

## **Аннотация**

### **Анализ влияния естественной конвекции на процесс растворения эпитаксиальных слоев**

В.В.Колмычков, О.С.Мажорова, Ю.П.Попов

Работа является продолжением цикла исследований, посвященных изучению эпитаксиального выращивания тонких монокристаллических слоев из трехкомпонентного раствора-расплава. В данной работе рассматриваются технологические режимы, при которых подложка располагается над расплавом и процессу эпитаксиального роста предшествует процесс растворения подложки. В этом случае, образующийся в ходе растворения градиент плотности, является неустойчивым, что приводит к возникновению естественной конвекции. Проведена серия трехмерных расчетов, целью которых является оценка влияния технологических параметров на возникающее конвективное движение и однородность фронта травления.

## **Abstract**

### **Computer simulation of natural convection in LPE technique with preliminary dissolution**

V.V.Kolmychkov, O.S.Mazhorova, Yu.P.Popov

The paper is a companion one to previous study of epitaxial growth of thin films from a ternary solution. Here we study the process with substrate placed above the bulk and dissolution of the substrate prior to growth. In this case, on the dissolution stage, an unstable density gradient is formed and gives rise to natural convection. 3D calculation has been done to evaluate the influence of experimental conditions on convective motion and on interface uniformity.

## Содержание

<b>1</b>	<b>Введение</b>	<b>4</b>
<b>2</b>	<b>Основные предположения</b>	<b>5</b>
<b>3</b>	<b>Математическая модель</b>	<b>7</b>
<b>4</b>	<b>Результаты расчетов</b>	<b>10</b>
4.1	Изотермический процесс . . . . .	11
4.2	Влияние начального возмущения на формирование конвек- тивного движения . . . . .	14
4.3	Исследование процесса в неизотермических условиях . . .	22
<b>5</b>	<b>Выводы</b>	<b>25</b>
<b>6</b>	<b>Приложение А.</b>	<b>28</b>

# 1 Введение

Данная работа является продолжением цикла исследований, посвященных математическому моделированию процесса получения тройных полупроводниковых соединений методом жидкофазовой эпитаксии (ЖФЭ) [1]-[7]. Одной из основных проблем, возникающих при выращивании тройных соединений методом ЖФЭ является обеспечение однородности толщины эпитаксиального слоя и требуемого распределения состава. В настоящее время хорошо известно, что естественная конвекция неблагоприятно влияет на качество получаемых материалов, что проявляется в виде нерегулярного волнообразного макрорельефа на поверхности кристаллов, а также в неоднородности распределения состава слоя в плоскостях параллельных плоскости подложки. В работах [2]-[6] в рамках двумерного и трехмерного приближений рассматривался процесс выращивания эпитаксиального слоя (ЭС) на подложку, расположенную на дне ростовой камеры. В этом случае в расплаве формируется неустойчивый градиент плотности, приводящий к возникновению конвективного движения.

Одним из способов обеспечения диффузионного режима является размещение подложки над расплавом (рис.1). В этом случае градиент плотности в процессе роста остается устойчивым. Но поскольку подложка не является идеальной по составу и на ее поверхности может находиться грязь и пыль, она приводится в контакт с ненасыщенным расплавом и часть ее растворяется. Градиент плотности в ходе процесса растворения оказывается устойчивым, если подложка расположена внизу и неустойчивым, если вверху. При его достаточно большой величине возникает конвективное движение. Для более быстрого достижения состояния равновесия система может дополнительно охлаждаться. В результате глубина растворения подложки будет меньше. В [2, 7] на основе двумерных расчетов были найдены технологические режимы предпочтительные для

получения полупроводниковых пленок с заданными свойствами. В данной работе проводится подобный анализ в рамках трехмерной модели.

## 2 Основные предположения

Рассмотрим процесс выращивания эпитаксиальных соединений  $A_xB_{1-x}C$  из раствора компонентов  $A$  и  $B$  в расплаве компонента  $C$ . Пусть ростовая камера, имеющая форму прямоугольного параллелепипеда (рис.1), заполнена раствором-расплавом. Подложка состава  $AC$  помещена над расплавом

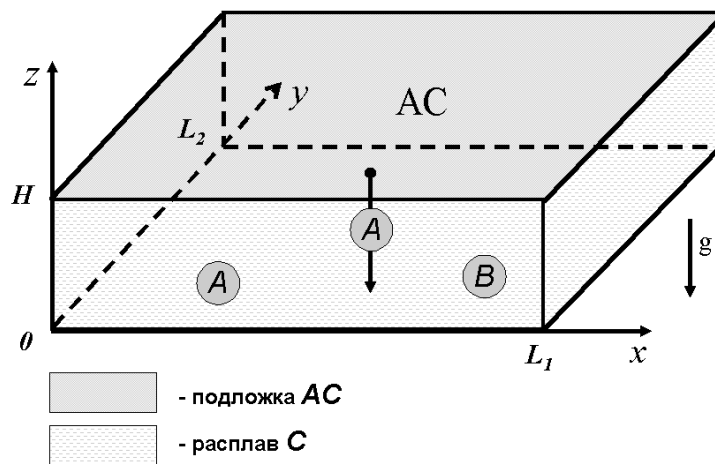


Рис. 1: Схема ячейки

В начальный момент времени расплав и подложка имеют одинаковую температуру ( $T_0$ ), однако раствор является ненасыщенным. В результате контакта подложки с ненасыщенным раствором-расплавом начинается процесс растворения твердой фазы, за счет которого происходит обогащение жидкой фазы компонентом  $A$ . После контакта подложки с расплавом поверхность ростовой камеры охлаждается по заданному закону. С понижением температуры падает растворимость компонентов  $A$  и  $B$  в расплаве компонента  $C$ . Таким образом насыщение расплава происходит за счет растворения подложки и охлаждения системы. Дальнейшее понижение температуры приводит к тому, что раствор становится пересыщенным и на подложке начинается рост эпитаксиального слоя.

При построении математической модели описанного выше процесса будем предполагать, что растворение и эпитаксиальный рост происходят в квазиравновесном режиме, т.е. концентрация растворенных компонентов на фронте кристаллизации и состав растущего слоя удовлетворяют фазовой диаграмме системы. Кинетические явления на границе раздела фаз не учитываются. В частности, это означает, что скорость роста эпитаксиального слоя определяется скоростью поступления растворенных веществ к фронту кристаллизации и не лимитируется процессами, протекающими на межфазовой границе. Перенос растворенных в расплаве компонентов осуществляется механизмами диффузии и естественной конвекции.

Возможность возникновения в расплаве конвекции связана с зависимостью плотности жидкой фазы от ее состава, температуры и давления. Однако зависимость плотности расплава от температуры в данном случае не существенна. Растворитель С как правило является расплавленным металлом, коэффициент температуропроводности ( $\lambda$ ) которого на 3-4 порядка больше коэффициентов диффузии растворенных веществ. Характерный масштаб времени, связанный с процессом теплопроводности составляет  $t_\lambda = H^2/\lambda \approx 10^{-1}$  сек, что на два порядка меньше, чем характерный масштаб времени вязкой диссипации  $t_\nu = H^2/\nu$  и на четыре порядка меньше характерного времени диффузии  $t_D = H^2/D$ , где  $H$  - высота области,  $\nu$  - коэффициент кинематической вязкости,  $D$  - коэффициент диффузии. В результате пространственная неоднородность температуры, обусловленная охлаждением стенок ростовой камеры, мала и не оказывает заметного влияния на величину подъемной силы. Таким образом, при "невысоких" скоростях охлаждения температуру расплава можно считать однородной по пространству и изменяющейся во времени по заданному закону  $T = T(t)$ .

Зависимость плотности расплава от давления также не учитывается, поскольку вертикальные размеры области малы.

Таким образом, основной причиной возникновения конвекции является зависимость плотности от состава. В данной работе рассматривается расплав, плотность которого падает с уменьшением концентрации растворенных компонентов. Растворение подложки приводит к обогащению жидкой фазы вблизи верхней границы компонентом А. В результате формируется вертикальный градиент плотности, который является неустойчивым, поскольку плотность жидкости вверху больше, чем в нижней части расплава. После завершения процесса растворения и начала процесса эпитаксиального роста, градиент становится устойчивым.

Жидкость предполагается несжимаемой и гидродинамические процессы рассматриваются в приближении Буссинеска [8].

В реальных экспериментах изменение толщины жидкой фазы не превосходит 1-2%, поэтому будем считать что движение расплава изучается в области, форма которой во времени не изменяется. Изменением формы поверхности подложки также пренебрегаем.

### 3 Математическая модель

Используя сделанные предположения, запишем уравнения концентрационной конвекции в безразмерной форме следующим образом [9, 2]:

$$\partial_t V + (V \nabla) V = -\nabla p + \Delta V + \sum_{i=1}^2 Gr_i C_i e_z \quad (3.1)$$

$$\nabla V = 0 \quad (3.2)$$

$$\partial_t C_i + (V \nabla) C_i = \frac{1}{Sc_i} \Delta C_i \quad (3.3)$$

Задача решается в декартовой системе координат  $(x, y, z)$  в области  $\Omega = [0, L_1] \otimes [0, L_2] \otimes [0, H]$ . При записи системы уравнений (3.1)-(3.3) использовались следующие обозначения:  $t$  - время,  $\partial_\xi \equiv \frac{\partial}{\partial \xi}$ ,  $V = (V_x, V_y, V_z)$  - скорость движения жидкости,  $\nabla = (\partial_x, \partial_y, \partial_z)$ ,  $p$  - давление,  $\Delta = \nabla^2 =$

$\partial_{xx}^2 + \partial_{yy}^2 + \partial_{zz}^2$ ,  $C_i$  - объемная концентрация  $i$ -го растворенного компонента,  $Gr_i = g\beta_i H^3 \delta C_i / \nu^2$  - диффузионное число Грасгофа,  $Sc_i = \nu / D_i$  - число Шмидта,  $e_z$  - вектор  $(0, 0, -1)$ ;  $g$  - модуль ускорения силы тяжести,  $D_i$  - коэффициент диффузии,  $\beta_i = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial C_i}$  - коэффициент концентрационного расширения,  $\rho$  - плотность расплава,  $\delta C_i$  - характерный пространственный перепад концентрации соответствующего растворенного компонента, являющийся масштабом обезразмеривания. В качестве характерного масштаба длины выбрана толщина жидкой фазы  $H_0 = 1mm$ , масштаб времени  $t_\nu = H_0^2 / \nu$ .

Отношение величины подъемной силы, вызванной неоднородностью распределения  $i$ -го компонента, к величине вязких сил, характеризуется значением концентрационного числа Рэля  $Ra_i = Gr_i Sc_i$ .

Скорость на границе области удовлетворяет условиям прилипания и непротекания:  $V = 0$ .

При моделировании процесса растворения подложки, на границе раздела фаз используются следующие условия:

$$C_1 = C_A^{eq}(T), \quad \partial_n C_2 = 0 \quad (3.4)$$

где  $C_1 = C_A^{eq}(T)$  это определяемая фазовой диаграммой системы концентрация компонента **A**, вычисляемая по заданным значениям  $C_2$  и  $T(t)$ . При растворении **AC** компонент **B** в жидкую фазу не поступает. Скорость растворения определяется по потоку компонента **A**:

$$V_{gr} = \frac{\partial_n C_1}{Sc_1(C_1^s - C_1)} \quad (3.5)$$

где  $C_i^s$  - объемная концентрация  $i$ -го компонента в твердой фазе,  $n$  - внутренняя нормаль к границе.

В результате растворения подложки и охлаждения системы, наступает насыщение жидкой фазы, т.е. концентрация  $C_1$  вблизи подложки становится выше равновесной  $C_A^{eq}(T)$ , и начинается процесс роста. Кра-

евые условия для процесса роста подробно описываются в [5], поэтому здесь запишем их следующим образом:

$$F(T, C_1, C_2) = 0 \quad (3.6)$$

где -  $F$  - фазовая диаграмма системы.

На стадии роста, пренебрегая диффузией в твердой фазе, закон сохранения массы на границе раздела фаз имеет вид:

$$\frac{\partial_n C_1}{S_{C_1}(C_1^s - C_1)} = \frac{\partial_n C_2}{S_{C_2}(C_2^s - C_2)} = V_{gr} \quad (3.7)$$

Здесь  $V_{gr}$  - скорость роста эпитаксиального слоя.

На остальной части границы в ходе всего процесса:

$$\partial_n C_i = 0. \quad (3.8)$$

При растворении, т.е. пока  $\partial_z C_1|_{z=H} > 0$  уравнения массопереноса (3.3) решаются с граничными условиями (3.4),(3.8). Когда  $\partial_z C_1|_{z=H}$  становится меньше нуля, начинается рост и граничные условия (3.4),(3.8) заменяются на (3.6),(3.7),(3.8). Переход к стадии роста осуществляется одновременно по всей площади подложки, поскольку температура границы однородна. Для вычисления состава твердой фазы используется фазовая диаграмма системы. Толщина растворившегося/выросшего слоя  $d(x, y, t) = \int_0^t V_{gr} dt$ .

Численный метод, применяемый в данной работе, аналогичен описанному в работе [5] - это неявный метод расщепления, с последовательным решением уравнений Навье-Стокса и массопереноса, концентрации веществ в твердой фазе берутся с предыдущего временного слоя. Изменения заключаются лишь в добавлении процесса растворения. С алгоритмической точки зрения, процесс растворения аналогичен процессу роста, только имеет, в отличие от последнего, линейные краевые условия. Какой именно из процессов - растворения или роста - протекает в системе



в данный момент, определяется знаком потока концентрации на границе раздела фаз.

## 4 Результаты расчетов

Приведем результаты расчетов в диапазоне параметров, соответствующих реальным технологическим экспериментам. Условия квазиравновесия на границе раздела фаз задаются фазовой диаграммой системы  $Cd-Hg-Te$ . Расплав характеризуется числом Шмидта  $Sc_{1,2}=50$ . Подложка имеет размеры  $L_1=L_2=25mm$ . В расчетах варьировалась толщина жидкой фазы:  $1.5 \leq H \leq 3.0$  и величина первоначального перегрева расплава:  $4 \leq \Delta T \leq 8$ , скорость охлаждения  $0 \leq \alpha \leq 2$ .

Основные параметры, влияющие на начальное значение числа Рэлея ( $Ra_0$ ), это  $H, \Delta T$ . Отношение значения числа Рэлея в начальный момент времени к критическому ( $Ra_{cr} = 1535$ ) для рассматриваемых величин зазоров и перегревов приведены в следующей таблице:

Таблица 1.

$Ra_0/Ra_{cr}$	H=1.5	H=2.0	H=2.5
$\Delta T = 4$	1.8	4.3	8.4
$\Delta T = 6$	2.7	6.3	12.17
$\Delta T = 8$	3.6	8.5	16.6

Используемое при анализе результатов расчетов значение критического числа Рэлея взято из [5].

## 4.1 Изотермический процесс

Анализ влияния растворения подложки на свойства эпитаксиального слоя начнем с рассмотрения процесса растворения в изотермических условиях. В этом случае конвекция приводит к наибольшей неоднородности поверхности подложки. В изотермических условиях концентрация растворенных компонентов у фронта кристаллизации остается постоянной, и единственным механизмом насыщения расплава является поступление материала подложки в жидкую фазу. Возникающий при этом градиент концентрации разглаживается диффузией и конвективным движением, если последнее успевает развиться в расплаве, пока значение числа Рэлея не упадет ниже критического.

Аналитическая оценка решения уравнения диффузии показывает, что время, за которое в отсутствии конвективного движения значение числа Рэлея становится ниже критического, зависит от степени начального перегрева расплава и величины зазора, и приблизительно равно  $t_{dif} = \ln(4Ra_0/Ra_{cr}/\pi)4/\pi^2 t_D$ , где  $t_D = H^2/D$  - диффузионное время. Возникающее конвективное движение сокращает это время за счет дополнительного массопереноса.

В следующей таблице приведены времена  $t_{dif}$  и  $t_{ef}$  - время, за которое наблюдаемое в расчете с конвекцией значение числа Рэлея становится ниже критического.

Таблица 2.

$t_{ef}/t_{dif}$ (мин)	H=1.5	H=2.0	H=2.5
$\Delta T = 4$	2-2.5/2.5	4.5/9.2	8/20
$\Delta T = 6$	3.5/3.75	5.3/11.34	9.5/23.4
$\Delta T = 8$	4/4.6	5.7/12.8	10/25.7

При небольших значениях величины зазора и перегрева ( $H = 1.5$ ,  $\Delta T = 4, 6$ ) время  $t_{ef}$  практически совпадает с  $t_{dif}$ , что свидетельствует о слабом влиянии конвекции на процесс массопереноса в расплаве. При таких режимах фронт травления остается плоским. С увеличением  $H$  время диффузионного выравнивания растет и возникает интенсивное конвективное движение, которое способствует более быстрому выравниванию состава жидкой фазы, по сравнению с чисто диффузионным режимом, поэтому разница между  $t_{ef}$  и  $t_{dif}$  возрастает. Влияние конвективного движения на неоднородность фронта травления ( $\Delta d$ ) иллюстрируют данные, приведенные в таблице 3. В расчетах использовалась сетка  $50 \times 50 \times 15$  с шагом по времени  $\tau = 0.5$ .

Таблица 3.

$\Delta d$ (микрон)	$H=1.5$	$H=2.0$	$H=2.5$
$\Delta T = 4$	$1 \cdot 10^{-3}$	10.8	18
$\Delta T = 6$	0.4	20.5	27.5
$\Delta T = 8$	8.27	28	40

Из таблицы видно, что для зазора  $H = 1.5$  и переохлаждения  $\Delta T = 4$  неоднородность фронта достаточно мала. При зазорах  $H = 2, 2.5$  наблюдается высокая неоднородность, что свидетельствует об интенсивном конвективном движении жидкости. И хотя время конвекции при одной и той же величине зазора и значениях перегрева  $\Delta T = 6, 8$  отличается не так сильно, неоднородность поверхности отличается значительно. Это объясняется разницей в интенсивности конвективного движения.

Для зазоров  $H = 2, 2.5$  начальное значение числа Рэлея велико, поэтому на начальной стадии развития конвективного движения скорость роста кинетической энергии велика. Интенсивный конвективный массо-

перенос быстро снижает значение числа Рэлея, это в свою очередь приводит к снижению интенсивности конвекции. Из рис.2 видно, что наличие интенсивного конвективного движения приводит к увеличению скорости изменения значения числа  $Ra$ . Максимум кинетической энергии достигается на начальном этапе конвекции при значении  $Ra > Ra_{cr}$ .

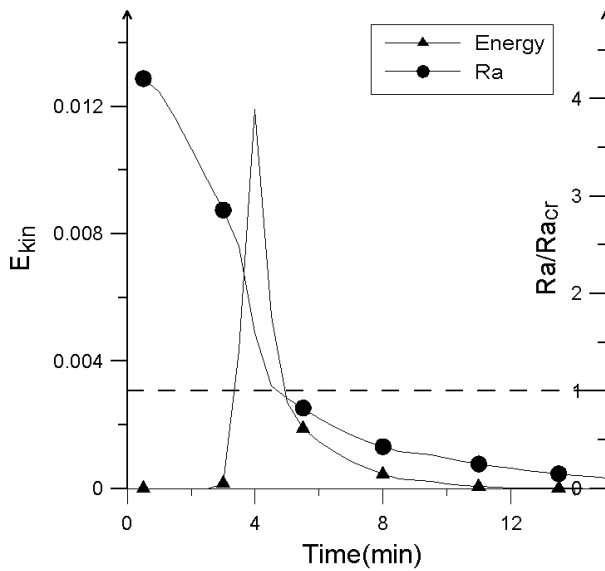


Рис. 2:  $H=2$ ,  $\Delta T = 4$

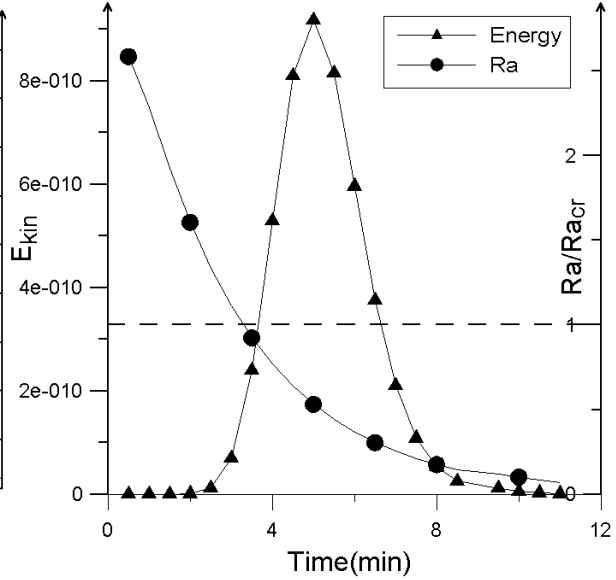


Рис. 3:  $H=1.5$ ,  $\Delta T = 6$

Зависимость значения числа Рэлея и кинетической энергии, наблюдаемых в ходе расчета, от времени.

При  $H = 1.5$ ,  $\Delta T = 6$  имеет место сравнительно небольшая, хотя и заметная неоднородность. В этом случае (рис. 3) рост кинетической энергии продолжается после пересечения порога устойчивости ( $Ra = Ra_{cr}$ ). Это объясняется наличием вызванных конвективным движением неоднородностей, в распределении концентрации жидкой фазы в горизонтальных плоскостях, и малым значением кинетической энергии. Поле концентраций быстро разглаживаются конвекцией-диффузией и движение затухает (рис. 3). В ходе всего процесса интенсивность конвекции, а следовательно неоднородность фронта травления, малы.

## 4.2 Влияние начального возмущения на формирование конвективного движения

В приведенных выше расчетах причиной возникновения конвективного движения являются "бесконечно малые" возмущения, порождаемые самим вычислительным алгоритмом: ошибками округления, точностью сходимости итераций и т.д. Вместе с тем, хорошо известно, что скорость нарастания амплитуды возмущения зависит от его структуры. В рассматриваемой задаче можно представить себе три сценария развития конвективного движения:

- вне зависимости от формы возмущения конвективное движение не успевает развиться за время  $t_{dif}$ , за которое под влиянием диффузионного массопереноса число  $Ra$  падает ниже критического;
- возмущения любой формы приводят к формированию конвективного движения во всем расплаве за время  $t < t_{dif}$ ;
- пограничный случай, когда в зависимости от формы начального возмущения, его развитие происходит по первому или второму сценарию.

С этой точки зрения рассмотрим результаты, приведенные в таблице 3. Высокая неоднородность фронта при  $H = 2, 2.5$  свидетельствует о развитии конвективном движении. Таким образом реализуется второй сценарий. Это подтверждает и таблица 2:  $t_{ef} < t_{dif}$ . Низкая неоднородность фронта для  $H = 1.5$ ,  $\Delta T = 4$  свидетельствует о развитии конвекции по первому сценарию ( $t_{ef} \approx t_{dif}$ ). При  $H = 1.5$ ,  $\Delta T = 6$  неоднородность существенна, но гораздо ниже чем в случае развитого конвективного движения. Здесь по-видимому реализуется третий сценарий. Это подтверждает и сравнение времен:  $t_{ef} \lesssim t_{dif}$ .

Описанные выше расчеты проведены без искусственного внесения начального возмущения. В используемом коде возмущение, развивающиеся

в результате ошибок округления, как правило имеет ячейковую структуру (рис.А.1. Рис А.1-А.16 приведены в приложении А на с. 28. На них изображено распределение потока массы на границе раздела фаз, для рис А.1 на начальной стадии конвекции, для остальных в момент максимума кинетической энергии). Стоит отметить, что и в экспериментальных работах при резком изменении температуры верхней границы области наблюдались именно ячейковые структуры течения [10]. Проанализируем влияние структуры начального возмущения на динамику процесса. Для этого в начальный момент времени в распределение поля концентрации  $C_1$  в плоскости  $z = H - h_z$ , отстоящей от подложки на один шаг сетки, внесем возмущение заданной формы, амплитуда которого на три порядка меньше самого значения концентрации.

Типы вносимых возмущений:

- одномерные: валы разной длины волны, параллельные одной из стенок области;
- двумерные: сумма одномерных возмущений по двум взаимоперпендикулярным направлениям.

Основные характеристики, позволяющие оценить влияние начального возмущения на динамику процесса при  $H = 1.5$ ,  $\Delta T = 6$ , приведены в следующей таблице:

Таблица 4

начальное возмущение	$t_{max}$	$E_{kin}^{max}$	$\Delta d$	Форма течения
0	5	$9 \cdot 10^{-10}$	0.4	ячейки (рис.А.2)
	4	$1.3 \cdot 10^{-3}$	7.6	ячейки+валы (рис.А.3)
$(-1)^i C^*$	4.5	$5 \cdot 10^{-4}$	4.65	7 валов (рис.А.4)
	4	$1.4 \cdot 10^{-3}$	7.2	8 валов (рис.А.5)
$(-1)^{i+j} C^*$	5	$5 \cdot 10^{-6}$	0.7	ячейки (рис.А.6)
	5	$8.6 \cdot 10^{-5}$	2.42	ячейки (рис.А.7)

В этой таблице  $E_{kin}^{max}$  - максимальное значение средней по области кинетической энергии,  $t_{max}$  - момент времени, когда это максимальное значение достигается (в минутах),  $i, j$  - номер узла сетки в плоскости  $x, y$ ;  $C^* = C_1|_{t=0} \cdot 10^{-3}$ . Верхняя часть клеток таблицы соответствует сетке  $50 \times 50$ , нижняя -  $100 \times 100$ . Использувавшийся в расчетах шаг по времени  $\tau = 0.5$ .

Возмущение  $(-1)^i$  соответствует валам с длиной волны  $2h$ ,  $(-1)^{i+j}$  - квадратным ячейкам того же периода. Поэтому на разных сетках возмущение задаваемое одной и той же формулой, имеет различный характерный размер.

Из таблицы видно, что на сетке  $50 \times 50$  максимальная неоднородность фронта травления соответствует возмущению в форме валов. Объясняется это большей скоростью нарастания данного типа возмущения и большей интенсивностью конвективного движения (рис. 4). Меньшая скорость роста трехмерных структур по сравнению с валами для случая

линейного профиля температуры отмечалась в теоретических исследованиях [11, 12] и в численных экспериментах [13].

Измельчение сетки приводит к увеличению неоднородности, что объясняется меньшим временем развития конвективного движения на более подробной сетке и связано с меньшей схемной вязкостью. Однако расчет на сетке  $100 \times 100$  и с возмущением в форме ячеек приводит к меньшему значению неоднородности фронта травления, чем расчет на сетке  $50 \times 50$  с начальным возмущением в форме валов. Эти примеры показывают, что влияние начального возмущения на характеристики течения более существенно, чем влияние параметров разностной сетки.

На рисунках (рис. 4, 5) приведены графики зависимости от времени кинетической энергии и числа Релея для различных типов начального возмущения. Маленькие значения кинетической энергии практически не оказывают влияния на скорость изменения числа Рэлея и она близка к диффузионной. Чем больше кинетическая энергия, тем быстрее падает значение числа Рэлея.

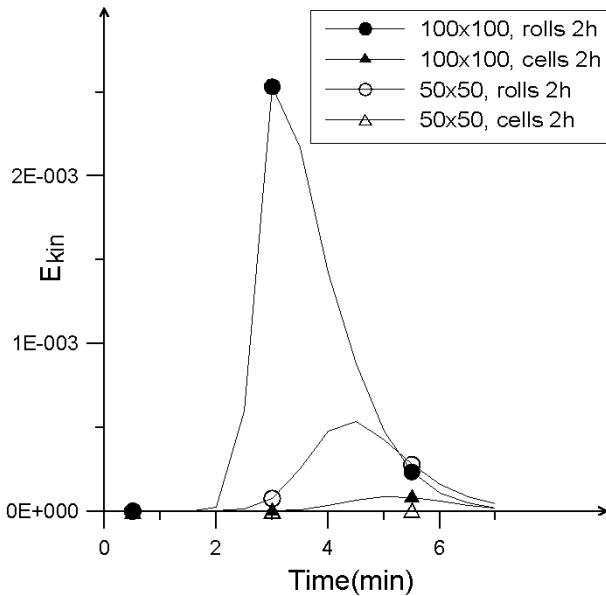


Рис. 4:  $H=1.5$ ,  $\Delta T = 6$

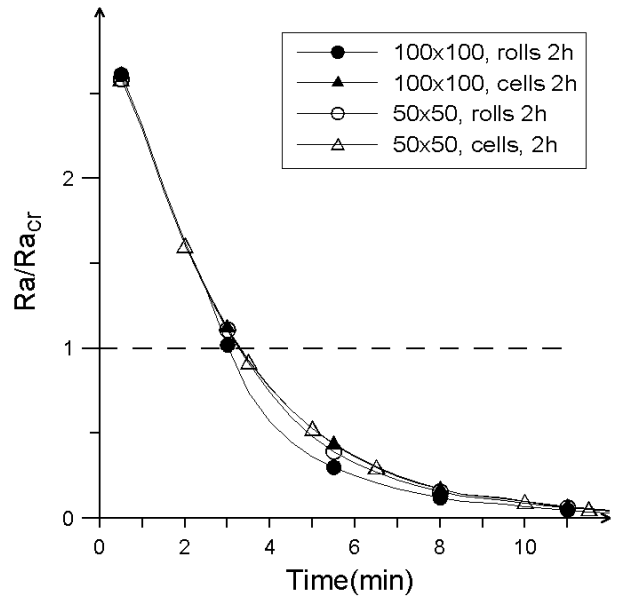


Рис. 5:  $H=1.5$ ,  $\Delta T = 6$

Неоднородность фронта травления, полученная на сетке  $100 \times 100$  с возмущением в форме валов и без начального возмущения, - близки. Это



связано с тем, что и без начального возмущения течение в некоторой под-области приняло валообразную форму (рис.А.3) и быстро набрало энергию. При этом максимальная по области неоднородность поверхности подложки обнаруживается на стыке валиковой и ячейковой структур, где происходил набор и передача кинетической энергии из области валов в область ячеек, т.е. в области существенно трехмерного течения. Тот факт, что при одном и том же значении числа Рэлея в надкритической области трехмерные структуры течения вызывают большую неоднородность выросшего слоя и больший массоперенос подтвержден многими исследованиями [14, 15]. Это отмечалось так же и в работе [6] при изучении процесса эпитаксии на подложку расположенную на дне ростовой камеры.

Таким образом, для небольшой начальной надкритичности ( $Ra_0 = 2.7Ra_{cr}$ ), влияние начального возмущения на характеристики течения оказывается весьма существенным. Максимальная неоднородность слоя наблюдается либо при наложенном начальном возмущении в форме валов, либо когда из случайных возмущений развивается течение валиковой структуры. При задании двумерных начальных возмущений движения в форме валов не возникает. Зависимость скорости роста кинетической энергии на начальном этапе конвекции от шага сетки, также можно рассматривать как следствие зависимости параметров течения от начального возмущения (помимо схемной вязкости), поскольку начальное возмущение, возникающее в расчетах на различных сетках, различно. Это определяет требования к используемой вычислительной процедуре, в частности, к величине шага сетки по пространству.

Проведем исследование влияния начального возмущения и величины шага сетки для большего значения числа Релея ( $Ra = 4.3Ra_{cr}$ ), что соответствует  $H = 2.0$ ,  $\Delta T = 4$ .

Таблица 5

начальное возмущение	$t_{max}$	$E_{kin}^{max}$	$\Delta d$	Форма течения
0	4	$1.2 \cdot 10^{-2}$	10.8	ячейки (рис.А.8)
	3	$1.6 \cdot 10^{-2}$	12.46	ячейки+валы (рис.А.9)
$(-1)^i C^*$	3	$1.55 \cdot 10^{-2}$	10.95	6 валов
	2.5	$1.47 \cdot 10^{-2}$	11.3	7 валов
$\sin(\pi i/2) C^*$	3	$1.5 \cdot 10^{-2}$	10.5	7 валов
	2.5	$1.48 \cdot 10^{-2}$	11.42	7 валов
$(-1)^{i+j} C^*$	4	$9.5 \cdot 10^{-3}$	10.84	ячейки (рис.А.10)
	3.5	$1.5 \cdot 10^{-2}$	11.39	ячейки (рис.А.11)
$\sin(\pi i/2) \sin(\pi j/2) C^*$	3.5	$1.44 \cdot 10^{-2}$	11.4	ячейки (рис.А.12)
	3.5	$1.11 \cdot 10^{-2}$	11.8	ячейки (рис.А.13)
$\sin(\pi i/3) \sin(\pi j/3) C^*$	3.5	$8.5 \cdot 10^{-3}$	10.51	ячейки (рис.А.14)
	3.5	$1.28 \cdot 10^{-2}$	10.98	ячейки (рис.А.15)

По прежнему верхняя часть клеток таблицы соответствует сетке  $50 \times 50$ , нижняя -  $100 \times 100$ ,  $\tau = 0.5$ .

Из таблицы видно, что для  $Ra = 4.3Ra_{cr}$  структура начального возмущения и шаг сетки по пространству оказывают влияние на темп развития конвективного движения, однако неоднородность поверхности фронта

травления остается на одном уровне. Динамика изменения кинетической энергии и числа  $Ra$  для валов и ячеек приведена на рис. 6, 7. Обладая более высокой, по сравнению с ячейковой структурой скоростью роста, течение в форме валов уменьшает значения числа Рэлея быстрее, в результате чего интенсивность движения начинает снижаться раньше. Для обоих типов течения поведение числа Рэлея, после прохождения критического значения, практически совпадает.

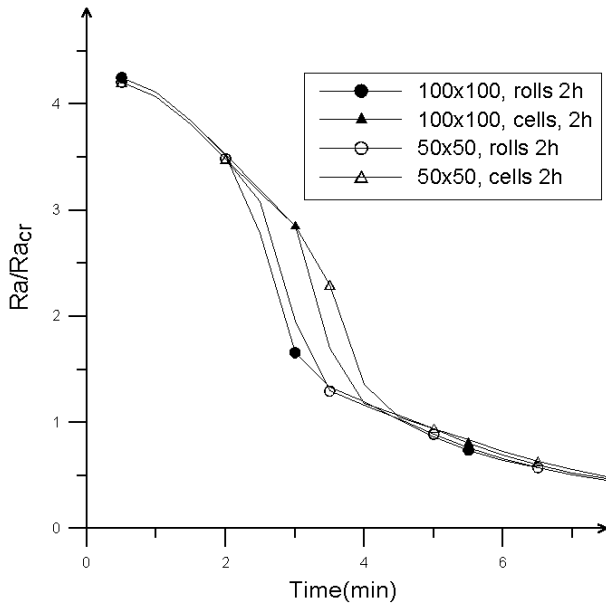


Рис. 6:  $H=2$ ,  $\Delta T = 4$

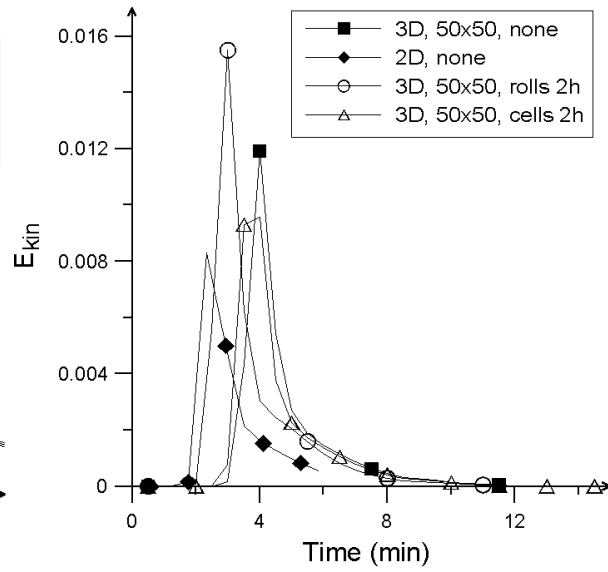


Рис. 7:  $H=2$ ,  $\Delta T = 4$

Уменьшение шага по времени в 10 раз, при заданном начальном возмущении, не повлияло на время развития конвективного движения и неоднородность слоя. В отсутствие вносимого начального возмущения конвекция в расчете с  $\tau = 0.05$  начинает свое развитие гораздо позже, чем в случае  $\tau = 0.5$ , что приводит к меньшей неоднородности слоя.

Наблюдаемые на развитой стадии расчета картины течений приведены на рисунках А.2-А.15, где изображено распределение потока массы в плоскости  $z = H$ . На начальном этапе структура течения полностью определяется начальным возмущением, затем эволюционирует в более сложные планформы, состоящие из ячеек и валов. Например из двумерного начального возмущения могут получаться структуры валообразной

формы (рис. А.14, А.15). Также, для области вытянутой формы, в расчете с начальном возмущением в форме валов, в середине области образовалась ячейковая структура (рис. А.16).

Поскольку, как показывают результаты расчетов, максимальная неоднородность фронта травления возникает в случае движения в форме валов, сравним характеристики, приведенные в предыдущей таблице с аналогичными данными, полученными в двумерном приближении [3]:

Таблица 6

Начальное возмущение	$t_{max}$	$E_{kin}^{max}$	$\Delta d$
0	4	$3 \cdot 10^{-3}$	8
	2.9	$5.8 \cdot 10^{-3}$	9
$(-1)^i C^*$	3.5	$4 \cdot 10^{-3}$	8.5
	2.6	$6 \cdot 10^{-3}$	9.3
$\sin(\pi i/2) C^*$	3.5	$3.2 \cdot 10^{-3}$	8.5
	3	$7.14 \cdot 10^{-3}$	9.3

Число валов в трехмерном случае на единицу больше, чем в двумерном. Как и в трехмерном случае, измельчение сетки и наличие начального возмущения высокой частоты приводит к уменьшению времени развития интенсивного конвективного движения. В двумерном случае максимум кинетической энергии оказывается меньше, чем в трехмерном, и наступает немного позже, причем чем более подробная сетка используется в двумерном расчете, тем времена ближе. Это объясняется тем, что в 2D расчетах при аппроксимации конвективных членов в уравнении движения вводились монотонизирующие добавки (регуляризатор), способству-

ющие более быстрому затуханию высокочастотных гармоник. Как следствие наблюдается замедление скорости роста кинетической энергии. В результате уменьшения кинетической энергии неоднородность границы раздела фаз также становится несколько меньше (рис.7).

Анализ таблицы 6 позволяет сделать вывод о допустимости исследования неоднородности фронта травления в рамках двумерных моделей. При этом существенная нестационарность задачи накладывает дополнительное требование на отсутствие добавочных диссипативных факторов, замедляющих развитие конвективного движения на ранних этапах.

Наблюдаемые в расчетах ячейки являются ячейками g-типа (т.е. жидкость в центрах ячеек опускается на дно области), что полностью соответствует предсказаниям теории устойчивости [16]. Подробное сопоставление теоретических данных [16] с результатами расчетов, и обоснование справедливости такого сопоставления, проводилось для задачи выращивания кристалла в [5]. Согласно этой работе, тип ячеек определяется направлением выпуклости профиля концентрации. Если в случае роста кристалла ячейки являются ячейками l-типа (т.е. жидкость в центрах ячеек поднимается со дна области), то при растворении наблюдаются ячейки g-типа, поскольку направление выпуклости профиля концентрации изменяется на противоположное.

### **4.3 Исследование процесса в неизотермических условиях**

Как следует из приведенных выше данных, неоднородность фронта травления растет с увеличением зазора и степени недосыщения. Для уменьшения длительности контакта подложки с ненасыщенным раствором-расплавом в технологической практике температура системы понижается по заданному закону. Охлаждение вызывает сначала уменьшение степени недосыщения расплава, а затем и рост эпитаксиального слоя на подрастворившуюся подложку. Градиент плотности на стадии роста ста-

новится устойчивым и конвективное движение, набравшее кинетическую энергию на стадии растворения, начинает затухать.

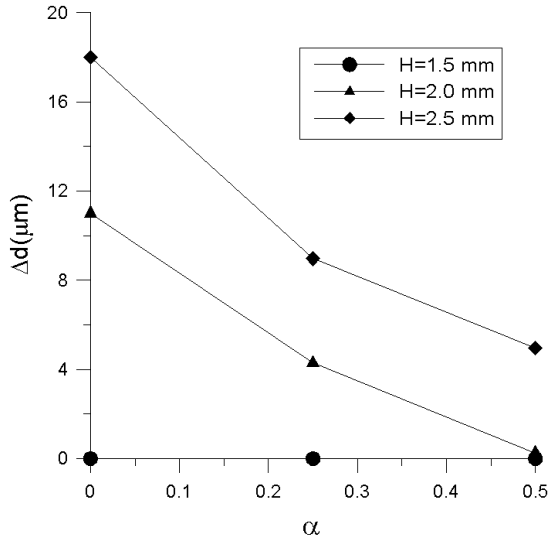


Рис. 8:  $\Delta T = 4$

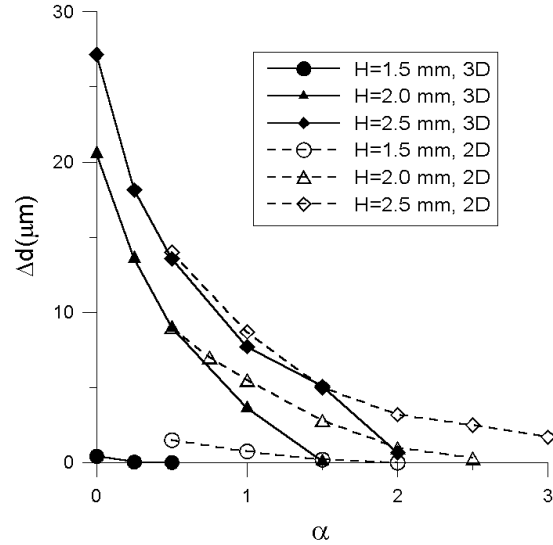


Рис. 9:  $\Delta T = 6$

Зависимость неоднородности фронта травления от скорости охлаждения

На рис. 8, 9 приводится зависимость неоднородности слоя от скорости охлаждения для степени перегрева  $\Delta T = 4, 6$  соответственно. В этой серии расчетов начальное возмущение не вносилось. Из графиков видно, что чем выше скорость охлаждения, тем однороднее становится слой. На рис.9 также приведена аналогичная зависимость, построенная по результатам расчетов двумерной задачи [7]. В двумерном и трехмерном случаях неоднородность ведет себя примерно одинаково, однако в трехмерных расчетах, при увеличении скорости охлаждения, неоднородность убывает быстрее. В 3D варианте класс возможных течений шире, чем в двумерном, и, поскольку в этом случае начальное возмущение не вносилось, наблюдавшиеся картины течения имели трехмерную структуру. При большой скорости охлаждения время  $t_{dif}$  мало, и трехмерное течение успевало набрать меньшую энергию, чем двухмерные структуры, которые, как было показано в предыдущем пункте, нарастают быстрее, отсюда и меньшая неоднородность слоя в 3D случае.

Зависимость неоднородности поверхности от величины зазора изображена на рис.10. Для больших значений  $H$  и  $\Delta T$ , что соответствует

большим значениям числа  $Ra$ , неоднородность слоя в двумерном и трехмерном случае практически совпадает. При меньших значениях числа Рэлея неоднородность в трехмерном случае меньше, чем в двумерном, и обусловлена более медленным нарастанием трехмерных возмущений.

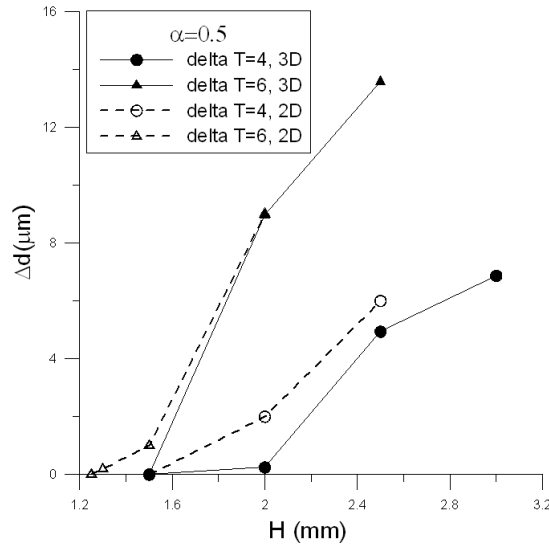


Рис. 10: Зависимость неоднородности фронта травления от  $H$

На рис. 11, 12 приведены зависимости глубины травления от скорости охлаждения для  $\Delta T = 4, 6$  соответственно. Как и следовало ожидать, с увеличением скорости охлаждения уменьшается время растворения и объем растворившегося вещества.

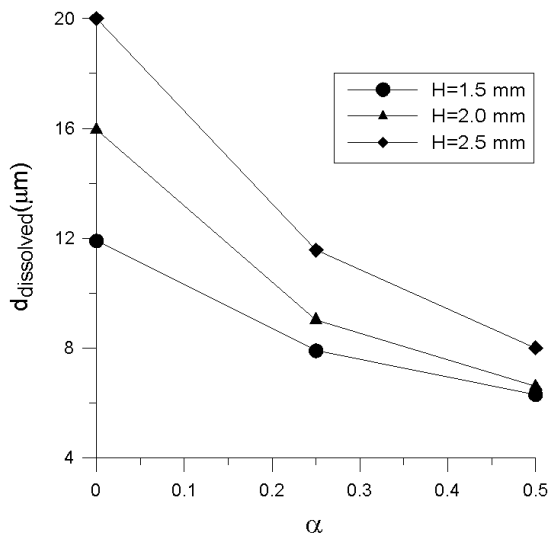


Рис. 11:  $\Delta T = 4$

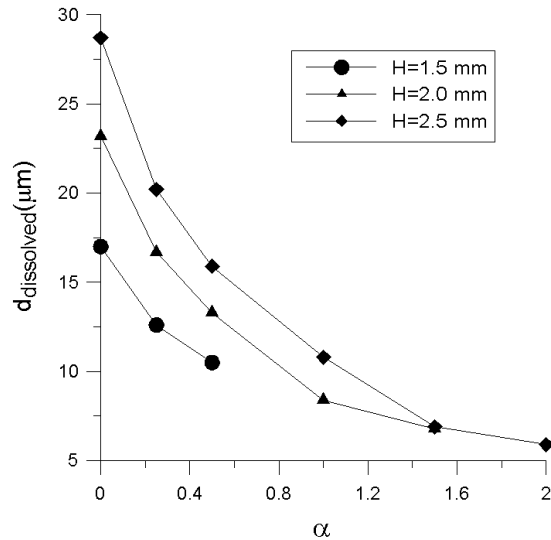


Рис. 12:  $\Delta T = 6$

Зависимость массы растворившегося вещества от скорости охлаждения

## 5 Выводы

Проведено исследование процесса растворения подложки в методе жидкофазовой эпитаксии для различных параметров технологического процесса. Изучено влияние возникающих конвективных движений на параметры получаемых полупроводниковых материалов.

Результаты исследования показывают, что начальные возмущения в форме двухмерных валиковых структур обладают наибольшей скоростью роста и приводят к высокой неоднородности поверхности травления. Поэтому они являются наиболее неблагоприятными с технологической точки зрения. Это позволяет при умеренном значении числа  $Ra$  использовать двухмерные модели для анализа задачи растворения подложки.

Наблюдаемые в расчетах существенно трехмерные структуры течения образованы ячейками  $g$ -типа, что полностью согласуется с данными теоретического анализа [16].

При средней надкритичности неоднородность поверхности фронта травления практически не зависит от формы вносимого начального возмущения.

## Список литературы

- [1] Дмитриева Л.А., Мажорова О.С., Попов Ю.П., Твирова Э.А., Шленский А.А. О численном исследовании процесса конвективного массопереноса при получении структур полупроводниковых материалов методом жидкофазовой эпитаксии. – В сб. Математическое моделирование. Получение монокристаллов и полупроводниковых структур. Под ред. А.А.Самарского, Ю.П.Попова, О.С.Мажоровой. М.: Наука 1986, с. 84 – 100.



- [2] *И.А.Денисов, В.М.Лакеенков, О.С.Мажорова, Ю.П.Попов* Математическое моделирование эпитаксиального выращивания твердых растворов  $Cd_xHg_{1-x}Te$  из жидкой фазы. Препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН, 1992, N65
- [3] *I.A.Denisov, V.M.Lakeenkov, O.S.Mazhorova, Yu.P.Popov* Numerical study for liquid phase epitaxy of  $Cd_xHg_{1-x}Te$  solid solution. J.Crystal Growth (2002), vol. 245, pp. 21-30
- [4] *I.A.Denisov, V.M.Lakeenkov, O.S.Mazhorova, N.A.Smirnova* Proc. SPIE 4340 (2000) p.223
- [5] *В.В.Колмычков, О.С.Мажорова, Ю.П.Попов* Математическое моделирование конвективного массопереноса в пространственно трехмерном случае. Часть 1. Подкритическая конвекция. Препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН, 2003, N92, 28 с.
- [6] *В.В.Колмычков, О.С.Мажорова, Ю.П.Попов* Математическое моделирование конвективного массопереноса в пространственно трехмерном случае. Часть 2. Надкритическая конвекция. Препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН, 2003, N98, 34 с.
- [7] *I.A.Denisov, O.S.Mazhorova, Yu.P.Popov, N.A.Smirnova* Numerical modelling for convection in growth/dissolution of solid solution  $Cd_xHg_{1-x}Te$  by liquid-phase epitaxy. J. of Crystal Growth, 269 (2004), pp. 284-291.
- [8] *Г.З.Гершуни, Е.М.Жуховицкий* Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости. М.: Наука, 1972, 392 с.
- [9] *Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц* Теоретическая физика, VI - Гидродинамика, М.: Наука, 1986

- [10] *D.J. Tritton, M.N. Zarraga* Convection in horizontal layers with internal heat generation. Experiments. J. Fluid Mech. 30(1), (1967)
- [11] *Alan C. Newell, J.A. Whitehead* Finite bandwidth, finite amplitude convection J. Fluid Mech. 38(2), (1969)
- [12] *Alan C. Newell, C.G. Lange, P.J. Aucoin* Random convection J. Fluid Mech. 40(3), (1970)
- [13] *H.S. Greenside, W.M. Coughran Jr.* Nonlinear pattern formation near the onset of Raleigh-Benard convection. Phys. Rev. A. 30(1), (1984)
- [14] *R. Krishnamurti* On the transition to turbulent convection. Part 1. The transition from two- to three-dimensional flow. J. Fluid Mech. (1970), vol. 42(2), pp. 295-308
- [15] *R. Krishnamurti* On the transition to turbulent convection. Part 2. The transition to time dependent flow. J. Fluid Mech. (1970), vol. 42(2), pp. 309-320
- [16] *R. Krishnamurti* Finite amplitude convection with changing mean temperature. Part 1. Theory. J. Fluid Mech. (1968), vol. 33, part 3, pp. 457-463

## 6 Приложение А.

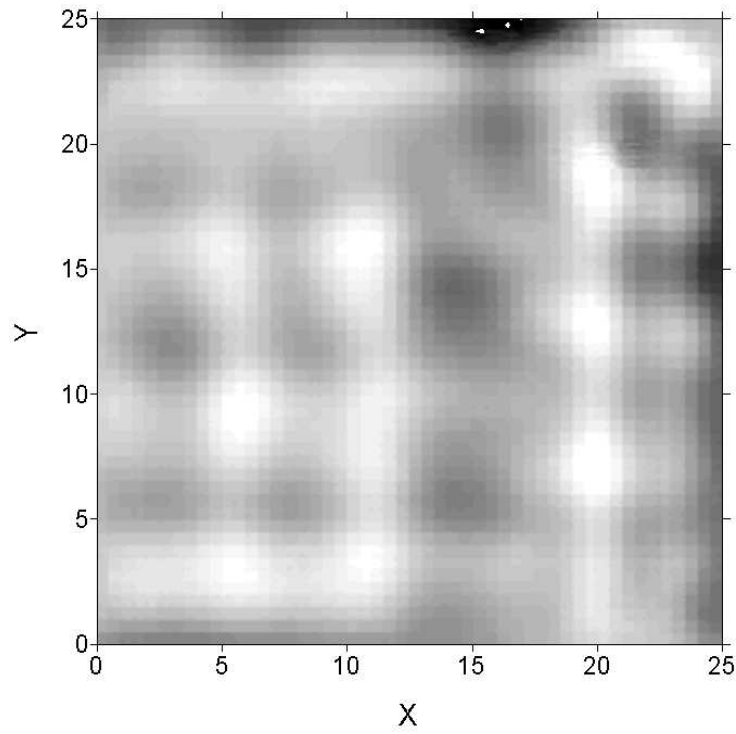


Рис. А.1: Структура начального возмущения.  $H=2.0$ ,  $\delta T=4$ , сетка  $50 \times 50$

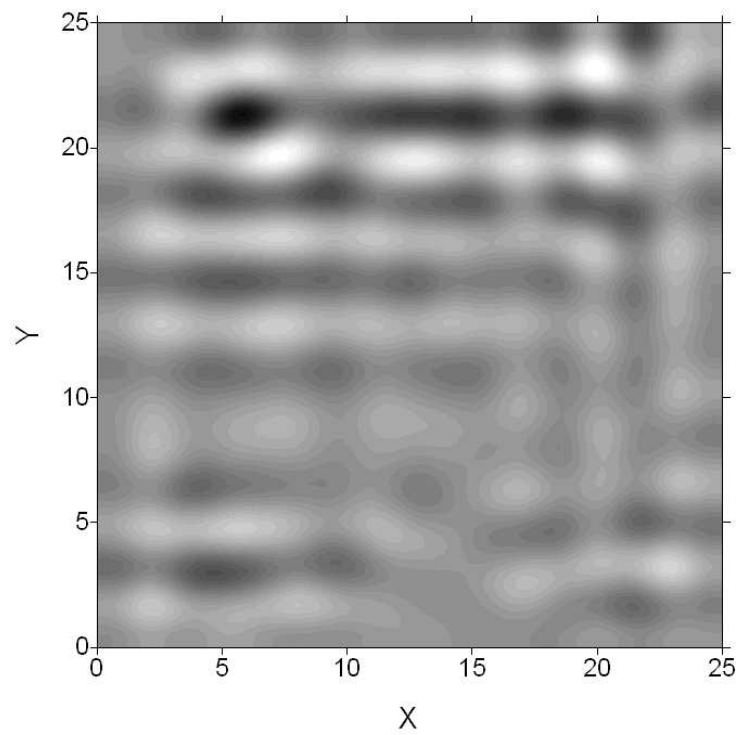


Рис. А.2:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $50 \times 50$

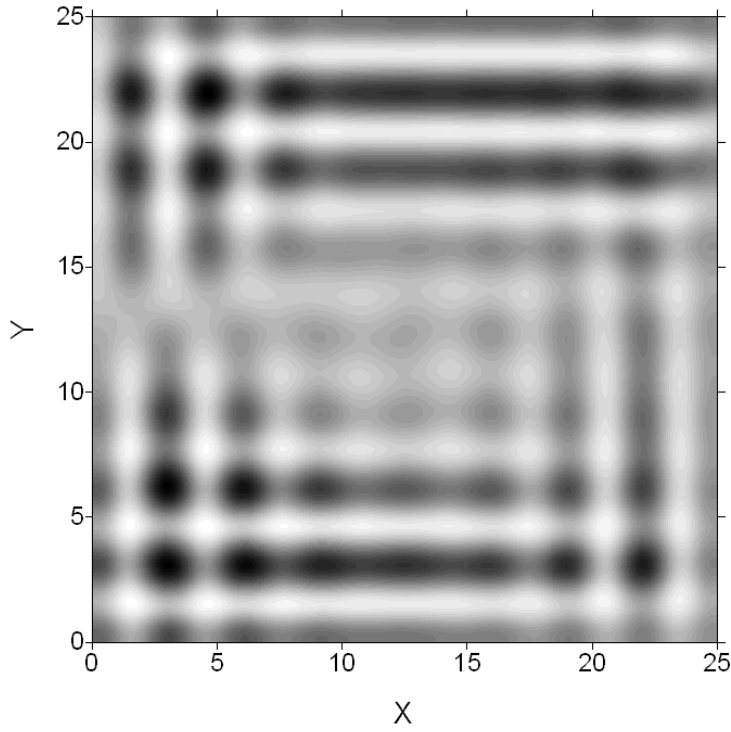


Рис. А.3:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $100 \times 100$

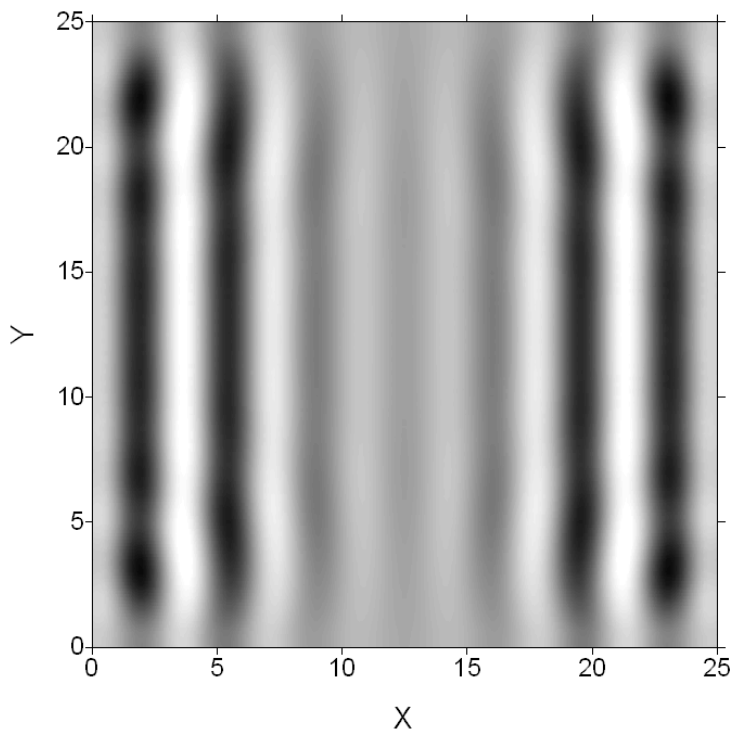


Рис. А.4:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $50 \times 50$ , начальное возмущение  $(-1)^i$

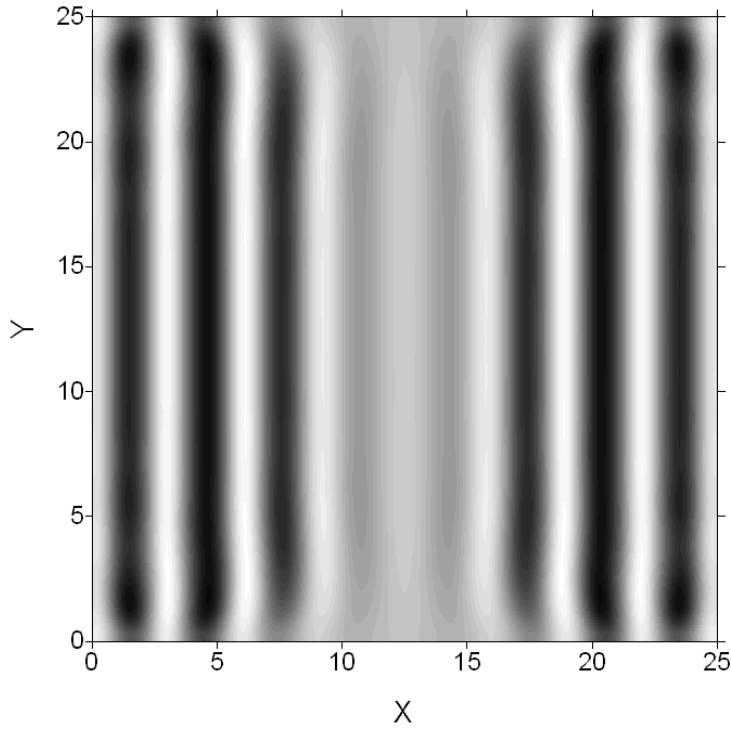


Рис. А.5:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $100 \times 100$ , начальное возмущение  $(-1)^i$

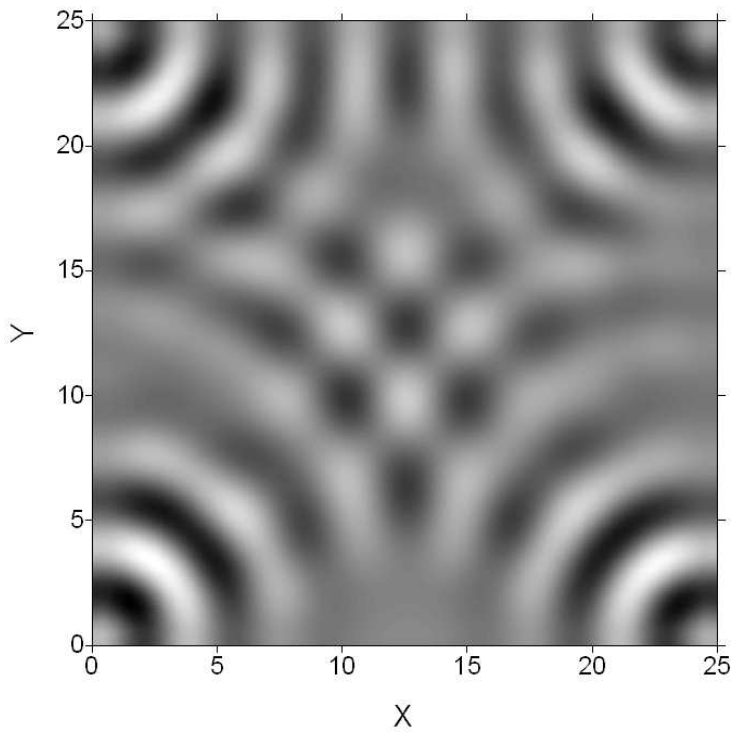


Рис. А.6:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $50 \times 50$ , начальное возмущение  $(-1)^{i+j}$

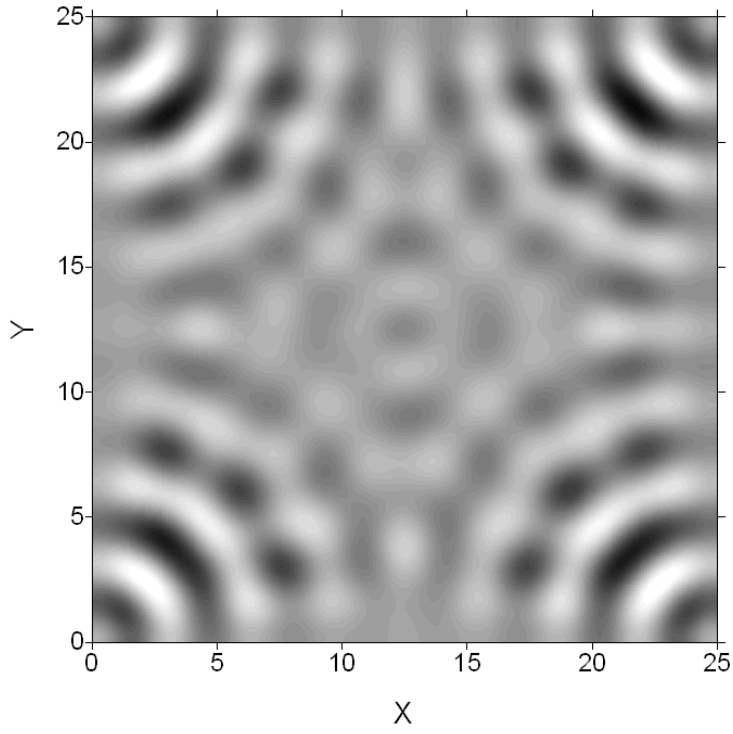


Рис. А.7:  $H = 1.5$ ,  $\delta T = 6$ , сетка  $100 \times 100$ , начальное возмущение  $(-1)^{i+j}$

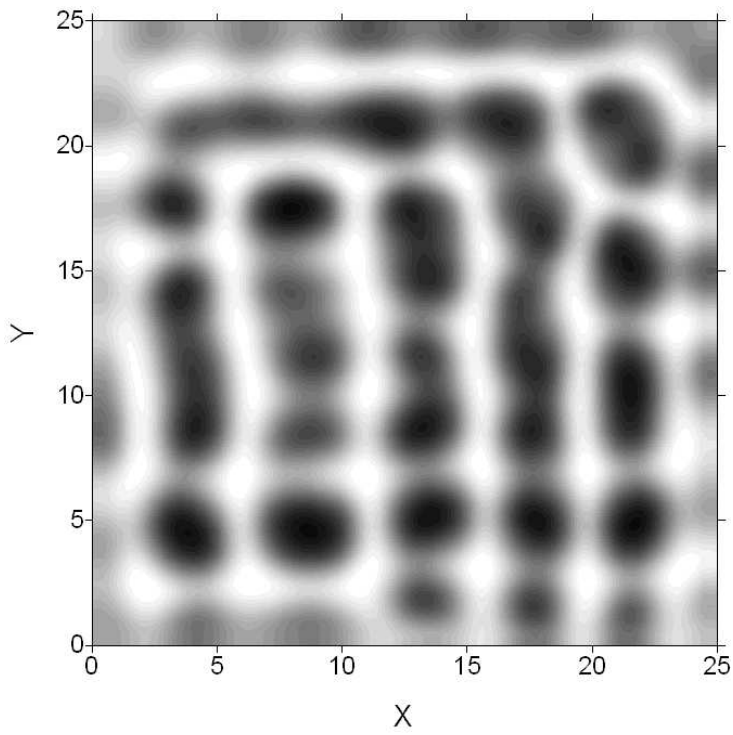


Рис. А.8:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $50 \times 50$

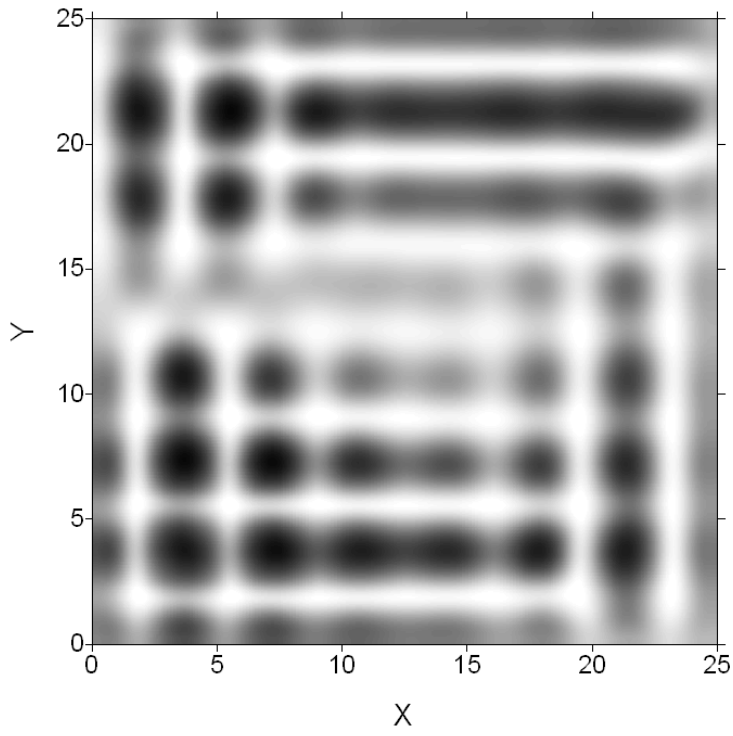


Рис. А.9:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $100 \times 100$

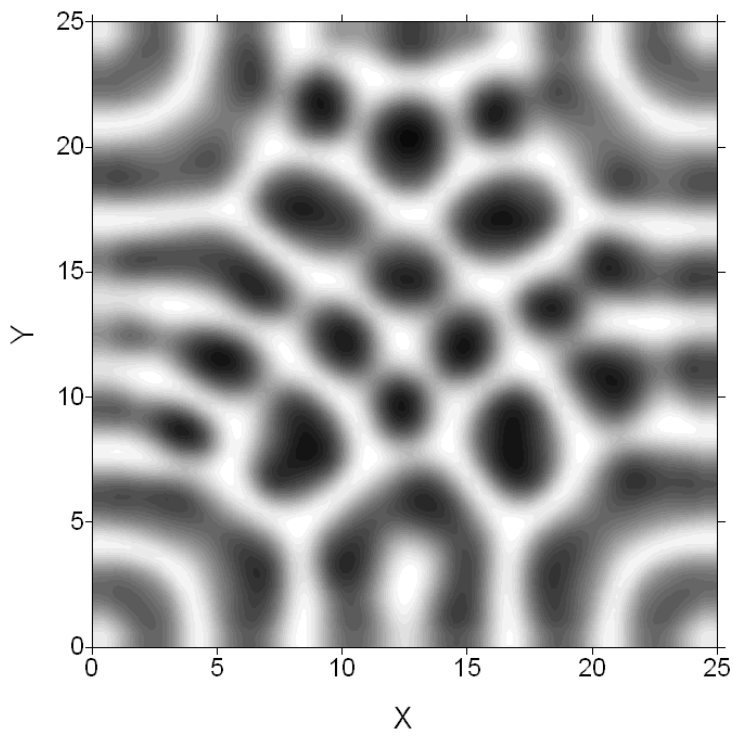


Рис. А.10:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $50 \times 50$ , начальное возмущение  $(-1)^{i+j}$

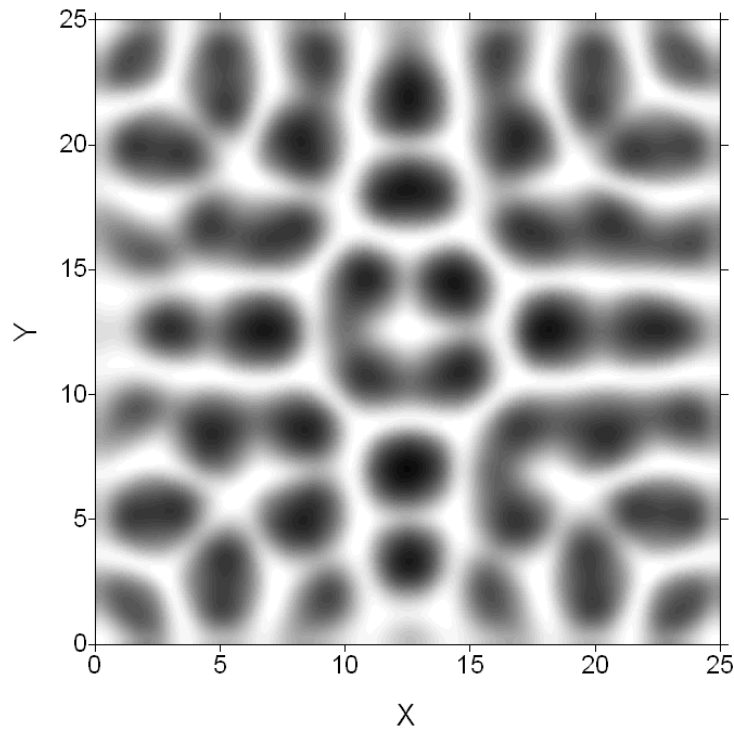


Рис. А.11:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $100 \times 100$ , начальное возмущение  $(-1)^{i+j}$

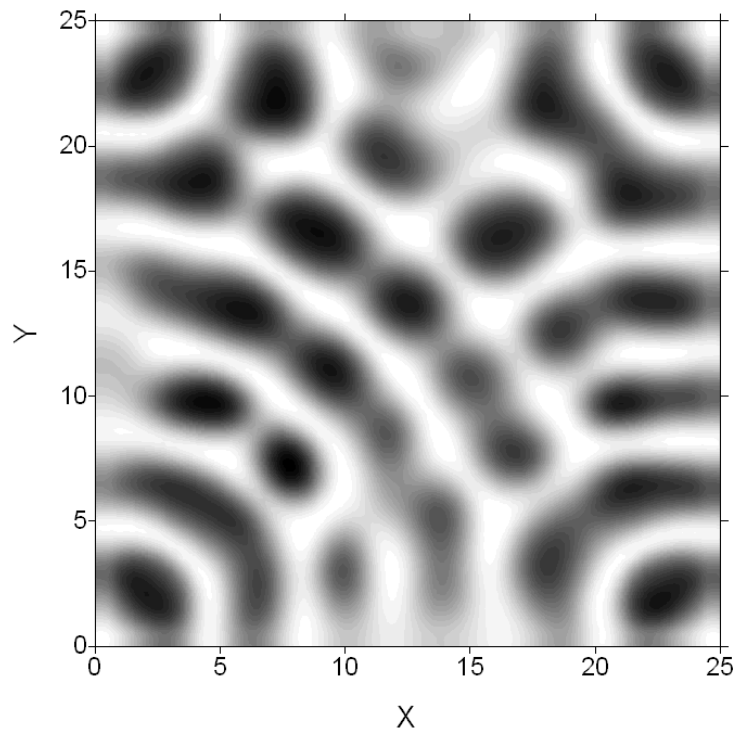


Рис. А.12:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $50 \times 50$ , начальное возмущение  $\sin(\pi i/2)\sin(\pi j/2)$



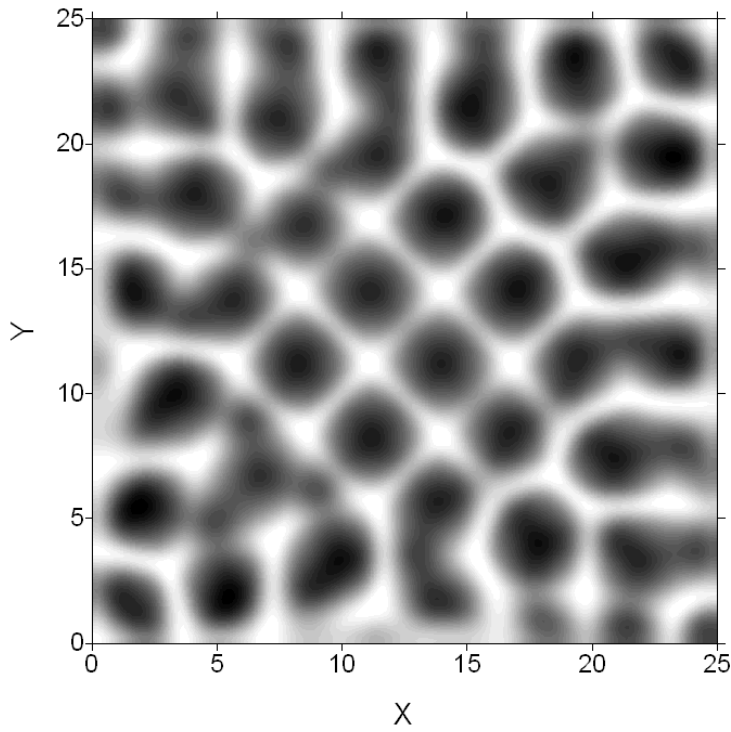


Рис. А.13:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $100 \times 100$ , начальное возмущение  $\sin(\pi i/2)\sin(\pi j/2)$

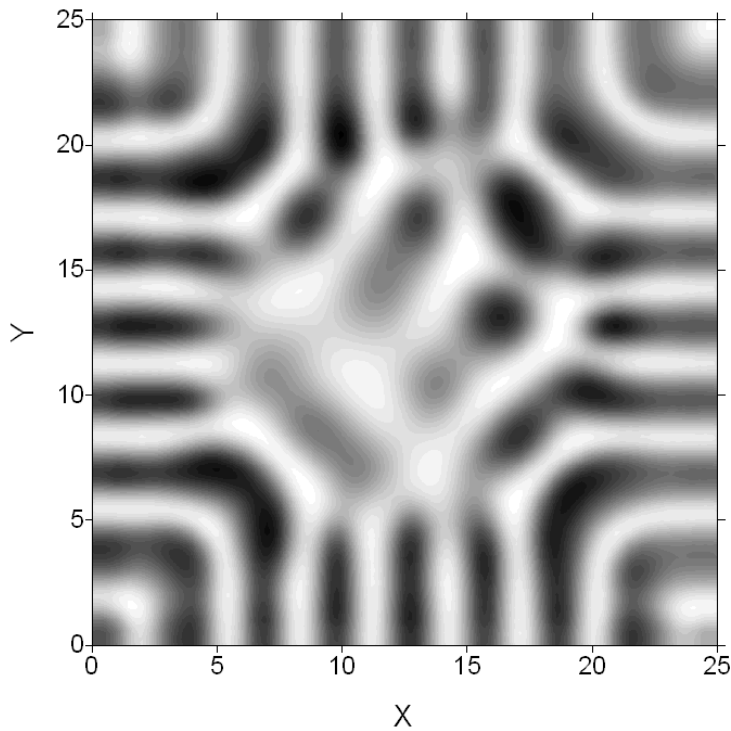


Рис. А.14:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $50 \times 50$ , начальное возмущение  $\sin(\pi i/3)\sin(\pi j/3)$

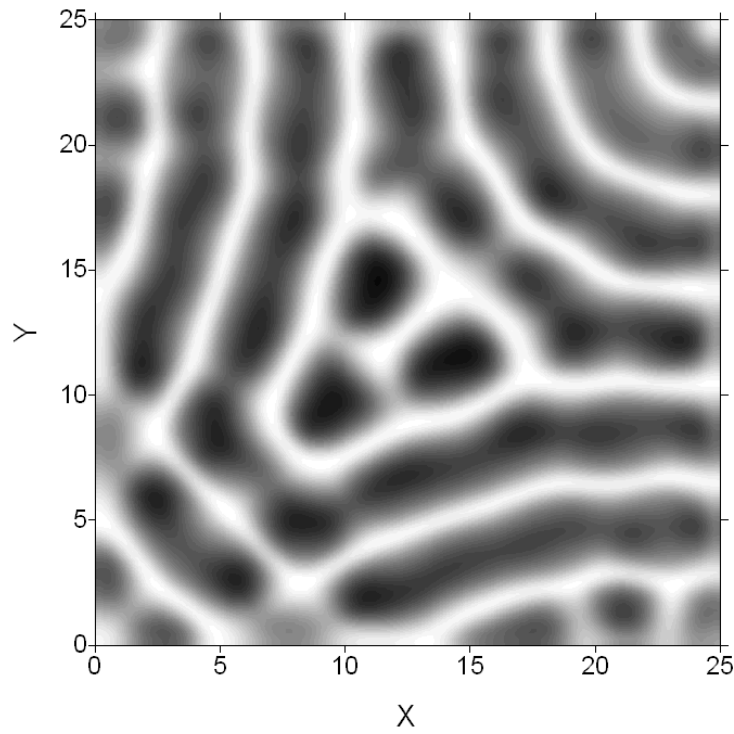


Рис. А.15:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ , сетка  $100 \times 100$ , начальное возмущение  $\sin(\pi i/3)\sin(\pi j/3)$

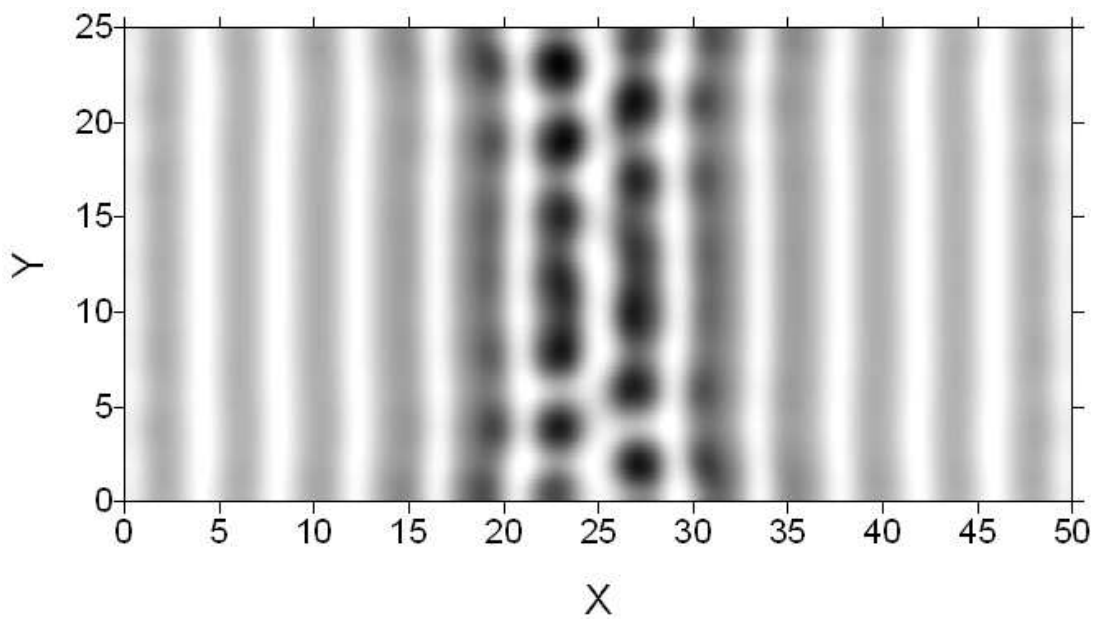


Рис. А.16:  $H = 2$ ,  $\delta T = 4$ ,  $X : Y = 2 : 1$ , начальное возмущение  $(-1)^i$