

УДК 621.315.592.3:66.021.3

Как обеспечить постоянную концентрацию примеси по высоте слитка

© 2018 г. М. А. Гоник^{1,§}, Ф. Baltaretu²¹ *Центр материаловедения «Фотон»,
ул. Ческа Луна, д. 10, п/о 5, Александров, Владимирская обл., 601600, Россия*² *Технический строительный университет,
Бульвар Озеро Тей, № 122–124, сектор 2, Бухарест, 510009, Румыния*

Аннотация. На основе исследования сегрегации при выращивании германия и кремния из тонкого слоя расплава с использованием техники погруженного нагревателя показана возможность получения однородных по высоте кристаллов. Численно при моделировании кристаллизации легированного сурьмой германия диаметром 200 мм найдено, что, начиная с толщины слоя расплава в 40 мм, точное решение с учетом конвекции совпадает в центральной части расчетной области с задачей теплообмена в одномерной постановке. Условия, при которых можно в массопереносе пренебречь конвекцией, более жесткие: слой расплава должен быть менее 20 мм. В этом случае можно использовать соотношение Тиллера для расчета продольного распределения примеси в условиях преимущественно диффузионного характера переноса. Анализ попыток описания экспериментальных данных по росту кристаллов с помощью упрощенных формул показал, что они дают приемлемые результаты лишь при условии, если учитывается реальная скорость роста или изменение толщины слоя расплава в процессе кристаллизации, как в формуле Марченко с соавторами. Сказанное позволяет аналитически описать продольное распределение примеси в слитке, в частности для В и Р в кремнии, и рекомендовать величину дополнительного легирования зоны расплава под нагревателем, чтобы обеспечить постоянную ее концентрацию по высоте кристалла. Однородный материал при затвердевании остаточного слоя в самом конце слитка может быть получен за счет вариации скорости роста при изменении во времени темпа его охлаждения.

Ключевые слова: математическое моделирование, диффузия примеси, направленная кристаллизация, погруженный в расплав нагреватель, германий, мультикристаллический кремний

Введение

В методе направленной кристаллизации, который используют для получения мультикристаллического кремния, не удается добиться однородного распределения легирующей примеси вдоль выращенного кристалла. Детальный анализ показал [1], что концентрация таких примесей, как бор и фосфор, которая хорошо описывается модифицированным соотношением Шелла, вначале слегка растет, накапливаясь по мере роста кристалла, и затем к концу слитка резко увеличивается. Обычно это охватывает 15–20 % от его длины, что в абсолютных величинах составляет, по меньшей мере, 30–50 мм верхней части слитка низкого качества. Изменение примеси по длине слитка меняет удельное сопротивление кремния, но избавиться от этого

традиционными способами не представляется возможным. Однако задача получения однородного по высоте слитка может быть решена, если в методе направленной кристаллизации использовать технику погруженного в расплав нагревателя, который был реализован в двух вариантах: как метод погруженного нагревателя (*submerged heater method*, SHM–метод) [2] и метод осевого теплового потока (ОТФ–метод) [3]. Нагреватель располагается на небольшом расстоянии от границы фаз и делит всю область расплава на две части (под нагревателем — зону кристаллизации, и над ним — питающую зону), что принципиально меняет характер течения. В работе [4] дан анализ предпосылок для технической реализации такого подхода для получения мультикристаллического кремня ОТФ–методом. В работе [4] рассмотрены результаты испытания защитного покрытия [5] корпуса погруженного нагревателя при кристаллизации кремния из стандартного тигля формата G1.

Рост кристалла из тонкого слоя расплава приводит к существенному снижению интенсивности

Гоник Михаил Александрович^{1,§} — канд. техн. наук, директор, e-mail: michael.a.gonik@gmail.com; Florin Baltaretu² — PhD, Professor, Head of the Department of Thermal Engineering, e-mail: florin.baltaretu@instal.utcb

§ Автор для переписки

конвекции [6] и близкому к диффузионному характеру процесса сегрегации [7]. Авторы работы [8] при сделанных ими допущениях для экспериментально выращенного GaSb, легированного Te, показали, что даже в наземных условиях распределение концентрации примеси $C_S(x)$ может быть удовлетворительно описано соотношением, полученным для условий осуществления, так называемого, «*diffusion controlled*» режима [9]:

$$\frac{C_S(x)}{C_0} = k + (1-k) \left[1 - e^{-\left(\frac{kV}{D}\right)x} \right], \quad (1)$$

где C_0 — начальная концентрация примеси в расплаве; V — скорость роста; k — равновесный коэффициент сегрегации; D — коэффициент диффузии; x — координата вдоль оси кристалла.

В тонком слое расплава в процессе сегрегации значительно быстрее наступает равновесное состояние [10], и при определенных условиях достигаются условия, при которых эффективный коэффициент сегрегации k_{eff} становится равным единице [11]. Такой процесс аналитически был описан в работе [12] формулой

$$C(x) = C_S + (C_2 - kC_1) \left[1 - \exp\left(-\frac{k}{h}x\right) \right]. \quad (2)$$

Здесь предполагается, что различные зоны расплава под нагревателем и над ним первоначально имели концентрацию C_1 и C_2 соответственно; C_S — начальная концентрация примеси в кристалле; h — толщина слоя расплава. Очевидно, что, если питающую зону легировать концентрацией $C_2 = C_S$, а зону роста так, чтобы выполнялось соотношение $C_1 = C_2/k$, то в кристалле устанавливается постоянная концентрация, равная концентрации в питающей зоне. К сожалению, на завершающем этапе кристаллизации, когда свежий расплав в питающей зоне заканчивается и движение погруженного нагревателя относительно тигля прекращается, соотношение (2) перестает работать. Однако не применимо и соотношение, предложенное в работе [13] для случая полного перемешивания, поскольку в SHM-или ОТФ-методе погруженный нагреватель даже после остановки вытягивания тигля из расплава не вынимают. Свободная поверхность отсутствует, следовательно, отсутствует конвекция Марангони, и, по-прежнему, вклад в перенос массы диффузией остается преобладающим.

Таким образом, возникает необходимость провести численное моделирование для изучения продольной сегрегации при сформулированных выше условиях, определить оптимальный тепловой режим кристаллизации, приводящей к росту однородного кристалла, по возможности, на большей его длине. Такое исследование позволит найти пределы применимости аналитических выражений распределения примеси и использовать их в дальнейшем

в инженерных расчетах при росте кремния. Хотя речь идет об «остаточной» порции расплава, она может достигать 100 мм и более при выращивании мультикристаллического кремния большого размера, так как в методе погруженного нагревателя высоту расплава выбирают, исходя из соотношения $h/d \sim 0,15$. В качестве модельного материала для таких исследований выбран германий, легированный сурьмой, коэффициент сегрегации которой составляет 0,003, т. е. заведомо меньше любого из известных для значимых примесей в кремнии, причем, сама задача для малых значений k является наиболее сложной для анализа. Кроме того, свойства германия хорошо известны, и есть возможность провести, при необходимости, экспериментальные исследования при более низких температурах, чем у кремния.

Математическая модель и подходы для ее численного изучения

В процесс кристаллизации с использованием погруженного нагревателя, как и в стандартном методе Бриджмена, тигель опускают в холодную зону ростовой камеры (см. рис. 1, а) и ведут рост до тех пор, пока расплав в зоне над нагревателем не закончится. В одномерном приближении задачу переноса тепла можно описать уравнением

$$\lambda_L \frac{T_{\text{hot}} - T_m}{h} + V\rho_L J = \lambda_S \frac{T_m - T_{\text{cool}}}{H}, \quad (3)$$

где $\lambda_{L,S}$ — теплопроводность в жидком и твердом состоянии; ρ_L — плотность расплава; J — теплота кристаллизации; T_m — температура плавления; T_{hot} , T_{cool} — температуры на горячей и холодной границах системы расплав—кристалл на доньшке ОТФ нагревателя и тигля, соответственно; H — высота выросшего кристалла. Чтобы обеспечить условия кристаллизации на фазовой границе постоянными, в том числе, значение осевого градиента температуры, значения h и T_{hot} поддерживают постоянными. А температуру на холодной границе со временем снижают: для непрозрачных расплавов, таких как германий и кремний, по линейному закону в соответствии с соотношением (3).

Обычно в конце процесса нагреватель выводят из расплава, чтобы он не оказался «вмороженным» в кристалл, поэтому последняя порция кристаллизуется относительно быстро, и ее впоследствии отрезают от слитка. Ниже рассмотрена задача (см. рис. 1, б), в которой вытягивание кристалла уже прекращено, а погруженный нагреватель все еще находится в контакте с расплавом. Такая конфигурация позволяет управлять процессом кристаллизации до самого конца, обеспечивая необходимые условия по температуре на верхней $T_{\text{верх}}(t)$ и нижней $T_{\text{низ}}(t)$ границах расчетной области. Как показано на рис. 1, в, расчетная область в осесимме-

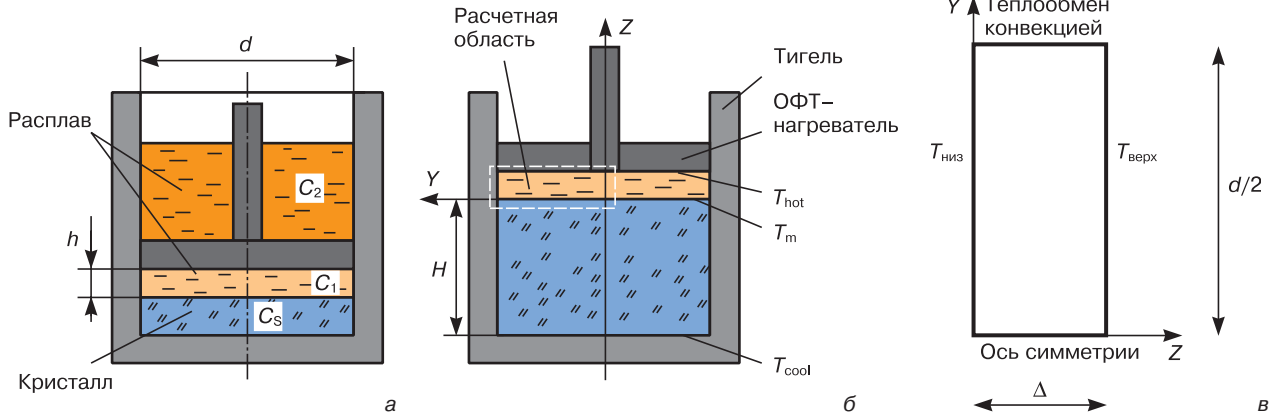


Рис. 1. Схема выращивания кристаллов на стадии вытягивания тигля относительно погруженного ОФТ-нагревателя (а) и в конце после остановки (б), а также схема расчетной области (в)

Fig. 1. Scheme of growing crystals at the stage of drawing out the crucible with respect to the submerged axial heat flow heater (a) and at the end after stopping (б), as well as the scheme of the computational area (в)

тричной постановке представляет собой половину диска диаметром d и высотой Δ , который охлаждаются за счет одновременного снижения температуры на его торцах, в общем случае с темпом охлаждения, меняющимся во времени. Начальное распределение примеси в расплаве принимается равномерным по всей расчетной области и задается как единица.

В расчетах использовали модуль ANSYS Fluent для кристаллизации и плавления с фиксированной сеткой [14]. Этот модуль предназначен для сплавов, имеющих некоторую область затвердевания между твердой фазой и жидкой фазой. Для использования такого подхода в данной работе был использован небольшой интервал температуры (1 К) вокруг температуры плавления, поэтому температуры солидуса T_S и ликвидуса T_L рассматривались как:

$$T_S = T_m - 0,5; T_L = T_m + 0,5.$$

Выражение для удельной энтальпии смеси h_{mix} можно записать как

$$h_{mix} = \begin{cases} c_{p,S}(T - T_{ref}), & \text{для } T \leq T_S; \\ c_{p,S}(T_S - T_{ref}) + f_L L, & \text{для } T_S \leq T \leq T_L; \\ c_{p,S}(T_S - T_{ref}) + L + c_{p,L}(T - T_L), & \text{для } T \geq T_L, \end{cases}$$

где c_S и c_L — удельные теплоемкости в твердой и жидкой фазе; J — скрытая теплота плавления; f_L — доля жидкой фракции, равная

$$f_L = \frac{T - T_S}{T_L - T_S}.$$

Уравнение сохранения энергии запишем в следующем виде:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho h_{mix}) + \nabla(\rho \mathbf{u} h_{mix}) = \nabla(\lambda \nabla T) + S_T. \quad (4)$$

Уравнение (4) решают с учетом линейного изменения температуры на нижней $T_{низ}(t) = T_{низ}(0) - R_{охл}t$ и верхней $T_{верх}(t) = T_{верх}(0) - R_{охл}t$ поверхностях со-

ответственно. Считаем, что охлаждение проходит с постоянной скоростью $R_{охл}$. Теплообмен конвекцией на боковой границе составляет $\dot{Q} = \alpha(T - T_{\infty})S$, где α — коэффициент теплоотдачи.

Для решения уравнения импульса используется метод энтальпии пористости, который рассматривает область затвердевания как пористую среду. Член поглощения импульса, добавленный в качестве стока в уравнение (4), чтобы обнулить скорости в твердых областях, принимает форму:

$$S_M = \frac{(1 - f_L)^2}{(f_L^3 + \epsilon)} A_{mush} \mathbf{u},$$

где $\epsilon = 0,001$ — маленькое число для исключения деления на ноль; A_{mush} — константа для области затвердевания.

Свойства германия (плотность, теплоемкость и теплопроводность), использованные в расчетах, представлены в табл. 1, с учетом их скачкообразного изменения на фазовой границе:

$$\lambda(T) = \begin{cases} \lambda_S, & T \leq T_S; \\ f_S \lambda_S + f_L \lambda_L, & T_S < T < T_L; \\ \lambda_L, & T \geq T_L; \end{cases}$$

$$\mu(T) = \begin{cases} \mu_S, & T \leq T_S; \\ f_S \mu_S + f_L \mu_L, & T_S < T < T_L; \\ \mu_L, & T \geq T_L, \end{cases}$$

$$D(T) = \begin{cases} D_S = 0, & T \leq T_S; \\ f_S D_S + f_L D_L = f_L D_L, & T_S < T < T_L; \\ D_L, & T \geq T_L. \end{cases} \quad (5)$$

Таким же образом задается и распределение примеси с использованием описания концентрации смеси:

$$C_{mix} = \begin{cases} C_S, & T \leq T_S; \\ f_S C_S + f_L C_L, & T_S < T < T_L; \\ C_L, & T \geq T_L, \end{cases}$$

где обобщенное уравнение переноса скаляра

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\phi) + \nabla(\rho \mathbf{u} \phi) = \nabla(\Gamma_{\phi} \nabla\phi) + S_{\phi}, \quad (6)$$

позволяет рассчитать распределение примеси с введением пользовательской функции UDS для концентрации. В области затвердевания, имитирующей фронт кристаллизации, в уравнении переноса предусмотрен источник примеси, связанный с сегрегацией, который рассчитывали как

$$S_C = (1-k)C_L \frac{\partial f_S}{\partial t} + f_S \frac{\partial C_L}{\partial t}. \quad (7)$$

Параметры, при которых проводили численные расчеты, представлены в табл. 2

Пределы применимости упрощенных выражений

На рис. 2 представлены типичные картины установившегося температурного поля в расчетной области, функции тока в расплаве и вектора скоростей через некоторое время после начала процесса кристаллизации. Благодаря тому, что в тонком слое ($\Delta/d < 0,15$) верхняя и нижняя его границы поддерживаются изотермическими, в средней части расчетной области конвекция не возникает. Лишь на краю из-за несовпадения температуры на боковой границе с температурой окружающей среды возникает движущая сила для появления конвекции, и вблизи стенки формируется вихрь, течение в котором направлено по часовой стрелке. Температурное поле в объеме одномерно, и искажается лишь на краю. Вихрь образуется у боковой стенки и для расчетной области с $\Delta = 10$ мм там и локализуется. По мере увеличения Δ (рис. 3) течение проникает глубже и даже захватывает центральную область. Однако на профиле температуры в большей части расчетной области это не сказывается. Следовательно, конвекцией для таких величин Δ/d при расчете теплопереноса можно пренебречь.

Интересно, что, достаточно быстро сформировавшись даже для $\Delta = 40$ мм, течение, как это можно видеть на рис. 4, практически затем не меняется, пока не закристаллизуется определенная часть расчетной области, и слой расплава не начнет заметно уменьшаться. Сказанное хорошо иллюстрирует рис. 5, на котором видно, как по мере роста кристалла область, захваченная вихрем, уменьшается, интенсивность конвекции па-

Таблица 1

Физические свойства германия и кремния, используемые в расчетах [Physical properties of germanium and silicon used in calculations]

Свойства	Обозначение	Германий [15—17]	Кремний [18, 19]
Температура плавления, К	T_m	1210	1683
Плотность, кг/м ³ : кристалла расплава	ρ_S ρ_L	5260 5550	2330 2530
Скрытая теплота плавления, кДж/кг	J	460	164
Теплоемкость, Дж/(кг · К): в кристалле в расплаве	C_S C_L	400 1140	700 1100
Теплоемкость, Дж/(кг · К)			
Теплопроводность, Вт/(м · К): кристалла расплава	λ_S λ_L	17 39	22 67
Кинематическая вязкость, м ² /с	ν	$1,35 \cdot 10^{-5}$	$1,5 \cdot 10^{-5}$
Коэффициент теплового расширения, К ⁻¹	β	$0,97 \cdot 10^{-4}$	$1,32 \cdot 10^{-4}$
Коэффициент сегрегации Sb P B	k	0,003 — —	— 0,35 0,8
Коэффициент диффузии, см ² /с Sb P B	D	$1 \cdot 10^{-4}$ — —	— $3,3 \cdot 10^{-4}$ $2,7 \cdot 10^{-4}$

Таблица 2

Параметры численных расчетов [Parameters of numerical calculations]

Параметр	Обозначение	Германий	Кремний
Коэффициент теплоотдачи, (Вт · м ²)/К	α	25	25
Температура окружающей среды, К	T_{∞}	800	1300
Скорость охлаждения, К/ч	$R_{охл}$	10—60	15—40
Начальная концентрация примеси в формуле (1), см ⁻³ Sb P B	C_0	$2,7 \cdot 10^{17}$ — —	— $6,0 \cdot 10^{17}$ $2,62 \cdot 10^{17}$
Начальная концентрация примеси в формуле (2) над ОТФ нагревателем, см ⁻³ P B	C_2		$2,1 \cdot 10^{17}$ $2,1 \cdot 10^{17}$
Начальная концентрация примеси в формуле (2) под ОТФ нагревателем, см ⁻³ P B	C_1	— —	$2,62 \cdot 10^{17}$ $6,0 \cdot 10^{17}$

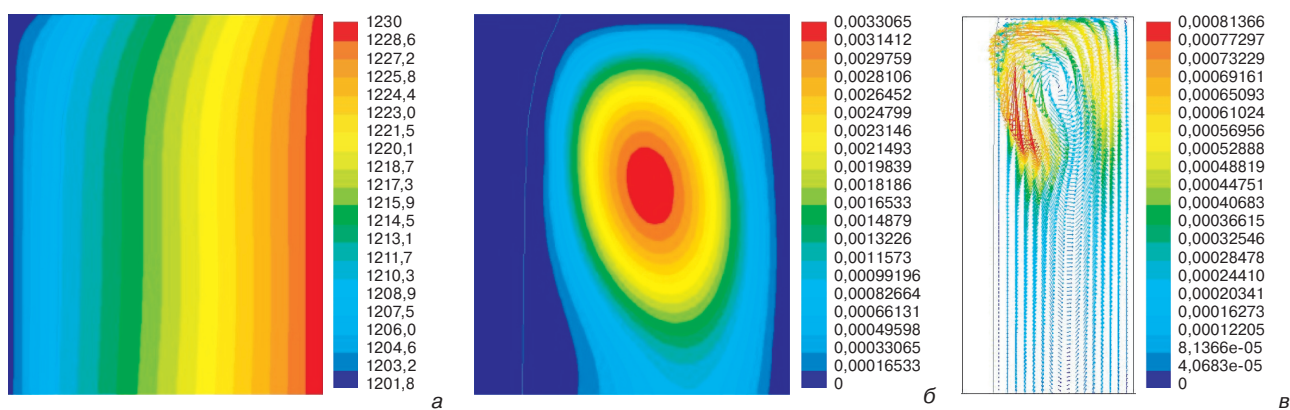


Рис. 2. Распределение температуры (а), функция тока (б) и вектора скорости (в) на периферии расчетной области через 500 с после начала кристаллизации германия

Fig. 2. (a) Distribution of temperature, (б) stream function and (в) velocity vectors at the periphery of domain after 500 s from beginning of Ge solidification

дает, а структура течения вырождается. Совершенно другая картина наблюдается при рассмотрении влияния конвекции на перенос массы. Из рис. 4, б видно, что изначально однородное распределение примеси благодаря конвекции быстро нарушается и продолжает меняться, в том числе в центральной части расчетной области. Поэтому говорить о преимущественно диффузионном характере переноса массы, по крайней мере, для $\Delta = 40$ мм не приходится.

Совсем по-другому обстоит дело, если высота расчетной области составляет 10 мм (рис. 6). Из-за возникающей у боковой стенке конвекции примесь на периферии переносится таким образом, что ее избыток накапливается сразу за вихрем, где растет кристалл с повышенным содержанием сурьмы. Вместе с тем, ближе к центру расчетной области неоднородность исчезает полностью, и в средней части изолинии концентрации параллельны плоской гра-

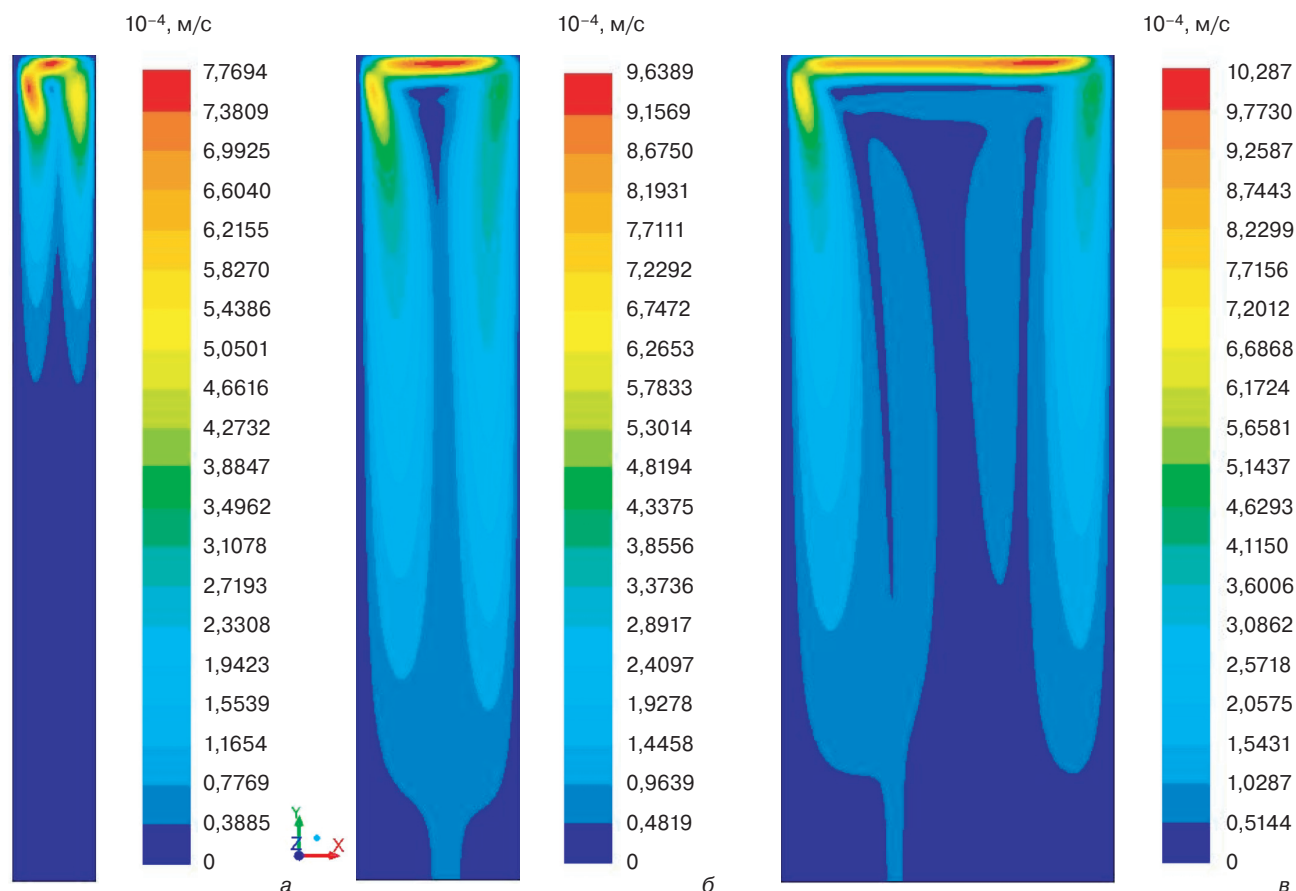


Рис. 3. Скорость течения (в м/с) в расчетной области на начальной стадии кристаллизации для различных толщин слоя расплава: а — 10 мм; б — 20; в — 40

Fig. 3. The flow rate (in m/s) in the computational domain at the initial stage of crystallization for different thicknesses of the melt layer: (a) 10 mm; (б) 20; (в) 40

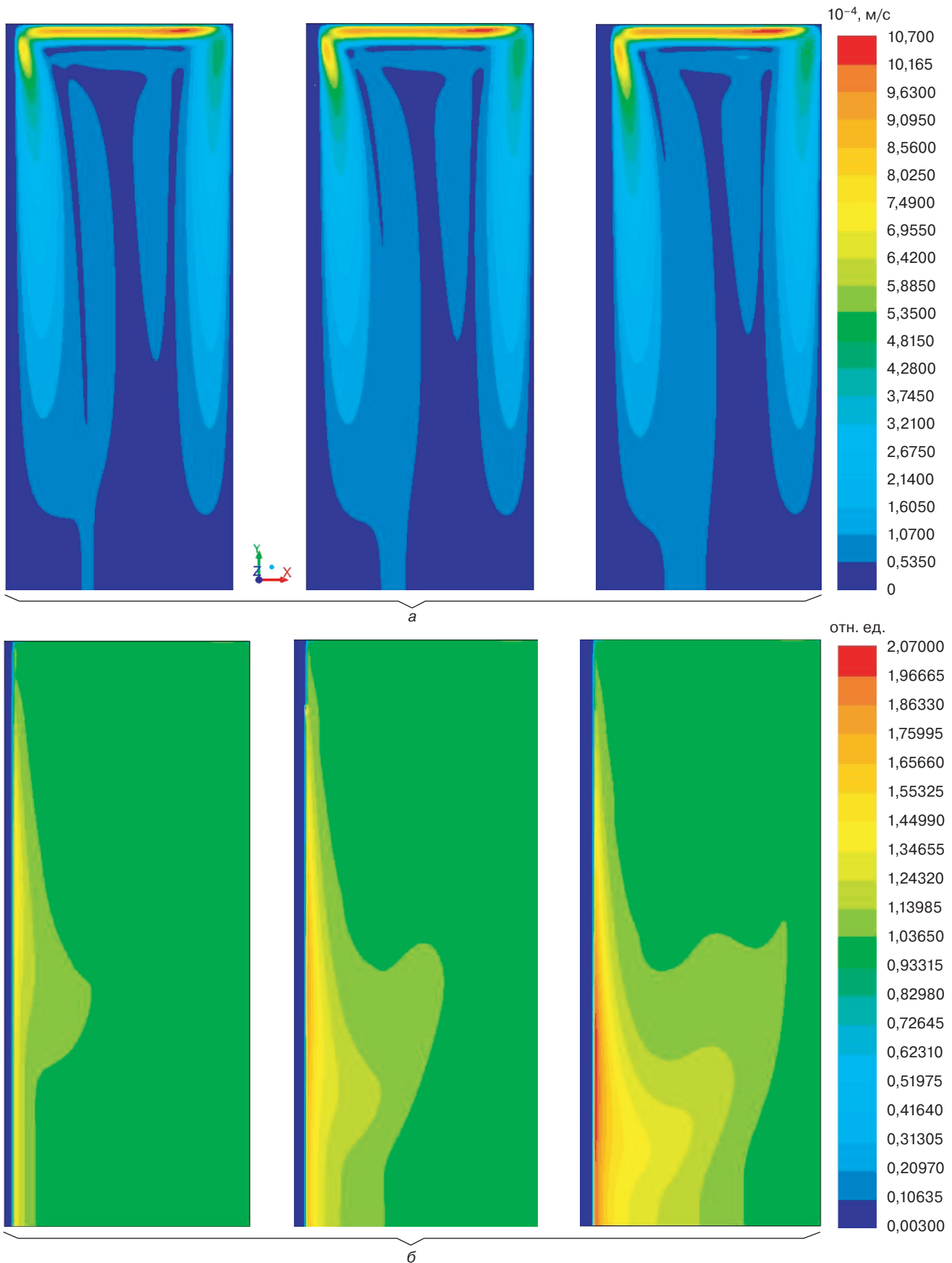


Рис. 4. Динамика формирования поля скорости (а) и концентрации сурьмы (б) в германии при росте кристалла из расплава толщиной 40 мм через 500, 750 и 1000 с после начала кристаллизации.

Fig. 4. Dynamics of formation of the velocity field (a) and the concentration of antimony (b) in germanium with crystal growth from a melt 40 mm thick after 500, 750 and 1000 s after the onset of crystallization. The initial concentration of the calculated area is one

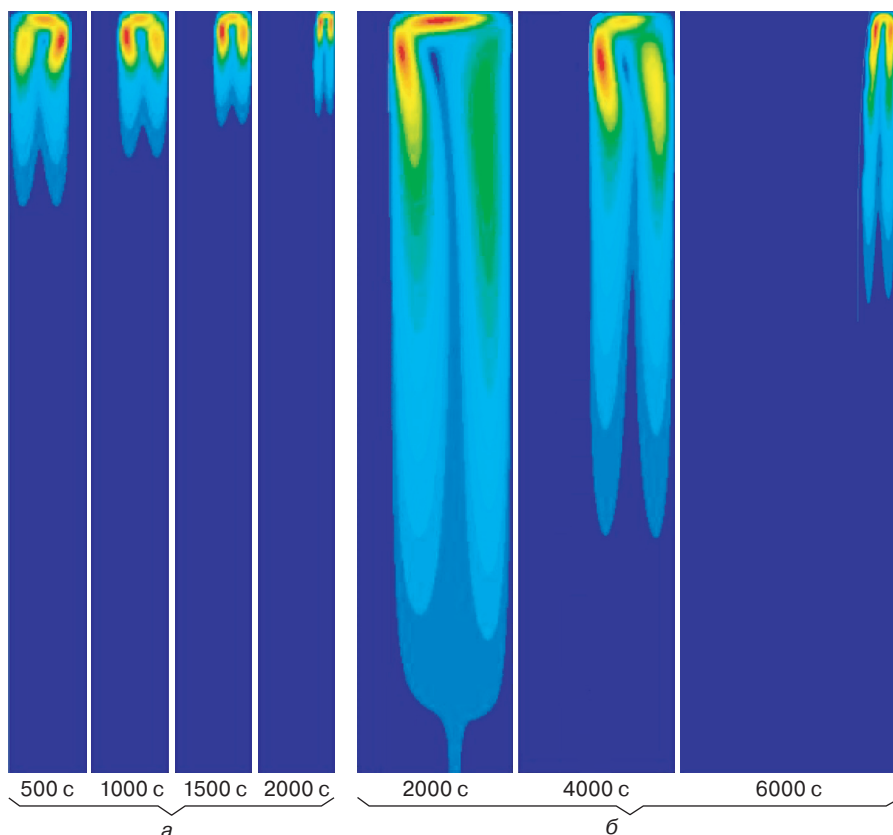


Рис. 5. Структура течения в расплаве германия для $\Delta = 10$ (а) и $\Delta = 20$ мм (б) и ее вырождение по мере уменьшения толщины слоя расплава, из которого растет кристалл

Fig. 5. The structure of the flow in the germanium melt for $\Delta = 10$ (a) and $\Delta = 20$ mm (б) and its degeneration as the thickness of the melt layer from which the crystal grows decreases

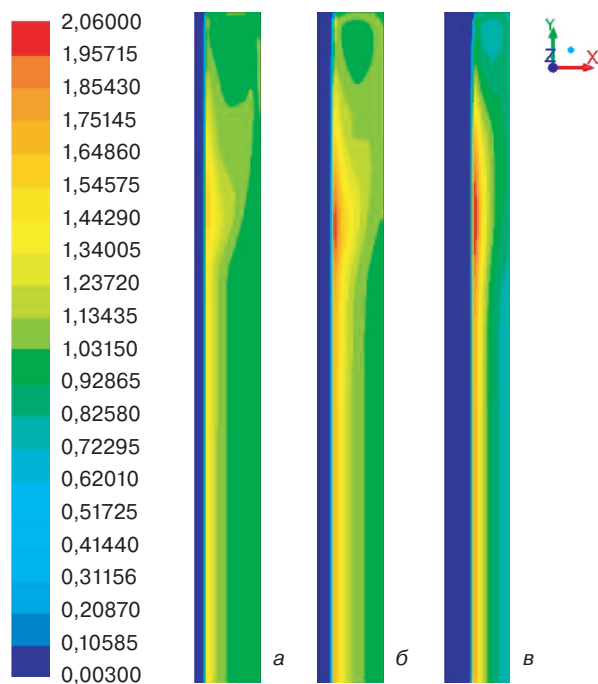


Рис. 6. Изменение концентрации сурьмы в расплаве и растущем кристалле германия через 500 с (а), 1250 с (б) и 1750 с (в) после начала кристаллизации для расчетной области с $\Delta = 10$ мм

Fig. 6. Changes in the concentration of antimony in the melt and growing germanium crystal after 500 s (a), 1250 s (б) and 1750 s (в) after the onset of crystallization for the computational domain with $\Delta = 10$ mm

нице фаз. Это означает, что почти по всей области устанавливается диффузионный режим кристаллизации, и рассчитанное по формуле (1) распределение сурьмы в германии вдоль осевой линии будет справедливо практически по всему слитку. Это подтверждают кривые осевого изменения концентрации примеси, представленные на рис. 7. На нем хорошо видно, что характер кривых распределения сурьмы по высоте расчетной области (в кристалле и расплаве) на разных стадиях процесса кристаллизации практически идентичен вплоть до радиуса в 75 мм. И только совсем на краю можно заметить отличие и по величине, и по характеру.

На практике, только А. Г. Острогорский с соавторами использовал соотношение Тиллера для описания экспериментальных результатов при выращивании методом SHM. Наилучшего совпадения с теорией ему удалось добиться, анализируя распределение Te в выращенных на затравку малого диаметра монокристаллах GaSb [7], а

также в последующей работе [8], в которой, аналогично методу ОТФ, им была использована затравка в виде диска, равного диаметру тигля. Однако для того, чтобы добиться более близкого совпадения, в расчетах по формуле (1) им пришлось использовать величину коэффициента диффузии $D = 1 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$, в несколько раз меньшую, чем общепринятая для теллура [20, 21]. Авторы мотивировали это тем, что вблизи растущего кристалла, в пределах диффузионного пограничного слоя, коэффициент диффузии существенно ниже, чем в объеме жидкости.

Вместе с тем, нами предлагается более простое объяснение, связанное с неконтролируемым изменением толщины слоя расплава и, следовательно, скорости роста в проведенных экспериментах. Это можно признать вполне допустимым, зная, что в используемой конструкции погруженного нагревателя А. Г. Острогорский никогда не использовал нагревательный элемент и не снижал температуру в печи, а лишь вытягивал тигель в холодную зону в заранее созданном градиенте температуры. Последнее связано с тем, что в методе SHM в доньшке тигля отсутствует термопара, которая бы позволяла следить за температурой T_{cool} и регулировать ее значение по мере роста кристалла в соответствии с уравнением (3). Поэтому, как и во многих других ме-

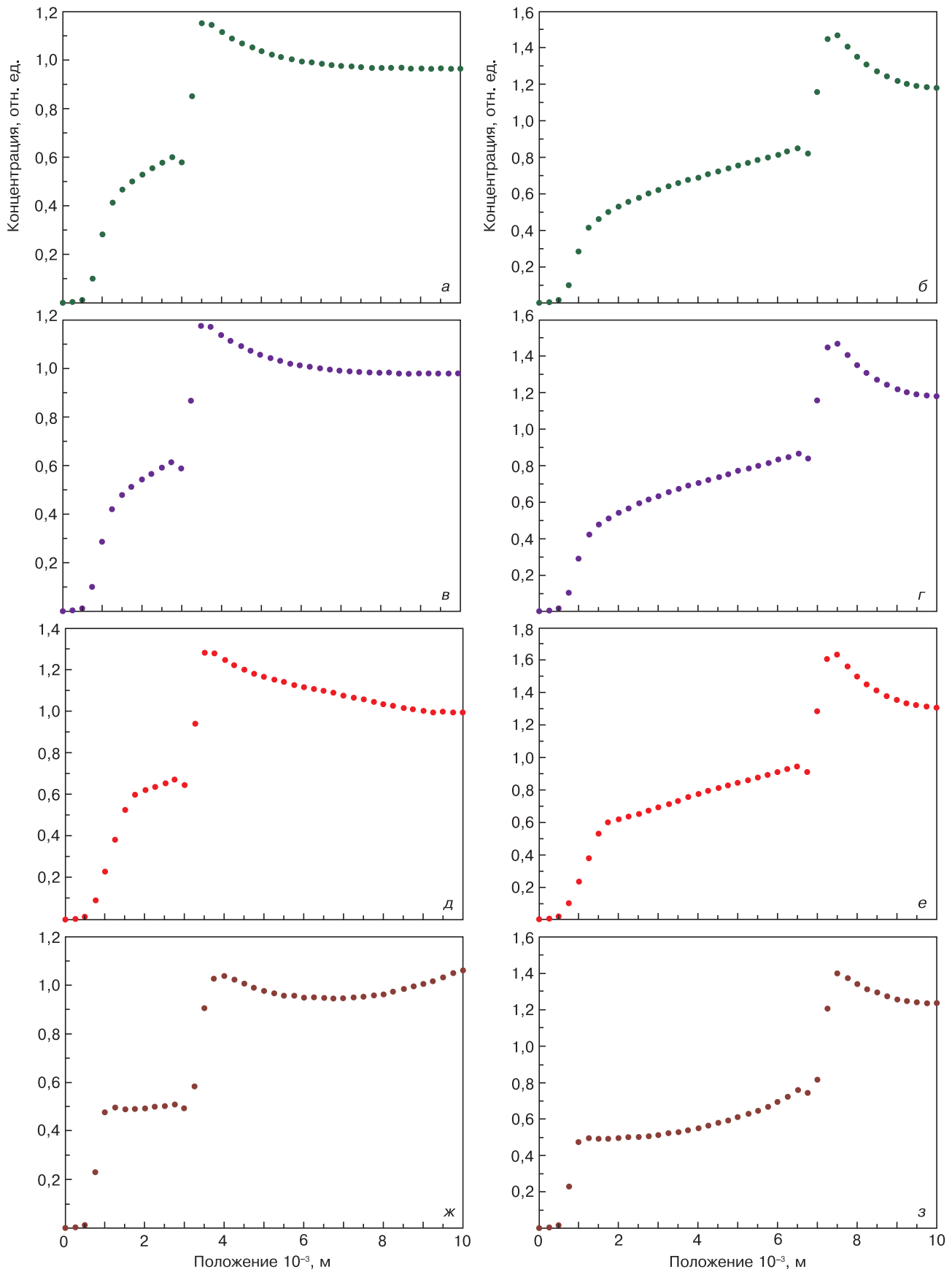


Рис. 7. Осевое изменение концентрации сурьмы через 1000 (а, в, д, ж) и 2000 (б, г, е, з) секунд после начала кристаллизации для различных радиусов:
а, б — 25 мм; в, г — 60; д, е — 75; ж, з — 95

Fig. 7. Axial change in antimony concentration after 1000 (а, в, д, ж) and 2000 (б, г, е, з) seconds after the onset of crystallization for different radii: (а, б) 25 mm; (в, г) 60; (д, е) 75; (ж, з) 95

тодах, нет никаких оснований полагать, что скорость роста (скорость движения фазовой границы) V равнялась скорости вытягивания R . Наоборот, типичная картина начала кристаллизации с использованием погруженного нагревателя выглядит следующим образом. Температура дна тигля, хотя и снижается, но кристаллизация не начинается еще в течение нескольких минут или чуть большего времени по следующим причинам. Во-первых, имеет место переходный период установления, в течение которого система расплав—кристалл должна достаточно охладиться до некоторого нового состояния. Чтобы начался рост, недостаточно снижения температуры просто за счет опускания тигля в имеющемся градиенте. Температура должна быть несколько ниже, чтобы ее «хватало» и на отвод выделяемой теплоты при кристаллизации. Иначе, как это следует из уравнения (3), температура T_{cool} будет уменьшаться, а высота кристалла H оставаться прежней. Кроме того, можно ожидать, что установившийся перед вытягиванием градиент температуры будет ближе к градиенту температуры в расплаве, поскольку в исходном положении в работе [8] расплав занимал ~60 мм, а кристалл — всего 6 мм. В этом случае, согласно уравнению (3), слой расплава h по мере увеличения расстояния между доньшком нагревателя и доньшком тигля будет только расти. Сказанное иллюстрирует табл. 3, в которой на примере кристаллизации германия показано, что даже, если градиент температуры в печи такой же, как был в кристалле до начала роста (20 К/см), то рост будет сопровождаться увеличением h до значения 10,87 мм через 1 ч вытягивания. И только, если градиент установить чуть большим (23,5 К/см), толщина слоя останется

прежней $h = 10,0$ мм (см. табл. 3), что и должно обеспечиваться при правильном режиме кристаллизации. Если в печи градиент температуры близок к его величине в расплаве, то даже с учетом теплоты кристаллизации через 1 ч после вытягивания толщина слоя будет составлять 11,81 мм (см. табл. 3). Дополнительным фактором, специфическим для выращивания с использованием погруженного нагревателя, является то, что сразу после начала вытягивания в зону под нагревателем из зоны над ним попадает пусть небольшая, но сильно перегретая (не менее чем на 30—50 К) порция расплава. Это тоже только способствует дополнительному увеличению h . Поэтому в целом (в технологическом плане) целевого значения скорости вытягивания следует достигать постепенно, чтобы кристалл успел охладиться и расти в соответствие с заданным темпом охлаждения.

Как только расплав, наконец, достаточно охладится, чтобы начался рост, скорость перемещения фронта кристаллизации V начинает возрастать, но достигает номинального значения скорости вытягивания R не монотонно. Как показали расчеты V по данным измеренных значений температуры T_{cool} и T_{hot} в эксперименте по росту монокристаллического CsI (Tl) [22], в период установления (пока устанавливается новое значение скорости роста) мгновенная скорость роста в несколько раз превышала значения скоростей при целевом ее изменении с 2 до 4 мм/ч за счет охлаждения системы расплав—кристалл. Об этом же свидетельствуют и данные расчетов авторов настоящей работы, которые будут рассмотрены ниже. Таким образом, вполне обоснованно можно предположить, что слой расплава в работе

Таблица 3

Изменение толщины слоя расплава германия h в зависимости от градиента температуры в печи при вытягивании тигля в холодную зону* [Change in the thickness of the melt layer of germanium h depending on the temperature gradient in the furnace when the crucible is pulled into the cold zone]

Номер п/п	Стадия кристаллизации	Снижение температуры при условии	gradT _c , К/см	Градиент в зоне охлаждения, К/см	T _{cool} , °C	h, мм
1	До начала вытягивания	Теплота кристаллизации не выделяется	20,0	20,0	927,0	10,00
2	После опускания на 5 мм		20,0	20,0	917,0	10,00
3			20,0	10,0	922,0	11,43
4		Теплота кристаллизации выделяется, но в расчетах темпа охлаждения не учитывается	23,5	20,0	917,0	10,87
5		23,5	10,0	922,0	12,38	
6	С учетом выделения теплоты кристаллизации	23,5	23,5	913,5	10,00	
7		23,5	10,0	920,2	11,81	

* Температура на горячей границе $T_{\text{hot}} = 947$ °C не меняется в процессе роста, начальная толщина расплава $h_0 = 10$ мм, начальная длина кристалла $H_0 = 5$ мм; градиент температуры в расплаве $\text{grad}T_m = 10$ К/см и кристалле $\text{grad}T_c = 20$ К/см, скорость вытягивания $R = 5$ мм/ч; значения теплопроводности германия в твердой и жидкой фазе округлены до 20 и 40 Вт/(м · К), соответственно.

[8] не оставался постоянным, а, с большой вероятностью, после некоторого увеличения вначале затем уменьшался так, что фронт кристаллизации почти вплотную приблизился к доньшку погруженного нагревателя и далее следовал за ним. Следовательно, скорость роста, пройдя свое пиковое значение, после этого сравнялась со скоростью вытягивания. Иначе бы эксперимент был остановлен из-за «вмораживания» нагревателя в кристалл. Такое, судя по всему, имело место в работе [23] в серии незавершенных до конца экспериментов на борту МКС по росту в условиях микрогравитации кристаллов InSb, который также характеризуется заметным скачком (примерно в 3—4 раза) коэффициента теплопроводности при переходе из твердого в жидкое состояние [24]. Это приводит к формированию сильно отличающихся друг от друга по величине осевых градиентов температуры в расплаве и кристалле. О кристаллизации из очень тонкого слоя расплава в работе [24] можно судить по тому, насколько быстро было достигнуто стационарное распределение Te на всей длине кристалла в 15—20 мм, что свидетельствовало о безусловно диффузионном характере массопереноса. Наоборот, при выращивании этого же кристалла в наземных условиях [25] осевой градиент температуры в такой же печи оказался недостаточным, чтобы фронт кристаллизации успевал за погруженным нагревателем. Во всех опытах расплав через некоторое время занимал, по-видимому, уже почти всю ампулу, достигая по высоте не менее 30—40 мм. Эта порция расплава, скорее всего, быстро застывала уже во время охлаждения печи

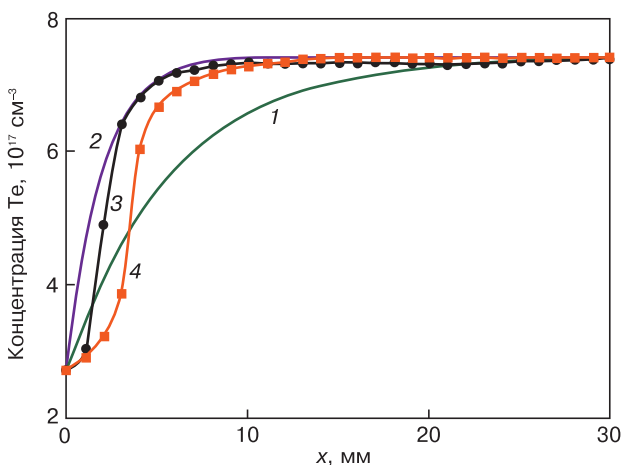


Рис. 8. Расчет распределения Te вдоль оси GaSb по соотношению Тиллера (1) (1—3), по формуле (2) (4): 1, 2 — $V = 5$ мм/ч, $D = 3 \cdot 10^{-5}$ и $1 \cdot 10^{-5}$ см²/с соответственно; 3 — $D = 3 \cdot 10^{-5}$ см²/с при росте V от 0 до 15 мм/ч и последующем падении до 5 мм/ч; 4 — h , достигнув сначала 12 мм, затем при превышении скорости роста над скоростью вытягивания падает до 2 мм

Fig. 8. Calculation of the Te distribution along the GaSb axis using the Tiller relation (1) (1—3), according to formula (2) (4): (1, 2) $V = 5$ mm/h, $D = 3 \cdot 10^{-5}$ and $1 \cdot 10^{-5}$ cm²/s, respectively; (3) $D = 3 \cdot 10^{-5}$ cm²/s with an increase in V from 0 to 15 mm/h and a subsequent drop to 5 mm/h; (4) h , first reaching 12 mm, then when the growth rate exceeds the drawing speed, it drops to 2 mm

(после завершения эксперимента) и, судя по представленным фотографиям, представляла собой поликристалл. Монокристаллические области в длину имели размер в пределах 2—12 мм, что сопоставимо с размером самой исходной затравки.

При сделанных предположениях о характере изменения реальной скорости движения фронта кристаллизации и толщины слоя расплава, из которого рос GaSb, кривые 3 и 4 на рис. 8, рассчитанные по формулам (1) и (2) с использованием стандартных данных для коэффициента диффузии теллура $D = 3 \cdot 10^{-5}$ см²/с достаточно близки к кривой 2, рассчитанной для $D = 1 \cdot 10^{-5}$ см²/с и в предположении $V = R$. Таким образом, кривые 3 и 4 вполне удовлетворительно описывают экспериментальные данные, представленные в работе [8]. Причем, в сравнении с кривой 2 они значительно лучше описывают характер данных на самом начальном участке, поскольку соотношение (1), если в нем не учитывается изменение V со временем, дает выпуклую кривую, а экспериментальные данные имеют прогиб так же, как и кривые 3 и 4. Таким образом, при определенной геометрии кристаллизующегося слоя приближенные соотношения (1) и (2) могут быть использованы в расчетах распределения примеси, но только при учете фактического изменения скорости роста и толщины слоя расплава.

Получение однородных по длине слитка кристаллов

Даже если в ОТФ-методе зону под погруженным нагревателем специально не легировать, то распределение примеси по высоте слитка кремния будет, как это видно из рис. 9 (кривые 1), отличаться от аналогичного при стандартной направленной кристаллизации. Связано это с тем, что в тонком слое расплава ~10—20 мм достаточно быстро происходит установление стационарной концентрации, причем для бора с коэффициентом сегрегации, близким к единице, это происходит значительно быстрее, чем для фосфора. Однако, если зоны расплава под ОТФ-нагревателем и над ним легировать так, как это было описано выше, то, не зависимо от толщины слоя расплава, которая может быть выбранной вплоть до 50—100 мм (определяется размером тигля), согласно соотношению (2), концентрация в кремнии как бора, так и фосфора на протяжении всего роста будет постоянной. Конечно, каждого на своем уровне, зависящем от содержания В и Р в исходном кремнии.

На рис. 10 видно, что для бора нет особых проблем обеспечить в последней порции кристаллизующегося кремния постоянную его концентрацию. Какую бы из скоростей кристаллизации от 1 до 60 мм/ч мы не выбрали, концентрация В изменится в худшем случае на 30%. С распределением фосфора ситуация совсем иная. Чтобы добиться хотя бы

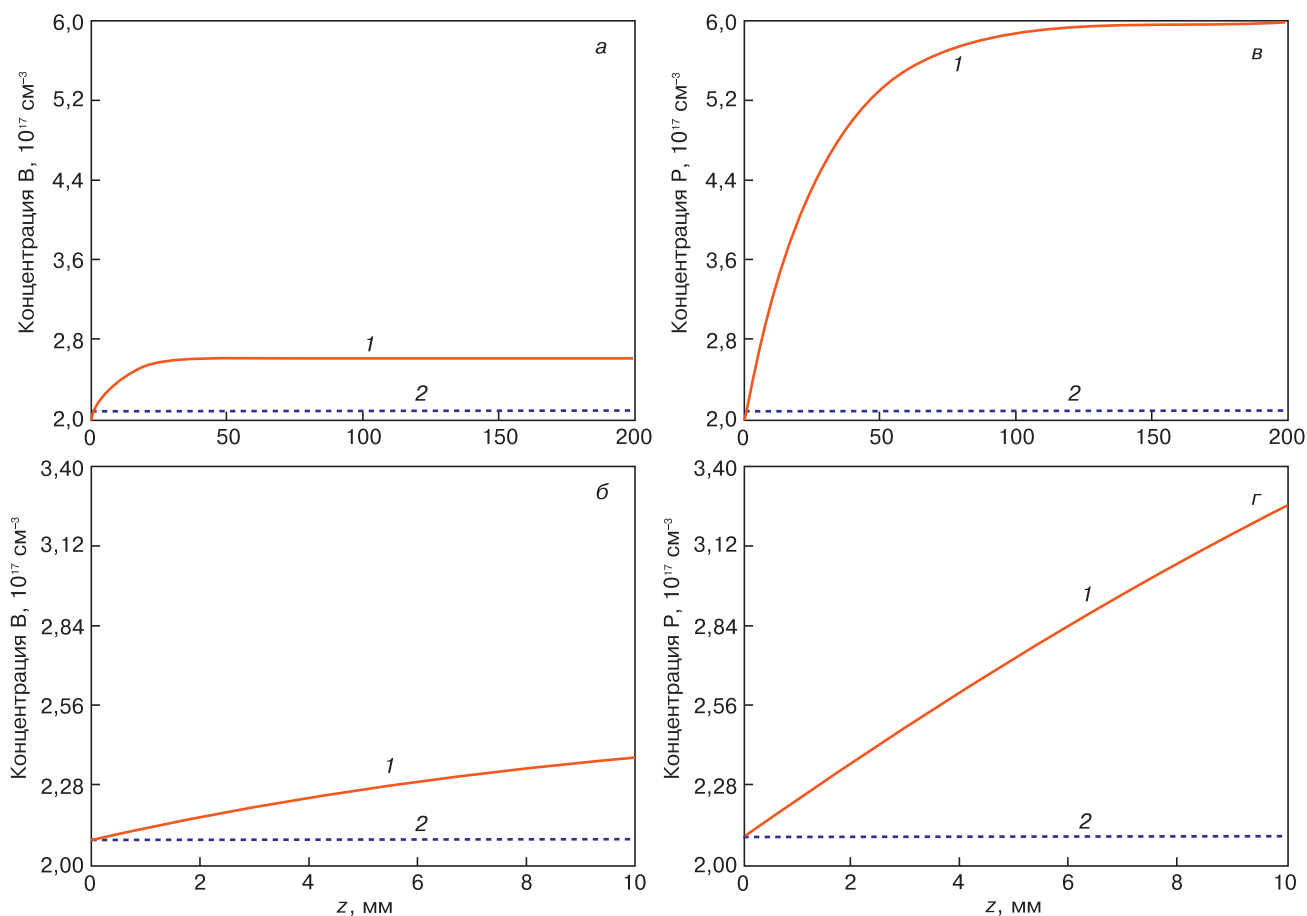


Рис. 9. Распределение бора (а, б) и фосфора (в, г) по длине слитка кремния:

б, г — начальная стадия установления:

1 — без специального легирования зон расплава ($C_1 = C_2 = C_S/k$); 2 — с дополнительным легированием зоны под ОТФ-нагревателем ($C_2 = C_S, C_1 = C_2/k$)

Fig. 9. Distribution of boron (a, б) and phosphorus (в, г) along the length of the silicon ingot:

(б, г) initial stage of establishment;

1 — without special doping of melt zones ($C_1 = C_2 = C_S/k$); 2 — with additional doping of the zone under the axial heat flow heater ($C_2 = C_S, C_1 = C_2/k$)

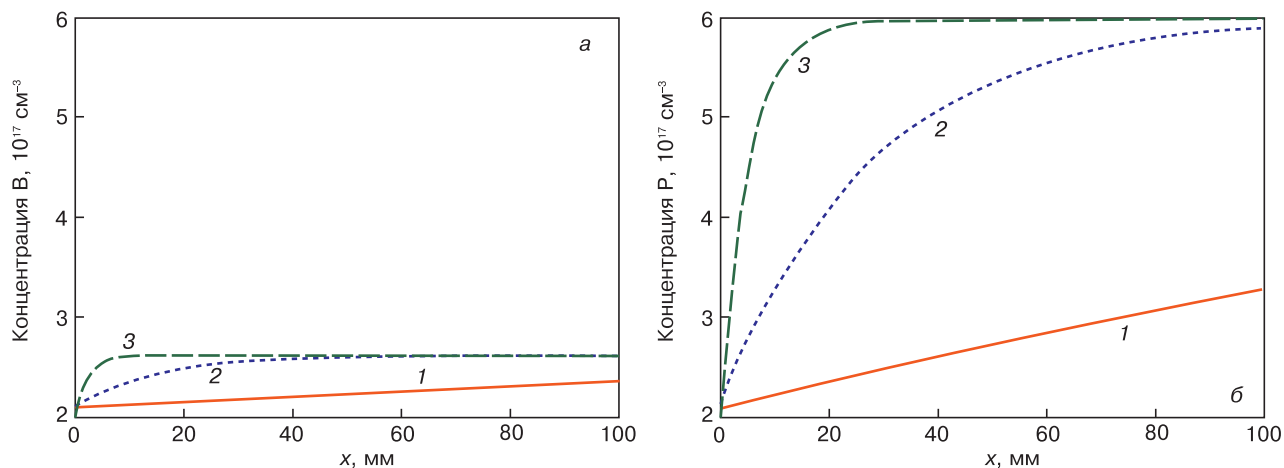


Рис. 10. Распределение бора (а) и фосфора (б) в последней порции кремния при кристаллизации со скоростью 1 (1), 10 (2) и 60 (3) мм/ч

Fig. 10. Distribution of boron (а) and phosphorus (б) in the last portion of silicon during crystallization at a rate of 1 (1), 10 (2) and 60 (3) mm/h

такого же результата, необходимо кристаллизацию вести очень медленно, ~ 1 мм/ч. Такая процедура займет 50—100 ч, что превысит почти на порядок время кристаллизации основной части слитка. Если же просто увеличить скорость до значений 60 мм/ч,

то, помимо возможных проблем со структурным качеством самого материала, концентрация примеси вырастет минимум в 3 раза. Ясно, что для выполнения сразу двух условий, а именно: сохранения концентрации Р в некотором желаемом диапазоне и

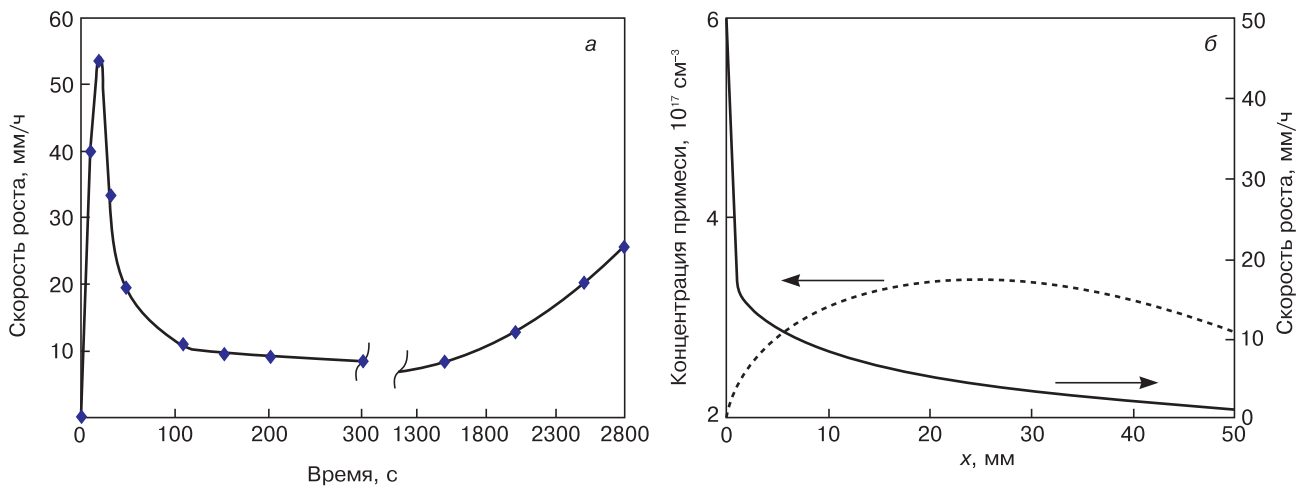


Рис. 11. Типичное изменение скорости движения фазовой границы V при затвердевании слоя расплава германия (а) и распределение фосфора при кристаллизации кремния с переменной скоростью $V = V_0(1 - 0,5x^{0,3})$ (б)

Fig. 11. Typical change in the velocity of the phase boundary V during solidification of the germanium melt layer (a) and the distribution of phosphorus during the crystallization of silicon with a variable speed $V = V_0(1 - 0,5x^{0,3})$ (б)

завершения кристаллизации в разумное время, необходимо со временем скорость роста менять. Рис. 11 иллюстрирует такую возможность: при достаточно резком снижении скорости роста после начала кристаллизации почти до нуля общее время кристаллизации составит ~15 ч. Добиться этого можно за счет изменения во времени скорости охлаждения, однако задача это не такая простая, поскольку не может быть решена за счет аналогичного повторения для $R_{\text{охл}}(t)$ той же зависимости от времени, что и для V . Сказанное объясняет рис. 11, а, из которого видно, что скорость роста нелинейно связана со скоростью охлаждения.

Заключение

Пакет ANSYS Fluent совместно с разработанным собственным математическим обеспечением применяли для исследования 2D сегрегации в тонком слое расплава. В качестве объекта для моделирования использован германий, легированный сурьмой, имеющей очень маленький коэффициент сегрегации, равный 0.003. Естественная конвекция при выращивании полупроводников методом ОТФ может быть эффективно подавлена, и для определенных толщин плоского слоя она не оказывает заметного влияния на процесс диффузии, т. е. устанавливается так называемый *diffusion-controlled* режим роста кристалла. Такой режим позволяет описывать процесс сегрегации с помощью простых соотношений, которые дают хороший результат при учете изменения реальной скорости роста и толщины слоя расплава в процессе кристаллизации. Дополнительное легирование расплава под ОТФ-нагревателем обеспечивает постоянную концентрацию примеси в кремнии в процессе вытягивания тигля, а при затвердевании остаточного слоя этого можно достигнуть путем вариации скорости роста

(от высокой к низкой) за счет изменения во времени скорости охлаждения. В общем случае для нахождения требуемой зависимости скорости охлаждения от времени необходимо решать обратную задачу, что может являться задачей на следующем этапе работы.

Библиографический список

1. Di Sabatino M., Øvrelid E. J., Olsen E. Distribution of Al, B and P in multi-crystalline Si ingots // Proc. 21th European Photovoltaic Solar Energy Conf. (Dresden, Germany). München: WIP Renewable Energies, 2006. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download;jsessionid=067D423612B5831D8B67C70A457F3B45?doi=10.1.1.611.5731&rep=rep1&type=pdf>
2. Ostrogorsky A. G. Single-crystal growth by the submerged heater method // Meas. Sci. Technol. 1990. V. 1, N 5. P. 463—464. DOI: 10.1088/0957-0233/1/5/017
3. Golyshev V. D., Gonik M. A. A temperature field investigation in case of crystal growth from the melt with a plane interface on exact determination thermal conditions // Crystal Properties and Preparation. 1991. V. 36—38. P. 623—630.
4. Гоник М. А. Направленная кристаллизация мультикристаллического кремния в условиях ослабленной конвекции расплава и газообмена // Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2015. Т. 18, № 2. С. 95—102. DOI: 10.17073/1609-3577-2015-2-95-102
5. Филонов К. Н., Курлов В. Н., Классен Н. В., Кудренко Е. А., Штейнман Э. А. Новый способ получения наноструктурированных карбидокремниевых покрытий // Изв. РАН, сер. физ. 2009. Т. 10. С. 1457—1459.
6. Бураго Н. Г., Голышев В. Д., Гоник М. А., Полежаев В. И., Цветовский В. Б. Характер вынужденной и естественной конвекции и его влияние на распределение примеси в кристалле при росте методом ОТФ 1а // Труды III Международной конференции «Кристаллы: рост, свойства, реальная структура и применение». Александров, 1997. Т. 1. С. 239—259.
7. Dutta P. S., Ostrogorsky A. G. Nearly diffusion controlled segregation of tellurium in GaSb // J. Crystal Growth. 1998. V. 191, Iss. 4. P. 904—908. DOI: 10.1016/S0022-0248(98)00440-0
8. Dutta P. S., Ostrogorsky A. G. Segregation of Ga in Ge and InSb in GaSb // J. Crystal Growth. 2000. V. 217, Iss. 4. P. 360—365. DOI: 10.1016/S0022-0248(00)00483-8
9. Tiller W. A., Jackson K. A., Rutter J. W., Chalmers B. The redistribution of solute atoms during the solidification of metals // Acta Metallurgica. 1953. V. 1, Iss. 4. P. 428—437. DOI: 10.1016/0001-6160(53)90126-6
10. Ostrogorsky A. G., Mosel F., Schmidt M. T. Diffusion-controlled distribution of solute in Sn-1% Bi specimens solidified by the submerged heater method // J. Crystal Growth. 1991. V. 110, Iss. 4. P. 950—954. DOI: 10.1016/0022-0248(91)90655-0

11. Ostrogorsky A. G., Müller G. Normal and zone solidification using the submerged heater method // *J. Crystal Growth*. 1994. V. 137, Iss. 1–2. P. 64–71. DOI: 10.1016/0022-0248(94)91248-3
12. Golyshev V. D., Gonik M. A., Tsvetovsky V. B., Frjazinov I. V., Marchenko M. P. // *Proc. 3rd International Conference on Single Crystal Growth, Strengthen Problems, Heat and Mass Transfer*. Obninsk (Russia), 2000. P. 125–134.
13. Pfann W. G. Principles of zone-melting // *The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society*. 1952. V. 4, Iss. 7. P. 747–753. DOI: 10.1007/BF03398137
14. Voller V. R., Prakash C. A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems // *Int. J. Heat Mass Transfer*. 1987. V. 30, Iss. 8. P. 1709–1719. DOI: 10.1016/0017-9310(87)90317-6
15. Smirnova O. V., Kalaev V. V., Makarov Yu. N., Abrosimov N. V., Riemann H., Kurlov V. N. Three-dimensional unsteady modeling analysis of silicon transport in melt during Cz growth of $Ge_{1-x}Si_x$ bulk crystals // *J. Crystal Growth*. 2007. V. 303, Iss. 1. P. 141–145. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.11.150
16. Golyshev V. D., Gonik M. A., Tsvetovsky V. B. Study of thermal conductivity close to the melting point // *High Temperatures-High Pressures*. 2003/2004. V. 35–36, N 2. P. 139–148. URL: http://www.eyoungindustry.com/uploadfile/file/20151006/20151006102711_90180.pdf
17. Sato Y., Nishizuka T., Tachikawa T., Hoshi M., T. Yamamura, Y. Waseda. Viscosity and density of molten germanium // *High Temperatures-High Pressures*. 2000. V. 32. P. 253–260. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi=10.1.1.430.3376&rep=rep1&type=pdf>
18. Ratnieks G., Muižnieks A., Mühlbauer A. Modelling of phase boundaries for large industrial FZ silicon crystal growth with the needle-eye technique // *J. Crystal Growth*. 2003. V. 255, Iss. 3–4. P. 227–240. DOI: 10.1016/S0022-0248(03)01253-3
19. Takagi Y., Okano Y., Minakuchi H., Dost S. Combined effect of crucible rotation and magnetic field on hydrothermal wave // *J. Crystal Growth*. 2014. V. 385. P. 72–76. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2013.04.062
20. Raffy C., Duffar T. Internal Report, CEA-Grenoble (France), SES No. 15/95, 1995.
21. Mueller D. Convection and Inhomogeneities in Crystal Growth from the Melt / In: *Crystals: Growth, Properties and Applications*. Berlin; Heidelberg: Springer, 1988. V. 12. P. 1–136. DOI: 10.1007/978-3-642-73208-9_1
22. Гоник М. А., Ткачева Т. В. Выращивание монокристаллов CsI<Tl> при контролируемых условиях // *Неорганические материалы*. 2007. Т. 43, № 11. С. 1401–1408.
23. Ostrogorsky A. G., Marin C., Churilov A., Volz M. P., Bonner W. A., Duffar T. Reproducible Te-doped InSb experiments in Microgravity Science Glovebox at the International Space Station // *J. Crystal Growth*. 2008. V. 310, Iss. 2. P. 364–971. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2007.10.079
24. Nakamura S., Hibiya T., Yamamoto F. Thermal conductivity of GaSb and InSb in solid and liquid states // *J. Appl. Phys*. 1990. V. 68, Iss. 10. P. 5125–5127. DOI: 10.1063/1.347051
25. Churilov A., Ostrogorsky A. G., Volz M. P. Solidification using a baffle in sealed ampoules: Ground-based experiments // *J. Crystal Growth*. 2006. V. 295, Iss. 1. P. 20–30. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.07.024

Авторы выражают благодарность SIMAP за предоставленную возможность использования программного кода ANSYS Fluent в лаборатории.

Статья поступила в редакцию 12 декабря 2018 г.

Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronics Engineering. 2018, vol. 21, no. 2, pp. 69–82. DOI: 10.17073/1609-3577-2018-2-69-82

How to provide the constant impurity distribution along the ingot

M. A. Gonik^{1,§}, F. Baltaretu²

¹Centre for Material Reseaches «Photon»,
Cheska Lipa Str., Aleksandrov, Vladimir Region 601655, Russia

²Technical University of Civil Engineering of Bucharest,
Lacul Tei Blvd, no. 122–124, Sector 2, Bucharest 510009, Romania

Abstract. On the basis of segregation study in crystal growth from a thin melt layer in presence of the submerged heater the possibility to obtain the uniform material along the height of the ingot is shown. Numerically in modeling of solidification of 200 mm in a diameter Sb doped Ge the accurate solution with account for convection was found in the central part of the domain to coincide with the one dimension problem for the melt layer beginning from 40 mm. Condition to neglect with convection in mass transfer are to be more rigorous: the melt layer should be less than 20 mm. In this case, one may use Tiller's equation obtained to calculate the axial impurity distribution in approach of the diffusion-control segregation. The analysis of attempts to describe experimental data of crystal growth by use of the simplified equations has shown their validity in case of account for actual crystal growth rate or change in the melt layer thickness during the run, as in expression find by Marchenko et al. The above said makes it possible for to describe analytically the axial distribution of impurity in the ingot, particularly, for B and P in silicon and to recommend the amount of its concentration over the height. The uniform material in the very end of the solidification process of the rest portion of the ingot can be obtained by the variation of the growth rate due to change in the cooling rate with time.

Keywords: directional crystallization, the submerged into the melt heater, multi-crystalline silicon, characterization, oxygen and carbon content

Information about authors:

Michael A. Gonik^{1,§}: Cand. Sci. (Eng.), Director (michael.a.gonik@gmail.com); **Florin Baltaretu**²: PhD, Professor, Head of the Department of Thermal Engineering (florin.baltaretu@instal.utcb)

§ Corresponding author

References

1. Di Sabatino M., Øvrelid E. J., Olsen E. Distribution of Al, B and P in multi-crystalline Si ingots. *Proceedings of the 21th European Photovoltaic Solar Energy Conf.* München: WIP Renewable Energies, 2006. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download;jsessionid=067D423612B5831D8B67C70A457F3B45?doi=10.1.1.611.5731&rep=rep1&type=pdf>
2. Ostrogorsky A. G. Single-crystal growth by the submerged heater method. *Meas. Sci. Technol.*, 1990, vol. 1, no. 5, pp. 463—464. DOI: 10.1088/0957-0233/1/5/017
3. Golyshev V. D., Gonik M. A. A temperature field investigation in case of crystal growth from the melt with a plane interface on exact determination thermal conditions. *Crystal Properties and Preparation*, 1991, vol. 36–38, pp. 623—630.
4. Gonik M. A. Directional crystallization of multicrystalline silicon in a weak melt convection and gas exchange. *Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zavedenii. Materialy Elektronnoi Tekhniki = Materials of Electronics Engineering*, 2015, vol. 18, no. 2, pp. 95—102. (In Russ.). DOI: 10.17073/1609-3577-2015-2-95-102
5. Filonov K. N., Kurlov V. N., Klassen N. V., Kudrenko E. A., Shteinman E. A. Peculiarities of nanostructured silicon carbide films and coatings obtained by novel technique. *Izvestiya Rossiiskoi Akademii Nauk. Seriya Fizicheskaya = Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*, 2009, vol. 73, no. 10, pp. 1457—1459. (In Russ.)
6. Burago N. G., Golyshev V. D., Gonik M. A., Polezhaev V. I., Tsvetovskiy V. B. The nature of forced and natural convection and its influence on the distribution of impurities in a crystal during growth using the OTF 1a method. *Trudy III Mezhdunarodnoi konferentsii «Kristally: rost, svoystva, real'naya struktura i primeneniye» = Proceedings of the III International Conference «Crystals: growth, properties, real structure and application»*. Alexandrov, 1997, vol. 1, pp. 239—259. (In Russ.)
7. Dutta P. S., Ostrogorsky A. G. Nearly diffusion controlled segregation of tellurium in GaSb. *J. Crystal Growth*, 1998, vol. 191, no. 4, pp. 904—908. DOI: 10.1016/S0022-0248(98)00440-0
8. Dutta P. S., Ostrogorsky A. G. Segregation of Ga in Ge and InSb in GaSb. *J. Crystal Growth*, 2000, vol. 217, no. 4, pp. 360—365. DOI: 10.1016/S0022-0248(00)00483-8
9. Tiller W. A., Jackson K. A., Rutter J. W., Chalmers B. The redistribution of solute atoms during the solidification of metals. *Acta Metallurgica*, 1953, vol. 1, no. 4, pp. 428—437. DOI: 10.1016/0001-6160(53)90126-6
10. Ostrogorsky A. G., Mosel F., Schmidt M. T. Diffusion-controlled distribution of solute in Sn-1% Bi specimens solidified by the submerged heater method. *J. Crystal Growth*, 1991, vol. 110, no. 4, pp. 950—954. DOI: 10.1016/0022-0248(91)90655-O
11. Ostrogorsky A. G., Müller G. Normal and zone solidification using the submerged heater method. *J. Crystal Growth*, 1994, vol. 137, no. 1–2, pp. 64—71. DOI: 10.1016/0022-0248(94)91248-3
12. Golyshev V. D., Gonik M. A., Tsvetovskiy V. B., Frjazinov I. V., Marchenko M. P. *Proceedings of the 3rd International Conference on Single Crystal Growth, Strengthen Problems, Heat and Mass Transfer*. Obninsk (Russia), 2000, pp. 125—134.
13. Pfann W. G. Principles of zone-melting. *JOM = The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society*, 1952, vol. 4, no. 7, pp. 747—753. DOI: 10.1007/BF03398137
14. Voller V. R., Prakash C. A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 1987, vol. 30, no. 8, pp. 1709—1719. DOI: 10.1016/0017-9310(87)90317-6
15. Smirnova O. V., Kalaev V. V., Makarov Yu. N., Abrosimov N. V., Riemann H., Kurlov V. N. Three-dimensional unsteady modeling analysis of silicon transport in melt during Cz growth of Ge_{1-x}Si_x bulk crystals. *J. Crystal Growth*, 2007, vol. 303, no. 1, pp. 141—145. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.11.150
16. Golyshev V. D., Gonik M. A., Tsvetovskiy V. B. Study of thermal conductivity close to the melting point. *High Temperatures-High Pressures*, 2003/2004, vol. 35–36, no. 2, pp. 139—148. URL: http://www.eyoungindustry.com/uploadfile/file/20151006/20151006102711_90180.pdf
17. Sato Y., Nishizuka T., Tachikawa T., Hoshi M., T. Yamamura, Y. Waseda. Viscosity and density of molten germanium. *High Temperatures-High Pressures*, 2000, vol. 32, pp. 253—260. URL: <http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi=10.1.1.430.3376&rep=rep1&type=pdf>
18. Ratnieks G., Muižnieks A., Mühlbauer A. Modelling of phase boundaries for large industrial FZ silicon crystal growth with the needle-eye technique. *J. Crystal Growth*, 2003, vol. 255, no. 3–4, pp. 227—240. DOI: 10.1016/S0022-0248(03)01253-3
19. Takagi Y., Okano Y., Minakuchi H., Dost S. Combined effect of crucible rotation and magnetic field on hydrothermal wave. *J. Crystal Growth*, 2014, vol. 385, pp. 72—76. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2013.04.062
20. Raffy C., Duffar T. Internal Report, CEA-Grenoble (France), SES No. 15/95, 1995.
21. Müller G. Convection and Inhomogeneities in Crystal Growth from the Melt. In: *Crystals: Growth, Properties and Applications*, vol. 12. Berlin; Heidelberg: Springer, 1988, pp. 1—136. DOI: 10.1007/978-3-642-73208-9_1
22. Gonik M. A., Tkacheva T. V. Controlled growth of CsI<Tl> single crystals. *Inorganic Materials*, 2007, vol. 43, no. 11, pp. 1263—1269. DOI: 10.1134/S0020168507110180
23. Ostrogorsky A. G., Marin C., Churilov A., Volz M. P., Bonner W. A., Duffar T. Reproducible Te-doped InSb experiments in Microgravity Science Glovebox at the International Space Station. *J. Crystal Growth*, 2008, vol. 310, no. 2, pp. 364—371. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2007.10.079
24. Nakamura S., Hibiya T., Yamamoto F. Thermal conductivity of GaSb and InSb in solid and liquid states. *J. Appl. Phys.*, 1990, vol. 68, no. 10, pp. 5125—5127. DOI: 10.1063/1.347051
25. Churilov A., Ostrogorsky A. G., Volz M. P. Solidification using a baffle in sealed ampoules: Ground-based experiments. *J. Crystal Growth*, 2006, vol. 295, no. 1, pp. 20—30. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2006.07.024

Acknowledgements. The authors are grateful to SIMAP for the opportunity to use the ANSYS Fluent software code in the laboratory.

Received December 12, 2018

* * *