

УДК 681.518: 666.1/28

С.П. Малюков, Ю.В. Клунникова**МОДЕЛИРОВАНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ В ПРОЦЕССЕ РОСТА МОНОКРИСТАЛЛОВ САПФИРА МЕТОДОМ ГОРИЗОНТАЛЬНОЙ НАПРАВЛЕННОЙ КРИСТАЛЛИЗАЦИИ В ТРЕХМЕРНЫХ КООРДИНАТАХ**

Разработана трехмерная модель распределения температуры в процессе роста монокристаллов сапфира методом горизонтальной направленной кристаллизации. Для проведения моделирования использовался метод конечных объемов на неструктурированной сетке. С помощью разработанной численной модели проведен ряд расчетов для изучения влияния теплофизических свойств материалов на процесс кристаллизации монокристаллов сапфира. Данный подход позволит приблизиться к решению основной задачи – получению кристаллов с пониженным уровнем дефектов.

Технологический процесс получения монокристаллов сапфира; распределение температур.

S.P. Malyukov, Yu.V. Klunnikova**SIMULATION OF THE TEMPERATURE DISTRIBUTION FOR SAPPHIRE CRYSTALS GROWTH PROCESS BY THE METHOD OF HORIZONTAL DIRECTED CRYSTALLIZATION IN THE THREE-DIMENSIONAL COORDINATES**

The three-dimensional model of temperatures distribution for the sapphire crystals growth by the horizontal directed crystallization method is developed. The method of final volumes on unstructured grid is used for simulation. The developed numerical model allows to study the influence of materials thermal and physical properties on sapphire crystallization. This approach allows to solve such problem in the field of sapphire crystals growth as crystals reception with the reduced defects level.

Sapphire production technological process; temperatures distribution.

Распределение температуры, возникающее в кристаллах в процессе их выращивания из расплава, является одним из важнейших факторов, влияющих на качество кристаллов и производительность процесса выращивания. В случае получения монокристаллов сапфира методом горизонтальной направленной кристаллизации (ГНК), который позволяет получать кристаллы большого сечения, возникают дополнительные трудности, связанные со сложной геометрией тепловой зоны и резко возросшей ролью излучения в переносе тепла внутри кристалла. Путем целенаправленного изменения конфигурации и температуры тепловой зоны можно на 15–25 % снизить уровень термонапряжений и концентрацию дислокаций в кристаллах. Именно поэтому, несмотря на все успехи в получении сапфира, проблема управления температурным полем в этих кристаллах остается актуальной.

Обзор литературных источников показал, что в литературе имеется много работ по моделированию роста оксидных кристаллов методами Чохральского, Бриджмена, Киропулоса [1–3]. Тем не менее, моделирование выращивания сапфира методом ГНК практически не освещено в литературе.

В работе [4] сформулированы модели формирования высоты кристалла и концентрации примесей в нем при известных тепловых параметрах процесса, которые можно получить как частный случай из обобщенного цикла; сформулированы упрощенные модели тепло- и массопереноса для периодов цикла ГНК. Недостатком данной работы является то, что в ней рассматривается одномерное тепловое поле.

В работе [5] разработана двухмерная модель роста кристаллов сапфира методом ГНК. В модели рассматривается радиационно-кондуктивный теплообмен, учитывается толщина поддона, контейнера и зазора между ними. Для численного решения модели используется метод конечных разностей.

В работе [6] теоретически рассмотрены температурные и термоупругие поля при выращивании тугоплавких монокристаллов и их влияние на изменения оптической симметрии в кристаллах. Применяется математическое моделирование в трехмерных криволинейных координатах с постановкой замкнутой термоупругой задачи для векторов перемещений в материалах монокристаллов в условиях малых деформаций.

К сожалению, в работах [5, 6] рассматривается прямоугольная часть кристалла без области разрастания, которая составляет до третьей части кристалла.

Для определения влияния параметров роста на качество кристалла необходимо рассчитать распределение температур в системе кристалл–расплав–шихта, для чего проводится трехмерное моделирование процессов теплообмена с учетом геометрии кристалла.

Поддон и размещенный в нем тигель (рис. 1) с шихтой перемещаются относительно нагревателя со скоростью 6 мм/ч. Так как процесс протекает в вакууме (10^{-2} Па), передача тепла между свободными поверхностями осуществляется излучением [5, 7–10].

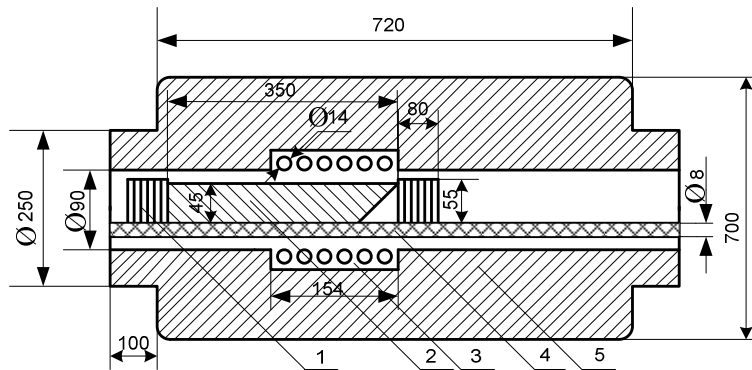


Рис. 1. Эскиз конструкции печи СЗВН 155.320: 1 – теплоизоляционные экраны; 2 – контейнер с кристаллом сапфира; 3 – вольфрамовый нагреватель; 4 – устройство для механического перемещения лодочки (волокуша); 5 – тепловой узел

Задача о нахождении распределения температуры в системе кристалл–расплав–шихта сводится к решению уравнений теплопроводности [11, 12]:

$$\frac{\partial T_i(x, y, z, \tau)}{\partial \tau} = a_i \left(\frac{\partial^2 T_i(x, y, z, \tau)}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_i(x, y, z, \tau)}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T_i(x, y, z, \tau)}{\partial z^2} \right) - W \frac{\partial T_i(x, y, z, \tau)}{\partial x}, \quad (1)$$

$$0 < x < x_L, 0 < y < y_L, 0 < z < z_L,$$

где $i = 1, 2, 3$ – соответственно кристалл, расплав и шихта; a_i – коэффициенты температуропроводности ($a_i = \frac{\lambda_i}{\rho_i \cdot C_i}$, где λ_i – коэффициент теплопроводности;

ρ_i – плотность материала; C_i – удельная теплоемкость); W – скорость движения контейнера.

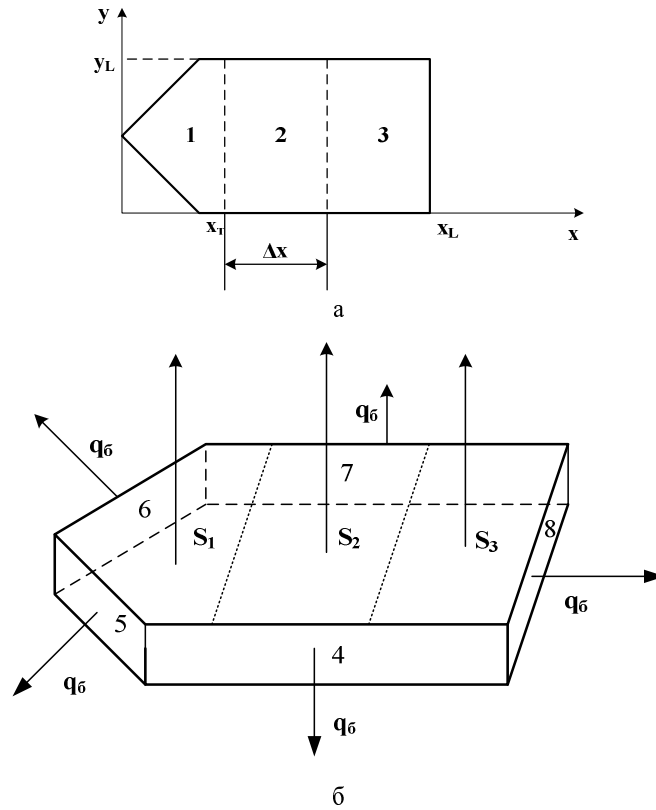


Рис. 2. Схемы к расчету процесса горизонтальной направленной кристаллизации: а – 1 – кристалл; 2 – расплав; 3 – шихта; б – 4, 5, 6, 7, 8 – боковые поверхности кристалла; S_1, S_2, S_3 – верхние и нижние границы

Экспериментальные исследования показали, что градиент температур в ростовой установке составляет 25–50 градусов на сантиметр. Из этого можно сделать вывод о том, что процесс находится в квазистационарном состоянии, а распределение температуры можно найти по следующей формуле [11–12]:

$$\text{div}(\lambda_i \text{grad}T_i(x, y, z)) = 0. \tag{2}$$

Поскольку в кристалле присутствуют сразу оба механизма передачи тепла: фононный и радиационный, их доля определяется оптическими свойствами конкретной системы. В этом случае под коэффициентом теплопроводности понимается сумма двух составляющих – фононной и радиационной [13]:

$$\lambda_{\text{общ}} = \lambda_{\text{фн}} + \lambda_{\text{рад}}, \tag{3}$$

$$\lambda_{\text{рад}} = \frac{16n^2kT^3}{3\alpha}. \tag{4}$$

Теплофизические свойства расплава оксида алюминия (монокристалл сапфира состоит из 99,99 % Al_2O_3), измеренные экспериментально [13], имеют величину, сравнимую с теплофизическими свойствами монокристалла ($\lambda_{рад} = 2,05$ Вт/м·К, $\lambda_{\delta i} = 3,4$ Вт/м·К). Таким образом, при выращивании монокристаллов сапфира вклад радиационной составляющей теплопереноса в общий вклад радиационной составляющей теплопереноса в общий теплообмен весьма значителен.

Граничные условия для системы уравнений (2), отражающие неразрывность тепловых полей и тепловых потоков на границах раздела сред, записываются в виде следующих соотношений:

$$\lambda_1 \frac{\partial T_1(x_T, y, z)}{\partial x} = \lambda_2 \frac{\partial T_2(x_T, y, z)}{\partial x}, \quad (5)$$

$$\lambda_2 \frac{\partial T_2(x_T + \Delta x, y, z)}{\partial x} = \lambda_3 \frac{\partial T_3(x_T + \Delta x, y, z)}{\partial x}, \quad (6)$$

$$q_{s_1} = q_{s_2} = q_{s_3} = \sigma\beta(T^4 - T_{hot}^4), \quad (7)$$

где σ – постоянная Стефана–Больцмана; β – коэффициент излучения, T_{hot} – функция, задающая распределение температуры на кристаллизаторах.

Переотраженные излучения в данной модели не учитываются.

Аппроксимация экспериментальных данных, полученных измерением температуры на кристаллизаторах, имеет вид [5]

$$T_{hot} = 17,6 \cdot 10^3 \cdot x(i)^2 + 1300. \quad (8)$$

Для расчета используются параметры, приведенные в табл. 1, 2.

Таблица 1

Геометрические параметры тигля

Длина тигля (м)	0,35
Высота тигля (м)	0,045
Ширина тигля (м)	0,15

Таблица 2

Параметры материалов

Свойства материала	Кристалл	Расплав	Шихта	Молибден
Плотность (кг/м ³)	4 000	3 000	2 800	11 000
Удельная теплоемкость (Дж/кг·К)	1 430	1 260	1 620	430
Теплопроводность (Вт/м·К)	5	3	2	69
Коэффициент излучения	0,87	0,33	0,2	0,28
Температура кристаллизации (К)	2350			
Коэффициент поглощения (см ⁻¹)	0,3			

Результаты расчета показаны на рис. 3–5. На рис. 3,а–5,а представлены температурные поля в системе кристалл–расплав–шихта. На рис. 3,б,в–5,б,в в представлении температурные поля соответственно в горизонтальном и вертикальном сечении кристалла. На рис. 3,г–5,г показано распределение температуры на нагревателе и кристаллизаторах теплового узла.

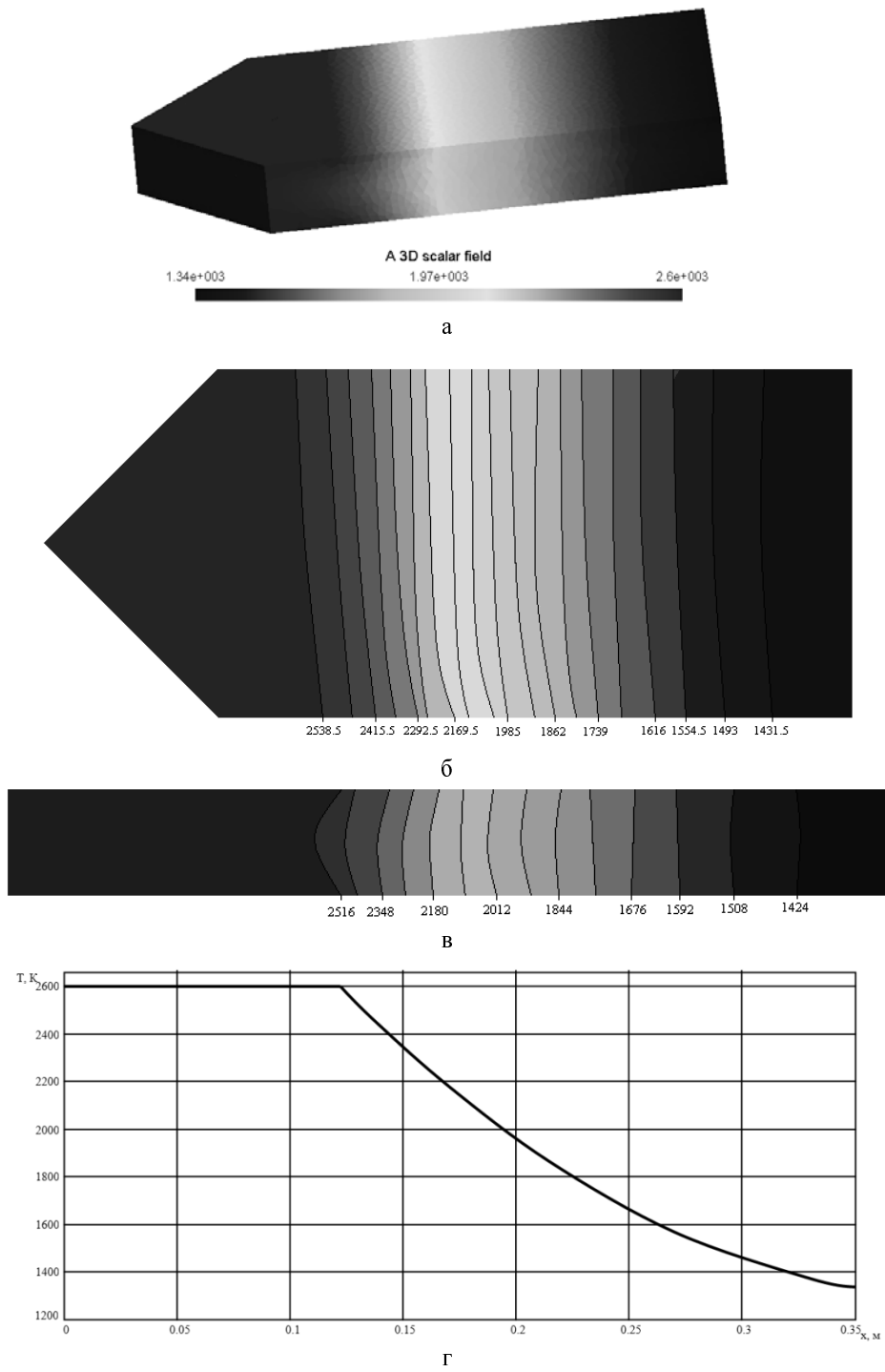


Рис. 3. В контейнере расплав и шихта

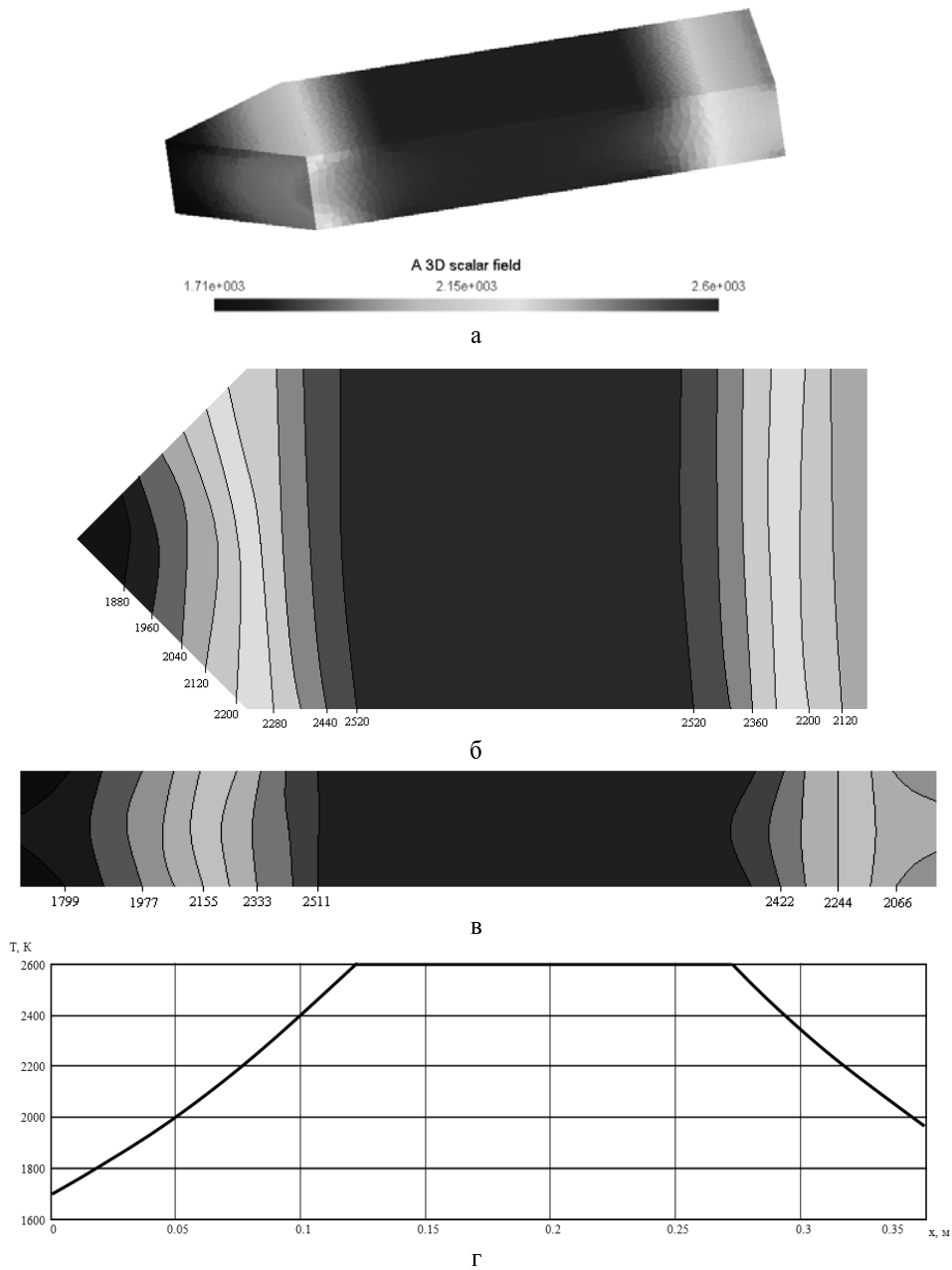


Рис. 4. В контейнере кристалл, расплав и шихта

Результаты расчета показали, что прозрачность монокристаллов сапфира в кристаллической фазе и непрозрачность в расплаве непосредственно влияет на радиационные потоки в системе, а, учитывая их весомый вклад в общий теплообмен, данный фактор влияет и на температурное поле, и на положение фронта кристаллизации. Температурные поля влияют на интенсивность радиационного переноса теплоты. Для оценки степени этого влияния проведены расчеты при повышении уровня температур в системе кристалл–расплав–шихта на 300 К. Результаты показали, что

ширина расплава увеличивается и, как следствие, меняется положение фронта кристаллизации. Из этого можно сделать вывод о возможности регулирования положения фронта кристаллизации повышением температуры нагревателя.

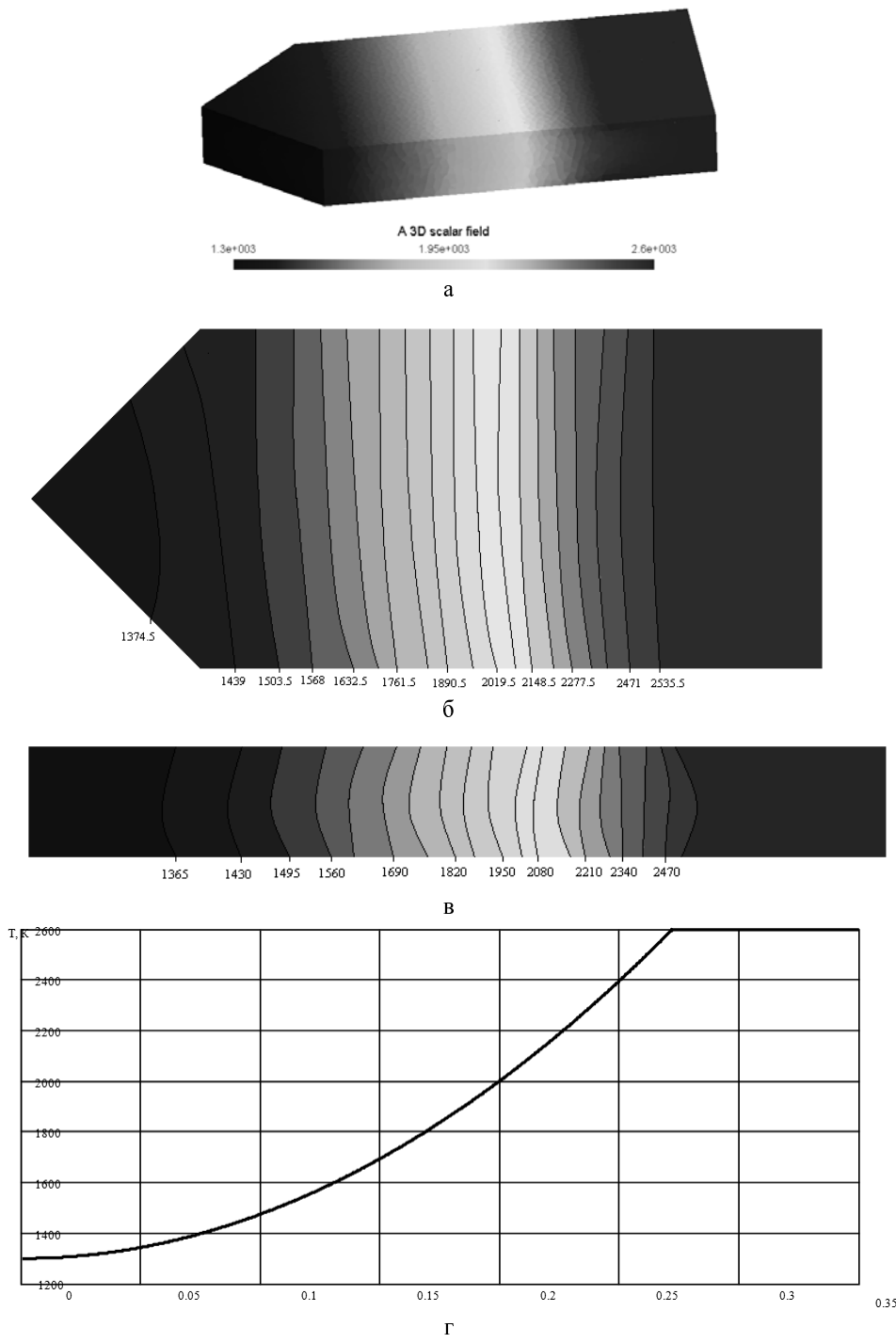


Рис. 5. В контейнере кристалл и расплав

На основании изложенного выше разработана трехмерная модель распределение температурного поля в кристалле. Модель предусматривает динамическое перестроение границы кристалл–расплав в соответствии с распределением температурных полей в системе, полученным из расчета на предыдущей итерации и позволяет приблизиться к решению основной задачи – совершенствованию технологического процесса. Для проведения моделирования использовался метод конечных объемов (МКО) на неструктурированной сетке. Программа моделирования была разработана в Microsoft Visual Studio 2008 на языке программирования C++ (подана заявка на свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ).

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. *Дешко В.И., Карвацкий А.Я., Лохманец Ю.В.* Радиационный кондуктивный теплообмен при росте полупрозрачных кристаллов из расплава // Математическое моделирование. – 2008. – № 2 (19). – С. 39 – 43.
2. *Zdanov V., Rossolenko S.N., Borodin V.A.* Mathematical modeling of the multi-run process of crystal pulling from the melt by EGP (Stepanov) technique in dependence on the angle of the inclination of the working edges of the dies // Cryst. Res. Technol. – 2007. – Vol. 42, № 4. – P. 325.
3. *Brandon S., Derby J.J.* Internal radiative transport in the vertical Bridgman growth of semi-transparent crystals // Journal of Crystal Growth. – 1991. – Vol. 110, № 3. – P. 481-500.
4. *Багдасаров Х.С., Горяинов Л.А.* Тепло- и массоперенос при выращивании монокристаллов направленной кристаллизацией. – М.: Физматлит, 2007. – 224 с.
5. *Нелина С.Н.* Разработка и исследование технологии изготовления элементов электронной техники на основе монокристаллического сапфира: Дис. ... канд. техн. наук. – Таганрог, 2010. – 156 с.
6. *Абгарян А.А.* Моделирование температурных и термоупругих полей в сапфире в трехмерных криволинейных координатах // Математическое моделирование. – 2001. – Т. 13, № 8. – С. 20-34.
7. *Малюков С.П., Куликова И.В., Нелина С.Н., Клунникова Ю.В.* Численное моделирование роста кристаллов сапфира методом ГНК // Информационные технологии, системный анализ и управление: Тезисы докл. Всерос. конф. (Таганрог, 9-10 дек. 2010 г.). – Таганрог, 2010. – С. 155 – 156.
8. *Малюков С.П., Стефанович В.А., Чердниченко Д.И.* Исследование модели самосогласованного роста монокристаллов сапфира по методу горизонтальной направленной кристаллизации // Известия вузов. Электроника. – 2007. – № 2. – С. 3-9.
9. *Лебедев Г.А., Малюков С.П., Стефанович В.А., Чердниченко Д.И.* Теплофизические процессы при получении кристаллов лейкосапфира методом горизонтальной направленной кристаллизации // Кристаллография. – 2008. – Т. 53, № 2. – С. 356-360.
10. *Малюков С.П., Стефанович В.А., Чердниченко Д.И.* Релаксация пузырей в расплаве лейкосапфира при получении кристаллов методом горизонтальной направленной кристаллизации // Кристаллография. – 2007. – № 6, Т. 52. – С. 1137-1140.
11. *Лыков А.В.* Теория теплопроводности. – М.: Высшая школа, 1967. – 600 с.
12. *Першин И.М.* Анализ и синтез систем с распределенными параметрами. – Пятигорск, 2007. – 244 с.
13. *Багдасаров Х.С.* Высокотемпературная кристаллизация из расплава. – М.: Физматлит, 2004. – 160 с.

Статью рекомендовал к опубликованию д.ф.-м., профессор А.И. Жорник.

Малюков Сергей Павлович

Технологический институт федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего профессионального образования «Южный федеральный университет» в г. Таганроге.

E-mail: malyukov@fep.tsure.ru.

347928, г. Таганрог, пер. Некрасовский, 44.

Тел.: 88634371603.

Кафедра конструирования электронных средств; заведующий кафедрой; д.т.н.; профессор.

Клунникова Юлия Владимировна

E-mail: jklunnikova@rambler.ru.

Кафедра конструирования электронных средств; аспирант.

Malyukov Serguei Pavlovich

Taganrog Institute of Technology – Federal State-Owned Autonomy Educational Establishment of Higher Vocational Education “Southern Federal University”.

E-mail: malyukov@fep.tsure.ru.

44, Nekrasovskiy, Taganrog, 347928, Russia.

Phone: +78634371603.

The Department of Electronic Apparatuses Design; the Department Head; Dr. of Eng. Sc., Professor.

Klunnikova Yulia Vladimirovna

E-mail: jklunnikova@rambler.ru.

The Department of Electronic Apparatuses Design; Post-graduate Student.

УДК 621.382.81

С.П. Авдеев, Е.В. Луговой, П.В. Серба

О ВЛИЯНИИ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОЙ ОБРАБОТКИ НА ПОВЕРХНОСТЬ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ПЛЕНОК НА ОСНОВЕ Al_2O_3

Рассмотрены вопросы синтеза тонких монокристаллических пленок золь-гель технологией с рекристаллизацией электронным лучом. Пленкообразующей основой выбран изопропилат алюминия, который позволяет получить высокочистый ксерогель. Это неоднородное состояние пленки является исходным материалом для рекристаллизации электронным лучом в монокристаллическую пленку Al_2O_3 . Показано, что при электронно-лучевой обработке при низкой предварительной температуре подогрева образца, могут формироваться островковые монокристаллические пленки Al_2O_3 . Приведены результаты экспериментальных исследований и предложен механизм формирования полученных пленок.

Золь-гель технология; Al_2O_3 ; электронно-лучевая обработка.

S.P. Avdeev, E.V. Lugovoy, P.V. Serba

ABOUT THE INFLUENCE OF ELECTRON-BEAM PROCESSING ON THE SURFACE OF DIELECTRIC FILMS ON THE BASIS OF Al_2O_3

In the work questions of synthesis thin monolith films by sol-gel technology with electron beam recrystallization is considered. Aluminiumisopropoxide was selected as a film-forming basis, which allows gaining high clean xerogel. This nonuniform state of a film is a starting substance for recrystallizing by electron beam in the monolithic film Al_2O_3 . It is demonstrated that at electron-beam processing at low preheating temperature of sample, insular monolithic films Al_2O_3 may be formed. The results of experimental researches are given and the mechanism of obtained films formation is offered.

Sol-gel technology; alumina (Al_2O_3); electron-beam processing.

В последние несколько лет пленки оксида алюминия широко используются в микроэлектронных приборах, в качестве подзатворного диэлектрика, оптоэлектронике, датчиках, в качестве просветляющего покрытия и пассивации поверхности солнечных батарей. Пленки оксида алюминия проявляют термодинамическую устойчивость при высоких температурах, ширина запрещенной зоны и диэлектрическая проницаемость выше, чем у SiO_2 , хорошая диэлектрическая прочность, химическая и радиационная устойчивость, низкая плотность поверхностных состояний.