

Полученные результаты могут быть использованы также при изучении самих при-
поверхностных полей с помощью ориентированных пучков молекул-волчков.

Автор выражает благодарность участникам семинара В. П. Широковского за ценные
советы и полезные замечания.

Литература

- [1] Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и родственные им материалы. М.: Мир, 1981. 736 с.
- [2] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Статистическая физика. М.: Наука, 1976. 584 с.
- [3] Сулопаров В. М. // Тез. докл. XI Всесоюзн. конф. по физике сегнетоэлектриков. Киев, 1986. Ч. 1. С. 1—52.
- [4] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Механика. М.: Наука, 1973. 207 с.
- [5] Розенбаум В. М., Артамонова Е. В., Огенько В. М. // УФЖ. 1985. Т. 30. № 10. С. 1574—1578.

Физико-технический институт
Уральское отделение АН СССР

Поступило в Редакцию
22 сентября 1987 г.

В окончательной редакции
10 апреля 1988 г.

03; 06; 11

Журнал технической физики, т. 59, в. 4, 1989

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ НЕСТАЦИОНАРНОГО МАССОПЕРЕНОСА В ОБЪЕМЕ ГАЗОЭПИТАКСИАЛЬНОГО РЕАКТОРА ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ СТРУКТУР МОС-ГИДРИДНЫМ МЕТОДОМ

А. И. Жмакин, О. В. Коваленков, И. А. Кузьмин, Ю. Н. Макаров,
А. А. Фурсенко, Б. С. Явич

В работе на основе специально выполненных экспериментов и анализа опытных данных других авторов построена математическая модель для описания процесса формирования переходных областей при выращивании структур в системе триметилгаллий (ТМГ)—триметилалюминий (ТМА)—арсин—водород. Выращивание эпитаксиальных слоев GaAs и твердых растворов $Al_xGa_{1-x}As$ проводилось при атмосферном давлении в реакторе вертикального типа с ВЧ нагревом подложкодержателя [1].

1. Рост эпитаксиальных слоев в описанной системе протекает в диффузионных режимах, когда скорость роста лимитируется массопереносом соединений, содержащих элемент III группы, к растущему на подложке слою [2]. Следовательно, процессы нестационарного массопереноса на фоне течения смеси в реакторе определяют ширину переходных областей между слоями различного состава.

В силу малости концентраций реагентов в несущем газе влияние физико-химических превращений в смеси на газодинамику течения незначительно. Это позволяет отдельно считать стационарные поля скоростей и температур смеси в объеме реактора без учета химических реакций, а затем на основе этих полей изучать процессы нестационарного массопереноса соединений, содержащих элемент III группы. Для расчета газодинамики использована модель гипозвукового течения, уравнения которой и численные алгоритмы для ее решения приведены в [3, 4].

Модель процессов роста эпитаксиальных слоев твердых растворов $Al_xGa_{1-x}As$ основывается на следующих предположениях.

- 1) Пиролиз ТМГ и ТМА происходит независимо.
- 2) Основными продуктами разложения этих соединений при температурах подложкодержателя $T_s \geq 900$ К в объеме и у поверхности подложек являются Ga, GaAs, Al, AlAs.
- 3) ТМА присутствует в исходной парогазовой смеси в форме димеров.

Ввиду незначительного отличия коэффициентов диффузии в водороде Ga и GaAs (Al и AlAs) от коэффициента диффузии ТМГ (ТМА) можно не детализировать механизм пиролиза

ТМГ (ТМА) и ограничиться рассмотрением массопереноса основных компонентов ТМГ и ТМА и продуктов пиролиза Ga+GaAs и Al+AlAs. Тогда для замыкания уравнений требуется знание лишь констант скорости разложения ТМГ и ТМА, экспериментальное определение которых проведено авторами [6].

Уравнения переноса соединений, содержащих Ga, имеют вид

$$\rho \left(\frac{\partial C_1}{\partial t} + \mathbf{V} \nabla C_1 \right) = \frac{1}{\text{Pe}_{D_1}} \nabla (\rho D \nabla C_1) - \rho k_1 C_1 t_0,$$

$$\rho \left(\frac{\partial C_2}{\partial t} + \mathbf{V} \nabla C_2 \right) = \frac{1}{\text{Pe}_{D_2}} \nabla (\rho D \nabla C_2) + \rho k_1 C_1 t_0.$$

Здесь C_1, C_2 — объемные доли ТМГ и продуктов его пиролиза Ga+GaAs соответственно; $k_1(T)$ — константа скорости разложения ТМГ; Pe_{D_i} — диффузионное число Пекле $\text{Pe}_{D_i} = V_0 R_0 / D_{0i}$; ρ_0, μ_0, D_{0i} — соответственно плотность смеси, ее коэффициент динамической вязкости и бинарный коэффициент диффузии i -го компонента при температуре T_0 ; \mathbf{V} — вектор скорости; $D = (T/T_0)^{1.65}$; $t_0 = R/V_0$ — характерный временной масштаб; R — радиус реактора; V_0 — линейная скорость смеси на входе.

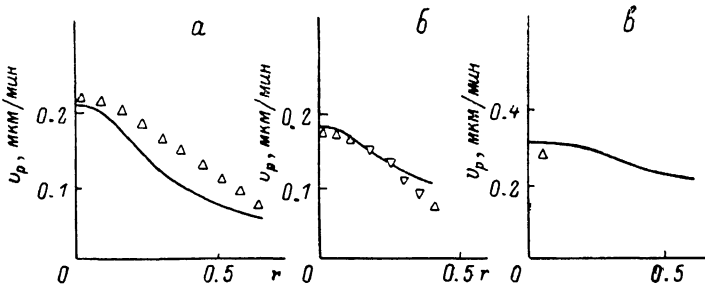


Рис. 1. Зависимости скорости роста от радиуса.

a: $F=6$ л/мин, $T_s=900$ К, $r_s=27.5$ мм (r_s — радиус подложкодержателя), $r_{\text{вх}}=5$ мм ($r_{\text{вх}}$ — радиус входного отверстия реактора); **б:** $F=6$ л/мин, $T_s=900$ К, $r_s=17.5$ мм, $r_{\text{вх}}=5$ мм; **в:** $F=6$ л/мин, $T_s=1050$ К, $r_s=27.5$ мм, $r_{\text{вх}}=16.5$ мм.

Аналогичные два уравнения записываются для алюминийсодержащих соединений ТМА и Al+AlAs ($i=3, 4$). На входе в реактор задавалось $C_1=C_{\text{ТМГ}}^{\text{вх}}$, $C_2=0$, $C_3=C_{\text{ТМА}}^{\text{вх}}$, $C_4=0$. На выходе ставились «мягкие» граничные условия равенства нулю производных от концентрации по продольной координате. На подложкодержателе принималось $C_1=C_2=C_3=C_4=0$. Предполагалось, что на стенках реактора отсутствует осаждение в том случае, если температура поверхности ниже температуры разложения ТМА и ТМГ [6], т. е. $J_i = -\rho D_i (\partial C_i / \partial n) = 0$, n — нормаль к поверхности.

Диффузионные потоки реагентов в единицу времени к растущему слою вычисляются следующим образом:

$$J_{\text{Ga}} = -\rho \left(D_1 \frac{\partial C_1}{\partial n} + D_2 \frac{\partial C_2}{\partial n} \right),$$

$$J_{\text{Al}} = -\rho \left(D_3 \frac{\partial C_3}{\partial n} + D_4 \frac{\partial C_4}{\partial n} \right).$$

Скорость роста слоя твердого раствора $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ равна

$$V_p = (J_{\text{Ga}} + J_{\text{Al}}) / \rho_{\text{ТВ}},$$

где $\rho_{\text{ТВ}}$ — плотность атомов в кристаллической решетке. Состав твердого раствора

$$x = J_{\text{Al}} / (J_{\text{Ga}} + J_{\text{Al}}).$$

Толщина выросшего за время $\Delta t = t_2 - t_1$ слоя

$$H = \int_{t_1}^{t_2} V_p dt.$$

2. Проверка адекватности математической модели проводилась путем сопоставления расчетных и экспериментальных зависимостей скоростей роста эпитаксиальных слоев в стационарных условиях. На рис. 1 показаны теоретические зависимости (сплошные линии) и

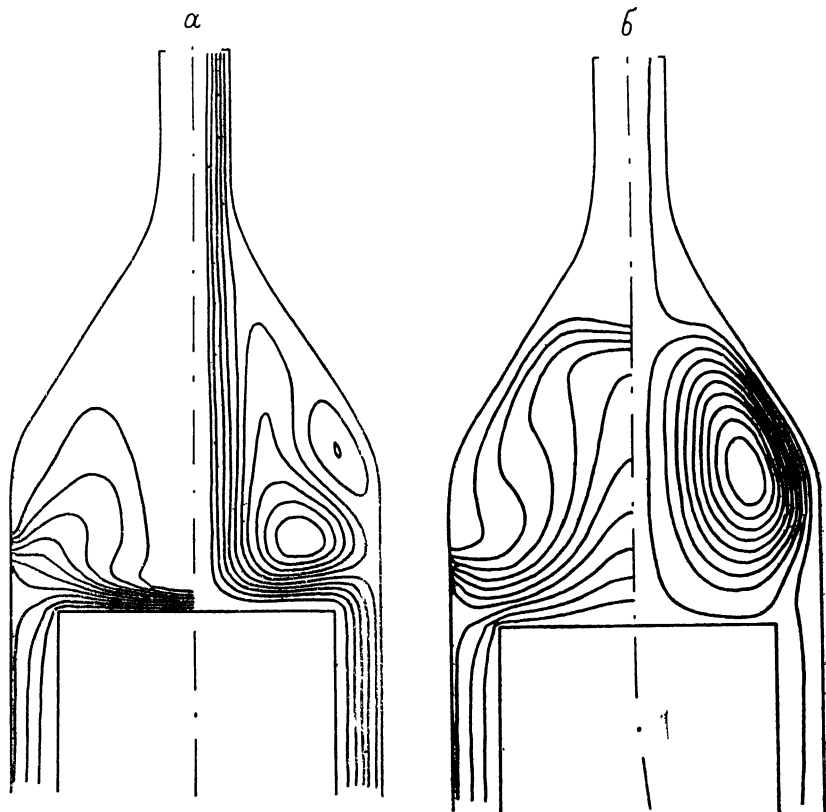


Рис. 2.

экспериментальные значения (треугольники) скоростей роста слоев GaAs (а, б) и твердого раствора $Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ (в). Видно, что, несмотря на простоту, модель в целом адекватно описывает процессы роста слоев в данной системе.

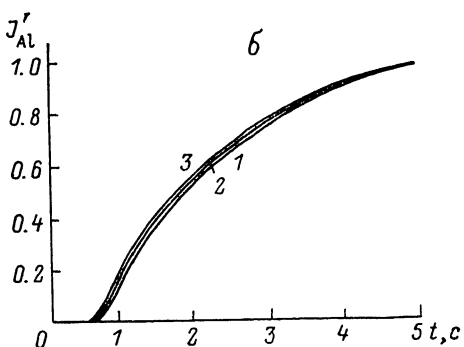
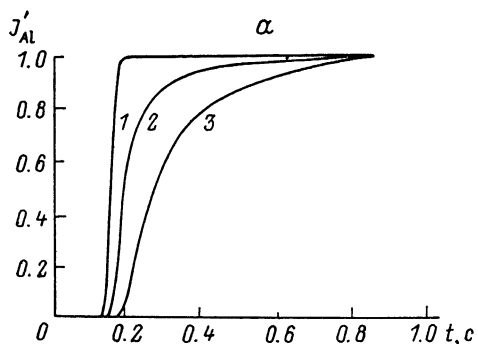


Рис. 3.

3. Рассмотрим процессы в объеме реактора. Картины течения смеси при расходах $F=6$ и 2 л/мин показаны на рис. 2, а, б. Слева приведены изолинии температуры, справа — изолинии функции тока (траектории). В первом случае формируется режим течения с преобладанием вынужденной конвекции, во втором — естественной.

Процессы нестационарного массопереноса исследовались для различных способов подачи реагентов в реактор.

а) Ступенчатое изменение концентрации ТМА на фоне постоянного потока ТМГ. В момент времени $t=0$ ($H=0$) концентрация ТМА на входе в реактор мгновенно меняется от 0 до $C_{\text{ТМА}}^{\text{BX}}$. Концентрация ТМГ на входе постоянна и равна $C_{\text{ТМГ}}^{\text{BX}}$.

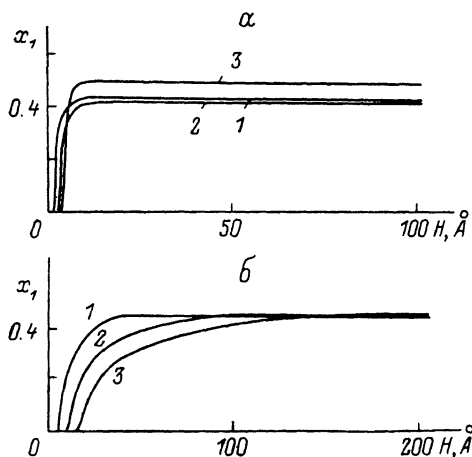


Рис. 4.

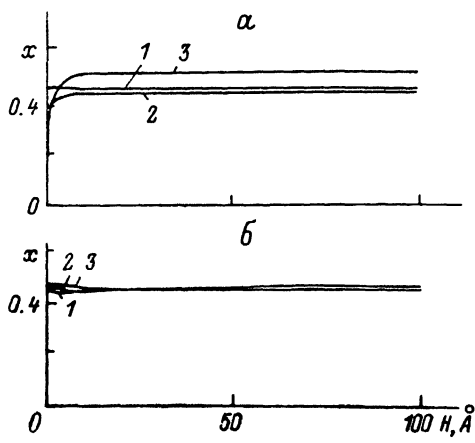


Рис. 5.

На рис. 3 показаны зависимости от времени относительного потока $J'_{\text{Al}} = J_{\text{Al}}/J_{\text{Al}}^0$ (J_{Al}^0 — стационарный массопоток Al в растущий слой) для режимов при $F=6$ (а) и 2 л/мин (б). Результаты приведены для трех точек подложки: в центре подложкодержателя $r=0$ (кривые 1), при $r=1/2r_s$ (кривые 2) (r_s — радиус подложкодержателя), при $r=r_s$ (кривые 3). Видно, что в режиме с преобладанием вынужденной конвекции в различных точках подложки время установления массопотока τ может существенно отличаться. Режим течения с преобладанием

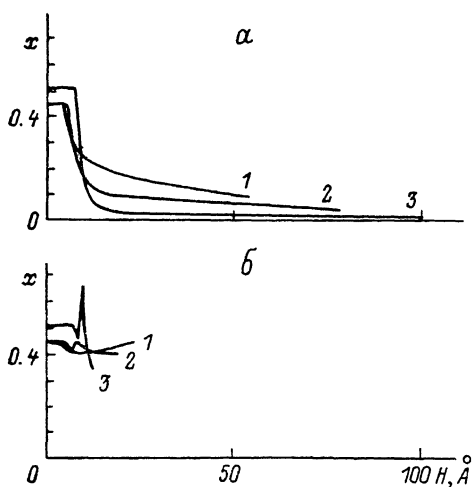


Рис. 6.

естественной конвекции характеризуется одинаковыми для всех точек подложки и существенно большими значениями τ . Соответствующие рис. 3 зависимости состава x_j от толщины выросшего слоя H показаны на рис. 4. Процесс роста, в котором реализуется режим течения с преобладанием естественной конвекции, приводит при данном способе подачи реагентов к формированию широкой переходной области. Этот результат является следствием медленного обмена реагентами между вихрем и внешним потоком (рис. 2, б). Следует отметить также, что состав слоя по подложке может несколько меняться от центра к периферии, причем, как видно из рис. 4, а, монотонно.

б) Одновременное ступенчатое изменение концентраций ТМА и ТМГ на входе в реактор. В момент времени $t=0$ концентрации и $C_{\text{ТМА}}^{\text{BX}}$ и $C_{\text{ТМГ}}^{\text{BX}}$ соответственно. Характер зависимостей

$x_j(H)$ в этом случае существенно меняется. Для этого случая на рис. 5 показаны в тех же обозначениях кривые, соответствующие рис. 4. Можно отметить существенное уменьшение толщины переходной области. Изменился и вид профиля состава по толщине переходного слоя, появились выбросы в окрестности гетерограницы.

При прекращении подачи ТМГ и ТМА в реактор, т. е. при остановке процесса выращивания слоя твердого раствора, зависимости $x_j(H)$ имеют еще более сложный характер. На рис. 6 приведены зависимости $x_j(H)$, отвечающие случаю прекращения подачи ТМА в реактор при переходе от выращивания слоя твердого раствора к слою GaAs (а) и случаю одновременного прекращения подачи ТМГ и ТМА, т. е. остановке роста (б). В обоих случаях

рассмотрен режим течения с преобладанием вынужденной конвекции (рис. 2, а). Немонотонный характер кривых является следствием различия в скоростях убывания потоков J_{Ga} и J_{Al} во времени при очистке объема реактора от реагентов.

4. Использование математического моделирования процессов нестационарного массопереноса в реакторе позволяет изучить возможности управления профилем состава твердого раствора $Al_xGa_{1-x}As$ в переходной области. В [7] для этой цели предложено подавать в реактор ТМГ и ТМА в различные моменты времени $t_{ТМГ}$ и $t_{ТМА}$. В данной работе исследовано

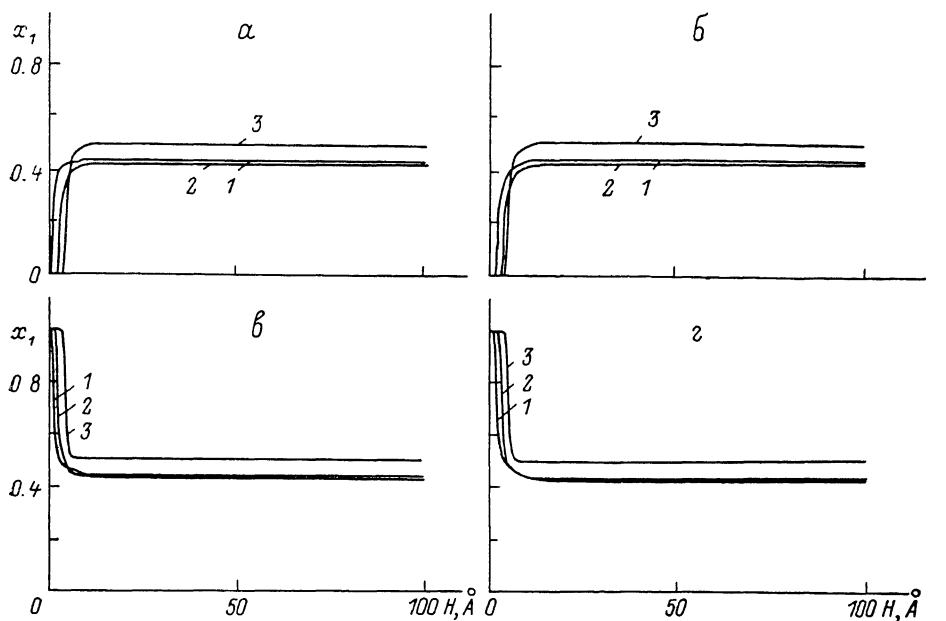


Рис. 7.

влияние величины и знака задержки $\delta t = t_{ТМА} - t_{ТМГ}$ на характер изменения состава x по толщине образующегося в таких условиях твердого раствора. На рис. 7 показаны зависимости $x_j(H)$ в режиме ($F=6$ л/мин) течения с преобладанием вынужденной конвекции для $\delta t=1$ (а), 2 (б), -1 (в), -2 (г). Видно, что такой прием, как задержка подачи одного из реагентов, позволяет управлять как величиной градиента состава (а, б), так и величиной и протяженностью выбросов в профиле состава в окрестности гетерограницы (в, г).

Таким образом, приведенные результаты показывают, что с помощью численного моделирования процессов нестационарного массопереноса в объеме реактора могут быть изучены особенности формирования областей с заданным градиентом состава твердого раствора.

Литература

- [1] Жмакин А. И., Ипатова И. П., Макаров Ю. Н. и др. // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. Вып. 8. С. 506—509.
- [2] Stringfellow G. B. // J. Cryst. Growth. 1984. Vol. 68. N 1. P. 111—122.
- [3] Жмакин А. И., Макаров Ю. Н. // ДАН СССР. 1985. Т. 280. № 4. С. 827—830.
- [4] Всесветский И. Г., Жмакин А. И., Кадинский Л. А., Макаров Ю. Н. Препринт ФТИ АН СССР. № 1094. 1987.
- [5] Suzuki M., Salo M. // J. Electrochem. Soc. 1985. Vol. 132. N 7. P. 1684—1688.
- [6] Den Baars S. P., Maa B. Y., Dapkus P. D. et al. // J. Cryst. Growth. 1986. Vol. 77. N 1. P. 188—193.
- [7] Azonlay R., Dugrand L., Rao E. V. K. // J. de Physique. 1982. Vol. 43. N 2. P. 229—234.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
19 января 1988 г.