

Finansējuma saņēmēja nosaukums
Latvijas Universitāte

Īstenotā projekta nosaukums
„Jaunas matemātiskās modelēšanas instrumentu sistēmas izstrāde funkcionālo nano- un mikroelektronikas pusvadītāju materiālu ražošanas tehnoloģijām”

Īstenotā projekta Nr.
2011/0002/2DP/2.1.1.1.0/10/APIA/VIAA/085

Projekta LU reģistrācijas Nr.
ESS2011/121

Projekta zinātniskais vadītājs
Dr.-Phys., asoc. prof. Andris Muižnieks

1. aktivitāte: Funkcionālo nano- un pusvadītāju materiālu ražošanas tehnoloģiju matemātiskajai modelēšanai būtiskāko nanomērogu procesu modeļu noteikšana, definēšana, izstrāde.
Atskaite par periodu 01.04.2011. – 30.06.2011.

1. Ievads.

Projekta ietvaros ir plānots izveidot papildinājumu ar nanomērogu, kinētiskiem un mikroskopiskiem modeļiem matemātiskās modelēšanas un programmu bāzes sistēmai (MMPBS), kas tiek izmantota funkcionālo un pusvadītāju materiālu ražošanas tehnoloģiju matemātiskajā modelēšanā un kas ir izstrādāta un implementēta programmu kompleksa veidā uz Fizikas un Matemātikas Fakultātes daudzprocesoru klastera. Tas ļaus analizēt gan tehnoloģisko procesu makroskopiskos, gan nanomērogu, kinētiskos un mikroskopiskos procesus, gan to saistību.

Uzsākot darbu pie projekta, projekta vadītājs veda gan individuālas pārrunas ar projektā iesaistītajiem darbiniekiem par veicamo darbu plānojumu un pienākumu sadali, gan arī tika noturētas vairākas plašākas apspriedes ar projektā iesaistītajiem darbiniekiem laika posmā 06.-08.04.2011. Kā pirmais tematiskais virziens tika noteikta kristalizācijas mikroskopisko procesu ietekme uz kristāla ārējās virsmas ģeometrijas veidošanos kristāla audzēšanas procesā (šķautņu forma utml).

2. Konferences un semināri

Pārskata periodā projekta pirmajā mēnesī tika sarīkots projekta grupas seminārs „Kristalizācijas mikroskopisko procesu ietekme uz fāzešu ģeometrisko formu” (26.04.2011.), kurā projekta zinātniskais vadītājs asoc. prof. Andris Muižnieks, izmantojot sagatavoto prezentāciju, ziņoja par veiktajām pirmajām literatūras studijām. Prezentācija ir dota pielikumā, zemāk skat. prezentācijas titullapu.

Kristalizācijas mikroskopisko procesu ietekme uz fāzešu ģeometrisko formu

Andris Muižnieks

ERAF projekta
„Jaunas matemātiskās modeļēšanas instrumentu sistēmas izstrāde funkcionālo nano- un mikroelektronikas pusvadītāju materiālu ražošanas tehnoloģijām”
(vienošanās Nr. 2011/0002/2DP/2.1.1.1.0/10/APIA/VIAA/085)
darba grupas seminārs 26.04.2011. Zeļļu ielā 8.

Pārskata periodā projekta zinātniskais vadītājs Andris Muižnieks piedalījās starptautiskā konferencē „5th International Workshop on Crystal Growth Technology”, kas notika 2011. gada 26. – 30. jūnijā Berlīnē, ar postera referātu (skat. zemāk), kurā cita starpā tika prezentēti arī projekta ietvaros aprēķinātie mikroskopiskie īpatnējās pretestības sadalījumi silīcija monokristālos, kas tiek izaudzēti ar peldošās zonas (Floating Zone) metodi. šos sadalījumus aprēķināja un postera sagatavošanā būtisku ieguldījumu deva projekta darbinieks Kaspars Lācis.



Unsteady 3D numerical modeling of 100 mm Floating Zone silicon single crystal growth process: Comparison with experiment

A. Muiznieks¹, K. Lācis¹, H. Riemann², A. Luedge², M. Wuenschel², M. Plate¹

¹Department of Physics, University of Latvia, LATVIA
²Leibniz-Institut fuer Kristallzuechtung, Max-Born-Str. 2 D-12489 Berlin, GERMANY

Introduction
The continuous development of the silicon large single crystal growth industry requires the support by mathematical modeling. In the present work an unsteady 3D numerical modeling of melt flow in industrial 100 mm Si single crystal Floating Zone (FZ) growth process is carried out. Melt flow, temperature and dopant concentration fields are modeled with specialized solver based on open source code libraries of OpenFOAM [1]. The convective transport in the melt besides the segregation influences essentially the dopant distribution at the crystallization interface and as a consequence the radial resistivity variations (RRV) in the grown crystal. Therefore, the numerically calculated RRV characterize the crystal growth process and comparison with experimental RRV shows the achieved quality of modeling. In previous works, e.g. [2] the experimentally measured radial resistivity profiles were compared with numerical calculations in 2D axis-symmetric approach. In the present work we show the first comparison of new experimentally measured RRV and calculated RRV obtained from unsteady 3D calculations.

Description of the process and mathematical models
The experiments were done in the Leibniz Institute for Crystal Growth, Berlin, on a FZ 1520 puller. From a feed rod with diameter $d_{FR} = 0.100m$, a $\langle 100 \rangle$ crystal with a diameter of $d_{CR} = 0.101m$ was grown. With the pull rate of 3.2mm/min were 15cm at 8rpm and 10cm at 4rpm grown, in a transition phase, the pull rate was increased to 3.7mm/min without changing the inductor power, and again for each rotation rate 10cm were grown. The numerical simulations were done for all phases of the experiment.

Fig. 1. System of mathematical models and respective software for modeling of FZ process.

Calculation results

Fig. 2. Floating Zone process. Calculated shape of phase boundaries for different crystal pull rates. Example of 3D HF BEM calculation results, current lines on the surface of silicon.

Fig. 3. 3D structured mesh for the molten zone with 150000 elements.

Fig. 4. 3D unsteady calculation results for 100mm FZ system, from top to bottom - averaged velocity distribution, averaged temperature distribution and averaged dopant concentration distribution in vertical cross-section. Results are obtained on

Fig. 5. A) Experimentally measured RRV. B) Calculated normalized resistivity profiles with surface tension gradient $-2.5e-4$ N/mK. C) Calculated normalized resistivity profiles with surface tension gradient $-1.3e-4$ N/mK. D) Oscillations of dopant concentration in the probe points in the vicinity of crystallization interface.

References:
[1] A. Rutkevics, K. Lācis, A. Muiznieks, N. Jeklabergs, B. Nacis. Using of open source code library OpenFOAM for 3D magnetohydrodynamic calculations in semiconductor crystal growth technologies. international scientific colloquium Modeling for Electromagnetic Processing, October 27-29 2008, proceedings, pp.109-108.
[2] A. Muiznieks, A. Muiznieks, J. Vībuls. Analysis of the dopant segregation effects at the floating zone growth of large silicon crystals. Journal of Crystal Growth, 180 (1997) pp. 372-380.
[3] K. Lācis, A. Muiznieks, A. Rutkevics, A. Sabanovs. Influence of DC and AC magnetic fields on melt motion in FZ large Si crystal growth. Magnetohydrodynamics, Vol. 46 (2010), No. 2, pp. 199-218.
[4] T. Duffar. Crystal growth processes based on capillarity. John Wiley & Sons, 2010.

3. Literatūras analīze, pirmie testa aprēķini

Lai uzsāktu nanomērogu, kinētisko un mikroskopisko modeļu izstrādi, tika veiktas apjomīgas literatūras studijas. Zemāk norādām dažus no svarīgākajiem avotiem.

1. G.F. Bolling, W.A. Tiller, "Growth from the Melt. I. Influence of Surface Intersections in Pure Metals", J Appl. Phys. 31, 1345 (1960).
2. V. V. Voronkov. "Mass transfer at the surface of a crystal near to its boundary with the melt, and its influence on the shape of the growing crystal", Kristallografiya 23, 249 (1978).
3. M. Elena Diaz, Javier Fuentes, Ramon L. Cerro, Michael D. Savage, "Hysteresis during contact angles measurement", Journal of Colloid and Interface Science 343, 574 (2010).
4. Crystal Growth Processes Based on Capillarity. Edited by T. Duffar (2010).
5. D.J. Eaglesham, A.E.White, L.C. Feldmann, N. Moriya, D.C. Jacobson, "Equilibrium shape of Si", Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 1643.
6. Apte and Zeng "Anisotropy of crystalmelt interfacial free energy of silicon by simulation", Appl. Phys. Lett 92, 221903 (2008).
7. V. V. Voronkov. "Theory of crystal surface formation in the pulling process", Journal of Crystal Growth 52 311 (1981).

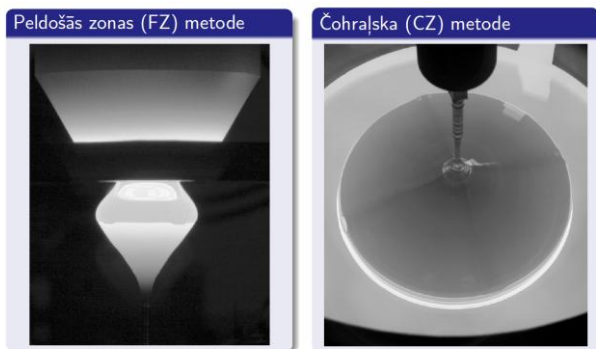
Pārskata periodā veikto literatūras studiju kopsavilkums un pirmo testa aprēķinu rezultāti ir apkopoti projekta grupas darbinieku kopīgi sagatavotā sekojošā prezentācijā iekšējai lietošanai, kas ir veltīta kinētisko un mikroskopisko modeļu pielietojumam silīcija monokristālu audzēšanas procesa aprakstam, skat zemāk.

Saturs

- 1 levads
- 2 Teorijas kopsavilkums
- 3 Iegūtie rezultāti un secinājumi

1.

Rūpnieciskā silīcija monokristālu audzēšana



2.

Rūpnieciskā silīcija monokristālu audzēšana



Mikroskopiskie kristālu augšanas aspekti var izpausties makroskopiskā mērogā.

3.

Darba mērķi

1. Izpētīt un analizēt esošos silīcija (Si) kristālu audzēšanas mikroskopisko aspektu modeļus;
2. Noskaidrot būtiskākos procesus, kas ietekmē mikroskopisko efektu izpausmes uz kristāla formu Si monokristālu audzēšanā;
3. Izveidot aprēķinu metodes dažādu apskatāmās problēmas aspektu modelēšanai un veikt mikroskopisko efektu skaitliskos aprēķinus.

4.

Darba uzdevumi

1. Veikt literatūras studijas par Si kristālu audzēšanas mikroskopiskajiem aspektiem;
2. Apkopot teorētiskos modeļus, kas apraksta ar kristālu augšanas procesu saistītos fizikālos mehānismus;
3. Veikt peldošās zonas procesa makroskopiskos aprēķinus;
4. Izmantojot makroskopisko aprēķinu rezultātus, novērtēt un analizēt raksturīgos mikroskopisko procesu mērogus;
5. Veikt fāzu robežu formas pie trīs fāzu līnijas (TPL) aprēķinus, noteikt šķautņu izmērus;
6. Analizēt Si kristālu augšanas mikroskopisko aspektu trīsdimensionālo raksturu (piem., spoguļfāzešu veidošanos).

5.

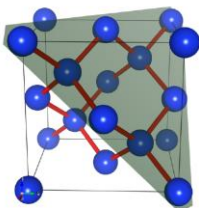
Līdzsvara virsmas atomārais raksturs

Džeksona α -kritērijs

$$\alpha_J = \frac{\tilde{L}}{k_B T_0} \frac{n_S}{n_V}$$

\tilde{L} – kušanas siltums uz vienu atomu,
 k_B – Bolcmaņa konstante,
 T_0 – kušanas temperatūra,
 n_S – tuvāko kaimiņu skaits virsmas atomiem,
 n_V – tuvāko kaimiņu skaits tilpuma atomiem.

- $\alpha_J > 2$: atomāri plakana virsma; Si – tikai $\{111\}$ plakne
 $\alpha_J < 2$: atomāri raupja virsma



6.

Kristāla augšanas ātrums

Kristāla normālais augšanas ātrums

$$V_n = \beta \Delta T$$

β – kinētiskais koeficients,
 $\Delta T \equiv T_0 - T$ – pārdzesētība
(uz kristalizācijas frontes)

β ir atkarīgs no kristāla augšanas režīma:

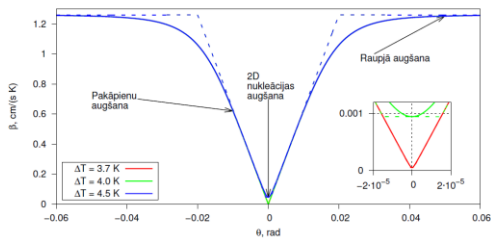
$$\beta = \beta(\Delta T, \theta)$$

θ – leņķis starp kristalizācijas fronti un fasetes plakni

Piemēri: raupjā augšana, pakāpienu augšana, 2D nukleācijas augšana, dislokāciju augšana.

7.

β atkarība no pārdzesētības un augšanas režīma



$$\beta(\theta, \Delta T) = \min(\beta_{rough}, \max(\beta_{2D}(\Delta T, \theta), \beta_{SM}(\theta)))$$

$$\beta_{DF}(\theta, \Delta T) = \left[\beta_{rough}^{-4} + \sqrt{\beta_{2D}^2(\Delta T, \theta) + \beta_{SM}^2(\theta)} \right]^{-1/4}$$

8.

Fāzu līdzsvara nosacījumi

Herringa vienādojums

$$\gamma_{sl}\vec{e}_{sl} + \gamma_{sv}\vec{e}_{sv} + \gamma_{lv}\vec{e}_{lv} + \gamma'_{sl}\vec{e}'_{sl} + \gamma'_{sv}\vec{e}'_{sv} + \gamma'_{lv}\vec{e}'_{lv} = \vec{0}$$

γ_{sl} – virsmas enerģija

Izotrops gadījums

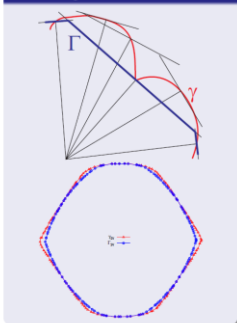
$$\frac{\gamma_{sv}}{\sin \theta_l} = \frac{\gamma_{sl}}{\sin \theta_v} = \frac{\gamma_{lv}}{\sin \theta_s} \text{ jeb}$$

$$\cos \alpha = \frac{\gamma_{sv}^2 + \gamma_{lv}^2 - \gamma_{sl}^2}{2\gamma_{sv}\gamma_{lv}}, \quad \cos \beta = \frac{\gamma_{sv}^2 + \gamma_{sl}^2 - \gamma_{lv}^2}{2\gamma_{sv}\gamma_{sl}}$$

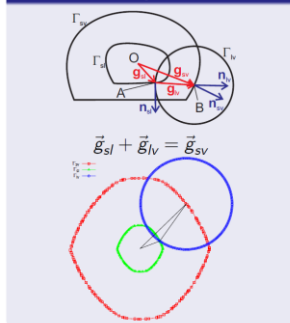
9.

Fāzu līdzsvara nosacījumi; anizotrops gadījums

Vulfa figūra



Vulfa konstrukcija



10.

Gibsa-Tomsona-Herringa vienādojums

Saistība starp virsmas liekumu κ un līdzsvara temperatūras izmaiņu ΔT :

$$\kappa \equiv \frac{1}{r} = \frac{L_V}{\gamma + \gamma''} \frac{\Delta T}{T_0}$$

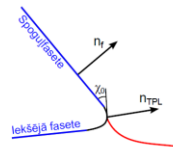
r – liekuma rādiuss;
 γ – virsmas enerģija;
 $\gamma'' \equiv \partial^2 \gamma / \partial \theta^2$;
 L_V – kušanas siltums uz tilpuma vienību

Singulārām orientācijām $\gamma'' \rightarrow \infty$, tāpēc $\kappa = 0$ – virsma ir plakana.

11.

Rezultāti: literatūras studijas

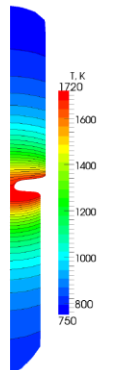
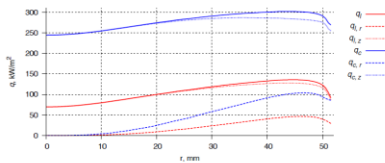
- Veiktas apjomīgas literatūras studija, apskatot fāzu līdzsvara mehānismus un mikroskopisko kristalizācijas procesa aprakstu.
- Līdzšinējie pētījumi nepietiekami detalizēti apskata mikroskopisko aspektu ietekmi uz rūpniecisko Si monokristālu ārējās virsmas formu.
- Analizējot literatūras datus, izteikta hipotēze, ka TPL tuvumā kristāla ārējā virsma ir pārklāta ar plānu šķidra Si kārtiņu.
- Tiek piedāvāts spoguļfāsešu veidošanās skaidrojums.



12.

Rezultāti: FZ procesa makroskopiskie aprēķini

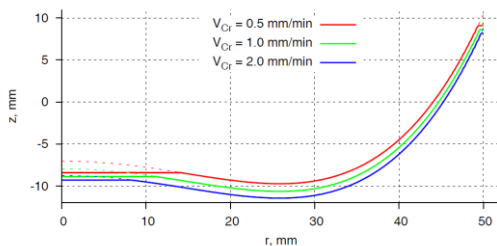
- Mikroskopisko aspektu izpausme ir būtiski atkarīga no procesa makroskopiskajiem parametriem.
- Vispirms tika veikti praktiski nozīmīga rūpnieciska Si audzēšanas procesa ar FZ metodi makroskopiskie aprēķini.



13.

Rezultāti: vienkāršotais modelis iekšējo fāsešu aprēķinam

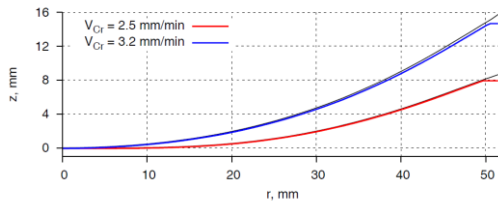
- Tika izveidots vienkāršots modelis kristalizācijas frontes aprēķinam, ar kuru izpētīta iekšējo fāsešu veidošanās.



14.

Rezultāti: vienkāršotā modeļa pielietojums FZ procesa aprēķiniem

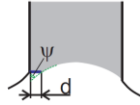
- Modelis pielietots rūpnieciskās Si kristālu augšanas ar FZ metodi aprēķinam:



15.

Rezultāti: tuvināti novērtējumi

- Tika veikti šķautņu izmēru novērtējumi rūpnieciskā Si monokristālu audzēšanas procesā, balstoties gan uz temperatūras gradientu, gan uz siltumstarojuma analīzi.



$V_{Cr}, \frac{\text{mm}}{\text{min}}$	$\frac{\partial T_l}{\partial n}, \frac{\text{K}}{\text{mm}}$	$\frac{\partial T_s}{\partial n}, \frac{\text{K}}{\text{mm}}$	$\psi, ^\circ$	$\Gamma, \frac{\text{K}}{\text{mm}}$	d, mm
2.5	1.9	13.4	71.4	4.7	2.6
3.2	1.3	12.7	55.4	4.1	1.7

Iegūtās vērtības atbilst eksperimentāliem novērojumiem.

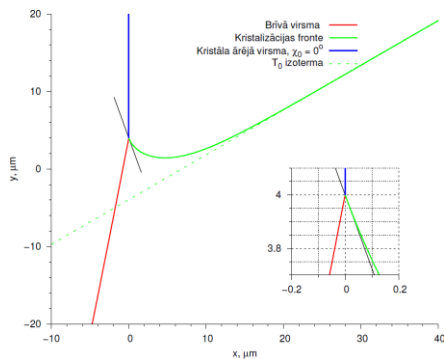
16.

Rezultāti: Mikroskopiskie fāzu robežvirsmu aprēķini TPL tuvumā

- Tika veikti mikroskopiskie fāzu robežvirsmu formas aprēķini TPL tuvumā. Apskatīts gan izotrop, gan anizotrop gadījums.
- Anizotropā gadījumā tika skaitliski iegūta iekšējās {111} fasetes veidošanās, noteiktais šķautnes izmērs atbilst eksperimentālajiem novērojumiem.

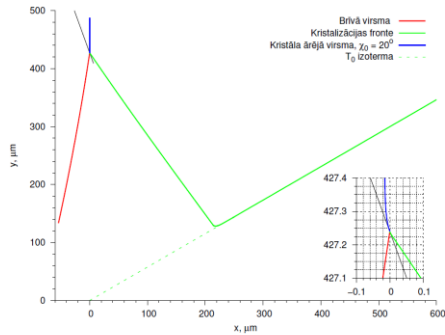
17.

Rezultāti: Mikroskopiskie fāzu robežvirsmu aprēķini TPL tuvumā; izotropis gadījums



18.

Rezultāti: Mikroskopiskie fāzu robežvirsmu aprēķini TPL tuvumā; anizotropus gadījumus



19.

Secinājumi

- 1 Darbā tika parādīta saikne starp Si kristālu augšanas procesu mikroskopiskajiem un makroskopiskajiem aspektiem. Makroskopiskie aprēķini veikti rūpnieciskiem FZ Si procesiem, iegūtie rezultāti izmantoti mikroskopisko aspektu aprēķinam un analīzei.

20.

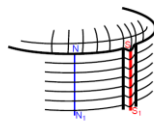
Secinājumi

- 1 Darbā tika parādīta saikne starp Si kristālu augšanas procesu mikroskopiskajiem un makroskopiskajiem aspektiem. Makroskopiskie aprēķini veikti rūpnieciskiem FZ Si procesiem, iegūtie rezultāti izmantoti mikroskopisko aspektu aprēķinam un analīzei.
- 2 Mikroskopiskajos fāzu robežvirsmu formas pie TPL skaitliskajos aprēķinos tika izpētīta fizikāli nozīmīga TPL tiešā apkārtnē, iegūti iekšējo fāžu un kristāla šķautņu izmēru novērtējumi.

21.

Secinājumi

- 1 Darbā tika parādīta saikne starp Si kristālu augšanas procesu mikroskopiskajiem un makroskopiskajiem aspektiem. Makroskopiskie aprēķini veikti rūpnieciskiem FZ Si procesiem, iegūtie rezultāti izmantoti mikroskopisko aspektu aprēķinam un analīzei.
- 2 Mikroskopiskajos fāzu robežvirsmu formas pie TPL skaitliskajos aprēķinos tika izpētīta fizikāli nozīmīga TPL tiešā apkārtnē, iegūti iekšējo fāžu un kristāla šķautņu izmēru novērtējumi.
- 3 Turpmākajās mikroskopisko aspektu studijās ir nepieciešams izpētīt iekšējo fāžu ietekmi uz TPL un brīvās virsmas trīsdimensionālo formu.



22.