

文章编号:1000-582X(2003)09-0096-05

Cz 法大型砷化镓单晶生长中熔体流动和传热*

陈淑仙¹,李明伟¹,胡文瑞²,曾丹苓¹

(1. 重庆大学 动力工程学院,重庆 400044;2. 中国科学院 力学所,北京 100083)

摘要:采用低雷诺数 ϵ -模型,计算分析了 Cz 法大型砷化镓单晶生长中熔体内的热量、动量输运特性。结果表明:适当的坩埚旋转能有效抑制晶体旋转产生的对流和浮力对流,增大晶体转速能使晶体/熔体界面附近等温线更加平直,适当的坩埚、晶体转速匹配能够抑止晶体/熔体界面附近的温度波动,热毛细力对强烈熔体流动的影响可以忽略不计,但对较弱的熔体流动影响较大。文中还给出了较为适宜的坩埚、晶体转速匹配方式。研究结果为生长高质量大型砷化镓单晶提供了有重要价值的数值依据。

关键词:Czochralski 法;大型砷化镓;紊流

中图分类号:TK11⁺4

文献标识码:A

Cz 法晶体生长中,坩埚内熔体的流动影响着熔体内的热、质输运,因而影响着生长晶体的质量。当晶体和坩埚壁面温差一定,增大坩埚直径和高度,格拉晓夫数 Gr 和瑞利数 Ra 将超过 10^8 ,熔体流动将进入紊流区域^[1]。在过去 15 年中,不少学者对 Cz 法晶体生长中熔体内的温度场和流场进行过数值模拟研究,但大多数研究工作仅限于小尺寸晶体生长中熔体处于层流或微弱紊流流动的区域。在大尺寸 Cz 炉内熔体紊流流动的研究工作中,A. Lipchin 等^[2]在忽略热毛细力的情况下,研究了浮力、坩埚和晶体旋转对硅熔体内流动的影响;N. Nikitin 等^[3]研究了浮力、热毛细力驱动的 Cz 炉内硅熔体的流动,没有考虑坩埚和晶体转动;Th. Wetzel 等^[4]建立了 Cz 炉内硅熔体流动的稳态紊流模型。事实上,坩埚和晶体转动、热毛细力均对熔体流动起着重大作用,且流动常常是非稳态的,目前,有关大尺寸砷化镓 Cz 法单晶生长中熔体内的紊流流动的数值分析还未见报告,为此,对 Cz 法大型砷化镓单晶生长中熔体内的非稳态紊流流动进行数值模拟,找出坩埚和晶体旋转、热毛细力等因素对熔体内流动和传热的影响规律,为生长高质量砷化镓单晶提供数值依据。

1 数学物理模型

1.1 物理模型

图 1 给出了 Cz 法晶体生长的简化模型,坩埚半径 $R_c = 0.1965\text{ m}$,转速为 ω_c ,内为深度 $H = 0.1765\text{ m}$ 的 GaAs 熔体,晶体半径 $R_s = 0.078\text{ m}$,转速为 ω_s ,熔体上表面被晶体($r = R_s$)和惰性气体($R_s < r < R_c$)覆盖,坩埚侧壁维持定温($T = T_c$),底部绝热。坩埚和晶体反向旋转。砷化镓熔体的物性参数取自文献^[5]。

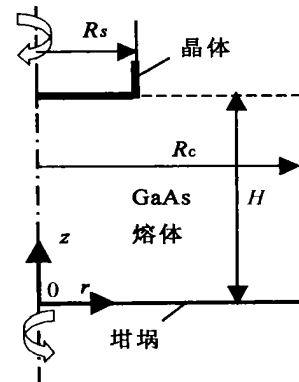


图 1 Cz 法晶体生长简化模型

* 收稿日期:2003-05-05

基金项目:教育部优秀青年教师资助计划项目([2002]40)

作者简介:陈淑仙(1975-),女,四川内江人,重庆大学博士研究生,主要从事新型功能材料生长过程中的热、质输运研究。

1.2 基本假设

本模拟计算引入了下列基本假设:1) 系统具有旋转对称性。2) 熔体为不可压缩牛顿流体, 满足 Boussinesq 假设。3) 晶体/熔体界面为水平的, 温度为 GaAs 熔点温度 T_m 。4) 熔体/气体界面水平且不变形, 与晶体/熔体界面处于同一高度, 与外界进行辐射换热。

1.3 数学模型

1.3.1 控制方程

本模拟计算采用雷诺时均的连续性方程、动量方程、能量方程。动量方程中雷诺应力采用 μ_t - 两方程紊流模型。

熔体内雷诺时均通用方程和 μ_t 方程为:

$$\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r u \phi) + \frac{\partial}{\partial z}(w \phi) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho \phi \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \phi \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) + s_\phi \quad (1)$$

式中 u, w, v 分别是速度的 r 方向、 z 方向、 θ 方向分量, ϕ 代表 $1, u, w, v, k, \epsilon, T$ 等, ϕ 与 s_ϕ 是与 ϕ 相对应的广义扩散系数及广义源项, 其定义见文献[6]。紊流扩散系数 μ_t 的计算式为:

$$\mu_t = c_\mu f_\mu k^2 \quad (c_\mu = 0.09)^{[6]}$$

1.3.2 边界条件

熔体/晶体界面: $u = 0, v = R_s \omega, w = 0, T = T_m, k = 0, \epsilon = 0$ (2)

坩埚侧壁: $u = 0, v = R_c \omega, w = 0, T = T_c, k = 0, \epsilon = 0$ (3)

坩埚底部: $u = 0, v = R_c \omega, w = 0, \frac{\partial T}{\partial z} = 0, k = 0, \epsilon = 0$ (4)

熔体、气体界面: $\mu \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{\partial T^{[5]}}{\partial r}, \frac{\partial v}{\partial z} = 0, w = 0$ (5)

$-\frac{\partial T}{\partial z} = \tau(T^A - T_g^A), \frac{\partial k}{\partial z} = 0, \frac{\partial \epsilon}{\partial z} = 0$ (6)

坩埚中心轴: $u = 0, v = 0, \frac{\partial w}{\partial r} = 0, \frac{\partial T}{\partial r} = 0, \frac{\partial k}{\partial r} = 0, \frac{\partial \epsilon}{\partial r} = 0$ (7)

式(5)中, τ 为表面张力温度系数; 式(6)中, 周围环境温度 T_g 取为砷化镓熔点温度 T_m [2]。

2 计算方法

对控制方程和边界条件的离散采用基于交错网格的有限容积法(FVM), 其中扩散项采用二阶截差的中心

差分格式, 对流项采用三阶精度截差的 QUICK 格式, 时间采用全隐格式, 求解方程组采用 SIMPLER 算法。

对温差 $T = 10$ K, 坩埚转速 $\omega_c = -6$ r/min, 晶体转速 $\omega_s = 20$ r/min, 重力加速度 $g = 9.81$ m/s² 的工况采用不同的网格划分进行重复计算, 比较 80×80 的网格和 110×110 网格的计算结果, 发现 $r-z$ 平面上的平均速度 $|U|_{av}$ 、紊流粘性系数平均值 μ_{tav} 、单位质量流体脉动动能耗散率平均值 ϵ_{av} 的最大偏差小于 2.86%, 故采用 80×80 的非均匀网格划分。

3 结果及讨论

3.1 坩埚旋转的影响

3.1.1 对熔体流动的影响

图 2(a)、(b)、(c) 给出了 ω_s 为 20 r/min, T 为 10 K, 常重力下 ω_c 分别为 -0.5 r/min、-6 r/min 和 -20 r/min 在 1400 s 时刻的流函数和温度等值线图。当 ω_c 为 -0.5 r/min 时, 一个小的晶体旋转驱动的对流涡胞 1 和一个大的浮力对流涡胞 2 占据了整个熔体空间, 如图 2(a) 所示, ω_c 增大, 流动变得较复杂, 首先涡胞 1 和涡胞 2 被大大削弱, 其次坩埚旋转驱动的对流涡胞 3 取代浮力对流涡胞而占据大部分熔体空间, 浮力对流涡胞 2 只呈现在熔体下部靠近坩埚侧壁部分。此外由于熔体深度高达 17.65 mm, 浮力及坩埚旋转产生的离心力驱动的对流沿侧壁向上流动时, 未能到达自由表面便向中心轴流动, 被其带走的熔体由附近熔体沿坩埚侧壁向下流动进行填补, 因而在靠近自由表面的区域, 产生一个与热毛细力作用方向相反的对流涡胞, 即涡胞 4, 如图 2(b)、(c) 所示。图 3 显示了紊流粘性系数最大值 μ_{tmax} 、平均值 μ_{tav} ($\mu_t/6400$)、 $r-z$ 平面最大速度 $|U|_{max}$ 、平均速度 $|U|_{av}$ ($(u^2 + w^2)^{1/2}/6400$) 随 ω_c 的变化情况。20 r/min 的晶体转速产生的对流和浮力对流为强烈的紊流流动, 该流动受转速为 -0.5 r/min 的坩埚旋转影响较小, 整个熔体流动仍为强烈的紊流流动; ω_c 为 -2 r/min 时该流动被大大削弱; ω_c 为 -6 r/min 时继续被削弱, 虽然坩埚旋转驱动的对流流动增强, 总的熔体流动和紊流脉动大大减弱。当 ω_c 大于 -7.94 r/min 时, 坩埚旋转产生的动量矩大于晶体旋转产生的动量矩, 坩埚旋转作用占优, 随着 ω_c 增大, 总的熔体流动和紊流脉动增强。可见, 适当的坩埚旋转能抑制晶体旋转产生的对流和浮力对流, 并在 ω_c 增大到一定值后, 坩埚旋转对熔体流动起着支配作用, 这与文献[2]的结论一致。

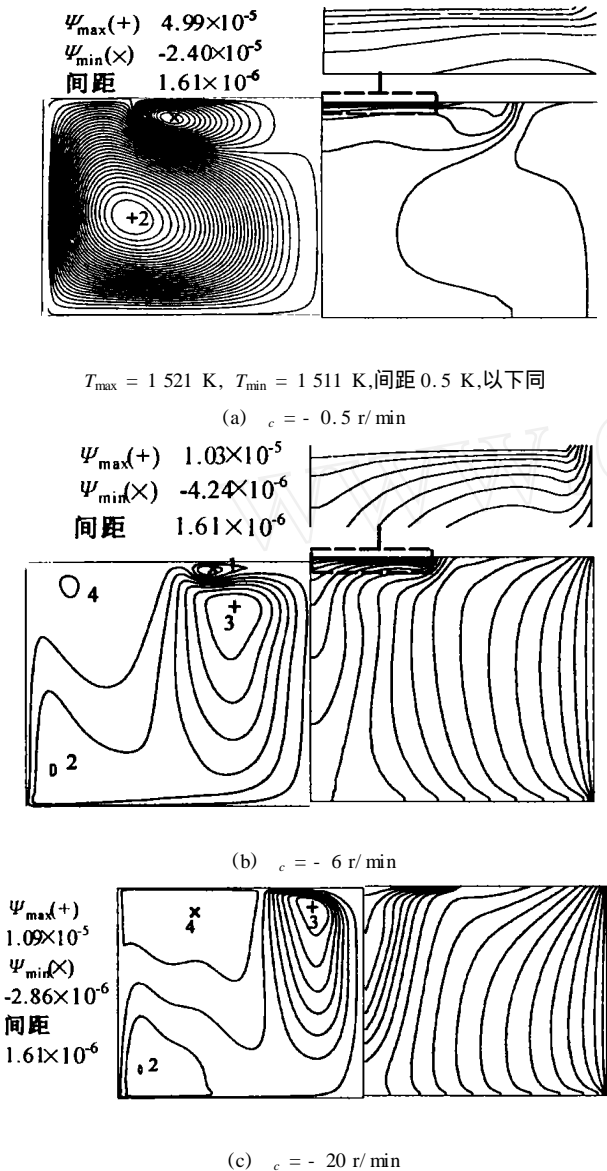


图2 流函数(左)和温度(右)等值线图

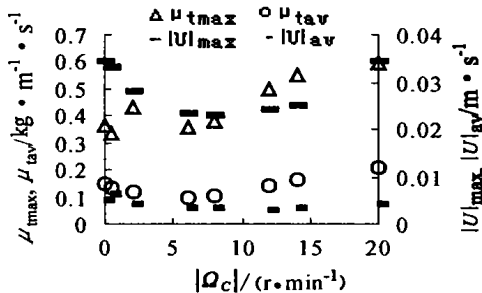


图3 紊流粘性系数最大值 μ_{\max} 、平均值 μ_{av} , $r-z$ 平面最大速度 $|U|_{\max}$ 、平均速度 $|U|_{\text{av}}$ 随坩埚转速 ω_c 的变化。 $s = 20 \text{ r/min}$, $T = 10 \text{ K}$, $g = 9.81 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$

3.1.2 对晶体/熔体界面附近等温线形状的影响

坩埚旋转产生的离心力驱动的强迫对流以及浮力对流流经高温的坩埚侧壁,将热量往固/液生长界面

输送,但因坩埚旋转驱动的对流先流经晶体外缘下方,热量大部分被输送到此处,输送到晶体下方中心线附近的热量较少;另一方面,随着 ω_c 的增大,晶体旋转作用被削弱,由坩埚底部输送到晶体下方中心线附近的热量也减少,致使晶体下方中心线附近的温度低于晶体外缘下方同一高度的熔体温度。因此 ω_c 为 -0.5 r/min 时,晶体/熔体界面附近的等温线几乎为平坦直线, ω_c 为 -6 r/min 时,界面附近等温线呈凸形(凸向熔体), ω_c 为 -20 r/min 时凸得更加厉害。可得出结论:增大 ω_c 将使晶体/熔体界面附近等温线由平变凸。

3.1.3 对晶体/熔体界面附近的温度波动的影响

考查晶体/熔体界面附近的 $B(0, 0.9H)$ 、 $C(R_s, 0.9H)$ 、 $D(0.9R_c, 0.9H)$ 3 点的温度随时间的变化,如图 4 所示, ω_c 为 0 r/min 时,三点温度表现为周期性的波动,最大幅值为 2 K ,边界条件充分渗透后的 $500 \sim 1400 \text{ s}$ 时间段内,三点温度波动最大标准差为 0.414 K ,但 ω_c 为 -2 r/min 时,三点温度随时间的推移趋于稳定。根据同轴旋转柱面间粘滞流动稳定性的理论^[7], $s = 20 \text{ r/min}$, $\omega_c = 0 \text{ r/min}$ 的这种匹配正好落在流动不稳定区内,因此 B 、 C 、 D 3 点温度波动较大。而 $s = 20 \text{ r/min}$, $\omega_c = -2 \text{ r/min}$ 的匹配落在稳定区内,而且由于坩埚旋转抑止了流动的不稳定性,一定时间后,固/液界面附近温度趋于稳定。可见适当的坩埚转速能抑止晶体/熔体界面附近的温度波动。

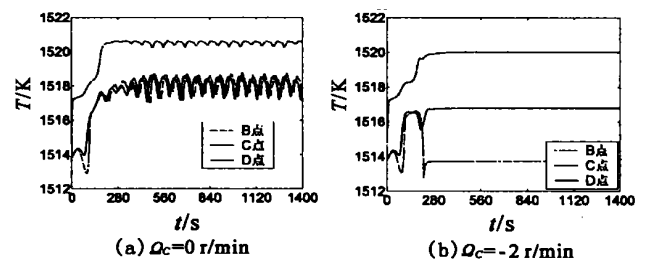


图4 参考点温度随时间 t 的变化 $s = 20 \text{ r/min}$, $T = 10 \text{ K}$, $g = 9.81 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$

3.2 晶体旋转的影响

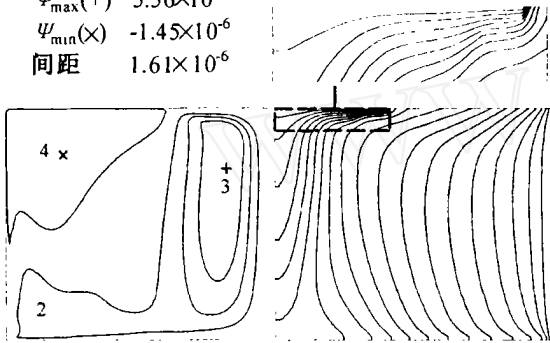
3.2.1 对熔体流动的影响

图 5(a)、(b) 给出了 $\omega_c = -6 \text{ r/min}$, $T = 10 \text{ K}$, 常重力下 s 分别为 8 r/min 及 60 r/min 在 1400 s 时刻的流函数和温度等值线图。 s 为 8 r/min 时,晶体旋转产生的涡胞 1 被淹没,坩埚旋转作用占优; s 增大,涡胞 1 出现,其等流函数线密度增大,晶体旋转作用明显增强。同时 μ_{\max} 、 μ_{av} 、 $|U|_{\max}$ 、 $|U|_{\text{av}}$ 均随 s 增加而增大(限于篇幅,其具体数据未给出),说明晶体转速增加,熔体流动增强。

3.2.2 对晶体 / 熔体界面附近等温线形状的影响

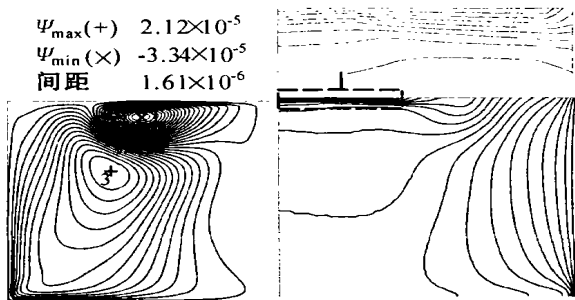
比较图 5(a)、(b) 所示的温度等值线图, s 为 8 r/min 时, 晶体 / 熔体界面附近等温线呈凸形, s 增大到 60 r/min 时, 等温线趋于平直并微略呈凹形。这是因为晶体旋转所产生的涡胞 1 一方面抑制从坩埚侧壁沿自由界面向晶体外缘的传热, 另一方面强化坩埚底部向晶体下方中心线附近的传热, 因此随着 s 增大, 涡胞 1 流动增强, 界面附近等温线由凸变平变凹。

$\psi_{\max}(+)$ 5.56×10^{-6}
 $\psi_{\min}(\times)$ -1.45×10^{-6}
 间距 1.61×10^{-6}



(a) $s = 8$ r/min

$\psi_{\max}(+)$ 2.12×10^{-5}
 $\psi_{\min}(\times)$ -3.34×10^{-5}
 间距 1.61×10^{-6}



(a) $s = 60$ r/min

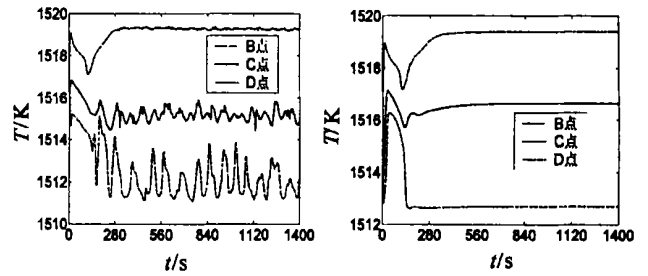
图 5 流函数和温度等值线图

3.2.3 对晶体 / 熔体界面附近的温度波动的影响

如图 6 所示, 对同样的 c , s 为 0 r/min 时, B、C、D 三点温度呈现为非周期性的波动, 最大幅值达 2.8 K; s 为 12 r/min 时, 三点温度在一定时间后便趋于稳定。在 0 ~ 12 r/min 之间, s 为 2 r/min 时最大波动幅度为 2.3 K, 4 r/min 时为 1.5 K, 8 r/min 时为 0.2 K。从图 7 还可看到参考点温度在 1 000 ~ 1 400 s 时间段波动的标准差 std. dev 随 s 增大而减小, 并在 s 增大到 12 r/min 后均为一小值。说明随着晶体转速的增大, 流动不稳定性被抑止, 但当 s 增大到一定值后, 抑止作用不再增强。此外计算结果还表明晶体转速越大, 熔体达到稳定所需的时间越长。

3.3 热毛细力的影响

在 $c = -6$ r/min, $T = 10$ K 的情况下, s 为



(a) $s = 0$ r/min (b) $s = 12$ r/min

图 6 参考点温度随时间 t 的变化

$c = -6$ r/min, $T = 10$ K, $g = 9.81$ m · s⁻²

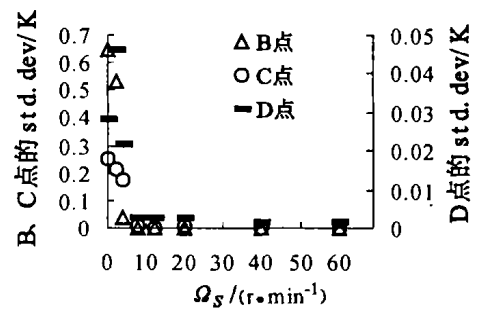


图 7 参考点温度波动标准差 std. dev 随晶体转速 s 的变化

$c = -6$ r/min, $T = 10$ K, $g = 9.81$ m · s⁻²

2 r/min 时, $|U|_{\max}$ 及 $|U|_{\text{av}}$ 较小, 熔体流动较弱, 忽略热毛细力与考虑热毛细力的情况相比较, $|U|_{\max}$ 相差 4.55%, $|U|_{\text{av}}$ 相差 28.6%, μ_{\max} 相差 25.98%, μ_{tav} 相差 16.98%, 后者生长界面附近等温线更为凸向熔体, 且温度波动大; s 为 8 r/min 时, 熔体流动增强, 两种情况比较, 上述各参数值的最大差值为 1.2%, 但后者生长界面附近等温线比前者更凸向熔体; s 为 20 r/min 时, 流动较强, 各差值几乎可以忽略不计。可见热毛细力对强烈的熔体流动的影响可以忽略, 但对较弱的熔体流动影响较大, 应予以重视。

4 结 论

1) 增加晶体转速, 熔体内流动增强; 坩埚旋转能有效抑制晶体旋转产生的对流和浮力对流, 坩埚转速增加, 抑制作用增强, 达一定值后, 坩埚旋转作用占优, 对熔体内流动起支配作用。2) 增大坩埚转速使晶体 / 熔体界面附近等温线呈凸形, 而增大晶体转速能使晶体 / 熔体界面附近等温线更加平直, 有利于形成较好的生长界面。3) 适当的坩埚、晶体转速匹配能够抑止熔体内的温度波动, 坩埚、晶体转速越大, 熔体达到稳定所需的时间越长。4) 就目前模拟的情况, 晶体转速

为 40 r/min 和坩埚转速为 - 8 r/min 时,熔体内流动相对较弱,生长界面较为平直,温度随时间的推移趋于稳定,是较好的匹配方式。5) 在强烈的熔体流动中,可以忽略热毛细力的影响,但在较弱的熔体流动中,应予以重视。

参考文献:

- [1] O. GRÜBNER, A. MÍHE, G. MÍLLER, et al. Analysis of turbulent flow in silicon melt by optical temperature measurement[J]. Mater. Sci. Eng. 2000, B73(1 - 3):130.
- [2] A. LIPCHIN, R. A. BROWN. Comparison of three turbulence models for simulation of melt convection in Czochralski crystal growth of silicon[J]. J. Crystal Growth, 1999, (205):71 - 91.
- [3] N. NIKITIN, V. Pblezhaev. Direct simulations and stability analysis of the gravity driven convection in a Czochralski model[J]. J. Crystal Growth, 2001, (230):30 - 39.
- [4] TH. WETZEL, A. MUIZNIEKS, A. MÍHLBAUER, et al. Numerical model of turbulent CZ melt flow in the presence of AC and CUSP magnetic fields and its verification in a laboratory facility[J]. J. Crystal Growth, 2001, (230):81 - 91.
- [5] MINGWEI LI, WENRUI HU, NUOHU CHEN, et al. Numerical analysis of LEC growth of GaAs with an axial magnetic field[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2002, (45):2843 - 2851.
- [6] 陶文全. 数值传热学[M]. 西安:西安交通大学出版社, 2001.
- [7] 闵乃本. 晶体生长的物理基础[M]. 上海:上海科学技术出版社, 1982.

Flow and Heat Transfer within the Melt in Czochralski Growth of Large GaAs Single Crystal

CHEN Shu-xian¹, LI Ming-wei¹, HU Wen-rui², ZENG Dan-ling¹

(1. College of Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China;

2. Institute of Mechanics, CAS, Beijing 100083, China)

Abstract: A set of numerical analysis for the flow and heat transfer within the melt in the Czochralski growth of large GaAs single crystal was carried out by employing the low - Reynolds number - model. The results show that: the crucible rotation with proper rotation rate can suppress the strong convection driven by the crystal rotation and the buoyancy, that the isotherms near the melt/crystal interface tend to be flat with the increasing crystal rotation rate, that the proper matching of the rotation rates of the crucible and crystal can damp the temperature fluctuations near the melt/crystal interface, and that the effect of the thermocapillary force on the intense flow is negligible. However, for the weak flow, the effect of the thermocapillary force is considerable. Meanwhile the reasonable matching of the rotation rates of the crucible and crystal is recommended.

Key words: Czochralski method; large GaAs; turbulent flow

(编辑 陈移峰)