

等离子体反应器流场、温度场 和浓度场的参数研究

赵国英 朱清文

(中国科学院力学研究所)

摘要 文献[3, 4]表述了描述等离子体 CVD 化学反应器流场的数学物理模型, 并利用 Patankar 方法对冷热流场作了求解。本文在此基础上就影响反应器流场、温度场和浓度场的有关参数作了理论研究。所研究的问题有: 冷热流场的差别, 喷射环缝密度和主流旋转速度对流动的影响。所得结果清楚地表明: 这些参数的选择对反应器的性能有着不同程度的影响, 而有些影响则是本质的。

一、引言

按照传统的设计方法, 建成一个大的反应器, 事先要进行小尺寸的模型试验, 然后按比例放大进行设计和制造。但由于相当多的化学反应是由传质、传热和扩散等物理过程控制的, 若按比例放大往往会导致失败。因此, 许多设计不得不靠多次试验去完成。近年来, 由于电子计算机的出现, 加上由此引起的数值方法的发展, 人们已在设计前或生产过程中对某些化学反应器的流场作出数值模拟, 从理论上探讨各种生产流程和改进措施的可能性, 并最佳地选择有关参数。但这类工作主要集中在对燃烧器的研究^[1]。

高频等离子体 CVD (化学、蒸汽和沉积) 合成超微细粉末是一种较为理想的方法。其装置如图 1 所示^[2], 若合成高温结构 Si_3N_4 超微细粉末, 可由 SiCl_4 和 NH_3 、 H_2 反应生成。该装置上部是灯炬, Ar 和 SiCl_4 由灯炬上面沿径向或切向引入。工作线圈在灯炬的石英管外面, 其中有高频电流流过, 在灯炬中产生强交变电磁场, 借感应电磁欧姆加热维持进入灯炬气体的稳定放电而产生等离子体。灯炬下面是反应器, 它由反应室、紧挨灯炬出口的喷射环、猝冷收集室组成。反应室由性能良好的石墨管制成, 反应物质 NH_3 和 H_2 经喷射环进入等离子体尾涡, 反应管置于同心水冷夹套中, 猝冷收集室与反应管末端相接。同心水冷猝冷箱从反应器底部插入反应室, 反应器长度与猝冷速率利用冷却水流量和猝冷箱插入反应器的长度来调整。

为了更好地合理设计等离子体 CVD 反应器, 提高产品质量和转换率, 研究装置的放

本文于 1986 年 2 月 28 日收到。

大规律,我们曾做过数值模拟^{[3,4]*},初步对所研究的反应器^[2]设计的合理性做出了评价,给出了提高流场品质的建议。本文是这一研究的深入,目的在于探讨各种设计参数对流场、温度场和浓度场的影响。

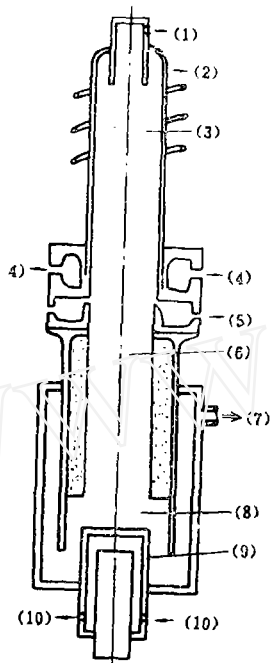


图1 等离子体 CVD 反应器示意图

- (1)—Ar (2)—Ar + SiCl₄
 (3)—灯炬 (4)—H₂O
 (5)—NH₃ + H₂ (6)—反应室
 (7)—排气系统 (8)—收集室
 (9)—猝冷箱 (10)—H₂O

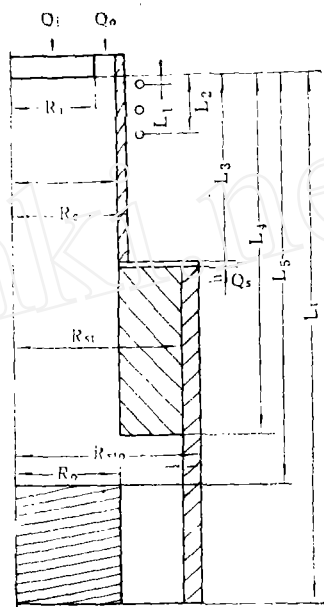


图2 CVD 反应器流场简图

$Q_i = Q_{ari}$	$L_1 = 1.0 \text{ cm}$	$R_i = 2.0 \text{ cm}$
$Q_o = Q_{aro} + Q_{SiCl_4}$	$L_2 = 7.5 \text{ cm}$	$R_o = 2.5 \text{ cm}$
$Q_s = Q_{nh_3} + Q_{h_2}$	$L_3 = 22.5 \text{ cm}$	$R_c = 2.7 \text{ cm}$
$Q_{ari} = 3.331/\text{min}$	$L_4 = 42.5 \text{ cm}$	$R_{st} = 4.0 \text{ cm}$
$Q_{aro} = 113.31/\text{min}$	$L_5 = 48.5 \text{ cm}$	$R_{sto} = 4.45 \text{ cm}$
$Q_{SiCl_4} = 1.671/\text{min}$	$L_t = 62.5 \text{ cm}$	
$Q_{h_2} = 22.51/\text{min}$	$h = 0.01 \text{ cm}$	$P_o = 8.4 \text{ kw}$
$Q_{nh_3} = 8.31/\text{min}$		$f = 4 \times 10^6 \text{ HZ}$

影响图1所示的反应器的参数包括:主气流入口处中气和边气的流量比,输入功率对灯炬流场温度场的影响,旋转进气速度和侧向进气喷射环宽度 h 对流场和浓度场的影响等。

关于流场及输入功率,已有不少作者为提高等离子体发生器性能而做了许多工作。最近,Mostaghimi^[6]作了总结,并在此基础上进行了更深入的研究。

本文采用 Patankar-Spalding 的 SIMPLER 方法^[9]对描述等离子体反应器流场的连续方程、动量方程、能量方程和扩散方程及与其耦合的电磁场方程进行了积分。鉴于目前缺少有关化学反应的速率常数,所以计算中尚未考虑化学反应及结晶沉积过程。我

* Boulos, Yoshida 对等离子体灯炬做过数值模拟^[5,6],原田俊哉对反应器部分做过简单计算^[7],至于接近实际情况的关于整个反应器流场的数值模拟则尚未见到。

们详细地讨论了冷热流场的流态, 侧向进气喷射环缝宽度和旋转进气对反应器流场的影响, 此外还给出了验证本文计算方法的一些结果。

二、物理数学模型

图2示出了简化的等离子体CVD反应器的几何参数和工作参数。根据实验^[2], 我们对问题作了如下的简化和假设: 电磁场是一维的, 流场和温度场是轴对称的, 如流动有旋, 则是二维的; 流动定常、可压缩、且为层流; 假定温度不超过12000 K, Ar的电离度很低, 且H₂、NH₃、SiCl₄间不发生化学反应, 各自也不离解, 并满足完全气体状态方程; 局部热力学平衡, 等离子体光学薄, 体功率输入由Ohmic加热引起, 辐射热损失可作为体积热汇处理; 位移电流可加以忽略, 采用图2所示的柱坐标, 我们利用定常的Navier-Stokes方程组作为控制方程描述反应器流场。

连续方程

$$\frac{\partial}{\partial x}(r\rho u) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho v) = 0 \quad (1)$$

动量方程(忽略 $\text{div } \vec{v}$)

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \left[\frac{\partial}{\partial x}(r\rho u^2) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho uv) \right] = & -\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{1}{r} \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left[r\mu \left(\frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \right] \right. \\ & \left. + r \frac{\partial}{\partial x} \left(2\mu \frac{\partial u}{\partial x} \right) \right\} + \rho g \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \left\{ \left[\frac{\partial}{\partial x}(r\rho uv) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho v^2) \right] - \rho \omega^2 \right\} = & -\frac{\partial p}{\partial r} + \\ & + \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(2\mu r \frac{\partial v}{\partial r} \right) - 2\mu \frac{v}{r^2} + \frac{\partial}{\partial x} \left[\mu \left(\frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) \right] \right\} + F_r \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \left\{ \left[\frac{\partial}{\partial x}(r\rho uw) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho vw) \right] + \rho vw \right\} = & \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r^2 \mu \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{w}{r} \right) \right] + \\ & + \mu \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{w}{r} \right) + \frac{\partial}{\partial x} \left(\mu \frac{\partial w}{\partial x} \right) \end{aligned} \quad (4)$$

能量方程(忽略压力做功和耗散能)

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \bar{C}_p \left\{ \frac{\partial}{\partial x}(r\rho uT) + \frac{\partial}{\partial r}(r\rho vT) \right\} = & \frac{1}{r} \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left(rk \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial r} \left(rk \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right\} \\ & + \sum C_{p,i} \left(D_i \rho \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) \frac{\partial T}{\partial x} + \sum C_{p,i} \left(D_i \rho \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) \frac{\partial T}{\partial r} + P - Q, \end{aligned} \quad (5)$$

扩散方程(忽略温度梯度引起的扩散)

$$\rho u \frac{\partial C_i}{\partial x} + \rho v \frac{\partial C_i}{\partial r} = \frac{1}{r} \left[\frac{\partial}{\partial x} \left(\rho D_{i,r} \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial r} \left(\rho D_{i,r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) \right] \quad (6)$$

热力学关系

$$p = \rho RT/M, \quad \bar{C}_p = \sum C_i C_{pi}, \quad M = (\sum C_i/M_i)^{-1} \quad (7)$$

电磁力 F_r 和电磁加热 P 可由求解 Maxwell 方程得到:

$$\frac{dE_\theta}{dr} = -\frac{E_\theta}{r} - \xi \omega H_x \sin \chi \quad (8)$$

$$\frac{dH_x}{dr} = -\sigma E_\theta \cos \chi \quad (9)$$

$$\frac{dx}{dr} = \frac{\sigma E_\theta}{H_x} \sin \chi - \frac{\xi \omega H_x}{E_\theta} \cos \chi \quad (10)$$

$$P = \sigma E_\theta^2, \quad F_r = \xi \sigma E_\theta H_x \cos \chi \quad (11)$$

关于电导率 σ 、磁导率 ξ 、辐射热 Q_r 和电磁场角频率 ω 的假设及计算公式见文献[4]

方程(1—6)的边界条件

1. 入口($x=0$)条件, $p=98066.5$ 帕(1大气压)

$$\begin{aligned} 0 \leq r \leq R_i, \quad u &= Q_{Ar,i} / \pi R_i^2 \\ v &= 0, \\ C_{Ar} &= 1.0 \\ w &= Q_{Ar,i} r / \pi R_i^2 R_i \\ T &= 350 \text{ K}, \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} R_i < r \leq R_o, \quad u &= (Q_{Ar,o} + Q_{SiCl_4}) / \left\{ \pi \left[(R_o^2 - R_i^2) - \frac{R_o^2 - R_i^2}{\ln \frac{R_o}{R_i}} \right] \right\} \\ &\times \left\{ R_o^2 - R_i^2 + \frac{R_o^2 - R_i^2}{\ln \frac{R_o}{R_i}} \ln \frac{r}{R_o} \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} v &= 0 \\ C_{Ar} &= Q_{Ar,o} M_{Ar} / (Q_{Ar,o} M_{Ar} + Q_{SiCl_4} M_{SiCl_4}) \end{aligned} \quad (13)$$

$$C_{SiCl_4} = Q_{SiCl_4} M_{SiCl_4} / (Q_{Ar,o} M_{Ar} + Q_{SiCl_4} M_{SiCl_4})$$

$$w = (Q_{Ar,o} + Q_{SiCl_4}) r / \pi R_o R_o^2 r$$

$$T = 350 \text{ K}$$

2. 对称轴($r=0$)

$$w = v = 0, \quad \partial \phi / \partial r = 0 \text{ (这里 } \phi = u, C_i, T) \quad (14)$$

3. 反应器及侧向进气道的内壁

$$u = v = w = 0, \quad \partial C_i / \partial n = 0 \quad (15)$$

4. 侧向进气口($L_3 \leq x \leq L_3 + h, r = R_{STO}$)

$$p = 1 \text{ 大气压}, \quad u = w = 0,$$

$$v = -(Q_{H_2} + Q_{NH_3}) / (2\pi R_{STO} h)$$

$$C_{H_2} = M_{H_2} Q_{H_2} / (M_{H_2} Q_{H_2} + M_{NH_3} Q_{NH_3}) \quad (16)$$

$$C_{NH_3} = M_{NH_3} Q_{NH_3} / (M_{H_2} Q_{H_2} + M_{NH_3} Q_{NH_3})$$

5. 出口边界条件

$$\begin{aligned} \partial\phi/\partial x|_{L_3} &= 0 \quad (\phi = u, C_i) \\ \partial^2 v/\partial x^2 &= \frac{\partial u}{\partial x} = 0 \end{aligned} \quad (17)$$

6. 反应器外壁温 $T_w = 350$ K, 猝冷箱温度 $T = 323$ K。

我们在 $0 \leq x \leq L_3$, $0 \leq r \leq R_0$ 上积分电磁方程, 其边界条件在 $r=0$ 处由下式给出:

$$\begin{aligned} E_\theta &= 0, & \frac{dE_\theta}{dr} &= -\frac{1}{2} \xi \omega H_z \\ H_x &= H_c, & \frac{dH_x}{dr} &= 0 \\ \chi &= \pi/2, & \frac{d\chi}{dr} &= 0 \end{aligned} \quad (18)$$

其中

$$H_c = [NI/2(L_2 - L_1)] \left\{ \frac{L_2 - x}{\sqrt{R_c^2 + (L_2 - x)^2}} - \frac{L_1 - x}{\sqrt{R_c^2 + (L_1 - x)^2}} \right\}$$

这里电流 I 并未给定, 而把总功率规定为一常数 P_0 , 从而我们给出积分形式的边界条件

$$P_i = \int_0^{L_3} \int_0^{R_0} 2\pi r P \, dx dr \quad (19)$$

如若 $P_i \neq P_0$, 则利用电磁场的修正因子 $\alpha_c = P_0/P_i$ 乘电磁场, 以确保 $P_i = P_0$ 得以满足。

三、数值方法

我们利用四阶 Runge-Kutta 法求解电磁场方程(8-10)。方程(1-6)采用SIMPLER方法求解, 该方法适用于椭圆型流体力学方程和传热方程。它是由 Patankar-Spalding 发展的一种数值格式。

本问题流道形状复杂, 我们的网格及控制体复盖了整个灯炬、反应器和猝冷箱的流场及其固壁。为了保证叠代收敛, 网格相当稠密: 90×35 。为使固壁速度为零, 我们把此处的粘性系数取为比气体粘性系数大亿万倍的一个大数, 把固壁外边界上的速度取为零, 再令速度方程写成散度形式(详见[9])后的源项中线性项系数取一大数, 而源项的常数项则取为零。对于扩散方程, 我们把固壁处的扩散系数取作零, 而固壁外边界上取 $C_i = 0$ 。这些都与通常的方法不同, 例如, 通常把垂直并与固壁相邻的两个网点上的浓度取成相同的值, 以保证固壁上 $\partial C_i/\partial n$ 即浓度的法向梯度为零。反应器出口条件是整个流场收敛的关键所在。本文采用如下方法: 首先把气流出口处取在远下游, 使这里不再有回流区存在; 其次, 每步叠代后把邻近边界点上 u 的值赋给边界点, 并按质量守

恒的原则修改其边值(对组元也采用类似的做法)。鉴于这样的做法既能保证总体质量(组元)守恒,又能使流场中各点的信息不断传播到出口处调整这里的边值,计算收敛速度较快,一般经过50次叠代后流形大体上已经确定了。

本文计算中松弛因子取0.3~0.8;为检验收敛,我们采用 Boulos^[5]所提出的准则,定义残数

$$R_n(\phi) = \frac{\text{Max}|\phi_i^{(n)} - \phi_i^{(n-1)}|}{\text{Max}|\phi_i^{(n)}|} \times 100\%$$

要求对于所有的变量 ϕ ,都有 $R_n(\phi) \leq 0.3\%$ 。

四、结果与讨论

为了校核本文所采用的物理数学模型,数值方法和程序的正确性,我们就 Mostaghimi 等人^[10]所计算过的 Ar 等离子体灯炬做了数值模拟。灯炬的工作条件和几何结构完全相同。尽管我们采用温度作为应变量的能量方程,而且在边界条件的给法和物性参数的计算方面有所不同,但流线和等温线的形状都几乎与[10]的结果相重合,见图3,仅在

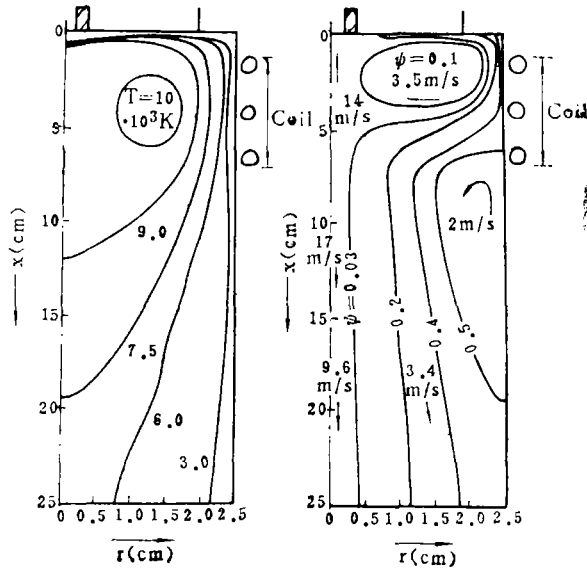


图3 就一个灯炬的计算对计算方法的校核 ($P_i = 7 \text{ kW}$)

图中示出的速度值上有差异,我们进一步用灯炬出口处和入口处的一个显然而近似的关系式 $\bar{u}_{出口} = 2(\bar{T} \varphi)_{出口} Q_{入口} / \pi \bar{T}_{入口} r^2$ 进行校核,我们未发现本文的结果有自相矛盾之处。

本文就冷热流场的差异、环缝和旋转对流动及扩散的影响这三个方面作了对比研究。

1. 冷热流场之间的差异

图4和5分别示出了冷流场和热流场(即有等离子加热)的流线形状。图6和7示出

了这两种流场在几个典型位置上的速度剖面。由于电磁加热，气流进入热流场以后因温度剧增，整个流场中气流密度低，速度在绝对值上比冷流场增加了六七倍。由于电磁力

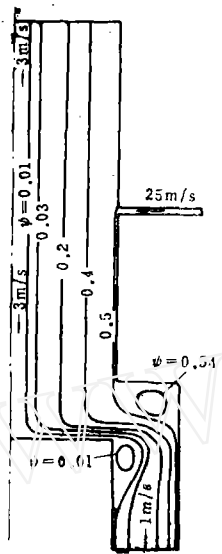


图 4 冷流场流线示意图

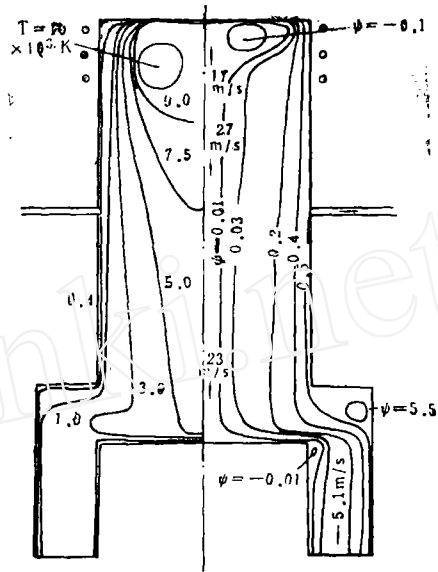


图 5 热流场流线及等温线

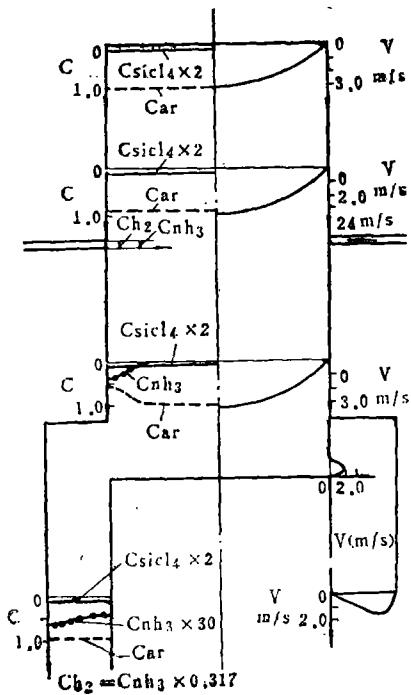


图 6 冷流场速度和浓度分布

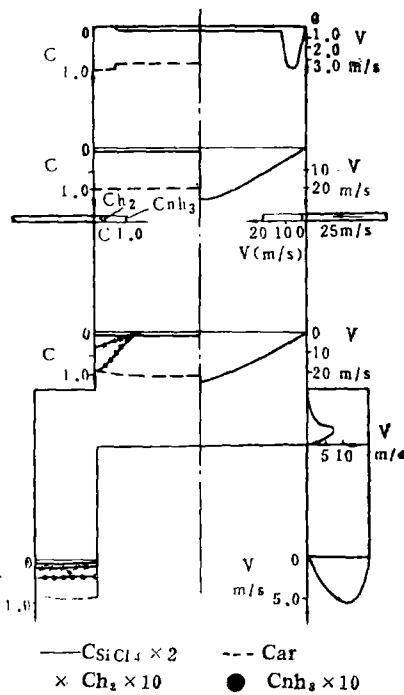


图 7 热流场速度与浓度分布

的存在,热流场在灯炬上部线圈所对应的位置上出现了一个大的涡旋(如果边气和中气的流量比下降还会在该涡旋右下方诱导出另一个回流区),流线被压缩到靠近石英管壁的地方。但在这个回流区下游,尽管热流场进气量主要集中在边气,流场仍呈抛物型分布,冷流场和热流场在其余部分的流动大致相同。喷射环缝下游形成一个很小的涡旋(热流场情况下这个涡更小);在猝冷箱前端有一个类驻点绕流;石墨反应管下方和猝冷箱两侧都有一个回流区,但细节上冷热流场在这些地方仍有很大区别:热流场流线向外位移大,相对来说流量比较集中在灯炬反应室的管壁附近,由此引起猝冷箱两侧回流区大为缩小,从图6和7示出的流场浓度分布,尤其是图8和9示出的以 NH_3 为代表的等浓度线,可以清楚地看到,热流场中温度高,扩散快,组元分布与冷流场有较大的不同。

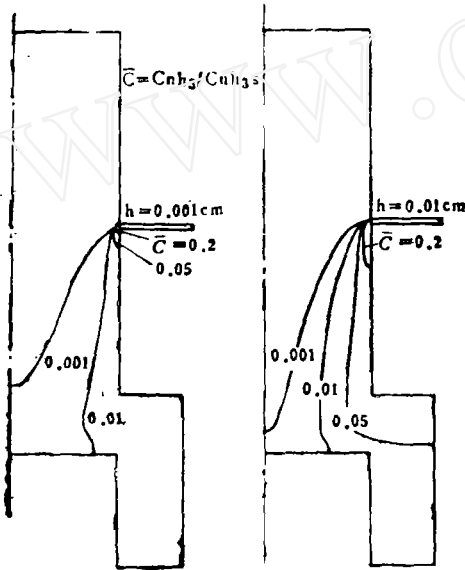


图8 h 变化时,冷流场浓度分布的改变

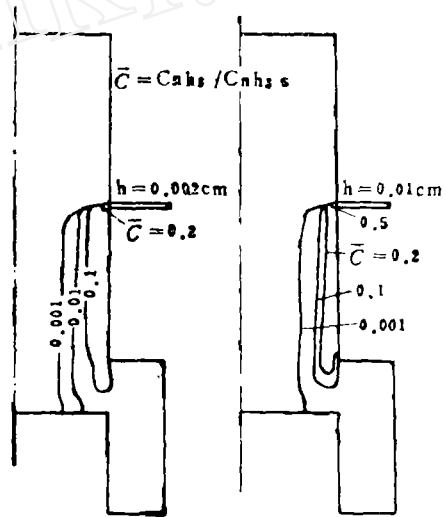


图9 h 变化时,热流场浓度分布的改变

2. 侧向喷射环缝宽度 h 对浓度扩散的影响

图8和9分别示出了冷热流场中不同侧向喷射环缝 h 引起的浓度分布的变化,附图与计算表明,环缝宽度越小,喷射速度越大,层流扩散越强。当然,由此还会引起流线形状和温度场的改变,不过,这种变化并不大,即使附图中 h 改变了十倍,但示意图中很难把这种改变画出来。喷射环宽度改变有利于扩散过程的加强, h 的缩小使 NH_3 高浓度区缩小,稍低一点的浓度区扩大,适当调节 h 的大小,我们可使 SiCl_4 与 NH_3 之间的混合发生在最有利于它们之间化学反应进行的温度区域,从而提高CVD反应器的转换效率。

3. 主流旋转进气对流场的影响

图10示出了旋转进气情况下速度 ω 沿轴线 x 衰减的情况,图5和11分别示出了有无旋转进气时流场流线和等温线的形状。我们看到,由于旋转速度的存在,弧区涡旋向石

英管壁有了移动, 计算表明, 旋转速度增加时, 移动距离也增加, 由此引起整个流场速度 u 有明显的变化, 同时也引起典型位置上速度分布的变化(图11)。另外, 最明显的是猝冷箱两侧的涡旋变大了, 石墨反应器下方回流区核心向外壁靠近; 旋转进气也引起温度场的改变(见图5和11), 但这种改变并非本质的, 另外, 浓度场也有变化, 只是这种变化更小, 以致很难用图表示出来。

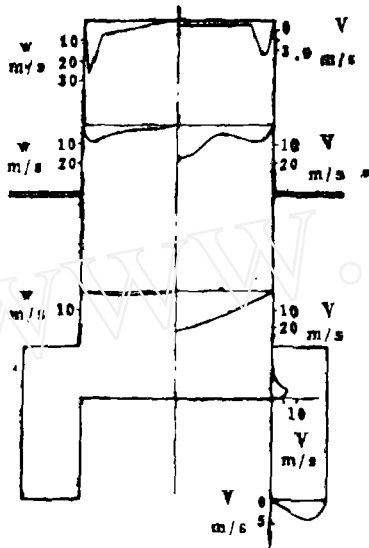


图10 旋转进气速度 w 的衰减和速度分布

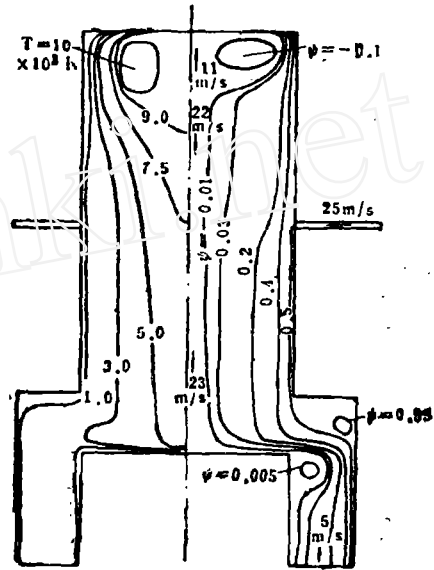


图11 旋转进气情况下的流线和等温线

致谢, 作者们感谢卞荫贵教授, 对数值模拟工作的支持和鼓励。

参 考 文 献

- [1] 赵国英、朱清文: 力学所报告, (1984)。
- [2] Ching-Wen Zhu et al; ISPC-7 Eindhoven, Paper B-4-1, July, (1985)。
- [3] 赵国英、朱清文: 全国第三届流体力学会议, (1985)。
- [4] Zhao Guo Ying, Zhu Ching Wen; International Conference On Plasma Science and Technology, Beijing, June(1986)。
- [5] Boulos. M. I., IEEE Trans. Plasma Sci, Vol Ps-4, (1976) 28-39. Can J. Ch. E., Vol 58, (1980), 367-375。
- [6] Yoshida, T. et al, Plasma Chem & Plasma Processing, 1, (1979)。
- [7] 原田俊哉等: 日本金属学会志, 45, 11(1981)。
- [8] Mostaghimi, J. et al; Plasma Chem. & Plasma Processing, 4, (1984)。
- [9] Patankar, S. V.; Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, McGraw-Hill, (1980)。
- [10] Mostaghimi, J., et al; Numerical Heat Transfer, 8, (1985)。
- [11] 朱清文: 力学进展, 16, 2, (1986)。

PARAMETRIC STUDY OF THE FLOW, TEMPERATURE AND
SPECIES CONCENTRATION FIELDS IN A PLASMA
CVD CHEMICAL REACTOR

Zhao Guoying Zhu Chingwen

(Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences)

Abstract

A theoretical investigation of the effects of different parameters on the flow, temperature and species concentration fields in radio frequency plasma CVD reactor is carried out. The problems studied are: the difference between hot and cold flow fields, the effects of the width of side wall slot and the swirling velocity of main flow on the flow. The results obtained for a Si_3N_4 reactor indicate that the flow, temperature and species fields are considerably altered by the changes of these parameters.