

Х.С. БАГДАСАРОВ
Л.А. ГОРЯКОВ

**ТЕПЛО- И МАССОПЕРЕНОС
ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ
МОНОКРИСТАЛЛОВ
НАПРАВЛЕННОЙ
КРИСТАЛЛИЗАЦИЕЙ**



Х.С. БАГДАСАРОВ
Л.А. ГОРЯИНОВ

ТЕПЛО- И МАССОПЕРЕНОС
ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ МОНОКРИСТАЛЛОВ
НАПРАВЛЕННОЙ
КРИСТАЛЛИЗАЦИЕЙ



МОСКВА
ФИЗМАТЛИТ®
2007

УДК 538.91

ББК 22.37

Б 14

Багдасаров Х. С., Горяинов Л. А. **Тепло- и массоперенос при выращивании монокристаллов направленной кристаллизацией.** — М.: ФИЗМАТЛИТ, 2007. — 224 с. — ISBN 978-5-9221-0806-5.

Освещены вопросы тепло-и массообмена при выращивании монокристаллов из расплава. Рассматриваются физические и математические модели процессов теплопереноса и формообразования при росте кристаллов из расплава. Основное внимание уделено экспериментальному и теоретическому исследованию процессов теплопереноса при получении оптических монокристаллов по методам Багдасарова и Бриджмена-Стокбаргера. Рассматривается методика и результаты экспериментального исследования, программа расчета, анализируются результаты выполненных расчетов. Выявляются направления совершенствования технологии получения монокристаллов и тенденции в совершенствовании методов выращивания.

Книга предназначена научным работникам и инженерам, занимающимся вопросами тепло- и массообмена при росте кристаллов, их выращиванием и проектированием ростовых установок.

ISBN 978-5-9221-0806-5

© ФИЗМАТЛИТ, 2007

© Х. С. Багдасаров, Л. А. Горяинов, 2007

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение	6
Глава 1. Выращивание монокристаллов из расплава	9
§ 1. Методы выращивания монокристаллов	9
1.1. Основные понятия кристаллизации (12). 1.2. Обобщенный цикл направленной кристаллизации (13). 1.3. Периодизация процессов роста монокристаллов (14).	
§ 2. Математическое моделирование процессов тепло- и массопереноса при направленной кристаллизации расплава	16
2.1. Общие представления о математическом моделировании (16). 2.2. Граничные условия (19). 2.3. Последовательность составления математической модели (19). 2.4. Физические и математические модели процессов тепло- и массопереноса обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава (20). 2.5. Детальное рассмотрение математической модели (22).	
Глава 2. Экспериментальное исследование процессов теплопереноса при выращивании монокристаллов по методу Багдасарова (горизонтальная направленная кристаллизация)	35
§ 1. Характеристика метода горизонтальной направленной кристаллизации. Задачи экспериментального исследования	35
§ 2. Исследование процессов теплопереноса в тепловой системе установки ГНК	37
2.1. Измерение температуры термоэлектрическими термометрами в тепловой системе установки ГНК (37). 2.2. Измерение температуры в контейнере с материалом при температурах ниже температуры его плавления (40). 2.3. Измерение температуры в контейнере с материалом при кристаллизации (45). 2.4. Использование электрических зондов сопротивления (54). 2.5. Кристаллофизический метод (56). 2.6. Сбросы мощности (58). 2.7. Визуальное определение положения фронта роста (60). 2.8. Измерение температуры в тепловом узле и элементах кристаллизационной установки (62).	
§ 3. Калориметрирование кристаллизационных установок	64
§ 4. Комплексное экспериментальное исследование	64
4.1. Анализ результатов экспериментального исследования тепловых процессов установок ГНК (65).	

Глава 3. Аналитическое исследование процессов тепло- и массопереноса при получении монокристаллов по методу Багдасарова	68
§ 1. Метод горизонтальной направленной кристаллизации (метод Багдасарова) как частный случай обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава	68
§ 2. Формирование высоты и концентрации легирующих примесей по длине кристалла, выращиваемого по методу горизонтальной направленной кристаллизации	72
§ 3. Упрощенные математические модели процессов тепло- и массопереноса при ГНК.	80
3.1. Математическая модель первого периода цикла ГНК (81).	
3.2. Математическая модель второго периода цикла ГНК (83).	
3.3. Математическая модель третьего периода цикла ГНК (84).	
3.4. Математическая модель периода охлаждения расплава цикла ГНК (84).	
§ 4. Формулировка задач определения состояния системы в процессе роста кристалла и условно-фиксированных состояний для цикла выращивания монокристаллов по методу горизонтальной направленной кристаллизации.	85
§ 5. Алгоритм программы и результаты расчета начального состояния тепловой системы.	88
§ 6. Алгоритм программы и результаты расчета изменения высоты кристалла по длине	95
§ 7. Алгоритм программы и результаты расчета состояния тепловой системы в процессе роста кристалла	97
Глава 4. Экспериментальное исследование тепловых режимов процесса выращивания монокристаллов по методу вертикальной направленной кристаллизации	106
§ 1. Задачи экспериментального исследования и методика обработки опытных данных	106
§ 2. Исследование тепловых процессов в установке с прутковым нагревателем сопротивления	113
§ 3. Исследование тепловых процессов в установке с телескопическим нагревателем сопротивления	125
§ 4. Исследование тепловых процессов на установке с использованием моделирующего материала.	133
Глава 5. Аналитическое исследование процессов тепло- и массопереноса при получении монокристаллов по методу вертикальной направленной кристаллизации	136
§ 1. Вертикальная направленная кристаллизация как частный случай обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава	136
§ 2. Упрощенные математические модели процессов тепло- и массопереноса при ВНК	138

§ 3. Формулировка задач тепло- и массопереноса для цикла получения монокристаллов по методу ВНК	142
3.1. Алгоритм программы и некоторые результаты расчетов условно-фиксированного начального состояния тепловой системы ВНК (142). 3.2. Алгоритм программы и некоторые результаты расчета состояния тепловой системы в процессе роста кристалла в установках ВНК (147).	
Глава 6. Теплообмен излучением и радиационно-кондуктивный теплообмен в ростовых установках и выращиваемых в них кристаллах	156
§ 1. Радиационно-кондуктивный теплообмен (РКТ) в пластине из частично прозрачного материала.	156
§ 2. Приближенное решение задачи РКТ в двухмерной пластине.	161
§ 3. Анализ результатов выполненных расчетов	173
§ 4. Радиационно-кондуктивный теплообмен в кристалле цилиндрической формы, заключенном в оболочку	179
§ 5. Решение задачи теплопроводности цилиндрического кристалла из прозрачного для тепловых лучей материала, расположенного в оболочке	183
§ 6. Радиационный теплообмен в замкнутом пространстве ростовой установки с прозрачной для теплового излучения средой	188
Глава 7. Некоторые задачи теплопроводности и диффузии, встречающиеся при направленной кристаллизации расплава.	192
§ 1. Использование интегрального метода и представления о возмущенном слое при решении задач теплопроводности и диффузии для областей с подвижными границами.	193
§ 2. Задача теплопроводности в кристалле, вытягиваемом из расплава (метод Чохральского)	197
§ 3. Диффузия примесей в расплаве при направленной кристаллизации	200
§ 4. Диффузия примесей в кристалле при направленной кристаллизации	203
§ 5. Анализ полученных решений и некоторые результаты выполненных расчетов.	205
Список литературы	214

Введение

В настоящее время в науке и технике находят широкое применение монокристаллы полупроводниковых, оптических, металлических и других материалов. На их основе возникло принципиально новое научное направление — монокристаллическое материаловедение. Они применяются в нелинейной оптике, квантовой электронике, микроэлектронике, энергетике и других областях. Широко применяемое в промышленности выращивание кристаллов из расплава представляет сложный физико-химический процесс, в котором исключительно важную роль, зачастую определяющую качество получаемых монокристаллов или возможность их выращивания, играет тепло- и массоперенос. Для получения качественных кристаллов должны строго соблюдаться определенные тепловые условия, которые зависят от теплофизических характеристик материала и размеров выращиваемых монокристаллов. Опыт выращивания монокристаллов из расплава показывает, что переход на выращивание более крупных кристаллов по ранее отработанной технологии вызывает большие затруднения, так как изменяются тепловые условия роста.

Основная часть настоящей монографии посвящена исследованию процессов тепло- и массопереноса при выращивании высокотемпературных монокристаллов (лейкосапфир, ИАГ) по методам горизонтальной и вертикальной направленной кристаллизации (ГНК и ВНК). Разработанный в ИКАНе метод ГНК широко известен в литературе как метод Багдасарова.

В основу монографии положены теоретические и экспериментальные исследования, проводимые на кафедре «Теплоэнергетика железнодорожного транспорта» МИИТа с 1971 по 1990 год для лаборатории высокотемпературной кристаллизации ИКАНа. В книге использованы также работы авторов, выполненные до 2002 года. Материалы, изложенные в монографии, докладывались на семинарах, конференциях, международных научных форумах и освещались в печати. Авторы не ставили своей целью анализ других работ в этой области.

В гл. 1 введены понятия периодов цикла получения монокристаллов из расплава, фиксированных состояний, а также обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава. Обсуждаются модели процессов теплопереноса для периодов обобщенного цикла, приводится примерная классификация этих моделей. Подробно рассматривается изменение высоты кристалла и столба расплава в процессе выращивания.

Вторая глава посвящена экспериментальному исследованию тепловых режимов в установках ГНК. Приводится методика исследования, устройства для выполнения измерений и полученные результаты. Определены температура в тепловой системе и элементах ростовой установ-

ки, форма и положение фронта кристаллизации, длина зоны расплава и скорость кристаллизации в процессе роста кристалла. Разработана методика комплексного экспериментального исследования тепловых процессов в цикле ГНК.

В гл. 3 приводятся упрощенные математические модели теплопереноса для периодов цикла ГНК. Сформулированы задачи и составлены программы для расчета условно-фиксированных состояний системы и состояний ее в процессе роста кристалла, по которым выполнены расчеты. Даны рекомендации по получению монокристалла с постоянной высотой по длине, а также ведения цикла с остановкой лодочки и снижением мощности нагревателя. Последнее позволяет сократить длительность цикла и расход электроэнергии. Выводы по результатам выполненных расчетов и экспериментальных исследований совпадают.

В гл. 4 излагаются результаты экспериментального исследования тепловых режимов в установке для выращивания монокристаллов по методу ВНК. Опыты проводились на установках с прутковым и телескопическим нагревателями. Показано, что скорость кристаллизации может быть больше и меньше скорости опускания контейнера. Опыты на моделирующем материале подтвердили результаты опытов при выращивании монокристаллов.

В гл. 5 приводятся результаты аналитического исследования тепловых процессов в установках ВНК. На основе разработанных упрощенных моделей теплопереноса для ВНК сформулированы задачи и выполнены расчеты начального состояния системы и состояния ее в процессе роста монокристаллов. Показано влияние на начальное состояние системы термического сопротивления теплоотводящего стержня $R_{ТС}$. Увеличение $R_{ТС}$ приводит к выводу фронта кристаллизации из нагревателя и позволяет при тех же размерах установки выращивать монокристалл большей длины. Рассмотрено ведение цикла с остановкой контейнера и снижением мощности нагревателя.

Глава 6 посвящена исследованию радиационного и радиационно-кондуктивного теплообмена (РКТ) в ростовых установках. Приводятся некоторые сведения о лучистом теплообмене, которые используются в дальнейшем. Сформулированы математические модели РКТ в двумерной пластине на подложке и цилиндре конечных размеров в оболочке. Для расчета РКТ в пластине использован зональный метод в сочетании с интегральным представлением уравнения энергии. Выполненные расчеты показали существенное влияние переноса тепла излучением на температурное поле в кристалле. Были выполнены расчеты теплообмена в прозрачном для теплового излучения кристалле, заключенном в оболочку, и в пластине. Рассмотрен теплообмен излучением в ростовой установке с диатермичной средой.

В гл. 7 рассмотрено использование представлений о возмущенном слое и интегралов уравнений энергии и массы для решения задач теплопроводности и диффузии. Приводятся решения задач теплопровод-

ности и диффузии в твердой фазе и расплаве. Показано, что наличие скачка плотности материала на фронте кристаллизации приводит к дополнительному движению расплава и появляется искомая граница на его внешней поверхности. Анализ полученных решений задач позволил получить ценные данные для выращивания монокристаллов из расплава.

ВЫРАЩИВАНИЕ МОНОКРИСТАЛЛОВ ИЗ РАСПЛАВА

§ 1. Методы выращивания монокристаллов

Известно, что большинство технически ценных монокристаллов выращивается из расплава методами направленной кристаллизации. Кратко остановимся на методе Чохральского (как модельном методе), для которого характерны основные проблемы расплавной кристаллизации [1]. Кроме метода Чохральского интерес представляют разработанные методы: ВНК (Бриджмена) и ГНК (Багдасарова), которые широко используются для выращивания технически ценных монокристаллов.

На рис. 1 представлена принципиальная схема метода Чохральского [2-6].

При выращивании монокристаллов указанным методом в тигель 1 с перегретым расплавом 2, находящийся в зоне нагревателя 3, опускается затравочный кристалл 5. После прогрева и оплавления нижней части затравочного кристалла начинается его выращивание путем вытягивания растущего монокристалла из расплава. Его диаметр зависит от многих факторов и, прежде всего, от температуры расплава, скорости выращивания и теплопроводности расплава и кристалла. На начальной стадии процесса происходит увеличение диаметра вытягиваемого кристалла. Процесс стабилизиру-

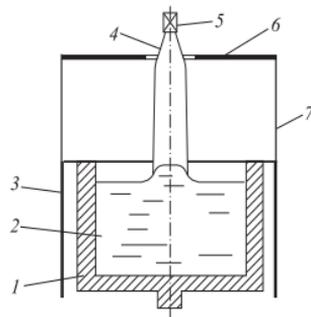


Рис. 1. Схема выращивания монокристаллов по методу Чохральского: 1 — тигель; 2 — расплав; 3 — нагреватель; 4 — монокристалл; 5 — затравочный кристалл; 6 и 7 — тепловые экраны

ется, когда указанные факторы становятся относительно постоянными. С целью создания таких условий, растущий монокристалл экранирован системой 6–7.

В процессе выращивания монокристалла вблизи фронта роста в расплаве возникают конвективные потоки, интенсивность которых зависит от тепловых условий кристаллизации. Кроме этого, имеет место понижение уровня расплава в тигле, что также влияет на тепловые условия кристаллизации. Указанные проблемы решаются путем интенсивного вращения затравочного кристалла и тигля навстречу друг к другу.

Средняя скорость выращивания монокристаллов с помощью данного метода составляет $2,5 \div 10$ мм/ч (для диэлектриков, типа оксида алюминия) и $1 \div 1,5$ мм/мин (для полупроводников, типа кремния). Скорость вращения монокристалла порядка 60 об/мин.

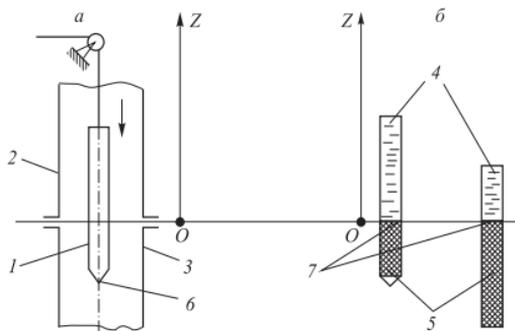


Рис. 2. а, б. Схема выращивания монокристаллов по методу Бриджмена: 1 — контейнер; 2 — нагреватель; 3 — кристаллизатор; 4 — расплав; 5 — монокристалл; 6 — затравочный кристалл; 7 — фронт роста

На рис. 2,а, б представлена схема выращивания монокристаллов по методу Бриджмена [2, 4, 7]. Контейнер 1, заполненный исходной шихтой, вводится в зону нагрева 2. После расплавления материала 4 контейнер, с помощью механизма перемещения, опускается вниз. Нижняя часть его с затравочным кристаллом 6 выходит из зоны нагрева и кристаллизуется. В процессе перемещения контейнера увеличивается длина растущего монокристалла 5 и уменьшается длина зоны расплава. Чаще всего контейнер имеет коническую форму дна (см. рис. 2, а), которая за счет геометрического отбора [1] позволяет выращивать монокристаллы. Скорость опускания контейнера зависит от химического состава выращиваемого монокристалла и находится в пределах $1 \div 5$ мм/ч.

Для метода Бриджмена характерно перемещение фронта роста — 7 в неподвижной системе координат OZ .

Развитие метода Бриджмена связано с именем Стокбаргера, который предложил (с целью повышения однородности монокристаллов) увеличить осевую составляющую градиента температуры на фронте роста с помощью тепловой диафрагмы.

Окончательное оформление метода Бриджмена связано с выращиванием монокристаллов с использованием затравочного кристалла. В литературе этот метод получил название метода вертикально направленной кристаллизации (ВНК). Его схема представлена на рис. 3.

При получении монокристалла по методу ВНК [2, 3, 7] (рис. 3) молибденовый цилиндрический контейнер — 2, установленный на теплоотводящем молибденовом стержне — 5, заполняется исходным материалом (например, в виде крошки). Теплоотводящий стержень с контейнером вводится снизу вверх в нагреватель сопротивления — 1. Весь материал расплавляется и перегревается. После установления стационарного теплового состояния контейнер выводится из зоны нагрева. Расплав в нижней части контейнера охлаждается и начинается его кристаллизация. По мере опускания контейнера вниз возрастает длина кристалла — 4 и уменьшается высота столба расплава — 3. Как уже отмечалось, фронт роста — 6 и свободная поверхность расплава — 7 изменяют свое положение в пространстве. Средняя скорость перемещения контейнера порядка 1–5 мм/ч. Метод целесообразно применять при выращивании монокристаллов цилиндрической формы, а также в тех случаях, когда нежелательно интенсивное испарение кристаллизующего вещества [4].

При выращивании монокристаллов по методу Багдасарова (ГНК) [2, 3, 7] (рис. 4) контейнер — 1, заполненный исходным материалом — 2, устанавливается конической частью в зону нагрева — 3. Материал в зоне нагрева расплавляется и перегревается. После установления стационарного состояния начинается перемещение контейнера с кристаллизующим веществом. Расплав в конической части контейнера — 6 охлаждается и начинается его кристаллизация. По мере перемещения контейнера с кристаллизующим веществом увеличивается длина растущего монокристалла — 4.

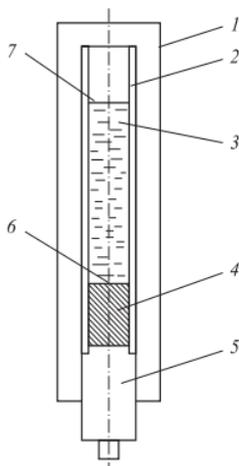


Рис. 3. Схема выращивания монокристалла по методу ВНК: 1 — нагреватель; 2 — контейнер; 3 — расплав; 4 — монокристалл; 5 — теплоотводящий стержень; 6 — фронт роста; 7 — свободная поверхность расплава

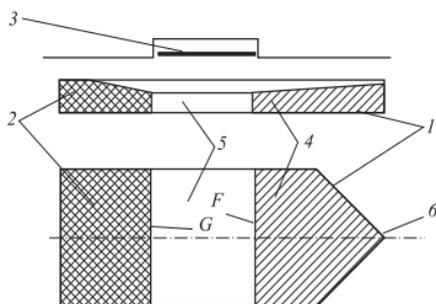


Рис. 4. Схема выращивания монокристаллов по методу Багдасарова: 1 — контейнер; 2 — исходный материал; 3 — нагреватель; 4 — монокристалл, 5 — расплав; 6 — начальная часть контейнера

В данном случае следует рассматривать три состояния: шихта (исходный материал), монокристалл и расплав. Процесс выращивания считается законченным, когда весь расплав закристаллизуется, а монокристалл охладится до заданной температуры.

1.1. Основные понятия кристаллизации. Математическое рассмотрение тепловых условий кристаллизации требует введения определенных понятий [4]:

Ростовая установка — совокупность устройств и связей, обеспечивающих выращивание монокристаллов из расплава. Она состоит из: нагревателя, тепловых экранов, системы стабилизации и управления тепловой мощностью, механизма перемещения, вакуумной системы и системы водяного охлаждения.

Основными элементами, определяющими процесс выращивания монокристалла, являются: тепловой узел и тепловая система.

Тепловой узел состоит из активных и пассивных элементов.

Активные элементы — это источник нагрева и устройства, предназначенные для уменьшения отвода тепла от тепловой системы.

Пассивные элементы — это блоки экранов, которые устанавливаются перед контейнером с шихтой и после него.

В качестве источника нагрева наиболее часто применяется электрическая печь сопротивления.

Тепловая система состоит из следующих элементов: контейнера (тигля); устройства для отвода тепла от расплава и кристалла, а также других элементов, непосредственно связанных с контейнером и перемещающихся вместе с ним (например, в методе ГНК таковыми являются: поддон и расположенная на нем система тепловых экранов). В контейнере находится шихта (исходный материал), расплав и монокристалл. Шихта может быть в виде монокристаллической крошки, средним диаметром порядка 1 мм, а также в виде порошка. Расплав

может содержать легирующие примеси, специально добавляемые при выращивании монокристаллов.

Обобщенный цикл выращивания монокристалла состоит из: физических процессов нагрева контейнера с шихтой, плавления исходной шихты, кристаллизации расплава и охлаждения выросшего монокристалла.

1.2. Обобщенный цикл направленной кристаллизации. Тепловые процессы кристаллизации для всех методов кристаллизации из расплава являются общими. Это определяется тем, что общим является:

- плавление всего исходного вещества (или части его) в контейнере;
- перегрев расплава до определенной температуры;
- охлаждение расплава до температуры фазового перехода;
- кинетика кристаллизации, непостоянство объема расплава и диффузионные процессы на фронте роста;
- перемещение кристалла из активной зоны нагрева в зону кристаллизации, которое строго контролируется;
- снижение электрической мощности на нагревателе с целью охлаждения выросшего монокристалла;

Отмеченные факторы определяют понятие обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава [7–9, 12], схема которого представлена на рис. 5.

В состав стандартной кристаллизационной установки входят следующие системы: строго контролируемой внешней среды (атмосферы кристаллизации), механического перемещения контейнера с кристаллизуемой шихтой и электропитание, снабженное прецизионной стабилизацией мощности и ее управлением. Основными элементами этой системы являются (см. рис. 5): тепловой узел — 1, который определяет взаимосвязь с тепловой системой — 2, состоящей из контейнера — 3, специальных устройств — 4, жестко связанных с контейнером и перемещающихся вместе с ним (поддон и экранные блоки, расположенные на нем); устройство для отвода тепла от расплава и кристалла — 5 (например, затравочный кристалл — в методе Чохральского, теплоотводящий стержень — в методе ВНК), устройства подпитки контейнера расплавом и механизм перемещения контейнера с расплавом — 6. Между расплавом и кристаллом находится фронт кристаллизации F .

Известно, что внешние границы материала в контейнере определяются его стенками и свободными поверхностями монокристалла [10, 11]. В случае ВНК и ГНК эти границы могут быть представлены в следующем виде:

$$S = S^C + S^F,$$

где S^C и S^F — фиксированные и свободные внешние поверхности материала в контейнере, соответственно. Как правило, поверхности F , G и S^F являются искомыми, поскольку они могут менять свое

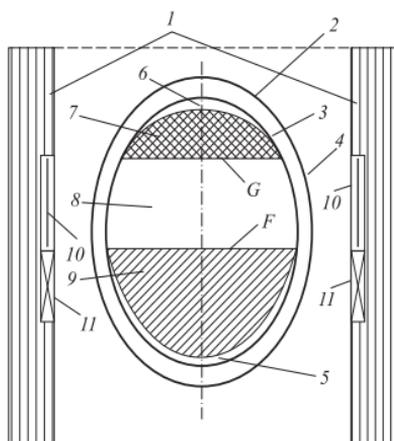


Рис. 5. Схема к обобщенному циклу направленной кристаллизации расплава: 1 — тепловой узел; 2 — тепловая система; 3 — контейнер; 4 — конструкции, связанные с контейнером; 5 — устройство для отвода тепла от расплава; 6 — устройство для подпитки контейнера расплавом; 7 — исходный материал; 8 — расплав; 9 — кристалл; 10 — нагреватель сопротивления; 11 — обогреваемые защитные устройства для уменьшения отвода тепла от контейнера; F — фронт кристаллизации; G — граница плавления исходного материала

положение и форму в процессе выращивания монокристалла. Экспериментально установлено, что в методе ГНК, например, искомыми являются поверхности: кристалла S_K^F , расплава S_P^F , а также F и G . В методе Чохральского — S_P^F, S_K^F . В методе ВНК — S_P^F .

Конструкция теплового узла — 1 имеет активные и пассивные поверхности. Активные поверхности — это те части нагревателя — 10, благодаря которым происходит плавление шихты. Кроме того, активными поверхностями являются и обогреваемые защитные устройства — 11. Необходимо отметить, что конструктивные составляющие теплового узла постоянны, а переменными являются: шихта, расплав и монокристалл.

1.3. Периодизация процессов роста монокристаллов. В обобщенном цикле выращивания монокристаллов из расплава периоды цикла отличаются сочетанием и расположением различных состояний материала в контейнере, а также протекающими в нем физико-химическими и химическими процессами [11, 12]. В работах [13, 14] периодизация циклов была использована при математическом анализе различных методов выращивания монокристаллов. В нашем же случае понятие «периодизация обобщенного цикла» введена для того, чтобы

ее можно было использовать по общим показателям для всех методов выращивания монокристаллов из расплава. В связи с непрерывностью процесса кристаллизации потребовалось также понятие «подпериоды» отдельных периодов цикла.

В самом общем виде полный цикл выращивания монокристалла можно представить следующим образом. Вначале контейнер вводится в активную часть теплового узла (нагревателя). Начало ввода контейнера с шихтой или начало подъема мощности является началом цикла. Ввод в нагреватель может быть либо всего контейнера с шихтой, либо его части. Период от начала цикла до начала плавления шихты является периодом прогрева шихты. При дальнейшем подводе тепла происходит плавление всей шихты или ее части. Образовавшийся расплав нагревается до заданной температуры. Установление равновесного состояния достигается определенной выдержкой расплава, после которой начинается перемещение контейнера. Завершается процесс кристаллизации охлаждением контейнера с монокристаллом до определенной температуры. Период от начала плавления шихты до начала ее охлаждения является периодом плавления шихты.

Кристаллизация из расплава является процессом теплофизическим. Отвод тепла от расплава осуществляется выводом части тепловой системы из активной зоны теплового узла. В результате отвода тепла температура расплава на элементарной площадке dS , расположенной нормально к направлению кристаллизации, снизится до температуры фазового перехода, после чего начнется процесс кристаллизации. Период от начала перемещения контейнера до начала кристаллизации называется периодом охлаждения расплава.

Период цикла от начала кристаллизации расплава до окончания расплавления шихты является первым периодом. Для этого периода цикла характерно наличие трех состояний кристаллизуемого вещества: монокристалла, расплава и шихты. Если до начала кристаллизации вся шихта была предварительно расплавлена, то первого периода не будет.

Второй период цикла — между окончанием плавления шихты (для ГНК) или началом кристаллизации расплава (для случая предварительного плавления шихты) и окончанием кристаллизации расплава. Для этого цикла характерно наличие двух состояний кристаллизуемого вещества: монокристалла и расплава.

После окончания кристаллизации расплава происходит охлаждение образовавшегося монокристалла. Во время его охлаждения имеет место регулируемый отвод тепла. Окончанием цикла является прекращение регулируемого отвода тепла. Третий период является периодом между окончанием кристаллизации расплава и охлаждением кристалла до заданной температуры.

Фиксированные состояния тепловой системы [12, 15], это состояния на границах периодов, а также начало и конец цикла. В обобщенном цикле следует различать следующие фиксированные состояния тепловой системы: начало цикла, начало плавления шихты, начало охлажде-

ния расплава, окончание плавления шихты, окончание кристаллизации расплава, окончание цикла.

§ 2. Математическое моделирование процессов тепло- и массопереноса при направленной кристаллизации расплава

2.1. Общие представления о математическом моделировании.

Математическое моделирование широко применяется в самых различных областях науки и техники, в том числе и при выращивании монокристаллов. Оно является необходимой частью исследования самых разнообразных технологических процессов [16–35].

Остановимся на некоторых общих вопросах математического моделирования физических процессов. В [16] приводится следующее определение. Математическая модель — приближенное описание какого-либо класса явлений внешнего мира, выполненное с помощью математической символики. Математическое моделирование — мощный метод познания внешнего мира, а также прогнозирования и управления. Анализ математических моделей позволяет проникнуть в сущность изучаемых явлений.

Реальный физический процесс характеризуется многими физическими величинами, а протекание его зависит от значительного количества причин. Учесть все это при составлении математической модели зачастую не представляется возможным. В связи с этим используется упрощенное представление. В [17] автор пишет, что: «В физике говорят об открытии таких понятий, как энтропия или температура или о некоторых свойствах тел. В действительности эти понятия и свойства устанавливаются как составные характеристики и свойства придуманных в науке физических моделей». К аналогичному выводу приходят и другие исследователи: «Физическая модель процесса предполагает такой уровень его описания, когда выделяются главные черты, оказывающие определяющее влияние на ход процесса, а второстепенными пренебрегают на основании количественных оценок или интуиции исследователя». «Построение физической модели является необходимой составной частью исследования технологического процесса. Если такая модель построена, то математическая модель в виде системы уравнений процесса и краевых условий должна точно отображать физическую модель» [18]. Термин «физическое приближение» используется в [19]. В [20] рассматривается понятие тепловой модели. В [21] отмечается, что физическая постановка задач отражает определенную степень абстракции реально существующих процессов. «Достигается эта степень абстракции, конечно, определенной ценой. Тут два требования, которым приходится удовлетворять: во-первых, из всей совокупности факторов нужно выделить главные, определяющие данный процесс; во-вторых, сделать это нужно так, чтобы математическое описание

процесса допускало его исследование теми средствами, которые можно использовать для достижения поставленной цели». В [22] дается следующее определение: «Тепловая схема — описание физического явления, включающего только те особенности явления, которые связаны с тепловой энергией (тепловая модель)». Понятие физической модели процесса как инструмента для исследования тепло- и массопереноса используется в работах [23–29]. В [30] дается вариант классификации математических моделей.

Анализ математического моделирования, применительно к направленной кристаллизации расплава, позволяет характеризовать его по следующим признакам:

- по числу потенциалов физических величин, которые должны быть определены в результате исследования модели. При отыскании одного потенциала, например, температуры или концентрации примесей в расплаве, модель называется простой или ординарной. При двух и более потенциалах — совместной, например, отыскание распределения температуры и концентрации примесей в расплаве в процессе его кристаллизации;

- по взаимосвязи потенциалов. Один из двух или нескольких потенциалов может влиять на другие параметры. Например, при решении совместной задачи кристаллизации расплава и определения концентрации примеси в нем. Задача может быть с односторонним влиянием: температурное поле влияет на скорость кристаллизации, что в свою очередь оказывает влияние на распределение примесей в расплаве. При постоянной температуре кристаллизации поле концентраций в расплаве не влияет на распределение температуры в системе. Если температура кристаллизации будет зависеть от концентрации примесей на фронте роста, то в этом случае концентрация примесей в расплаве будет оказывать влияние на температурное поле и взаимное влияние потенциалов будет двухсторонним;

- по числу сопрягаемых сред, в которых определяются поля одного потенциала. Если число таких сред будет две или более, то модель называется сопряженной. Модель кристаллизации расплава в контейнере будет сопряженной. На границах контакта двух сред задаются условия сопряжения. В методе ГНК, например, три разновидности вещества (монокристалл, расплав и шихта) и две границы сопряжения: фронт кристаллизации расплава и граница плавления шихты;

- по зависимости потенциалов от времени модели могут быть нестационарными и стационарными. Например, при малой скорости роста распределение температур в тепловой системе может быть рассмотрено как квазистационарное (приближенно стационарное);

- по зависимости потенциалов от пространственной координаты. Модели могут быть одно-, двух- и трехмерные. Например, поле температур в монокристалле германия, выращиваемом из расплава по методу Чохральского, может рассматриваться как одномерное и двухмерное;

— по форме и характеру изменения области, в которой рассматривается физический процесс. Модели могут быть с известной или определяемой из решения задачи геометрической формой, с фиксированными границами, или с одной или несколькими искомыми границами. Например, в методе ВНК имеет место цилиндрическая форма контейнера и шихты; в методе ГНК искомой является высота кристалла по длине;

— по видам переноса энергии модели подразделяются на модели теплопроводности, конвективного теплообмена, радиации, сложного теплообмена. Последние будут иметь место, когда в рассматриваемой среде перенос энергии осуществляется двумя или тремя путями. Например, при выращивании монокристаллов из частично прозрачных для теплового излучения материалов (лейкосапфир, иттрий-алюминиевый гранат, алюминат иттрий и др.) в кристалле имеет место сложный радиационно-кондуктивный перенос тепла (энергия переносится путем молекулярной теплопроводности и радиации);

— по виду уравнений, описывающих процесс. Модели могут быть алгебраические, дифференциальные обыкновенные, дифференциальные в частных производных, интегральные, интегродифференциальные;

— по форме граничных условий. Форма граничных условий зависит от вида переноса энергии.

Модели могут быть линейными и нелинейными. В линейных моделях искомые потенциалы в уравнениях и граничных условиях первой степени, а все коэффициенты в уравнениях и граничных условиях не зависят от потенциалов. (Граничные условия для радиации и сопряженных задач будут рассмотрены ниже).

Модели могут быть изоморфными и гомоморфными. Изоморфные модели предусматривают точное совпадение всех свойств с реальным процессом. Гомоморфные модели предполагают соответствие с реальным процессом по определенному свойству.

Математические модели тепловых процессов можно разбить на абстрактные (формальные) и симуляционные (реализованные) [32]. Абстрактная модель является формальной. Она позволяет описать процесс системой математических уравнений. Симуляционная модель обозначает модель, реализованную с помощью технических средств, например, ЭЦВМ, АВМ и ГВС.

Под операционной математической моделью подразумевается математическая модель, приведенная к виду, удобному для реализации на ЭЦВМ или другом симуляционном средстве.

Изложенные выше характеристики моделей относятся к случаю, когда известно феноменологическое описание исследуемых процессов. Если феноменологическое описание процесса невозможно, то проводится натурный эксперимент, исследуется «черный ящик» и устанавливается опытным путем зависимость между характеристиками процесса. На их основе может быть создана математическая модель, но эта модель не будет отражать физическую сущность анализируемого

процесса. Она будет давать лишь зависимость между интересующими исследователя величинами.

При изложении материала в данной книге мы будем использовать термин «физическая модель процесса». Таким образом, физическая модель процесса — это некоторое упрощенное представление о реальном процессе, которое необходимо для составления математической модели. Физическая модель будет представлена в виде текста описания процесса и в отдельных случаях может быть дополнена схемами.

Следует различать термины: физическое моделирование и физическая модель. Понятие физическое моделирование подразумевает исследование физического процесса на натурной модели или в реально существующем технологическом объекте.

2.2 Граничные условия. Различают граничные условия молекулярной теплопроводности, радиации, сопряженных задач с фазовыми переходами на границах. В случае сложного переноса энергии записываются граничные условия отдельно для разных видов переноса тепловой энергии. В этой связи для задач теплопроводности граничные условия могут быть первого, второго, третьего и четвертого рода. Например, при граничных условиях первого рода задается температура — T_b . При граничных условиях второго рода задается поверхностная плотность тепловых потоков — q_b . При граничных условиях третьего рода задается коэффициент теплообмена α в виде:

$$q_b = \alpha (T_f - T_b). \quad (1)$$

При граничных условиях четвертого рода (в случае идеального контакта двух разнородных материалов) задается равенство температур и тепловых потоков.

$$T_{1b} = T_{2b}, -\lambda_1 \left. \frac{\partial T_1}{\partial n} \right|_b = -\lambda_2 \left. \frac{\partial T_2}{\partial n} \right|_b. \quad (2)$$

2.3. Последовательность составления математической модели.

Для реального физического процесса, протекающего в установке (аппарате или устройстве), составляется физическая модель. На стадии составления физической модели решается вопрос о том, какие основные факторы определяют рассматриваемый процесс. Кроме того, решается вопрос, связанный с вводимыми упрощениями (допущениями). Эти упрощения могут быть введены в связи с несущественным влиянием отдельных параметров процесса на интересующий нас конечный результат, а также с необходимостью упрощения математической модели. Последнее связано не только со сложностью задачи, но и с возможностью решения сформулированной задачи, исходя из имеющихся математических средств, времени и материальных затрат.

При составлении математической модели должна быть определена пространственная область, в которой протекает рассматриваемый процесс, начальные условия, а также его временной интервал. На

границах области должны быть заданы граничные условия. Если модель сопряженная, то должны быть заданы граничные условия на сопряженных границах. Для рассматриваемой области должны быть записаны уравнения массы, энергии, уравнения переноса. Если в сопряженной модели несколько областей, граничащих друг с другом, то эти уравнения записываются отдельно для каждой из областей.

На основании математической модели формулируются задачи, которые могут быть прямыми или обратными. Прямыми называются задачи, в которых заданы причины, а искомыми величинами являются следствия. Обратные задачи — это задачи, в которых заданы следствия, а искомыми являются причины. Математическая модель обычно записывается в неявной форме. В большинстве случаев она соответствует математической постановке прямой задачи. Такую модель в [22] называют математической моделью первого рода.

Если прямая задача на основе математической модели может быть решена аналитически, то полученное решение согласно [22] называют математической моделью второго рода. Обычно, однако, приходится иметь дело в росте монокристаллов с математическими моделями первого рода.

Математические модели и сформулированная на их основе задача может быть записана в различных системах координат: прямоугольной, цилиндрической, сферической и полярной. Эти системы координат могут быть как строго фиксированными в пространстве, так и подвижными.

Для решения сформулированных задач разрабатывается программа расчета на ЭВМ. Результаты расчета сравниваются с данными испытаний реального объекта. Эти сравнения подтверждают или отрицают адекватность математической модели физическому процессу. В последнем случае в модели (физическую или математическую) вводятся коррективы.

2.4. Физические и математические модели процессов тепло- и массопереноса обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава. При создании математической модели тепло — и массопереноса для обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава необходимо допустить, что монокристалл, расплав и шихта представляют собой сплошные среды, для которых известно феноменологическое описание процесса тепло- и массопереноса и теплофизические параметры всех состояний кристаллизующего вещества.

Остановимся на анализе периодов обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава, представленных на рис. 6.

На рис. 6, *а* представлена схема нагрева шихты до температуры плавления. На рис. 6, *б* — полное (или частичное) плавление исходной шихты и перегрев расплава. В точке *К* на границах ожидаемой кристаллизации расплава имеет место подвод тепла. Расплав в точке *К* перегрет. На рис. 6, *в* — охлаждение расплава. В области *К*

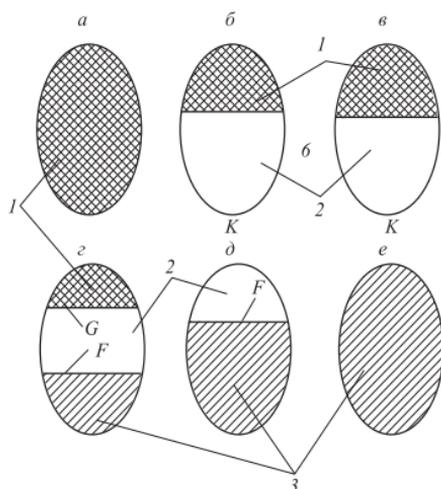


Рис. 6. Периоды обобщенного цикла направленной кристаллизации расплава: 1 — шихта; 2 — расплав; 3 — монокристалл; K — точка отвода тепла от расплава; F — фронт роста; G — граница плавления исходного материала; $a, б, в, г, д, е$ — периоды цикла

осуществляется отвод тепла. Период заканчивается при охлаждении расплава до температуры фазового перехода в точке K . На рис. 6, $г$ — первый период цикла, в контейнере находятся все три состояния кристаллизуемого вещества: монокристалл, расплав и шихта. Между ними границы раздела кристаллизации — F и плавления — G . На рис. 6, $д$ — второй период цикла. В контейнере находятся два агрегатных состояния кристаллизуемого вещества: монокристалл и расплав. Между ними граница — F . На рис. 6, $е$ — третий период цикла. В контейнере находится только монокристалл.

Таким образом, (согласно рис.6) все периоды цикла отличаются числом агрегатного состояния кристаллизуемого вещества и процессами, происходящими в них. В этой связи, для каждого периода формулируется своя математическая модель процесса. Все периоды процесса кристаллизации не стационарные, а температурное поле трехмерное.

Если агрегатных состояний несколько, то математическая модель будет сопряженной. Это дает возможность решить задачи переноса тепла и распределения легирующих примесей. Например, при кристаллизации тугоплавких диэлектриков перенос тепла в монокристалле осуществляется с помощью механизмов молекулярной теплопроводности и радиации. Поэтому, в каждом периоде цикла для всех агрегатных состояний записываются уравнения сохранения массы, энергии и