

Numerische Simulation und Optimierung der
Züchtung von SiC-Einkristallen durch
Sublimation aus der Gasphase

Abschlussbericht des Forschungsvorhabens 03SPM3B5 im
Rahmen des BMBF-Förderprogramms

*Neue Mathematische Verfahren in Industrie und
Dienstleistungen*

Zuwendungsempfänger:

Forschungsverbund Berlin e. V.

Ausführende Stelle:

Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik (WIAS)
im Forschungsverbund Berlin e. V.,
Mohrenstr. 39, 10117 Berlin

Projektleiter:

Prof. Dr. Jürgen Sprekels

13. Juni 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Kurze Darstellung	2
1.1	Aufgabenstellung	2
1.2	Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde	3
1.3	Planung und Ablauf des Vorhabens	3
1.4	Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Beginn des Vorhabens	4
1.5	Zusammenarbeit mit anderen Stellen	6
2	Eingehende Darstellung	6
2.1	Ergebnisse des Vorhabens	6
2.1.1	Modellierung der Induktionsheizung: Korrekte Spannungsaufteilung auf die Spulenringe	6
2.1.2	Modellierung der Phasenübergänge und chemischen Reaktionen	10
2.1.3	Mathematische Untersuchung des Finite-Volumen-Verfahrens	11
2.1.4	Numerische Simulation zeitabhängiger Phänomene während des Wärmetransportes	14
2.1.5	Numerische Optimierung und Kontrolltheorie des Temperaturfeldes	20
2.2	Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse	21
2.3	Fortschritt bei anderen Stellen	25
2.4	Publikationen und Vorträge	25
2.4.1	Publikationen nach Nr. 6	25
2.4.2	Weitere schriftliche Publikationen	25
2.4.3	Poster	26
2.4.4	Konferenzvorträge	26
2.4.5	Öffentlicher Vortrag	27
2.4.6	Seminarvorträge	27
	Literatur	28

1 Kurze Darstellung

1.1 Aufgabenstellung

SiC-Substrate haben besondere physikalische Eigenschaften, die zu ihrer Anwendung in verschiedenen Bereichen der Halbleiterindustrie führen. So werden sie als Trägermaterial für blaue Lichtemitter (blaue Laser), in der UV-Sensorik und in der Leistungs-, Hochtemperatur- und Hochfrequenztechnik verwendet. Dies hat in den letzten Jahren zu einer starken Zunahme der Nachfrage nach derartigen Kristallen geführt, insbesondere nach SiC-Einkristallen mit größeren Durchmessern und verbesserter Qualität, d. h. geringerer Defektdichte. Da bislang die in Deutschland produzierten SiC-Kristalle zur Deckung des Bedarfs in diesem Marktsegment nicht ausreichen, ist die deutsche Industrie auf Einkäufe aus den USA, insbesondere von der Firma Cree angewiesen.

Um diese Abhängigkeit zu reduzieren, wird am Institut für Kristallzüchtung (IKZ) in Berlin-Adlershof nach Möglichkeiten gesucht, die Züchtung von SiC-Einkristallen mit der modifizierten Lely-Methode (MLM) zu verbessern. Bei dieser Methode wird SiC-Granulat bei niedrigen Drücken und hohen Temperaturen sublimiert, und an einem gekühlten Keim wächst ein Einkristall durch Anlagerung.

Da für die Sublimationszüchtung sehr hohe Temperaturen und niedrige Drücke notwendig sind, erfolgt sie unter Bedingungen, die nur eine sehr eingeschränkte Beobachtung der im Züchtungstiegel stattfindenden Prozesse zulassen. Die mathematische Modellierung und numerische Simulation dieser Prozesse ist somit eine notwendige Voraussetzung zur Verbesserung des Fertigungsprozesses.

Daraus ergibt sich die Aufgabenstellung des Forschungsvorhabens, am Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik (WIAS) in Berlin die Methode der Sublimationszüchtung in Fortsetzung der bestehenden engen Kooperation mit dem IKZ mathematisch zu modellieren und numerisch zu simulieren. Ziel ist dabei, die relevanten Züchtungsparameter (z. B. Tiegelgeometrie, Regelung der Leistung der Induktionsheizung und Argondruck) zu optimieren, damit die gezüchteten Kristalle den Anforderungen der Anwendungen entsprechen. Mit den so gewonnenen Erkenntnissen soll das IKZ bei der Verbesserung des Fertigungsprozesses unterstützt werden, mit dem weiteren Ziel, dass in Deutschland ansässige Hersteller von SiC-Substraten (wie die Firma SiCrystal in Erlangen) in die Lage versetzt werden, größere und qualitativ bessere Kristalle zu erzeugen sowie die Kosten des Herstellungsprozesses herabzusetzen.

Die physikalisch-mathematische Modellierung des Züchtungsprozesses ist ex-

trem komplex und führt auf ein hoch-nichtlineares System partieller Differentialgleichungen: Neben der Kinetik eines heißen dünnen Gasgemisches sind Energietransport durch Wärmeleitung und Strahlung, reaktiver Stofftransport durch poröse und granulare Medien sowie verschiedene chemische Reaktionen und Phasenumwandlungen zu berücksichtigen. Man hat daher ein gekoppeltes System zu lösen, in dem neben nichtlinearen und nichtlokalen Wärmetransportgleichungen und den Euler-Gleichungen nichtlineare (z. T. degenerierte) Reaktions-Diffusionsgleichungen und mehrere freie Ränder auftreten. Hinzu kommen eine komplexe Geometrie und verschiedene Skalen in Zeit und Raum; ferner sind auf Grund der physikalischen Gegebenheiten große Temperatur- und Konzentrationsgradienten in dünnen Grenzschichten zu erwarten.

Insgesamt ist also ein aus analytisch-numerischer Sicht äußerst anspruchsvolles System zu behandeln, welches erfordert, in mehreren Schritten der Modellierungsgenauigkeit voranzuschreiten, die jeweils in enger Kooperation mit dem IKZ verifiziert werden müssen.

1.2 Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Bei der Durchführung des Projektes konnte auf Resultate aufgebaut werden, die von der Projektgruppe des Antragstellers am WIAS während der vorhergehenden Arbeiten im Rahmen des Projektes „Optimale Steuerung der Sublimations-Züchtung von SiC-Kristallen“ (Nummer 03-SP7FV1) des BMBF-Förderprogramms *Mathematische Verfahren zur Lösung von Problemstellungen in Industrie und Wirtschaft* erzielt wurden.

Eine weitere wesentliche Voraussetzung zur erfolgreichen Bearbeitung des Projektes war durch die Möglichkeit einer engen Kooperation mit dem IKZ gegeben. Die am IKZ betriebene Sublimationszüchtung von SiC-Kristallen ermöglichte die für das Projekt notwendige experimentelle Verifikation der zu entwickelnden mathematischen Modelle und Simulationssoftware.

1.3 Planung und Ablauf des Vorhabens

Die Planung des Vorhabens sah drei große Teilbereiche vor, die auf Grund ihrer gegenseitigen Abhängigkeiten parallel vorangetrieben werden mussten: (1) Physikalische Modellierung, (2) Numerik und Software-Entwicklung, (3) Mathematische Untersuchungen. Basierend auf den Vorarbeiten wurde für den Projektantrag unter Einbeziehung des Kooperationspartners IKZ eine grobe Zeitplanung durchgeführt.

Im Bereich der Modellierung ging es darum, das vorhandene zeitabhängige Modell des Züchtungsverfahrens weiter zu verfeinern und insbesondere das Verständnis der auftretenden Phasenübergänge und chemischen Reaktionen weiter voranzutreiben.

Im Bereich Numerik und Software-Entwicklung sollte die numerische Implementation fortlaufend an den Fortschritt der Modellierung angepasst werden. Gleichzeitig sollte die entwickelte Software **WIAS High Temperature Numerical Induction Heating Simulator** (*WIAS-HiTNIHS*) in enger Kooperation mit dem IKZ auf ihre Tauglichkeit hin sowohl durch Simulationsrechnungen als auch durch Experimente überprüft werden. Dazu wurde *WIAS-HiTNIHS* in einer ersten Version am IKZ installiert und in Spezialfällen wurden Vergleichsrechnungen mit kommerzieller Software durchgeführt. Erfahrungen am IKZ und bei SiCrystal, Erlangen, mit kommerzieller als auch mit prototypischer Software zeigen, dass eine nutzerfreundliche Bedienung für den Einsatz in der Praxis unerlässlich ist. Es wurde daher in Absprache mit den Anwendern begonnen, eine graphische Oberfläche (GUI) für *WIAS-HiTNIHS* zu entwickeln sowie der zunächst prototypisch entwickelten Software eine größere Flexibilität zu geben, vor allem was die Geometrie- und Materialverwaltung betrifft.

Die mathematischen Untersuchungen konzentrierten sich auf die Analysis des Modells für die nichtlineare Wärmeleitung mit Strahlung und insbesondere auf Fragen der Lösbarkeit des aus dem benutzten Finite-Volumen-Verfahren resultierenden diskreten Systems. Zum Ende der Projektlaufzeit wurden außerdem kontrolltheoretische Fragen bezüglich der kontinuierlichen Gleichungen betrachtet.

Während der gesamten Projektlaufzeit wurden wiederholt Literaturrecherchen auf der Grundlage der Datenbanken INSPEC/Physics und MATHSCI durchgeführt, um stets den Überblick über für das Projekt relevante an anderen Stellen durchgeführte Forschung zu behalten.

1.4 Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Beginn des Vorhabens

Die modifizierte Lely-Methode hat sich bei vielen Herstellern als das bevorzugte Züchtungsverfahren zur Erzeugung großer SiC-Einkristalle erwiesen. Als allgemeine Übersichtsartikel seien [Kon95, Nis95] genannt. Für eine Übersicht zum Stand der Modellierung und Simulation zu Beginn des Vorhabens siehe [Råb96, PAC⁺99]. Die Arbeiten [GHTC97, CVR⁺99] berichten über die Züchtung von SiC-Einkristallen bei der US-Firma Cree. Eigene Vorarbeiten des Antragstellers finden sich in [BKP⁺99, KPSW01b].

Bei der modifizierten Lely-Methode wird ein Graphittiegel per Induktionsheizung auf Temperaturen bis zu 3000 K erhitzt. Im Innern des Tiegels befindet sich unter einer Argongasatmosphäre (Inertgas) bei niedrigem Druck ein Reaktor mit polykristallinem SiC-Pulver, welches in Folge der hohen Temperaturen und des niedrigen Druckes sublimiert. Somit entsteht in der Reaktionskammer ein Gasgemisch bestehend aus Spezies wie z. B. Si, Si₂C und SiC₂. Zusammen mit dem Inertgas sind dies die vorherrschenden Gasvarianten. Der SiC-Einkristall wächst nun ausgehend von einem gekühlten Keim in die Züchtungskammer (s. Abb. 1).

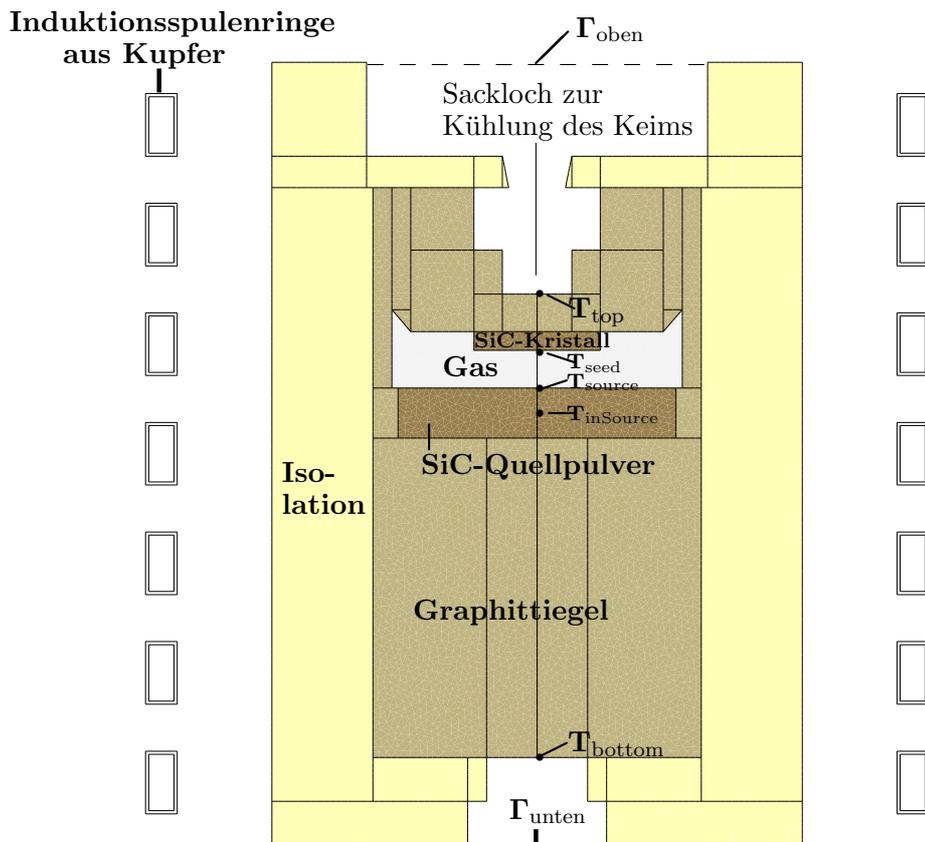


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Züchtungsapparatur gemäß [PAC⁺99, Fig. 2].

Zum Stand der mathematischen Lösungstheorie für das verwendete Modell der nichtlinearen Wärmeleitung mit Strahlung siehe [Tii97a, Tii97b, Tii98]; einen umfassenden Überblick zum Stand der mathematischen Theorie der Finiten-Volumen-Methode vermittelt [EGH00].

1.5 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Wie im Abschnitt 1.3 ausgeführt, erfolgte die Bearbeitung des Vorhabens in enger Zusammenarbeit mit dem IKZ. Die Fortschritte und das weitere Vorgehen wurden in regelmäßigen Treffen ca. einmal vierteljährlich besprochen. Besonders was die Anforderungen eines zukünftig geplanten Einsatzes der Software *WIAS-HiTNIHS* in der industriellen Praxis betrifft, erfolgte eine Abstimmung mit der Firma SiCrystal AG, Erlangen.

Da die im Rahmen des Vorhabens entwickelte Software modular auf dem Programmpaket *pdelib* aufbaut, und sich sowohl aus den Spezifikationen der *pdelib* Anforderungen an die Projektsoftware ergaben wie auch umgekehrt, erfolgte die Implementation in Zusammenarbeit und regelmäßiger Absprache mit den *pdelib*- und *PARDISO*-Entwicklern Dr. Fuhrmann, Dr. Langmach und Dr. Gärtner am WIAS-Berlin.

Die mathematischen und numerischen Untersuchungen der kontrolltheoretischen Aspekte des Problems erfolgten in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Tröltzsch am Fachbereich Mathematik der TU-Berlin.

2 Eingehende Darstellung

2.1 Ergebnisse des Vorhabens

2.1.1 Modellierung der Induktionsheizung: Korrekte Spannungsaufteilung auf die Spulenringe

Im Rahmen des Vorhabens wurde ein Induktionsheizungsmodell entwickelt, um für eine zylindersymmetrische Geometrie unter der Annahme eines sinusförmigen Wechselstromes, die Wärmequellen in der Apparatur in Abhängigkeit von eingespeistem Strom, Spannung oder Leistung zu bestimmen. Die Benutzung einer zylindersymmetrischen Geometrie bedeutet, dass die Heizungsspule durch N zylindrische Ringe ersetzt wird. Es wurde ein neues Verfahren entwickelt, das sicherstellt, dass in jedem Spulenring der gleiche Gesamtstrom fließt. Dies ist wichtig, da die Ringe ja eine zusammenhängende dreidimensionale Spule repräsentieren sollen. Das folgende Modell wurde in [KP02a] veröffentlicht.

Unter der Annahme, dass die Größe Q eine zylindersymmetrische räumliche und eine sinusförmige zeitliche Abhängigkeit aufweist, lässt sie sich in folgender Form schreiben:

$$Q(r, z, t) = Q_0(r, z) \sin(\omega t + \phi(r, z)) = \text{Im}(e^{i\omega t} \mathbf{Q}(r, z)), \quad (1)$$

wobei (r, z) Zylinderkoordinaten sind, und t die Zeit, ω die Kreisfrequenz, ϕ die Phasenverschiebung und \mathbf{Q} die komplexe Darstellung von Q bezeichnet. Im Rest des Abschnittes bezeichnen fettgedruckte Symbole immer komplexe Darstellungen.

Die Leistungsdichte pro Volumen der Wärmequellen lässt sich aus der Stromdichte \mathbf{j} berechnen:

$$\mu(r, z) = \frac{|\mathbf{j}(r, z)|^2}{2\sigma(r, z)}, \quad (2)$$

wobei σ die elektrische Leitfähigkeit bezeichnet.

Sind die Spannungen \mathbf{v}_k , $k = 1, \dots, N$, in den Spulenringen gegeben, so gibt es nach [CRS94, RS96] ein komplexwertiges magnetisches Skalarpotential ϕ so, dass (s. [RS96, Eq. (28)])

$$\mathbf{j} = \begin{cases} -i\omega\sigma\phi + \frac{\sigma\mathbf{v}_k}{2\pi r} & \text{in jedem Ring,} \\ -i\omega\sigma\phi & \text{in allen anderen Leitern.} \end{cases} \quad (3)$$

Das Potential ϕ ist bestimmt durch das System elliptischer partieller Differentialgleichungen [RS96, (22), (29), und (30)] mit den Randbedingungen $\phi = 0$ auf der Symmetrieachse $r = 0$ und [RS96, Eq. (19)] im Unendlichen. Die numerischen Rechnungen in [KP03b] zeigen, dass es für unsere Zwecke genügt, [RS96, Eq. (19)] durch die einfachere Randbedingung $\phi = 0$ in genügend großer Entfernung von den Spulenringen zu ersetzen.

Das vollständige System für ϕ ist somit durch die folgenden Gleichungen (4) gegeben, wobei wir [RS96, (22), (29), (30)] und $\phi = 0$ durch Einführen der Größe $\psi := r \cdot \phi$ umformulieren, was sich als günstig für die von uns verwendete Finite-Volumen-Diskretisierung erwiesen hat:

$$-\nu \operatorname{div} \frac{\nabla \psi}{r^2} = 0 \quad \text{in Nichtleitern,} \quad (4a)$$

$$-\nu \operatorname{div} \frac{\nabla \psi}{r^2} + \frac{i\omega\sigma\psi}{r^2} = \frac{\sigma\mathbf{v}_k}{2\pi r^2} \quad \text{im } k\text{-ten Spulenring,} \quad (4b)$$

$$-\nu \operatorname{div} \frac{\nabla \psi}{r^2} + \frac{i\omega\sigma\psi}{r^2} = 0 \quad \text{in anderen Leitern,} \quad (4c)$$

mit den Übergangsbedingungen

$$\left(\frac{\nu \upharpoonright_{\text{Material}_1}}{r^2} \nabla \psi \upharpoonright_{\text{Material}_1} \right) \bullet \vec{n}_{\text{Material}_1} = \left(\frac{\nu \upharpoonright_{\text{Material}_2}}{r^2} \nabla \psi \upharpoonright_{\text{Material}_2} \right) \bullet \vec{n}_{\text{Material}_1} \quad (4d)$$

auf Übergängen zwischen Material_1 und Material_2 , sowie mit der äußeren Randbedingung

$$\psi \upharpoonright_{\text{Außenrand}} = 0. \quad (4e)$$

ν bezeichnet dabei den Kehrwert der magnetischen Permeabilität, \uparrow bezeichnet die Einschränkung auf das entsprechende Material, und $\vec{n}_{\text{Material}_1}$ bezeichnet den äußeren Normalenvektor an das Material₁.

Die Übergangsbedingung (4d) gilt unter der Voraussetzung verschwindender Oberflächenströme. Weiterhin wird angenommen, dass ϕ (und daher auch ψ) im gesamten Gebiet stetig sind.

Ist ψ Lösung des Systems (4), so berechnet sich der zugehörige Gesamtstrom im k -ten Spulenring aus

$$\mathbf{j}_k(\mathbf{v}_k, \psi) = \frac{\mathbf{v}_k}{2\pi} \int_{\Omega_k} \frac{\sigma}{r} \text{d}r \text{d}z - i\omega \int_{\Omega_k} \frac{\sigma\psi}{r} \text{d}r \text{d}z, \quad (5)$$

wobei Ω_k das zweidimensionale Gebiet bezeichnet, das zum k -ten Spulenring gehört. Man kann nun ein gemeinsames Bestimmungssystem für ψ und \mathbf{v}_k aufschreiben, indem man (7) bzw. (9) mit (4) kombiniert, und zwar in Abhängigkeit davon, ob der Gesamtstrom oder die Gesamtspannung vorgegeben werden soll. Eine Skalierung der Lösung von (4) und (9) erlaubt es dann auch die Gesamtleistung vorzugeben.

Vorgabe des Gesamtstromes: Der Gesamtstrom in jedem Ring muss mit dem vorgegebenen Gesamtstrom

$$j(t) = \text{Im}(e^{i\omega t} J) \quad (6)$$

übereinstimmen. Somit müssen ψ und die \mathbf{v}_k das folgende Gleichungssystem erfüllen:

$$J = \mathbf{j}_k(\mathbf{v}_k, \psi), \quad k \in \{1, \dots, N\}. \quad (7)$$

Vorgabe der Gesamtspannung: Soll die Gesamtspannung

$$v(t) = \text{Im}(e^{i\omega t} V) \quad (8)$$

vorgegeben werden, so muss für ψ und die \mathbf{v}_k gelten:

$$\mathbf{j}_k(\mathbf{v}_k, \psi) = \mathbf{j}_{k+1}(\mathbf{v}_{k+1}, \psi), \quad k \in \{1, \dots, N-1\}, \quad (9a)$$

$$V = \sum_{k=1}^N \mathbf{v}_k, \quad (9b)$$

d. h., der Gesamtstrom ist in jedem Ring gleich (Gl. (9a)) und die Gesamtspannung ist die Summe der Ringspannungen (Gl. (9b)). Es sei angemerkt, dass man, anstatt (4) und (9) zu lösen, auch (4) und (7) für einen Referenzstrom lösen und dann die gefundene Lösung so skalieren kann, dass sie zur gewünschten vorgegebenen Spannung passt.

Vorgabe der Gesamtleistung. Es bezeichne $(\psi^{(1)}, \mathbf{v}_1^{(1)}, \dots, \mathbf{v}_N^{(1)})$ eine Lösung von (4) und (9). Dann ist für jedes $\lambda \in \mathbb{R}$, $(\lambda\psi^{(1)}, \lambda\mathbf{v}_1^{(1)}, \dots, \lambda\mathbf{v}_N^{(1)})$ eine Lösung von (4) und (9), wobei V durch λV ersetzt wurde. Diese skalierte Lösung gehört zur Gesamtleistung

$$P^{(\lambda)} = \frac{\lambda^2 V^2 \operatorname{Re} \left(\mathbf{j}_1(\mathbf{v}_1^{(1)}, \psi^{(1)}) \right)}{2}. \quad (10)$$

Um eine vorgegebene Gesamtleistung P zu erhalten, setze man also

$$\lambda := \frac{1}{V} \sqrt{\frac{2P}{\operatorname{Re} \left(\mathbf{j}_1(\mathbf{v}_1^{(1)}, \psi^{(1)}) \right)}}. \quad (11)$$

Eine zur numerischen Lösung günstige Zerlegung

Da das System (4) linear ist, lässt sich (4) plus entweder (7) oder (9) in $N + 1$ (numerisch) einfachere Probleme zerlegen: N Referenzprobleme von der Form (4) und ein weiteres Problem entweder von der Form (7) oder von der Form (9).

Dazu wähle man eine beliebige Referenzspannung $V_{\text{ref}} \neq 0$. Das l -te Referenzproblem $P_{l,\text{ref}}$ besteht dann aus (4) mit

$$\mathbf{v}_k = \mathbf{v}_{l,k,\text{ref}} := \begin{cases} V_{\text{ref}} & \text{für } k = l, \\ 0 & \text{für } k \neq l. \end{cases} \quad (12)$$

Wir bemerken, dass die Matrix M des diskreten linearen Problems, welches sich für eine feste Diskretisierung im Ort ergibt, für jedes $P_{l,\text{ref}}$ identisch ist. Somit muss die numerisch aufwendige Invertierung von M ($\operatorname{rang}(M) > 10\,000$ ist in typischen Anwendungen nicht ungewöhnlich) nur einmal durchgeführt werden.

Sei nun $\psi_{l,\text{ref}}$ die Lösung von $P_{l,\text{ref}}$ und

$$\mathbf{j}_{l,k,\text{ref}} := \mathbf{j}_k(\mathbf{v}_{l,k,\text{ref}}, \psi_{l,\text{ref}}) = \begin{cases} \frac{V_{\text{ref}}}{2\pi} \int_{\Omega_k} \frac{\sigma}{r} \operatorname{d}rdz - i\omega \int_{\Omega_k} \frac{\sigma\psi_{l,\text{ref}}}{r} \operatorname{d}rdz & \text{für } k = l, \\ -i\omega \int_{\Omega_k} \frac{\sigma\psi_{l,\text{ref}}}{r} \operatorname{d}rdz & \text{für } k \neq l. \end{cases} \quad (13)$$

Dann ist für beliebige komplexe Zahlen \mathbf{c}_l die Funktion

$$\psi := \sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot \psi_{l,\text{ref}} \quad (14)$$

eine Lösung von (4) mit $\mathbf{v}_k = \mathbf{c}_k V_{\text{ref}}$, und der zugehörige Gesamtstrom im k -ten Ring ist durch

$$\mathbf{j}_k(\mathbf{c}_k V_{\text{ref}}, \psi) = \sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot \mathbf{j}_{l,k,\text{ref}}. \quad (15)$$

gegeben. Es verbleibt, die Zahlen \mathbf{c}_l so zu bestimmen, dass $(\psi, \mathbf{v}_1, \dots, \mathbf{v}_N)$ eine Lösung von (7) bzw. von (9) ist.

Vorgabe des Gesamtstromes: Das lineare Gleichungssystem für die \mathbf{c}_l lautet:

$$J = \sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot \mathbf{j}_{l,k,\text{ref}}, \quad k \in \{1, \dots, N\}. \quad (16)$$

Vorgabe der Gesamtspannung: Das lineare Gleichungssystem für die \mathbf{c}_l lautet:

$$\sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot \mathbf{j}_{l,k,\text{ref}} = \sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot \mathbf{j}_{l,k+1,\text{ref}}, \quad k \in \{1, \dots, N-1\}, \quad (17a)$$

$$V = \sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l \cdot V_{\text{ref}}. \quad (17b)$$

Vorgabe der Gesamtleistung: Sei $\mathbf{c}_1^{(1)}, \dots, \mathbf{c}_N^{(1)}$ die Lösung von (17) mit $V = V_{\text{ref}}$. Um die Gesamtleistung P zu erhalten, skaliere man mit

$$\lambda := \frac{1}{V_{\text{ref}}} \sqrt{\frac{2P}{\text{Re} \left(\sum_{l=1}^N \mathbf{c}_l^{(1)} \cdot \mathbf{j}_{l,1,\text{ref}} \right)}}. \quad (18)$$

2.1.2 Modellierung der Phasenübergänge und chemischen Reaktionen

Die Modellierung der Phasenübergänge und chemischen Reaktionen ist von wesentlichem Interesse, um die Wachstumsrate des Kristalls, die Sublimationsrate des Quellpulvers und die Veränderungen der Tiegelwände quantitativ bestimmen zu können. Als eine erste Näherung kann man annehmen, dass der Partialdruck $p_{\text{SiC-Gas}}$ des SiC-Gases auf der Kristalloberfläche mit dem entsprechenden Gleichgewichtsdruck $p_{\text{Kristall}}^{\text{gl}}$ übereinstimmt und entsprechend auf der Oberfläche des SiC-Quellpulvers. Man beachte, dass diese Annahmen bedeuten, dass das Wachstum durch den Massentransport durch die Gasphase bestimmt ist, und der Einfluss der Wachstumskinetik vernachlässigt wird.

Um den Einfluss der Wachstumskinetik zu berücksichtigen, kann man den Massenfluss zwischen Gas und Kristall aus der Hertz-Knudsen-Formel bestimmen:

$$j_{\text{Gas} \rightarrow \text{Kristall}} = \frac{s_{\text{Kristall}} M_{\text{SiC}}^{1/2}}{(2\pi RT)^{1/2}} \left(p_{\text{SiC-Gas}} - p_{\text{Kristall}}^{\text{gl}} \right). \quad (19)$$

Dabei ist $s_{\text{Kristall}} \in [0, 1]$ ein Anlagerungskoeffizient. Er gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, dass ein Molekül, das auf die Oberfläche trifft, sich an dieser anlagert. Weiterhin bezeichnet M_{SiC} die molare Masse von SiC (in kg/kmol) und R ist die universelle Gaskonstante. Eine entsprechende Formel gilt auf der Pulveroberfläche, wobei dort ein effektiver Anlagerungskoeffizient zu benutzen ist, der berücksichtigt, dass die Oberfläche zerklüftet und porös ist.

Soll das Modell in der Lage sein, die beobachtete Graphitisierung des Quellpulvers zu beschreiben, so wird es notwendig, die Bestandteile des „SiC-Gases“ zu betrachten, d. h. Si, SiC₂, Si₂C, Si₂, SiC, etc. Anstelle einer einfachen Sublimation hat man es mit einer Mannigfaltigkeit von chemischen Reaktionen zu tun, die an der Oberfläche ablaufen. Man hat dann keine Gleichgewichtsdrücke für die verschiedenen Spezies mehr, sondern nur noch Beziehungen zwischen den verschiedenen Partialdrücken im Gleichgewicht, die sich aus dem Massenwirkungsgesetz der beteiligten Reaktionen ergeben. Zum Beispiel ergibt sich für die Reaktionen



an denen festes SiC und verschiedene Gasspezies beteiligt sind, dass temperaturabhängige Funktionen K_{I} , K_{II} und K_{III} so existieren, dass für die Partialdrücke in der Gasmischung, die mit dem SiC-Kristall im Gleichgewicht steht, gilt:

$$p_{\text{Si}} p_{\text{SiC}_2} = K_{\text{I}}(T), \quad \frac{p_{\text{Si}_2\text{C}}}{p_{\text{Si}}} = K_{\text{II}}(T), \quad \frac{p_{\text{Si}_2\text{C}} p_{\text{Si}}}{p_{\text{Si}_2}} = K_{\text{III}}(T).$$

2.1.3 Mathematische Untersuchung des Finite-Volumen-Verfahrens

Bevor wir im folgenden Abschnitt 2.1.4 Ergebnisse numerischer Simulationen der Temperaturfeldentwicklung im Züchtungstiegel vorstellen, gehen wir im vorliegenden Abschnitt auf die mathematische Untersuchung des für die Numerik verwendeten Finite-Volumen-Verfahrens ein. Die im Abschnitt 2.1.4 beschriebenen Annahmen führen auf das gekoppelte System partieller Differentialgleichungen

$$\frac{\partial \varepsilon_j(T, x)}{\partial t} - \text{div} (\kappa_j(T) \nabla T) - f_j(T, t, x) = 0 \quad (20)$$

für die gesuchte stetige Temperatur T . Jede der Gleichungen (20) wird dabei auf einem Raum-Zeit-Zylinder $[0, t_f] \times \Omega_j$ betrachtet, wobei Ω_j ein zweidimensionales Polytop ist (d. h. eine beschränkte polyedrische Menge), das entweder das Gebiet einer Festkörperkomponente der Züchtungsapparatur oder das Gebiet der Gasphase repräsentiert. Wir beschreiben nun die Diskretisierung des Systems und geben das in [Phi03] bewiesene diskrete Existenz- und Eindeutigkeitsresultat an. Dabei beschränken wir uns hier der Einfachheit halber auf stetige Übergangsbedingungen für die Temperatur und für den Wärmefluss sowie auf die äußere Randbedingung

$$- (\kappa^{[\beta]} \nabla T^{[\beta]}) \bullet \vec{n}^{[\beta]} = \sigma \epsilon^{[\beta]} \left((T^{[\beta]})^4 - T_R^4 \right), \quad (21)$$

wobei $\sigma = 5.6696 \cdot 10^{-8} \frac{\text{W}}{\text{m}^2 \text{K}^4}$ die Boltzmann-Strahlungskonstante und $\epsilon^{[\beta]}$ die (temperaturabhängige) Emissivität der Oberfläche ist. Die Bedingung (21) bedeutet, dass sich die Umgebung der Züchtungsapparatur wie ein schwarzer Körper verhält, der mit Raumtemperatur $T_R = 293$ K abstrahlt (dies ist z. B. für einen großen isothermen Umgebungsraum der Fall).

Für allgemeinere Situationen wie nichtlokale und unstetige Übergangs- und Randbedingungen sowie konvektive Beiträge verweisen wir auf [Phi03] und [KP03a].

Für die Diskretisierung in der Zeit benutzen wir ein implizites Euler-Schema in den diskreten Zeiten $0 = t_0 < \dots < t_N = t_f$, $N \in \mathbb{N}$. Zur späteren Verwendung setzten wir noch $k_n := t_n - t_{n-1}$, $\Delta := \max\{k_n : n = 1, \dots, N\}$. Das Raumgebiet $\Omega := \bigcup_j \Omega_j$ wird in genügend gutartige Kontrollvolumina zerlegt. Dazu kann man zum Beispiel wie folgt vorgehen: Man betrachte eine eingeschränkte Delaunay-Triangulierung der konvexen Hülle Ω_c von Ω . Eine solche Triangulierung besteht aus Dreiecken so, dass die Summe zweier Winkel, die der selben Kante gegenüberliegen höchstens 180° beträgt und so, dass Winkel, die äußeren oder inneren Rändern gegenüberliegen nie mehr als 90° betragen (s. Abb. 2). Weiterhin muss jeder innere Rand in Dreiecksseiten zerlegt werden (s. [She96] für weitere Informationen über zweidimensionale Delaunay-Triangulierungen).

Ist V die (endliche) Menge von Ecken einer eingeschränkten Delaunay-Triangulierung, so heißt für jedes $v \in V$

$$\omega_v := \overline{\{x \in p : \|x - v\|_2 < \|x - w\|_2 \text{ für jedes } w \in V \setminus \{v\}\}} \quad (22)$$

die Voronoï-Zelle mit Zentrum v . Für jedes j und jedes $v \in V$ setze $\omega_{j,v} := \omega_v \cap \Omega_j$. Dann ist für alle j die gesuchte Zerlegung von Ω_j in Kontrollvolumina $\omega_{j,v}$ gegeben durch $\Omega_j = \bigcup_{v \in V_j} \omega_{j,v}$ mit $V_j := V \cap \Omega_j$. Definieren wir noch $V_\Omega := V \cap \Omega$, so sind wir in der Lage, das Finite-Volumen-Schema zur Bestimmung der Temperatur zu formulieren: Gesucht ist eine nichtnegative

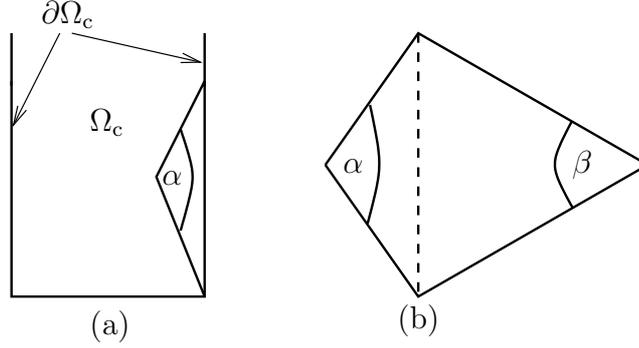


Abbildung 2: Die in (a) dargestellte Situation verletzt die eingeschränkte Delaunay-Bedingung, da $\alpha > 90^\circ$. In (b) gilt $\alpha = 110^\circ$ und $\beta = 60^\circ$, d. h., die eingeschränkte Delaunay-Bedingung ist genau dann verletzt, wenn die gestrichelte Linie nicht nur eine gemeinsame Kante zweier Dreiecke, sondern auch einen Übergang zwischen zwei verschiedenen Gebieten Ω_{j_1} und Ω_{j_2} darstellt.

Lösung $(\vec{T}_0, \dots, \vec{T}_N)$, $\vec{T}_n = (T_{n,v})_{v \in V_\Omega}$, von

$$T_{0,v} = T_R \quad (v \in V_\Omega), \quad (23a)$$

$$\mathcal{H}_{n,v}(\vec{T}_{n-1}, \vec{T}_n) = 0 \quad (v \in V_\Omega, \quad n \in \{1, \dots, n\}), \quad (23b)$$

wobei für jedes $n \in \{1, \dots, n\}$ gilt:

$$\begin{aligned} & \mathcal{H}_{n,v}(\vec{T}_{n-1}, \vec{T}_n) \\ & := k_n^{-1} \sum_j (\varepsilon_j(T_{n,v}, v) - \varepsilon_j(T_{n-1,v}, v)) \cdot v_r \cdot \lambda_2(\omega_{j,v}) \\ & \quad - \sum_j \sum_{w \in \text{nb}_j(v)} \frac{\kappa_j(T_{n,v}) \cdot v_r + \kappa_j(T_{n,w}) \cdot w_r}{2} \cdot \frac{T_{n,w} - T_{n,v}}{\|v - w\|_2} \cdot \lambda_1(\omega_{j,v} \cap \omega_{j,w}) \\ & \quad + \sum_j \sigma \varepsilon_j(T_{n,v}) \cdot (T_{n,v}^4 - T_R^4) \cdot v_r \cdot \lambda_1(\partial\omega_{j,v} \cap \partial\Omega) \\ & \quad - \sum_j f_j(T_{n,v}, t_n, v) \cdot v_r \cdot \lambda_2(\omega_{j,v}). \end{aligned} \quad (24)$$

Dabei bezeichnen λ_2 und λ_1 in (24) zwei- bzw. eindimensionales Lebesgue-Maß und $\text{nb}_j(v) := \{w \in V_j \setminus \{v\} : \lambda_1(\omega_{j,v} \cap \omega_{j,w}) \neq 0\}$ ist die Menge der j -Nachbarn von v . Das Auftauchen von v_r und w_r in (24) liegt an der Verwendung von Zylinderkoordinaten, wobei $v = (v_r, v_z)$, $w = (w_r, w_z)$.

Theorem 1. *Es gelten die Annahmen (i) – (iv):*

$$(i) \quad \varepsilon_j \geq 0, \quad \kappa_j \geq 0, \quad \sigma \geq 0, \quad f(0, t, x) \geq 0.$$

(ii) $\varepsilon_j(\cdot, x)$ ist monoton steigend, und es gibt $L > 0$ so, dass $|\varepsilon(T, x) - \varepsilon(\tilde{T}, x)| \geq L|T - \tilde{T}|$ für alle $x \in \Omega_j$.

(iii) κ_j , ϵ_j und f_j sind lokal Lipschitz in ihrer T -Abhängigkeit.

(iv) f_j ist nach oben beschränkt.

Dann gibt es ein von der Zeitdiskretisierung unabhängiges $M > 0$ und ein Δ_M so, dass für alle $\Delta < \Delta_M$ das Finite-Volumen-Schema (23) eine eindeutige Lösung $(\vec{T}_0, \dots, \vec{T}_N) \in ([0, M]^{V_\Omega})^{N+1}$ hat.

Proof. Siehe [Phi03, Theorem 3.8.35], wo Theorem 1 in allgemeinerem Zusammenhang bewiesen wurde. \square

2.1.4 Numerische Simulation zeitabhängiger Phänomene während des Wärmetransportes

Allgemeine Rahmenbedingungen

Im Folgenden stellen wir Ergebnisse numerischer Simulationen vor, die Aufschlüsse über für die Sublimationszüchtung wichtige zeitabhängige Phänomene geben. Alle hier betrachteten Simulationen wurden für die Apparatur [PAC⁺99, Fig. 2] (s. Abb. 1) durchgeführt. Der zylindersymmetrische Tiegel hat einen Radius von 8.4 cm und eine Höhe von 25 cm. Er befindet sich innerhalb von fünf hohlen, rechteckig geformten Induktionsspulenringen. Die genauen Abmessungen der Spulenringe sind in Abb. 3 dargestellt. Es wird angenommen, dass alle betrachteten physikalischen Größen von der Winkelkoordinate unabhängig sind.

In den Simulationen wird die vereinfachende Annahme gemacht, dass die auftretenden Festkörper homogen und frei von Verunreinigungen sind. Die verwendeten Materialdaten finden sich in den Anhängen von [KPSW01b] und [Phi03].

Weiterhin nehmen wir an, dass die Gasphase nur aus Argon besteht, was zulässig ist, solange man lediglich die Evolution des Temperaturfeldes berechnen möchte. Da wir hier keine konvektiven Beiträge betrachten (s. [KPSW01b] für Rechnungen *mit* konvektiven Beiträgen), haben die Energiebilanzen in Gas und Festkörpern die Form (20). Die Temperatur wird im gesamten Raumgebiet als stetig betrachtet.

Die Diskretisierung erfolgt gemäß dem in Abschnitt 2.1.3 beschriebenen Finiten-Volumen-Verfahren, wobei durch die nichtlokalen Strahlungsoperatoren zusätzliche Terme auftreten. Das resultierende nichtlineare diskrete System wird mit einem Newton-Verfahren gelöst. Die Berechnung der Sichtbar-

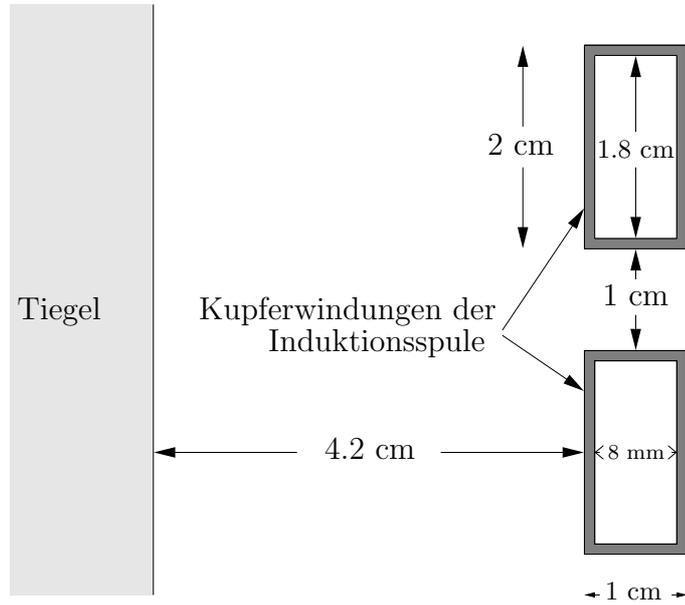


Abbildung 3: Abmessungen der Induktionsspulenringe.

keitsfaktoren basiert auf der in [DNR⁺90] dargestellten Methode und ist in [KPSW01b, Sec. 4] näher erläutert.

Die für die Induktionsheizung benutzte Kreisfrequenz ist $\omega = 2\pi f$ mit $f = 10$ kHz. Die Heizleistung wird gemäß folgender linearer Rampe vorgegeben:

$$P(t) := \begin{cases} \frac{P_{\max}}{t_R} \cdot t & \text{für } 0 \leq t \leq t_R, \\ P_{\max} & \text{für } t \geq t_R, \end{cases} \quad (25)$$

wobei $t_R = 2$ h. Weiterhin gilt $P_{\max} = 7$ kW, außer für die in Abb. 5 dargestellten Simulationen. Die Verteilung der Wärmequellen wird in jedem Zeitschritt des zeitabhängigen Temperaturproblems neu berechnet, um die zeitabhängige Natur der vorgegebenen Heizleistung sowie die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit zu berücksichtigen.

Jede der Simulationen startet bei $T_R = 293$ K und berechnet die Temperaturevolution in der Züchtungsapparatur.

Die Simulationen wurden alle mit der im Rahmen des Projektes entwickelten Software **WIAS High Temperature Numerical Induction Heating Simulator** (*WIAS-HiTNIHS*), durchgeführt.

Temperaturdifferenzen

In einer Folge von numerischen Experimenten untersuchen wir den Zusammenhang zwischen den Temperaturdifferenzen $T_{bt} := T_{\text{bottom}} - T_{\text{top}}$ und $T_{ss} := T_{\text{source}} - T_{\text{seed}}$ (s. Abb. 1): Wir betrachten zwei verschiedene Spulenpositionen sowie für die untere von beiden drei verschiedene Werte von P_{max} (vgl. (25)). Die Beziehung zwischen T_{bt} und T_{ss} ist von Bedeutung, da sich T_{bottom} und T_{top} während der physikalischen Wachstumsexperimente messen lässt, und dann T_{bt} oft als Indikator für T_{ss} verwendet wird, welches die für den Züchtungsprozess eigentlich wichtige Differenz ist, die jedoch nicht direkt gemessen werden kann.

Für die zwei Simulationen mit $P_{\text{max}} = 7$ kW sind die jeweiligen Ergebnisse für die Evolution von T_{bt} bzw. T_{ss} in Abb. 4 dargestellt. In Abb. 4(a) ist die Spule in der oberen Position, d. h. zwischen den vertikalen Koordinaten $z = 2$ cm und $z = 16$ cm, während sie in Abb. 4(b) in der unteren Position ist, d. h. zwischen $z = 0$ cm und $z = 14$ cm.

Abbildung 4 zeigt, dass die zeitliche Entwicklung von T_{ss} für beide Spulenpositionen fast identisch ist, während sich das Verhalten von T_{bt} erheblich verändert. In keinem der Fälle ist T_{bt} ein geeigneter Indikator für T_{ss} bevor die Rechnungen ihren quasistationären Endzustand erreicht haben. Was jedoch von besonderer Bedeutung ist, ist das Ergebnis, dass T_{ss} und T_{bt} selbst im Endzustand nur für die untere Spulenposition von vergleichbarer Größenordnung sind. In Abb. 4(a) stimmen hingegen nicht einmal die Vorzeichen von T_{ss} und T_{bt} im Endzustand überein.

Es zeigt sich weiterhin, dass die gute Übereinstimmung von T_{ss} und T_{bt} im Endzustand von Abb. 4(b) lediglich ein Zufall darstellt, da sie für andere Werte von P_{max} wieder verschwindet: Abbildung 5 zeigt, dass für die selbe Spulenposition wie in Abb. 4(b) und mit $P_{\text{max}} = 5.5$ kW, T_{bt} im Endzustand fast dreimal so groß ist wie T_{ss} (Abb. 5(a)), während T_{bt} und T_{ss} im Endzustand für $P_{\text{max}} = 8.5$ kW sogar wieder verschiedene Vorzeichen haben (Abb. 5(b)).

Die Simulationen zeigen, dass für die betrachtete Konfiguration, im Allgemeinen kein einfacher Zusammenhang zwischen T_{ss} und T_{bt} besteht. Obwohl die Situation für andere Konfigurationen besser sein mag, muss im Einzelfall überprüft werden (z. B. durch numerische Simulation), ob sich T_{bt} als sinnvoller Indikator für T_{ss} verwenden lässt.

Aufheizung des SiC-Quellpulvers

In zwei numerischen Experimenten untersuchen wir die zeitliche Entwicklung der Temperatur im Zentrum des SiC-Quellpulvers im Vergleich mit der

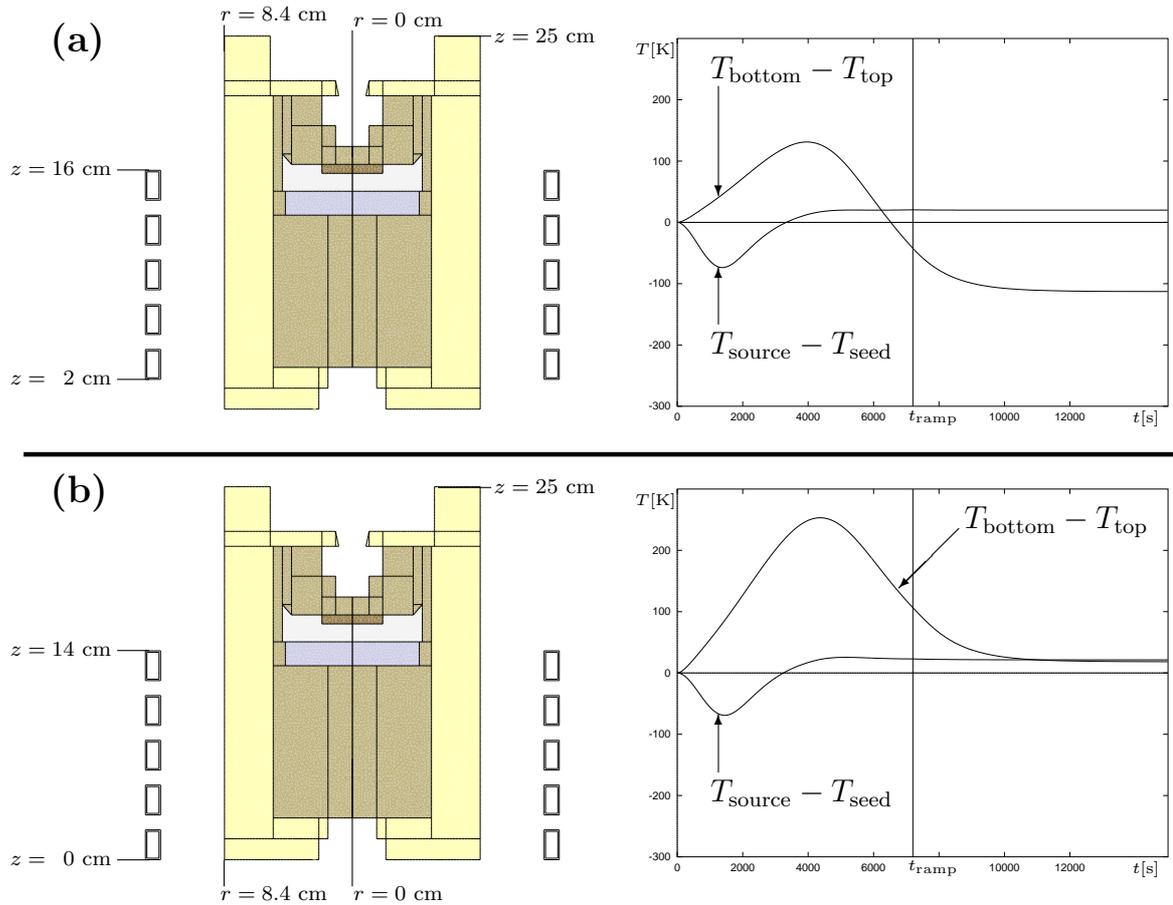


Abbildung 4: Die zeitliche Entwicklung der Temperaturdifferenzen $T_{\text{bottom}} - T_{\text{top}}$ und $T_{\text{source}} - T_{\text{seed}}$ wird für zwei verschiedene Spulenpositionen gegenübergestellt, deren Lage am linken Rand angegeben ist. Die Lage der Punkte für T_{bottom} , T_{top} , T_{source} und T_{seed} lässt sich aus Abb. 1 ablesen. Die Heizleistung steigt linear gemäß (25) mit $P_{\text{max}} = 7$ kW.

Evolution von T_{top} , T_{bottom} und T_{source} (vgl. Abb. 1). Wir betrachten zwei verschiedene Mengen von Quellpulver. Im Vergleich zur in Abb. 6(a) dargestellten Rechnung, ist die Menge in Abb. 6(b) verfünffacht.

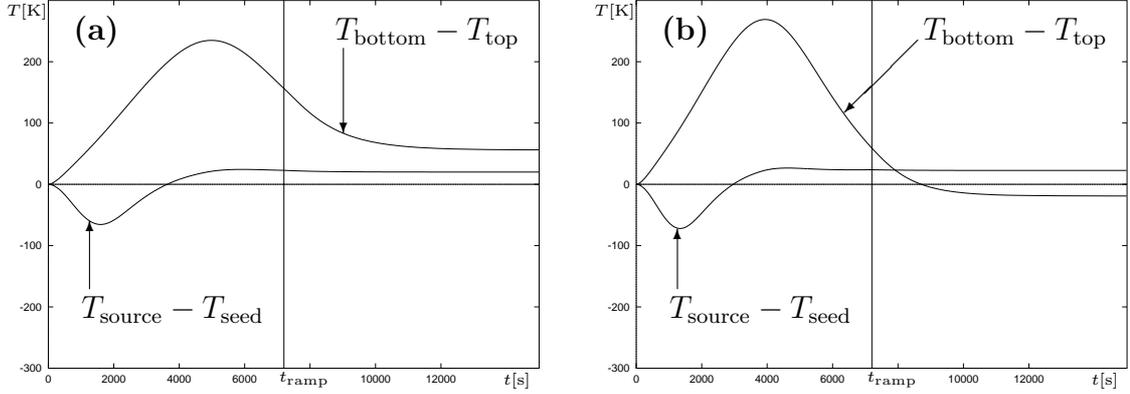


Abbildung 5: Wie in Abb. 4(b) ist für numerische Experimente, die die untere Spulenposition benutzen, die Evolution der Temperaturdifferenzen $T_{\text{bottom}} - T_{\text{top}}$ und $T_{\text{source}} - T_{\text{seed}}$ dargestellt. Im Unterschied zu Abb. 4(b) ist $P_{\text{max}} = 5.5$ kW in Abb. 5(a) und $P_{\text{max}} = 8.5$ kW in Abb. 5(b).

Für die im Folgenden dargestellten Simulationen wurde die untere Spulenposition aus Abb. 4(b) verwendet. Wir bemerken, dass wir entsprechende Resultate auch für die obere Spulenposition aus Abb. 4(a) erzielt haben.

Aus Abb. 6 lässt sich erkennen, dass für die betrachtete Konfiguration die Temperatur im Innern des Pulvers gegenüber der Temperatur in der restlichen Apparatur nachzieht. Während sich die Evolution von T_{top} , T_{bottom} und T_{source} als nahezu von der Pulvermenge unabhängig erweist, ist das Aufheizen der Pulvermitte in Abb. 6(b) deutlich stärker verzögert.

Um Verunreinigungen aus dem Pulver auszuheizen, wird das System üblicherweise eine bestimmte Zeit bei niedrigem Druck auf einer Temperatur von ca. 1200 K gehalten. Tabelle 1 zeigt, dass, während die Zeitverzögerung zwischen dem Erreichen von 1200 K bei T_{top} und bei T_{inSource} für die geringere Pulvermenge lediglich 5 Minuten beträgt, die entsprechende Verzögerung im Falle der größeren Pulvermenge bereits 1.5 Stunden beträgt. In Abhängigkeit von der geometrischen Konfiguration des Systems kann es somit von großer Bedeutung sein, diese Zeitverzögerung beim Ausheizen der Verunreinigungen zu berücksichtigen.

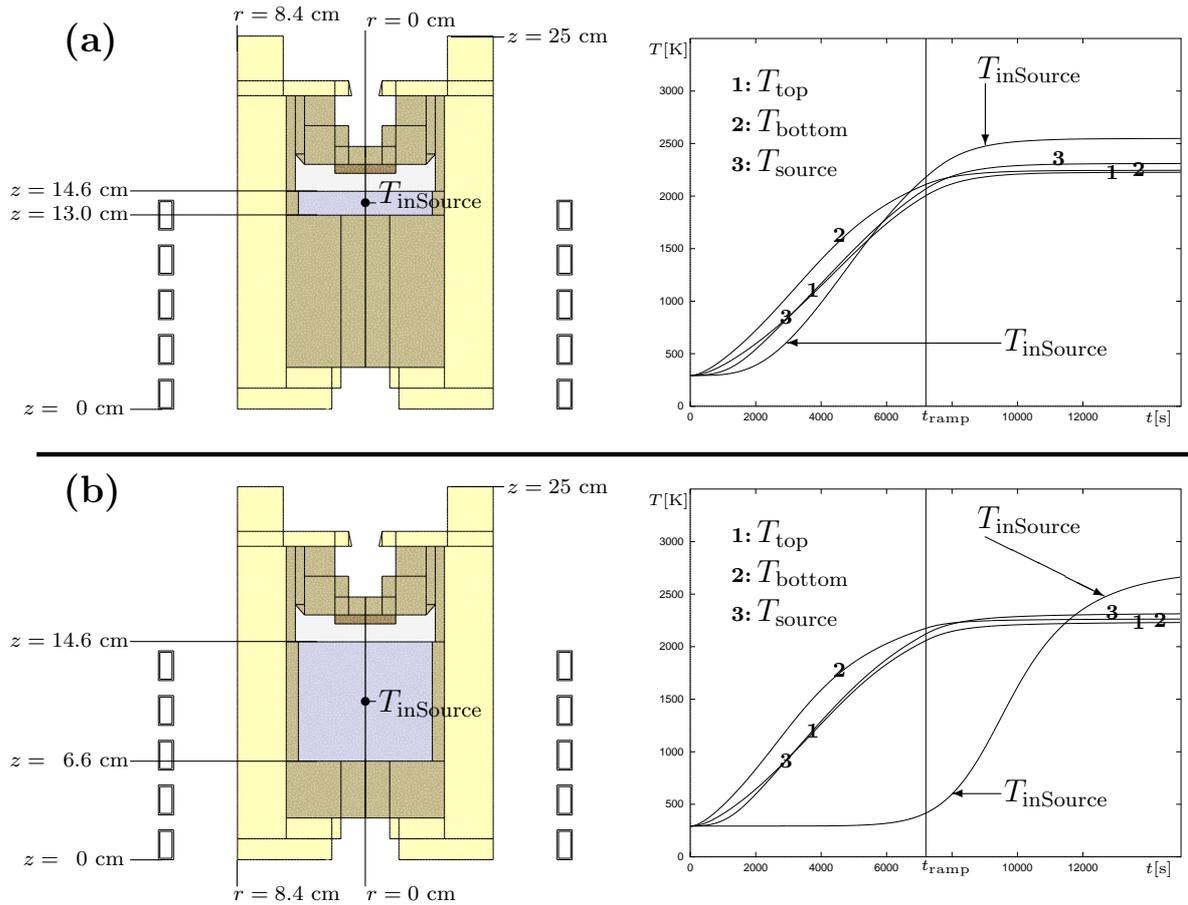


Abbildung 6: Die zeitliche Entwicklung von T_{inSource} wird den Evolutionen von T_{top} , T_{bottom} und T_{source} für zwei verschiedene Pulvermengen gegenübergestellt. Dabei ist die Pulvermenge in (b) gegenüber (a) verfünffacht. Die Lage von T_{top} , T_{bottom} und T_{source} ist in Abb. 1 eingezeichnet. Die Heizleistung steigt linear gemäß (25) mit $P_{\text{max}} = 7 \text{ kW}$.

	$t_1 := t(T_{\text{top}} = 1200 \text{ K})$ [min]	$t_2 := t(T_{\text{inSource}} = 1200 \text{ K})$ [min]	$(t_2 - t_1)$ [min]
Abb. 6(a)	70	75	5
Abb. 6(b)	63	155	92

Tabelle 1: Zeitverzögerung zwischen dem Erreichen von 1200 K bei T_{top} und bei T_{inSource} für die in Abb. 6 betrachteten numerischen Experimente.

2.1.5 Numerische Optimierung und Kontrolltheorie des Temperaturfeldes

In der Arbeit [MP03] werden für das stationäre Wärmetransportproblem in der Züchtungsanlage mit der Software *WIAS-HiTNIHS* numerische Optimierungsrechnungen nach dem Nelder-Mead-Verfahren durchgeführt. Dabei werden Kostenfunktionale minimiert, indem die Kontrollparameter Frequenz f und Leistung P der Induktionsheizung sowie die vertikale Position z_{rim} der Heizungsspule variiert werden. Die Kostenfunktionale sind dabei entweder die L^∞ -Norm des radialen Temperaturgradienten auf der Oberfläche des SiC-Einkristalles, die L^2 -Norm $\mathcal{F}_{r,2}$ dieses Gradienten oder $\mathcal{F}_{r,2}$ minus die L^2 -Norm $\mathcal{F}_{z,2}$ des vertikalen Temperaturgradienten zwischen SiC-Quelle und -Keim. Die Optimierung erfolgt dabei unter Nebenbedingungen für den benötigten Temperaturunterschied zwischen Quelle und Keim sowie für die zulässigen Temperaturbereiche an der Kristalloberfläche und im gesamten Züchtungsapparat.

In mehreren Serien numerischer Nelder-Mead-Rechnungen zur Bestimmung von (P, z_{rim}) haben wir bei festem f die Abhängigkeit der Lösung von den Anfangswerten untersucht. Weiterhin haben wir die Abhängigkeit der Kostenfunktionale von (P, z_{rim}) untersucht sowie den Einfluss der Zustandsbeschränkungen. Dazu wurden P und z_{rim} systematisch variiert und $T = T(f, P, z_{\text{rim}})$ sowie die Werte der Kostenfunktionale numerisch berechnet (s. Abb. 7).

In Serien von 27 dreidimensionalen Nelder-Mead-Rechnungen haben wir für die beschriebenen Kostenfunktionale ebenfalls die Abhängigkeit der Lösung (f, P, z_{rim}) von den Anfangswerten untersucht. Die Ergebnisse zweier solcher Serien sind in Abb. 8 dargestellt.

Der Einfluss der Minimierung von $\mathcal{F}_{r,2}(T)$ bzw. von $\frac{1}{2}\mathcal{F}_{r,2}(T) - \frac{1}{2}\mathcal{F}_{z,2}(T)$ auf das Temperaturfeld zwischen SiC-Pulver und -Kristall ist in Abb. 9 dargestellt: Die Lösung in (a) gehört zu einer generischen, unoptimierten Situation, während in (b) und (c) die in Abb. 8 markierten Lösungen der dreidimensionalen Nelder-Mead-Rechnungen der Minimierungen von $\mathcal{F}_{r,2}(T)$ bzw. von $\frac{1}{2}\mathcal{F}_{r,2}(T) - \frac{1}{2}\mathcal{F}_{z,2}(T)$ präsentiert werden.

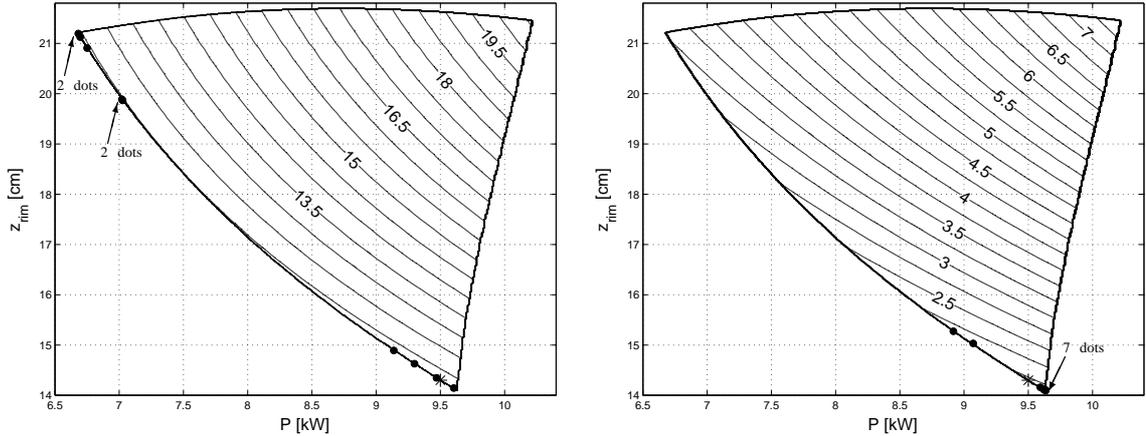


Abbildung 7: Numerisch berechnete Höhenlinien der Funktionale $\mathcal{F}_{r,2}$ (links) und $\frac{1}{2}\mathcal{F}_{r,2} - \frac{1}{2}\mathcal{F}_{z,2}$ (rechts), eingeschränkt auf den Teil der (P, z_{rim}) -Ebene, wo die Nebenbedingungen erfüllt sind. Ein Stern markiert in den Abbildungen die Stelle, an der der kleinste Wert des Kostenfunktionals eintritt. Die Punkte auf dem unteren Rand des zulässigen Bereichs bezeichnen die Ergebnisse von neun zweidimensionalen Nelder-Mead-Rechnungen ($f = 10$ kHz festgehalten).

Die Ergebnisse der Optimierungsrechnungen zeigen, dass der minimale radiale Temperaturgradient auf der Kristalloberfläche für die minimale zulässige Temperatur an der Kristalloberfläche auftritt, während der maximale vertikale Temperaturgradient zwischen Quelle und Keim zu einer niedrigen Spulenposition gehört.

In [MPT04] wird für eine vereinfachte semilineare Wärmetransportgleichung ein steuerbeschränktes Optimalsteuerproblem für die Optimierung des Temperaturgradienten mathematisch untersucht, wobei die strahlungsbedingten nichtlokalen Übergangsbedingungen zwischen Gas und Festkörpern berücksichtigt werden. Aufbauend auf einem Minimumprinzip für die semilineare Gleichung sowie L^∞ -Schranken für die schwache Lösung werden die Existenz einer optimalen Lösung ebenso bewiesen wie notwendige Optimalitätsbedingungen.

2.2 Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die im Rahmen des Projektes entwickelte Software *WIAS-HiTNIHS* wird am IKZ bereits zur Unterstützung der experimentellen Züchtung eingesetzt. Am IKZ durchgeführte Vergleiche zwischen stationären Rechnungen mit *WIAS-HiTNIHS*, kommerzieller Software wie *FIDAP* und *Maxwell-2D* sowie physikalischen Experimenten verifizierten die Zuverlässigkeit von *WIAS-HiTNIHS*.

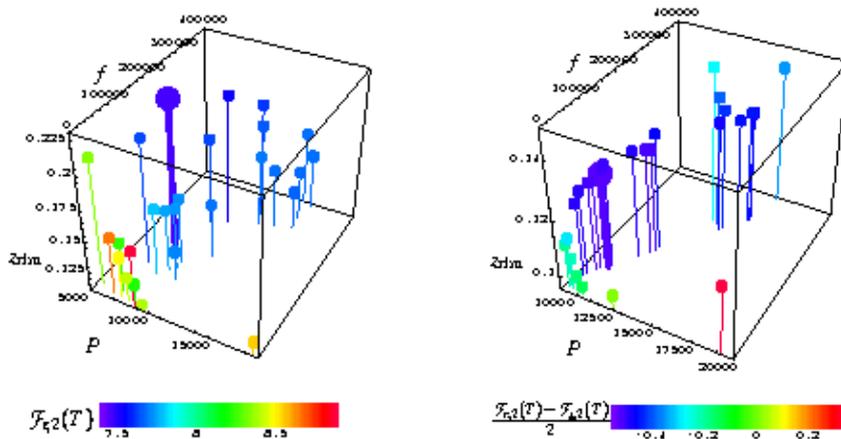


Abbildung 8: Ergebnisse (P, z_{rim}, f) zweier Serien von dreidimensionalen Nelder-Mead-Rechnungen mit einer Farbdarstellung der zugehörigen Werte der Kostenfunktionale $\mathcal{F}_{r,2}$ (links) und $\frac{1}{2}\mathcal{F}_{r,2} - \frac{1}{2}\mathcal{F}_{z,2}$ (rechts). Der große Punkt in den Abbildungen gehört zu dem jeweils kleinsten Wert des betrachteten Kostenfunktionals.

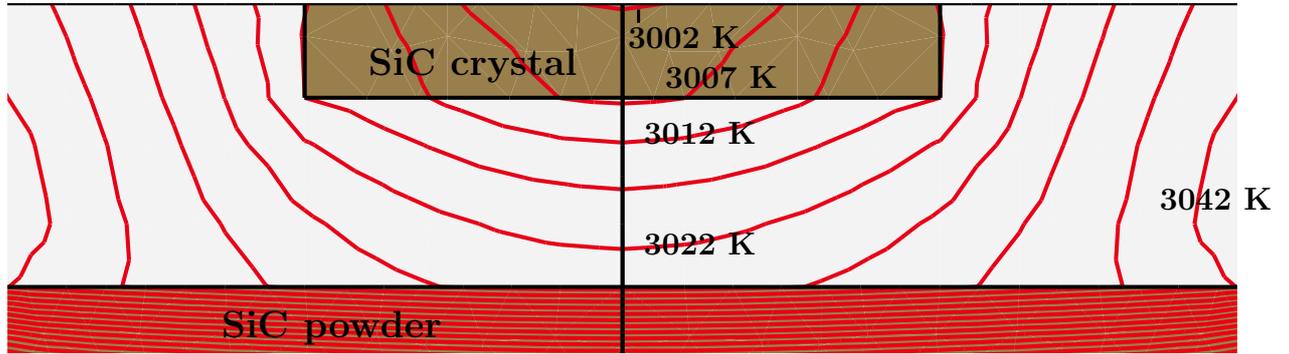
Dabei zeigten sich effizienzbedingte Vorteile von *WIAS-HiTNIHS* gegenüber den kommerziellen Programmen.

Der Hauptvorteil von *WIAS-HiTNIHS* gegenüber existierender Software liegt in der Möglichkeit *zeitabhängige* Simulationen durchzuführen. Von Seiten der Experimentatoren des IKZ wird die Möglichkeit der numerischen Simulation der Einflüsse zeitabhängiger Variationen der Heizleistung, des Drucks und der Position der Heizspule sowohl während der Aufheiz- als auch während der Züchtungsphase als besonders wichtig erachtet. Aus diesen Gründen wird der am WIAS verfolgte Ansatz der zeitabhängigen Modellierung und Simulation als vorteilhaft gegenüber stationären Modellvarianten angesehen.

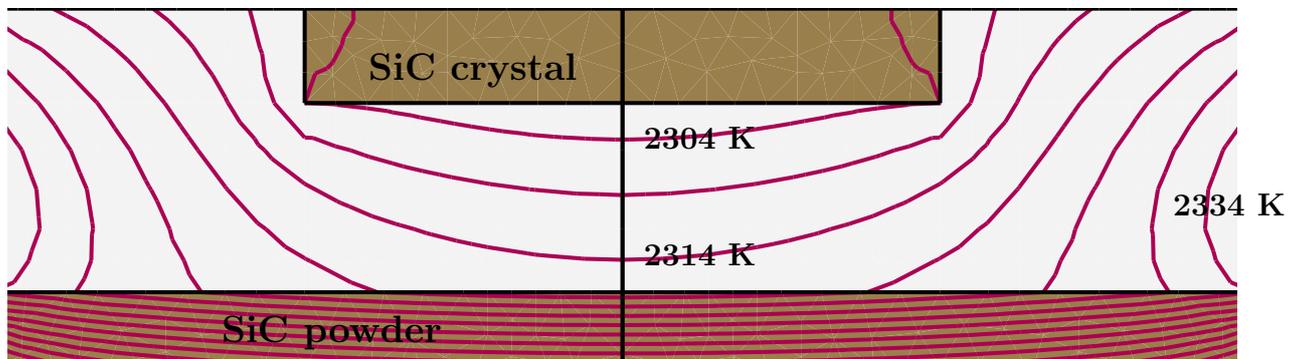
In Ergänzung zu existierenden stationären Simulationsprogrammen wird den Herstellern von SiC-Volumenkristallen durch *WIAS-HiTNIHS* ein wichtiges Hilfsmittel zur Verfügung gestellt, um computergestützte Parameter- und Geometriestudien durchzuführen und die Züchtung begünstigende Vorauswahlen für physikalische Züchtungsexperimente zu treffen.

Um die industrielle Nutzung von *WIAS-HiTNIHS* vorzubereiten, wird in enger Zusammenarbeit im dem IKZ und in Abstimmung mit SiCrystal, Erlangen, die Benutzerfreundlichkeit und Flexibilität von *WIAS-HiTNIHS* anhand der Bedürfnisse der Anwender weiter verbessert. Dies gilt insbesondere für die im Rahmen des Projektes entwickelte graphische Benutzeroberfläche sowie die Material- und Geometrieverwaltung. Eine industriell einsetzbare Version von *WIAS-HiTNIHS* soll bis Mitte 2005 erstellt werden; das WIAS hat dazu SiCrystal, Erlangen, ein entsprechendes Angebot unterbreitet. Die

(a): $T(f = 10.0 \text{ kHz}, P = 10.0 \text{ kW}, z_{\text{rim}} = 24.0 \text{ cm})$



(b): $T(f = 165 \text{ kHz}, P = 7.98 \text{ kW}, z_{\text{rim}} = 22.7 \text{ cm})$



(c): $T(f = 84.9 \text{ kHz}, P = 10.3 \text{ kW}, z_{\text{rim}} = 12.9 \text{ cm})$

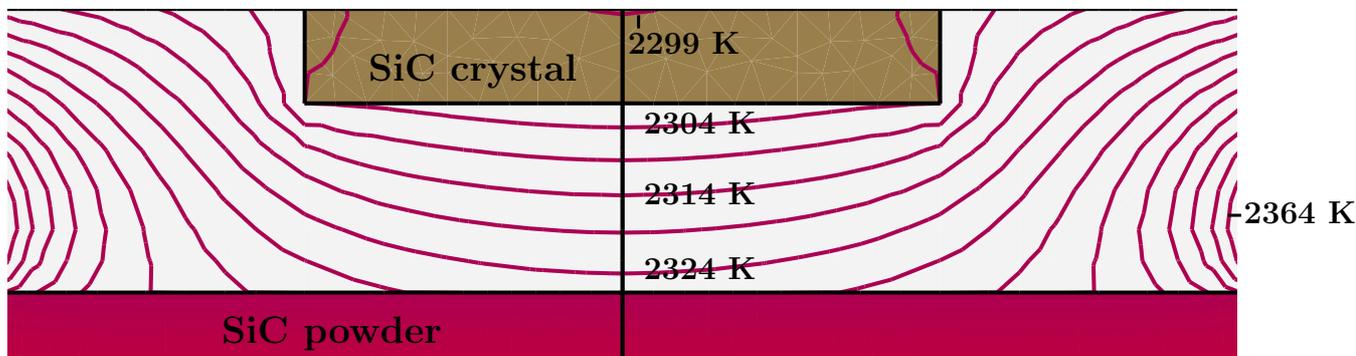


Abbildung 9: Die stationäre Lösung des Temperaturfeldes $T(f, P, z_{\text{rim}})$ wird innerhalb der Gasphase zwischen SiC-Quelle und -Keim dargestellt und zwar für drei Werte von (f, P, z_{rim}) : (a) ist eine generische, unoptimierte Situation; (b) und (c) zeigen Ergebnisse von Nelder-Mead-Optimierungen, wobei $\mathcal{F}_{r,2}$ in (b) und $\mathcal{J}_{0.5} = \frac{1}{2}\mathcal{F}_{r,2} - \frac{1}{2}\mathcal{F}_{z,2}$ in (c) minimiert wurden. In jedem Bild ist der Abstand zwischen benachbarten Isothermen 5 K, welche so gewählt wurden, dass eine Isotherme immer durch die untere äußere Ecke des Kristalls verläuft.

Züchtung von SiC-Volumenkristallen wird in Deutschland derzeit von der SiCrystal AG kommerziell betrieben. SiCrystal wird somit als ein potentieller Interessent für die am WIAS entwickelte Simulationssoftware gesehen.

Wenn der Einsatz von *WIAS-HiTNIHS* dazu beiträgt, dass die am IKZ bzw. die von SiCrystal gezüchteten SiC-Kristalle in Qualität und Größe mit denen der ausländischen Konkurrenz am Markt konkurrieren können, so ergäbe sich ein hoher indirekter wirtschaftlicher Nutzen für die deutsche Industrie.

Einen weiteren Vorteil von *WIAS-HiTNIHS* sehen wir in der zukünftigen Möglichkeit, die Software auf Parallelrechnern einzusetzen. Diese Möglichkeit ergibt sich dadurch, dass das am WIAS entwickelte Programmpaket *pdelib*, auf dem *WIAS-HiTNIHS* basiert, in der kurz vor dem Release stehenden Version *pdelib-2* den Einsatz auf Parallelrechnern ermöglichen wird.

Die kontrolltheoretischen Aspekte des Projektes (s. Abschnitt 2.1.5) werden zur Zeit in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Tröltzsch am Fachbereich Mathematik der TU-Berlin im Rahmen des DFG-Forschungszentrums *Mathematik für Schlüsseltechnologien* im Projekt C9 *Numerical Simulation and Control of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals* weiter untersucht. Dieses Projekt baut nicht nur wissenschaftlich nahtlos auf den Ergebnissen des hier abschließend beschriebenen Vorhabens auf, sondern kann auch unmittelbar von den im Rahmen des Vorhabens gewonnenen Erfahrungen zur interdisziplinären Zusammenarbeit zwischen Modellierern, Numerikern und Experimentatoren, profitieren.

Dabei wurden bereits mathematische Resultate erzielt, deren Anwendung naturgemäß nicht auf den Bereich der SiC-Züchtung beschränkt ist. Exemplarisch genannt seien hier notwendige und hinreichende Optimalitätsbedingungen für nichtlineare elliptische und parabolische partielle Differentialgleichungen mit nichtlokalen Übergangsbedingungen wie sie beim Wärmetransport durch Strahlung auftreten. Diese Ergebnisse werden 2004 und 2005 zur Veröffentlichung in Fachzeitschriften eingereicht.

Im Zusammenhang mit der kontrolltheoretischen Forschung des DFG-Forschungszentrumsprojektes C9 wird die Möglichkeit der stationären und zeitabhängigen Optimierung von Steuergrößen in *WIAS-HiTNIHS* integriert, was auch nach Ansicht der Züchter am IKZ und bei SiCrystal einen weiteren erheblichen Fortschritt bezüglich des Anwendungsbereiches der Software darstellen wird.

Die während des Vorhabens durchgeführten mathematischen Untersuchungen zur Lösbarkeit und Konvergenz der betrachteten Finite-Volumen-Diskretisierungen von gekoppelten nichtlinearen Wärmeleitungsgleichungen mit springenden Koeffizienten und nichtlokalen Randbedingungen sind in ihrer Anwendbarkeit nicht auf das spezielle Modell der Sublimationszüchtung

beschränkt, sondern dienen der mathematischen Absicherung von Finite-Volumen-Verfahren insgesamt.

2.3 Fortschritt bei anderen Stellen

Die Probleme der Herstellung großer SiC-Einkristalle mit geringer Defektdichte blieben während der Laufzeit des Vorhabens weltweit im Blickpunkt der aktuellen Forschung. Zahlreiche experimentelle und theoretische Veröffentlichungen der letzten Jahre beschäftigen sich mit diesem Gebiet.

Fortschritte bei der experimentellen Züchtung werden in [MGH⁺01, OFK⁺02] beschrieben.

Neue Arbeiten zu Modellierung und Simulation der SiC-Sublimationszüchtung sind [KKZ⁺00, SKM⁺00, SVK⁺00, MZPD02, MZHS03].

Die Arbeit [KDK⁺01] betrachtet die numerische Lösung eines endlichdimensionalen Shape-Design-Problems für eine SiC-Züchtungsapparatur.

Neue mathematische Ergebnisse zur Existenz und Eindeutigkeit schwacher Lösungen von Wärmeleitungsgleichungen mit Strahlung finden sich in [LT01, MV01].

Diskrete Existenzresultate für Finite-Volumen-Diskretisierungen von nichtlinearen Evolutionsgleichungen wurden in [FL01] erzielt.

2.4 Publikationen und Vorträge

2.4.1 Publikationen nach Nr. 6

Die Publikation der Ergebnisse des Vorhabens nach Nr. 6 erfolgte in der Dissertation von Dr. Philip [Phi03] sowie in einer Reihe von Aufsätzen in referierten Fachzeitschriften: In *Interfaces and Free Boundaries*: [KPS04], im *Journal of Crystal Growth*: [KP03b, KP03c], in *IEEE Transactions on Magnetism*: [KP02a].

Weitere eingereichte Arbeiten, die sich noch in der Begutachtungsphase befinden sind [KP03a, MP03].

2.4.2 Weitere schriftliche Publikationen

Aus dem Vorhaben ergaben sich als Beiträge zu Sammelwerken die Arbeiten [KP02b, SKPW03].

In den Jahresforschungsberichten der Jahre 2000 – 2002 des WIAS finden sich die Projektbeiträge [KPSW00, KPSW01a, KPSS02].

2.4.3 Poster

1. *Numerical Simulation and Control of SiC Bulk Single Crystal Growth*, BMBF-Statusseminar „Neue Mathematische Verfahren in Industrie und Dienstleistungen“, Frankfurt am Main, 11. – 12. Dezember, 2000.
2. *Modeling and Numerical Simulation of Induction Heating of Crucibles for Sublimation Growth of SiC*, ISIMM Tagung „Continuum Mechanics & Thermodynamics“, Potsdam, 30. Juli 30 – 3. August, 2001.
3. *Modeling and Numerical Simulation of Induction Heating of Crucibles for Sublimation Growth of SiC*, WE-HERAEUS-FERIENKURS „SiC and GaN – Materials for Power- and Opto-Electronics“, Cottbus, 3. – 14. September 2001.
4. *Induction Heating During SiC Growth by PVT: Aspects of Axisymmetric Sinusoidal Modeling*, 10-th International IGTE Symposium „Numerical Field Calculation in Electrical Engineering“, 16. – 18. September, 2002.
5. *Numerical Simulation and Control of SiC Bulk Single Crystal Growth*, BMBF-Statusseminar „Neue Mathematische Verfahren in Industrie und Dienstleistungen“, Ludwigshafen, 16. – 17. Dezember, 2002.
6. *Optimalsteuerung bei der Herstellung von SiC-Einkristallen*, Veranstaltung „MathInside – überall ist Mathematik“, Tag der Offenen Tür, Urania Berlin, 13. September, 2003.

2.4.4 Konferenzvorträge

Plenarvortrag

1. J. SPREKELS, *Modeling and simulation of the sublimation growth of SiC bulk single crystals*, Workshop Interphase 2003: „Numerical Methods for Free Boundary Problems“, Newton Institute, Cambridge, 15. April, 2003.

Weitere Konferenzvorträge

1. P. PHILIP, *Transient Numerical Simulation of Sublimation Growth of SiC Single Crystals*, Workshop „Optimal Control of Complex Dynamic Structures“, Oberwolfach, 5. Juni, 2000.

2. P. PHILIP, *Numerical Simulation of SiC Bulk Single Crystal Growth by Sublimation*, dgkk Workshop „Applied Simulation in Crystal Growth“, Aufseß, 14. Februar, 2001.
3. P. PHILIP, *Stationäre und instationäre Simulation*, WE-HERAEUS-FERIENKURS „SiC and GaN - Materials for Power- and Opto-Electronics“, Cottbus, 3. – 14. September 2001.
4. P. PHILIP, *WIAS-HiTNIHS - Transient Simulation with the High Temperature Numerical Induction Heating Simulator*, 2. dgkk Workshop „Applied Simulation in Crystal Growth“, Memmelsdorf, 10. Oktober, 2002.
5. O. KLEIN, *Surface movements during the sublimation growth of silicon carbide single crystals*, Workshop „Interfaces and Singularity Perturbed Interface Evolutions“, Max-Planck-Institut für Mathematik in den Naturwissenschaften, Leipzig, 29. November, 2002.
6. P. PHILIP, *Towards Optimal Control of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals*, Minisymposium „Inverse Problems in Material Science“ auf der Tagung „Applied Inverse Problems: Theoretical and Computational Aspects“, Lake Arrowhead, CA, USA, 20. Mai, 2003.

2.4.5 Öffentlicher Vortrag

1. D. SICHE, P. PHILIP, *Siliciumcarbid - ein Material mit Tradition und Zukunft*, Urania Berlin, 24. Januar, 2002.

2.4.6 Seminarvorträge

1. D. SCHULZ, K. BÖTTCHER, P. PHILIP, *Erste Ergebnisse aus Simulationen mit Maxwell/FIDAP und WIAS-HiTNIHS: Vergleich mit Experiment*, Seminar „Numerische Modellierung“, IKZ Berlin, 29. Oktober, 2002.
2. P. PHILIP, *Produktion bei 3000 Grad mit kühlem Kopf optimieren*, Eröffnungsveranstaltung des DFG-Forschungszentrums „Mathematik für Schlüsseltechnologien“, 20. November 2002.
3. P. PHILIP, *Transient Numerical Simulation of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals. Modeling, Finite Volume Method, Results*, Verteidigung der Dissertation, Humboldt Universität zu Berlin, 3. Februar 2003.

Literatur

- [BKP⁺99] N. BUBNER, O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, K. WILMAŃSKI, *A transient model for the sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **205** (1999), No. 3, 294–304.
- [CL00] P.G. CIARLET, J.L. LIONS (eds.), *Handbook of Numerical Analysis*, vol. 7, North-Holland/ Elsevier, Amsterdam, 2000.
- [CRS94] S. CLAIN, J. RAPPAZ, M. SWIERKOSZ, *Coupling between non-linear Maxwell and heat equations for an induction heating problem: Modeling and numerical methods*, in [Kri94], S. 163–171.
- [CVR⁺99] C.H. CARTER, JR., V.F. TSVETKOV, R.C. GLASS, D. HENSHALL, M. BRADY, ST.G. MÜLLER, O. KORDINA, K. IRVINE, J.A. EDMOND, H.-S. KONG, R. SINGH, S.T. ALLEN, J.W. PALMOUR, *Progress in SiC: from material growth to commercial device development*, Mater. Sci. Eng. B **61-62** (1999), 1–8.
- [DNR⁺90] F. DUPRET, P. NICODÉME, Y. RYCKMANS, P. WOUTERS, M.J. CROCHET, *Global modelling of heat transfer in crystal growth furnaces*, Intern. J. Heat Mass Transfer **33** (1990), No. 9, 1849–1871.
- [EGH00] R. EYMARD, T. GALLOUËT, R. HERBIN, *Finite Volume Methods*, S. 713–1020 in Ciarlet and Lions [CL00], 2000.
- [FL01] J. FUHRMANN, H. LANGMACH, *Stability and existence of solutions of time-implicit finite volume schemes for viscous non-linear conservation laws*, Applied Numerical Mathematics **37** (2001), No. 1–2, 201–230.
- [GHTC97] R.C. GLASS, D. HENSHALL, V.F. TSVEKTOV, C.H. CARTER, JR., *SiC Seeded Crystal Growth*, Phys. Stat. Sol. (b) **202** (1997), 149–162.
- [Har95] G.L. HARRIS (ed.), *Properties of Silicon Carbide*, EMIS Database Series, No. 13, Institution of Electrical Engineers, INSPEC, London, UK, 1995.
- [KDK⁺01] A.V. KULIK, S.E. DEMINA, S.K. KOCHUGUEV, D.KH. OFENGEIM, S.YU. KARPOV, A.N. VOROB'EV, M.V. BOGDANOV, M.S. RAMM, A.I. ZHMAKIN, A.A. ALONSO, S.G.

- GUREVICH, Y.N. MAKAROV, *Inverse-Computation Design of a SiC Bulk Crystal Growth System*, Mat. Res. Soc. Proc. **640** (2001), H1.6.1–H1.6.6.
- [KKZ⁺00] S.YU. KARPOV, A.V. KULIK, I.A. ZHMAKIN, YU.N. MAKAROV, E.N. MOKHOV, M.G. RAMM, M.S. RAMM, A.D. ROENKOV, YU.A. VODAKOV, *Analysis of sublimation growth of bulk SiC crystals in tantalum container*, J. Crystal Growth **211** (2000), 347–351.
- [Kon95] A.O. KONSTANTINOV, *Sublimation growth of SiC*, in [Har95], S. 170–203.
- [KP02a] O. KLEIN, P. PHILIP, *Correct voltage distribution for axisymmetric sinusoidal modeling of induction heating with prescribed current, voltage, or power*, IEEE Trans. Mag. **38** (2002), No. 3, 1519–1523.
- [KP02b] O. KLEIN, P. PHILIP, *Induction Heating During SiC Growth by PVT: Aspects of Axisymmetric Sinusoidal Modeling*, Proceedings of the 10-th International IGTE Symposium on Numerical Field Calculation in Electrical Engineering, Graz, Austria, September 16-18, 2002, 2002, CD-ROM, ISBN: 3-901351-65-5, S. 271–276.
- [KP03a] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient Conductive-Radiative Heat Transfer: Discrete Existence and Uniqueness for a Finite Volume Scheme*, Preprint No. 871, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2003.
- [KP03b] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient numerical investigation of induction heating during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **247** (2003), No. 1–2, 219–235.
- [KP03c] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient temperature phenomena during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **249** (2003), No. 3–4, 514–522.
- [KPS04] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, *Modeling and simulation of sublimation growth of SiC bulk single crystals*, Interfaces and Free Boundaries (2004), im Druck.
- [KPSS02] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SCHEFTER, J. SPREKELS, *Numerical Simulation and Control of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals*, Jahresforschungsbericht, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2002.

- [KPSW00] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, K. WILMAŃSKI, *Optimale Steuerung der Sublimationszüchtung von SiC-Kristallen*, Jahresforschungsbericht, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2000.
- [KPSW01a] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, K. WILMAŃSKI, *Numerical Simulation and Optimization of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals*, Jahresforschungsbericht, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2001.
- [KPSW01b] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, K. WILMAŃSKI, *Radiation- and convection-driven transient heat transfer during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **222** (2001), No. 4, 832–851.
- [Kri94] M. KRIZEK et al. (ed.), *Finite element methods. 50 years of the Courant element.*, Lect. Notes Pure Appl. Math., vol. 164, New York, Marcel Dekker, Inc., 1994.
- [LT01] M. LAITINEN, T. TIIHONEN, *Conductive-Radiative Heat Transfer in Grey Materials*, Quart. Appl. Math. **59** (2001), No. 4, 737–768.
- [MGH⁺01] ST.G. MÜLLER, R.C. GLASS, H.M. HOBGOOD, V.F. TSVETKOV, M. BRADY, D. HENSHALL, D. MALTA, R. SINGH, J. PALMOUR, C.H. CARTER JR., *Progress in the industrial production of SiC substrates for semiconductor devices*, Mater. Sci. Eng. B **80** (2001), No. 1–3, 327–331.
- [MP03] C. MEYER, P. PHILIP, *Optimizing the temperature profile during sublimation growth of SiC single crystals: Control of heating power, frequency, and coil position*, Preprint No. 895, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2003.
- [MPT04] C. MEYER, P. PHILIP, F. TRÖLTZSCH, *Optimal Control of Conductive-Radiative Heat Transfer: Necessary Conditions*, Preprint Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2004, in Vorbereitung.
- [MV01] J. MONNIER, J.P. VILA, *Convective and radiative thermal transfer with multiple reflections. Analysis and approximation by a finite element method*, Math. Models Methods Appl. Sci. **11** (2001), No. 2, 229–262.

- [MZHS03] R.-H. MA, H. ZHANG, S. HA, M. SKOWRONSKI, *Integrated process modeling and experimental validation of silicon carbide sublimation growth*, J. Crystal Growth **252** (2003), 523–537.
- [MZPD02] R. MA, H. ZHANG, V. PRASAD, M. DUDLEY, *Growth Kinetics and Thermal Stress in the Sublimation Growth of Silicon Carbide*, Crystal Growth & Design **2** (2002), No. 3, 213–220.
- [Nis95] S. NISHINO, *Bulk growth of SiC*, in [Har95], S. 163–169.
- [OFK+02] N. OHTANI, T. FUJIMOTO, M. KATSUNO, T. AIGO, H. YASHIRO, *Growth of large high-quality SiC single crystals*, J. Crystal Growth **237–239** (2002), 1180–1186.
- [PAC+99] M. PONS, M. ANIKIN, K. CHOUROU, J.M. DEDULLE, R. MADAR, E. BLANQUET, A. PISCH, C. BERNARD, P. GROSSE, C. FAURE, G. BASSET, Y. GRANGE, *State of the art in the modelling of SiC sublimation growth*, Mater. Sci. Eng. B **61-62** (1999), 18–28.
- [Phi03] P. PHILIP, *Transient Numerical Simulation of Sublimation Growth of SiC Bulk Single Crystals. Modeling, Finite Volume Method, Results*, Ph.D. thesis, Humboldt-Universität zu Berlin, 2003, Report No. 22, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin.
- [pro96a] *Modelling and optimization of distributed parameter systems (Warsaw, 1995)*, New York, Chapman & Hall, 1996.
- [pro96b] *First Workshop on Applied Computational Geometry (Philadelphia, Pennsylvania)*, ACM, May 1996.
- [pro01] *Proceedings of the 14th GAMM Seminar on Concepts of Numerical Software, Kiel, January 23–25, 1998*, Kiel, 2001.
- [Råb96] P. RÅBACK, *Modeling of the Sublimation Growth of Silicon Carbide Crystals*, Ph.D. thesis, Helsinki University of Technology, 1996.
- [RS96] J. RAPPAZ, M. SWIERKOSZ, *Modelling in numerical simulation of electromagnetic heating*, in [pro96a], S. 313–320.
- [She96] J.R. SHEWCHUK, *Triangle: Engineering a 2D Quality Mesh Generator and Delaunay Triangulator*, in [pro96b], S. 124–133.

- [SKM⁺00] M. SELDER, L. KADINSKI, YU. MAKAROV, F. DURST, P. WELLMANN, T. STRAUBINGER, D. HOFFMANN, S. KARPOV, M. RAMM, *Global numerical simulation of heat and mass transfer for SiC bulk crystal growth by PVT*, J. Crystal Growth **211** (2000), 333–338.
- [SKPW03] J. SPREKELS, O. KLEIN, P. PHILIP, K. WILMAŃSKI, *Optimal Control of Sublimation Growth of SiC Crystals*, Mathematics – Key Technology for the Future (Heidelberg) (W. JÄGER, H.-J. KREBS, eds.), Springer-Verlag, 2003.
- [SVK⁺00] A.S. SEGAL, A.N. VOROB'EV, S.YU. KARPOV, E.N. MOKHOV, M.G. RAMM, M.S. RAMM, A.D. ROENKOV, YU.A. VODAKOV, YU.N. MAKAROV, *Growth of silicon carbide by sublimation sandwich method in the atmosphere of inert gas*, J. Crystal Growth **208** (2000), 431–441.
- [Tii97a] T. TIIHONEN, *A nonlocal problem arising from heat radiation on non-convex surfaces*, Eur. J. App. Math. **8** (1997), No. 4, 403–416.
- [Tii97b] T. TIIHONEN, *Stefan-Boltzmann radiation on non-convex surfaces*, Math. Meth. in Appl. Sci. **20** (1997), No. 1, 47–57.
- [Tii98] T. TIIHONEN, *Finite Element Approximation of Nonlocal Heat Radiation Problems*, Mathematical Models and Methods in Applied Sciences **8** (1998), No. 6, 1071–1089.

Numerische Simulation und Optimierung der
Züchtung von SiC-Einkristallen durch
Sublimation aus der Gasphase

Erfolgskontrollbericht des Forschungsvorhabens 03SPM3B5
im Rahmen des BMBF-Förderprogramms

*Neue Mathematische Verfahren in Industrie und
Dienstleistungen*

Zuwendungsempfänger:

Forschungsverbund Berlin e. V.

Ausführende Stelle:

Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik (WIAS)
im Forschungsverbund Berlin e. V.,
Mohrenstr. 39, 10117 Berlin

Projektleiter:

Prof. Dr. Jürgen Sprekels

13. Juni 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Beitrag zu förderpolitischen Zielen des Förderprogramms	1
2	Wissenschaftlich-technisches Ergebnis des Vorhabens, Erfahrungen	2
3	Fortschreibung des Verwertungsplanes	3
4	Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben	3
5	Präsentationsmöglichkeiten für mögliche Nutzer	3
6	Einhaltung des Ausgaben- und Zeitplans	3

1 Beitrag zu förderpolitischen Zielen des Förderprogramms

Im Rahmen des Vorhabens, welches sich in den Förderschwerpunkt *Einsatz neuer mathematischer Methoden zur Verbesserung von Produktionsprozessen und Produkten* einordnet, wurde am WIAS die Software *WIAS-HiTNIHS* zur zeitabhängigen numerischen Simulation der Züchtung von SiC-Einkristallen aus der Gasphase nach der modifizierten Lely-Methode entwickelt, die es erlaubt, Parameter- und Geometriestudien zur Züchtungsoptimierung durchzuführen. Im Fall stationärer Rechnungen erlaubt es die Software weiterhin, Kontrollparameter wie Heizleistung, -frequenz und Spulenposition automatisiert in Bezug auf anwendungsrelevante Zielfunktionen, wie z. B. den Temperaturgradienten in der Züchtungskammer, zu optimieren.

Mit der Durchführung des Projektes ist es somit gelungen, einen anwendungsrelevanten Fortschritt zu erzielen (vgl. zugehörigen Abschlussbericht Abschnitt 2.2).

Bei der Sublimationszüchtung von SiC-Kristallen handelt es sich um einen Produktionsprozess zur Herstellung *hochtechnologischer Materialien*, wie die Anwendungen von SiC-Substraten im Bereich der Halbleiterelektronik belegen (vgl. Abschlussbericht Abschnitt 1.1).

Die Durchführung des Projektes hatte die Verbesserung des Fertigungsprozesses hinsichtlich *Qualität* und *Energieeinsparung* zum Ziel, damit qualitativ hochwertige SiC-Substrate zu *konkurrenzfähigen Preisen* produziert werden

können. Da für die Sublimationszüchtung sehr hohe Temperaturen und niedrige Drücke notwendig sind, erfolgt sie unter Bedingungen, die eine nur sehr eingeschränkte Beobachtung der im Züchtungstiegel stattfindenden Prozesse zulassen. Die mathematische Modellierung und numerische Simulation dieser Prozesse ist somit eine notwendige Voraussetzung zur Realisierung dieser Zielsetzungen. Da die entwickelte Software *WIAS-HiTNIHS* am IKZ bereits eingesetzt wird um die Optimierung der SiC-Züchtung im obigen Sinne zu unterstützen, war das Projekt bezüglich der genannten Zielsetzung erfolgreich. Zum angestrebten industriellen Einsatz von *WIAS-HiTNIHS* verweisen wir erneut auf Abschnitt 2.2 des Abschlussberichtes.

Die am WIAS während des Vorhabens betriebene *mathematische, anwendungsorientierte Grundlagenforschung* wurde in ständiger *Wechselbeziehung* mit den Kooperationspartnern vom Institut für Kristallzüchtung, Berlin, durchgeführt (s. Abschlussbericht, Abschnitte 1.3 und 1.5). Die Kooperation zwischen dem WIAS und dem IKZ erfolgte außerdem in Abstimmung mit der SiCrystal AG, Erlangen.

Die Bearbeitung des Projektes erforderte es, die physikalischen Prozesse der Sublimationszüchtung nach der modifizierten Lely-Methode in *mathematischer Modellbildung* zu beschreiben bzw. vorhandene Modelle anzupassen und weiterzuentwickeln (s. Abschlussbericht, Abschnitte 2.1.1 und 2.1.2). Das sich ergebende *hochkomplexe System nichtlinearer partieller Differentialgleichungen* musste sodann diskretisiert (s. Abschlussbericht, Abschnitt 2.1.3) sowie numerisch gelöst und mit Bezug auf die Anwendung ausgewertet werden (s. Abschlussbericht, Abschnitte 2.1.4 und 2.1.5).

Um im zeitlichen Rahmen des Vorhabens einen anwendungsrelevanten Fortschritt erzielen zu können, war es erforderlich, in enger Zusammenarbeit mit den Kooperationspartnern aus dem Gesamtmodell Teilaspekte auszuwählen, die aus Sicht der Anwender als besonders wichtig erachtet wurden (s. Abschlussbericht, Abschnitt 1.3).

2 Wissenschaftlich-technisches Ergebnis des Vorhabens, Erfahrungen

Bezüglich des wissenschaftlich-technischen Ergebnisses des Vorhabens verweisen wir auf die eingehende Darstellung der Vorhabensergebnisse sowie deren Nutzen und Verwertbarkeit in den Abschnitten 2.1 und 2.2 des zugehörigen Abschlussberichtes.

An gesammelten wesentlichen Erfahrungen sind zu nennen die zielgerichtete, anwendungsorientierte Umsetzung eines komplexen mathematischen Modells in numerische Simulationssoftware. Insbesondere werden die gesammel-

ten Erfahrungen bei der ergebnisorientierten Problemlösung in Zusammenarbeit von Modellierern, Numerikern, Programmmentwicklern, Experimentalphysikern und Ingenieuren als besonders wertvoll erachtet.

3 Fortschreibung des Verwertungsplanes

Eine ausführliche Darstellung der Fortschreibung des Verwertungsplanes (Verwertbarkeit und Verwertungsmöglichkeiten der Ergebnisse) findet sich in Abschnitt 2.2 des zugehörigen Schlussberichtes.

Weder vom Zuwendungsempfänger (WIAS) noch von am Projekt beteiligten (IKZ) wurden im Rahmen des Vorhabens Erfindungen, Schutzrechtsanmeldungen oder erteilte Schutzrechte gemacht oder in Anspruch genommen.

4 Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben

Eine realitätsnahe Modellierung der chemischen Prozesse in der Gasphase und der Phasenübergänge hat sich als schwieriger herausgestellt als ursprünglich erwartet. Die korrekte Beschreibung der Reaktionskinetik ist noch nicht vollständig verstanden und ließ sich trotz guter Fortschritte (s. Abschnitt 2.1.2 des Abschlussberichtes) in der Projektlaufzeit nicht abschließen.

5 Präsentationsmöglichkeiten für mögliche Nutzer

Eine Übersicht über das Projekt und die erzielten Ergebnisse steht unter <http://www.wias-berlin.de/projects/sic/> zur Verfügung. Eine Reihe von Veröffentlichungen und Vortragsfolien zum Projekt lassen sich über die auf der Internetseite angegebenen Links herunterladen. Bei Bedarf kann auf Anfrage weiteres Material wie z. B. ein mpeg-Video einer Simulationsrechnung zur Verfügung gestellt werden.

6 Einhaltung des Ausgaben- und Zeitplans

Der Finanzierungsplan wurde eingehalten. Für Einzelheiten sei auf den Finanzbericht des Projektes verwiesen, der bereits vorliegt.

Der Zeitplan für die mathematischen Untersuchungen und die Softwareentwicklung konnte im Wesentlichen eingehalten werden. Abweichungen ergaben sich, da die Untersuchung der freien Ränder auf Grund von Modellierungsschwierigkeiten nicht wie geplant durchgeführt werden konnten (s. Abschnitt 4). In Absprache mit den Kooperationspartnern vom IKZ wurde stattdessen die mathematische Untersuchung kontrolltheoretischer Aspekte verstärkt durchgeführt, was sich auch zur Vorbereitung der im Rahmen des DFG-Forschungszentrums *Mathematik für Schlüsseltechnologien* stattfindenden Kooperation mit der Gruppe von Prof. Tröltzsch am Fachbereich Mathematik der TU-Berlin als sinnvoll erwies.

Anhang zum Berichtsblatt des Abschlussberichtes des
Forschungsvorhabens 03SPM3B5 im Rahmen des
BMBF-Förderprogramms

*Neue Mathematische Verfahren in Industrie und
Dienstleistungen*

Weitere Publikationen nach Nummer 6

- [2] O. KLEIN, P. PHILIP, *Correct voltage distribution for axisymmetric sinusoidal modeling of induction heating with prescribed current, voltage, or power*, IEEE Trans. Mag. **38** (2002), No. 3, 1519–1523.
- [3] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient numerical investigation of induction heating during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **247** (2003), No. 1–2, 219–235.
- [4] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient temperature phenomena during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **249** (2003), No. 3–4, 514–522.
- [5] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, *Modeling and simulation of sublimation growth of SiC bulk single crystals*, Interfaces and Free Boundaries (2004), im Druck.
- [6] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient Conductive-Radiative Heat Transfer: Discrete Existence and Uniqueness for a Finite Volume Scheme*, Preprint No. 871, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2003. Zur Veröffentlichung in einer Fachzeitschrift eingereicht.
- [7] C. MEYER, P. PHILIP, *Optimizing the temperature profile during sublimation growth of SiC single crystals: Control of heating power, frequency, and coil position*, Preprint No. 895, Weierstraß-Institut für Angewandte Analysis und Stochastik, Berlin, 2003. Zur Veröffentlichung in einer Fachzeitschrift eingereicht.

Appendix to the Document Control Sheet for the Final Report
of the Research Project # 03SPM3B5 within the BMBF Grant
Program

*New Mathematical Methods in Manufacturing and Service
Industry*

Further Publications According to Number 6

- [2] O. KLEIN, P. PHILIP, *Correct voltage distribution for axisymmetric sinusoidal modeling of induction heating with prescribed current, voltage, or power*, IEEE Trans. Mag. **38** (2002), No. 3, 1519–1523.
- [3] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient numerical investigation of induction heating during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **247** (2003), No. 1–2, 219–235.
- [4] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient temperature phenomena during sublimation growth of silicon carbide single crystals*, J. Crystal Growth **249** (2003), No. 3–4, 514–522.
- [5] O. KLEIN, P. PHILIP, J. SPREKELS, *Modeling and simulation of sublimation growth of SiC bulk single crystals*, Interfaces and Free Boundaries (2004), in press.
- [6] O. KLEIN, P. PHILIP, *Transient Conductive-Radiative Heat Transfer: Discrete Existence and Uniqueness for a Finite Volume Scheme*, Preprint No. 871, Weierstrass Institute for Applied Analysis and Stochastics, Berlin, 2003. Submitted for publication in technical journal.
- [7] C. MEYER, P. PHILIP, *Optimizing the temperature profile during sublimation growth of SiC single crystals: Control of heating power, frequency, and coil position*, Preprint No. 895, Weierstrass Institute for Applied Analysis and Stochastics, Berlin, 2003. Submitted for publication in technical journal.