

УДК 548

## ИССЛЕДОВАНИЕ КОНВЕКЦИИ МАРАНГОНИ ПРИ БЕСКОНТАКТНОМ РОСТЕ КРИСТАЛЛА В УСЛОВИЯХ МИКРОГРАВИТАЦИИ

© 2024 г. А. Э. Волошин<sup>a, b, c, \*</sup>, Е. Б. Руднева<sup>a</sup>, В. Л. Маноменова<sup>a</sup>,  
А. И. Простомолотов<sup>d</sup>, Н. А. Верезуб<sup>d</sup>

<sup>a</sup>Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова Курчатовского комплекса кристаллографии и фотоники  
НИЦ “Курчатовский институт”, Москва, 119333 Россия

<sup>b</sup>Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева, Москва, 125047 Россия

<sup>c</sup>Национальный исследовательский технологический университет “МИСИС”, Москва, 119049 Россия

<sup>d</sup>Институт проблем механики им. А.Ю. Ишлинского РАН, Москва, 119526 Россия

\*e-mail: voloshin@crys.ras.ru

Поступила в редакцию 22.07.2024 г.

После доработки 28.08.2024 г.

Принята к публикации 28.08.2024 г.

На примере монокристалла GaSb, легированного Te, выращенного в условиях микрогравитации, было изучено влияние размера свободной поверхности мениска расплава на скорость конвекции Марангони при бесконтактном росте кристалла.

**Ключевые слова:** конвекция Марангони, микрогравитация, рост из расплава, моделирование процесса роста, массоперенос, модель Бартона–Прима–Слихтера.

DOI: 10.31857/S1028096024120038, EDN: QXHVVWB

### ВВЕДЕНИЕ

Примеси, вхождение которых в кристалл определяется не только термодинамическими, но и кинетическими параметрами роста, отражают воздействие разных факторов на процесс роста. Одним из таких факторов является характер массопереноса в жидкой фазе. При росте кристаллов в невесомости, когда гравитационная конвекция подавлена, лидирующую роль начинает играть капиллярная конвекция (конвекция Марангони), обусловленная градиентом поверхностного натяжения на свободной поверхности жидкости [1].

Конвекция Марангони интенсивно исследуется различными авторами, однако, как правило, анализируются либо случай тонкого жидкого слоя с открытой поверхностью (например, [2]), либо движение жидкости на поверхности капли (например, [3]). Заметим, что аналитическое решение для тонкого слоя жидкости с открытой поверхностью было дано еще в классической монографии [4].

Ранее нами были опубликованы результаты исследований реальной структуры кристалла GaSb:Te, выращенного на борту автоматического космического аппарата методом охлаждения в градиенте температуры [5–7]. Внешние размеры ампулы составляли: диаметр 10 мм, длина 65 мм, размеры образца — диаметр 6 мм, длина 30 мм. Исходная концентрация Te в кристалле составляла  $5.6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . Рост проводился в направлении [111]В. Примерно половина кристалла выросла без контакта со стенками ампулы и обладала весьма высоким структурным совершенством [8]. В [9] методом количественной плосковолновой рентгеновской топографии [10, 11] была построена карта вариаций концентрации Te на поверхности продольного среза кристалла, которая продемонстрировала хорошее согласие с данными фотолюминесценции [12]. Это дает возможность количественного анализа влияния конвекции на захват примеси растущим кристаллом.

В [13] было показано, что на основе одномерных аналитических моделей, описывающих

сегрегацию примесей в кристалле в процессе роста возможно определить параметры ростового процесса, например, скорость роста и скорость конвекции, по данным о распределении примеси в кристалле. Известны стационарные решения в моделях Бартона–Прима–Слихтера (БПС) [14], Острогорского–Мюллера (ОМ) [15] и Garandet [16]. Полные решения даны в работах [13] (модели БПС и ОМ) и [17] (модель Garandet).

Точность моделей БПС, ОМ и Garandet исследовалась в [18, 19] в сопоставлении с результатами двумерного численного моделирования. Было показано, что погрешность всех моделей находится в интервале  $\pm 10\%$ , однако наиболее надежной и точной оказалась модель БПС, погрешность которой не превысила 5%. Таким образом, эти простые модели оказываются вполне пригодными для количественных оценок параметров роста кристалла, в том числе скорости конвекции, по данным о содержании примеси в кристалле.

При бесконтактном росте кристалла в ампуле свободной остается узкая полоса расплава вблизи фронта кристаллизации. В данной работе проводится анализ зависимости интенсивности конвекции Марангони от величины зазора между растущим кристаллом и стенкой ампулы в условиях микрогравитации. Результаты численного моделирования сопоставляются с экспериментальными данными при их обработке на основе аналитической зависимости в модели БПС.

## АНАЛИЗ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПРИМЕСИ В КРИСТАЛЛЕ

Некоторые свойства кристалла GaSb и его расплава приведены в табл. 1. Значения удельной свободной энергии поверхности раздела расплав–кристалл  $\sigma$  в литературе найти не удалось, и мы попытались оценить его, опираясь на известный факт, что для алмазоподобных полупроводников существует линейная зависимость величин  $\sigma$  и  $\sigma_s$  от среднего атомного номера соединения [34]. Используя значения  $\sigma = 340$  эрг/см для Si [35] и  $\sigma = 200$  эрг/см для Ge [36], методом экстраполяции мы определили для GaSb  $\sigma \approx 130$  эрг/см. При использовании значения  $k_{n0} = 0.37$  для примеси Te в кристалле GaSb получаем  $k_{f0} = 3.5$ , то есть  $k_{n0}/k_{f0} \approx 9.5$ .

На рис. 1 представлена карта вариаций концентрации Te, полученная методом плосковолновой рентгеновской топографии. Область А образована ростом круглого фронта, а область В — плоской гранью. Поскольку в области роста грани коэффициент захвата примеси отличается

от равновесного, количественный анализ проводился по области А с использованием данных [9].

В [19] показано, что одномерные аналитические модели адекватно описывают распределение примеси в кристалле, если значение ее концентрации в точке принимается равным усредненной по сечению концентрации вдоль соответствующего перпендикулярного среза кристалла. Для круглого фронта кристаллизации усреднение концентрации Te проводилось по области А (рис. 1). Результаты представлены на рис. 2.

При анализе исходная концентрация примеси в расплаве  $c_0$  принималась равной средней концентрации Te в затравке (нерасплавленной части исходного монокристаллического слитка). Пусть  $x$  — это координата в неподвижной системе координат, обозначающая расстояние от точки начала кристаллизации, и вычисляемая как

$$x = Rt + \xi \quad (1)$$

где  $R$  — нормальная скорость роста кристалла,  $t$  — время,  $\xi$  — координата в подвижной системе координат, связанной с фронтом кристаллизации, обозначающая расстояние от фронта кристаллизации.

На рис. 2 видно, что начальный участок роста кристалла (до  $x \approx 0.48$  см) хорошо описывается в рамках модели БПС:

$$k(x) = \frac{c_s(x)}{c_0} = k^* - (k^* - k_0)e^{-\alpha x}, \quad (2)$$

где

$$\alpha = \frac{R}{D} \frac{k_0}{k^*} \frac{1}{1 - (1 + \Delta)e^{-\Delta}}, \quad (3)$$

$$k^* = \frac{k_0}{k_0 + (1 - k_0)e^{-\Delta}}, \quad \Delta = \frac{R\delta}{D}, \quad (4)$$

$$\delta = \delta_v (D/v)^{1/2} = 4.6 (vL/V_\infty)^{1/2} (D/v)^n [37], \quad (5)$$

со следующими параметрами:

- начальная концентрация примеси в жидкой фазе  $c_0 = 5.6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ,
- концентрация примеси в кристалле в стационарном режиме  $c_s^* = 5.15 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ,
- эффективный коэффициент распределения примеси в стационарном режиме  $k^* = 0.92$ ,
- $R = 4.2 \times 10^{-4} \text{ см/с}$ ,
- скорость конвективного потока за пределами пограничного слоя  $V_\infty = 8.4 \times 10^{-3} \text{ см/с}$ .

Таблица 1. Свойства кристалла и расплава GaSb

Параметр	Обозна- чение	Значение	Ссылка
Температура плавления, °Х	$T_m$	712	[20]
Угол роста	$\varepsilon$	10°	[21]
		15°	[22]
		28°	[23]
Угол контакта расплава с поверхностью $\text{SiO}_2$ (кварц)	$\alpha_m$	121°	[24]
Угол контакта расплава с поверхностью С (графит)	$\alpha_c$	128°	[24]
Поверхностное натяжение на поверхности раздела расплав–газ при 725°C (эр/см)	$\sigma_m$	454	[25]
		453	[24]
		450	[23]
Удельная энергия поверхности раздела кристалл–газ для граней (111) (эр/см)	$\sigma_s$	910	[26]
Удельная энергия поверхности раздела расплав–кристалл (эр/см)	$\sigma$	~130	Оценено по среднему атомному номеру
Температурная зависимость $\sigma_m$ (эр/см · К)	$\partial\sigma_m/\partial T$	0.11 0.098±0.027	[25]
Плотность расплава (кг/м <sup>3</sup> ) при 712°C при 1000°C	$\rho$	$6.05 \times 10^3$ $5.87 \times 10^3$	[12]
Коэффициент диффузии Тe в кристалле при $T_m$ (см <sup>2</sup> /с)	$D_s$	$1.34 \times 10^{-9}$	Рассчитано по [27] <sup>1</sup>
Коэффициент диффузии Тe в расплаве при $T_m$ (см <sup>2</sup> /с)	$D_l$	$3 \times 10^{-5}$ $5 \times 10^{-5}$	[28] [29], [20]
Теплоемкость кристалла при 298 K (эр/г·К)	$C_{ps}$	$2.54 \times 10^6$	[20]
Теплоемкость расплава при $T_m$ (эр/г·К)	$C_{pl}$	$3.998 \times 10^6$	[30]
Коэффициент теплопроводности расплава при $T_m$ (эр/см·с·К)	$\chi_l$	$21.7 \times 10^5$	[31]
Коэффициент теплопроводности кристалла при $T_m$ (эр/см·с·К)	$\chi_s$	$7.81 \times 10^5$	[31]
Коэффициент температуропроводности расплава при $T_m$ (см <sup>2</sup> /с)	$\lambda_l$	$9 \times 10^{-2}$	—
Коэффициент температуропроводности кристалла при $T_m$ (см <sup>2</sup> /с)	$\lambda_s$	$5.5 \times 10^{-2}$	—
Кинематическая вязкость расплава при $T_m$ (см <sup>2</sup> /с)	$\nu$	$3.75 \times 10^{-3}$	[30]
Динамическая вязкость расплава при $T_m$ (г/см·с)	$\mu$	$2.261 \times 10^{-2}$	[30]
Объемный коэффициент температурного расширения расплава (К <sup>-1</sup> )	$\beta_T$	$9.6 \times 10^{-5}$	[32]
Кинетический коэффициент ступени на грани (111) (см/с·К)	$\beta$	18	[33]

<sup>1</sup> В [28] при вычислении диффузионных параметров Тe в кристалле GaSb (предэкспоненциального множителя  $D_0$  и энергии активации  $Q$ ) была допущена ошибка, которая затем была перенесена в книгу “Атомная диффузия в полупроводниках”, п/ред Д.Шоу. М.: Мир. 1975. 684 С. Правильные значения диффузионных параметров следующие:  $D_0 = 1.53 \times 10^{-2}$  см<sup>2</sup>/с,  $Q = 2.21 \times 10^{-12}$  эрг.

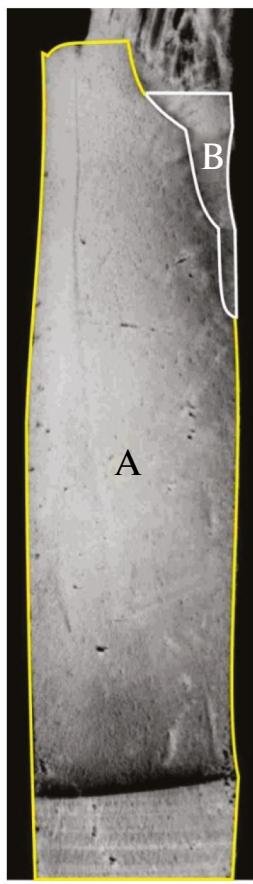


Рис. 1. Области кристаллизации окружного фронта (A) и грани (B).

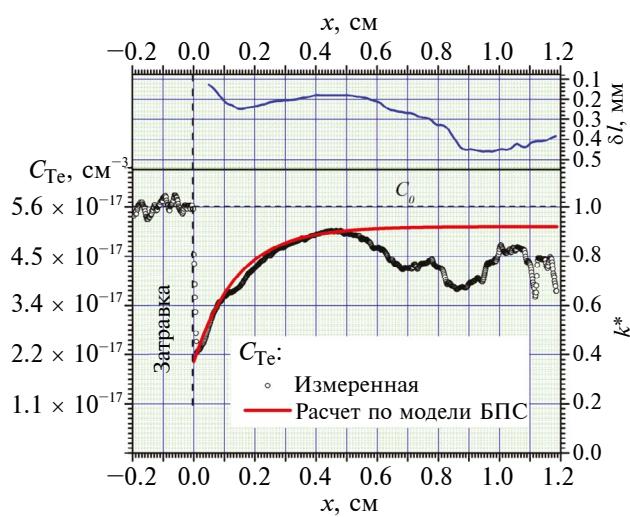


Рис. 2. Усредненное параллельно фронту кристаллизации распределение Тe в области роста окружного фронта и расчет по модели БПС. В верхней части рисунка приведен график изменения зазора  $\delta l$  между стенкой ампулы и левой стороной кристалла со сдвигом на 0.5 мм (пояснения см. в тексте).

Поскольку одномерные аналитические модели построены в предположении постоянства скоростей роста кристалла и конвективных потоков, то, строго говоря, они не могут быть применены для анализа участка кристалла при  $x > 0.48$  см, где наблюдаются значительные вариации эффективного коэффициента распределения примеси в стационарном режиме  $k^*$ . Однако, считая, что к данному моменту рост кристалла вышел на стационарный режим, а последующие изменения  $k^*$  происходили достаточно медленно, можно в первом приближении использовать стационарное решение в модели БПС для оценки изменения параметров процесса. Как уже указывалось, такое решение зависит от отношения скоростей конвекции и роста кристалла и не позволяет определить величины этих параметров одновременно. Поэтому для их оценки мы будем привлекать дополнительные соображения.

Уровень остаточной микрогравитации для различных космических аппаратов составляет величину  $\sim 10^{-5} - 10^{-4} g/g_0$  ( $g_0 = 980$  см/с), что в нашем случае должно вызывать конвекцию со скоростями порядка  $\sim 10^{-6} - 10^{-4}$  см/с [18]. Полученное нами значение скорости  $V = 8.4 \times 10^{-3}$  см/с минимум на полтора порядка больше, что заставляет предположить превосходящий вклад термокапиллярной конвекции (конвекции Марангони), обусловленной градиентом поверхностного натяжения расплава в условиях неоднородного теплового поля.

В условиях бесконтактного роста кристалла, когда его диаметр меньше внутреннего диаметра ростового контейнера, вблизи фронта кристаллизации образуется участок свободной поверхности расплава, называемый мениском (основная часть расплава находится в контакте со стенками контейнера). В процессе роста кристалла мениск движется вместе с фронтом кристаллизации. Такая модель была впервые предложена в [38, 39] и впоследствии обсуждалась в [40–42] (главным образом, в плане происхождения мениска).

Высота мениска (рис. 3) зависит от его формы, расстояния между кристаллом и стенкой контейнера  $\delta l$ , угла смачивания расплавом стенки контейнера  $\alpha_m$  и угла роста  $\varepsilon = \phi - \theta$  ( $\theta$  — угол между поверхностью фронта кристаллизации и боковой поверхностью кристалла,  $\phi$  — угол между поверхностью мениска и фронтом кристаллизации). Точка  $O$  — это точка пересечения трехфазной линии с плоскостью рисунка. Значения углов  $\alpha_m$  и  $\varepsilon$  вместе с другими параметрами для GaSb приведены в табл. 1.

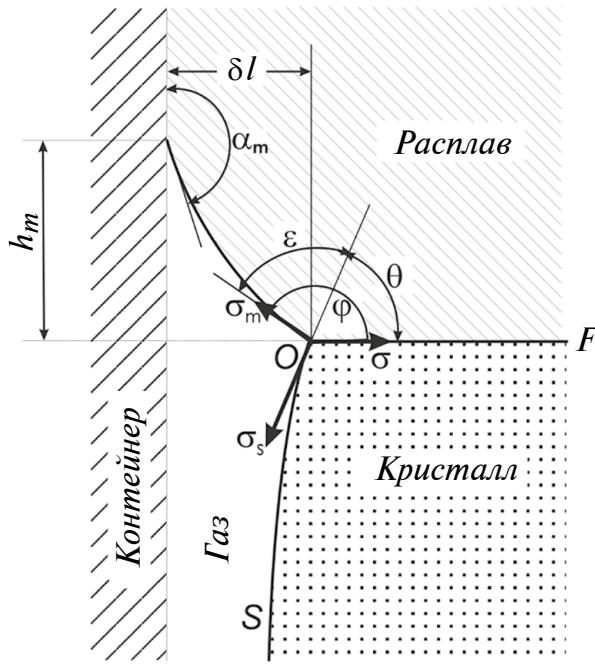


Рис. 3. Геометрия межфазных границ вблизи фронта кристаллизации при отсутствии контакта кристалла со стенками контейнера.

Аппроксимируя образующую поверхность мениска дугой окружности, высоту  $h_m$  мениска можно оценить по формуле:

$$h_m = \delta l \frac{\sin \alpha_m + \cos \varphi}{\cos \alpha_m + \sin \varphi}. \quad (6)$$

Для случая роста кристалла постоянного диаметра ( $\theta = 90^\circ$ ,  $\varphi = 90^\circ + \varepsilon$ ) имеем

$$h_m = \delta l \cdot \operatorname{tg} \frac{\alpha_m - \varepsilon}{2}. \quad (7)$$

Между левой стороной образца и стенкой ампулы имелся существенный зазор, размер которого менялся со временем. Сопоставление графиков (рис. 2) показывает, что между изменением величины зазора  $\delta l$  и концентрацией Тe в образце имеется достаточно отчетливая корреляция.

Распространение движения жидкости с поверхности расплава внутрь его объема связано с действием сил вязкого трения и развитие этого процесса требует времени  $\sim L^2/v$  ( $L$  — характерный размер). Соответственно, между изменением величины зазора и соответствующим изменением содержания Тe в образце в нашем случае (при  $L = 0.6$  см) должно пройти время  $\sim 100$  с, что при скорости роста  $R \approx 4-5 \times 10^{-4}$  см/с составит длину прироста кристалла  $\sim 0.4-0.5$  мм. График изменения  $\delta l$  (рис. 2) дан со сдвигом на 0.5 мм,

при котором на наш взгляд, обсуждаемые ниже особенности процесса проявляются наиболее отчетливо. Заметим, что обсуждаемая ниже картина сохраняет все принципиальные черты в довольно широком интервале смещений графика  $\delta l$  относительно начала координат — от 0.2 до 1.0 мм. При этом меняются (в пределах 30 %) лишь получаемые величины скоростей роста отдельных участков кристалла и соотношение между ними.

Итак, для точек при  $x > 0.48$  см применим формулу (4), из которой находим:

$$\Delta(x) = -\ln\left(\frac{k(1 - k^*(x))}{k^*(x)(1 - k)}\right), \quad \text{где } k^*(x) = \frac{c_{S(x)}}{c_0}, \quad (8)$$

где  $c_0 = 5.6 \times 10^{17}$  см<sup>-3</sup>. График зависимости  $\Delta(x)$  от  $\delta l$  представлен на рис. 4. Наиболее явная корреляция между вариациями концентрации примеси в кристалле и величиной  $\delta l$  наблюдается на участках  $0.48 < x < 0.7$  см и  $0.75 < x < 0.85$  см (рис. 2). Соответствующие этим участкам значения  $\Delta(x)$  показаны на рис. 4 черным цветом. Эти точки хорошо аппроксимируются зависимостью:

$$\Delta_0(x) = \delta(x) \frac{R_0}{D} = \frac{0,047}{\delta l(x)}, \quad (9)$$

где через  $\Delta_0$  обозначена величина параметра  $\Delta$  в модели БПС при постоянной скорости  $R = R_0$ . Будем полагать, что на этих участках вариации концентрации примеси обусловлены вариациями скорости конвективного потока, а скорость роста кристалла не меняется и равна  $R_0 = 4.2 \times 10^{-4}$  см/с.

Для тех участков кристалла, где вариации концентрации Тe не коррелируют с вариациями  $\delta l$  (рис. 2), значения  $\Delta(x)$  на рис. 4 представлены красным цветом. Поскольку  $\Delta(x)$  зависит только от  $R$  и  $V_\infty$ , а величину  $V_\infty$  мы связываем с величиной  $\delta l$ , можно полагать, что участки  $\Delta(x)$ , отклоняющиеся от зависимости (9), обусловлены вариациями скорости роста кристалла  $R$ .

С учетом (5) и (9) получаем

$$V_\infty(x) = (98R_0 \delta l(x))^2 \frac{L}{D}. \quad (10)$$

Поскольку из (9) вытекает, что  $\frac{\delta(x)}{D} = \frac{0,047}{R_0 \delta l(x)}$ , а

$$R(x) = \Delta(x) \frac{D}{\delta(x)}, \quad \text{то}$$

$$R(x) = 21\Delta(x)\delta l(x)R_0, \quad (11)$$

где  $R_0 = 4.2 \times 10^{-4}$  см/с,  $L = 0.6$  см.

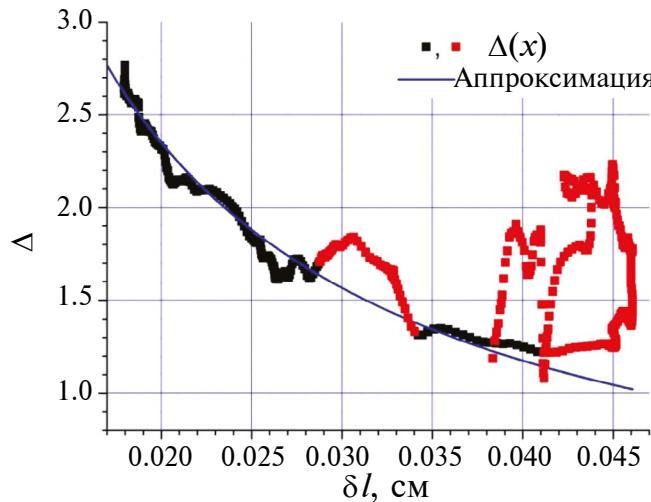


Рис. 4. Зависимость  $\Delta(x)$  от  $\delta l$ , рассчитанная по измеренным значениям  $C_{Te}$ , и ее аппроксимация по формуле (9).

### ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ЗАХВАТА ПРИМЕСИ КРИСТАЛЛОМ ПРИ НАЛИЧИИ КОНВЕКЦИИ В РАСПЛАВЕ

Для проверки найденных зависимостей было проведено 2D-моделирование движения расплава GaSb в условиях наличия его свободной поверхности вблизи фронта кристаллизации.

Рассматривалась модель конвективного тепломассопереноса в расплаве, предполагающая задание плоского движущегося фронта кристаллизации с учетом потока примеси из расплава в кристалл. Моделировалась кристаллизация с постоянной скоростью  $R = 3 \times 10^{-4}$  см/с плоского слоя расплава GaSb:Te высотой  $L$  и длиной  $H$ , находящегося в гравитационном поле  $g$  при  $T_0 = 985$  К (температура плавления) и различных величинах  $T_w = 996$ – $1057$  К (рис. 5), соответствующих различным температурным градиентам.

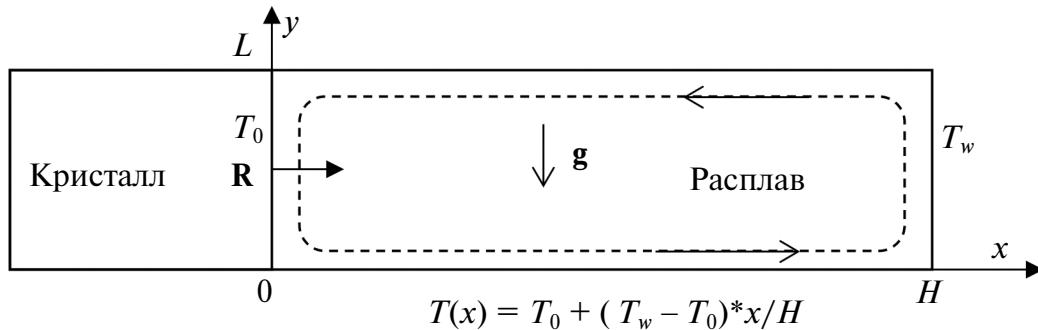


Рис. 5. Схема, иллюстрирующая модель для численного решения двумерной задачи конвективной диффузии.

Векторная форма уравнений Навье–Стокса–Буссинеска переноса тепла и примеси в расплаве записывается в системе координат, связанной с движущимся фронтом кристаллизации, и имеет следующий вид [43]:

$$\partial \mathbf{V} / \partial t + ((\mathbf{V} - \mathbf{R}) \nabla) \mathbf{V} = -1 / \rho \nabla P + \nu \Delta \mathbf{V} + \mathbf{g} \beta_T T, \quad (12)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{V} = 0, \quad (13)$$

$$\rho c_{pl} (\partial T / \partial t + ((\mathbf{V} - \mathbf{R}) \nabla) T) = \lambda \Delta T, \quad (14)$$

$$\partial c_L / \partial t + ((\mathbf{V} - \mathbf{R}) \nabla) c_L = D \Delta c_L. \quad (15)$$

В этой системе уравнений искомыми являются вектор скорости потока расплава  $\mathbf{V}$ , вектор скорости кристаллизации  $\mathbf{R} = (R, 0)$ , давление  $P$ , температура  $T$ , концентрация примеси  $c_L$ , которые зависят от пространственных координат и времени  $t$ .

Для уравнений (12) – (15) задавались следующие начальное и граничные условия:

на границах расплава  $V = 0$  и  $T$  задается в соответствии с рис. 5,  $(16)$

начальное распределение примеси:

$$c_L = c_0 \text{ при } t = 0, \quad (17)$$

на фронте кристаллизации ( $x = 0$ ):

$$D \nabla c_L = (1 - k) \mathbf{R} c_L, \quad (18)$$

на всех остальных границах:

$$\nabla c_L = 0. \quad (19)$$

Итерационно решалась двумерная задача (12) – (19) в прямоугольнике  $x = (0, H)$ ,  $y = (0, L)$ , в расчетах использовалась явная разностная схема 2-го порядка точности.

Расчеты для ячейки размерами  $L = 0.6$  см,  $H = 3.0$  см проводили при нулевом уровне гравитации, скорости роста кристалла  $R = 3 \times 10^{-4}$  см/с и осевом градиенте температуры  $G = 3.7$  К/см. Величину  $\delta l$  принимали равной 0.01, 0.02, 0.03 и 0.05 см, мениск моделировали двумя симмет-

рическими участками боковой поверхности расплава высотой  $h_m$  (рис. 6), которая определялась по формуле (7) при значениях углов  $\alpha_m = 121^\circ$ ,  $\varepsilon = 28^\circ$  (табл. 1).

Результаты расчетов представлены на рис. 7. Полученные данные неплохо аппроксимируются

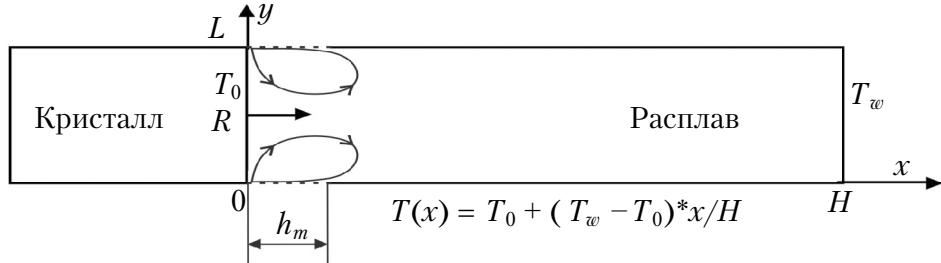


Рис. 6. Схема, иллюстрирующая модель для численного расчета скорости конвекции Марангони.

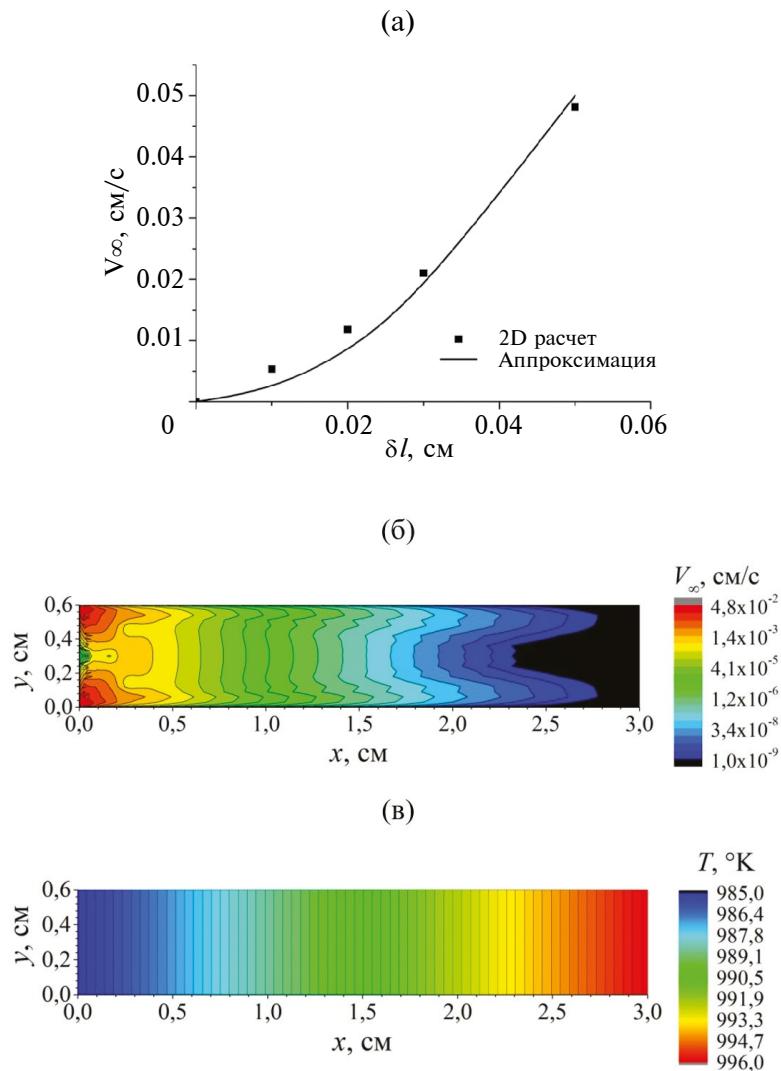


Рис. 7. Результаты 2D моделирования конвекции Марангони: а – зависимость максимальной скорости конвективного потока  $V_\infty$  от зазора  $\delta l$  между боковой поверхностью кристалла и стенкой контейнера; б – распределение скорости конвективного течения; в – распределение температуры при  $\delta l = 0.05$  см.

квадратичной зависимостью  $V_\infty(x) = 20\delta l(x)^2$  (рис. 7а). Подстановка параметров, при которых проводилось моделирование, в формулу (10) дает близкую зависимость  $V_\infty(x) = 17\delta l(x)^2$ .

Таким образом, проведенные выше оценки представляются вполне разумными, что позволяет использовать формулы (10) и (11) для расчётов  $V_\infty(x)$  и  $R(x)$ .

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ начального переходного режима роста кристалла в рамках модели БПС позволил определить параметры роста кристалла на начальном (до выхода на стационарный режим) участке роста кристалла:  $c_0 = 5.6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ,  $c_S^* = 5.15 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ,  $k^* = 0.92$ ,  $R = 4.2 \times 10^{-4} \text{ см/с}$ ,  $V_\infty = 8.4 \times 10^{-3} \text{ см/с}$ . Последующие вариации эффективного коэффициента распределения могли быть вызваны колебаниями как скорости роста кристалла, так и скорости конвективного потока. Поскольку стационарное решение не позволяет определить оба этих параметра одновременно, дальнейший анализ проводился в предположении об определяющем вкладе конвекции Марангони в скорость потока расплава. В рамках этой гипотезы скорость конвективного потока определяли по величине зазора между боковой поверхностью кристалла и стенкой ростового контейнера на основе эмпирической зависимости. Это позволило определить как величину  $V_\infty$ , которая достигала значения  $6.0 \times 10^{-2} \text{ см/с}$ , так и скорость роста кристалла  $R_n$  в области окружного фронта. Было установлено, что, начиная с некоторого момента,  $R_n$  стала возрастать (до значения  $\approx 8 \times 10^{-4} \text{ см/с}$ ), но не монотонно — области относительно плавного возрастания  $R_n$  прерывались короткими участками сравнительно резкого ее снижения.

С учетом изменения величины зазора между боковой поверхностью кристалла и стенкой кристаллизационного контейнера проведена оценка интенсивности конвекции Марангони, которая показала хорошее согласие с двумерными модельными расчетами, а также изменений во времени скоростей продвижения окружного фронта кристаллизации и грани.

## ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках выполнения государственного задания НИЦ “Курчатовский институт” и в части численного моделирования по теме государственного задания ИПМ РАН № 124013000674-0.

## КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Автор А.Э. Волошин является членом редколлегии журнала “Поверхность. Рентгеновские синхротронные и нейтронные исследования”.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Стрелов В.И., Куранова И.П., Захаров Б.Г., Волошин А.Э. // Кристаллография. 2014. Т. 59. С. 861. <https://doi.org/10.7868/S0023476114060289>
- Jiang H., Liao W., Chen E. // Symmetry. 2024. V. 16. P. 844. <https://doi.org/10.3390/sym16070844>
- Onoda K., Nanzai B. // Processes. 2024. V. 12(3). P. 609. <https://doi.org/10.3390/pr12030609>
- Левич В.Г. // Физико-химическая гидродинамика. Москва: Издательство Академии наук СССР. 1952. 538 с.
- Nishinaga T., He J., Nakamura T., Ge P., Huo C. // J. Cryst. Growth. 1997. V. 174. P. 96. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(96\)01084-6](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(96)01084-6)
- Nakamura T., Nishinaga T., Ge P., Huo C. // J. Cryst. Growth. 2000. V. 211. P. 441. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(99\)00786-1](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(99)00786-1)
- Ge P., Nishinaga T., Huo C., Xu Z., He J., Masaki M., Washyama M., Xie X., Xi R. // Microgravity Q. 1993. V. 3. P. 161.
- Voloshin A.E., Lomov A.A., Nishinaga T., Ge P., Huo C. // J. of Crystal Growth. 2002. V. 236. P. 501. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)02200-X](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(01)02200-X)
- Voloshin A.E., Nishinaga T., Ge P., Huo C. // J. Cryst. Growth. 2002. V. 234. P. 12. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)01621-9](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(01)01621-9)
- Волошин А.Э., смольский И.Л. // Кристаллография. 1993. Т. 38. С. 12.
- Voloshin A.E., Smolsky I.L. // Phys. St. Sol. (b). 1995. V. 192. P. 73. <https://doi.org/10.1002/pssb.2221920109>
- Полтавцев Ю.Г. // Структура полупроводниковых расплавов. Москва: Металлургия, 1984. 232 с.
- Волошин А.Э. // Кристаллография. 2013. Т. 58. № 6. С. 942. <https://doi.org/10.1134/S1063774513060254>
- Burton J.A., Prim R.C., Slichter W.P. // J. Chem. Phys. 1953. V. 21. N 11. P. 1987.
- Ostrogorsky A.G., Muller G. // J. Cryst. Growth. 1993. V. 128. P. 207. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(93\)90320-v](https://doi.org/10.1016/0022-0248(93)90320-v)
- Garandet J.P., Favier J.J., Camel D. // J. Cryst. Growth. 1993. V.130. P. 113. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(93\)90843-L](https://doi.org/10.1016/0022-0248(93)90843-L)
- Garandet J.P., Corre S., Kaddeche S., Albuissiere T. // J. Cryst. Growth. 2000. V. 209. P. 970. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(99\)00630-2](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(99)00630-2)

18. Prostomolotov A.I., Verezub N.A., Voloshin A.E. // *J. Cryst. Growth.* 2014. V.401. P. 111. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2014.02.029>
19. Voloshin A.E., Prostomolotov A.I., Verezub N.A. // *J. Cryst. Growth.* 2016. V. 45. P. 188. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2016.08.003>
20. Термодинамические Константы Веществ. База данных. Поиск по брутто-формуле. <http://www.chem.msu.su/cgi-bin/tkv.pl>.
21. Duffar T., Dusserre P., Abadie J. // *Adv. Space Res.* 1995. V. 167. P. 199. [https://doi.org/10.1016/0273-1177\(95\)00160-G](https://doi.org/10.1016/0273-1177(95)00160-G)
22. Harter I., Duffar T., Dussere P. // *Proc. 7th Eur. Symp. Mater. Fluid Sci. in Microgravity*, 1989 / Oxford, UK, ESA SP-295. 1990. P. 69.
23. Tegetmeier A., Croll A., Danilewsky A., Benz K.W. // *J. Cryst. Growth.* 1996. V. 166. P. 651-656. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(96\)00134-0](https://doi.org/10.1016/0022-0248(96)00134-0)
24. Harter I., Dussere P., Duffar T., Nabot J.P., Eustathopoulos N. // *J. Cryst. Growth.* 1993. V. 131. P. 157. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(93\)90409-P](https://doi.org/10.1016/0022-0248(93)90409-P)
25. Дащевский М.Я., Кукуладзе Г.В., Лазарев В.Б., Миргаловская М.С. // *Изв. АН СССР. Неорганические материалы*. 1967. Т. 3. С. 1561.
26. Cahn J.W., Hanneman R.E. // *Surf. Sci.* 1964. V. 1. N 4. P. 387. [https://doi.org/10.1016/0039-6028\(64\)90006-8](https://doi.org/10.1016/0039-6028(64)90006-8)
27. Болмакс Б.И., Гуторов Ю.А. // *ФТТ.* 1959. Т.1. В. 7. С.1015.
28. Müller G. Convection and inhomogeneities in crystal growth from the melt. // *Crystals, Properties, and Applications.* 1988. V. 12. Berlin: Springer. P. 1–136.
29. Raffy C., Duffar T. // Internal Report, CEA-Grenoble, France, SES No. 15/95, 1995.
30. Saghira M.Z., Chacha M., Islamb M.R. // *J. Cryst. Growth.* 2002. V. 234. N 2. P. 285. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(01\)01699-2](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(01)01699-2)
31. Магомедов Я.Б., Билалов А.Р. // *ФТТ.* 2000. Т. 35. Вып. 5. С. 521.
32. Boiton P., Giacometti N., Santailler J.L., Duffar T., Nabot J.P. // *J. Cryst. Growth.* 1998. V. 194. N 1. P. 43. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(98\)00617-4](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(98)00617-4)
33. Волошин А.Э. // *Кристаллография.* 2015. Т.60. С. 427. <https://doi.org/10.7868/S0023476115030248>
34. Горелик С.С., Дащевский М.Я. // *Материаловедение полупроводников и диэлектриков.* Москва: Металлургия, 1988. 576 с.
35. Aptea P.A., Zeng X. C. // *Appl. Phys. Lett.* 2008. V. 92. P. 221903-1. <https://doi.org/10.1063/1.2937444>
36. Turnball D.J., Cech R.E. // *J. Appl. Phys.* 1950. V. 21. P. 804. <https://doi.org/10.1063/1.1699763>
37. Rosenberger F., Muller G. // *J. Cryst. Growth.* 1983. V. 65. N 1. P. 91. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90043-X](https://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90043-X)
38. Бармин И.В., Земсков В.С., Раухман М.Р., Сенченков А.С., Егоров А.В., Антипов А.И., Агапова Е.А. // *Гидромеханика и тепломассообмен в невесомости.* М.: Наука, 1982. С. 209.
39. Земсков В.С., Раухман М.Р., Бармин И.В., Сенченков А.С., Шульпина И.Л., Сорокин Л.М. // *Физика и химия обработки материалов.* 1983. № 5. С. 56.
40. Wilcox W.R., Regel L.L. // *Microgravity Sci. Technol.* 1995. V. VIII/1. P. 56.
41. Duffar T., Paret-Harter I., Dussere P. // *J. Cryst. Growth.* 1990. V. 100. P. 171. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(90\)90620-Z](https://doi.org/10.1016/0022-0248(90)90620-Z)
42. Duffar T., Boiton P., Dussere P., Abadie J. // *J. Cryst. Growth.* 1997. V. 179. P. 397. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(97\)00178-4](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(97)00178-4)
43. Полежаев В.И., Бунэ А.В., Вerezub Н.А., Глушко Г.С., Грязнов В.Л., Дубовик К.Г., Никитин С.А., Простомолотов А.И., Федосеев А.И., Черкасов С.Г. // *Математическое моделирование конвективного тепломассообмена на основе уравнений Навье–Стокса.* Москва: Наука, 1987. 272 с.

## INVESTIGATION OF MARANGONI CONVECTION DURING CONTACTLESS CRYSTAL GROWTH IN MICROGRAVITY CONDITIONS

A. E. Voloshin<sup>1, 2, 3, \*</sup>, E. B. Rudneva<sup>1</sup>, V. L. Manomenova<sup>1</sup>, A. I. Prostomolotov<sup>4</sup>, N. A. Verezub<sup>4</sup>

<sup>1</sup>*Shubnikov Institute of Crystallography, Kurchatov Complex of Crystallography and Photonics,  
National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 119333, Russia*

<sup>2</sup>*Mendeleev Russian University of Chemical Technology, Moscow, 125047, Russia*

<sup>3</sup>*National University of Science and Technology “MISIS”, Moscow, 119049, Russia*

<sup>4</sup>*Ishlinsky Institute for Problems in Mechanics of Russian Academy of Sciences, Moscow 119526, Russia*

*\*e-mail: voloshin@crys.ras.ru*

The influence of melt meniscus length on the velocity caused by Marangoni convection during non-contact crystal growing has been studied by using Te-doped GaSb single crystal grown under microgravity conditions.

**Keywords:** Marangoni convection, microgravity, growth from melt, modeling of growth process, mass transfer, Barton–Prim–Slichter model.