

УДК 532.72+536.2

© 1996 г. К.И. АНТОНЕНКО, А.А. АРЕНДАРЕНКО, Ю.П. РАЙНОВА,
И.Н. СОРОКИН, С.М. ТУРИЛИН**ИССЛЕДОВАНИЕ ГАЗОВЫХ ПОТОКОВ В РЕАКТОРЕ
РАДИАЛЬНОГО ТИПА ДЛЯ ЭПИТАКСИИ GaAs**

Методом голографической интерферометрии визуализированы течения аргона и водорода в реакторе радиального типа для эпитаксии GaAs из металлоорганических соединений, по голографическим интерферограммам рассчитаны температурные поля в водороде для различных скоростей потоков. Показано, что интерпретация явлений, протекающих в газовой фазе, по значениям безразмерных критериев Re , Ra полезна для качественной оценки и сравнения различных ситуаций в потоке; выявлена корреляция интерференционных картин с геометрией реактора и скоростью потока газов, которая может использоваться для оптимизации параметров процесса и конструкции реакционной камеры; нестабильность течений Ar , H_2 связана с турбулентностью при высоких скоростях, естественной конвекцией, причем дестабилизирующее воздействие выталкивающих сил проявляется значительно сильнее в потоке аргона. Последнее обстоятельство делает непроверенной оценку характера течений по величине комплекса Gr/Re^2 .

Для изготовления электронных и оптоэлектронных устройств необходимы эпитаксиальные структуры GaAs с высокой однородностью свойств и резкой границей раздела фаз в зоне срастания. Газофазная эпитаксия GaAs из металлоорганических соединений позволяет получать такие структуры и варьировать параметры слоев. В последние годы актуальной становится проблема исследования картин потоков, тепло- и массообмена при эпитаксии GaAs из металлоорганических соединений [1–8]. От ее решения зависит в значительной мере возможность реализации преимуществ этого метода получения однородных слоев с минимальной толщиной переходного эпитаксиального слоя, поскольку кинетика процесса в оптимальной области экспериментальных условий лимитируется диффузионной стадией.

Методы расчета газодинамических течений в эпитаксиальных реакторах очень сложны и разработаны только для простейших случаев. Это связано с тем, что для процесса эпитаксии характерны: взаимосвязанное развитие профилей скоростей, температур и концентраций, существенная неизотермичность, переменность состава парогазовой смеси, сопряженность концентрации компонентов на горячей поверхности с процессами тепло- и массообмена в объеме газовой фазы, влияние свободной конвекции, влияние диффузии и теплопроводности в направлении течения парогазовой смеси [9].

Наиболее достоверные сведения о газодинамических условиях при эпитаксии позволяют получить прямые экспериментальные наблюдения состояния газовой фазы.

Изучение процессов, протекающих в прозрачных средах, невидимых для человеческого глаза, существенно упрощается, если удается их визуализировать. Среди экспериментальных методов визуализации прозрачных сред особое место занимают методы голографической интерферометрии, позволяющие осуществлять проведение измерений в реальном времени на действующем оборудовании или на моделях, воспроизводящих действующий реактор, – методы измерений *in situ* [8–10]. К преимуществам методов голографической интерферометрии можно отнести отсутствие инерционных погрешностей, что дает возможность выполнять точные измерения параметров быстро протекающих процессов. Голографические измерения не искажают

истинной картины объекта, поскольку энергия, поглощаемая средой, мала по сравнению с энергией, передаваемой в процессе теплообмена. Вместе с тем, как и большинство оптических методов, голографическая интерферометрия позволяет определять лишь интегральные по направлению просвечивающего луча параметры газовой фазы.

Голографическая диагностика позволяет получать сведения о параметрах среды через связь с показателем преломления газовой фазы. Последующие расчеты преобразуют полученную информацию в поле плотности газовой фазы и распределение температур. По принципу действия голографические измерения являются многоступенчатым процессом: вначале регистрируется голограмма объекта, затем восстанавливается его изображение, а количественные данные измерений определяются в результате обработки полученного изображения. Способ регистрации и последующего восстановления изображения объекта основан на интерференции двух когерентных волн: исследуемой волны, прошедшей через объект, и когерентной с ней опорной волны с известным распределением фаз. В результате получают интерференционные полосы, характеризующие величину деформации волнового фронта. Для регистрации волновых фронтов используют голографический способ записи изображения.

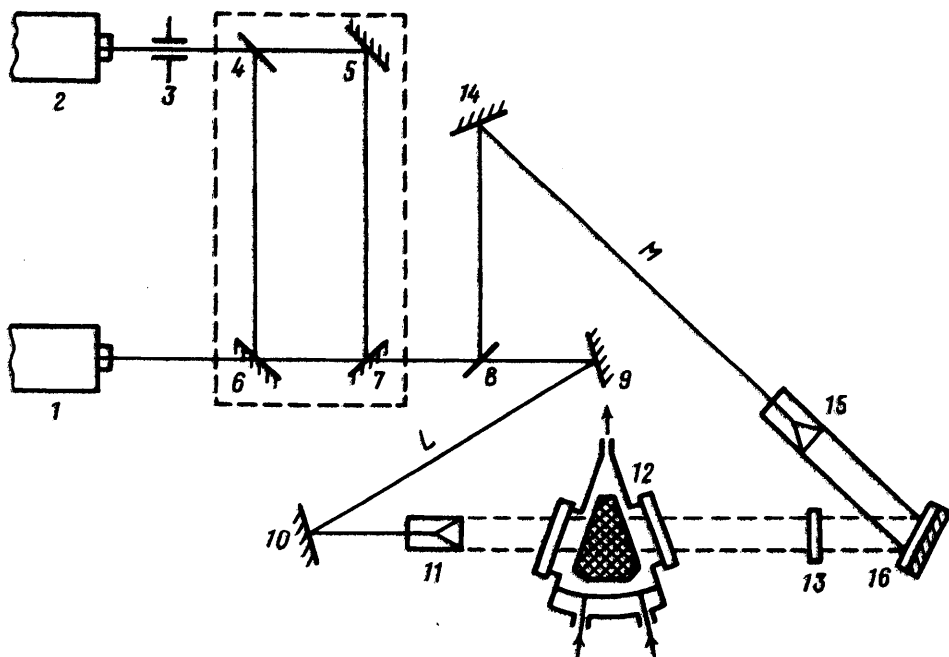
В настоящей работе использовался один из методов голографической интерферометрии – метод двухэкспозиционной голографической интерферометрии [11] для изучения течений водорода и аргона в модели реактора радиального типа для эпитаксии GaAs. Метод двухэкспозиционной голографической интерферометрии предполагает последовательную регистрацию двух голограмм, соответствующих двум состояниям одного и того же объекта. Одновременно восстанавливаясь, две волны, являющиеся голографическими копиями волн, зарегистрированных во время экспозиций на материале голограммы, интерферируют. Для экспонирования газовой фазы используются импульсные лазеры, что позволяет устранить сложности, связанные с влиянием вибраций на качество изображения, и, кроме того, при восстановлении интерферограмм не требуется объект и прецизионная установка голограммы.

Выбор в качестве объекта исследований реактора радиального типа обусловлен рядом преимуществ этой конструкции по сравнению с традиционными. К ним можно отнести: низкое автолегирование эпитаксиальных слоев (поскольку парогазовая смесь во время кристаллизации проходит только над одной подложкой), однородность газодинамических условий для всех подложек в партии, возможность увеличения диаметра подложек.

1. Схема эксперимента. Для изучения газовых потоков использовалась двухлучевая оптическая схема с опорным пучком (фиг. 1). Регистрация изображений осуществлялась с помощью импульсного рубинового лазера 1 ($\lambda = 6953 \text{ \AA}$). Юстировка голографической схемы была выполнена с помощью He-Ne-лазера 2 ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$), работающего в непрерывном режиме, диафрагмы 3 и интерферометра Майкельсона, выделенного на фиг. 1 штриховой линией, состоящего из зеркал 4, 5, 6, 7¹. He-Ne-лазер использовался также для восстановления изображений. Излучение импульсного лазера 1 светоделителем 8 делится на сигнальную и опорную волны. Оптическая схема была съюстирована таким образом, чтобы сигнальная волна проходила через оптические окна реактора параллельно пьедесталу. Сигнальная волна *L* с помощью зеркал 9 и 10 через расширитель 11 проходит через реактор 12 и затем через светофильтр 13, установленный для уменьшения фоновой засветки. Отраженный от полупрозрачного зеркала 8 луч образует опорную волну *M*, которая через зеркало 14 и расширитель 15, так же как и сигнальная, попадает на фотопластину 16.

Для получения голографической интерферограммы необходимо было сделать две экспозиции фотопластины. Первая экспозиция выполнялась при холодном пьедестале

¹ После юстировки зеркала 6 и 7 убираются из оптической схемы.



Фиг. 1. Оптическая схема: 1 – импульсный лазер, 2 – He-Ne-лазер, 3 – диафрагма, 4, 8 – светоделители, 5, 6, 7, 9, 10, 14 – зеркала, 11, 15 – расширители, 12 – модель реактора радиального типа, 13 – светофильтр, 16 – фотопластина

и подаче в камеру соответствующего газа. Вторая экспозиция – во время процесса. После обработки на фотопластине формируется одновременно изображение двух состояний газовой фазы в свободном пространстве над пьедесталом. Волны, зарегистрированные во время экспозиций на фотопластине, интерферируют, образуя голографическую интерферограмму. Для увеличения контрастности записываемых голограмм оптические пути сигнальной и опорной волн выравнивались с точностью до 1 см.

Исследуемый объект размещался на оптической скамье и представлял 60-градусный фрагмент горизонтального радиального реактора, выполненный из нержавеющей стали. Боковые стенки реактора изготовлены из оптического кварца, что позволяет осуществлять экспонирование реакционной зоны. В нижней части устройства горизонтально располагался резистивный графитовый нагреватель. Дно и верхняя стенка реактора охлаждались водой. Подача газов – через кольцевую трубку с отверстиями, расположенную по периферии реактора. Выход газа – через трубку в центре реактора. Высота свободного пространства над пьедесталом регулировалась с помощью экрана. Температура пьедестала составляла 923 К, скорость газового потока на входе реактора изменялась от 0,2 до 5 см/с.

Основные газодинамические параметры используемой конструкции, представленные в виде безразмерных величин – критериев подобия Re , Ra и комплекса Gr/Re^2 , приведены в таблице. Расчеты выполнены для температуры пьедестала 923 К, температура верхней стенки реактора принята равной 450 К.

В соответствии с данными таблицы в исследуемой области экспериментальных условий в водороде и аргоне не следует ожидать возникновения турбулентности, поскольку значение критерия $Re = \nu \rho r / \mu$ значительно ниже критического (с учетом температурного фактора $Re_{cr} = 441$ [9]). Из приведенных данных следует, что течения водорода при сопоставимых расходах должны отличаться более высокой стабильностью по сравнению с аргонем, а также, что уменьшение высоты свободного пространства над пьедесталом и скорости потока стабилизирует поток.

h, см	V, см/с	Re		Gr/Re ²		Ra	
		H ₂	Ar	H ₂	Ar	H ₂	Ar
2,1	0,5	0,246	1,94	5857,0	5857,0	260	14869
2,1	10	4,92	38,8	14,6	14,6	260	14869
2,1	20	9,84	77,7	3,66	3,66	260	14869
1,0	0,5	0,117	0,925	2789,0	2789,0	28	1550
1,0	10	2,34	18,5	6,97	6,97	28	1550
1,0	20	4,68	37,0	1,74	1,74	28	1550

Расчетные значения $Ra = g\rho^2 h^3 C_p / (\mu\alpha) \cdot \Delta T / T$ (таблица) свидетельствуют о том, что в исследуемом реакторе потоки аргона, несмотря на стабилизирующий эффект высоких температур, должны быть сильно конвективными ($Ra_{cr} = 1707$ [12]) для водорода во всем диапазоне экспериментальных условий значение $Ra < Ra_{cr}$. Вследствие зависимости $Ra \sim h^3$ дестабилизирующее влияние свободной конвекции должно проявляться с увеличением высоты свободного пространства над пьедесталом.

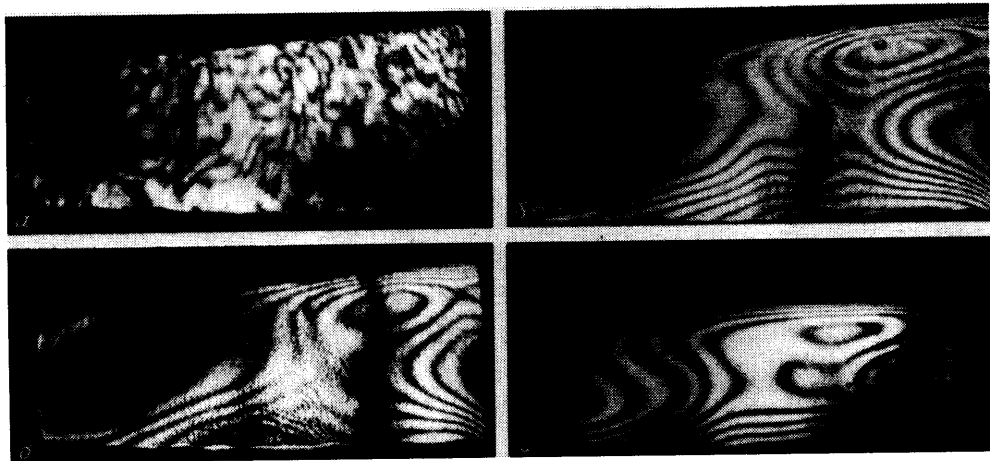
Расчеты комплекса $Gr/Re^2 = gh/\nu^2 \cdot \Delta T / T$ для выбранной геометрии реактора² (таблица) показали доминирующее влияние выталкивающих сил на характер течения. Величина комплекса Gr/Re^2 уменьшалась по направлению потока к центру реактора. С увеличением скорости потока инерционные и выталкивающие силы становились одного порядка и тип течения мог быть охарактеризован как смешанная конвекция.

2. Результаты измерений методом двухэкспозиционной голографической интерферометрии. Как отмечалось, голографическая интерферометрия дает информацию о пространственно усредненном градиенте плотности газовой фазы в исследуемом объеме. Форма интерференционных полос является качественной характеристикой течения. В данных экспериментах объект просматривался в горизонтальном направлении (фиг. 1) и на голограмме, которая располагалась за реактором, фиксировались изменения показателя преломления газовой фазы, интегрированные по всей длине оптического пути излучения.

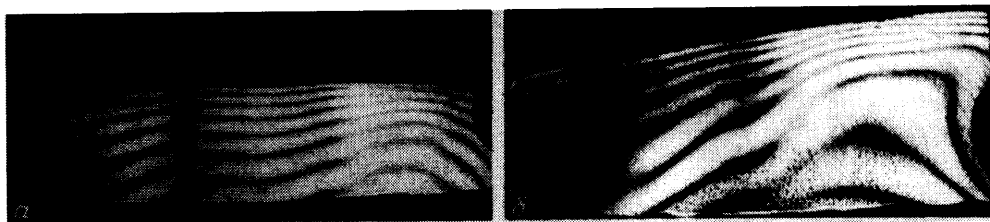
Интерферограммы потоков, полученные при изменении скорости течений, высоты свободного пространства над пьедесталом, угла наклона верхней стенки камеры, показали наличие турбулентных, ламинарных и конвективных потоков в исследуемом диапазоне экспериментальных условий. Каждая фотография (фиг. 2, 3) состоит из интерференционных полос, соответствующих изотермам. Стабильные полосы (например, на фиг. 3, а) характеризуют ламинарный поток. Изогнутые и замкнутые линии указывают на возникновение свободноконвективных потоков. Так, на фиг. 2, г видно, как горячий газ за счет свободной конвекции поднимается от пьедестала, стремясь к верхней стенке камеры, охлаждается и возвращается обратно к пьедесталу. На фиг. 2, б, в виден комбинированный поток, в котором в центральной зоне пространства над пьедесталом горячие потоки газа окружены холодными, а непосредственно у пьедестала наблюдается картина стабильного ламинарного потока.

На нижней части фотографий просматривается поперечное сечение пьедестала, сверху видны контуры верхней стенки камеры (горизонтальная линия – для плоского канала высотой 1,4 см, наклонная – для канала переменной высоты, причем высота свободного пространства над пьедесталом изменялась в последнем случае от 1,4 до 2,1 см). Справа по периферии на некоторых фотографиях видны контуры кольцевой трубки, используемой для подачи газа. Во всех случаях ход изотерм был непосредственно наблюдаемым и позволял рассчитать распределение температуры в любой области свободного пространства над пьедесталом за исключением турбулентного

² В соответствии с [13] значение Gr/Re^2 определяет соотношение выталкивающих и инерционных сил в потоке: вынужденный поток доминирует при $Gr/Re^2 < 0,3$, течение смешанное при $Gr/Re^2 = 0,3-16$ и влияние свободной конвекции становится доминирующим при $Gr/Re^2 > 16$.



Фиг. 2. Голографические интерферограммы потоков Ar: *a* – $V = 3,0$ см/с, $Re = 11,6$, $Ra = 14300,0$, $Cr/Re^2 = 157,6$, *б* – $V = 0,25$ см/с, $Re = 0,97$, $Ra = 14300,0$, $Cr/Re^2 = 22700,0$, *в* – $V = 0,2$ см/с, $Re = 0,78$, $Ra = 14300,0$, $Cr/Re^2 = 35475,0$, *з* – $V = 0,12$ см/с, $Re = 0,32$, $Ra = 4256,0$, $Cr/Re^2 = 60500,0$



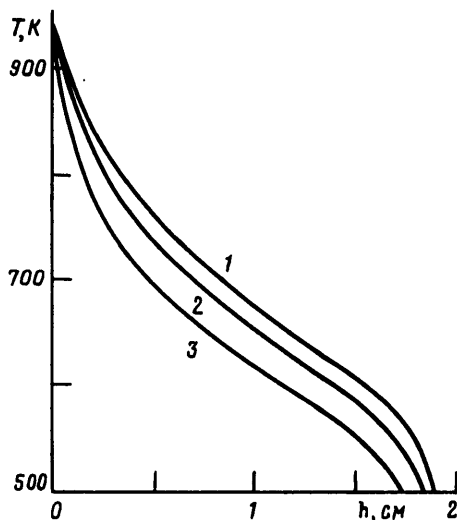
Фиг. 3. Голографические интерферограммы потоков H_2 : *a* – $V = 3,0$ см/с, $Re = 0,984$, $Ra = 77,0$, $Cr/Re^2 = 108,5$, *б* – $V = 3,0$ см/с, $Re = 1,476$, $Ra = 260,0$, $Cr/Re^2 = 162,7$

потока, в котором локальная температура резко изменялась и распределение полос становилось расплывчатым (фиг. 2, *a*).

В исследуемой области экспериментальных условий интерферограммы потоков имели качественные различия и отражали влияние условий осаждения и геометрии реакционной зоны на характер течения. Для оценки этого влияния рассмотрим последовательно обнаруженные закономерности.

Течение аргона во всех случаях независимо от высоты канала при скорости потока на входе выше 0,25 см/с было турбулентным. На фотографии интерферограммы такого течения (фиг. 2, *a*) не видно интерференционных полос вследствие неустойчивости течения во время экспозиций, вызванной турбулентными пульсациями. Только при скорости потока аргона 0,25 см/с и ниже (фиг. 2, *б–з*) на интерферограммах появлялись интерференционные полосы, форма которых указывала на возникновение комбинированного потока, характеризующегося наличием стабильного деформированного слоя вблизи центра пьедестала и неустойчивого потока в зонах подачи газа в реактор, выхода газа из реактора, а также у верхней стенки канала. Характер интерференционных полос в зоне подачи газа свидетельствует о восходящих конвективных потоках, обусловленных свободной конвекцией. Замкнутые концентрические линии в верхней части реактора связаны с присутствием локальных изотермических струй.

Постоянная высота канала не делает поток более стабильным (фиг. 2, *з*). Интерферограмма потока аргона в канале постоянной высоты (высота 1,4 см) воспроизводит все элементы неустойчивости, выявленные на интерферограммах, отражающих течение при наклонном расположении верхней стенки канала.



Фиг. 4. Влияние скорости потока водорода на распределение температуры в свободном пространстве над пьедесталом ($x = 2,0$ см): 1 - $V = 0,5$ см/с, 2 - $V = 3,0$ см/с, 3 - $V = 5,0$ см/с

При исследовании течений водорода в модели радиального реактора прежде всего обнаружилось, что наиболее важным фактором при формировании потока является высота свободного пространства над пьедесталом. В условиях, когда скорость потока водорода составляла 3 см/с и высота канала была равна 1,4 см (фиг. 3, а), получены интерферограммы, форма полос на которых соответствовала течению, приближающемуся к стабильному, ламинарному, за исключением периферийной части реактора, где незначительно проявлялись влияние свободной конвекции и краевые эффекты. При наклонном расположении верхней стенки реактора с помощью интерферограмм можно наглядно продемонстрировать влияние высоты канала на формирование потока (фиг. 3, б). Восходящие от пьедестала потоки, возникновение которых связано со свободной конвекцией, наиболее четко просматриваются на периферии реактора, где максимальна высота канала; влияние свободной конвекции подавляется по мере приближения к центру радиального реактора.

Голографические интерферограммы течений водорода были использованы для построения профилей температур в свободном пространстве над пьедесталом при скоростях потока 0,5, 3,0 и 5,0 см/с. Численная обработка голограмм производилась следующим образом. По смещению полос на интерферограммах $S = S(y)$, т.е. по изменению оптической разности хода, определялось распределение показателя преломления для заданного поперечного сечения $x = \text{const}$. Для случая, когда камера и пьедестал обладают радиальной симметрией

$$S(y) = \frac{2}{\lambda} \int_y^{D/2} [n(r) - n_\infty] \frac{r dr}{\sqrt{r^2 - y^2}}$$

Учитывая связь между показателем преломления n газовой фазы и ее плотностью ρ , выражаемую для газов, показатель преломления которых близок к единице, уравнением Гладстона - Дейла ($n - 1 = k$), имеем

$$\rho(r) = \rho_\infty + \frac{n(r) - n_\infty}{k}$$

Пользуясь уравнением состояния идеального газа $\rho = Mp/RT$, можно рассчитать значение температуры, соответствующее каждой из полос на интерференционной картине: $T = Mp/R\rho(r)$.

Полученные результаты представлены на фиг. 4. Сравнивая профили температуры в вертикальном направлении над пьедесталом при различных скоростях потока водорода, можно отметить, что в исследуемом диапазоне влияние скорости потока не столь существенно.

Заключение. Оценка газодинамических параметров эпитаксиального реактора по значениям безразмерных критериев Re и Ra совпадает с результатами, полученными в ходе проведения экспериментов по визуализации газовой фазы методом двухэкспозиционной голографической интерферометрии. Подтверждены более высокая стабильность течений водорода по сравнению с течениями аргона и определяющее влияние на характер потока высоты свободного пространства над пьедесталом. Вместе с тем, как и в [14], оценка характера течения по величине комплекса Gr/Re^2 не совпадает с экспериментальными данными – при одних и тех же значениях комплекса Gr/Re^2 картины потоков аргона и водорода существенно различаются.

Визуализация потоков водорода показала, что подавить влияние естественной конвекции в радиальном реакторе наиболее эффективно можно за счет уменьшения расстояния от пьедестала до верхней стенки реактора. Скорость потока в изученном диапазоне экспериментальных условий в меньшей степени определяет соотношение инерционных и выталкивающих сил.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kuech T.F. Recent advances in metal-organic vapor phase epitaxy // Proc. IEEE. 1992. V. 80. №10. P. 1609–1624.
2. Ouazzani J., Rosenberger F. Three-dimensional modelling of horizontal chemical vapor deposition // J. Crystal Growth. 1990. V. 100. № 3. P. 545–576.
3. Biber Catharina R., Wang Christine A., Motakef Shahryar. Flow regime map and deposition rate uniformity in vertical rotating-disk OMVPE reactors // J. Crystal Growth. 1992. V. 123. № 3/4. P. 545–554.
4. Wang C.A., Groves S.H., Palmatee S.C. et al. Flow visualisation studies for optimization of OMVPE reactor design // J. Crystal Growth. 1986. V. 77. № 3. P. 136–143.
5. Anath Ramagopal, Gill W.N. Criteria for making uniform films by chemical vapor deposition // J. Crystal Growth. 1992. V. 118. № 1/2. P. 60–70.
6. Jansen A.N., Orazem M.E., Fox B.A., Jesser W.A. Numerical study of the influence of reactor design on MOCVD with a comparison to experimental data // J. Crystal Growth. 1991. V. 112. № 2/3. P. 316–336.
7. Holstein W.L., Fitzjohn J.L. Effect of buoyancy forces and reactor orientation on fluid flow and growth rate uniformity in cold-wall channel CVD reactors // J. Crystal Growth. 1989. V. 94. № 1. P. 145–158.
8. Williams J.E., Peterson R.W. The application of holographic interferometry to the visualization of flow and temperature profiles in a MOCVD reactor cell // J. Crystal Growth. 1986. V. 77. № 1/3. P. 128–135.
9. Райнов Ю.А., Турилин С.М., Райнова Ю.П., Чистяков Ю.Д. Тепло- и массоперенос при газофазной эпитаксии кремния // Обзоры по электронной технике. Сер. 7. Технология, организация производства и оборудование. 1987. 64 с.
10. Giling L.J. Gas flow patterns in horizontal epitaxial reactor cells observed by interference holography // J. Electrochem. Soc. 1982. V. 129. № 3. P. 634–644.
11. Бекетова А.К., Белозеров А.Ф., Березкин А.Н. и др. Голографическая интерферометрия фазовых объектов. Л.: Наука, 1979. 232 с.
12. Curtis B.J., Dismukes J.P. Effects of natural and forced convection in vapour phase growth systems // J. Crystal Growth. 1972. V. 17. P. 128–140.
13. Sparrow E.M., Eichhorn R., Gregg J.L. Combined forced and free convection in a boundary layer flow // Phys. Fluids. 1959. V. 2. № 3. P. 319–328.
14. Райнова Ю.П., Турилин С.М., Сорокин И.Н., Антоненко К.И. Исследование газовых потоков при эпитаксии кремния // Неорганические материалы. 1995. Т. 31. № 2. С. 151–159.