

径向三重流 MOCVD 反应器壁面温度的数值模拟*

聂宇宏[†] 刘 勇 姚寿广

(江苏科技大学机械与动力工程学院, 镇江 212003)

摘要: 将研究辐射换热问题的区域法引入壁面间的辐射换热计算,建立了 MOCVD 壁面温度的计算模型,应用该模型计算了径向三重流 MOCVD 反应器的壁面温度分布.结果表明,在反应器的不同部位,壁面温度分布的规律有所不同.当径向三重流 MOCVD 反应器处于自然对流的环境时,壁面的最大温差可达 123K,如此大的温差将会对反应器内的气体流动和沉积过程产生影响;为了使反应器的温度保持在较为恒定的低温,外壁面的强制对流换热系数应大于 $84\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$.

关键词: MOCVD; 数值模拟; 区域法; 壁面温度

PACC: 8115H; 4725Q

中图分类号: TN304.054

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2007)01-0127-04

1 引言

金属有机化学气相沉积(MOCVD)技术在制造高纯度薄膜方面得到广泛应用,如半导体器件、太阳能电池等.因 MOCVD 反应器内反应所生成的薄膜的特性(均匀性、厚度、沉积材料的组成)受 MOCVD 反应器内反应气体复杂传输现象的强烈影响, MOCVD 反应器内状态参数的空间分布,如温度场、浓度场和流场直接影响薄膜生长速度和形貌,特别是其内的温度分布对确定气体流动和化学反应至关重要.自上世纪八十年代以来,国外科研人员利用计算机数值模拟和光学测量等方法,对 MOCVD 反应器内部流场、温度场、浓度场的分布与外部参数的关系进行了大量的研究,获得了反应器内部输运过程的初步图像^[1~4].但迄今为止,在数值计算中常采用等温与绝热模型,也就是都不考虑辐射换热的影响.在 MOCVD 反应器中,衬底的温度很高(1300K),其辐射很强,被辐射加热的壁面同样会影响气体流动和化学反应.所以,壁面温度的模拟是获得准确温度分布的重要因素之一.

研究表明,壁面热辐射的边界条件对反应器内温度场和速度场产生很大影响^[5].国内外已有研究者注意到了辐射对 MOCVD 反应器内流动及温度分布的影响^[6~9],但研究多是对于较为简单的水平式 MOCVD 反应器进行的.本文将研究辐射换热问题的区域法(zone method)引入壁面间的辐射换热计算,建立了 MOCVD 反应器内壁面温度的计算模

型,并计算了径向三重流 MOCVD 反应器的壁面温度分布,为进一步准确地模拟 MOCVD 反应器内的温度、流动、浓度等的分布提供依据.

2 壁面温度计算模型

2.1 壁面热平衡方程

MOCVD 反应器中的气体是较稀薄的,此时气体对热辐射的吸收以及自身发射的辐射可以忽略.在不考虑介质参与辐射的 MOCVD 反应器内,气体稀薄,流速较慢,与气体传导和对流换热相比,壁面获得的热流量主要是表面间辐射换热^[5];而反应器的外壁面通过对流和辐射向外界放热,这样,稳态情况下壁面的热平衡方程为

$$h(T - T_a) + q_i^{\text{out}} - q_o^{\text{out}} + q_i^{\text{in}} - q_o^{\text{in}} = 0 \quad (1)$$

式中 h 为外表面与环境间的对流换热系数; T 为壁面温度; T_a 为环境温度;等式左侧的后四项为壁面所得净辐射热流密度,可以用 q_{net} 表示;上标 in 和 out 分别代表壁面的内和外;下标 i 和 o 分别代表投入和离开壁面.为了与求解反应器内部输运过程的数值模拟相耦合,将反应器的壁面分为 K 个微元.反应器的壁面一般较薄,可以不考虑内、外壁面因温度不同而引起的辐射特性变化,则第 k 个微元壁面的净辐射热流密度可以简写为

$$q_{\text{net},k} = \varepsilon_k (q_{i,k}^{\text{in}} - 2\sigma T_k^4 + \sigma T_a^4) \quad (2)$$

其中 σ 为 Stefan-Boltzmann 常数; $q_{i,k}^{\text{in}} = \sum_{j=1}^K q_{o,j}^{\text{in}} F_{j \rightarrow k}$, 为第 k 微元表面在 MOCVD 内部所

* 江苏省教育厅高校自然科学指导性计划基金资助项目(批准号:03KJD140022)

[†] 通信作者. Email: nicyh2003@yahoo.com.cn

2006-07-03 收到,2006-07-25 定稿

得到的净辐射热流密度, $q_{o,j}^{in}$ 为反应器内部离开任意表面的辐射热流密度, $F_{j \rightarrow k}$ 为表面 j 对表面 k ($k = 1, \dots, K, j = 1, \dots, K$) 的角系数, 它是考虑了壁面对辐射多次反射和吸收的一个综合因子, 涉及复杂的计算.

将(2)式代入(1)式, 可以得到第 k 个微元壁面热平稳的计算式为

$$h(T_k - T_a) + \epsilon_k \left(\sum_{j=1}^K q_{o,j}^{in} F_{j \rightarrow k} - 2\sigma T_k^4 + \sigma T_a^4 \right) = 0 \quad (3)$$

因壁面要划分为许多微元, 用传统的热网络法无法计算 $F_{j \rightarrow k}$, 用区域法中辐射全交换面积的概念, 可以准确而方便地将 $q_{i,k}^{in}$ 表达出来.

2.2 区域法对壁面热平衡方程的描述

区域法是将充满非等温气体的封闭空间, 划分为若干个基本上可认为是等温的气体段和边界表面段, 并分别列出每一段的能量平衡方程, 所有的段能量平衡方程联立组成段能量平衡方程组. 段能量平衡方程组的矩阵形式为

$$A T^4 + B T + C = 0 \quad (4)$$

式中 T 为待求的温度向量; 系数矩阵 A 由各段间辐射全交换面确定; 系数矩阵 B 由气体流动的载热量以及气体段与相邻表面段间的对流换热获得; 列向量 C 为表面段的热流量或气体段的燃烧析热量等.

在 MOCVD 反应器内, 因介质不参与辐射换热, 所以系数矩阵 A 就由表面段(也就是壁面)间的辐射全交换面积确定, 相当于(2)式右侧所有与 T_k 有关的项, 这样, 可以得到系数矩阵 A 的表达式为

$$\sigma \begin{bmatrix} s_1 s_1 - 2 & s_2 s_1 & \dots & s_j s_1 & \dots & s_K s_1 \\ s_1 s_2 & s_2 s_2 - 2 & \dots & s_j s_2 & \dots & s_K s_2 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ s_1 s_k & \dots & s_k s_k - 2 & \dots & s_j s_k & \dots & s_K s_k \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ s_1 s_{K-1} & s_2 s_{K-1} & \dots & s_{K-1} s_{K-1} - 2 & \dots & s_K s_{K-1} \\ s_K s_1 & s_K s_2 & \dots & s_s s_K - 2 & \dots & s_K s_{K-1} \end{bmatrix} \quad (5)$$

式中 $s_j s_k$ 为表面 j 与表面 k 之间的辐射全交换面积, 它是考虑了表面间发射和吸收辐射换热的综合因子, 对辐射换热进行了全面的描述. 辐射全交换面积具有面积的单位, 本文所计算的是表面间辐射换热的热流密度, 所以用的是单位面积的辐射全交换面积, 有关辐射全交换面积的计算可参阅文献[10]. 系数矩阵 B 由外壁面与环境的对流换热确定, 也就是(1)式左侧的第一项, 即系数矩阵 B 是由表面换热系数 h 确定的对角矩阵; 列向量 C 为(1)式中所

剩的常数项, 在此 B 和 C 的表达式不一一列出. 所建立的非线性能量平衡方程组可采用主变量修正法^[11]求解.

3 径向三重流 MOCVD 反应器内壁面温度分布

3.1 径向三重流 MOCVD 结构及计算区域

应用上述的数值方法, 计算文献[3]所示的径向三重流 MOCVD 反应器的壁面温度, 其结构如图 1 所示, 尺寸为文献[3]中所列的标准值. 该反应器是中心对称的, 可作为二维问题处理, 为叙述方便, 将反应器的壁面分为上壁面和侧壁面, 二维计算区域的示意图如图 2.

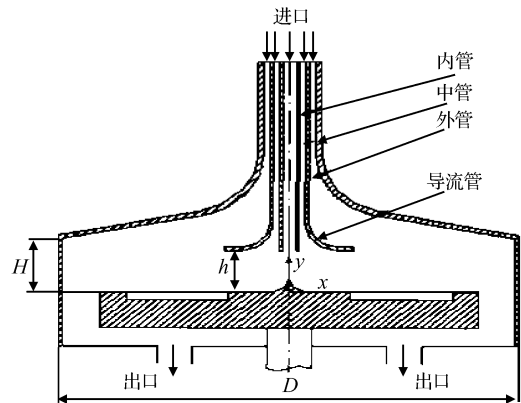


图 1 径向三重流 MOCVD 反应器示意图
Fig.1 Schematic of a radial flow MOCVD reactor with three separate inlets

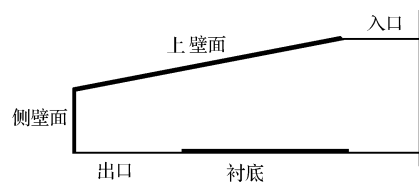


图 2 二维计算区域示意图
Fig.2 Schematic of simulation field

被加热的高温石墨衬底的温度取为 1300K, 黑度为 0.78^[6], 上壁面和侧壁面为石英壁, 处于自然对流的环境中, 黑度为 0.8^[6]. 按自然对流换热实验关联式, 计算得到表面对流换热系数 $h = 4.13W / (m^2 \cdot K)$, 环境温度设为 $T_a = 300K$.

3.2 计算结果及分析

应用 3.1 节的几何尺寸和边界条件, 求解方程

(3),可以得到 MOCVD 反应器壁面的温度分布,结果示于图 3 和图 4,它们分别为侧壁面和上壁面的温度分布.从图中可以看到,侧壁面的温度变化与上壁面不同.侧壁面的温度沿高度方向由 300K 近似线性地变化到 329K;而上壁面的温度变化较复杂,在接近侧壁面的部分,温度变化较快,在衬底的上方,温度变化较平缓,而在接近出口处,温度几乎不变化.总的来看,侧壁的温度变化较大,从 315K 变化到 438K,123K 的温度变化,足以导致对 MOCVD 内气体流动和沉积过程产生较大影响.

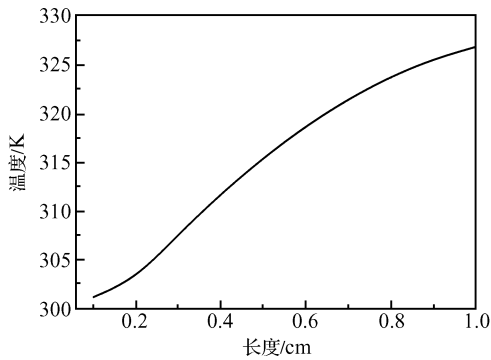


图3 侧壁面温度分布

Fig.3 Temperature distribution of side wall

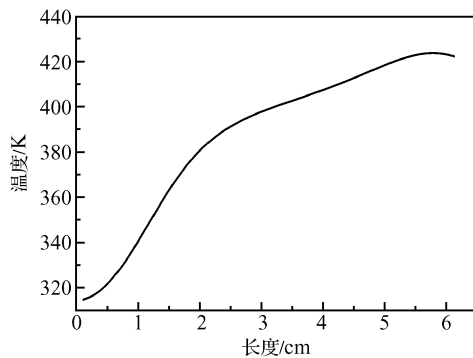


图4 上壁面温度分布

Fig.4 Temperature distribution of top wall

为了使反应器壁面保持较低的温度,需要采用强制冷却,为此,模拟了表面传热系数从自然对流到 $h = 84\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 时,壁面的温度分布,结果示于图 5 和 6.

从中可以看到,当 h 由自然对流增大到 $h = 24\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 时,壁面温度下降很快,但随着 h 进一步增大,壁面温度下降的趋势减缓.对于侧壁面,当 $h = 64\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 时,就可使壁面的温度保持在 305K 以下;而对于上壁面,当 $h = 84\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 时,壁面的最高温度仍可达 322K,但这一温度变化对反应器内的气体流动和沉积过程的影响已经较小.

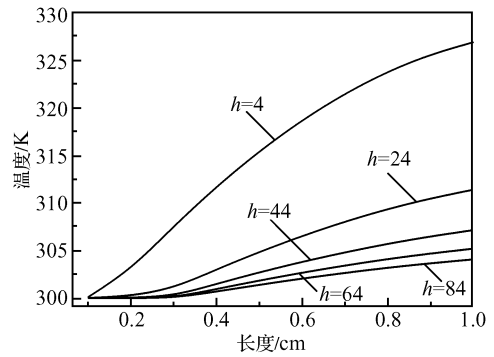


图5 不同表面换热系数下侧壁面温度分布

Fig.5 Temperature distributions of side wall under various convective heat transfer coefficients

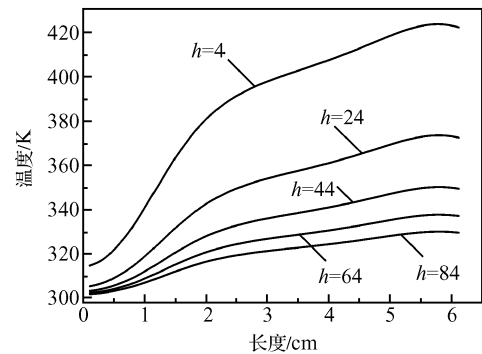


图6 不同表面换热系数下上壁面温度分布

Fig.6 Temperature distributions of top wall under various convective heat transfer coefficients

4 结论

(1)用区域法建立了 MOCVD 反应器壁面温度的计算模型,并应用该模型对径向三重流 MOCVD 内的壁面温度进行了模拟.

(2)当 MOCVD 处于自然对流的环境时,侧壁面的最高温度为 329K,而上壁面的最高温度可达 428K,壁面温度的变化范围达 123K,这会对 MOCVD 内的气体流动和沉积过程产生较大影响.

(3)为了使壁面温度保持恒定的温度,径向三重流 MOCVD 外壁面的强制对流换热系数应大于 $84\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$.

参考文献

- [1] Chiu W K S, Jaluria Y, Glumac N G. Numerical simulation of chemical vapor deposition processes under variable and constant property approximations. Numerical Heat Transfer, Part A, 2000, 37: 113
- [2] Xu Qian, Zuo Ran, Zhang Hong. Design and simulation of reverse flow shower head MOCVD reactors. Journal of Synthetic Crystals, 2005, 34(6): 1059 (in Chinese) [徐谦, 左然, 张

- 红. 反向垂直喷淋式 MOCVD 反应器设计与数值模拟. 人工晶体学报, 2005, 34(6): 1059]
- [3] Zuo Ran, Zhang Hong, Liu Xianglin. Numerical study of transport phenomena in a radial flow MOCVD reactor with three-separate vertical inlets. Chinese Journal of Semiconductors, 2005, 26(5): 977 (in Chinese) [左然, 张红, 刘祥林. 径向三重流 MOCVD 反应器输运过程的数值模拟. 半导体学报, 2005, 26(5): 977]
- [4] Park K W, Pak H Y. Characteristics of three dimensional flow, heat and mass transfer in a chemical vapor deposition reactor. Numerical Heat Transfer, Part A, 2000, 37: 407
- [5] Chinoy P B, Kaminshi D A, Ghandhi S K. Effects of thermal radiation on momentum heat and mass transfer in a horizontal chemical vapor deposition reactor. Numerical Heat Transfer, Part A, 1991, 19: 85
- [6] Ladinski L, Makarov Y N, Schafer M, et al. Development of advanced mathematical models for numerical calculations of radiative heat transfer in metal organic chemical vapor deposition reactors. J Cryst Growth, 1995, 146: 209
- [7] Durst F, Kadinski L, Schafer M. A multi-grid solver for fluid flow and mass transfer coupled with grey-body surface radiation for the numerical simulation of chemical vapor deposition processes. J Cryst Growth, 1995, 146: 202
- [8] Hiroko A, Ohkawa K. Effect of thermal radiation and absorption in GaN-MOVEP growth modeling on temperature distribution and chemical state. J Cryst Growth, 2005, 276: 57
- [9] Bergunde T, Dauelsberg M, Kadinski L, et al. Process optimization of MOVEP growth by numerical modeling of transport phenomena including thermal radiation. J Cryst Growth, 1997, 180: 660
- [10] Nie Yuhong, Chen Haigeng. The calculation of radiant total exchange areas in non-gray gas. Chinese Journal of Computational Physics, 1997, 14(2): 202 (in Chinese) [聂宇宏, 陈海耿. 非灰气体中辐射全交换面积的计算. 计算物理, 1997, 14(2): 202]
- [11] Chen Haigeng, Ning Baolin. Main variable-correction for energy equations in zone-method. Journal of Northeast Institute of Technology, 1989, 47(2): 1 (in Chinese) [陈海耿, 宁宝林. 段法能量方程的主变量修正法. 东北工学院学报, 1989, 47(2): 1]

Wall Temperature Simulation of a Radial Flow MOCVD Reactor with Three-Separate Vertical Inlets *

Nie Yuhong[†], Liu Yong, and Yao Shouguang

(School of Mechanical & Power Engineering, Jiangsu University of Science and Technology, Zhenjiang 212003, China)

Abstract: The “zone method” is introduced to simulate wall temperature distribution in an MOCVD reactor. This method is used to calculate the wall temperature distribution of a radial flow MOCVD reactor with three separate vertical inlets. Results show that the distribution rule for the wall temperature differs at different walls. When the radial flow MOCVD reactor with three separate vertical inlets is put in a natural convective heat transfer environment, the maximum difference in wall temperature is 123K. Such a temperature difference will have large effects on gas flow behavior and the deposition process. In order to keep the walls at low temperatures, the outer convective heat transfer coefficient must be larger than $84\text{W}/\text{m}^2 \cdot \text{K}$.

Key words: MOCVD; numerical simulation; zone method; wall temperature

PACC: 8115H; 4725Q

Article ID: 0253-4177(2007)01-0127-04

* Project supported by the Natural Science Guidance Plan of the Higher Schools of Jiangsu Provincial Education Department (No. 03KJD140022)

[†] Corresponding author. Email: nieyh2003@yahoo.com.cn

Received 3 July 2006, revised manuscript received 25 July 2006