

晶体生长中的流体力学问题*

马文驹 薛明伦

中国科学院力学研究所, 北京(邮政编码100080)

提要 流体力学与晶体生长有密切的关系。在晶体生长中, 流体中的输运过程和流动的不稳定性对生成晶体的结构和质量有重要影响。本文概述了晶体生长中与流体力学有关的若干问题。首先对晶体生长的一些基本方法作了简介, 然后对晶体生长中的流动现象及其与晶体缺陷的关系进行了讨论, 最后提出了几种控制流动以改进晶体生长技术的可能途径。

关键词 晶体生长技术; 晶体缺陷; 对流; 流动不稳定性; 流动控制; 微重力

1 引言

晶体生长是一种形成固相的过程, 在这种固相中, 原子作规则的排列。对实际晶体生长工艺, 人们主要感兴趣的是生长大的单晶而不是多晶, 因为单晶有一系列优越的电学和光学特性。

晶体材料在国民经济和科学技术中占有重要的地位, 晶体生长技术的改进和突破, 意味着给电子技术、计算机技术和激光技术等领域带来新的进步和飞跃。由于极大部分晶体材料是由熔体或溶液生成的, 因此晶体生长技术与流体力学有着密切的关系。在晶体生长过程中伴随的传质、传热及复杂的流动现象直接影响所生成的晶体的质量。系统地对晶体生长过程中的流体力学研究是约30年前开始的。在这以后, 边界层理论、流体动力学稳定性理论、相似性理论和各种模拟方法运用到了晶体生长过程的研究中。

在晶体生长中, 流体的非定常运动导致温度起伏和组分不均匀分凝, 是影响晶体质量的主要原因之一。考虑引力场下由温度梯度、浓度梯度、表面张力梯度、机械驱动及电磁场等作用下的流体运动, 是近年来流体力学工作者为材料科学(其中包括晶体生长)服务的一个新的方面。在深入认识晶体生长与流体力学关系的基础上, 提出最佳化的控制流动方法, 将使晶体生长技术有可能得到新的提高。

有关晶体生长中的流动问题, 已有一系列综述文章^[1-14]。本文的目的在于将晶体生长中与流体力学有关的某些方面作一概述, 并提出若干可能控制流动过程以改进晶体生长技术的途径。

* 国家自然科学基金资助课题。

2 晶体生长方法简介

晶体生长通常有四类方法：固相生长，汽相生长、溶液生长和熔体生长。

2.1 固相生长 此法很少使用。某些金属进行应变退火以及在某些情况下晶体在熔点温度以下发生结构变化则属此类。

2.2 汽相生长 有升华法和汽相外延法等。前者是将固体顺着温度梯度通过晶体在管子的冷端由汽相生成。后者是晶体作为汽相物质之间的化学反应的直接结果——汽相沉积产物而生成。

2.3 溶液生长 主要有常温溶液法、熔盐法和水热法等。

常温溶液法是将原料溶在溶剂中，采取适当措施造成溶液过饱和使晶体在其中生长。其优点是可以在远低于熔点的温度下生长，易长成大块均匀而完整的晶体，并可直接观察晶体生长的过程。但它生长周期长，要求温度波动非常小。

熔盐法又称高温溶液法或助熔剂法。它是将晶体的原成分在高温下溶解于低熔点的助熔剂内，形成均匀的饱和溶液，通过降温等方法析出晶体。其优点是适用性强，生长温度较低，对难熔的化合物及在熔点附近易挥发分解的材料尤宜。缺点是生长速度慢，助熔剂多数有毒。

水热法即高温高压水溶液法。这是在温度为 200—1100℃，气压为 2000—10000 大气压的环境中，由容器上下部溶液之间的温差产生对流，将高温的饱和溶液带至籽晶区形成过饱和而结晶。这种方法具有熔盐法的优点，而避免使用有毒的助熔剂，但它要求有特殊的高压容器。

2.4 熔体生长 这是用得最广泛的晶体生长方法。工业生产的 200 多种晶体材料中有 80% 是用熔体法生长的。而其中又以直拉法或叫 Czochralski 法用得最普遍，其次还有坩埚移动法（或称 Bridgman 法）和区熔法（包括水平区熔法、浮区法和焰熔法等）。由于熔体生长方法的重要性，我们的兴趣也主要集中在与此有关的流体力学问题上。

图 1 为直拉法生长晶体的示意图。熔体在坩埚内受到加热，装有籽晶的拉杆带动晶体一面旋转一面缓慢上提。为使熔体温度场均匀对称，往往坩埚也作同向或反向旋转。实际工艺中，晶体的转速为 0—200 转/分钟，坩埚的转速为 0—20 转/分钟，拉杆上提速度（也即晶体

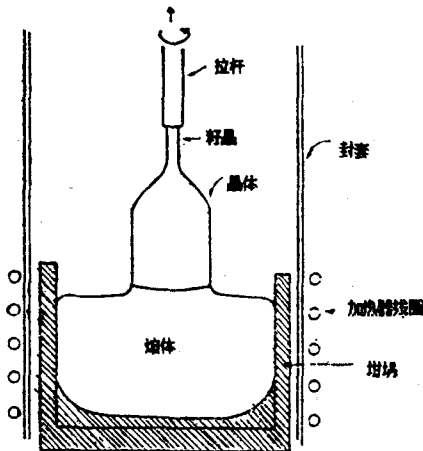


图 1 直拉法生长单晶示意图

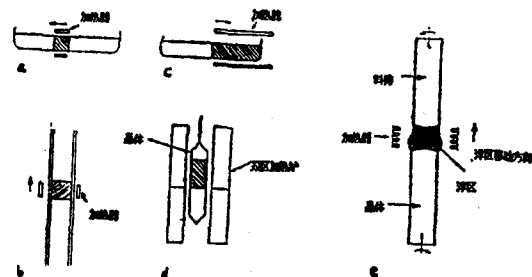


图 2 其他几种主要的熔体生长法

- (a) 水平区熔法, (b) 垂直区熔法,
(c) 水平 Bridgman 法, (d) 垂直 Bridgman 法,
(e) 浮区法

生长速度)为0.1—100毫米/小时,温度为301°K(锗)—2408°K(尖晶石)。图2是其他几种熔体生长法的示意图。

3 晶体生长中的流动现象

晶体生长中的流动现象一般很复杂。以使用最普遍的直拉法为例,坩埚内熔体的流动包括由温度差引起的自然对流,溶质浓度梯度引起的自然对流,晶体旋转和坩埚旋转引起的强迫对流,自由表面上表面张力梯度引起的流动(Marangoni对流)等。这些流动又互相作用,在不同条件下呈现各种复杂的流动图象和流动分区^[14]。下面对晶体生长中一些基本的流动作一讨论。

3.1 自然对流 热对流是最普遍的一种自然对流,它是流体中温度梯度在重力场作用下产生的浮力流动。当温度梯度与重力场方向垂直时,任何小的水平温差都将引起对流,对流的强度取决于无量纲 Grashof 数

$$Gr = g\alpha\Delta TL^3/\nu^2$$

其中 g 是重力加速度, α 是流体的热膨胀系数, ν 是动量扩散系数, ΔT 为相距特征长度 L 之间的温度差。除非 Gr 非常大,这种对流基本上是稳定的。

然而,当温度梯度与重力场方向一致时,情况就比较复杂。当流体从底部加热时,一开始并不发生流动;只有当温差产生的浮力克服了粘性阻力时,即 Rayleigh 数 $Ra = g\alpha\Delta TL^3/\nu K$ 超过临界 Rayleigh 数 Ra_{c1} 时,流体才开始流动。对于水平方向为无限大的流体层, Ra_{c1} 值以及对应的发生不稳定性的扰动波数 k_{c1} 列于表 1^[15]。

表 1

边界性质	Ra_{c1}	k_{c1}
双自由边界	658	2.22
一固一自由	1101	2.68
双固壁边界	1708	2.68

表 1 的数据是对良导热体而言的。对于绝热边界,则 Ra_{c1} 分别由 658 和 1708 降至 120 和 720。

在 Ra 开始超过 Ra_{c1} 时的流动是一些二维定常对流卷或对流胞。 Ra 再提高时,对流变成非定常的,再往上提高 Ra 时,最终将出现湍流。由实验数据可得到如图 3 的曲线^[16,17],发生流动状态转换的情况在很大范围内与 Pr 数关系很小,只有在 $Pr \leq 50$ 时,流动状态的变化与 Pr 数关系密切,对于液态金属和半导体这类低 Pr 数的熔体,当 Ra 超过 $1.1Ra_{c1}$ 时流动就变成非定常,再稍增大 Ra 数时,就很快进入湍流状态。

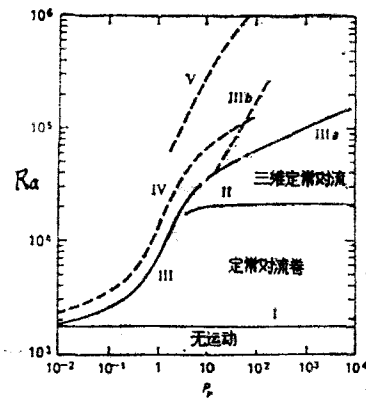


图3 不同 Ra 数和 Pr 数下的流动状态. 曲线 I 开始出现定常对流卷. II 三维定常对流. III 非定常对流. IIIa 孤立斑形式的非定常对流. IIIb 整体非定常对流. IV, V 湍流^[47]

上面的分析是对水平尺度为无穷大的流体层而言的。当容器的高宽比为有限时，铅直边界壁面对流动起很大的稳定作用。然而，有限容器内发生的流动比较复杂，非线性效应也显著。

Müller^[18]研究了高宽比 $h/d=5$ 的铅直 Bridgman 法晶体生长位形的热对流情况。以水作为流动工质，开始发生流动的 Ra_{c1} 已接近 10^8 ，随着 Ra 数的增大，流动状态经历了几个不同阶段，如图 4 所示。值得注意的是 Ra 在 $3 \times 10^7 \sim 5 \times 10^7$ 的范围内，增大或减小 Ra 数，流动状态并不重复。Müller 等^[19]还通过实验和数值模拟，研究了不同几何位形的临界 Ra 数情况，如图 5。可以发现，轴对称流动的情况仅发生在小高宽比的几何位形，图 5(b) 给出了低 Pr 数的液态镓的结果。

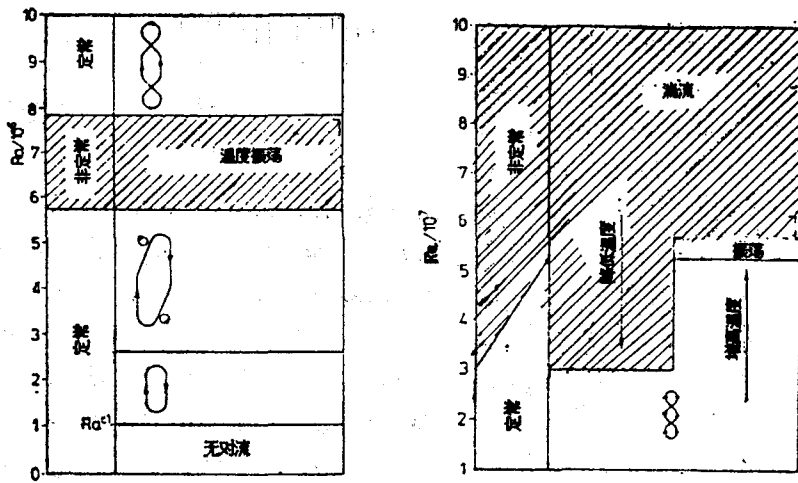


图 4 高与直径比 $h/d=5$ 的圆柱容器内装满水，底部加热，流动状态随 Ra 的变化。
(a) $h=50$ 毫米， $d=10$ 毫米 (b) $h=85$ 毫米， $d=17$ 毫米^[18]

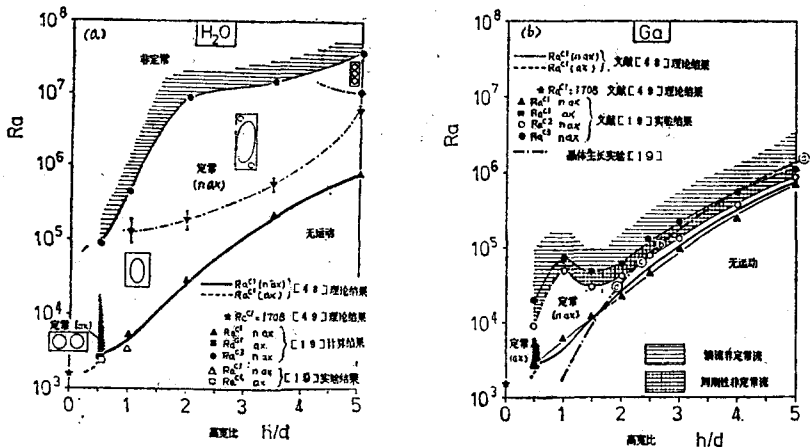


图 5 圆柱容器内的流动状态与 Ra 及高宽比 h/d 的关系。图中 ax 为轴对称流动， nax 为非轴对称流动。 Ra^{c1} 为开始发生对流的临界 Rayleigh 数， Ra^{c2} 为开始发生周期变化的非定常流的临界 Rayleigh 数， Ra^{c3} 为转换为湍流的临界 Rayleigh 数。(a) 水，(b) 液态镓^[19]

为了更好地反映实际晶体生长的条件，Müller 等提出了双 Rayleigh 数模型^[20]，即用

$$\text{铅直温差 Rayleigh 数 } Ra = g\alpha h^3(T_b - T_a)/\nu K$$

$$\text{壁面 Rayleigh 数 } Ra_w = g\alpha h^4(T_w - T_m)/d\nu K$$

来表征圆柱形形中的温度边界条件。其中 T_a 、 T_b 和 T_w 分别为上下底和侧壁的温度， $T_m = (T_a + T_b)/2$ 。流动的状态取决于 Pr 、 h/d 、 Ra 和 Ra_w 这四个参数。

除了温差引起的自然对流外，溶质的浓度差也同样会造成不稳定的密度分布，从而引起浮力对流。我们可以同样引进对应于浓度差的 Gr 数和 Ra 数。但是，有意思的是，当浓度梯度和温度梯度两者同时存在时（这在晶体生长中是很普遍的现象），两种浮力的联合作用会产生所谓“热-溶质对流”或叫广义的“双扩散对流”^[11]。这种联合作用有许多种可能形式，如图 6 所示。其中 a 是绝对稳定的，b 是明显不稳定的，g, h 和 i 中，温度梯度和浓度梯度互相起加强对流的作用，而 c, f 和 j 中，互相起减弱对流的作用。特别应该提到的是 c 和 d 两种情况，它们有可能在静力学意义上是稳定的，（即 c 中，当温度梯度对密度分布的影响大于浓度梯度的影响时，以及 d 中，当浓度梯度对密度分布的影响大于温度梯度的影响时，都成为密度随向上的距离增大而减小的静力学稳定状态），然而这种状态在动力学意义上却可能是不稳定的。这是因为热和溶质的扩散率不同，在重力场的作用下，最终会使不稳定分布的组分（如 c 中的溶质和 d 中的热量）释放重力势能而产生对流。c 发生扩散型的双扩散对流，流动为水平的层状结构，d 发生的是盐指型的双扩散对流，流动为铅直密排的指状对流胞。这种双扩散对流对某些晶体生长过程会产生特殊效应，与晶体缺陷的形成有联系。文[21]较详细地阐述了有关这方面的问题。

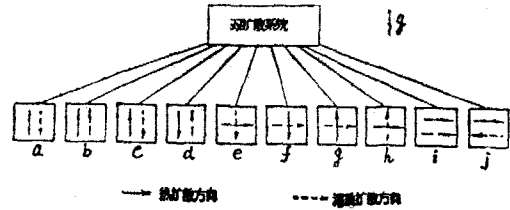


图 6 双组分系统中发生的双扩散对流

3.2 强迫对流 在直拉法中，晶体的旋转和坩埚的旋转带动了流体作强迫对流。描述直拉法流场的动量方程的无量纲形式为^[10]

$$|Ro| \left[\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{V} \right] = -\nabla p - 2\mathbf{k} \times \mathbf{V} + GrE^2 T\mathbf{k} + E\nabla^2 \mathbf{V} \quad (1)$$

其中， \mathbf{V} 是速度矢， p 为压力， T 为温度， \mathbf{k} 为铅直方向（即旋轴轴 z ）的单位矢量， $Ro = U/\Omega L$ 为 Rossby 数， $E = \nu/\Omega L^2$ 为 Ekman 数，其中的 U 、 Ω 和 L 分别为特征速度、特征转速和特征长度。以下我们再比较详细地讨论几种直拉法中具有典型意义的强迫流动的情况。

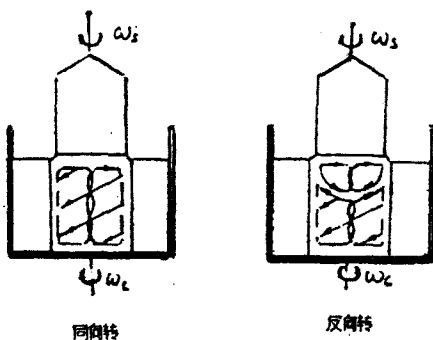


图 7 直拉法生长系统中的 Taylor 柱^[10]

3.2.1 Taylor-Proudman 柱流动 当惯性力和粘性力都很小时，即 $Ro \ll 1, E \ll 1$ ，式 (1) 简化为

$$2\mathbf{k} \times \mathbf{V} = -\nabla p$$

对上式取旋度并利用连续性方程，可得到

$$\partial \mathbf{V} / \partial z = 0 \quad (2)$$

这表明，沿着旋转轴 z ，流体的速度是

不变的。在直拉法生长中，有时在晶体和坩埚间存在一液体柱，如图 7 所示，在柱体之外，流体象刚体那样同步随坩埚转动，而柱体内流体则按式 (2) 规定的方式运动，这液体柱通常称为 Taylor-Proudman 柱。这种 Taylor 柱的出现对熔体中的混合不利。

3.2.2 旋转圆盘下的流动——Cochran 流动 一个无限大旋转圆盘引起的流动早由

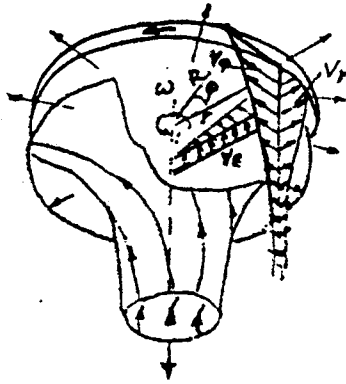


图 8 旋转圆盘下的流场

Karman 和 Cochran 给出了精确解^[22,23]。旋转圆盘将液体自下而上抽吸，在贴近圆盘约 $(\nu/\omega)^{1/2}$ 厚度的动量边界层内赋之以角动量并向外挤出，如图 8。这种流动中，轴向速度分量 V_z 与径向坐标 r 无关，并有

$$V_z = -0.89(\nu\omega)^{1/2} \quad (\text{当 } z \rightarrow \infty \text{ 时}) \quad (3)$$

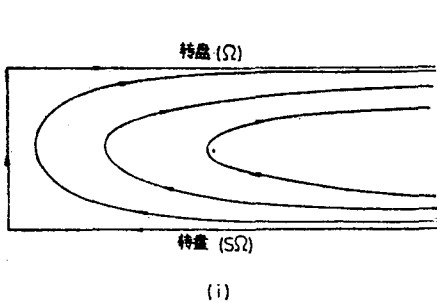
$$V_z = -0.51\omega^{3/2}\nu^{-1/2}z^2 \quad (\text{当 } z < (\nu/\omega)^{1/2} \text{ 时}) \quad (4)$$

式 (3) 和 (4) 在研究直拉法晶体生长的溶质分凝时有实际意义^[24]。

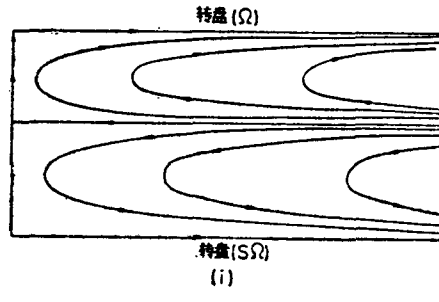
3.2.3 两旋转圆盘间的流动 当两圆盘同轴同向

旋转时，圆盘之间的流体如同刚体一样以平均转速旋

转，流体同时还向着转速较快的圆盘流动，如图 9 (i)。当 Ekman 数减小时，流动就趋向图 9 (ii) 的形式。



(i)



(ii)

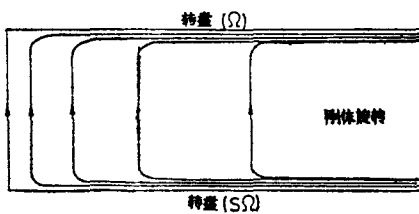
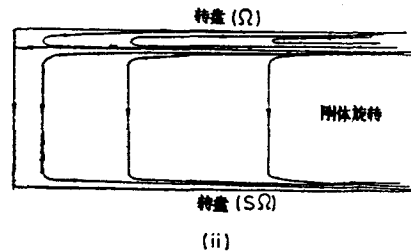


图 9 同向旋转的两圆盘间的流动，
($s > 0$) s 为上下圆盘的转速比^[10]



(ii)

图 10 反向旋转圆盘间的流动，
($s < 0$)^[10]

当两圆盘同轴反向旋转时，在两盘之间有一轴向速度为零的过渡层，如图 10 (i)；当 Ekman 数很小时，流动如图 10(ii) 所示。两圆盘同轴反向旋转的流场的另一种可能形式是除了靠近圆盘处流动与 Cochran 流一样外，其余部分流体为静止状态^[25]。

以上讨论的是无限大圆盘的理论结果。在实际直拉法流动中，不仅圆盘（即晶体和坩埚

的底面)直径是有限的,而且坩埚有侧壁,上述描述虽然只是初步近似,却反映了流动的基本特性。文[10]还对有限圆盘和侧壁的影响作了专门的讨论。

Carruthers 等^[26]以水和甘油混合物作模拟介质,系统地研究了晶体和坩埚不同旋转方向

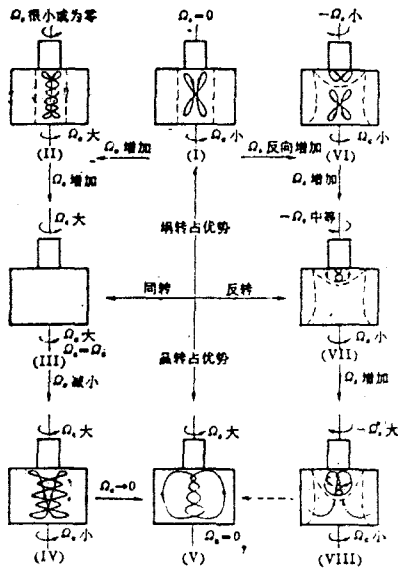


图 11 晶体和坩埚不同旋转方向和旋转速度下引起的流场和 Taylor 柱的情况^[26]

向和旋转速率引起的熔体流动情况。流动图案复杂的变化示于图11,但这还只是考虑等温熔体的情况,实际的流场将更为复杂。

3.3 表面张力梯度引起的流动 由温差和浓度差引起的表面张力梯度而发生的对流一般叫 Marangoni 对流^[27],这在有自由面的生长晶体过程如直拉法、水平 Bridgman 法和浮区法中都存在。表面张力梯度引起的对流的强度由 Marangoni 数所表征。温度 Marangoni 数为

$$Ma_T = (\partial\sigma/\partial T)\Delta Td/\rho\nu K$$

其中 σ 是表面张力, ΔT 是距离 d 间的温差, ρ 是熔体的密度。如果表面张力梯度是由溶质浓度差引起的,则类似地可引进溶质浓度 Marangoni 数 Ma_s 。

反映浮力驱动流动与表面张力梯度驱动流动的相对大小的无量纲数是动力 Bond 数

$$Bd = Ra/Ma_T = g\rho ad^2/(\partial\sigma/\partial T)$$

由于 Bd 数正比于 d^2g ,所以,对于在地球上进行的大尺度的晶体生长系统,浮力是主要的;但对于一个小尺度的系统或是在微重力环境下,则 Marangoni 对流就主宰了流动。

4 非定常流动、流体动力学稳定性和晶体缺陷

衡量单晶的质量一般有三个方面的,即纯度、均匀性和完整性。纯度是要求晶体内无用的杂质越少越好。均匀性则要求晶体内有用的掺杂物分布均匀,完整性主要要求位错密度要在允许的范围内。在满足这三个要求的基础上,还希望单晶生长得越大越好。

与均匀性有密切关系的缺陷就是生长条纹(杂质条纹)的出现,这是进入晶体的杂质随时间涨落而引起的。除了溶质边界层厚度的起伏和熔体凝固点的起伏外,生长速率的起伏是形成条纹的主要原因,而生长速率的起伏是与熔体中的温度脉动直接相关的。加热功率的起伏,热损耗的波动和晶体在不对称的温度场中旋转等因素都能引起温度脉动,而最重要的起因是熔体不定常的流动引起温度的脉动^[28]。当表征流动驱动力的准则数超过某些临界值时(这些临界值与几何形状和边界条件关系甚大),流动就由定常而变成与时间相关的,伴随而来的就是温度脉动或温度振荡。由于在第3节中关于自然对流的讨论已指出,低 Pr 数的介质(如液态金属和半导体)很容易过渡到非定常流动,甚至湍流,故温度振荡也容易发生。

流体动力学稳定性与晶体生长有密切关系。熔体由静止到流动,由层流到湍流的状态转变,无疑对生长界面的条件有很大影响。在自然对流一节中,我们已较详细地介绍了流体动力学不稳定性引起的随着 Rayleigh 数的增加流动状态发生变化的情形。事实上,流动的不稳定

性也发生在强迫对流和表面张力梯度引起的对流中。以同轴旋转的两圆柱面之间的 Couette 流为例（这种流动在一定程度上可模拟直拉法中坩埚内 Taylor 柱与坩埚壁之间的流动），当 Taylor 数

$$Ta = R_1 d^3 (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) / \nu^2$$

（其中 R_1 为内圆柱半径， d 为两圆柱的半径差， Ω_1 和 Ω_2 分别为内外圆柱的转速）超过临界值时，由于离心力引起的不稳定性，层流 Couette 剪切流将失稳，而成为如图 12(a) 所示的周向涡旋流动，通常称为 Taylor 涡旋^[29]。这种流动虽然也是定常层流，但在

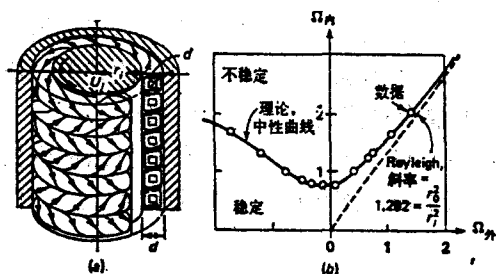


图 12 旋转圆柱间 Couette 流的不稳定性。(a) Taylor 涡旋，(b) 内外圆柱半径分别为 3.55 厘米和 4.035 厘米的理论和实验曲线^[29]

非等温系统中，流动状态的改变将带来生长界面条件的改变。

当同轴旋转的圆柱面间的流动耦合上由径向温差引起的自然对流时，将发生斜压不稳定性。在转速较快时，液流将变为非旋转对称的流动^[30]。Brice 等^[11]用直拉法生长氧化物晶体时，观察到晶体转速超过某一临界值时，在晶体边缘的熔体表面出现有规则分布的暗斑，暗斑沿着晶体旋转的方向作进动，并随着晶体转速增加而逐渐增多和加大，这暗斑实际上是绕 Taylor 柱迅速盘旋的涡管在液面的露头，其温度较低。这时随着暗斑的进动，在生长界面上感受到强烈的温度波动。图 13 是在实验模拟中观察到的液面图象^[32]。

最近，Jones^[10]通过实验，认为由熔体表面散失热量造成一层 Bénard 对流卷样的不稳定层，它与旋转晶体引起的剪切流相互作用形成上述观察到的暗斑图案的流动。由摄动计算得到的临界 Rayleigh 数和波数与实验符合得很好。尽管如此，对这种不稳定的本质，人们还缺乏深入和全面的了解。一般认为，这种不稳定性现象出现在晶体引起的旋转流动强于或相当于由坩埚热壁引起的浮力流动的时候。

5 以控制流动改进晶体质量的可能途径

由于熔体的流动对晶体的生长有极大的关系，人们一直在设法控制流动来提高生长晶体的质量。例如，适当选择固液界面取向，使温度梯度沿重力加速度方向的分量减小；避免使用过深的坩埚；使用水平挡板；冷却坩埚底减小铅直方向的温度梯度；在直拉法中采取坩埚或晶体变速转动的方法（ACRT 法^[33]）等。这些都取得了一定效果。下面讨论另外几种有效的和正在探索中的方法。

5.1 外加磁场 人们早就知道，一个铅直磁场对下方加热的液态金属流动有很强的趋稳效应^[15]。其本质是导电流体在磁场作用下的运动受到感应电磁力的阻尼作用。在这种情况下临界 Rayleigh 数 Ra_{c1} 与表征“磁粘性力”与粘性力比的 Hartmann 数 Ha 有关：

$$Ra_{c1} \propto Ha^2$$

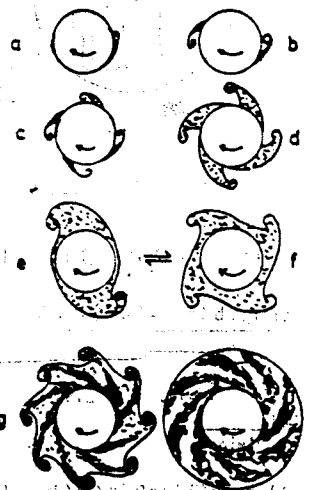


图 13 在直拉法生长氧化物晶体的模拟实验中观察到的液面图象：从 (a) 至 (h) 按时间顺序排列^[32]

其中 $Ha \equiv (\sigma_c / \rho\nu)^{1/2} (\mu HL)$, σ_c 是电导率, μ 是磁导率, H 是磁场强度, L 是特征长度。

近年来, 利用外加磁场的方法, 使宏观对流引起温度脉动, 从而控制硅与砷化镓单晶的生长过程, 以改善单晶质量已普遍受到重视^[34]。日本东芝公司采用外加3400奥斯特超导磁场的办法, 生长出直径大、质量高的砷化镓单晶^[35]。我国也进行了外加磁场改善单晶质量的研究工作^[36], 并对加有磁场的直拉法单晶生长的混合对流进行了数值模拟^[37]。

3.2 离心机上生长单晶 近年来, 国外有人在离心机上产生的超重条件进行晶体生长实验, 观察到一些意外的结果。在某些高离心加速度范围内, 熔体的温度脉动反而得到了抑制, 从而获得了无杂质条纹的晶体。

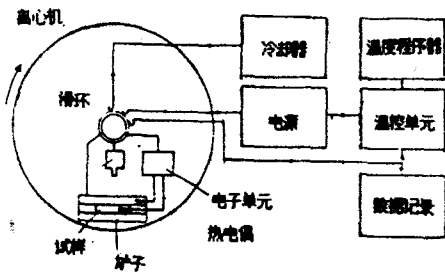


图 14 离心机上生长单晶的实验示意图^[38]

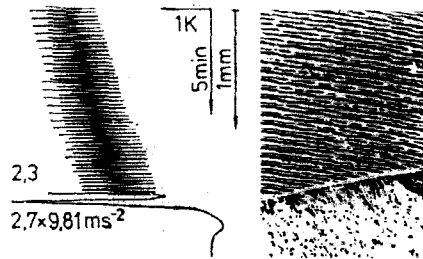


图 15 在离心机上进行铅直 Bridgman 法生长掺杂砷的碲化铅单晶的结果。左图为熔体中温度随时间和离心加速度的变化, 右图是对应生成的单晶纵剖面的显微干涉照片^[47]

Müller^[39,40] 等用图 14 所示的实验装置先后进行了铅直 Bridgman 和水平区熔法生长碲化铅单晶。图15给出了铅直生长中熔体温度变化的记录及对应的晶体内杂质条纹情况。图16则是水平区熔生长中熔体温度脉动随离心加速度变化的记录曲线。

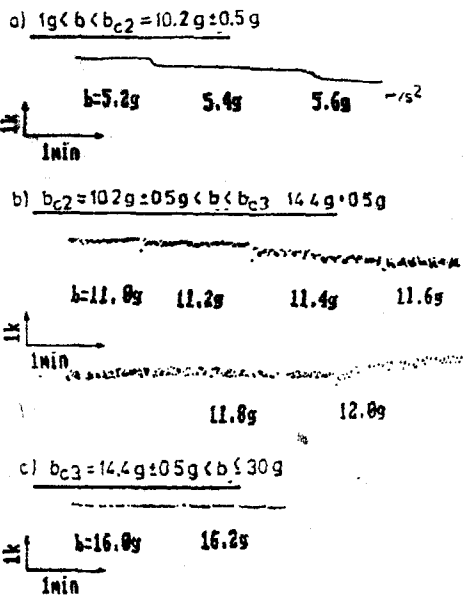


图 16 在离心机上进行水平区熔生长碲化铅单晶时温度随时间和离心加速度的变化, 其中 b 为离心加速度与重力加速度 g 合成的加速度^[47]

法国和苏联合作也在大型宇航试验用的离心机上用 Bridgman 法生长碲化铅单晶, 发现离心加速度由1g到3g, 晶体变得更不完善, 但从3g后又逐渐完善起来, 在5g下杂质分凝达到极低的水平^[41]。

我们也已开始在大离心机上进行了单晶生长的试验, 并取得了初步的结果。对于离心机上生长单晶有抑制条纹的作用, 其机制还有待进一步搞清, 有可能是由于非线性的效应, 定常流动能在一定的“窗口”范围内实现, 就如同图 4 中所反映的那样, 离心加速度的增加起到了增大 Ra 数的作用。当然也不能排除高科氏加速度对流动稳定性起某种作用。

我们也已开始在大离心机上进行了单晶生长的试验, 并取得了初步的结果。对于离心机上生长单晶有抑制条纹的作用, 其机制还有待进一步搞清, 有可能是由于非线性的效应, 定常流动能在一定的“窗口”范围内实现, 就如同图 4 中所反映的那样, 离心加速度的增加起到了增大 Ra 数的作用。当然也不能排除高科氏加速度对流动稳定性起某种作用。

5.3 加入机械微振动 从流体力学稳定性角度出发, 某些原来不稳定的状态, 由于加入机械振动会变成稳定。如容器中处在机油层上面的水银层显然是静力不稳定的, 但如果施以

一定频率和振幅的上下振动,这种不稳定状态却能稳定地维持住^[42,43]。基于这个事实,我们不妨考虑用振动方法使熔体流动趋稳的可能性。

日本已有报道,用直拉法生长铈化钢单晶时,在坩埚底部对熔体加入低频振动,由于杂质浓度变化而形成生长条纹;但用频率为10 kHz 功率为30W 的超声振动加入后,杂质的不均匀性得到明显的改善^[44]。这种超声振动影响晶体质量的机制以及振动与流动稳定性的具体关系,还需要进一步去认识和探索。

5.4 微重力条件下生长晶体 由于自然对流是在重力场作用下发生的,很显然,在微重力条件下自然对流将受到极大的抑制。为此,近10几年来,国外对在太空中生长晶体进行了大量的实验和研究,我国在自行发射的卫星上也已生长出砷化镓单晶^[45]。微重力环境大大降低了浮力对流及其引起的不稳定性,而且可以用无容器生长法避免熔体被坩埚面物质的污染。但是,另一方面,Marangoni 流动及其伴随的不稳定性现象就相对突出起来。此外,宇航员的舱内动作和调整轨道的发动机工作带来的振动(所谓“g-jitter”),可能引起较大的附加流动和温度脉动^[46]。所以在太空条件下生长晶体也还存在一些问题。但应该指出,太空环境对于制备具有某些特殊要求的材料和晶体,无疑还是一个别无替代的理想场所。而且对微重力环境下物理和化学过程的研究,有可能推动整个科技领域有新的发展。

6 结束语

晶体生长中的流体力学问题是个范围广泛的课题。本文不准备也不可能对所有方面都讨论到,尤其对于汽相生长和溶液生长基本上没有提及,对于晶体生长中流场的数值模拟方面也未作介绍。有兴趣的读者可以参阅本文第一节所引的有关文献。本文主要目的是试图在流体力学工作者和晶体生长工作者之间进行一些沟通。晶体生长工作者可以借助流体力学的成果来改进生长工艺;而流体力学工作者可以通过实验模拟、数值计算和理论分析手段揭示晶体生长过程中某些复杂现象的本质,并为晶体生长工作者提供改进晶体生长技术的有效途径的建议。我们希望,通过不同学科间的交叉和紧密结合,来共同面对高科技时代对人们提出的新挑战。

参 考 文 献

- 1 Carruthers I R, Crystal growth from the melt, in *Treatise on Solid State Chemistry*, ed, Hannay N B, New York, Plenum, 5 (1975): 325-406
- 2 Hurle D T J, Hydrodynamics in crystal growth, in *Crystal Growth and Materials*, eds, Kaldis E, Scheel H J, Amsterdam, North-Holland (1977): 550-569
- 3 Carruthers I R, Thermal convection instabilities relevant to crystal growth from liquids, in *Preparation and Properties of Solid State Materials*, eds, Wilcox W R, Lefever R A, New York, Marcel Dekker, 3 (1977): 1-121
- 4 Carruthers I R, Dynamics of crystal growth, in *Crystal Growth: A Tutorial Approach*, eds, Bardsley W, Hurle D T J, Mullin J B, Amsterdam, North-Holland (1979): 157-188
- 5 Pimputkar S M, Ostrach S, *J. Crystal Growth*, 55 (1981): 614-646
- 6 Kobayashi N, Heat transfer in Czochralski crystal growth, in *Preparation and Properties of Solid State Materials*, ed, Wilcox W R, New York, Marcel Dekker, 6 (1981): 119-253
- 7 Azouni M A, *Physicochem. Hydrodyn*, 2 (1981): 295-309
- 8 Rosenberger F, in *Convection Transport and Instability Phenomena*, eds, Zierp J, Oertel Jr H, Braun, Karlsruhe (1982): 469-489
- 9 Ostrach S, *J. Fluids Eng.*, 105 (1983): 5-20
- 10 Jones A D W, *Progress in Crystal Growth and Characterization*, 9 (1984): 139-168
- 11 Polezhaev V I, in *Crystals: Growth and Defect Structures*, ed, Freyhardt H C, Springer-Verlag

- (1984) : 87—147
- 12 Langlois W E. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **17** (1985) : 191—215
 - 13 Glocksman M E, Coriell S R, McFadden G B. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **18** (1986) : 307—335
 - 14 闵乃本. 晶体生长的物理基础. 上海科技出版社 (1982)
 - 15 Chandrasekhar S. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford Univ. Press, London (1961)
 - 16 Busse F H, in *Hydrodynamic Instabilities and Transition to Turbulence*, eds, Swinney H L, Gollub J P. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (1981) : 119
 - 17 Krishnamurti R. *J. Fluid Mech.*, **60** (1973) : 285
 - 18 Muller G, Neumann G, in *Proc. 4th European Symp. on Materials Sci. under Microgravity*, Madrid, Spain, 5—8 April (1983) : 285—295
 - 19 Muller G, Neumann G, Weber W. *J. Crystal Growth*, **70** (1984) : 78—93
 - 20 Muller G, Neumann G, Matz H. *J. Crystal Growth*, **84** (1987) : 36—49
 - 21 马文驹. 双扩散对流与晶体生长. 力学进展 (待发表)
 - 22 Von Karman T. *Z. Angew. Math. Mech.*, **1** (1921) : 233
 - 23 Cochran W G. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, **30** (1934) : 365
 - 24 Brices J C. *The Growth of Crystals from Liquids*. North-Holland (1973)
 - 25 Stewartson K. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, **49** (1953) : 333
 - 26 Carruthers I R, Nassan K. *J. Appl. Phys.*, **39** (1968) : 5205
 - 27 Ostrach S, in *Physicochemical Hydrodynamics*, eds, Levich Festschrift V G, Spalding D B, Vol. 2 (1977)
 - 28 Hurle D T J. *J. Crystal Growth*, **13/14** (1972) : 39
 - 29 White F M. *Viscous Fluid Flow*. McGraw-Hill (1974)
 - 30 Hide R, Mason P J. *Advances in Physics*, **24** (1975) : 47
 - 31 Brice J C, Bruton T M, Hill O F, Whiffin P A C. *J. Crystal Growth*, **24/25** (1976) : 429
 - 32 Whiffin P A C, Bruton T M, Brice J C. *J. Crystal Growth*, **32** (1976) : 205
 - 33 Scheel H J, Muller-Kumbhaar H. *J. Crystal Growth*, **49** (1980) : 291
 - 34 Kim K M, Smetana P. *J. Appl. Phys.*, **58** (1985) : 2731—2735
 - 35 国外科技消息, **21** (1986) : 12
 - 36 周士仁等. 半导体学报, **8** (1987) : 26—32
 - 37 陈熙, 薛明伦. 中国工程热物理学会报告 (1987)
 - 38 Muller G, in *Proc. 2nd European Symp. on Materials Sci. in Space*, Italy (1976)
 - 39 Muller G, Schmidt E, Kyr P. *J. Crystal Growth*, **49** (1980) : 387—395
 - 40 Muller G, Neumann G. *J. Crystal Growth*, **59** (1982) : 548—556
 - 41 Rodot H, et al. *J. Crystal Growth*, **79** (1986) : 77—83
 - 42 Wolf G-H, in *Feedback and Dynamic Control of Plasmas*, eds, Chu T K, Hendl H W. American Institute of Physics, New York (1970) : 293—304
 - 43 Wesson J. *Phys. Fluids*, **13** (1970) : 761—766
 - 44 早川泰弘, 漆畑正之, 熊川征司, 日本结晶成长学会志, **13**, 1 (1986) : 47
 - 45 周伯骏等. 半导体学报, **9** (1988) : 548
 - 46 Dressler R F. *J. Crystal Growth*, **54** (1981) : 523
 - 47 Muller G. *Adv. Space Res.*, **3**, 5 (1983) : 56—68
 - 48 Charlson G S, Sani R L. *Int. J. Heat Transfer*, **14** (1971) : 2157
 - 49 Pellew A, Southwell R V. *Proc. Roy. Soc. (London)*, **A174** (1940) : 312

FLUID MECHANICS IN CRYSTAL GROWTH PROBLEMS

Ma Wen-ju Xue Ming-lun
Institute of Mechanics, Academia Sinica

Abstract Fluid mechanics bears a close relation to the crystal growth. The transport processes and flow instabilities in the fluid phase during the growth of crystals have a profound influence on the structure and quality of the crystals. In this paper some aspects of hydrodynamics related to the crystal growth are reviewed. The basic methods of the crystal growth are first briefly described. The various flow phenomena during the growth of crystals and their relevance to the crystal defects are then considered. Several possible means of flow control for improving the techniques of crystal growth are presented.

Keywords *crystal-growth techniques; crystal defects; convection; flow instabilities; flow control; microgravity*

更 正

读者寇绍全同志指出,《力学进展》1989年第19卷第1期第111—113页中,原图6的图版应为图7的,原图7的图版应为图8的,原图8的图版应为图6的,原印图序、图题和说明不变。特此更正。并向寇绍全同志深表感谢,向读者深致歉意。

编 者