

浮区 Marangoni 对流的浓度边界条件

胡文瑞 游仁然

(中国科学院力学研究所, 北京 100080)

摘要 对于浮区热和浓度毛细对流问题, 溶化界面处可以有给定浓度或给定浓度通量两类边界条件, 它们给出的液桥内浓度分布有很大差异. 本文讨论了这两类边界条件所对应的物理过程, 以及其物理含意.

关键词 微重力流体力学, 传热与传质, 材料流体力学

一、前 言

毛细对流是微重力环境中浮区晶体生长的重要过程, 一般都讨论热毛细对流过程^[1], 但空间晶体生长时浓度毛细对流有时也很重要. 一般而言, 表面张力 σ 与温度 T 和浓度 c 有关

$$\sigma = \sigma(T, c) \quad (1.1)$$

表面温度或浓度的不均匀都能导致表面张力的不均匀, 从而驱动对流. 而且, 这两种因素引起的过程 (对流和扩散) 将互相耦合在一起.

在浮区掺杂半导体生长过程中, 浓度对流是个重要问题. 目前, 这种问题的机理研究主要是进行理论分析和数值模拟^[2-5], 显示了热和溶质毛细对流相互耦合的过程对晶体生长的重要作用. 在数值模拟过程中, 正确选择固液界面处的边界条件, 是一个值得研究的问题.

对于如图 1 所示的浮区液桥, 有两个固液界面: 一个是熔化界面 Γ_1 , 一个是凝固界面 Γ_2 . 如果不考虑固液界面的软边界区域, 对于熔化界面的计算边界条件可有两种典型提法^[6]. 由于籽晶的杂质分布是给定的, 如果认为熔化界面处于局部的热力学平衡, 则有第一类边值

$$c|_{\Gamma_1} = c_0(z), \quad (1.2)$$

1991 年 4 月 26 日收到, 1992 年 11 月 24 日收到修改稿

其中 $c_0(r)$ 为多晶棒在边界 Γ_1 处的溶质浓度. 当籽晶杂质浓度均匀时, c_0 为常数, 另一方面, 由质量守恒关系可导出第二类浓度边界条件.

$$D \frac{\partial c}{\partial n} \Big|_{\Gamma_i} = FV_{pi}(c|_{\Gamma_i} - c_0), \quad (i = 1, 2) \quad (1.3)$$

其中 D 为溶质的扩散速度, v_p 为提拉速度, $\partial/\partial n$ 为外法向导数, 对 Γ_1 取负值, 对 Γ_2 取正值. 这样, 在溶化边界 Γ_1 处就有两种边界条件的提法. 一般文章皆采用边值 (1.3).

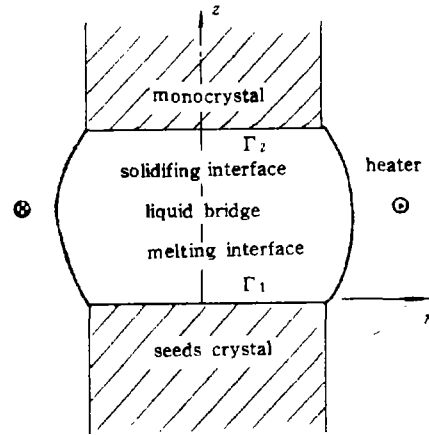


图1 浮区液桥示意图
Fig. 1 Schematic diagram of liquid bridge in Floating Zone.

二、两类边值问题

对于定常, 轴对称和无重力的情况, 无量纲的守恒方程组可用流函数 ψ , 涡度 ω , 温度 Θ 和浓度 C 表示如下^[1,5].

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \psi}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial \zeta^2} - \frac{\psi}{\xi^2} = -\omega \quad (2.1)$$

$$\frac{1}{Pr} \left(\frac{1}{\xi} \frac{\partial \xi \psi}{\partial \xi} \frac{\partial \omega}{\partial \zeta} - \frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \frac{\partial \omega}{\partial \xi} + \frac{\omega}{\xi} \frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \right) = \frac{\partial^2 \omega}{\partial \xi^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial \zeta^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \omega}{\partial \xi} - \frac{\omega}{\xi^2} \quad (2.2)$$

$$-\frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \frac{\partial \Theta}{\partial \xi} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \xi \psi}{\partial \xi} \frac{\partial \Theta}{\partial \zeta} = \frac{\partial^2 \Theta}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \Theta}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \Theta}{\partial \zeta^2} \quad (2.3)$$

$$Le \left(-\frac{\partial \psi}{\partial \zeta} \frac{\partial C}{\partial \xi} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \xi \psi}{\partial \xi} \frac{\partial C}{\partial \zeta} \right) = \frac{\partial^2 C}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial C}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 C}{\partial \zeta^2} \quad (2.4)$$

其中的无量纲量和参数定义为

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{r}{r_0}, & \zeta &= \frac{z}{r_0}, & V &= \frac{v}{v_0}, & \Theta &= \frac{T - T_m}{T_e - T_m} \\ Pr &= \frac{\nu}{\kappa}, & Pe &= \frac{2r_0 v_p}{D}, & Le &= \frac{\kappa}{D}, & C &= \frac{c}{c_0} \end{aligned} \quad (2.5)$$

我们假设上、下晶棒有相同的直径 $2r_0$ 和相同的提拉速度 v_p , ν 和 κ 分别为熔体的运动学粘性系数和热传导系数, T_m 和 T_e 分别为晶体的熔化温度和液桥表面的最高温度, c_0 为常数. 涡量由 (2.1) 式定义, 而流函数的定义为

$$\mathbf{V} = \left(\frac{\partial \psi}{\partial \zeta}, 0, -\frac{1}{\xi} \frac{\partial \xi \psi}{\partial \xi} \right) \quad (2.6)$$

讨论一个具体的液桥,其高度为 $2r_0$,两个固液界面分别为 $\zeta = 0$ 和 $\zeta = 1$. 边条件可写为

$$\zeta = 1 \text{ 时: } \psi = \frac{Pe \xi}{Le \cdot 2}, \omega = -\frac{\partial^2 \psi}{\partial \zeta^2}, \Theta = 0, \frac{\partial C}{\partial \zeta} = Pe(1 - k_0)C \quad (2.7)$$

$$\xi = 0 \text{ 时: } \psi = 0, \omega = 0, \frac{\partial \Theta}{\partial \xi} = 0; \frac{\partial C}{\partial \xi} = 0 \quad (2.8)$$

$$\xi = \frac{1}{2} \text{ 时: } \psi = \frac{Pe}{2Le}, \omega = -Ma_T \frac{\partial \Theta}{\partial \zeta} - Ma_s \frac{\partial C}{\partial \zeta}$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial \xi} = -B_{it} \left[\left(\Theta + \frac{T_m}{\Delta T} \right)^4 - \left(1 - \frac{T_m}{\Delta T} \right)^4 \right], \frac{\partial C}{\partial \xi} = 0 \quad (2.9)$$

$$\zeta = 0 \text{ 时: } \psi = \left(\frac{Pe}{Le} \right) \frac{\xi}{2}, \omega = -\frac{\partial^2 \psi}{\partial \zeta^2}, \Theta = 0 \quad (2.10)$$

$$C = 1, \text{ 或者} \quad (2.10a)$$

$$\frac{\partial C}{\partial \zeta} = -Pe(1 - C) \quad (2.10b)$$

其中 k_0 为分凝系数, $\Delta T = T_e - T_m$, 辐射系数 $B_{it} = 2\epsilon c_s r_0 (\Delta T)^3 / k$, ϵ 和 k 分别为 Stefan-Boltzmann 常数和波尔兹曼常数, c_s 为热辐射率. 我们还假设液桥自由面为 $\xi = 1/2$, 并定义热和溶质 Marangoni 数为

$$Ma_T = -\frac{2\sigma'_T r_0 \Delta r}{\rho \kappa \nu}, \quad Ma_s = -\frac{2\sigma'_c r_0 c_0}{\rho \nu \kappa} \quad (2.11)$$

其中 ρ 为熔体密度, $\sigma'_T = \partial \sigma / \partial T$, $\sigma'_c = \partial \sigma / \partial c$. 这样, 问题就化为在边值条件 (2.7) — (2.10) 下求解方程组 (2.1)–(2.4), 其中 (2.10a) 和 (2.10b) 分别对应于两类边值.

三、数值模拟

采用有限元的数值模拟方法, 曾经求解过第二类边值问题^[5]. 本文用同样的方法分析两类边值问题. 在具体计算时选取如下参数:

$$Pr = 0.023, Le = 100, k_0 = 0.1, B_{it} = 10^{-6} \quad (3.1)$$

$$Ma_T = 500, Ma_s = -500, 0, 500 \quad (3.2)$$

可以看出, 上述参数值对于半导体材料具有典型性. 求解两类边值问题可给出确定参数时的速度场、温度场和浓度场. 本文将着重讨论浓度场的分布.

图 2 给出了不同溶质 Marangoni 数 Ma_s 时两类不同浓度边条件对应的浮区内浓度分布. 上面一行的结果对应于第一类边条件 (2.10a), 下面一行的结果对应于第二类边条件

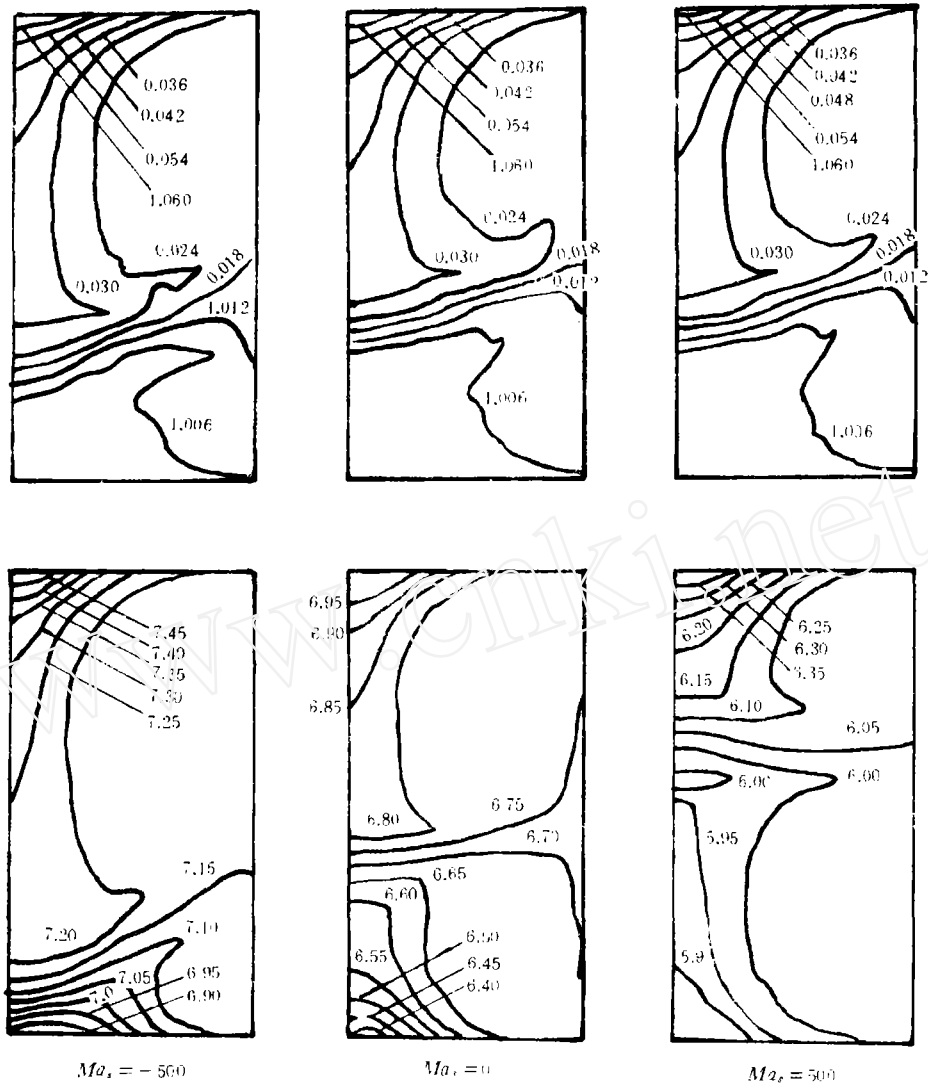


图 2 两类不同浓度边界条件下，浮区 (r, z) 平面的浓度分布。上行和下行分别对应于第一类边界条件 (2.10a) 和第二类边界条件 (2.10b)，两者有显著差异。左、中、右列分别对应于 $Ma_s = -500, 0, 500$ 。

Fig. 2 Concentration distributions in (r, z) plan of floating zone for two kind of concentration boundary conditions. The upper and lower distributions associate respectively for the first kind boundary condition (2.10a) and second kind boundary condition (2.10b). The left, middle and right distributions are, respectively, for $Ma_s = -500, 0$ and 500 .

(2.10b). 结果表明，第一类边界条件的解显著地受熔化界面浓度条件 $C=1$ 的影响，使整个液桥中的浓度值都较低；另一方面，第二类边界条件的解显著地受凝固界面分凝过程的影响。整个液桥中的浓度值比第一类问题的高得多，而且在熔化界面处有很强的浓度间断层。计算结果还表明了浓度 Marangoni 数 Ma_s 对液桥内浓度分布的影响， Ma_s 对第一类问题

的浓度分布相对较小,而对第二类问题的影响较大.

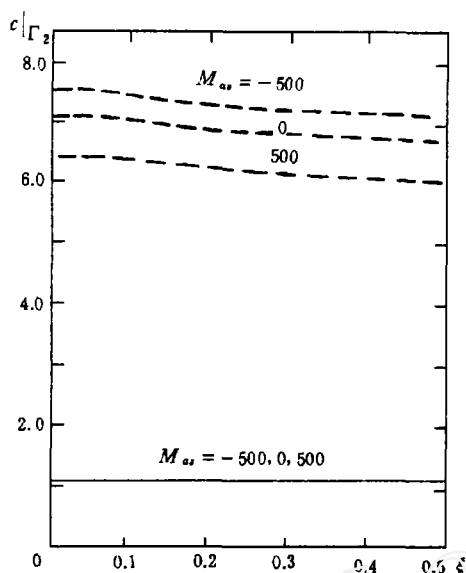


图3 两类浓度边界条件下,凝固界面处的径向浓度分布.实线对应于第一类问题,三条线($Ma_s = -500, 0, 500$)重合;虚线对应于第二类问题.

Fig. 3 Radial concentration distributions at solidification interface for two kind boundary conditions. The real lines, which are overlapped together for $Ma_s = -500, 0$ and 500, associate with first kind boundary condition, and the broken lines associate with second kind boundary condition.

质 Marangoni 数 Ma_s 的影响.对第二类问题,凝固界面处的浓度分布相对地不均匀,而且浓度大小随 Ma_s 的变化有明显的变化.

众所周知,浮区内溶质浓度的分布,尤其是凝固界面处的径向分布,将直接影响生长晶体的材料均匀性.这表明,溶化界面浓度边条件的选择将直接影响计算结果的有效性.

四、讨 论

比较熔化界面的两类边界条件 (2.10a) 和 (2.10b), 可以发现, 第一类浓度边界条件 (2.10a) 要求溶化界面处 $C=1$, 而未要求溶质的质量守恒, 所以液桥中的溶质浓度偏低, 未能反应出分凝过程的影响. 另一方面, 第二类浓度边界条件 (2.10b) 保证了溶化界面处的质量守恒条件, 反应了分凝过程的影响, 但导致熔化界面处的浓度间断. 这两类边界条件分别从不同角度对问题进行了近似处理, 导致不尽合理的模型. 进一步的研究需要改进理论模型.

首先, 根据边界层理论, 在熔化界面附近的熔体中存在速度边界层和浓度边界层, 这

浓度分布的不均匀性是晶体生长过程中关心的问题. 图3给出了不同 Ma_s 数对凝固界面处的浓度径向分布. 实线和虚线分别对应于第一类和第二类边界问题的解. 在本文参数范围内, 两类问题的浓度在凝固界面处都比较均匀, 第一类问题的浓度分布更均匀些. 综合图2和图3的结果可以看出, 对于第一类问题, 凝固界面附近液桥中的浓度场有较大的梯度, 特别是在半径较大的区域中.

根据上述分析, 我们可以将浓度边界条件的影响归纳为下列三个主要方面:

1. 浮区内溶质浓度的大小和分布在两类不同浓度边界条件下有明显差异, 第二类问题的计算值明显地高于第一类的值.

2. 根据第一类浓度边界条件进行计算, Ma_s 数的变化对浮区内浓度的大小和分布影响不大; 而在第二类问题中有较大的影响.

3. 第一类问题在凝固界面处的溶质浓度分布相当均匀, 而且几乎不受溶

两种边界层的厚度比为

$$\frac{\delta_v}{\delta_c} = \sqrt{Sc}, \quad (4.1)$$

其中 δ_v 和 δ_c 分别为速度边界层和浓度边界层的典型厚度, Schmidt 数 (Sc) 的定义为

$$Sc = \frac{\nu}{D} = Pr \cdot Le. \quad (4.2)$$

在通常情况下, 材料溶体的 Sc 是比较大的^[2], 因此 $\delta_v \gg \delta_c$, 对本文的参数情况有 $\delta_v > 1.5\delta_c$. 这样, 用数值模拟方法处理浓度边界层的结构就比较困难. 边界条件 (1.3) 在某种意义上是把熔化界面附近的浓度边界层厚度 δ_c 近似为零, 因而界面有一浓度间断. 另一方面, (2.10a) 边条件要求计算的网格尺度小于浓度边条件的典型厚度, 这在一般情况下也难以达到.

其次, 对于一般的晶体生长过程, 熔化界面 Γ_1 的形状是待定的. 它必须结合浓度和热力学条件一起来求解. 计算过程中给定界面 Γ_1 本身就是一种近似模型. 在这种近似下, 物理上给出了两种可能的边界条件, 只要其中之一即可求解问题而得到浓度场, 在实际过程中, 第二类问题要求的浓度间断也可能导致界面的形态失稳.

此外还要指出的是, 在熔化和凝固界面附近, 通常存在着称之为“糊状层” (mushy zone) 的软边界区域, 这个区域内的流场将导致温度和浓度的变化^[7,8]. 进一步的连续介质模型需要引进某种软边界区域进行修改, 以包含更合理的物理过程.

对于特定问题的数值模拟, 需要结合具体的材料生长条件和具体材料的热物理参数进行计算. 但是, 高温熔体的输运系数和热物理参数的资料还很不完整. 所以, 本文主要限于机理性研究, 具体材料过程的分析还有待于进一步工作的开展.

参 考 文 献

- [1] 胡文瑞, 唐泽眉. 中国科学, 1990 (2),169
- [2] Chang C E, Wilcox W R. *J. Crystal Growth*, 1975,28,8
- [3] Chang C E, Wilcox W R. *Int. J. Heat & Mass Transfer*, 1976,19,355
- [4] Murthy J Y and Ree P. *Int. J. Heat & Mass Transfer*, 1988,31,1923
- [5] 游仁然, 胡文瑞, 半导体学报, 1992,13,209
- [6] You R R, Hu W R. AIAA, 1991, IAF-91-395.
- [7] Glicksman M E, Coriell S R, McFadden G B, *Ann. Rev. Fluid Mechanics*, 1986,18,307,
- [8] Worster M G. *Appl. Mech Rev*, 1990,43,s59

SOLUTAL BOUNDARY CONDITIONS OF MARANGONI CONVECTION IN FLOATING ZONE

Hu Wenrui, You Renran

(*Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080*)

Abstract There may exist two kinds of solutal boundary conditions, that is, given value of concentration or given flux of concentration at the melting interface for thermal and solutal capillary convection in the floating zone. The solutions of the two kinds of problems are obviously different. In the present paper, the physical processes and their influence associated with these problems of two kinds of boundary conditions have been analyzed.

Key words microgravity fluid mechanics, heat and mass transfer, materials fluid mechanics