

晶体转速对提拉法晶体生长系统的数值模拟研究

李陈哲

济南大学前沿交叉科学研究院, 山东 济南 250022

DOI:10.61369/ME.2025010024

摘 要 : 提拉法是制备高质量单晶的关键技术, 晶体转速作为影响熔体流动、温度和界面形貌的重要变量。通过数值模拟方法, 本文中探究了晶体转速对提拉法晶体生长系统的影响, 研究晶体转速对于熔体流动、温度分布、界面形貌的影响关系。研究发现低转速下以自然对流导致固液界面的凸起; 中高转速下以强迫对流为主, 固液界面逐渐变凹。结果表明, 合理的控制晶体转速可以调控固液界面形貌, 为晶体生长实验提供了直接有效的理论分析。

关 键 词 : 提拉法; 晶体生长; 数值模拟; 熔体流动; 固液界面

Numerical Simulation Study of Crystal Rotational Speed on the Crystal Growth System by the Czochralski Method

Li Chenzhe

Institute of Advanced Interdisciplinary Research (IAIR), University of Jinan, Jinan, Shandong 250022

Abstract : The Czochralski Method is a key technology for preparing high-quality single crystals, and the crystal rotational speed is an important variable affecting the melt flow, temperature and interface morphology. Through numerical simulation methods, this paper explores the influence of crystal rotational speed on the crystal growth system of the pulling method, and studies the influence relationship of crystal rotational speed on melt flow, temperature distribution and interface morphology. The research finds that at low rotational speeds, natural convection causes the protrusion of the solid-liquid interface. At medium and high rotational speeds, forced convection is dominant, and the solid-liquid interface gradually becomes concave. The results show that reasonable control of the crystal rotational speed can regulate the morphology of the solid-liquid interface, providing a direct and effective theoretical analysis for the crystal growth experiment.

Keywords : Czochralski Method; crystal growth; numerical simulation; melt flow; solid-liquid interface

引言

提拉法 (Czochralski method) 是工业上生产高质量的硅、铌酸锂、钕铝石榴石 (YAG) 等晶体所采用的主要晶体生长方法。通过确定晶体生长参数使晶体稳定生长是晶体提拉法生长技术的关键^[1-4]。晶体转速是晶体生长过程中的重要参数之一, 其对熔体流动的速度、温度分布以及晶体生长过程中固液界面的稳定具有重要影响^[5-6]。晶体转速通过对熔体流动型态的强迫改变, 导致界面形貌的改变 (凸形、平面、凹形)。因此, 了解晶体转速与稳定生长之间的关系是晶体生长研究的重点。

近年来, 随着计算机的发展, 数值模拟已经成为研究和分析提拉法晶体生长过程的主要手段, 建立多物理场耦合模型求解熔体的传热、溶质流动与溶体的界面形成过程, 明确转速调控熔体流动结构、温度分布及界面动力学的原因^[7-8]。目前已有研究通过全局数值模拟发现, 随着晶体转速的增大可以减弱熔体流体流动的径向不均匀性, 使固液界面有从凸形缓解的趋势, 但上述研究均针对晶体生长过程中的单一阶段的工作条件进行分析, 缺少晶体旋转对晶体生长的系统性研究^[9-10]。

针对以上问题, 采用有限元法建立了基于提拉法晶体生长多物理场模型, 分析了不同转速下熔体的流动、温度和固液界面的形状等, 并通过对比不同转速下熔体的流动情况, 获得不同转速下稳定界面的状态, 探究了转速对界面的稳定状态的影响机理, 为分析转速对提拉法晶体生长晶体的影响提供了理论支持。

一、建模与计算方法

(一) 几何模型与网格

根据提拉炉物理结构建立晶体生长数值模型,从精度要求出发,对复杂组进行化简。用有限元软件建立轴对称二维计算域,如图1所示,共由晶体、熔体、铂金坩埚、复合保温层、环形感应线圈和两层炉体外壳六个主要部件组成。线圈由空心铜管绕成,内有水冷管,由交流电源供电。通过电磁感应在坩埚上产生焦耳热能,避免电极与熔液相接触。

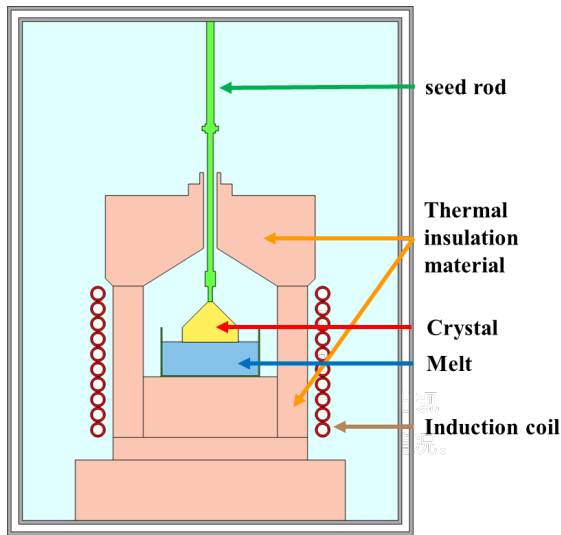


图1 几何模型图

将建立好的具有晶体生长的提拉炉几何实体模型通过网格划分离散化成有限元模型,软件内置有默认的流体动力学网格划分,对于各区域可进行较为细化的网格划分以保证计算精度,但将计算区域划分得过于细致会增加较大的计算负担,对于各几何区域中的物理场类型分别进行网格划分,网格划分整体网格如图2所示。

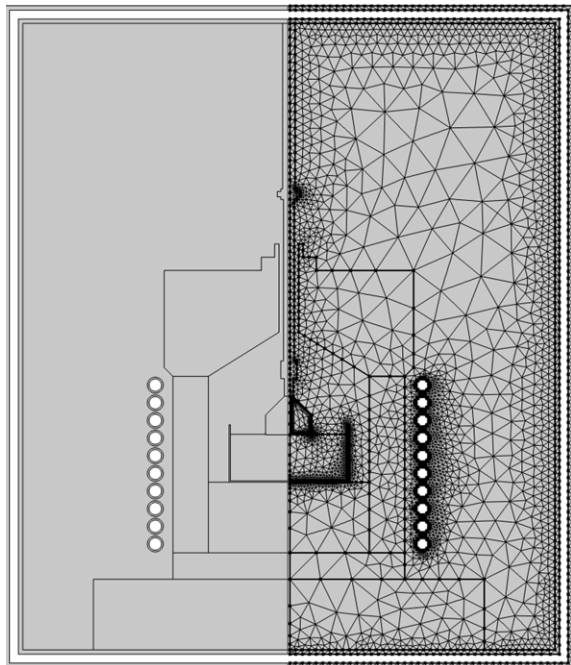


图2 网格划分图

(二) 控制方程

感应加热涉及电磁场与热传导的强耦合作用,其多物理场联合仿真需联立求解电磁场方程(麦克斯韦方程组)和传热方程,并通过材料物性参数(电导率、导热系数等)的温度依赖性实现双向耦合。

感应加热的电磁场建模基于准静态磁准静态(Magnetostatic-Quasi-Static, MQS)假设,适用于低频(通常 $f < 1\text{MHz}$)且位移电流可忽略的场景。其核心方程包括:

$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}$ (1) 式为安培环路定律, $\mathbf{H}$ 为磁场强度, $\mathbf{J}$ 为电流密度。

$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$ (2) 式为法拉第电磁感应定律, $\mathbf{E}$ 为电场强度, $\mathbf{B}$ 为磁通密度表达式为 $\mu \mathbf{H}$, 其中的一项 μ 为磁导率。

$\mathbf{J} = \sigma(\mathbf{T})(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$ (3) 式为运动导体中的欧姆定律, σ 为材料的电导率; $\mathbf{v}$ 为材料的速度(动态情况下)。

引入磁矢势 $\mathbf{A}$ ($\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$), 结合上述方程可得磁矢势方程:

$\nabla \cdot \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathbf{A} \right) + \sigma(\mathbf{T}) \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \mathbf{J}_{\text{ext}}$ (4) 其中 $\mathbf{J}_{\text{ext}}$ 为外加激励电流密度(如感应线圈电流)。

温度场由热传导、对流及焦耳热源共同控制,其传热控制方程为:

$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (k(\mathbf{T}) \nabla T) + \frac{|\mathbf{J}|^2}{\sigma} - Q_{\text{loss}}$ (5) 式中, 等式左侧表征热惯性, 即单位体积热能变化率, 是材料的密度, c 是比热容; $\nabla \cdot (k(\mathbf{T}) \nabla T)$ 代表傅里叶定律导热项, T 表示温度, 材料的导热系数用 k 表示; $|\mathbf{J}|^2 / \sigma$ 为焦耳热源; Q_{loss} 代表散热项(包括对流、辐射等)。

在熔体非等温流动中, 温度梯度会显著影响流体的密度(ρ)和动力粘度(μ_T), 熔体底部受热后密度降低, 形成上升流; 表面冷却后密度增大, 形成下沉流, 构成热对流循环。动量守恒方程(Navier-Stokes方程)可以表达为:

$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla P + \nabla \cdot \left(\mu_T (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \right) + \mathbf{F}_g + \mathbf{F}_e$ (9) 式中, $\mathbf{v}$ 表示速度矢量, ρ 表示溶液密度, t 表示时间, P 表示压力, μ_T 表示湍流运动粘度, $\mathbf{F}_g$ 表示热浮力, $\mathbf{F}_e$ 表示电磁力。等式左侧为惯性项(局部加速度与对流加速度); 等式右侧依次为压力梯度项、粘性应力项(温度影响粘度)、浮力项(密度随温度变化驱动自然对流)、其他外力。

对于热浮力和电磁力的可以表达为:

$$\mathbf{F}_g = \rho \left(1 + \frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right) \right) \times (T - T_0) \mathbf{g} \quad (10)$$

$\mathbf{F}_e = \frac{1}{2} \text{Real}(\mathbf{J} \cdot \mathbf{B}^*)$ (11) 式中, T 表示温度, T_0 表示参考温度, $\mathbf{g}$ 表示重力加速度。”Real”算子表示取实部运算, $\mathbf{J}$ 表示电流密度, $\mathbf{B}$ 表示磁通密度。

(三) 计算方法

采用有限元法求解控制方程。离散单元为非结构四面体网格, 在固液界面、坩埚壁面处采用局部加密(网格最大尺寸 < 0.5 单元)处理边界层效应, 时间积分步长采用隐式算法, 非线性迭代采用迭代算法(New-Raphson), 自适应时间步长加速了转动流动问题的收敛, 收敛标准为相对残差 $< 10^{-5}$, 单工况计算时间

(48h, 计算节点24核 CPU)。

二、结果与讨论

晶体生长过程中, 晶体转速产生的强迫对流对熔体流动结构存在巨大影响。晶体旋转时, 粘附于晶体表面的熔体伴随晶体作旋转流动, 熔体形成以轴心为旋转中心, 形成对称式的旋转对流流动场。熔体对流动场形式影响熔体内部的传热传质扩散, 进一步影响固液界面形貌。本节分别在4、8、12rpm的转速条件下, 对流体流动、固液界面形貌进行了模拟分析研究。

当晶体转速在低转速(4rpm)时, 热浮力产生的自然对流决定了熔体流动形式(图3中左)。此时晶体低速转动切力较小, 径向温度梯度决定了熔体流动方向。在热浮力自然对流的作用下, 晶体固液界面处热量通过自然对流传递。当熔体通过固体液体界面时, 与固体晶体接触, 热量由固液界面传递给固体, 固体吸收熔体热量, 熔体温度随流动逐渐降低, 固液界面随熔体温度降低而自然成型, 界面呈现凸起界面(图3中右)。低转速下, 热浮力主导的熔体流动的热量差异性, 是形成凸型界面的原因。

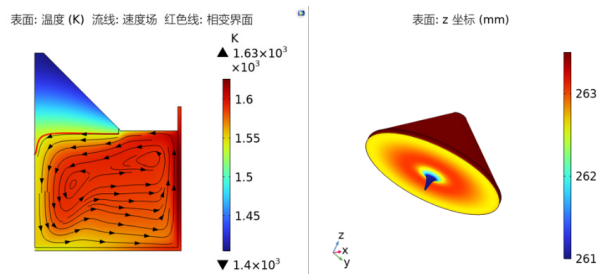


图3 4 rpm 晶体转速下熔体流动(左)与晶体固液界面形貌(右)

当转速进一步增大至8rpm时, 熔体旋转离心力增强, 当离心力与热浮力相抵消后, 熔体中强迫对流开始出现(图4左)。强迫对流的出现, 使得固液界面对流换热路径发生变化, 固液界面处更深部高温熔体被强制输运, 而熔体边缘界面处温度仍然由自然对流控制, 进而低于熔体深处温度。由此固液界面在强制对流的作用下方呈现中间略微凹陷、两侧略微凸起的M形界面(图4右)。这一阶段强制对流和自然对流并存, 两种对流对界面热量分布的调制是决定界面形貌的关键。

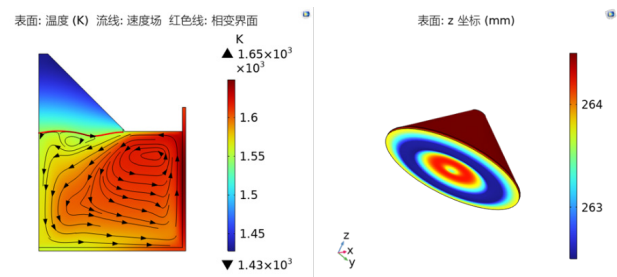


图4 8 rpm 晶体转速下熔体流动(左)与晶体固液界面形貌(右)

进一步提高转速达到12rpm, 此时强迫对流逐渐取代自然对流成为主要对流形式, 如图5左。此时固液界面的传输形式发生了本质变化: 界面中央区域热量以中心至外围迅速向四周发散, 固液界面中央温度高。在温度梯度下固液界面呈现中央向外围递减的温度分布, 导致固液界面向中央区域凹陷, 界面整体呈凹形(图5右)。在这种温度梯度下, 由强迫对流引发的热量重新分配流动路径, 是凹形界面生成的本质原因。

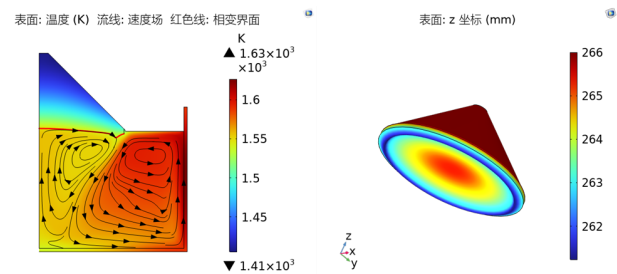


图5 12 rpm 晶体转速下熔体流动(左)与晶体固液界面形貌(右)

三、结论

本文通过数值和实验的方法, 系统研究了晶体转速对提拉法生长系统的综合影响因素及作用机理, 明确了晶体转速影响强迫对流强度, 进而控制固液界面梯度和形态。结果表明: 低转速下自然对流起主导作用且界面凸形, 中速转速下强迫对流与自然对流共同作用且界面稳定性最佳, 高转速下强迫对流起主导作用且界面凹形。模拟结果为晶体生长实验提供了直接有效的理论分析。

参考文献

- [1]Zhou X M, Huang H L. Numerical simulation of Cz crystal growth in rotating magnetic field with crystal and crucible rotations[J]. Journal of Crystal Growth, 2012, 340(1): 166-170.
- [2]Chen C, Chen H J, Yan W B, et al. Effect of crucible shape on heat transport and melt-crystal interface during the Kyropoulos sapphire crystal growth[J]. Journal of Crystal Growth, 2014, 38(8): 29-34.
- [3]Dadzis K, Bönisch P, Sylla L, et al. Validation, verification, and benchmarking of crystal growth simulations[J]. Journal of Crystal Growth, 2017, 474: 171-177.
- [4]Zhang S T, Li T, Li Z X, et al. Thermal field design of a large-sized SiC using the resistance heating PVT method via simulations[J]. Crystals, 2023, 13(12): 1368.
- [5]年夫雪. 单晶硅直拉法生长工艺的数值模拟 [D]. 上海大学, 2017.
- [6]Kotrla M. Numerical simulations in the theory of crystal growth[J]. Computer Physics Communications, 1996, 97(1-2): 82-100.
- [7]Bogdanov M, Ofengeim D K, Zhmakin A. Industrial challenges for numerical simulation of crystal growth[J]. Central European Journal of Physics, 2004, 2: 183-203.
- [8]Meng D L, Wang Y M, Xue H, et al. Stress simulation of 6-inch SiC single crystal[J]. Vacuum, 2023, 213: 31-36.
- [9]Lu S O, Chen H Y, Hang W, et al. Numerical analysis of the dislocation density in n-type 4H-SiC[J]. CrystEngComm, 2023, 25(26): 3718-3725.
- [10]张梦宇. 大尺寸直拉法单晶硅生长过程的控氧研究 [D]. 昆明理工大学, 2023.