

01

Определение уровня расплава из реального весового сигнала в автоматизированном процессе выращивания кристаллов по способу Степанова (EFG) и использование перемещения тигля в качестве управляющего воздействия

© С.Н. Россоленко, Д.О. Стрюков, В.Н. Курлов

Институт физики твердого тела РАН,
142432 Черноголовка, Московская область, Россия
e-mail: strukov@issp.ac.ru

(Поступило в Редакцию 28 ноября 2014 г.)

Определен текущий уровень расплава из реального весового сигнала в автоматизированном процессе выращивания кристаллов по способу Степанова (EFG). При этом не требуется знания реальной формы растущих кристаллов. На основе численного решения капиллярного уравнения Лапласа произведен анализ использования перемещения тигля с расплавом в качестве управляющего воздействия, влияющего на форму менисков и растущих кристаллов.

Введение

При выращивании кристаллов из расплава способом Степанова (EFG) с применением автоматизированной системы управления формой и качеством кристаллов, использующей датчик веса, существует задача оценки изменения текущего уровня расплава в тигле в ходе ростового процесса [1–3]. Информация об изменении уровня расплава в тигле необходима для задания функции изменения скорости перемещения нижнего штока (тигля) в соответствии с необходимостью поддерживать уровень расплава на одном уровне относительно поверхности рабочих кромок формообразователя или менять его (уровень) по заданному закону.

Задача состоит в том, чтобы на основе геометрических характеристик тепловой зоны и измеряемого весового сигнала при отсутствии информации о реальной форме растущих кристаллов определить функцию изменения уровня расплава, в соответствии с которой можно было бы задавать функцию изменения скорости перемещения нижнего штока (тигля).

Отличительной чертой способа Степанова (EFG) является наличие формообразователя, который вносит дополнительное влияние на сигнал, измеряемый датчиком веса кристаллов. Помимо самого растущих кристаллов и менисков датчик фиксирует влияние внешнего статического давления, обусловленного разницей высот рабочих кромок формообразователя и расплава в тигле, силы поверхностного натяжения мениска расплава, образуемого между кристаллом и формообразователем [2].

Определение текущего уровня расплава из реального весового сигнала

Схема с погруженным в расплав формообразователем и растущими кристаллами и используемые геометри-

ческие размеры показаны на рис. 1. Рассматривается цилиндрический тигель.

До опускания формообразователя в расплав начальная высота уровня расплава в тигле находится, согласно исходной массе M_0 загрузки шихты, по известной простой

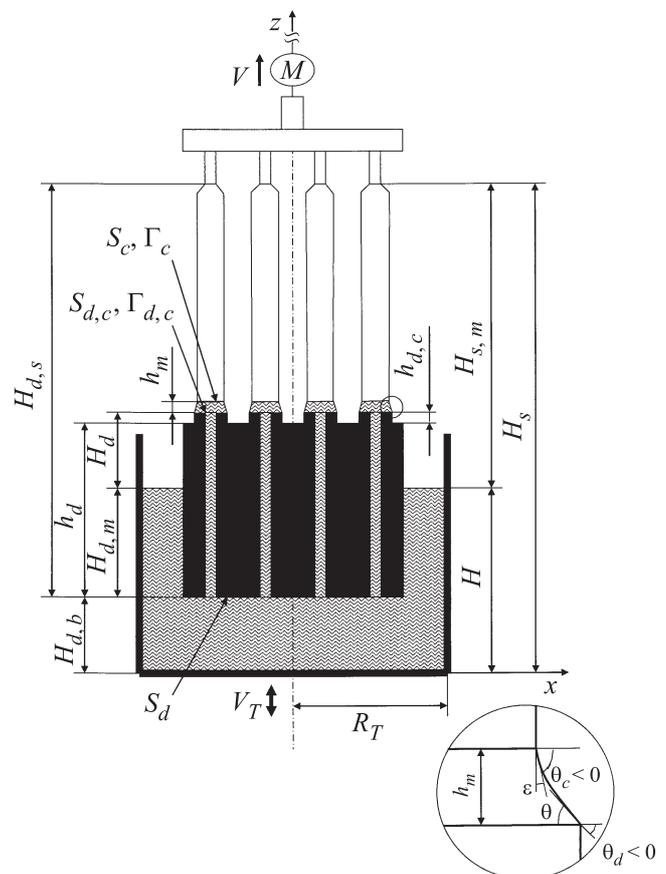


Рис. 1. Схема выращивания кристаллов по способу Степанова (EFG).

формуле

$$H = \frac{M_0}{\pi \rho_L R_T^2}, \quad (1)$$

где H — общая высота уровня расплава в тигле, ρ_L — плотность расплава, R_T — радиус тигля.

При опускании формообразователя в расплав необходимо зафиксировать глубину погружения формообразователя в расплав или расстояние $H_{d,b}$ от нижнего торца формообразователя до дна тигля. Тогда, используя закон сохранения массы, получим выражение для высоты уровня расплава в тигле с погруженным формообразователем

$$H = \frac{\frac{M_0}{\rho_L} - S_d H_{d,b}}{\pi R_T^2 - S_d}, \quad (2)$$

где S_d — площадь нижней части формообразователя с учетом площади разрезов капилляров.

При перемещении тигля необходимо учесть то, что величина $H_{d,b}$ изменяется в соответствии со скоростью V_T перемещения тигля как временной интеграл этой скорости: $H_{d,b} = H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau$. Здесь величина $H_{d,b,0}$ является начальным значением величины $H_{d,b}$, т.е. начальным расстоянием от нижней поверхности формообразователя, погруженной в расплав, до дна тигля. Тогда выражение для высоты уровня расплава в тигле с учетом реальной массы $M_{c,r}$ растущих кристаллов запишется следующим образом:

$$H = \frac{\frac{M_0 - M_{c,r}}{\rho_L} - S_d (H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau)}{\pi R_T^2 - S_d}. \quad (3)$$

В выражении (3) положительным направлением перемещения тигля считается движение вверх, т.е. надвигание тигля с расплавом на формообразователь.

Как было отмечено выше, в весовой сигнал вносят вклад, помимо самого веса кристаллов, внешнее статическое давление на мениски, вес самих менисков и сила поверхностного натяжения менисков. Учет влияния этих сил сводится в приближенных вычислениях к учету площади $S_{d,c}$ рабочей поверхности формообразователя, высоты H_d рабочей поверхности формообразователя над поверхностью расплава в тигле, средней высоты h_m мениска (менисков). Необходимо выразить массу $M_{c,r}$ кристаллов через массу M_d , измеряемую датчиком веса. Реальная масса менисков не сильно отличается от программной их массы. Поэтому в предположении их равенства масса $M_{c,r}$, измеряемая датчиком веса, записывается следующим образом [2]:

$$M_{c,r} = M_d - \rho_L h_m S_c - 0.5 \rho_L a^2 (\Gamma_c \cos \varepsilon - \Gamma_{d,c} \sin \theta) - \rho_L H_d S_{d,c}, \quad (4)$$

где h_m — средняя высота менисков кристаллов, S_c — площадь поперечного сечения растущих кристаллов на фронте кристаллизации, $S_{d,c}$ — площадь рабочих кромок формообразователя, a — капиллярная

постоянная, Γ_c — длина контура поперечного сечения кристаллов на фронте кристаллизации, $\Gamma_{d,c}$ — длина контура поперечного сечения рабочих кромок формообразователя, ε — угол роста расплавленного материала, θ — средний угол контакта основания менисков с рабочей поверхностью формообразователя (рис. 1).

Величина H_d , используемая в выражении (4), согласно принятым на рис. 1 обозначениям, находится следующим образом:

$$H_d = h_d - H + H_s - H_{d,s} + h_{d,c}. \quad (5)$$

В выражении (5) разность $H_s - H_{d,s}$ находится следующим образом:

$$H_s - H_{d,s} = H_{d,b} = H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau. \quad (6)$$

Используя выражения (3)–(6), находится выражение для высоты H уровня расплава в тигле

$$H = \frac{b - (S_d - S_{d,c}) (H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau) S_{d,c} (h_d + h_{d,c})}{\pi R_T^2 - (S_d - S_{d,c})}, \quad (7)$$

где

$$b = \frac{M_0 - M_d}{\rho_L} + h_m S_c + 0.5 a^2 (\Gamma_c \cos \varepsilon - \Gamma_{d,c} \sin \theta),$$

$h_{d,c}$ — высота рабочих кромок над верхней поверхностью формообразователя, h_d — высота всего формообразователя без высоты рабочих кромок над ним.

Используя выражение (7), нетрудно вычислить скорость \dot{H} изменения расплава в тигле

$$\dot{H} = \frac{\dot{b} + (S_d - S_{d,c}) V_T}{\pi R_T^2 - (S_d - S_{d,c})}, \quad (8)$$

где

$$\begin{aligned} \dot{b} = & -\frac{\dot{M}_d}{\rho_L} + \dot{h}_m S_c \\ & + 0.5 a^2 (\dot{\Gamma}_c \cos \varepsilon - \dot{\Gamma}_{d,c} \sin \theta - \Gamma_{d,c} \dot{\theta} \cos \theta). \end{aligned}$$

Здесь производные программных функций высоты мениска, контуров поперечных сечений кристаллов и формообразователя, угла контакта мениска с формообразователем имеют ненулевое значение при разращивании кристаллов, например при разращивании кристаллических труб. Для кристаллов с постоянным поперечным сечением $\dot{b} = -\dot{M}_d / \rho_L$.

Для оценки высоты мениска и характеристик профильной кривой мениска требуется знать расстояние H_d между уровнем рабочих кромок формообразователя и уровнем расплава в тигле (модуль внешнего статического давления в мениске). Величина H_d равна

$$H_d = h_d + \left(H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau \right) - H + h_{d,c}. \quad (9)$$

Используя выражения (7) и (9), находим величину H_d

$$H_d = \frac{-b + \pi R_T^2 (H_{d,b,0} - \int_t V_T d\tau) - S_{d,c}(h_d + h_{d,c})}{\pi R_T^2 - (S_d - S_{d,c})} + h_d + h_{d,c}. \quad (10)$$

В системе координат, изображенной на рис. 1, величина H_d для рассматриваемого случая, изображенного также на рис. 1 (когда уровень расплава ниже уровня рабочих кромок формообразователя), вычисляемая, согласно (10), больше нуля. Для вычисления профильных кривых мениска с помощью уравнения Лапласа ось абсцисс обычно располагается на уровне основания мениска, т.е. на поверхности рабочих кромок формообразователя. Поэтому при этих расчетах $H_d < 0$, и в выражение (10) следует добавить знак „минус“.

Скорость изменения величины H_d записывается следующим образом:

$$\dot{H}_d = \frac{-\dot{b} - \pi R_T^2 V_T}{\pi R_T^2 - (S_d - S_{d,c})}. \quad (11)$$

Постоянство уровня расплава в тигле относительно рабочей поверхности формообразователя определяется условием $V_T = -\dot{H}$. Используя выражение (8), получим выражение для скорости V_T перемещения тигля, при котором уровень расплава относительно рабочих кромок формообразователя будет постоянным

$$V_T = -\frac{\dot{b}}{\pi R_T^2}. \quad (12)$$

Исследование влияния перемещения тигля с расплавом на форму менисков и растущих кристаллов

Как известно [4], форма мениска расплава, находящегося между кристаллом и формообразователем, хорошо описывается в статическом приближении капиллярным уравнением Лапласа, которое в безразмерном виде записывается следующим образом [5]:

$$z''r + z'(1 + z'^2) \pm 2(H_d - z)(1 + z'^2)^{3/2}r = 0. \quad (13)$$

Как видно из уравнения Лапласа, одним из факторов, оказывающих влияние на форму мениска, является внешнее статическое давление, определяемое перепадом высот уровня расплава в тигле и рабочих кромок формообразователя. На рис. 2 показано семейство профильных кривых менисков, рассчитанных для различных значений внешнего давления [6,7].

Расчеты проводились для менисков, образуемых при цилиндрическом кристалле радиусом $r_c = 0.97$ в безразмерных единицах (в капиллярных постоянных) для краевых условий зацепления. Радиус R_d формообразователя был равен единице. Капиллярная постоянная

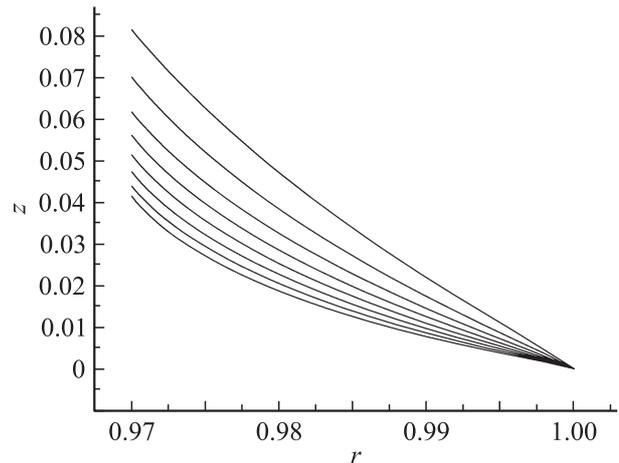


Рис. 2. Профильные кривые менисков, рассчитанные для различных значений внешнего давления H_d .

для сапфира приблизительно составляет 6 мм [8]. Таким образом, рассматривался мениск при кристалле и формообразователе с радиусами, близкими к 6 мм. При расчетах для фиксированного значения внешнего давления начальный угол θ_d контакта мениска с краем формообразователя подбирался так, чтобы конечный угол θ_c контакта с краем кристалла соответствовал с определенной точностью углу роста. Угол ϵ роста для сапфира принимался равным 13° [8,9]. Затем осуществлялась „прогонка“ расчетов по внешнему давлению H_d от -8 (в безразмерных величинах, что для сапфира соответствует расстоянию от поверхности расплава в тигле до рабочих кромок формообразователя -48 мм) до -1 (что соответствует -6 мм), в результате чего было получено семейство профильных кривых, показанных на рис. 2.

Нижней профильной кривой мениска (рис. 2) соответствует максимальный модуль внешнего давления ($H_d = -8$). При уменьшении абсолютной величины давления кривые „поднимаются“, и верхняя профильная кривая соответствует минимальному модулю внешнего давления ($H_d = -1$).

При этом с уменьшением абсолютной величины внешнего давления увеличивается высота мениска, что показано на рис. 3.

При изменении внешнего давления H_d от -8 до -1 высота h_m мениска увеличивается приблизительно в 2 раза с 0.04 (0.24 мм) до 0.08 (0.48 мм). При этом чем ближе давление к нулю, тем быстрее увеличивается высота мениска.

Проблема поддержания заданного уровня качества кристалла в ходе технологического процесса включает в себя не только необходимость поддержания заданной геометрии кристалла, но и связанной с ней определенной высоты фронта кристаллизации и мениска, которые должны изменяться в ходе процесса роста в небольших пределах. Помимо теплового фактора, влияющего на

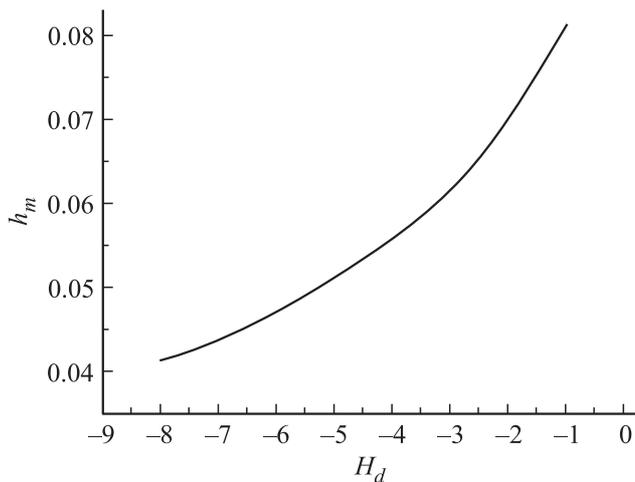


Рис. 3. Зависимость высоты h_m мениска от внешнего давления H_d .

высоту мениска, внешнее давление, зависящее от уровня расплава в тигле, также оказывает свое влияние на высоту мениска (рис. 2).

Следовательно, если необходимо поддерживать высоту мениска в определенном, достаточно узком, диапазоне, то требуется поддерживать внешнее давление в мениске, а стало быть, и уровень расплава в тигле (относительно рабочих кромок формообразователя) постоянными.

Надвигание тигля с расплавом относительно формообразователя изменяет не только внешнее давление в мениске, но и оказывает тепловое воздействие на зону кристаллизации как источник дополнительного охлаждения (в случае индуктивного нагрева тепловой зоны) или источник дополнительного тепла (в случае резистивного нагрева).

Следует различать два типа движения тигля. Во-первых, относительно медленное надвигание тигля, когда оно выступает дополнительным фактором медленного прогрета (охлаждения) зоны кристаллизации и медленного изменения внешнего давления. Во-вторых, достаточно быстрое (небольшое, почти скачкообразное и кратковременное) перемещение тигля, являющееся по сути дополнительным каналом управления профилем кристалла, оказывающим почти безынерционное тепловое воздействие на зону кристаллизации и почти скачкообразное изменение внешнего давления в мениске, также оказывающее впоследствии влияние на профиль растущего кристалла.

В настоящей работе рассматривается влияние изменения внешнего давления, связанное с медленным и быстрым перемещениями тигля.

Медленное перемещение тигля обычно связано с необходимостью погружения формообразователя в расплав в ходе роста для наиболее полного использования загруженной в тигель шихты. Для тепловой зоны с индукционным нагревом характерное изменение мощности

нагрева в процессе роста имеет вид, показанный на рис. 4.

Как показано на рис. 4, в начале процесса идет повышение мощности нагрева. Это соответствует тому, что автоматическая система компенсирует некоторое нарастающее переохлаждение в зоне роста. При отсутствии компенсации этого переохлаждения высота фронта кристаллизации и мениска стремится уменьшиться и приблизиться к рабочей поверхности формообразователя. Как показано на рис. 3, уменьшение абсолютной величины внешнего давления, т. е. постепенное надвигание тигля на формообразователь увеличивает высоту мениска. Таким образом, надвигание тигля на данном этапе как фактор, уменьшающий модуль внешнего давления, действует в нужном направлении, повышая высоту мениска, и, как следствие, при компенсации теплового фактора, повышая высоту фронта кристаллизации. Подъем тигля на этом этапе роста можно производить до некоторой предельной величины, предотвращающей контакт нижней поверхности формообразователя с дном тигля, увеличивая тем самым и расход загруженной шихты.

На заключительном этапе роста мощность нагрева снижается (рис. 4), компенсируя тем самым нарастающий перегрев в зоне кристаллизации. Отсутствие перемещения тигля на данном этапе роста приводит к нарастающему падению уровня расплава в тигле, к увеличению абсолютной величины внешнего давления и, как следствие, к уменьшению высоты мениска (рис. 3). Уменьшение высоты мениска за счет увеличения модуля внешнего давления на этом этапе роста приводит совместно с компенсацией теплового фактора к последующему снижению фронта кристаллизации. Таким образом, на данном этапе падение уровня расплава в тигле — фактор, действующий в нужном направлении.

Для рассмотрения влияния изменения внешнего давления в мениске за счет быстрого кратковременного

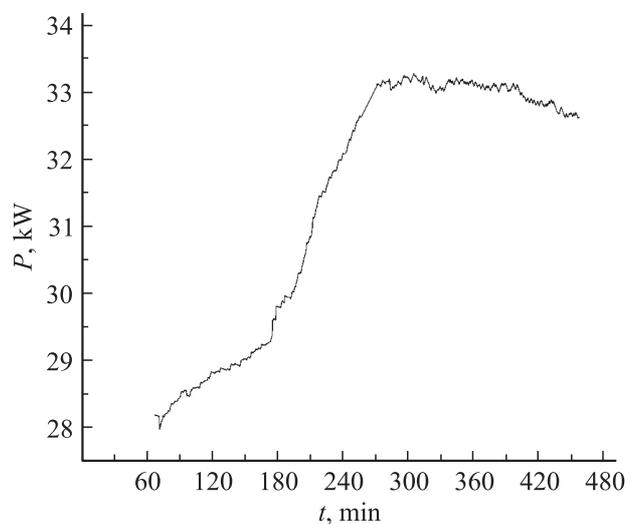


Рис. 4. Типичное изменение мощности нагрева в процессе роста сапфирового кристалла.

перемещения тигля относительно его „крейсерского“ (медленного) движения предполагается, что в момент быстрого надвигания тигля фронт кристаллизации и мениск не успевают в первые моменты времени изменить свою высоту. В этом случае рассчитывалось капиллярное уравнение Лапласа для заданной высоты мениска, равной приблизительно средней величине, наблюдаемой в процессе роста, $h_m = 0.05$, что для сапфира соответствует 0.3 mm . Остальные параметры моделирования оставались теми же, в том числе и параметры „прогонки“ по внешнему давлению H_d . При каждом значении внешнего давления начальный угол контакта с краем формообразователя менялся так, чтобы профильная кривая достигала заданной высоты мениска на заданном радиусе кристалла. Рассчитанное семейство профильных кривых показано на рис. 5.

Нижней кривой на рис. 5 соответствует минимальное внешнее давление ($H_d = -8$), а верхней кривой — максимальное ($H_d = -1$). Таким образом, при резком надвигании тигля и соответственно увеличении внешнего давления профильные кривые менисков „вспучиваются“ и приподнимаются (при неизменной высоте мениска). Это обусловлено уменьшением абсолютной величины внешнего давления, т.е. уменьшением силы, притягивающей мениск к формообразователю. Как следствие, меняются углы контакта с краями формообразователя и кристалла. Рассчитанные кривые для конечных углов контакта с краем кристалла и начальных углов контакта с краем формообразователя при различных значениях внешнего давления показаны на рис. 6, *a* и *b* соответственно.

Значение конечного угла контакта с краем кристалла увеличивается с уменьшением абсолютной величины внешнего давления (рис. 6, *a*), т.е. с уменьшением абсолютной величины внешнего давления профильная кривая подходит к кристаллу „более горизонтально“. Эта зависимость почти линейная. Средняя производ-

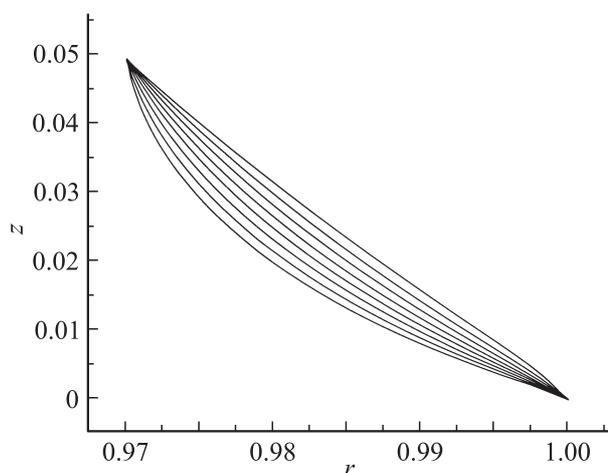


Рис. 5. Профильные кривые менисков, рассчитанные для одной их высоты и для различных значений внешнего давления H_d .

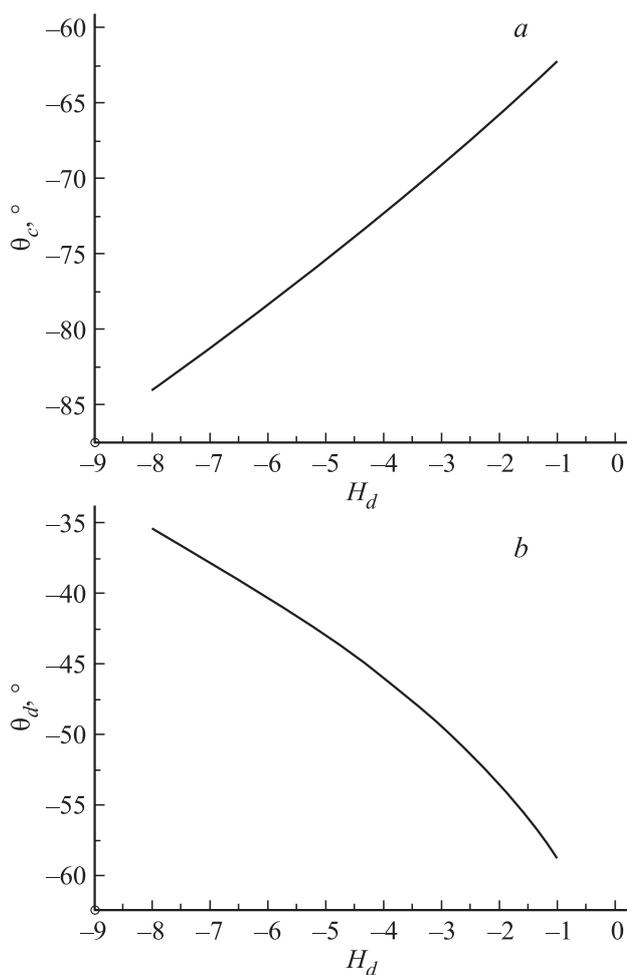


Рис. 6. Зависимости углов контакта мениска с краем кристалла и краем формообразователя при одной и той же высоте менисков и при различных значениях внешнего давления H_d , *a* — конечные углы θ_c контакта с краем кристалла, *b* — начальные углы θ_d контакта с краем формообразователя.

ная этой зависимости составляет приблизительно 3.5° на безразмерную единицу давления. Таким образом, быстрое и кратковременное надвигание тигля приводит к увеличению давления в мениске, „выполживанию“ („вспучиванию“) профильной кривой, уменьшению абсолютной величины угла контакта с краем кристалла, что является фактором, стремящимся расширить кристалл (помимо теплового фактора, действующего в том же направлении при индукционном нагреве).

Зависимость начального угла контакта с краем формообразователя от внешнего давления ведет себя прямо противоположно описанному выше поведению угла контакта с краем кристалла, но в том же направлении — „вспучивания“ профильной кривой мениска. С уменьшением абсолютной величины внешнего давления абсолютная величина начального угла контакта с краем формообразователя увеличивается. Причем, чем ближе внешнее давление к нулю, тем быстрее это увеличение. Это означает, что с уменьшением абсолютной величины

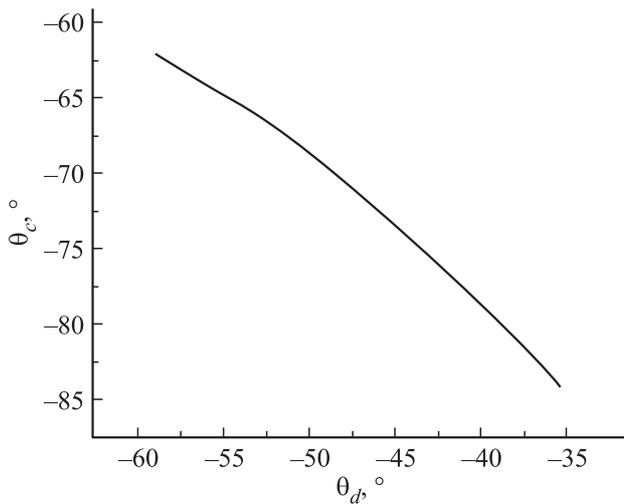


Рис. 7. Зависимость конечного угла θ_c контакта мениска с краем кристалла от начального угла θ_d контакта мениска с краем формообразователя.

внешнего давления профильная кривая мениска уходит вверх от формообразователя все более „круто“, что также способствует дальнейшему расширению кристалла. При этом более „крутое“ поведение профильной кривой мениска около рабочей поверхности формообразователя приводит к более „пологому“ поведению кривой около края кристалла. Зависимость конечного угла контакта с краем кристалла от начального угла контакта с краем формообразователя показана на рис. 7.

Как видно из рис. 7, для описанных выше параметров моделирования углу роста 13° ($\theta_c = -77^\circ$) соответствует угол θ_d контакта с краем формообразователя, равный приблизительно $-40^\circ \sim -42^\circ$.

Заключение

Выражения (7), (8) для вычисления реального уровня расплава в тигле и скорости его изменения по показаниям датчика веса позволяют позиционировать тигель с расплавом в необходимом положении, задавать скорость перемещения тигля в виде некоторой функции от положения уровня расплава. Перемещение тигля с расплавом позволяет осуществлять дополнительное управляющее воздействие на систему расплав–кристалл и дает дополнительную возможность управлять формой и качеством кристаллов, выращиваемых по способу Степанова (EFG).

Вычисление перепада высот между уровнем расплава в тигле и рабочими кромками формообразователя (внешнее статическое давление) из реального сигнала датчика веса дает возможность оценить на основе численного решения капиллярного уравнения Лапласа характеристики менисков, что необходимо для задания программного сигнала датчика веса [7].

Работа выполнена при частичной поддержке гранта РФФИ № 13-03-01177.

Список литературы

- [1] Kurlov V.N., Rossolenko S.N. // J. Cryst. Growth. 1997. N 173. P. 417–426.
- [2] Rossolenko S.N. // J. Cryst. Growth. 2001. N 231. P. 306–315.
- [3] Abrosimov N.V., Kurlov V.N., Rossolenko S.N. // Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials. 2003. N 46. P. 1–57.
- [4] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Механика сплошных сред. М.: Гостехтеориздат, 1953. 788 с.
- [5] Татарченко В.А. Устойчивый рост кристаллов. М.: Наука, 1988. 240 с.
- [6] Россоленко С.Н., Курлов В.Н., Асрян А.А. // Материаловедение. 2008. № 9. С. 6–16.
- [7] Rossolenko S.N., Kurlov V.N., Asrian A.A. // Cryst. Res. Technol. 2009. Vol. 44. N 7. P. 689–700.
- [8] Satunkin G.A. // J. Cryst. Growth. 2003. N 255. P. 170–189.
- [9] Kuandykov L.L., Antonov P.I. // J. Cryst. Growth. 2001. N 232. P. 852–861.