

## Моделирование процессов теплообмена при росте монокристаллов методом Бриджмена – Стокбаргера в неподвижных и вращающихся тиглях

С. А. Кислицын<sup>1,2</sup>, К. А. Митин<sup>1</sup>, В. С. Бердников<sup>1,2,\*</sup>

<sup>1</sup>Институт теплофизики им. С. С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск, 630090, Россия

<sup>2</sup>Новосибирский государственный технический университет, Новосибирск, 630073, Россия

\*Контактный автор: Бердников Владимир Степанович, e-mail: berdnikov@itp.nsc.ru

Поступила 20 декабря 2019 г., доработана 22 сентября 2020 г., принята в печать 27 октября 2020 г.

Численно методом конечных элементов исследованы процессы кристаллизации кремния в плоскостонных неподвижных и равномерно вращающихся графитовых цилиндрических тиглях в режимах сопряженного конвективного теплообмена. Процессы кристаллизации кремния изучены при фиксированной скорости опускания тигля в холодную зону и различных скоростях его вращения. Опускание тигля имитировалось перемещением точки излома в распределении температуры на внешней стороне стенок тигля. Точка излома — это граница перехода от нагретого до начальной температуры участка стенки к области с заданным градиентом температуры. Используются адаптивные сетки на треугольниках, отслеживающие положение фронта кристаллизации на каждом временном шаге. Использован пакет программ собственной разработки.

*Ключевые слова:* численное моделирование, кристаллизация, сопряженный теплообмен, метод Бриджмена – Стокбаргера, МКЭ, кремний.

*Цитирование:* Кислицын С.А., Митин К.А., Бердников В.С. Моделирование процессов теплообмена при росте монокристаллов методом Бриджмена – Стокбаргера в неподвижных и вращающихся тиглях. Вычислительные технологии. 2021; 26(1):21–32. DOI:10.25743/ICT.2021.26.1.002.

### Введение

Методом Бриджмена получают монокристаллы и слитки различных веществ, которые являются исходными материалами для создания изделий микро- и оптоэлектроники, нелинейной оптики и т. д. [1–4]. Метод используется для кристаллизации кремния солнечного качества (мультикремния) в плоскостонных тиглях цилиндрической и прямоугольной формы [5–7]. В этом методе расплав, находящийся в тигле и перегретый относительно температуры кристаллизации исходного материала, из горячей верхней зоны печи опускается с заданной скоростью в нижнюю холодную зону. После зарождения кристалла на охлаждаемом дне снизу вверх распространяется фронт кристаллизации (ФК).

Для всех вариантов метода Бриджмена характерны режимы сопряженного конвективного теплообмена в системе тигель – расплав – кристалл. Создание технологий выращивания высококачественных монокристаллов требует понимания особенностей сопряженного конвективного теплообмена при различных сочетаниях теплопроводностей расплавов, кристаллов и материалов тиглей. На сопряженный конвективный теплообмен влияют скорость опускания тигля в холодную зону и скорость вращения тигля. На исследование этого влияния направлена данная работа. Численные исследования влияния сопряженного конвективного теплообмена на скорость кристаллизации и форму ФК проведены для системы кремний – графит, они являются развитием работ [5–7]. Результаты численных исследований будут использованы при конструировании физической модели и планировании экспериментальных исследований гидродинамики и теплообмена.

Несмотря на большое количество технологических и численных исследований процессов кристаллизации с использованием классического метода Бриджмена, из-за нелинейности взаимодействия различных механизмов генерации течения, ответов на многие вопросы нет. Технологическая практика показывает, что во всех методах направленной кристаллизации рост кристаллов с плоским ФК обеспечивает наиболее однородное радиально-азимутальное распределение электрофизических свойств в плоскости, нормальной к направлению роста [8]. В методе Бриджмена вследствие возникновения радиальных градиентов температуры, вызванных различием теплопроводности расплава и стенок тигля, в расплаве неизбежно появляются конвективные течения [5–7]. Подбирая режим конвективного теплообмена, можно скорректировать форму ФК и организовать унос отторгаемых от ФК примесей [3–7]. Параметрами, определяющими режим конвективного теплообмена, являются начальный перегрев расплава, скорость опускания тигля в холодную зону, скорость вращения тигля. Прямые исследования высокотемпературных технологических процессов дорогостоящи и трудоемки. Измерить характеристики нестационарных полей температуры в составной области тигель – расплав – кристалл ростовой установки практически невозможно. Поэтому целесообразно численно исследовать протекающие в системе сопряженные процессы теплообмена.

Настоящая работа является продолжением исследований, начатых в Институте теплофизики СО РАН и Институте геохимии СО РАН [5–7]. Расчеты выполнены при большей высоте графитового тигля, чем в упомянутых работах, измененных скоростях опускания тигля и других градиентах температуры в режимах нестационарной теплопроводности и термогравитационной конвекции. При проверке адекватности численной модели желательно проводить сравнение полученных численно результатов с экспериментальными данными. Необходимый физический эксперимент будет проведен в будущем с использованием гептадекана в режимах кристаллизации на физической модели метода Бриджмена по аналогии с [9].

## 1. Постановка задачи

Численное моделирование проводилось в безразмерном виде в осесимметричной сопряженной постановке. Задача решалась в составной расчетной области  $\Omega = \Omega_1 \cup \Omega_2 \cup \Omega_3$ , схематично представленной на рис. 1.

В начальный момент времени  $t = 0$  графитовый тигель ( $\Omega_3$ ) заполнен перегретым расплавом кремния ( $\Omega_1$ ). На внешней стороне стенок тигля устанавливается профиль температуры  $T$ , состоящий из участка с постоянной температурой и участка линейного

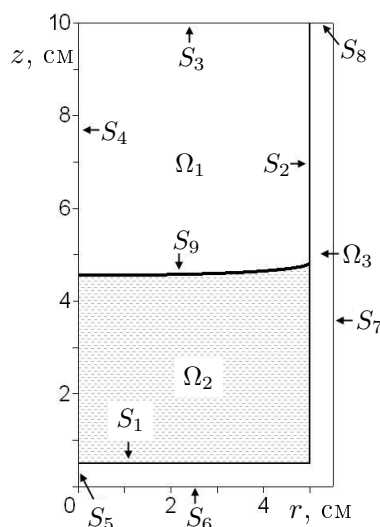


Рис. 1. Схема расчетной области  
 Fig. 1. Scheme of the computational domain

распределения температуры. Опускание тигля из горячей зоны в холодную имитируется скоростью перемещения точки излома температуры на внешней границе тигля. Постоянная температура в верхней части тигля имеет значение начальной температуры перегретого расплава. Процесс кристаллизации начинается в придонной части расплава при охлаждении внутренней поверхности дна до температуры кристаллизации. Выхолаживание внешней поверхности и рост кристалла продолжают до тех пор, пока область кристалла ( $\Omega_2$ ) не займет все внутреннее пространство тигля. Верхняя свободная граница расплава задана плоской и недеформируемой. Совокупный объем закристаллизовавшегося вещества и расплава полагается постоянным.

Конвективный теплообмен в расплаве описывается системой уравнений термогравитационной конвекции в приближении Буссинеска:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial T}{\partial t} + U \frac{\partial T}{\partial r} + V \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{\text{Pr}} \nabla^2 T, \\ \frac{\partial \omega}{\partial t} + U \frac{\partial \omega}{\partial r} + V \frac{\partial \omega}{\partial z} - U \frac{\omega}{r} - \frac{1}{r} \frac{\partial W^2}{\partial z} = \nabla^2 \omega - \frac{\omega}{r^2} - \text{Gr} \frac{\partial T}{\partial r}, \\ \frac{\partial W}{\partial t} + U \frac{\partial W}{\partial r} + V \frac{\partial W}{\partial z} + U \frac{W}{r} = \nabla^2 W - \frac{W}{r^2}, \\ \nabla^2 \psi - \frac{2}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} = r\omega, \\ U = \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z}, \\ V = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r}. \end{array} \right.$$

Здесь  $U$ ,  $V$ ,  $W$  — радиальная, осевая и азимутальная компоненты вектора скорости соответственно;  $T$  — температура;  $\omega$  — вихрь скорости;  $\psi$  — функция тока;  $\nabla^2$  — оператор Лапласа;  $\text{Pr} = \nu\alpha^{-1}$  — число Прандтля;  $\text{Gr} = g\beta\Delta TR_T^3\nu^{-2}$  — число Грасгофа;  $\alpha = \lambda_f(\rho_f c_f)^{-1}$  — температуропроводность;  $\Delta T$  — перепад температуры.

Безразмерные уравнения теплопроводности в кристалле и тигле имеют следующий вид соответственно:

$$\begin{aligned}\left(\frac{c_s \rho_s}{c_f \rho_f}\right) \frac{\partial T}{\partial t} &= \left(\frac{\lambda_s}{\lambda_f \text{Pr}}\right) \nabla^2 T, \\ \left(\frac{c_c \rho_c}{c_f \rho_f}\right) \frac{\partial T}{\partial t} &= \left(\frac{\lambda_c}{\lambda_f \text{Pr}}\right) \nabla^2 T.\end{aligned}$$

В решаемых уравнениях  $c_f$ ,  $c_s$ ,  $c_c$  — коэффициенты удельной теплоемкости расплава, кристалла и тигля соответственно;  $\lambda_f$ ,  $\lambda_s$ ,  $\lambda_c$  — коэффициенты теплопроводности;  $\rho_f$ ,  $\rho_s$ ,  $\rho_c$  — плотности;  $\nu$  — кинематическая вязкость расплава;  $\beta$  — коэффициент объемного теплового расширения расплава;  $g$  — ускорение свободного падения;  $R_T$  — геометрический масштаб.

При решении задачи учитывалась скрытая теплота кристаллизации. Безразмерное уравнение энергии в зоне кристаллизации [10] модифицировалось следующим образом:

$$\frac{\rho_s}{\rho_f} \left( \frac{c_s}{c_f} + \frac{L\delta(T - T_S)}{c_f} \right) \left( \frac{\partial T}{\partial t} + U \frac{\partial T}{\partial r} + V \frac{\partial T}{\partial z} \right) = \left( \frac{\lambda_s}{\lambda_f \text{Pr}} \right) \nabla^2 T.$$

Здесь  $L$  — теплота кристаллизации;  $T_S$  — температура фазового перехода. Положение и форма фронта кристаллизации определяются изотермой с температурой, равной температуре кристаллизации. Для аппроксимации  $\delta$ -функции использовалось выражение

$$\delta(T - T_S) = \begin{cases} \frac{1}{2\Delta}, & |T - T_S| \leq \Delta, \\ 0, & |T - T_S| \geq \Delta, \end{cases}$$

где значение параметра  $\Delta$  подбирается в процессе вычислений на каждом временном шаге индивидуально, в зависимости от объема вещества, который должен закристаллизоваться на данном временном шаге.

Задача решается при следующих краевых и начальных условиях:

$$\begin{aligned}\lambda_f \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{9+}} &= \lambda_s \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{9-}}, \quad \lambda_f \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{1+2-}} = \lambda_c \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{1-2+}}, \quad \lambda_s \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{1+2+}} = \lambda_c \frac{\partial T}{\partial n} \Big|_{S_{1-2-}}, \\ T|_{S_{1+}} &= T|_{S_{1-}}, \quad T|_{S_{2+}} = T|_{S_{2-}}, \quad T|_{S_{9+}} = T|_{S_{9-}}, \quad \psi|_{S_i} = 0, \quad i = 1, 2, 3, 4, \\ \omega|_{S_i} &= \frac{\partial U}{\partial z} - \frac{\partial V}{\partial r}, \quad i = 1, 2, 9, \quad \omega|_{S_3} = 0, \quad \psi|_{r=0} = 0, \quad \omega|_{r=0} = 0, \\ W|_{r=0} &= 0, \quad \frac{\partial V}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial r} \Big|_{r=0} = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{S_{3,8}} = 0, \\ T|_{t=0} &= T^*, \quad \psi|_{t=0} = 0, \quad \omega|_{t=0} = 0, \quad W|_{t=0} = 0.\end{aligned}$$

Температура на внешних границах тигля ( $S_6, S_7$ ) изменяется со временем:  $T(z)|_{S_{6,7}} = T^* + \frac{\partial T}{\partial z}(z - v^*t)$ . Если  $T(z)|_{S_{6,7}} < T_{\min}$ , то  $T(z)|_{S_{6,7}} = T_{\min}$ , если  $T(z)|_{S_{6,7}} > T^*$ , то  $T(z)|_{S_{6,7}} = T^*$ , где  $T^*$  — температура в горячей зоне печи,  $T_{\min}$  — фиксированная минимальная температура охлаждения,  $v^*$  — скорость опускания тигля,  $\partial T/\partial z$  — заданный градиент температуры. Азимутальная скорость внутренних границ тигля ( $S_1, S_2$ ) является функцией радиуса  $W|_{S_{1,2}} = rW^*$ , где  $W^*$  — безразмерная азимутальная скорость при  $r = 1$ .

При решении задачи применялся собственный пакет программ, основанный на методе конечных элементов, который использовался ранее в работе [7]. Представление системы уравнений в переменных температура, векторный потенциал поля скорости, вихрь скорости для аппроксимации решения позволяет использовать линейные функции на треугольниках. Расчеты проведены с применением адаптивной сетки. Генерация сетки выполнена на базе прямого метода построения триангуляции Делоне по наибольшему углу с клеточным ускорением [11].

Сетка строится индивидуально для каждого шага по времени таким образом, чтобы отследить форму фронта кристаллизации на текущем и следующем шаге с автоматическим определением объема закристаллизовавшегося вещества. Кроме того, производится сгущение сетки к фронтам кристаллизации (текущему и будущему) с обеих сторон, к твердым границам и угловым областям расчетной области. При расчетах использовалась сетка с примерно 17 тысячами узлов, количество узлов могло меняться в зависимости от конкретного шага по времени. Фрагмент сетки приведен на рис. 2. Использован равномерный шаг по времени 0.625 с. Особенность генерации сетки, исключая попадание фронтов кристаллизации, как текущего, так и следующего, в пространство между ребрами конечных элементов, позволяет отказаться от методики сквозного счета, примененной в работе [12], либо ее модификации из работ [5, 13].

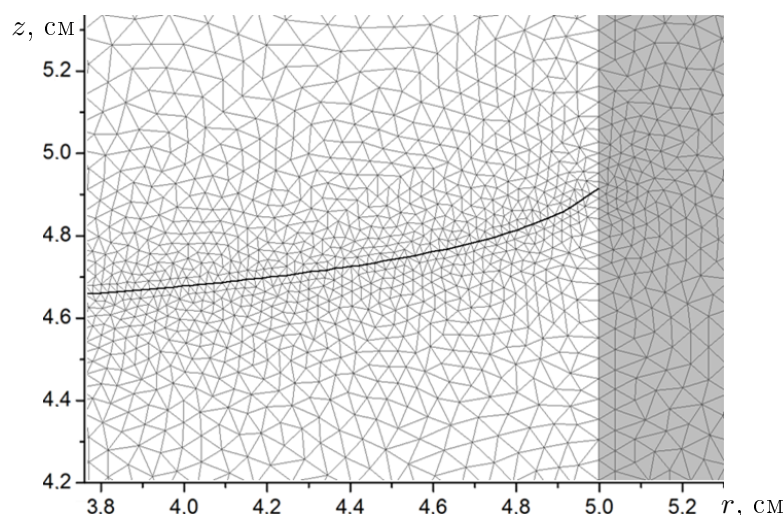


Рис. 2. Фрагмент сетки в пристеночной области тигля

Fig. 2. Grid fragment in the near-wall area

Теплофизические параметры  
Thermophysical properties

Название и обозначение	Графит	Кремний (расплав)	Кремний (кристаллический)
Теплопроводность $\lambda$ , Дж/(м·с·К)	50	67	22
Плотность $\rho$ , кг/м <sup>3</sup>	1800	2530	2530
Удельная теплоемкость $c$ , Дж/(кг·К)	2100	1000	1000
Кинематическая вязкость $\nu$ , м <sup>2</sup> /с	—	$3.4 \cdot 10^{-7}$	—
Коэффициент объемного расширения $\beta$ , 1/К	—	$1.4 \cdot 10^{-4}$	—
Теплота кристаллизации $L$ , Дж/кг	—	$1.8 \cdot 10^6$	—

На каждом временном шаге для каждого конечного элемента возможно определить его состояние, т. е. понять, что он находился и будет находиться в жидкой фазе, находился и будет находиться в твердой фазе, должен закристаллизоваться на текущем шаге с учетом выделения скрытой теплоты кристаллизации, должен расплавиться на текущем шаге с поглощением скрытой теплоты кристаллизации. Иными словами, появляется возможность учитывать скрытую теплоту кристаллизации естественным образом на уровне отдельных конечных элементов. Расчеты проводились при значениях теплофизических параметров, характерных для кристаллизации кремния в графитовых тиглях (см. таблицу) [14–18].

## 2. Результаты и их обсуждение

На рис. 3 показана эволюция полей изолиний функции тока и изотерм с ростом угловой скорости вращения тигля в один и тот же момент времени, отсчитываемый от начала перемещения тигля в холодную зону печи. По мере увеличения угловой скорости вращения тигля радиальные размеры конвективного вихря, расположенного над фронтом кристаллизации, как видно, монотонно снижаются, т. е. циркуляция жидкости по контуру смещается к боковой стенке тигля. Интенсивность течения при этом меняется немонотонным образом, что показано на рис. 4. Профили осевой компоненты скорости показаны в сечениях, проходящих через центр вращения основного вихря. С точки зрения технологии важна интенсивность потока горячего расплава, натекающего на фронт кристаллизации. От скорости набегающего потока и положения максимума скорости опускного потока расплава зависит локальная кривизна фронта кристаллизации.

Из рис. 3 видно, что в центральной части объема расплава по мере увеличения угловой скорости постепенно исчезает нисходящее течение. Как следует из рис. 4, уже при  $\omega_T = 1$  об./мин центр опускного потока смещается в сторону стенки тигля, но амплитуда опускного течения выше, чем в режиме без вращения тигля, и в приосевой области опускного течения практически нет.

С ростом угловой скорости эта тенденция проявляется все в большей мере. При угловой скорости 5 об./мин интенсивность циркуляции довольно резко выросла. Но поскольку центр вращения остается примерно на том же расстоянии от фронта кристаллизации и меняется конфигурация вихря, на локальную кривизну фронта кристаллизации увеличение скорости не повлияло при угловых скоростях  $\omega_T \leq 1$  об./мин. В диапазоне угловых скоростей от 2 до 10 об./мин, как видно из рис. 3,  $d$ -з, форма фронта кристаллизации приближается к характерной для режима теплопроводности. Обусловлено это тем, что в приосевой области конвективный поток тепла к фронту кристаллизации снижается.

На рис. 5 показаны профили радиальной компоненты скорости также в сечениях через центр основного вихря. Представленные здесь данные дают дополнительную информацию о скорости циркуляции в вихрях, расположенных над фронтом кристаллизации, в том числе показывают наличие низкоинтенсивного вторичного вихря над фронтом кристаллизации с направлением циркуляции, обратным циркуляции в основном вихре (который наблюдается в исходном режиме).

Важным моментом с технологической точки зрения является начальная стадия выхода изотермы с температурой кристаллизации на границу раздела расплав — дно тигля. Для формирования кристаллографической структуры слитка, близкой к монокри-

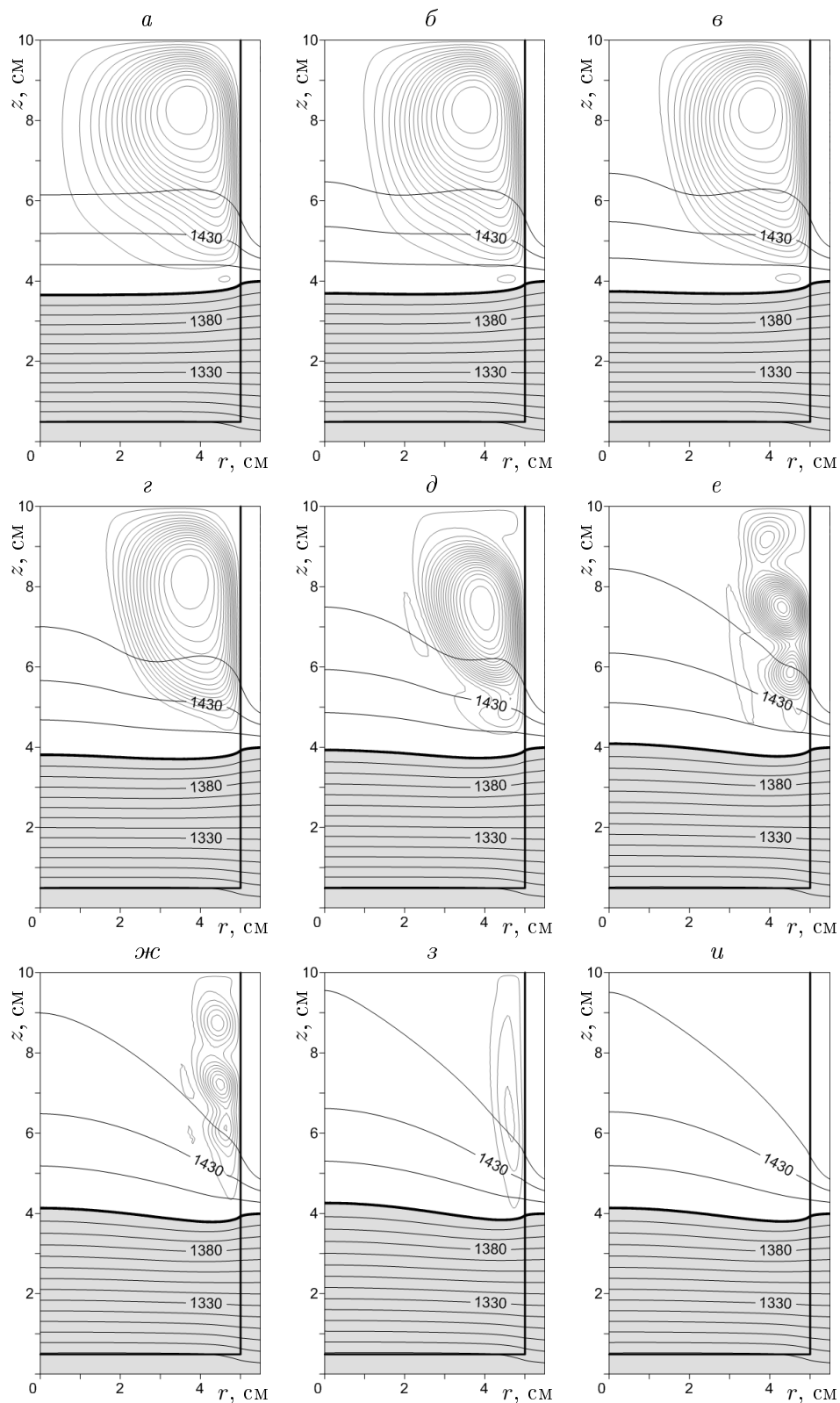


Рис. 3. Совмещенные поля изотерм и изолиний функции тока в момент времени  $t = 6580$  с в конвективном режиме при разных значениях угловых скоростей:  $\omega_T = 0$  (а), 0.25 (б), 0.5 (в), 1 (г), 2 (д), 5 (е), 7.5 (ж), 10 об./мин (з) и в режиме теплопроводности (и)

Fig. 3. Combined fields of isotherms and isolines of the stream function at time  $t = 6580$  s, in the convective regime at angular velocities:  $\omega_T = 0$  (а); 0.25 (б), 0.5 (в), 1 (г), 2 (д), 5 (е), 7.5 (ж), 10 rpm (з) and in the regime of thermal conductivity (и)

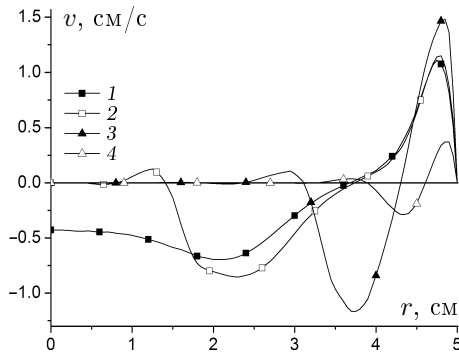


Рис. 4. Профили вертикальной компоненты скорости на различных уровнях  $z$  (см) в момент времени  $t = 6580$  с при разных угловых скоростях  $\omega_T$  (об./мин): 1 —  $z = 8.4$ ,  $\omega_T = 0$ ; 2 —  $z = 8.2$ ,  $\omega_T = 1$ ; 3 —  $z = 7.5$ ,  $\omega_T = 5$ ; 4 —  $z = 6.5$ ,  $\omega_T = 10$

Fig. 4. Profiles of the vertical velocity component at different levels  $z$  (cm) at the time  $t = 6580$  s at different angular velocities  $\omega_T$  (rpm): 1 —  $z = 8.4$ ,  $\omega_T = 0$ ; 2 —  $z = 8.2$ ,  $\omega_T = 1$ ; 3 —  $z = 7.5$ ,  $\omega_T = 5$ ; 4 —  $z = 6.5$ ,  $\omega_T = 10$

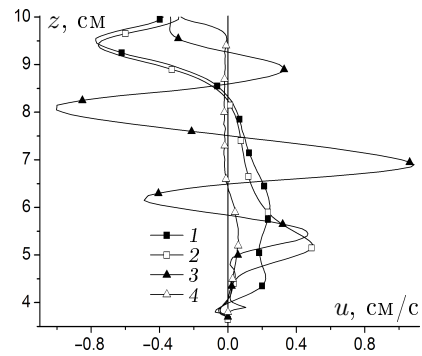


Рис. 5. Профили радиальной компоненты скорости в сечениях по  $r$  (см) в момент времени  $t = 6580$  с при разных угловых скоростях  $\omega_T$  (об./мин): 1 —  $z = 4$ ;  $\omega_T = 0$ ; 2 —  $z = 4$ ,  $\omega_T = 1$ ; 3 —  $z = 4.2$ ,  $\omega_T = 5$ ; 4 —  $z = 4.6$ ,  $\omega_T = 10$

Fig. 5. Profiles of the radial velocity component in sections perpendicular to  $r$  (cm) at time  $t = 6580$  s at different angular velocities  $\omega_T$  (rpm): 1 —  $z = 4$ ;  $\omega_T = 0$ ; 2 —  $z = 4$ ,  $\omega_T = 1$ ; 3 —  $z = 4.2$ ,  $\omega_T = 5$ ; 4 —  $z = 4.6$ ,  $\omega_T = 10$

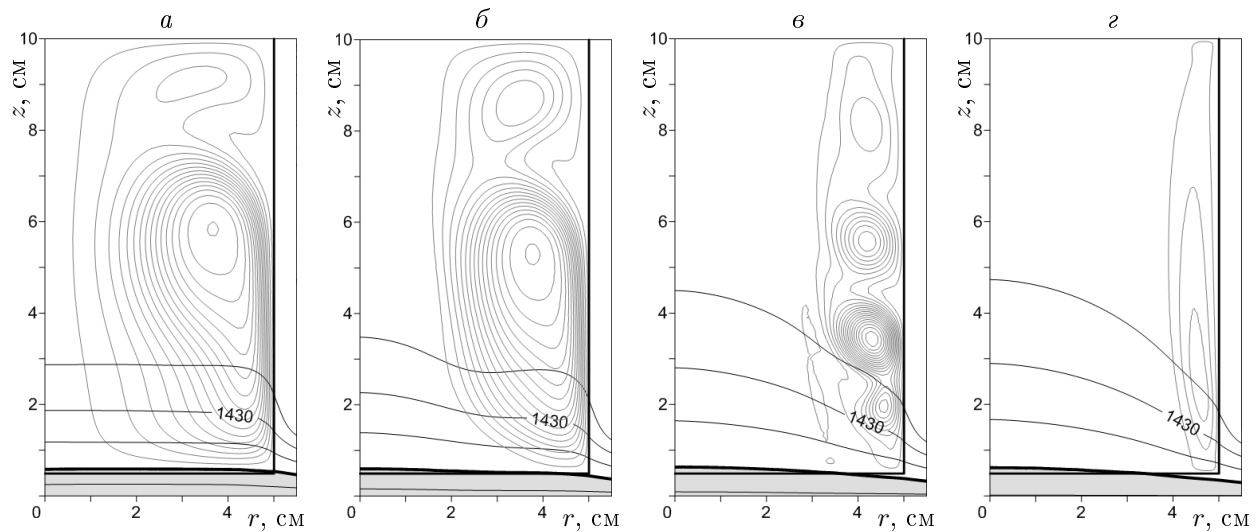


Рис. 6. Совмещенные поля изотерм и изолиний функции тока в моменты времени  $t$  (с) при разных угловых скоростях  $\omega_T$  (об./мин): а —  $t = 2060$ ,  $\omega_T = 0$ ; б —  $t = 1940$ ,  $\omega_T = 1$ ; в —  $t = 1880$ ,  $\omega_T = 5$ ; г —  $t = 1840$ ,  $\omega_T = 10$

Fig. 6. The combined fields of isotherms and isolines of the stream function at times  $t$  (s) at different angular velocities  $\omega_T$  (rpm): а —  $t = 2060$ ,  $\omega_T = 0$ ; б —  $t = 1940$ ,  $\omega_T = 1$ ; в —  $t = 1880$ ,  $\omega_T = 5$ ; г —  $t = 1840$ ,  $\omega_T = 10$

сталлической, желательно охлаждение дна тигля вблизи оси симметрии с минимальной площадью охлажденного пятна. В этом случае вероятность появления монокристаллической затравки довольно велика.

На рис. 6 показана форма изотерм с температурой кристаллизации при различных угловых скоростях вращения тигля. Как видно из рис. 6, а, в конвективном режиме без вращения формируется слой твердого вещества практически на всей площади дна. По



мере увеличения угловой скорости вращения площадь охлажденного пятна в приосевой области постепенно уменьшается и при  $\omega_T = 10$  об./мин она такая же, как в режиме теплопроводности.

Таким образом, показано, что без вращения тигля режим теплопроводности в реальной технологии нереализуем, а при угловой скорости  $\omega_T = 10$  об./мин конвективное течение практически подавлено и теплообмен происходит в режиме теплопроводности. Такой режим может быть полезен на начальных стадиях роста кристалла, при нем возможно формирование только одного центра кристаллизации в центре дна тигля, что положительно скажется на итоговом качестве кристалла.

## Заключение

Численно методом конечных элементов исследованы зависимость пространственной формы и интенсивность конвективного течения при выращивании слитка кремния методом Бриджмена – Стокбаргера в неподвижном и равномерно вращающемся графитовом тигле. Скорость опускания тигля в холодную зону (2.81 см/ч) и продольный градиент на внешней стороне боковой стенки тигля (35 К/см) были фиксированы. Угловая скорость вращения менялась в диапазоне  $0 \leq \omega_T \leq 10$  об./мин. Показано, что с ростом угловой скорости вращения тигля в приосевой области постепенно исчезает опускной поток и конвективный поток тепла к фронту кристаллизации снижается. В результате в диапазоне угловых скоростей от 2 до 10 об./мин форма фронта кристаллизации постепенно приближается к характерной для режима теплопроводности. Показано, что на начальной стадии процесса при угловой скорости 10 об./мин в приосевой области охлаждаемого дна тигля возможно зарождение одного центра кристаллизации.

**Благодарности.** Работа выполнена в рамках госзадания ИТ СО РАН (проект № III.18.2.5. гос. регистрации АААА-А17-117022850021-3) и при частичной финансовой поддержке РФФИ (грант № 18-38-00790-мол\_а).

## Список литературы

- [1] **Verozubova G.A., Okunev A.O., Gribenyukov A.I. et al.** Newton solution of inviscid and viscous problems growth and defect structure of ZnGeP2 crystals. *Journal of Crystal Growth*. 2010; 312:1122–1126.
- [2] **Guo Y., Zhou Y., Lin X., Chen W., Ye N.** Growth and characterizations of BaGa4S7 crystal. *Optical Materials*. 2014; 36:2007–2011.
- [3] **Ben Sassi M., Kaddeche S., Lappa M. et al.** On the effect of thermodiffusion on solute segregation during the growth of semiconductor materials by the vertical Bridgman method. *Journal of Crystal Growth*. 2017; 458:154–165.
- [4] **Meier D., Lukin G., Thieme N. et al.** Design of model experiments for melt flow and solidification in a square container under time-dependent magnetic fields. *Journal of Crystal Growth*. 2017; 461:30–37.
- [5] **Antonov P.V., Berdnikov V.S.** Dependences of the shape of the crystallization front and growth rate of a silicon ingot on the heat transfer mode in the Bridgman – Stockbarger method. *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*. 2012; 53(6):860–870.
- [6] **Nepomnyshchikh A.I., Presnyakov R.V., Antonov P.V., Berdnikov V.S.** Effect of crucible rotation rate on the growth and macrostructure of multicrystalline silicon. *Inorganic Materials*. 2014; 50(12):1185–1190.

- [7] **Mitin K.A., Berdnikov V.S., Kislitsin S.A.** The dependence of the crystallization front shape on the heat exchange regime in the Bridgman–Stockbarger method. *Computational Mechanics of Continua*. 2019; 12(1):106–116.
- [8] **Anfimov I.M., Berdnikov V.S., Vygovskaya Ye.A. et al.** The homogeneity of the distribution of electrical resistivity in single-crystal silicon grown by the Czochralski method. *Izv. Universities. Materials Electron. Technology*. 2007; (4):40–44.
- [9] **Berdnikov V.S., Vinokurov V.A., Vinokurov V.V.** Effect of nonstationary regimes of the natural and mixed convection of melts on heat transfer and the forms of crystallization fronts in the Czochralski method. *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2017; 81(10):1257–1262.
- [10] **Самарский А.А., Вабищевич П.Н.** Вычислительная теплопередача. М.: Едиториал УРСС; 2003: 784.
- [11] **Скворцов А.В.** Триангуляция Делоне и ее применение. Томск: Изд-во Томского ун-та; 2002: 128.
- [12] **Бердников В.С., Филиппова М.В., Красин Б.А., Непомнящих А.И.** Численное моделирование теплофизических процессов при выращивании кристаллов мультикремния методом Бриджмена–Стокбаргера. *Теплофизика и аэромеханика*. 2006; 13(2):275–293.
- [13] **Антонов П.В., Бердников В.С.** Влияние формы дна тиглей на сопряженный конвективный теплообмен в методе Бриджмена. *Известия вузов. Материалы электронной техники*. 2011; (4):21–28.
- [14] **Muhlbauer A., Muiznikes A., Virbulis J., Luedge A., Riemann H.** Interface shape, heat transfer and fluid flow in the floating zone growth of large silicon crystals with the needleeye technique. *Journal of Crystal Growth*. 1995; 151:66–79.
- [15] **Yaws C.L., Dickens L.L., Lutwak R., Hsu G.** Semiconductor industry silicon: Physical and thermodynamic properties. *Solid State Technologies*. 1981; 24(1):87–92.
- [16] **Stankus S.V., Khairulin R.A., Tyagel'skii P.V.** The thermal properties of germanium and silicon in condensed state. *High Temperature*. 1999; 37:529–534.
- [17] **Stankus S.V., Savchenko I.V., Agadzhanov A.S., Yatsuk O.S., Zhmurikov E.I.** Thermophysical properties of MPG-6 graphite. *High Temperature*. 2013; 51:179–182.
- [18] **Raskatov V.M. (ed.)** *Mashinostroitel'nyye materialy: Kratkiy spravochnik [Engineering materials: Quick reference]*. Moscow: Mashinostroyeniye; 1980: 511.

## Numerical simulation of heat transfer processes during single crystal growth by the Bridgman – Stockbarger method in fixed and rotating crucibles

KISLITSYN STEPAN A.<sup>1,2</sup>, MITIN KONSTANTIN A.<sup>1</sup>, BERDNIKOV VLADIMIR S.<sup>1,2,\*</sup>

<sup>1</sup>Kutateladze Institute of Thermal Physics, Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, 630090, Russia

<sup>2</sup>Novosibirsk State Technical University, Novosibirsk, 630073, Russia

\*Corresponding author: Berdnikov Vladimir S., e-mail: [berdnikov@itp.nsc.ru](mailto:berdnikov@itp.nsc.ru)

Received December 20, 2019, revised September 22, 2020, accepted October 27, 2020

### Abstract

The dependence of both spatial shape and intensity of the convective flow of silicon melt during the growth of a silicon ingot by the Bridgman–Stockbarger method was studied numerically by the finite element method. Stationary and uniformly rotating graphite crucible in conjugate convective heat transfer regimes were examined. The simulation was carried out on the basis of dimensionless system of equations for the thermogravitational convection in the Boussinesq approximation using the bipolar approach. In the mixed convection regime, the system of equations was augmented by an equation for the azimuthal velocity. Adaptive grids on triangles were used to track the position of the crystal-melt interface at each time step. The calculations were carried out at a constant rate of lowering the crucible from the hot to the cold zone, equal to 2.81 cm/h, and at a constant temperature gradient equal to 35 K/cm. Lowering the crucible was simulated by moving the inflection point in the temperature distribution on the outside of the crucible walls. The range of angular velocities of crucible rotation from 0 to 10 rpm is considered.

It is shown that as the angular velocity of crucible rotation in the axial region increases, both the velocity of the downward flow arising in the regimes of thermogravitational convection gradually and the convective heat flux to the crystal-melt interface decrease. As a result, in the range of angular velocities from 2 to 10 rpm, the shape of the crystal-melt interface gradually approaches to the one typical for the thermal conductivity regime. It is shown that at the initial stage of the process at an angular velocity of 10 rpm in the axial region of the cooled crucible bottom, the nucleation of a single crystal is possible.

*Keywords:* Bridgman–Stockbarger method, crystallization, silicon, conjugate heat transfer, numerical simulation, FEM.

*Citation:* Kislitsyn S.A., Mitin K.A., Berdnikov V.S. Numerical simulation of heat transfer processes during single crystal growth by the Bridgman–Stockbarger method in fixed and rotating crucibles. Computational Technologies. 2021; 26(1):21–32. DOI:10.25743/ICT.2021.26.1.002. (In Russ.)

**Acknowledgements.** The work was carried out within the framework of the state assignment of the IT SB RAS (project III.18.2.5. State reg. AAAA-A17-117022850021-3) and with partial financial support from the Russian Foundation for Basic Research (grant No. 18-38-00790 mol\_a).

### References

1. **Verozubova G.A., Okunev A.O., Gribenyukov A.I. et al.** Newton solution of inviscid and viscous problems growth and defect structure of ZnGeP<sub>2</sub> crystals. Journal of Crystal Growth. 2010; 312:1122–1126.
2. **Guo Y., Zhou Y., Lin X., Chen W., Ye N.** Growth and characterizations of BaGa<sub>4</sub>S<sub>7</sub> crystal. Optical Materials. 2014; 36:2007–2011.
3. **Ben Sassi M., Kaddeche S., Lappa M. et al.** On the effect of thermodiffusion on solute segregation during the growth of semiconductor materials by the vertical Bridgman method. Journal of Crystal Growth. 2017; 458:154–165.
4. **Meier D., Lukin G., Thieme N. et al.** Design of model experiments for melt flow and solidification in a square container under time-dependent magnetic fields. Journal of Crystal Growth. 2017; 461:30–37.
5. **Antonov P.V., Berdnikov V.S.** Dependences of the shape of the crystallization front and growth rate of a silicon ingot on the heat transfer mode in the Bridgman–Stockbarger method. Journal of Applied Mechanics and Technical Physics. 2012; 53(6):860–870.
6. **Nepomnyshchikh A.I., Presnyakov R.V., Antonov P.V., Berdnikov V.S.** Effect of crucible rotation rate on the growth and macrostructure of multicrystalline silicon. Inorganic Materials. 2014; 50(12):1185–1190.
7. **Mitin K.A., Berdnikov V.S., Kislitsin S.A.** The dependence of the crystallization front shape on the heat exchange regime in the Bridgman–Stockbarger method. Computational Mechanics of Continua. 2019; 12(1):106–116.

8. **Anfimov I.M., Berdnikov V.S., Vygovskaya Ye.A. et al.** The homogeneity of the distribution of electrical resistivity in single-crystal silicon grown by the Czochralski method. *Izv. Universities. Materials Electron. Technology.* 2007; (4):40–44.
9. **Berdnikov V.S., Vinokurov V.A., Vinokurov V.V.** Effect of nonstationary regimes of the natural and mixed convection of melts on heat transfer and the forms of crystallization fronts in the Czochralski method. *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics.* 2017; 81(10):1257–1262.
10. **Samarskij A.A., Vabishchevich P.N.** *Vychislitel'naya teploperedacha [Computational heat transfer].* Moscow: Editorial URSS; 2003: 784. (In Russ.)
11. **Skvortsov A.V.** *Triangulyatsiya Delone i ee primeneniye [Delaunay triangulation and its application].* Tomsk: Izdatel'stvo Tomskogo universiteta; 2002: 128. (In Russ.)
12. **Berdnikov V.S., Filippova M.V., Krasin B.A., Nepomnyashchikh A.I.** Numerical simulation of thermal-physical processes accompanying multisilicon crystal growing by the method of Bridgman–Stockbarger. *Thermophysics and Aeromechanics.* 2006; 13(2):257–274.
13. **Antonov P.V., Berdnikov V.S.** Influence of the crucible bottom shape on conjugate convective heat transfer in the Bridgman method. *Izvestiya vuzov. Materialy Elektronnoi Tekhniki.* 2011; (4):21–28. (In Russ.)
14. **Muhlbauer A., Muiznikes A., Virbulis J., Luedge A., Riemann H.** Interface shape, heat transfer and fluid flow in the floating zone growth of large silicon crystals with the needleeye technique. *Journal of Crystal Growth.* 1995; 151:66–79.
15. **Yaws C.L., Dickens L.L., Lutwak R., Hsu G.** Semiconductor industry silicon: Physical and thermodynamic properties. *Solid State Technologies.* 1981; 24(1):87–92.
16. **Stankus S.V., Khairulin R.A., Tyagel'skii P.V.** The thermal properties of germanium and silicon in condensed state. *High Temperature.* 1999; 37:529–534.
17. **Stankus S.V., Savchenko I.V., Agadzhanov A.S., Yatsuk O.S., Zhmurikov E.I.** Thermophysical properties of MPG-6 graphite. *High Temperature.* 2013; 51:179–182.
18. **Raskatov V.M. (ed.)** *Mashinostroitel'nyye materialy: Kratkiy spravochnik [Engineering materials: Quick reference].* Moscow: Mashinostroyeniye; 1980: 511.