

05

## **Колебания фронта кристаллизации, вызванные гармоническими осцилляциями скорости вытягивания, для цилиндрической фазы роста кристалла**

© М.Г. Васильев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург  
E-mail: vasiliev.mg@yandex.ru

Поступило в Редакцию 16 июля 2016 г.

Для низкоградиентного способа выращивания Чохральского предложен метод измерения площади поперечного сечения кристалла с помощью весового датчика по разнице его показаний в крайних положениях штока при ступенчатом и непрерывном режиме модуляции скорости вытягивания. Произведена оценка изменения скорости кристаллизации при гармонических колебаниях скорости вытягивания с целью сохранения качества выращиваемого кристалла при этом методе измерения.

DOI: 10.21883/PJTF.2017.03.44222.16427

В случае выращивания монокристаллов с помощью метода Чохральского остро стоит вопрос об устойчивости процесса управления ростом кристаллов из расплавов, расширяющихся при затвердевании, и кристаллов, у которых угол роста больше нуля (группа  $A^{III}B^V$ , германий, кремний). В ходе роста указанных выше кристаллов возникает так называемая аномальная зависимость весового сигнала от времени или длины кристалла. Она проявляется в том, что повышение температуры, вызывающее уменьшение диаметра и фактического веса кристалла, из-за увеличения при этом высоты мениска расплава сопровождается увеличением сил, действующих на датчик веса. На это система управления реагирует дальнейшим увеличением температуры и, следовательно, теряет устойчивость. Для преодоления данного явления в настоящее время имеется две возможности. Первая из них состоит в использовании ряда моделей контроля как радиуса кристалла, так и скорости

выращивания [1–11], используя показания весового датчика; вторая — представляет собой непосредственное прямое измерение диаметра. Эту возможность можно реализовать как чисто оптическим путем [12], так и с помощью модуляции скорости вытягивания с дальнейшим измерением изменения уровня расплава [13] либо измерения веса кристалла в крайних положениях штока [14,15].

В настоящей работе производится оценка изменения скорости кристаллизации для гармонических колебаний скорости вытягивания с целью сохранения качества выращиваемого кристалла при данном методе измерения. Другими словами, если скорость роста кристалла меняется незначительно, что можно обеспечить соответствующим выбором величины амплитуды колебаний штока согласно результатам настоящей статьи, то метод измерения из [14] можно использовать.

Осцилляции скорости вытягивания  $V_P$

$$V_P = V_{P0} - \omega \delta_P^0 \sin(\omega t) \quad (1)$$

вызывают изменения температурного поля в кристалле и расплаве, что и приводит к колебаниям скорости кристаллизации. Здесь  $V_{P0}$  — постоянная составляющая скорости вытягивания;  $\omega$ ,  $t$  — угловая скорость и время;  $\delta_P^0$  — амплитуда колебаний штока.

Для упрощения задачи по оценке зависимости скорости кристаллизации от скорости вытягивания  $V_P$  (1) сделаем ряд предположений. Фронт кристаллизации является плоским, а кристалл и расплав непрозрачны. Амплитуды колебаний штока и фронта кристаллизации существенно меньше высоты мениска расплава. Радиус кристалла существенно больше высоты мениска. Кристалл считается достаточно длинным, по крайней мере, больше длины тепловой волны, вызванной осцилляциями фронта кристаллизации. Невозмущенная постановка задачи в данной работе означает рост кристалла с постоянными значениями скорости  $V_g$  кристаллизации, радиуса кристалла  $r_C^0$  и скорости вытягивания  $V_{P0}$ , а следовательно, и высоты столбика мениска  $h_0$ . Возмущенная задача с осцилляциями скорости вытягивания в виде (1) будет рассматриваться как малое возмущение исходной задачи. При решении проблем теплообмена будет сохраняться геометрия невозмущенной постановки, а возмущения будут учитываться сносом граничных условий на неподвижные границы, как это предлагается в монографии [16].

Поле температуры в столбике расплава представляем в виде суммы стационарного поля  $T_L^0$ , соответствующего росту с постоянной скоростью, и возмущенного поля  $T_L$ . Стационарное поле имеет вид  $T_L^0 = T_M + \Delta T_L(1 - z/h_0)$ , где  $T_M$  — температура плавления, а  $\Delta T_L$  — превышение температуры в основании мениска над температурой плавления. В пренебрежении движением расплава внутри мениска уравнение и граничные условия принимают вид

$$\rho_L c_L \frac{\partial T_L}{\partial t} = \lambda_L \frac{\partial^2 T_L}{\partial z^2}, \quad T_L \Big|_{z=-\Delta H(t)} = 0, \quad T_L \Big|_{z=h_0+\delta_P(t)-\delta_C(t)} = 0. \quad (2)$$

Здесь  $\rho_L$ ,  $c_L$  и  $\lambda_L$  — объемная плотность, теплоемкость и коэффициент теплопроводности расплава;  $\delta_P$  — смещение фронта кристаллизации, вызванное осцилляциями скорости вытягивания;  $\delta_C$  — дополнительное смещение фронта, вызванное возмущением скорости кристаллизации;  $\Delta H$  — смещение вниз уровня расплава. Граничные условия в (2) можно снести на границы невозмущенного столба расплава и записать их в следующем виде:

$$T_L \Big|_{z=0} = -G_L \Delta H(t), \quad T_L \Big|_{z=h_0} = G_L (\delta_P(t) - \delta_C(t)), \quad (3)$$

где  $G_L = \Delta T_L/h_0$  — значение невозмущенного градиента температуры в расплаве. Для определения всех оставшихся величин требуется привлечение уравнений „капиллярной“ задачи [8]

$$\begin{aligned} V_g + V_C(t) &= V_{P0} + i\omega\delta_P^0 \exp(i\omega t) - \dot{h}(t) - \dot{H}(t), \\ \dot{H} &= -[\pi\rho_S r_C^2 (V_g + V_C) + \pi\rho_L (C_{rh}\dot{r}_C + C_{ah}\dot{\alpha}_C)]/(\pi\rho_L R^2), \\ \dot{r}_C &= (V_g + V_C) \operatorname{tg} \alpha_C(t), \\ \dot{\alpha}_C &= [V_{P0} + i\omega\delta_P^0 \exp(i\omega t) - C_{\alpha z}(r_C, \alpha_C)(V_g + V_C)]/C_{\alpha n}(r_C, \alpha_C), \end{aligned} \quad (4)$$

где

$$\begin{aligned} C_{rh} &= 2r_C h + r_C^2 h_{r_C} + a_{cap}^2 \cos(\theta_0 + \alpha_C), \\ C_{ah} &= r_C^2 h_{\alpha_C} - a_{cap}^2 r_C \sin(\theta_0 + \alpha_C), \\ C_{\alpha z} &= 1 - \frac{\rho_S r_C^2}{\rho_L R^2} + \left[ h_{r_C} - \frac{1}{R^2} C_{rh} \right] \operatorname{tg} \alpha_C, \quad C_{\alpha n} = h_{\alpha_C} - \frac{1}{R^2} C_{ah}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь  $V_C$  — возмущение скорости кристаллизации;  $h, H$  — текущие значения высоты мениска и слоя расплава;  $r_C, \alpha_C$  — возмущенные значения радиуса и угла наклона боковой поверхности кристалла на фронте;  $a_{cap}, \theta_0$  — значение капиллярной постоянной и угла роста;  $\rho_S$  — удельная плотность ( $c_S, \lambda_S$  — теплоемкость и теплопроводность) кристалла;  $R$  — радиус тигля.

Введем новые переменные  $x = z/h_0$ ,  $\bar{T}_L = T_L + G_L \Delta H(t)$  и будем искать решение в виде

$$\begin{aligned} \delta_P &= \delta_P^0 \exp(i\omega t), & \bar{T}_L &= \hat{T}_L \exp(i\omega t), \\ \delta_C &= \delta_C^0 \exp(i\omega t), & V_C &= i\omega \delta_C^0 \exp(i\omega t), \\ \Delta H &= H_0 - H = \delta H_0 \exp(i\omega t), & h(t) &= h_0 + \delta h_0 \exp(i\omega t), \\ r_C &= r_C^0 + \delta r_C, & \delta r_C &= \delta r_C^0 \exp(i\omega t), & \alpha_C &= \alpha_C^0 \exp(i\omega t). \end{aligned} \quad (6)$$

Напомним, что  $\delta_P^0$  (см. (1)) является положительной величиной, а остальные амплитуды могут иметь комплексные значения, учитывающие фазовый сдвиг. Пренебрегая величинами второго порядка малости в уравнениях (4), получим

$$\begin{aligned} \delta r_C^0 &= \frac{\alpha_C^0 V_g}{i\omega}, & \alpha_C^0 &= \frac{\delta_P^0 - \delta_C^0 C_{\alpha z}^0}{D_\alpha^0}, & D_\alpha^0 &= C_{\alpha n}^0 - iC_{\alpha z, \alpha}^0 V_g/\omega - C_{\alpha z, r}^0 (V_g/\omega)^2, \\ \delta H_0 &= \frac{1}{D_\alpha^0} \left[ \delta_P^0 (h_{\alpha c}^0 - i \frac{V_g}{\omega} h_{r_c}^0 - D_\alpha^0) - \delta_C^0 \left( C_{\alpha z}^0 (h_{\alpha c}^0 - i \frac{V_g}{\omega} h_{r_c}^0) - D_\alpha^0 \right) \right], \\ \delta h_0 &= \frac{1}{D_\alpha^0} \left( h_{\alpha c}^0 - i \frac{V_g}{\omega} h_{r_c}^0 \right) (\delta_P^0 - \delta_C^0 C_{\alpha z}^0), & H_0 &= -\frac{\rho_S}{\rho_L} \left( \frac{r_C^0}{R} \right)^2 V_g, \end{aligned} \quad (7)$$

где верхний индекс „0“ означает, что берется значение на невозмущенном решении. Тогда с учетом (4)–(7) задача (2), (3) принимает вид

$$\frac{d^2 \hat{T}_L}{dx^2} = ia^2 \hat{T}_L, \quad \hat{T}_L \Big|_{x=0} = 0, \quad \hat{T}_L \Big|_{x=1} = G_L \delta h_0, \quad \{a = h_0 / \sqrt{\lambda_L / (\rho_L c_L \omega)}\}, \quad (8)$$

В результате решения задачи (8) возмущенный градиент температуры на фронте кристаллизации будет равен

$$\frac{dT_L}{dz} = G_L \frac{\delta h_0}{h_0} \frac{\bar{a} (\operatorname{sh}(2\bar{a}) + \sin(2\bar{a}) + i [\operatorname{sh}(2\bar{a}) - \sin(2\bar{a})])}{\operatorname{ch}(2\bar{a}) - \cos(2\bar{a})} \quad (\bar{a} = a/\sqrt{2}). \quad (9)$$

Если  $2\bar{a} \ll 1$  (выполняется для германия, если период колебаний меньше  $2 \text{ min}$ ), то выражение существенно упрощается — становится вещественным и с точностью до членов  $O((2\bar{a})^2)$  не зависящим от  $\bar{a}$ , т. е.

$$dT_L/dz = G_L \delta h_0 / h_0. \quad (10)$$

Для определения возмущенного поля температуры в кристалле получаем следующую задачу:

$$\rho_S c_S i \omega T_S = \lambda_S \left( \frac{\partial^2 T_S}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T_S}{\partial r} \right) \right), \quad (11)$$

$$\begin{aligned} T_S|_{z=h_0} &= G_S (\delta p(t) - \delta c(t)), \quad \frac{\partial T_S}{\partial z} \Big|_{z \rightarrow \infty} = 0, \\ -\lambda_S \frac{\partial T_S}{\partial r} \Big|_{r=r_C} &= \alpha_S \left( T_S - \frac{dT_A}{dz} \delta p^0 \right), \end{aligned} \quad (12)$$

где  $G_S$  — абсолютное значение невозмущенного градиента температуры в кристалле вблизи фронта кристаллизации,  $\alpha_S$  — коэффициент теплообмена между боковой поверхностью кристалла и внешней средой, а  $T_A$  — температура внешней среды.

Ограничимся рассмотрением модели „тонкого“ кристалла, для которого число Био  $\text{Bi} = \alpha_S r_C^0 / \lambda_S \ll 1$ . В этом случае задача (11), (12) может быть сведена к одномерной

$$\rho_S c_S i \omega T_S = \lambda_S \frac{d^2 T_S}{dz^2} - \alpha_S \frac{2}{r_C} \left( T_S - \frac{dT_A}{dz} \delta p^0 \right). \quad (13)$$

Обозначим

$$\begin{aligned} x &= (z - h_0) / \sqrt{\frac{\lambda_S}{\rho_S c_S \omega}}, \quad \varepsilon = \frac{2\alpha_S}{r_C^0 \rho_S c_S \omega} = 2 \frac{\text{Bi}}{a_S^2}, \\ a_S &= r_C^0 / \sqrt{\frac{\lambda_S}{\rho_S c_S \omega}}. \end{aligned} \quad (14)$$

Тогда уравнение (13) может быть преобразовано к виду

$$\frac{d^2 T_S}{dx^2} - (i + \varepsilon) T_S + \varepsilon \frac{dT_A}{dz} \delta p^0 = 0. \quad (15)$$

Для оценки решения положим, что  $dT_A/dz \approx -G_S$ . В результате решения уравнения (15) получаем следующее выражение для градиента на фронте кристаллизации:

$$\frac{dT_S}{dz} = -G_S \sqrt{\frac{\rho_S c_S \omega}{\lambda_S}} \left( \delta_P^0 \left( 1 + \frac{\varepsilon}{\varepsilon + i} \right) - \delta_C^0 \right) \sqrt{\varepsilon + i}. \quad (16)$$

В качестве оценки параметра теплообмена можно взять  $\alpha_S = \varepsilon_r 4\sigma T_M^3$ , где  $\varepsilon_r$ ,  $\sigma$  — коэффициент черноты и постоянная Стефана–Больцмана соответственно. Для германия  $\alpha_S \approx 0.02 \text{ W/cm}^2$ . Соответственно число Био для кристалла радиусом  $r_C = 2.25 \text{ cm}$  будет равно  $Bi = 0.3115$ ,  $a_S = 2.015$ . В результате параметр  $\varepsilon$  оказывается малым и равным 0.1534. Это позволяет упростить выражение для градиента (16)

$$\frac{dT_S}{dz} = -G_S (\delta_P^0 - \delta_C^0) \sqrt{\frac{\rho_S c_S \omega}{2\lambda_S}} (1 + i). \quad (17)$$

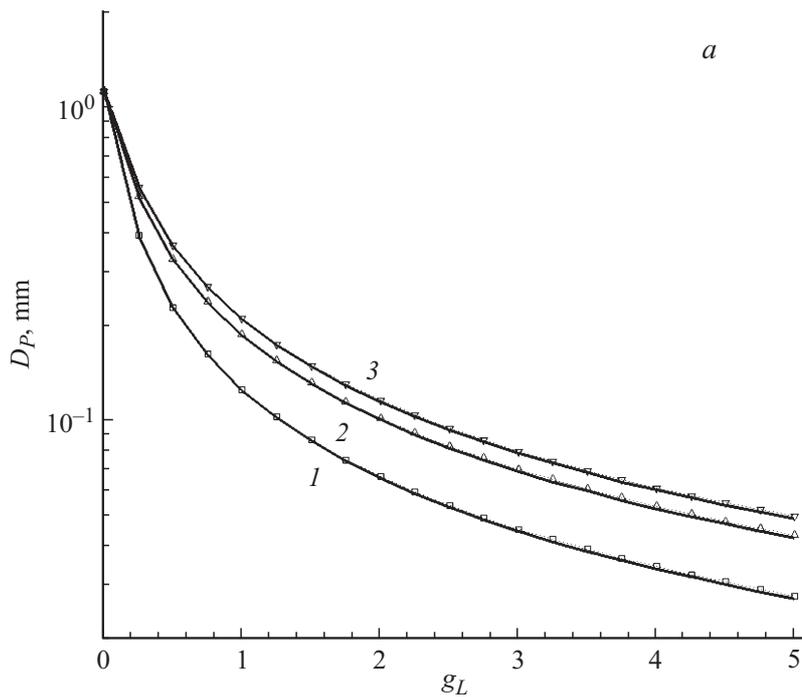
Возмущение скорости кристаллизации  $V_C = -d\delta_C/dt = -i\omega\delta_C^0$  определяется из условия Стефана

$$-i\omega\delta_C^0 Q = \left( -\lambda_S \frac{dT_S}{dz} \right) - \left( -\lambda_L \frac{dT_L}{dz} \right), \quad (18)$$

где  $Q$  — скрытая теплота плавления. Подставляя сюда выражения (11) и (17), получим для амплитуды выражение

$$\begin{aligned} \delta_C^0 &= \delta_P^0 \frac{V_g}{\omega d_P}, \\ d_P &= \frac{V_g}{\omega} \left[ \frac{i\omega h_0/V_g + g_L B_C + (1 + g_L) B_S h_0 (1 + i)}{g_L A_C + (1 + g_L) B_S h_0 (1 + i)} \right], \\ g_L &= \frac{\lambda_L G_L}{Q V_g}, \quad B_S = \sqrt{\frac{\rho_S c_S \omega}{2\lambda_S}}, \quad A_C = \left( h_{ac}^0 - i \frac{V_g}{\omega} h_{rc}^0 \right) / D_a^0, \\ B_C &= A_C \left( 1 - \frac{\rho_S}{\rho_L} \left( \frac{r_C}{R} \right)^2 \right). \end{aligned} \quad (19)$$

Полагая, что  $V_C^0 = \omega |\delta_C^0| \ll V_g$ , выражение для ограничения амплитуды колебаний штока  $\delta_P^0$  для сохранения качества выращиваемого кристалла



Зависимость максимальной амплитуды  $D_p$  (а) колебаний штока и соответствующих им значений амплитуды угла наклона боковой поверхности кристалла  $A$  (б) от безразмерного параметра  $g_L$ , характеризующего вклад теплового потока со стороны расплава по отношению к выделению скрытой теплоты плавления на фронте кристаллизации. Скорости роста кристалла: сплошные кривые —  $V_g = 1$  mm/h, пунктирные — 10 mm/h. Радиус тигля  $R$ : 1 — 30 mm, 2 — 40 mm, 3 — 50 mm.

с учетом его малости по сравнению с высотой столбика невозмущенного мениска примет вид

$$\delta_p^0 \ll \min(h_0, |d_p|). \quad (20)$$

Расчеты выполнены в случае роста кристалла с радиусом  $r_c = 22.5$  mm, скоростями кристаллизации 1 и 10 mm/h и рядом значений радиуса тигля  $R$ . На рисунке приведены зависимости кри-

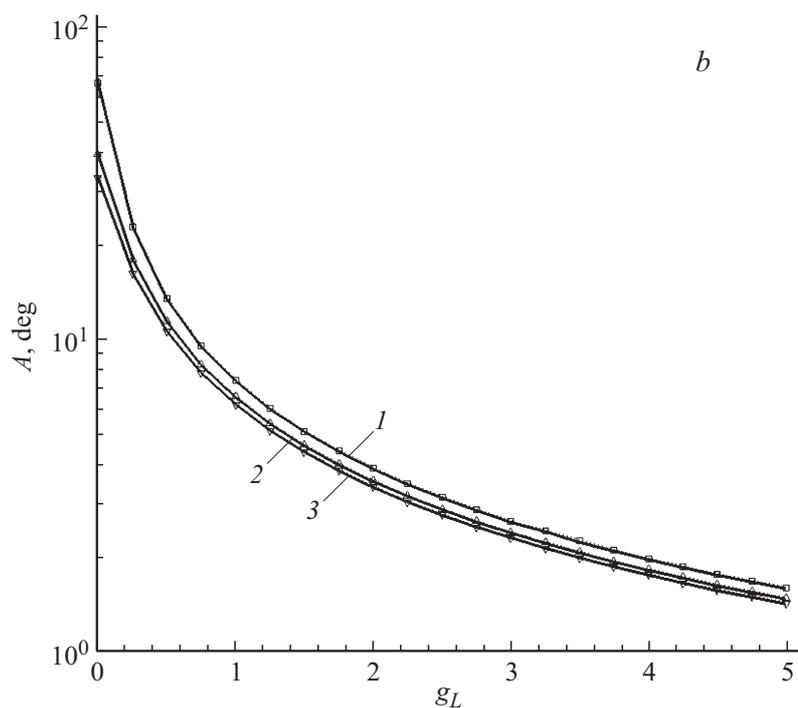


Рисунок (продолжение).

тических значений  $\delta_p^0$ , равных  $D_p = \delta|d_p|$ , и соответствующих им амплитуд колебаний угла наклона  $\alpha_C^0 = A$  от безразмерного параметра  $g_L$ , характеризующего отношение кондуктивного потока в расплаве к тепловыделению на фронте. Здесь малый параметр  $\delta$  берется равным 0.1. Видно, что результаты слабо зависят от скорости роста, но очень сильно от  $g_L$ . При малых  $g_L$  допускаются весьма значительные амплитуды колебаний штока порядка 1 mm ( $h_0 = 3.85$  mm), но при этом амплитуда колебаний наклона боковой поверхности будет порядка нескольких десятков градусов, что может заметно повлиять на характер теплообмена на боковой поверхности кристалла. Амплитуда изменения радиуса кристалла в самом худшем случае не превышает 0.061 mm. При расчетах использовалась формула Цивинского для  $h_0$  [14].

При соблюдении условия (20) осцилляции скорости вытягивания  $V_p$  (1) не будут оказывать заметного влияния на качество выращиваемых кристаллов, и, следовательно, метод определения площади поперечного сечения, предложенный в [14], можно использовать.

## Список литературы

- [1] *Bardsley W., Cockayne B. et al. // J. Cryst. Growth. 1974. V. 24/25. P. 369.*
- [2] *Bardsley W., Hurle D.T.J., Joyce G.C. // J. Cryst. Growth. 1977. V. 40. P. 13.*
- [3] *Gevelber M.A., Stephanopoulos G. et al. // J. Cryst. Growth. 1988. V. 91. P. 199.*
- [4] *Satunkin G., Leonov A. // J. Cryst. Growth. 1990. V. 102. P. 592.*
- [5] *Abrosimov N.V., Kurlov V.N., Rossolenko S.N. // Prog. Cryst. Growth Charact. Mater. 2003. V. 46. P. 1.*
- [6] *Satunkin G. // Prog. Cryst. Growth Charact. Mater. 2010. V. 56. P. 1.*
- [7] *Winkler J., Neubert M., Rudolph J. // J. Cryst. Growth. 2010. V. 312. P. 1005.*
- [8] *Winkler J., Neubert M., Rudolph J. // J. Cryst. Growth. 2010. V. 312. P. 1019.*
- [9] *Neubert M., Winkler J. // J. Cryst. Growth. 2012. V. 360. P. 3.*
- [10] *Neubert M., Winkler J. // J. Cryst. Growth. 2014. V. 404. P. 210.*
- [11] *Meurer F., Neubert M., Werner N. // J. Cryst. Growth. 2015. V. 419. P. 57.*
- [12] *Саханский С.П. // Вестник Сиб. гос. аэрокосмич. ун-та им. акад. М.Ф. Решетникова. 2010. В. 5. С. 254.*
- [13] *Bondarenko S.K., Goriletsky V.I., Suzdal V.S. // Funct. Mater. 1999. V. 6. P. 380.*
- [14] *Kasimkin P.V., Moskovskih V.A. et al. // J. Cryst. Growth. 2014. V. 390. P. 67.*
- [15] *Moskovskih V.A., Kasimkin P.V. et al. // J. Cryst. Growth. 2014. V. 401. P. 767.*
- [16] *Ван-Дайк М. Методы возмущений в механике жидкости. М.: Мир, 1967. С. 68.*