

УДК 532.51.013.4:536.24

© 2002 г. А.Е. КОХ, Л.А. МИРОНОВА, В.Н. ПОПОВ

КОНВЕКТИВНЫЕ ТЕЧЕНИЯ В РАСПЛАВЕ ПРИ ВЫРАЩИВАНИИ КРИСТАЛЛА В УСЛОВИЯХ ПЕРИОДИЧЕСКИ МЕНЯЮЩЕГОСЯ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОЛЯ

Представлены результаты анализа термогравитационной конвекции при получении монокристалла методом Чохральского в условиях циклически меняющегося температурного поля в расплаве. Численное моделирование основано на решении нестационарных трехмерных уравнений Навье–Стокса в приближении Буссинеска и теплопереноса. Показано, что использование различных режимов подогрева кристаллизационной среды дает дополнительную возможность управления процессами конвективного тепло- и массопереноса.

Ключевые слова: конвекция, выращивание кристаллов, переменное температурное поле.

В существующих технологиях получения кристаллов из расплавов и раствор-расплавов (методы Чохральского, Киропулоса и др.) естественная и вынужденная конвекция, тепло- и массообмен во многом определяют свойства материала в твердом состоянии. Следствием недостаточного перемешивания в кристаллизационной среде с высокой вязкостью являются термогравитационное и концентрационное расслоения, концентрационное переохлаждение, ячеистый рост. Традиционно решение этой проблемы осуществляется с помощью воздействия на жидкость вращающимся кристаллом, тиглем либо установкой мешалок, подвижных перегородок и т.д. [1, 2]. Постоянно растущие требования к качеству кристаллов заставляют совершенствовать старые и выработать новые способы управления. Это делает необходимым изучение тонких эффектов конвективного теплообмена, определение особенностей и детальный анализ структуры течений, полей температуры и концентрации, которые могут быть потенциальной причиной дефектов.

В [3] предложен метод неравномерного подогрева боковых стенок ростового тигля сравнительно небольшого диаметра (около 0.1 м), позволяющий усиливать перемешивание в кристаллизационной среде за счет возникающего конвективного течения в азимутальном направлении. Подробное описание соответствующей установки и ее характеристик приводится в [4, 5]. Действенность этого метода демонстрируют результаты, полученные при выращивании кристаллов $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) в циклически меняющемся тепловом поле, представленные в [5]. В этом же эксперименте на стадии предростовой подготовки была успешно применена бесконтактная гомогенизация раствор-расплава, что значительно упростило технологию, так как отпала необходимость переоснащения ростовой установки в разогретом состоянии – замена мешалки на затравкодержатель.

В [6] с помощью решения модельных задач была показана возможность инициирования азимутального течения в кристаллизационной среде изменением теплового поля и устойчивость его существования при выращивании монокристалла кремния. Вместе с тем актуальной задачей остается определение особенностей процессов гидродинамики и теплообмена при использовании вращающегося теплового поля как в стадии получения изделий, так и на предшествующих этапах. Поэтому цель

данной работы – исследование на основе трехмерного численного моделирования влияния режимов нагрева боковых стенок тигля на структуру течений в расплаве при получении монокристалла методом Чохральского.

1. Математическая модель. Схема рассматриваемой установки для выращивания кристаллов методом Чохральского показана на фиг. 1. Расплавленный материал заполняет цилиндрический сосуд тигля с внутренним радиусом R_0 до уровня H_0 . Из него вытягивается невращающийся монокристалл, радиус которого R_{cr} . Тигель помещен в нагревательную печь, средняя температура внутри которой T_0 , с смонтированными в ее боковые стенки поочередно включаемыми вертикальными нагревательными элементами. Разогрев жидкости происходит в результате ее теплообмена через стенки сосуда с окружающей средой, а отвод тепла осуществляется через свободную поверхность расплава. Повышенный нагрев боковых стенок тигля в секторе площадью $H_0 R_0 \Delta\varphi$ определяется температурой T_H расположенного напротив включенного термоэлемента ($T_H \geq T_0$).

Математическое моделирование основано на численном решении системы трехмерных нестационарных уравнений Навье – Стокса в приближении Буссинеска и теплопереноса, записываемых в безразмерном виде

$$U_t + \nabla(UU) = -\nabla P + \nabla^2 U + \mathbf{k} Gr \theta, \quad U = (u, v, w)^T \quad (1.1)$$

$$\nabla U = 0 \quad (1.2)$$

$$\theta_t + \nabla(U\theta) = \frac{1}{Pr} \nabla^2 \theta, \quad \theta = \frac{T - T_s}{\Delta T_0} \quad (1.3)$$

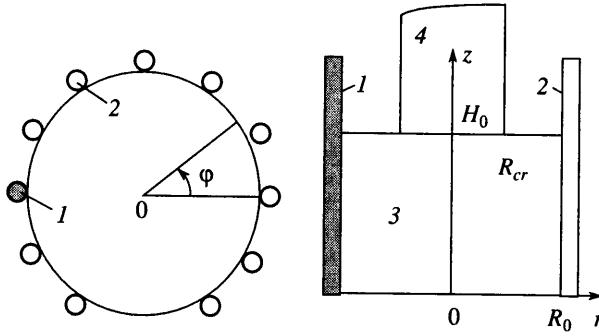
Здесь u, v, w – компоненты вектора скорости в радиальном, азимутальном и вертикальном направлениях соответственно, \mathbf{k} – единичный вектор вдоль координатной оси z , P – давление, θ – температура, Pr – число Прандтля, Gr – число Грасгофа, Bi – число Био, где

$$Pr = \frac{\eta}{a}, \quad Gr = \beta g R_0^3 \frac{\Delta T_0}{\eta^2}, \quad Bi = \alpha \frac{R_0}{\lambda}$$

Безразмерные величины определены с помощью характерного размера R_0 , времени $t_0 = R_0^2 / \eta$, скорости $u_0 = \eta / R_0$, давления $P_0 = \eta^2 \rho / R_0^2$, температурного интервала $\Delta T_0 = T_0 - T_s$, где T_s – температура затвердевания жидкости, η – кинематическая вязкость, ρ – плотность, g – ускорение свободного падения, β – коэффициент теплового объемного расширения, λ – теплопроводность, a – температуропроводность, α – коэффициент теплоотдачи.

Для жидкости используется условие прилипания на стенках сосуда. Предполагается, что малость конвективных скоростей при исследуемых режимах нагрева (не более 0.001 м/с [6]) обуславливает неизменность плоской формы свободной поверхности при отсутствии вязких напряжений [7]. В условиях наземных экспериментов предположение о малой деформации свободной поверхности хорошо выполняется, если толщина слоя жидкости не менее 0.004 м [8].

При определении граничных условий для уравнения теплопереноса (1.3) было принято во внимание следующее. Очевидно, что теплообмен между жидкостью в тигле и окружающей его средой, за исключением границы раздела фаз, где температура постоянная, имеет сложный характер. Наиболее интенсивно расплав разогревается в областях, ближайших к включенным нагревательным элементам. При переключении тепловых источников температура в этой части жидкости меняется не мгновенно, а лишь в течение некоторого времени принимает значения, определяемые новыми условиями нагрева. Чтобы учесть этот эффект, теплообмен между раствор-расплавом в тигле и средой в ростовой печи описывается в виде закона Ньютона.



Фиг. 1. Схема установки и расположения нагревательных элементов вокруг тигля: 1 – включенный, 2 – выключенный, 3 – расплав, 4 – кристалл, R_0 – радиус тигля, H_0 – уровень жидкости в тигле, R_{cr} – радиус кристалла

Предполагается, что в начальный момент времени жидкость, за исключением поверхности соприкосновения с кристаллом, равномерно разогрета до температуры T_0 , и движение в ней отсутствует.

Таким образом, граничные условия формулируются следующим образом. На дне тигля

$$u = 0, \quad v = 0, \quad w = 0, \quad \frac{\partial \theta}{\partial z} = \text{Bi}_1(\theta - 1), \quad 0 \leq r \leq 1, \quad z = 0, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi$$

На боковой стенке тигля

$$u = 0, \quad v = 0, \quad w = 0, \quad \frac{\partial \theta}{\partial r} = \begin{cases} \text{Bi}_2(\theta_H - \theta), & \varphi \in \Delta\varphi(\varphi_k, t), \\ \text{Bi}_2(1 - \theta), & \varphi \notin \Delta\varphi(\varphi_k, t), \end{cases} \quad k = 0, 1, \dots, K, \\ r = 1, \quad 0 \leq z \leq H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi$$

где φ_k – угловая координата середины включенного нагревательного элемента, $K \geq 0$ – их количество, $\Delta\varphi$ – угол, соответствующий ширине зоны интенсивного разогрева, $H = H_0/R_0$.

На свободной поверхности жидкости и границе фазового перехода

$$\frac{\partial u}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial v}{\partial z} = 0, \quad w = 0, \quad \frac{\partial \theta}{\partial z} = -\text{Bi}_3\theta, \quad R_c < r < 1, \quad z = H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi \\ u = 0, \quad v = 0, \quad w = 0, \quad \theta = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad z = H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi \quad (R_c = R_{cr}/R_0)$$

Начальные условия

$$u = 0, \quad v = 0, \quad w = 0, \quad 0 \leq r \leq 1, \quad 0 \leq z \leq H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi \\ \theta = 1, \quad 0 \leq r \leq 1, \quad 0 \leq z < H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi \\ \theta = 1, \quad R_c < r \leq 1, \quad \theta = 0, \quad 0 \leq r \leq R_c, \quad z = H, \quad 0 \leq \varphi \leq 2\pi, \quad t = 0$$

2. Алгоритм решения задачи. Определение давления является частью процедуры решения задачи. Согласно [9], из (1.1) можно получить уравнение

$$-\nabla^2 P = \nabla[U_i + \nabla(UU)] - k \text{Gr}\theta \quad (2.1)$$

Граничные условия для P определяются с использованием (1.1). Так, на дне тигля $z = 0$

$$\frac{\partial P}{\partial z} = -\frac{1}{r} \frac{\partial^2 ru}{\partial z \partial r} - \frac{1}{r} \frac{\partial^2 v}{\partial z \partial \varphi} + \text{Gr}\theta \quad (2.2)$$

(аналогичное соотношение используется на свободной поверхности при $z = H$), а на боковой поверхности при $r = 1$

$$\frac{\partial P}{\partial r} = -\frac{1}{r} \frac{\partial^2 v}{\partial r \partial \varphi} - \frac{\partial^2 w}{\partial r \partial z} \quad (2.3)$$

Таким образом, система (2.1)–(2.3) представляет собой задачу Неймана для уравнения Пуассона, которую необходимо реализовывать на каждом временном шаге.

Для решения уравнений Навье – Стокса, Пуассона и теплопереноса используется конечно-разностный алгоритм. Так как, согласно [6], условием возникновения устойчивого азимутального течения в жидкости является режим слабой конвекции, когда течение является ламинарным и выраженный пограничный слой отсутствует, то система уравнений (1.1), (1.3), (2.1) с соответствующими граничными условиями аппроксимируется на равномерной пространственной сетке. Подробно разностная схема описана в [10].

Порядок выполняемых действий при проведении расчетов на n -м временном шаге следующий. Первоначально вычисляется температурное поле в жидкости. Решение алгебраической системы, получаемой при неявной аппроксимации (1.3), осуществляется итерационным методом блочной последовательной верхней релаксации [11]. Значения скоростей в конвективных членах уравнения (1.3) используются с предшествующего временного слоя.

Следующий этап – определение давления. Здесь после аппроксимации (2.1) для решения получающейся системы применяется разложение периодической сеточной функции в ряд Фурье по координате φ [12]. Реализация систем уравнений для каждого узла угловой переменной осуществляется итерационным методом неполной факторизации [11]. При определении правой части (2.1) используются значения скоростей с предшествующего временного шага и уже определенное температурное поле. Чтобы избежать накопления ошибок, возникающих при прекращении итераций по конечному критерию сходимости, выполняется корректирующая процедура: согласно [9], при аппроксимации (2.1) предполагается, что $\nabla U^n = 0$.

Подстановка рассчитанных значений температуры и давления в уравнения количества движения делает возможным определение составляющих поля скоростей. Решение алгебраической системы, получаемой при неявной аппроксимации (1.1), осуществляется итерационным методом блочной последовательной верхней релаксации. Значения скоростей в конвективных членах уравнения используются с предшествующего временного шага. Проводится несколько итераций по согласованию распределения давления и скоростей в расчетной области.

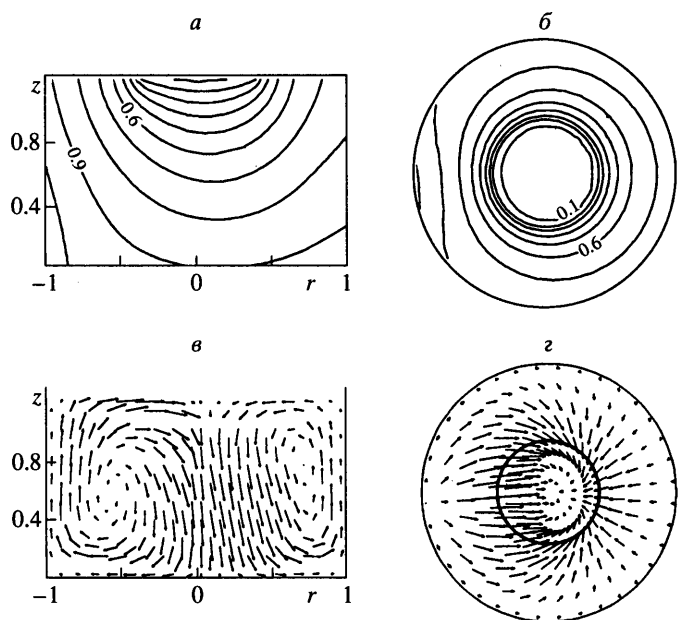
3. Результаты численных расчетов. При проведении численных экспериментов рассматривались структуры температурных полей и течений в расплаве в случае дополнительного его разогрева через боковые стенки сосуда двенадцатью поочередно включаемыми вертикальными нагревательными элементами, которые равномерно расположены вокруг сосуда (фиг. 1). Расчеты проводились при величинах безразмерных параметров

$$Pr = 0.015, \quad Gr = 1.2 \cdot 10^5, \quad \theta_H = 1-2, \quad H = 1.25, \quad R_c = 0.4,$$

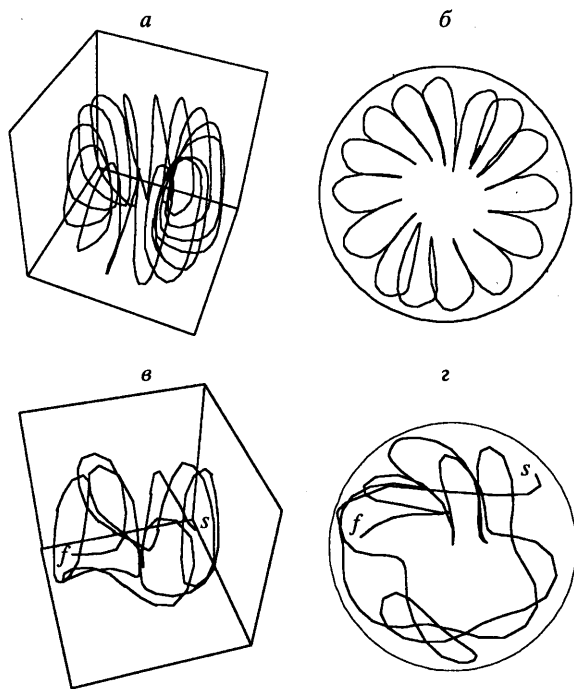
$$Vi_1 = 3, \quad Vi_2 = 1, \quad Vi_3 = 0.1, \quad \Delta\varphi = \pi/6$$

на пространственных сетках с количеством узлов 30, 36, 40 в радиальном, азимутальном и вертикальном направлениях соответственно. Значение временного шага $2 \cdot 10^{-4}$ было выбрано из условий устойчивости численного счета, сходимости итераций. На фиг. 2, 3 представлены результаты, полученные при исследовании различных вариантов несимметричного подогрева боковых стенок сосуда.

На фиг. 2, а, б представлено квазистационарное распределение температурного поля в жидкости при $\theta_H = 1.5$ в момент времени, когда координата включенного нагревательного элемента $\varphi_1 = 180^\circ$. Область максимального разогрева в расплаве расположена вблизи теплового источника и не оказывает влияния на температурное поле в непосредственной близости от кристалла (фиг. 2, б). В донной части жидкости существует значительное отклонение элемента среды с минимальной температурой от центра тигля, величина которого около 0.15.



Фиг. 2. Распределение температуры (*a, б*) и структура поля скоростей (*в, г*) в жидкости при $\theta_H = 1.5$: в полуплоскостях rz $\varphi = 0^\circ$, $0 \leq r \leq 1$ и $\varphi = 180^\circ$, $-1 \leq r \leq 0$ (*a, в*) в плоскости $r\varphi$ при $z = 0.975 H$ (*б, г*)



Фиг. 3. Траектории маркеров в жидкости при $\theta_H = 1.5$ (*a, б*) и $\theta_H = 2$ (*в, г*)

Структуру течений для рассматриваемого случая иллюстрирует фиг. 2, *в*, *г*. Основная циркуляция в жидкости обуславливается подъемом теплых масс вверх вдоль боковых стенок, их охлаждением в приповерхностной области и образованием нисходящего потока вблизи центральной оси тигля. При этом наиболее интенсивные течения формируются непосредственно под кристаллом и у подогреваемого сектора боковой стенки (фиг. 2, *в*, где стрелки указывают направление, а их длина характеризует интенсивность потока). Вместе с тем в связи с несимметричностью разогрева часть жидкости, преодолевая нисходящее течение вдоль центральной оси сосуда, проникает на противоположную сторону тигля, что подтверждается рассчитанными траекториями перемещений частиц-маркеров.

Наибольший температурный градиент в азимутальном направлении формируется в областях, примыкающих к включенному нагревательному элементу, поэтому здесь возникают потоки, расходящиеся от теплового источника в различных направлениях. Характер течения в приповерхностном слое жидкости представлен на фиг. 2, *г* (окружность в центре рисунка отражает контур кристалла). Формирующиеся в расплаве потоки образуют устойчивую двухсегментную картину, симметричную относительно плоскости, проходящей через центральную ось сосуда и середину нагревательного элемента. Из представленного результата следует, что в жидкости, в непосредственной близости от поверхности кристалла, существует застойная область, контур которой значительно деформирован набегающим потоком со стороны включенного теплового источника.

Из численных экспериментов было определено, что после включения другого теплового источника через определенный промежуток времени в кристаллизационной среде образуются новые зоны устойчивой циркуляции. В течение этого периода происходит остывание расплава вблизи сектора боковой стенки тигля, расположенного напротив ранее включенного нагревательного элемента (этот процесс ускоряется наличием конвекции), и разогрев его новой области. Анализируя рассчитанные траектории маркеров, а также ранее полученные результаты [6, 10], было сделано предположение, что за счет изменения расстояния между нагревательными элементами и временного интервала их переключения возможно осуществлять перемещение жидкости в требуемом направлении по зонам устойчивой циркуляции.

Эту гипотезу подтверждают фиг. 3, *а*, *б*, иллюстрирующие движение маркера в жидкости при переключении нагревательных элементов через временной интервал $\Delta = 0.05$ в направлении против часовой стрелки. На рисунках отображены пространственная траектория частицы и ее проекция на плоскость $r\varphi$. Согласно представленным результатам, происходит устойчивое азимутальное перемещение части жидкости в направлении переключения тепловых источников. Этот эффект обуславливается тем, что существует синхронизация режима переключения нагревательных элементов с периодом циркуляции расплава между боковыми стенками и центральной частью сосуда. Среднее время обращения серии частиц-маркеров вокруг центральной оси тигля в рассматриваемом варианте равно 0.6 и совпадает с периодом ротации теплового поля 12Δ .

На структуру течений в кристаллизационной среде влияет величина температурного градиента в азимутальном направлении, который является следствием неоднородного теплового воздействия на боковые стенки сосуда. Так, например, при температуре нагревательного элемента $\theta_H = 1.25$ результат, подобный представленному на фиг. 3, *а*, *б*, не удалось получить даже качественно: траектории движения маркеров, распределенных по всему объему жидкости, лежали почти строго в плоскости rz . Анализ влияния θ_H на конвективные процессы в расплаве показал, что в случае $\Delta = 0.05$ устойчивый поток в азимутальном направлении, подобный представленному на фиг. 3, *а*, *б*, формируется при значениях этого параметра от 1.4 до 1.8.

Расчеты показали, что и при $\theta_H = 2$ распределение температурного поля и структура течений качественно остаются такими же, как на фиг. 2. Различия заключаются

в том, что отклонение точки с минимальной температурой в донной части жидкости от центра тигля составляет величину, близкую к 0,2, а существующая в жидкости под кристаллом застойная область значительно сокращается из-за большей интенсивности набегающего потока со стороны включенного теплового источника. На фиг. 3, *в, г* изображены пространственные траектории частицы и ее проекция на плоскость $r\phi$ при том же режиме переключения нагревательных элементов (символы s, f обозначают начальное и конечное положения маркера). Согласно представленным результатам, можно заключить, что азимутальная циркуляция жидкости в направлении против часовой стрелки существует, но имеет качественно другой характер. Это объясняется тем, что потоки, формирующиеся в результате сильного нагрева участка боковой стенки сосуда, доминируют и перемещение маркера в плоскости rz в этой области отсутствует. Такая циркуляция возможна лишь в той части расплава, что располагается на противоположной стороне тигля относительно включенного нагревательного элемента. Эта зона сохраняет свою устойчивость до очередного переключения источников дополнительного подогрева. Отметим, что при $\theta_H = 2$ картины, качественно схожей с изображенной на фиг. 3, *а, б*, не удалось получить ни при каких величинах параметра Δ .

Заключение. С помощью численного моделирования проведено исследование течений в жидкости при неравномерном циклическом разогреве боковых стенок цилиндрического сосуда вертикальными термоэлементами. Подбирая и комбинируя различные режимы изменения температурного поля в ростовой печи, можно управлять термогравитационной конвекцией в кристаллизационной среде. Отказ от механического вращения кристалла открывает возможность частичной или полной герметизации ростового пространства, повышает стерильность процесса и избавляет установку от возможных вибраций.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kokh A.* Crystal growth through forced stirring of melt or solution in Czochralski configuration // *J. Crystal Growth*. 1998. V. 191. № 4. P. 774–778.
2. *Полежаев В.И.* Математическое моделирование процессов гидромеханики и теплообмена при выращивании кристаллов и разделении веществ // *Гидромеханика и теплообмен при получении материалов*. М.: Наука, 1990. С. 8–26.
3. *Кох А.Е., Кононова Н.Г., Мокрушников П.В.* Управление тепловым полем и процессом конвекции при выращивании кристаллов // *Тр. 4-й Междунар. конф. "Кристаллы: рост, свойства, реальная структура, применение"*. Александров: ВНИИСИМС, 1999. Т. 1. С. 234–256.
4. *Кох А.Е., Кох В.Е., Кононова Н.Г.* Установка для выращивания кристаллов в условиях вращения теплового поля // *Приборы и техника эксперимента*. 2000. № 1. С. 157–160.
5. *Kokh A.E., Kononova N.G.* Crystal growth under heat field rotation conditions // *Solid State Electronics*. 2000. V. 44. № 5. P. 819–824.
6. *Kokh A.E., Popov V.N., Mokrushnikov P.W.* Numerical modeling of contact free control over crystal growth heat-mass transfer processes through heat field rotation // *J. Crystal Growth*. 2001. V. 230. № 1–2. P. 155–163.
7. *Тарунин Е.Л.* Вычислительный эксперимент в задачах свободной конвекции. Иркутск: Изд-во Иркут. ун-та, 1990. 225 с.
8. *Пшеничников А.Ф., Токменина Г.А.* Деформация свободной поверхности жидкости термокапиллярным движением // *Изв. АН СССР. МЖГ*. 1983. № 3. С. 150–153.
9. *Роуч П.* Вычислительная гидродинамика. М.: Мир, 1980. 616 с.
10. *Попов В.Н., Кох А.Е., Мокрушников П.В.* Конвекция в расплаве при ротации теплового поля вокруг тигля // *Мат. моделирование*. 2002. Т. 14. № 1. С. 16–26.
11. *Ильин В.П.* Методы неполной факторизации для решения алгебраических систем. М.: Физматлит, 1995. 287 с.
12. *Самарский А.А., Николаев Е.С.* Методы решений сеточных уравнений. М.: Наука, 1978. 591 с.