

HT&CG'97

**Процессы теплопереноса
и рост монокристаллов
и тонкопленочных структур**

ТРУДЫ ВТОРОГО РОССИЙСКОГО СИМПОЗИУМА

**Министерство Российской Федерации
по атомной энергии**

**Государственный научный центр
Российской Федерации
Физико-энергетический институт
им. академика А.И.Лейпунского**

Государственный научный центр Российской Федерации
Физико-энергетический институт им. академика А.И.Лейпунского

HT&CG'97

**ПРОЦЕССЫ ТЕПЛОМАССОПЕРЕНОСА
И РОСТ МОНОКРИСТАЛЛОВ
И ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ СТРУКТУР**

ТРУДЫ ВТОРОГО РОССИЙСКОГО СИМПОЗИУМА

**Под редакцией
к.ф.-м.н. В.П.ГИНКИНА**

Организаторы симпозиума

Российская академия наук

Министерство Российской Федерации по атомной энергии

Объединенный научный совет по комплексной проблеме
"Машиностроение"

Российский Фонд фундаментальных исследований

Российское космическое агентство

Институт проблем механики РАН

Обнинский институт атомной энергетики

Научный центр лазерных материалов и технологий ИОФАН

Научно-исследовательский центр космической системотехники

Обнинск, Россия, 22-24 сентября 1997 г.

УДК 536.24+539.216.2

Процессы тепломассопереноса и рост монокристаллов и тонкопленочных структур/Труды второго Российского симпозиума. - В настоящий сборник трудов включены доклады, представленные на втором Российском симпозиуме по тепломассопереносу и росту монокристаллов и тонкопленочных структур, состоявшемся в сентябре 1997 года в Обнинске (Калужская область). - Обнинск, 1998. - 408 с.

© - Оргкомитет симпозиума, 1998

Все права защищены. Никакая часть книги не может быть воспроизведена без письменного разрешения Оргкомитета симпозиума.

В.П.Гинкин - главный редактор
Подготовка докладов к печати - Ольга Науменко.
Тех.ред. Н.А.Борзова

Уч.-изд.л. 35,7 Усл.п.л. 47 Заказ №274
Отпечатано на ротапинтере ФЭИ
методом прямого репродуцирования с докладов авторов.
249020, Обнинск Калужской обл., пл.Бондаренко 1.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ И МАТЕМАТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПРИМЕСИ ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ В УСЛОВИЯХ ОСЕВОГО ТЕПЛООВОГО ПОТОКА (ОТФ1а-метод)

Н.Г.Бураго, В.И.Полежаев, А.И.Федюшкин
ИПМ РАН, Москва

В.Д.Гольшев, М.А.Гоник, В.Б.Цветовский
ВНИИСИМС, Александров

ВВЕДЕНИЕ

Зависимость и сильная чувствительность распределения примеси в расплавах полупроводниковых материалов от многочисленных условий роста, в том числе геометрических, тепловых и динамических воздействий, таких, как конвекция (гравитационная и негравитационная), вращение, вибрация и др., известны и опубликованы во многих работах [1-10]. Цель такого рода исследований заключается в том, чтобы научиться управлять факторами, влияющими на распределение примеси. Классификация методов управления процессами гидромеханики теплообмена при выращивании кристаллов и некоторые результаты параметрических расчетов для моделей направленной кристаллизации, жидкостной эпитаксии и метода Чохральского приведены в [1].

Настоящая работа посвящена экспериментальному и численному исследованию влияния условий роста монокристаллов на продольное и поперечное распределение примеси при кристаллизации германия (Ge), легированного сурьмой (Sb) и галлием (Ga) методом ОТФ (Осевой Тепловой поток вблизи Фронта кристаллизации), представляющим собой вертикальный метод кристаллизации с погруженным нагревателем и с точно контролируруемыми тепловыми условиями вблизи фронта кристаллизации [5,6]. Интерес к методу, являющемуся, следуя классификации [1], совокупностью теплового и геометрического способов управления ростом кристаллов, обусловлен двумя причинами: с одной стороны, он позволяет строго определять тепловые условия выращивания, что делает его перспективным для исследования процессов кинетики и механизма роста, с другой стороны, использование метода позволяет выращивать монокристаллы в условиях подавленной естественной конвекции, получая на земле условия, близкие к условиям микрогравитации.

Впервые работы по экспериментальному исследованию и численному анализу распределения примеси в объемных монокристаллах полупроводников в условиях подавленной естественной конвекции на земле были выполнены А.Г.Острогорским с соавторами (ссылки на более ранние их работы можно найти в [4,8]). Авторы использовали две модификации методов выращивания: метод погруженного нагревателя и метод погруженной перегородки. В своих исследованиях, посвященных условиям получения диффузионного режима переноса примеси, они пришли к выводу, что для примесей с величиной $k_0 > 0,1$ на земле эти методы не обеспечивают диффузионного режима переноса. Однако выполненных ими исследований недостаточно для определения закономерностей и условий получения воспроизводимых результатов по переносу примеси вблизи фронта кристаллизации в

процессе роста в условиях слабого течения расплава, получаемого при использовании перегородки.

Численное моделирование проводилось на основе решения нестационарных двумерных уравнений Навье-Стокса и уравнений переноса тепла и массы [10] в цилиндрической области. Использование нестационарных уравнений позволило находить распределение примеси в выросшем кристалле. Решение уравнений осуществлялось методом конечных элементов с использованием комплекса программ ASTRA [11-13].

В работе исследуется влияние на поперечное и продольное распределение примеси ряда факторов, таких, как начальные и граничные условия, скорость выращивания кристалла, геометрия и величина силы тяжести.

Показано существование оптимальных параметров (с точки зрения однородности распределения примеси) для наземных условий. Исследования показали, что разработанная аппаратура и методики позволяют с высокой точностью управлять тепловыми условиями и распределением примеси в кристалле и проводить анализ результатов с помощью математического моделирования.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ

Эксперименты проводились в графитовом ОТФ - кристаллизаторе (рис.1) в среде аргона в тиглях диаметром 48мм и 68мм. В качестве модельных материалов были использованы Ge, легированный Sb и Ga. Измерение распределения примеси в кристалле проводилось путем измерения электрического сопротивления четырехзондовым методом.

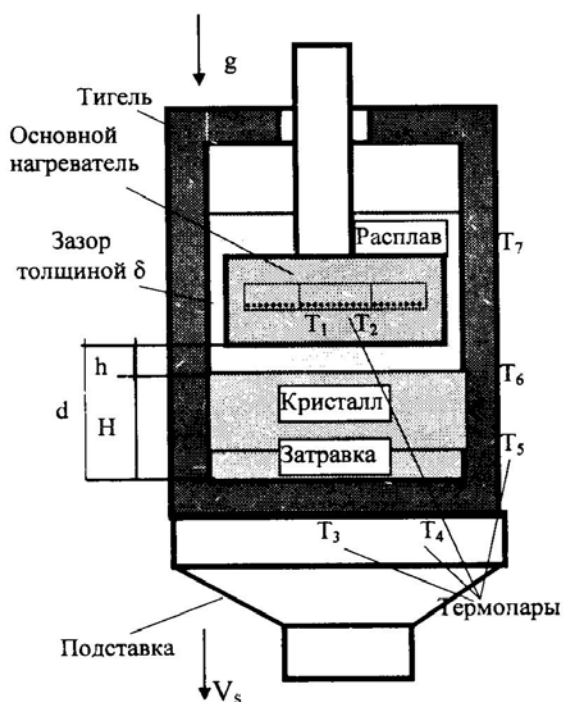


Рис.1 Схема кристаллизатора метода ОТФ1а

Схема графитового кристаллизатора метода ОТФ1а показана на рис.1. В отличие от других модификаций этого метода [5, 6], в методе ОТФ1а кристаллизация идет при неподвижном основном нагревателе путем вытягивания вниз тигля с растущим кристаллом с постоянной скоростью V_s . Суть метода ОТФ1а заключается в поддержании заданной временной зависимости температур в точках T_1 , T_2 , T_3 и T_4 в процессе вытягивания тигля. Температуры T_1 и T_2 могут обеспечивать изотермичность основного нагревателя. Температура T_3 изменялась так, чтобы величина толщины слоя расплава h оставалась постоянной в процессе роста кристалла. Таким образом, в прифронтной зоне расплава естественная конвекция существенно подавлена. При выполнении этих условий скорость роста кристалла постоянна и равна скорости вытягивания V_s . Рост кристалла осуществлялся в направлении $\langle 111 \rangle$.

Затравка содержала 10^4 дислокаций на см^2 . При выбранных условиях кинетика не являлась лимитирующим фактором.

Экспериментальные исследования показали, что при кристаллизации методом ОТФ1а радиальное распределение примеси существенно зависит от характера и интенсивности течения расплава.

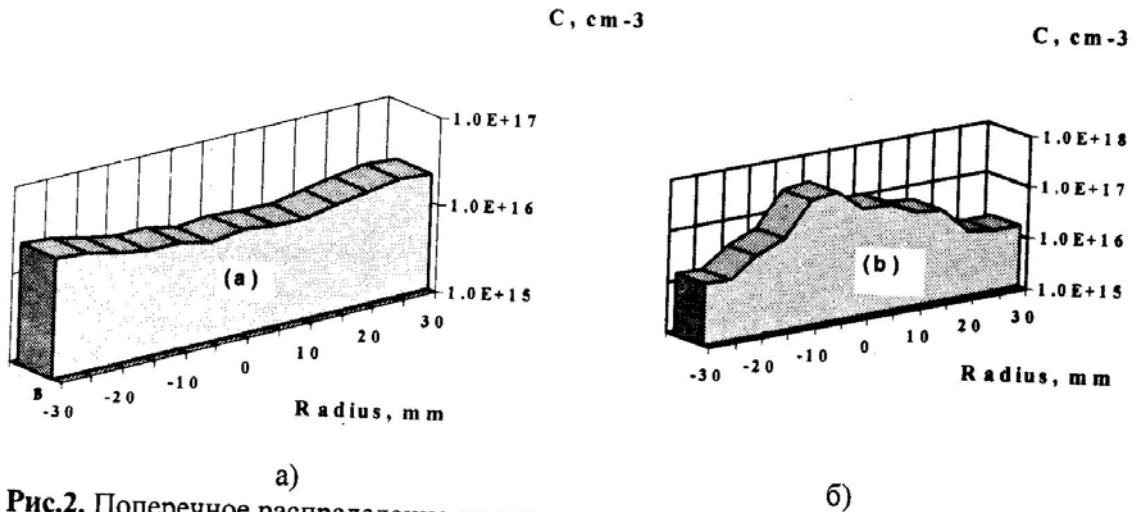


Рис.2. Поперечное распределение сурьмы в монокристалле германия в двух случаях: а) естественная конвекция, б) вынужденное течение.

На рис.2 представлены результаты эксперимента, показывающие характер поперечного распределения примеси:

а) в случае преобладания естественной конвекции,

б) в случае преобладания вынужденной конвекции, вызванной перетеканием расплава из верхней части тигля через узкий зазор в нижнюю прикристалльную область.

Таким образом, характер поперечного распределения примеси в кристалле может служить критерием интенсивности естественно-конвективной составляющей перемешивания расплава. Результаты, представленные на рис.2б, показывают, что в наземном эксперименте были достигнуты условия, при которых превалировало вынужденное течение, а естественно-конвективная составляющая скорости была существенно меньше величины 2×10^{-3} см/сек.

Эксперименты показали, что характер продольной макронеоднородности сильно зависит от способа начального легирования загрузки, типа кристаллизатора и режима кристаллизации. При этом могут быть получены поликристаллические слитки с крупноблочной структурой.

В зависимости от условий роста число моноблоков менялось от 2-4 до монокристалла. Преимущественная ориентация полученных моноблоков - $\langle 111 \rangle$. Электросопротивление измерялось в пределах одного моноблока.

На рис.3 показаны распределения примеси для различных условий роста: а), б) - распределение сурьмы вдоль слитков Ge, в) - распределение галлия вдоль монокристалла.

Исследования показали, что разработанная аппаратура и методики позволяют с высокой точностью управлять тепловыми условиями и распределением примеси в кристалле.

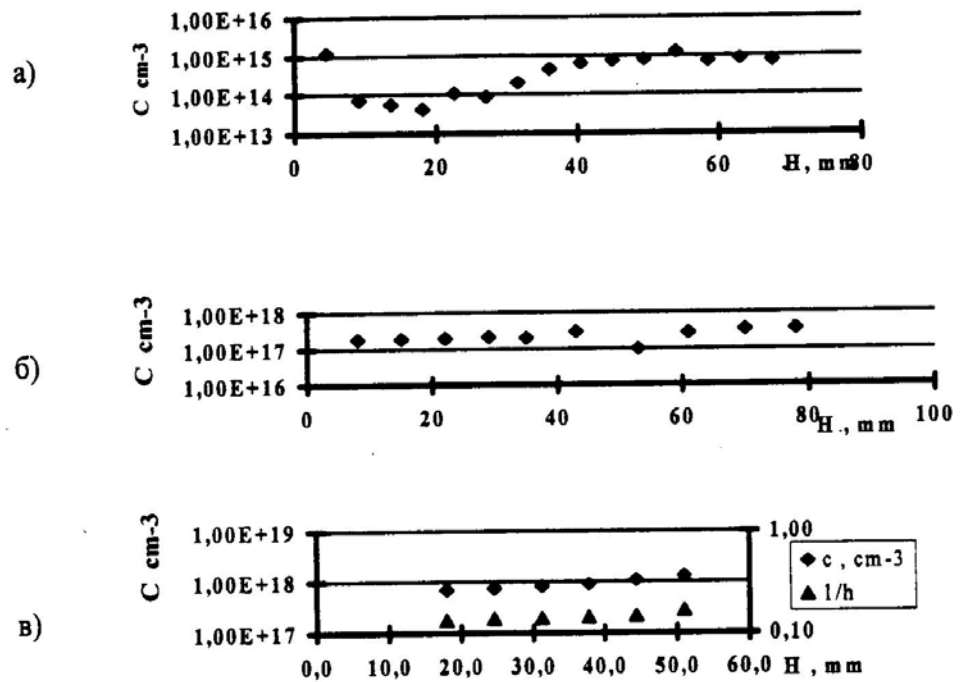


Рис.3. Продольное распределение примеси в германии:
 а) Sb, $\varnothing=45\text{мм}$, $V_s=10\text{мм/час}$, б) Sb, $\varnothing=45$, $V_s=3\text{мм/час}$, в) Ga, $\varnothing=68\text{мм}$, $V_s=10\text{мм/час}$.

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Постановка задачи

Расчетная схема показана на рис.4. В модели приняты следующие предположения: расчетная область обладает цилиндрической симметрией, высота h рабочей зоны 4, скорость кристаллизации и тепловые условия в течение всего процесса кристаллизации остаются постоянными.

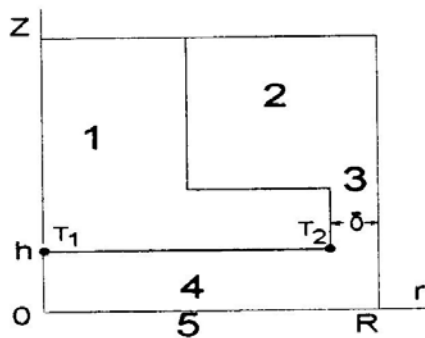


Рис.4.

Схема цилиндрической расчетной области математической модели метода ОТФла:
 1 - нагреватель, T_1 и T_2 - характерные температуры нагревателя,
 2 - зона расплава над нагревателем,
 3 - зазор между нагревателем и стенками тигля,
 4 - рабочая зона между кристаллом и нагревателем,
 5 - поверхность кристалла ($z=0$), R - радиус тигля, δ - величина зазора, h - высота рабочей зоны, Oz - ось симметрии.

Математическая модель основана на решении системы двумерных нестационарных уравнений Навье-Стокса для несжимаемой жидкости в приближении

Буссинеска, которые в переменных {функция тока ψ , завихренность ω , температура T , концентрация C } имеют вид:

$$u = r^{-\alpha} \psi_z, \quad w = -r^{-\alpha} \psi_r, \quad \omega = r^\alpha (u_z - w_r) \quad (1)$$

уравнение для функции тока:

$$r^{-\alpha} \omega = (r^{-\alpha} \psi_r)_r + (r^{-\alpha} \psi_z)_z \quad (2)$$

уравнение для завихренности:

$$r^{-\alpha} (\omega_t + u \omega_r + w \omega_z) = (r^{-\alpha} v \omega_r)_r + (r^{-\alpha} v \omega_z)_z + \alpha (r^{-\alpha} v^2)_z - g \beta T_z \quad (3)$$

уравнение для температуры:

$$T_t + u T_r + w T_z = r^{-\alpha} (r^\alpha a T_r)_r + (a T_z)_z \quad (4)$$

и уравнение для концентрации:

$$C_t + u C_r + w C_z = r^{-\alpha} (r^\alpha D C_r)_r + (D C_z)_z \quad (5)$$

где α - параметр геометрии, который равен 0 для плоской геометрии или 1 для осесимметричной геометрии (наш случай).

Граничные условия имеют вид:

ось симметрии: $r = 0, \psi = 0, u = 0, w_r = 0, T_r = 0, C_r = 0;$

поверхность кристалла: $z = 0, \psi = V_s r^2/2, u = 0, w = -V_s, T = T_m, D C_z = V_s C(1 - k_0);$

стенки контейнера: $r = R, \psi = V_s R^2/2, u = 0, w = 0, T_r = 0$ (или $T = f(z)$), $C_r = 0;$ (6)

стенки нагревателя: $\psi = 0, u = 0, w = 0, C_n = 0;$

верхняя поверхность расплава: $z = H, \psi_z = 0, u = 0, w_z = 0, T_z = T_H, C = C_0;$

На поверхности нагревателя вектор скорости равняется нулю. На верхней границе производная по z для тангенциальной скорости равняется нулю. Граничные условия по температуре на вертикальной стенке контейнера были: $T_r = 0$ в сравнении с [8], а во всех других случаях смешанными: первого рода $T = f(z)$ при $0 < z < h$ ($f(z)$ - линейная функция), теплоизоляция при $z > h$ (такой вид граничных условий по температуре представляется более адекватным с экспериментом, чем только условие теплоизоляции).

Постановка граничных условий имеет принципиальный характер для адекватности модели и сопоставления с данными технологических экспериментов. В дальнейшем может оказаться, что принятая постановка граничных условий по теплообмену 1-го и 2-го рода или их комбинация недостаточна (учет излучения, условия 3-го рода), кроме того, неясно, насколько важен учет их изменения во времени (а также учет изменения во времени и других характеристик процесса кристаллизации).

Начальные условия имеют вид:

$$\psi_{t=0} = \psi_0, \quad u_{t=0} = 0, \quad w_{t=0} = 0, \quad T_{t=0} = T_m, \quad C_{t=0} = C_0(z). \quad (7)$$

Ниже представлены параметрические расчеты для исследования влияния начального распределения примеси на распределение примеси в кристалле, для этого введены обозначения C_{o1} - начальная концентрация под нагревателем ($0 < z < h$) и C_{o2} - начальная концентрация над нагревателем ($z > h$). Задача характеризуется следующими

безразмерными параметрами подобия: числом Прандтля $Pr = \nu/a$, числом Рейнольдса $Re = V_s/\nu$, числом Грасгофа $Gr = g \beta \Delta \theta R^3/\nu^2$ и числом Шмидта $Sc = \nu/D$, где ν - коэффициент кинематической вязкости, a - коэффициент температуропроводности, V_s - скорость кристаллизации, g - ускорение силы тяжести, β - коэффициент теплового расширения, D - коэффициент концентрационной диффузии, $\Delta \theta = T, R$. Для большинства случаев значения безразмерных параметров приблизительно равны: $Pr=0,01$, $Re=10 \cdot 10^3$, $Gr=10^2 \cdot 10^6$, $Sc=10$.

Метод решения

Численное решение выполнено методом конечных элементов с помощью пакета программ ASTRA [9-10]. Используются треугольные линейные конечные элементы для пространственных переменных и неявная конечно-разностная схема интегрирования уравнений по времени. Вспомогательные краевые задачи для функции тока, завихренности, температуры, концентрации и давления решались методом сопряженных градиентов с предобуславливанием без применения матричных операций [10]. Конвективные и диффузионные члены аппроксимировались по симметричному шаблону, для устойчивости расчета конвекции вводился дополнительный диссипативный член, вид которого определяется из условия положительной определенности оператора краевой задачи с учетом дифференциального приближения конечно-элементной схемы. Для вычисления завихренности на твердой границе использовался итерационный метод верхней релаксации. Для определения распределения концентрации в кристалле запоминалась история концентрации на фронте кристаллизации, которая потом пересчитывалась в концентрацию в кристалле по формуле $C_{cr} = k_0 C$.

Тестовые расчеты

В данной работе в качестве тестовых было рассмотрено две задачи: первая - это задача о конвекции в квадратной области, подогреваемой сбоку, и теплоизолированными горизонтальными стенками (данная задача являлась международным тестом, результаты которого опубликованы в работе [14]); вторая - это задача, постановка которой описана выше. Результаты решения первой тестовой задачи по программе ASTRA представлены на рис.5 и в таблице 1. Во второй задаче результаты сравнивались с результатами, опубликованными в работе [8]. Более подробно результаты сравнения опубликованы в [9].

Таблица 1. Первая тестовая задача ($Ra=10^5$, $Pr=0,71$).

| Метод | $\max \Psi$ | $\max u_{x=0.5}$ | $\max v_{y=0.5}$ |
|----------|-------------|------------------|------------------|
| "ASTRA" | 13.703 | 49.958 | 96.421 |
| "COMGA" | 13.479 | 48.30 | 94.95 |
| "эталон" | 13.538 | 49.592 | 95.894 |

В таблице 1 приведены значения максимума функции тока, максимумы горизонтальной и вертикальной компонент скорости в указанных средних сечениях, полученные для первой тестовой задачи разными методами: "ASTRA" - решение получено конечно-элементным методом с помощью программы ASTRA [11-13] на сетке 80×80 элементов, "COMGA" - решение получено конечно-разностным методом с помощью программы COMGA [15] на сетке 65×65 узлов, "эталон" - данные, полученные в работе [14] экстраполированием на сетку с нулевым шагом решений,

полученных конечно-разностным методом на разных сетках. Сравнение результатов показывает, что максимальное отличие результатов "ASTRA" от "эталон" не более 1,2%, а "COMGA" от "эталон" не более 2,6%.

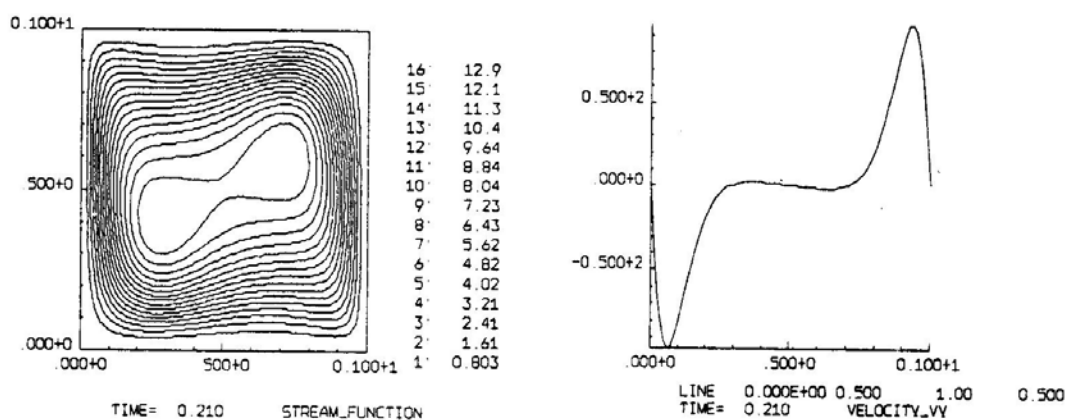


Рис.5. Изолинии функции тока и профиль вертикальной компоненты скорости в среднем горизонтальном сечении ($y=0,5$), полученные с помощью программы ASTRA на сетке 80×80 для первой тестовой задачи ($Ra=10^5$, $Pr=0,71$).

При сравнении результатов расчета второй тестовой задачи были использованы следующие исходные данные [8]:

-параметры геометрии: радиус тигля $R=1,6$ см; высота рабочей зоны $h=0,8$ см; зазор $\delta=0,05$ см;

-физические параметры: ускорение силы тяжести $g=0,1g_0$ (g_0 - ускорение силы тяжести на поверхности Земли) или $g=g_0=980$ см/сек² = $1,27 \times 10^{10}$ см/час² (поверхность Земли); расплав германия Ge с примесью сурьмы Sb или галлия Ga имеет следующие свойства - коэффициент кинематической вязкости $\nu=0,00135$ см²/сек = $4,86$ см²/час; коэффициент тепловой диффузии $a=0,175$ см²/сек = 630 см²/час; коэффициент теплового расширения $\beta=0,000111$ К⁻¹; коэффициент концентрационной диффузии для Ga $D=0,0002$ см²/сек; коэффициент сегрегации $k_0=0,087$ (Ga).

-скорость роста кристалла: $V_s=0,36$ см/час, $V_s=1,8$ см/час и $V_s=3,6$ см/час.

Прежде всего отметим, что, в отличие от [8], здесь задача решалась в полном объеме с учетом нестационарных членов уравнений, содержащих производные по времени.

Распределение примеси в расплаве показано на рис.6. Данные результаты хорошо согласуются с соответствующими результатами авторов статьи [8]. Следует отметить, что график, полученный в работе [8], соответствующий нижнему левому графику на рис.6, не содержит плато невозмущенного уровня концентрации в зоне расплава над нагревателем, которое здесь для стационарного состояния должно иметь высоту примерно k_0 от среднего уровня концентрации в расплаве на фронте кристаллизации. Можно предположить, что уровень концентрации для этого случая в работе [8] сильно завышен (как минимум раз в 10, поскольку плато не просматривается), или это ошибка построения аксонометрической проекции.

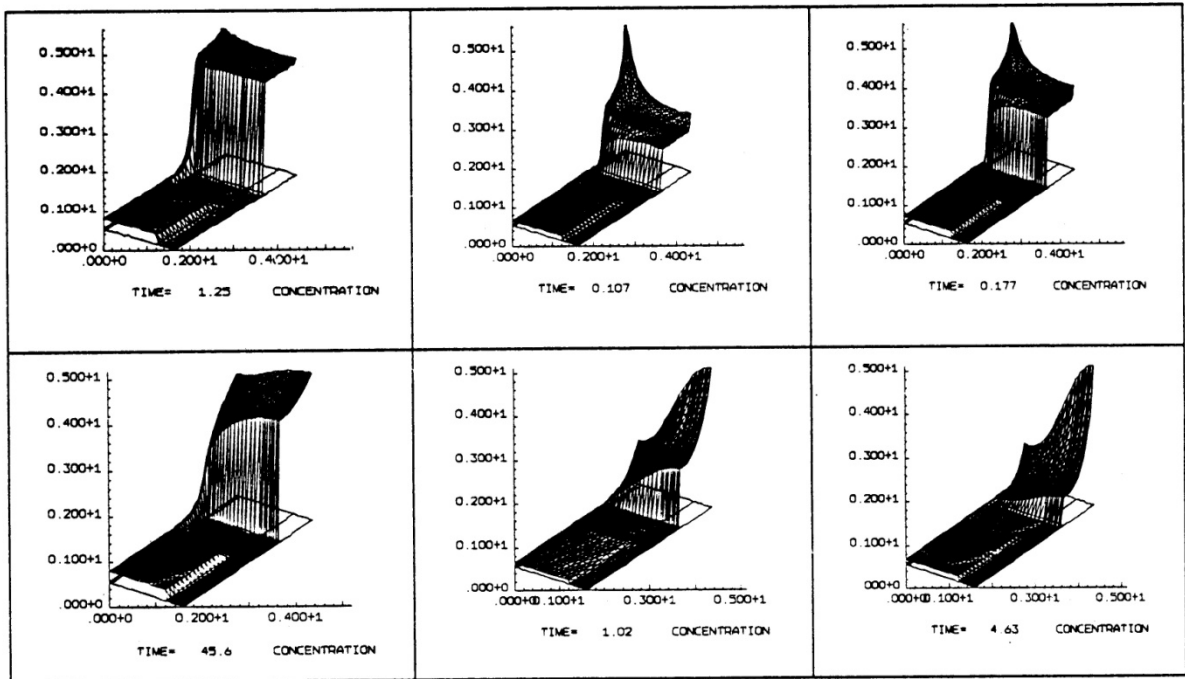
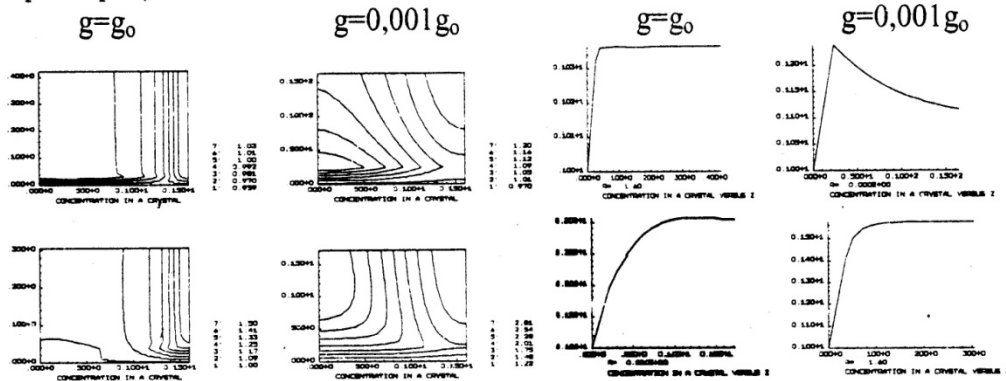


Рис.6. Концентрация Ga в расплаве Ge, как функция скорости роста кристалла ($V_s = 0,36$ см/час - левая колонка, $1,8$ см/час - средняя колонка, $3,6$ см/час - правая колонка) и ускорения силы тяжести ($g = g_0$ - верхний ряд, $g = 0,001g_0$ - нижний ряд)

Результаты расчетов

Как было показано в работе [9], структура и скорости конвективного течения устанавливаются за несколько минут, поле температур устанавливается за несколько секунд. Однако концентрация примеси постоянно меняется в течение всего процесса, и для нее стационарного значения не существует, а существует квазистационарный процесс, который наступает через несколько часов. Для случая тестовой задачи 2 на рис.7 показано распределение примеси в кристалле в зависимости от скорости роста и ускорения силы тяжести. Эти зависимости показывают, что даже в условиях слабой естественной конвекции, ее влияние на характер распределения примеси больше, чем влияние скорости кристаллизации (конечно, для указанных на рис.7 диапазонов параметров).



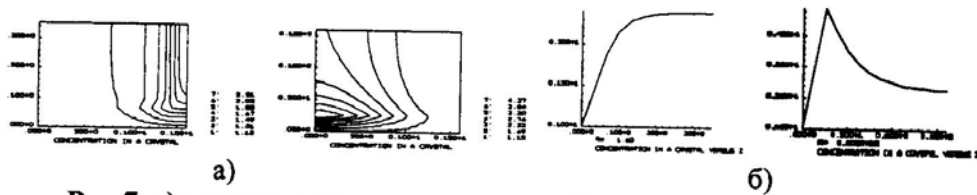


Рис.7. а) распределение концентрации Ga в кристалле Ge для шести случаев: как функция скорости роста ($V_s = 0,36$ см/час - верхний ряд, $1,8$ см/час - средний ряд, $3,6$ см/час - нижний ряд) и ускорения силы тяжести ($g = g_0$ - левая колонка и $g = 0,001 g_0$ - правая колонка);

б) продольное распределение (по времени) максимальной в поперечном сечении концентрации Ga в кристалле Ge для шести случаев: как функция скорости роста ($V_s = 0,36$ см/час - верхний ряд, $1,8$ см/час - средний ряд, $3,6$ см/час - нижний ряд) и ускорения силы тяжести ($g = g_0$ - левая колонка и $g = 0,001 g_0$ - правая колонка).

Таблица 2. Варианты параметрических расчетов.

| Вариант № | δ см | V_s см/час | Co_1 внизу | Co_2 наверху | $sign\ dC/dt$ ($r=1, z=0, t=t_{max}$) | t_{max} час |
|-----------|----------------|-----------------|-----------------|-------------------|--|------------------|
| 1 | 0.1 | 3.60 | 1 | 0.087 | - | 1.5 |
| 2 | 0.1 | 1 | 1 | 0.087 | - | 4.7 |
| 3 | 0.1 | 1 | 1 | 0.1 | + | 3.29 |
| 4 | 0.1 | 0.01 | 1 | 0.087 | - | 8.2 |
| 5 | 0.1 | 0.01 | 1 | 0.5 | - | 0.47 |
| 6 | 0.1 | 10 | 1 | 0.087 | - | 1.32 |
| 7 | 0.1 | 10 | 1 | 0.87 | - | 1.11 |
| 8 | 0.1 | 1 | 1 | 0.87 | + | 1.29 |
| 9 | 0.1 | 1 | 1 | 0.2 | + | 1.11 |
| 10 | 0.1 | 1 | 1 | 0.087 | - | 1.38 |
| 11 | 0.1 | 1 | 1 | 0.1 | 0 | 1.09 |
| 12 | 0.1 | 3.6 | 1 | 0.1 | - | 1.16 |
| 13 | 0.1 | 0.5 | 1 | 0.087 | - | 1.12 |
| 14 | 0.05 | 0.5 | 1 | 0.087 | - | 0.938 |
| 15 | 0.05 | 3.6 | 1 | 0.087 | - | 0.5 |

Кроме ускорения, силы тяжести и скорости кристаллизации, на распределение примеси оказывают влияние температурные условия, величина зазора δ и начальное распределение примеси. Для выявления влияния указанных параметров на распределение примеси в кристалле были проведены параметрические расчеты задачи при следующих исходных данных: радиус тигля - $R=3,36$ см; высота рабочей зоны - $h=0,8$ см; температура

кристаллизации - $T_0=936$ °С. Были просчитаны варианты, представленные в таблице 2, где первая колонка - номер варианта; δ - величина зазора; V_s - скорость кристаллизации; Co_1 - начальная концентрация под нагревателем ($0 < z < h$, область 4 рис.4) и Co_2 - начальная концентрация над нагревателем ($z > h$, область 2); $sign\ dC/dt$ - знак производной концентрации по времени (длине кристалла) в указанной точке в момент времени $t = t_{max}$, указанный в последней колонке. В варианте №1 $T_1=T_2=944$ °С (на нагревателе поддерживалась постоянная температура), во всех других вариантах $T_1=942$ °С, $T_2=945$ °С; расплав германия Ge с примесью галлия Ga ($k_0=0,087$); вариант №2 соответствует условиям пониженной гравитации ($g/g_0=10^{-2}$), а вариант №3 - невесомости ($g/g_0=0$), во всех других вариантах ускорение силы тяжести равно ускорению силы тяжести Земли ($g/g_0=1$).

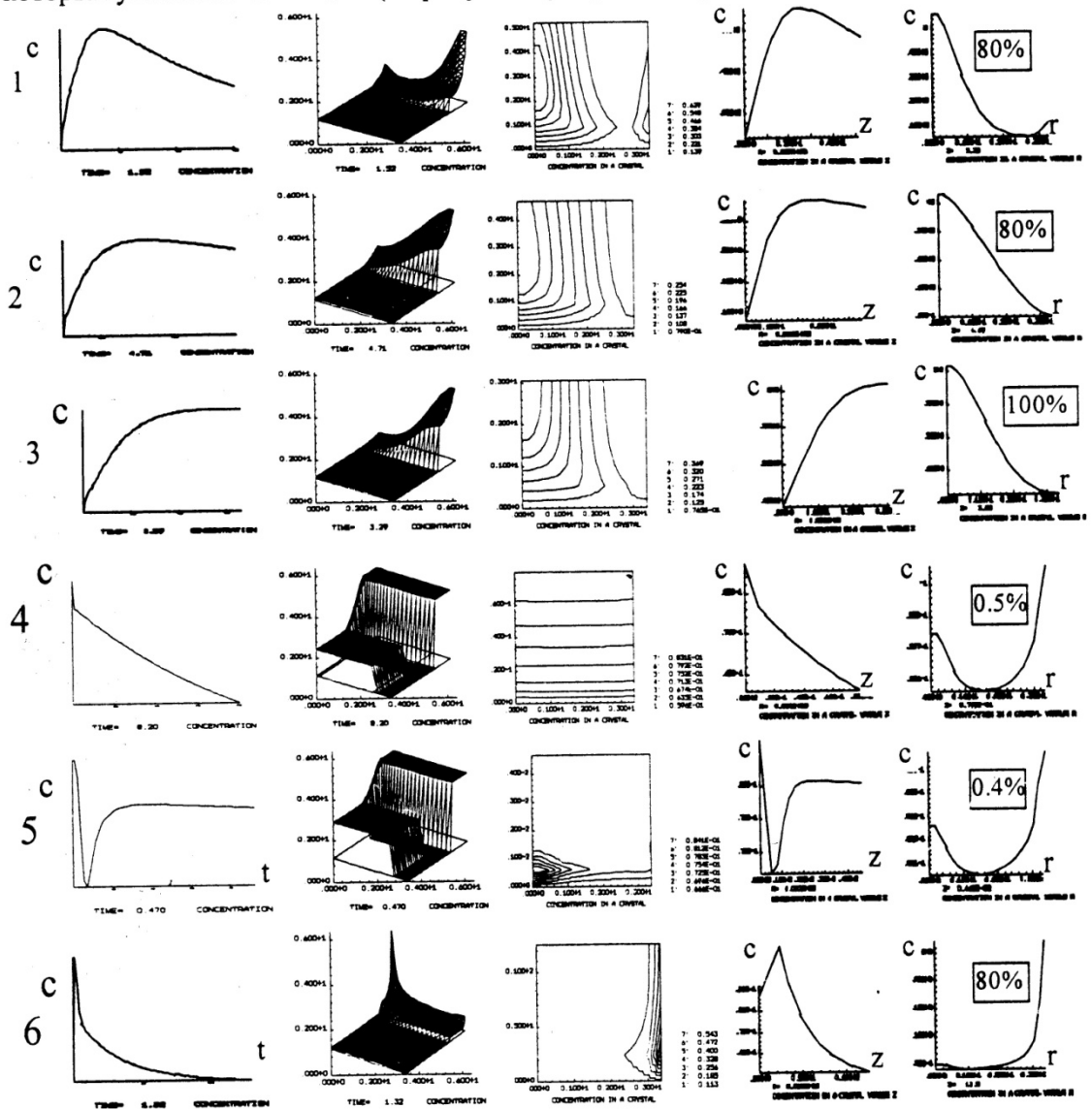
При такой постановке задачи интенсивность конвективного течения в области 4 может быть на 3-4 порядка меньше, чем в области 2 (рис.4), а при специальном подборе граничных условий по температуре естественная конвекция в области 2 может быть практически сведена до нуля. Следует отметить, что во всех вариантах течение

происходит в направлении по часовой стрелке. Направление течения можно поменять, если сделать $T_1 > T_2$.

Цель параметрических расчетов заключается в том, чтобы найти условия, при которых продольное распределение примеси в кристалле будет постоянным при минимальной радиальной сегрегации.

При проведении параметрических расчетов были рассмотрены следующие диапазоны параметров: минимальная скорость роста кристалла $V_s = 0,01$ см/час (варианты №4 и 5), максимальная скорость $V_s = 10$ см/час (варианты №6 и 7); минимальное отношение концентраций $n = C_{o1} / C_{o2} = 1,667$ (варианты №7 и 8), максимальное отношение концентраций $n = 16,67$ (варианты №1, 4, 6, 10, 13, 14, 15); минимальный размер зазора $\delta = 0,05$ см (варианты №14 и 15), во всех других вариантах $\delta = 0,1$ см; минимальное значение перегрузки $g/g_0 = 0$ (вариант №3), в варианте №2 $g/g_0 = 10^{-2}$, во всех других вариантах $g/g_0 = 1$.

На рис.8 представлены результаты параметрических расчетов, варианты которых указаны в таблице 2 (на рисунке нумерация вариантов слева).



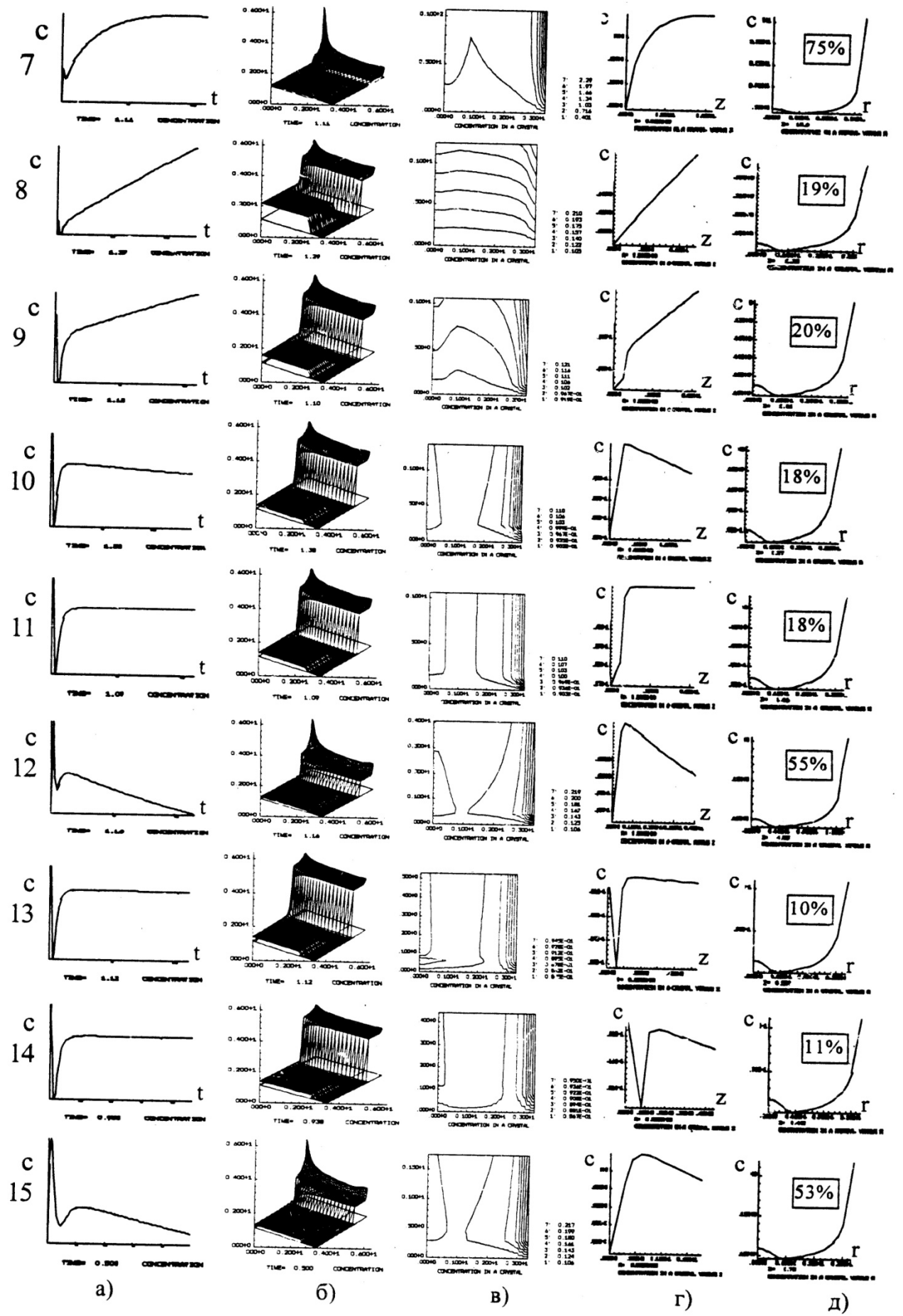


Рис.8. Распределение примеси Ga в Ge в момент времени $t = t_{\max}$, результаты параметрических расчетов (номера вариантов из таблицы 2, указаны слева), а)- зависимости концентрации в расплаве от времени в точке ($r=1, z=0$) (на графиках t_{\max} соответствует точкам крайним справа), б)- аксонометрические проекции концентрации в расплаве ($t = t_{\max}$), в)- линии равных концентраций в кристалле ($t = t_{\max}$), г)- распределение примеси по длине кристалла ($r=0$), д)- радиальное распределение примеси ($t = t_{\max}$) (в процентах указана максимальная радиальная неоднородность).

Сравнивая экспериментальные данные рис.2 с расчетными, можно видеть, что они согласуются в пределах точности модели и эксперимента. Характерным распределением примеси при преобладании вынужденного течения являются случаи, изображенные на рис.2б и на рис.8.1, 8.2, 8.3. Все остальные варианты, изображенные на рис.8, можно отнести к случаю взаимодействия вынужденной и естественной конвекции.

Продольное распределение примеси, изображенное на рис.3в, можно соотнести с расчетными данными, изображенными на рис.8.10г. Следует отметить, что на рис.8.10г продольная неоднородность на всем выросшем кристалле не превосходит 5%. Продольные распределения концентраций, изображенные на рис.8.9г (максимальная сегрегация 1,5%) и рис.8.10г (максимальная сегрегация 50%), имеют такой же характер распределения примеси, как и на рис.3в, но в этих вариантах отношение концентраций в верхней и нижней областях отлично от $n = 16,67$, как это было в эксперименте. Обратим внимание на два момента: первый - в экспериментах перед кристаллизацией расплав выдерживался несколько часов, а в расчетах движение фронта начиналось сразу же с момента $t=0$; второй - в эксперименте в процессе роста высота h прикристалльной области 2 (рис.4) изменялась, а в расчетах она была постоянной.

Сравнивая результаты варианта №1 рис.8.1б (постоянная температура основного нагревателя) и варианта №4 рис.8.3б (невесомость), можно сделать вывод, что при выращивании кристаллов методом ОТФ1а, управляя тепловым полем, можно на земле получить условия, близкие к невесомости. Наличие слабой конвекции даже в случае варианта №1 можно видеть на рис.8.1б в виде пика концентрации около стенки тигля в области 2, чего нет на рис.8.3б.

Случай отсутствия естественной конвекции (рис.8.3) не является лучшим для метода ОТФ1а с точки зрения равномерного распределения примеси вследствие того, что вынужденная конвекция (струя расплава из области 2 через зазор δ втекает в область 4), вызванная вытягиванием кристалла при неподвижном основном нагревателе, нарушает однородное распределение примеси в прикристалльной области. Слабая ($Ra > 1$) естественная конвекция (без вынужденной) также нарушает однородность расплава, так как примесь ($Sc = 10$) является очень чувствительной к конвективным течениям. Таким образом, существуют такие оптимальные условия, при которых струя расплава, поступающая из зазора δ , будет компенсироваться подъемным течением, вызванным естественной конвекцией. Эти условия зависят от скорости кристаллизации, величины зазора δ , тепловых условий и начальных концентраций C_{01} и C_{02} . В процессе расчетов такие условия были найдены - это вариант №11 (рис.8.11).

Результаты параметрических расчетов, приведенные на рис.8, можно систематизировать следующим образом:

1. Концентрация по времени (по длине кристалла) на квазистационаре увеличивается ($dC/dt > 0$) в вариантах №3, 8 и 9; в варианте №7 - остается практически постоянной, во всех других вариантах она уменьшается ($dC/dt < 0$).

2. Слабое влияние величины зазора δ на распределение примеси можно видеть, сравнивая вариант №13 ($\delta=0,1$) и вариант №14 ($\delta=0,05$) (при этом изменении δ скорость струи в зазоре увеличилась почти в два раза при той же скорости кристаллизации).

3. Влияние скорости роста V_s на распределение примеси можно видеть, сравнивая результаты в четырех группах вариантов: №4 ($V_s=0,5$), №13 ($V_s=0,5$), №10 ($V_s=1$) и №6 ($V_s=10$); №11 ($V_s=1$) и №12 ($V_s=3,6$); №8 ($V_s=1$) и №7 ($V_s=10$); а также варианты №14 ($V_s=0,5$) и №15 ($V_s=3,6$). При увеличении скорости роста радиальная неоднородность увеличивается - это видно на рис.8б и рис.8д.

4. Зависимость неоднородности распределения примеси от отношения начальных концентраций $n = C_{o1} / C_{o2}$ показывает сравнение результатов в следующих трех группах вариантов: №8 ($n=1,667$), №9 ($n=5$), №11 ($n=10$) и №10 ($n=16,67$); №5 ($n=2$) и №4 ($n=16,67$); №7 ($n=1,667$) и №6 ($n=16,67$). При увеличении значения n модуль производной dC/dt (или dC/dz) уменьшается (на квазистационаре, например, при $t = t_{max}$).

5. Влияние силы тяжести можно увидеть, сравнивая результаты вариантов №2 ($g/g_0=10^{-2}$), №4 ($g/g_0=0$) и №11 ($g/g_0=1$). В данном случае однородность лучше при $g/g_0=1$.

6. Сравнивая результаты варианта №1 ($T_b=T_1=T_2=944^\circ\text{C}=\text{const}$) и варианта №15 ($T_1=942^\circ\text{C}$, $T_2=945^\circ\text{C}$), можно видеть сильное влияние тепловых условий на поперечное и продольное распределение примеси.

7. Поперечная неоднородность минимальна в вариантах №4 и №5, максимальна в варианте №3, продольная неоднородность минимальна в варианте №11.

ВЫВОДЫ

Экспериментально и численно найдены режимы выращивания кристаллов германия (с примесью Ga и Sb) методом ОТФ1а при которых продольное распределение примеси практически постоянно (рис.3 и рис.8.11).

Показано влияние определяющих параметров на продольное и поперечное распределение примеси в кристаллах, выращиваемых методом ОТФ1а.

Сравнение результатов расчетов с тестовыми и с экспериментальными данными показало адекватность и эффективность данной математической модели при проведении многопараметрических расчетов.

Данная работа была проведена в рамках совместного проекта ТМ-4 Российского Космического Агенства и NASA.

Список литературы

1. Polezhaev V.I. Modeling of hydrodynamics, heat and mass transfer processes on the basis of unsteady Navier-Stokes equations. Applications to the material sciences at earth and under microgravity // Comput. Methods Appl. Mech. Eng., 115, 1994, p.79-92.
2. Nikitin S.A., Polshaev V.I. and Fedyushkin A.I. Mathematical simulation in crystals prepared under microgravity conditions // Crystal Growth, 52, 1981, p.471-477.
3. Zharikov E.V., Prihod'ko L.V., Storozhev N.R. Fluid flow formation resulting from forced vibration of a growing crystal // Crystal Growth, 99, 1990, p.910-914.
4. Meyer S., Ostrogorsky A.G. Forced convection in vertical Bridgman configuration with the submerged heater // Crystal Growth, 171, 1997, p.566-576.

5. Golyshev V.D., Gonik M.A. Method of large single crystals growth from melt with given shape of melt-crystal interface // Hydromech. and heat/mass transfer in ace Congr., Moscow, August 16-17, 1994 / Moscow, 1991, p.489-494.
6. Golyshev V.D., Gonik M.A. Terrestrial experimental research of new method features of large single crystal growth. // Proc. Microgravity sci. and applications session, Int. Aerospace Congr., Moscow, August 16-17, 1994 / Moscow, 1995, p.167-171.
7. Бурого Н.Г., Гольшев В.Д., Гоник М.А., Полежаев В.И., Федюшкин А.И., Цветовский В.Б. Характер вынужденной и естественной конвекции и его влияние на распределение примеси в кристалле при росте методом ОТФ1а // Александров. III Международная конференция "Кристаллы: рост, свойства, реальная структура, применение" / Александров: Труды конференции, т.2, с.116-131, 1997.
8. Ostrogorsky A.G., Dragojlovic Z. Model of Convection and Segregation During Growth by the Submerged Baffle Method // Proc. Microgravity sci. and applications session, Intern. Aerospace Congr., Moscow, August 16-17, 1994, Moscow, 1995, p.127-133.
9. Bourago N.G., Fedyushkin A.I., Polezhaev V.I. Modelling of unsteady submerged heating crystal growth in ground-based and microgravity environment. Physical sciences in microgravity // Proceedings of joint Xth European and VIth Russian Symposium on Physical sciences in microgravity. St.-Peterburg, Russia, 15-21 June, 1997 / vol. II, 1997, p.170-173.
10. Полежаев В.И. и др. Математическое моделирование конвективного тепло и массообмена на основе уравнений Навье-Стокса. М., Наука, 1991.
11. Bourago N.G. and Kukudzhanov V.N. Numerical Simulation of Elastic Plastic Media by Finite Element Method, Preprint IPMech AS USSR, №326, 1988, p.1-63. Second edition in "Computer Mechanics", issue 2, 1991, p.78-122.
12. Bourago N.G. Computer Code "ASTRA" for Non-linear Problems in Continuous Mechanics // "Abstracts of 7th Nordic Seminar on Computational Mechanics" / Trondheim, 1994.
13. Bourago N.G. Numerical methods for non-linear processes in elastic plastic media // "Lechers of FEM-94 Seminar" / Gothenberg, 1994, p.1-15.
14. Davis De Vahl, Jones I.P. Natural convection in square cavity: A comparison exercise // Intern. Journal Numer. Meth. Fluids. 1983, v.3, p.227-248.
15. Ermakov M.K., Griaznov V.L., Nikitin S.A. et al. A PC-based System for Modelling Convection in Enclosures on the basis of Navier-Stokes Equations // Intern. Journal Numer. Methods in Fluids, 1992, v.15, p.975-984.