边界条件.为了寻找对流涡旋产生的原因,我们还模拟了零重力下反应器的输运过程,并与正常的生长条件进行对比.

模拟过程主要针对 GaN 的 MOCVD 生长,因此主要的反应气体和载气为  $\text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2$  和  $\text{N}_2$ ,分别由内管、中管和外管通入.内管通  $\text{NH}_3$  是为了满足 GaN 生长 / 比大的要求;中管内的  $\text{H}_2$  与少量的 TMGa(这里忽略)混合,为反应提供 Ga 源;外管通入  $\text{N}_2$ ,目的是抑制对流和减少上壁沉积.反应器三重同心套管进口流量按由内向外顺序记为(内、中、外),对应的气体分别为  $\text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ .若内、中、外套管进口体积流量分别为 1slm  $\text{NH}_3$ , 1slm  $\text{H}_2$ , 3slm  $\text{N}_2$ ,则进口流量相应地记为(1, 1, 3),其余类推.

## 3 反应器数值模拟过程

本文重点研究稳态时反应器流场和温场的分布随外界参数的变化.为简化复杂的模拟过程,在不影响主要结果的前提下,我们作如下假设:

- (1) 忽略热辐射和热扩散效应;
- (2) 不考虑基片的缓慢旋转;
- (3) 忽略极少量 TMGa 粒子与  $\text{NH}_3$  的表面与气相化学反应,仅考虑三种载气(包括  $\text{NH}_3$ )的混合、扩散、对流效应;
- (4) 反应器衬底的温度分布被简化为等温条件,其余壁面均假设为另一等温条件;
- (5) 由于该类反应器具有自然的对称轴和边界条件,故采用二维轴对称数学模型.

MOCVD 反应器的流动、传热和反应粒子的质量输运过程由四个联立的守恒方程决定,即流体的质量守恒(连续性方程)、动量守恒(N-S 方程)、能量守恒(广义热传导方程)和反应粒子的质量守恒(对流扩散方程).四个守恒方程的归一化方程已经集成在 FLUENT 软件中,对应的气体热物性参数如导热系数( $k$ )、粘度系数( $\mu$ )、比热( $c_p$ )和扩散系数( $D$ ),分别采用 FLUENT 提供的动力学关系式(温度的函数)和混合气体关系式(气体摩尔分数的函数).二维模拟系统的坐标图及相关参数如图 1 所示.具体数值模拟过程包括以下步骤:

(1) 针对三重径向流 MOCVD 反应器的输运过程, 在上述假设条件下, 确定动量、能量、反应粒子质量守恒方程的简化形式, 以及与各守恒方程相对应的边界条件, 从而将物理问题转化成数学上的二维边值问题;

(2) 应用 FLUENT 的前处理软件 GAMBIT, 绘制计算区域, 定义区域性质和边界, 并进行网格划分. 由于计算区域具有不规则几何形状, 采用非结构化网格.

(3) 将计算网格输入 FLUENT 进行数值模拟, 包括选定控制方程、输入热物性参数和边界条件、迭代求解以及最后输出图形.

计算在 Pentium 4 微机 (2.0GHz CPU, 256M 内存) 上进行. 计算过程中达到收敛的迭代次数从几十次到上万次, 视计算条件而定, 主要取决于三重进口输入流量的大小和配比、网格的精细度等.

## 4 模拟结果分析和讨论

在模拟过程中, 选择如图 2 (a) 所示的反应器 (直径  $D = 14\text{cm}$ , 边缘高  $H = 1\text{cm}$ , 导流管高  $h = 1\text{cm}$ ) 作为对照基准 (只示出半个反应器). 由模拟结果可知, 平滑的流场对应平滑的温场, 故模拟结果分析主要围绕反应器内流场的变化进行.

### 4.1 反应器几何尺寸的影响

如图 2 (a) 所示, 气体从垂直向下转为水平径向流动后, 分别在反应腔靠近上壁面弯折处和导流管下方形成一大一小两个对流涡旋 (以下分别称上涡旋和下涡旋). 涡旋显然与流动方向的弯折、浮力对流以及反应腔的几何形状有关.

如图 2 (b) 所示, 当反应腔高度  $H$  从  $1\text{cm}$  增至  $2\text{cm}$ , 其他参数不变时, 上涡旋从原来占据半个上反应腔空间扩展到几乎全部上反应腔空间, 同时下涡旋也向下扩展. 涡旋将促使反应后的产物粒子滞留在反应腔内, 不利于薄膜生长.

如图 2 (c) 所示, 当反应腔直径  $D$  从  $14\text{cm}$  增至  $20\text{cm}$  (以缩小比例示出), 其他参数不变时, 反应腔内下涡旋基本不变, 而上涡旋从原来位置向衬底和出口方向同时扩展, 对流更加强烈.

上述流场随反应器几何尺寸的变化可以用 Gr 数和侧面阻力的变化来解释<sup>[1]</sup>. 高度  $H$  的增高对应 Gr 数特征长度的加大, 而反应腔直径  $D$  的增大使

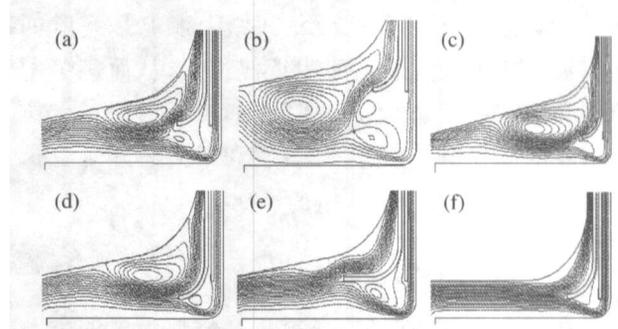


图 2 反应器尺寸和导流管位置对流场的影响 三重进口流量分别为 (3, 5, 3) s1m, 压强为  $10^5\text{Pa}$ , 衬底温度为  $1323\text{K}$ , 壁面温度为  $300\text{K}$ . (a)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 1\text{cm}$ ; (b)  $H = 2\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 2\text{cm}$ ; (c)  $H = 1\text{cm}, D = 20\text{cm}, h = 1\text{cm}$ ; (d)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 0.5\text{cm}$ ; (e)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 1\text{cm}$ , 导流管水平延长  $1\text{cm}$ ; (f)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 0.5\text{cm}$ , 上下壁面水平.

Fig. 2 Influence of reactor geometry on flow fields Flow rates of three inlets are (3, 5, 3) s1m,  $p = 10^5\text{Pa}$ ,  $T = 1323 \sim 300\text{K}$ . (a)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 1\text{cm}$ ; (b)  $H = 2\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 2\text{cm}$ ; (c)  $H = 1\text{cm}, D = 20\text{cm}, h = 1\text{cm}$ ; (d)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 0.5\text{cm}$ ; (e)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 1\text{cm}$ , gas distributor extends  $1\text{cm}$  horizontally; (f)  $H = 1\text{cm}, D = 14\text{cm}, h = 0.5\text{cm}$ , horizontal ceiling

得阻碍对流的侧面阻力影响降低, 二者都增大了热对流涡旋的影响.

### 4.2 导流管位置的影响

如图 2 (d) 所示, 当导流管 (或与内管同时) 由原来的  $h = 1\text{cm}$  下移至  $h = 0.5\text{cm}$  时, 上涡旋向下扩展, 而下涡旋因受到底面的抑制而收缩. 使导流管上移产生相反效应 (内管的上下移动对涡旋影响不大). 涡旋的增大或减小视导流管与外壁构成的空间增大或减小而定. 两种变化均未能使衬底上方的流场得到明显改善.

如图 2 (e) 所示, 保持气体导流管与底面间距  $h = 1\text{cm}$ , 使导流管水平延长  $1\text{cm}$ . 对照图 2 (a) 发现, 反应腔内上涡旋明显减小, 下涡旋保持在导流管下方, 仅形状稍有变化. 衬底上方的流场得到明显改善, 流线在基片上方变为较平滑层流.

### 4.3 反应腔上下壁面平行度和流道截面积的影响

当反应腔上下壁面从渐缩改为平行, 壁面间距  $H = 2\text{cm}$  时, 对流涡旋与前述渐缩型反应器类似 (图省略). 当  $H = 1\text{cm}$  时, 对流涡旋消失, 流动变得几

乎完全均匀,如图 2(f) 所示.其原因可能是此时的平行流道与进口流道截面积近似相等,从而避免了流体在垂直进口处的分离涡旋.如果不考虑反应粒子浓度的沿程消耗,这将是更有利于薄膜外延生长的运输条件.

#### 4.4 三重进口气体流量的影响

在其他条件不变时,三重进口气体流量的不同配比对反应器流场的影响由图 3 示出.其中图 3(a) 作为对照基准,流量配比为(1,1,3).由图可见,反应腔内实际存在四个对流涡旋,分别位于反应腔的上方(外管出口处)、导流管下方(中管出口处)、衬底上方靠中心处(中管出口处左下方)以及反应腔出口处.随着内、中、外管流量的变化,对流涡旋发生相应的变化.

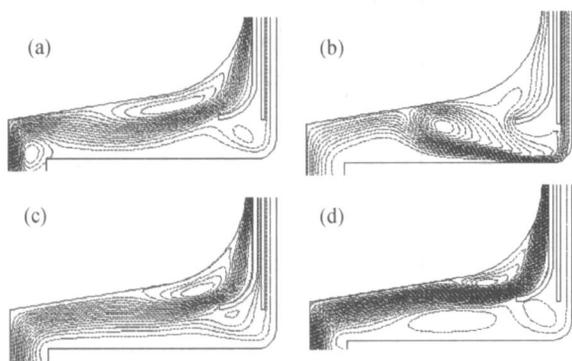


图 3 三重进口流量对比对流场的影响 压强为  $10^5$  Pa,衬底温度为 1323 K,壁面温度为 300 K. 三重进口流量分别为:(a) (1,1,3) s1m;(b) (10,1,3) s1m;(c) (1,10,3) s1m;(d) (1,1,10) s1m

Fig. 3 Influences of flow rates of three-inlets on flow fields  $H = 1\text{cm}$ ,  $D = 14\text{cm}$ ,  $h = 1\text{cm}$ ,  $P = 10^5$  Pa,  $T = 1323 \sim 300$  K Flow rates of three-inlets are (a) (1,1,3) s1m;(b) (10,1,3) s1m;(c) (1,10,3) s1m;(d) (1,1,10) s1m, respectively.

如图 3(b) 所示,流量配比为(10,1,3)时,由于内管气体流速的增加,使底部流动转折处产生更大的负压,吸引上方的流体产生回流,从而形成指向底部中心的大涡;同时反应腔出口处的涡旋也扩展到衬底上方,故反应腔内同时存在两个较大的对流涡旋.

如图 3(d) 所示,流量配比为(1,1,10)时,由于外管气体流速的增加,反应腔上方的对流涡旋缩小,而下方的涡旋扩展成狭长的大涡,占据大半个反应腔下方.其原因可能是反应腔上方产生负压与浮力

对流联合作用造成.

如图 3(c) 所示,在(1,10,3)进口流量分配下,上下涡旋尽管仍然可见,但均被限制在反应腔进口处,衬底上方保持为平滑层流,形成有利于薄膜生长的条件.故单独增大中管流量最有利于抑制对流涡旋.

若同时增大两管或三管流量,并不能抑制涡旋,获得平滑层流,因为内、外管流量的增加破坏了单独增加中管流量所带来的好处.上述现象说明径向流反应器不同于传统的水平双层流式反应器,前者流道截面积沿径向线性递增,后者流道截面积为常数.前者只有中层流量的增大能抑制对流涡旋,而后者上层流动通常能抑制下层的对流涡旋.

#### 4.5 低压强、微重力的影响

图 4(a) 作为对照基准与图 2(a) 相同,表示在重力场、大气压下的流场分布.

如图 4(b) 所示,当其他条件不变,反应器压强降为  $10^4$  Pa 时,上、下涡旋均大大缩小并被限制在反应腔进口处.对流涡旋的缩小显然是由于气体密度的降低.对于不同的进口流量配比,降低压强都产生类似的影响.

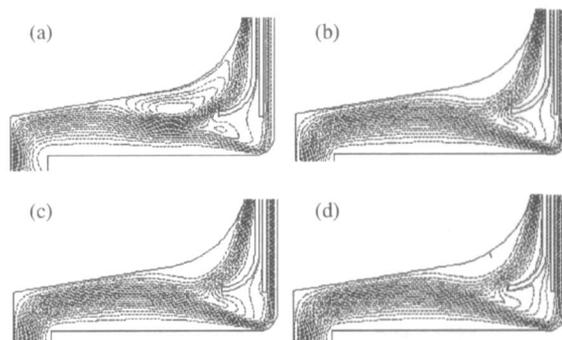


图 4 低压强和微重力对流场的影响 流量为(3,5,3) s1m,  $T = 1323 \sim 300$  K. (a)  $g = 9.8\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa; (b)  $g = 9.8\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^4$  Pa; (c)  $g = 0\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa; (d)  $g = 0\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa, 流量为(3,10,3) s1m.

Fig. 4 Influences of low pressure and zero gravity on flow fields Flow rates are (3,5,3) s1m,  $T = 1323 \sim 300$  K (a)  $g = 9.8\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa; (b)  $g = 9.8\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^4$  Pa; (c)  $g = 0\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa; (d)  $g = 0\text{m/s}^2$ ,  $p = 10^5$  Pa Flow rates are (3,10,3) s1m.

如图 4(c) 所示,当其他条件不变,重力为零时,流场的分布与图 4(b) 相似,说明反应腔进口处的两个涡旋是由于进口速度方向的突变造成的.在无浮

力作用(零重力或密度很小)时,涡旋局限在进口拐角处,而浮力对流则促使原有涡旋在反应腔内扩展长大。

图 4(d) 示出三重进口气体流量为 (3, 10, 3) slm, 零重力, 其他条件不变时, 反应腔内流场的分布。此时的流场与图 4(c) 所示流量为 (3, 5, 3) slm 时几乎完全相同。

#### 4.6 壁面温度的影响

取导流管延长 1cm 的反应器, 三重进口流量为 (3, 5, 3) slm, 保持反应腔衬底及其所在平面温度为 1323 K, 反应腔上壁(以及侧壁)温度依次取为 300, 600, 900 K 和绝热时, 对应的反应器流场和温场由图 5(a) ~ (d) 示出。

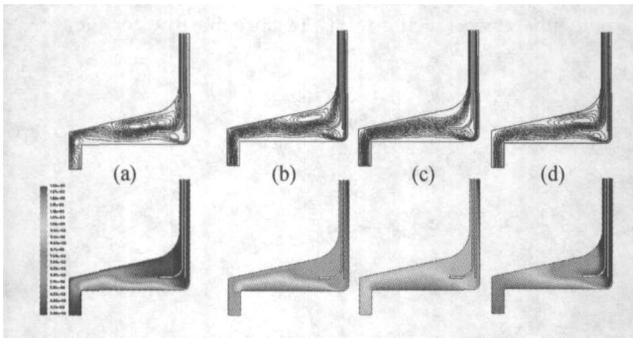


图 5 上壁温度的变化对流场和温场的影响 流量为 (3, 5, 3) slm,  $T_{\text{substrate}} = 1323 \text{ K}$ ,  $p = 10^5 \text{ Pa}$ . (a)  $T_{\text{wall}} = 300 \text{ K}$ ; (b)  $T_{\text{wall}} = 600 \text{ K}$ ; (c)  $T_{\text{wall}} = 900 \text{ K}$ ; (d) 上壁和侧壁绝热 上图表示流场, 下图表示温场。

Fig. 5 Influence of wall temperature on flow and temperature fields (Flow rates are (3, 5, 3) slm,  $T_{\text{substrate}} = 1323 \text{ K}$ ,  $p = 10^5 \text{ Pa}$ ) (a)  $T_{\text{wall}} = 300 \text{ K}$ ; (b)  $T_{\text{wall}} = 600 \text{ K}$ ; (c)  $T_{\text{wall}} = 900 \text{ K}$ ; (d) Insulated walls (top and sides) Upper figures are flow fields and lower figures are temperature fields.

从模拟结果看出, 随着衬底与上壁之间温差逐渐缩小, 对流涡旋也随之缩小。到上壁温度 900 K (温差为 423 K) 时, 浮力作用几乎完全消失, 剩下的两个流动转折处的涡旋与前述的零重力情况相同, 是由流动方向的改变引起, 与温度无关。上壁为绝热温度条件时, 反应腔上壁附近仍存在较大涡旋, 衬底上方温度分布不均匀, 对薄膜生长明显不利。

模拟结果也给出了反应腔内  $\text{NH}_3$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$  的浓度分布, 该浓度分布是在不考虑化学反应情况下, 由粒子的浓度扩散和对流作用产生。关于这一模拟结

果的分析和讨论将另文叙述。

## 5 结论

(1) 在径向流动 MOCVD 反应器内, 由于气体由垂直流动折转为水平径向流动, 从而在反应腔靠近流动转折处引发对流涡旋, 涡旋的产生与浮力作用无关。

(2) 上下壁面温差引起的浮力使涡旋加强, 并向反应腔出口处扩展。

(3) 内管和外管流量的增加均使涡旋增大, 中管流量的增加对涡旋产生抑制作用。

(4) 在不考虑反应粒子浓度消耗、衬底直径不变的情况下, 薄膜生长的最佳输运过程(衬底上方保持平滑层流和均匀分布温场)的优化条件为: 反应腔上下壁面水平靠近; 导流管水平延长; 三重进口的中管流量尽量大于内、外管流量; 压强尽量低于  $10^5 \text{ Pa}$ ; 上下壁面温差尽量减小等。

## 参考文献

- [1] Hitchman M L, Jensen K F. Chemical vapor deposition. Academic Press, 1993
- [2] Kleijn C R. Numerical simulation of flow and chemistry in thermal chemical vapor deposition processes. In: Chemical physics of thin film deposition processes for micro- and nanotechnologies. Pauleau Y, ed. Kluwer Academic Publishers, 2002:119
- [3] Zhang Jiawen, Gao Hongkai, Zhang Jikang, et al. Numerical simulation of return flow in MOCVD reactor. Chinese Journal of Semiconductors, 1994, 15(4):268 (in Chinese) [张佳文, 高鸿楷, 张济康, 等. MOCVD 过程中回流现象的数值模拟. 半导体学报, 1994, 15(4):268]
- [4] Beccard R, Protzmann H, Schmitz D, et al. A novel reactor concept for multiwafer growth of - semiconductors. J Cryst Growth, 1999, 198/199:1049
- [5] 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
- [6] Kepler G M, Hopfner C, Scroggs J S, et al. Simulation of a vertical reactor for high pressure organometallic chemical vapor deposition. Meter Sci Eng, 1998, B57:9

## Numerical Study of Transport Phenomena in a Radial Flow MOCVD Reactor with Three-Separate Vertical Inlets<sup>\*</sup>

Zuo Ran<sup>1</sup>, Zhang Hong<sup>1</sup>, and Liu Xianglin<sup>2</sup>

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

(2 Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

**Abstract :** Two-dimensional numerical study on transport phenomena in a radial flow MOCVD reactor with three-separate vertical inlets is conducted. By varying the reactor geometries, inlet flow rates, gas pressure and wall temperature, the corresponding velocity, temperature and concentration fields inside the reactor are calculated. It is found that recirculation rolls originate from the flow separation near the bend of the inlet tube, while buoyancy forces due to temperature difference enhance the rolls. Increasing the flow at the mid tube compresses the rolls whereas increasing the flows at the inner and outer tubes enhances the rolls. The optimum conditions of transport process for film growth are: decreasing the distance between the substrate and top wall, lengthening the gas distributor, increasing the flow rate of the mid tube, lowering the total pressure and the temperature difference between the substrate and ceiling.

**Key words :** MOCVD; thin film growth; transport process; thermal convection; numerical modeling

**PACC :** 8115H; 4725Q

**Article ID :** 0253-4177(2005)05-0977-06

---

<sup>\*</sup> Project supported by National Natural Science Foundation of China (No. 60376006), and National High Technology Research and Development Program of China (No. 2002AA311242)

Zuo Ran male professor, specializing in thermofluids science and semiconductor materials processing. Email: rzuo@ujs.edu.cn

Received 23 May 2004, revised manuscript received 20 September 2004

© 2005 Chinese Institute of Electronics