

**Schlussbericht eines Forschungsprojektes im Rahmen des Themas
„Technische Anwendung von Erkenntnissen der Nichtlinearen Dynamik“**

- Strukturbildung -

Beteiligte Institutionen:

1. Forschungsinstitut für Mineralische und Metallische Werkstoffe GmbH (FEE), Dr. L. Ackermann, Dr. K. Dupré, Struthstrasse 2, 55743 Idar-Oberstein, ☎ 06781/21191, Email: dupre@fee-io.de
2. Institut für Kristallzüchtung (IKZ), Dr. sc. H. Wilke, Dr. P. Reiche, Max-Born-Str. 2, 12489 Berlin, ☎ 030/63923026, Email: wilke@ikz-berlin.de
3. Justus-Liebig-Universität Giessen (JLU), I. Physikalisches Institut, Prof. Dr. D. Schwabe, Heinrich-Buff-Ring 16, 35392 Giessen, ☎ 0641/9933150, Email: Dietrich.Schwabe@exp1.physik.uni-giessen.de

Verbundkoordinator: Dr. L. Ackermann (FEE)

Thema: **Optimierung der Kristallzüchtung unter Einbeziehung von Strukturbildungsmechanismen als Folge konvektiver Wechselwirkungen in der Schmelze**

Teilvorhaben: **Numerische Simulation von Strukturbildungsmechanismen bei der Kristallzüchtung hochschmelzender Oxide**

Förderkennzeichen: 13N7727

Berichtszeitraum: 01.01.2000 – 31.12.2002

Berichtersteller: Dr. sc. Hermann Wilke, IKZ, Berlin

1. Aufgabenstellung

Die Aufgabenstellung bestand in der numerischen Analyse der Züchtung hochschmelzender oxidischer Einkristalle nach dem Czochralski-Verfahren. Insbesondere die nichtlineare Dynamik in Kristallschmelzen, aus denen die Kristalle gezüchtet werden, sollte untersucht werden. Die Einstellung der optimalen Züchtungsparameter bereitet wegen der komplexen Konvektionsverhältnisse erhebliche Probleme, die nur durch großen Zeit- und Kostenaufwand zu lösen sind. Im Rahmen des Projektes sollten in Kooperation mit dem FEE, Idar-Oberstein, an realen Züchtungen von Neodymium dotiertem Yttriumvanadat (Nd:YVO₄) und Neodymium dotiertem Yttrium-Aluminium-Granat (Nd:YAG, Y₃Al₅O₁₂) optimale

Züchtungsbedingungen mit flacher Wachstumsphasengrenze („flat interface“) bestimmt werden. Zur Verifizierung dieser Ergebnisse waren an der JLU, Giessen, Experimente an Modellfluiden durchzuführen. Gleichzeitig sollte versucht werden, die Modellvorstellungen für beide Systeme durch Einbeziehung nichtlinearer Wärmestrahlungsvorgänge zu erweitern. Schliesslich war vorgesehen eine zunächst zweidimensionale, achsensymmetrische Simulation in eine realitätsgetreue 3D-Modellierung im Sinne eines „virtual prototyping“ zu überführen.

2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde.

Für die Umsetzung dieser Aufgabenstellung musste zunächst die erforderlichen Hard- und Software, die mit Projektmittel beschafft wurde, installiert und getestet werden. Zu nennen ist hier die Hochrüstung eines E450 Computerservers von SUN mit 4 leistungsfähigen Prozessoren und der Einsatz eines Rotationsviskosimeters der Firma Rheotest zur Gewinnung von Stoffdaten. Zu diesem Zweck waren begleitende Arbeiten für Preparation und Messungen an im IKZ vorhandenen Züchtungsanlagen erforderlich. Weitere Ressourcen des IKZ waren notwendig, um Oberflächenspannungen von Schmelzen der o.g. Stoffsysteme zu messen. Die Gewinnung dieser Daten war zwingend erforderlich, da Ungenauigkeiten bei den Stoffdaten unmittelbare Auswirkungen auf die numerischen Simulationsergebnisse haben.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Der Ablauf des Vorhabens war in den Projektanträgen durch Balkenpläne festgelegt worden. Dieses Schema ist im wesentlichen in den ersten 2 Jahren eingehalten worden. Zwei neue Aspekte, deren Wichtigkeit sich erst im Verlauf des Vorhabens herausstellte, wurden zusätzlich bearbeitet. Es handelt sich dabei um die Bestimmung von Diffusionskoeffizienten der Dotierstoffe in der Schmelze und die Behandlung der inneren Strahlung im semi-transparenten Kristall während der Züchtung. Andererseits muss eingeräumt werden, dass aus Zeitgründen die 3D-Simulation nur in Ansätzen verwirklicht wurde. Unklarheiten über eine mögliche Verlängerung des Projektes im letzten Jahr haben ebenfalls dazu beigetragen, dass dieser wichtige Programmpunkt nicht erfüllt werden konnte.

4. Wissenschaftlich-technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Bei dem zu untersuchenden Problem handelt es sich um die numerische Lösung eines Systems gekoppelter, nichtlinearer, partieller Differentialgleichungen. Frühere Arbeiten sind vorwiegend auf die Behandlung spezieller Aufgabenstellungen mit Grundlagencharakter ausgerichtet und umfassen nicht die gesamte Komplexität bei der Modellierung des Czochralski-Verfahrens [1,2]. Dies betrifft insbesondere den Einfluss der Wärmestrahlung und den Übergang zu transienter und/oder dreidimensionaler Musterbildung. Auch die Aufteilung des Züchtungsgefässes in einen flüssigen, gasförmigen und festen Bestandteil ist bisher nicht konsequent behandelt worden. Damit wurden einige strukturbildende Mechanismen, wie der Marangoni-Effekt an der Phasengrenze flüssig/gasförmig ausgeschlossen [3,4].

Beim Studium der Fachliteratur wird sofort ersichtlich, dass die physikalischen Parameter der Kristalle bei Raumtemperatur gut bekannt sind. Für die hier interessierenden Temperaturbereiche sind Angaben über Eigenschaften von Kristall und Schmelze jedoch eher spärlich. Insbesondere die wichtigen Daten über die Temperaturabhängigkeit von Viskosität und Oberflächenspannung der Schmelzen waren nicht verfügbar.

5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Als Verbundprojekt hat es wegen der Verzahnung der einzelnen Aktivitäten einen intensiven Kontakt zu den Partnern FEE, Idar-Oberstein und JLU, Giessen (I. Phys. Inst.), gegeben. Diese Interaktionen haben auch neben den geplanten Treffen stattgefunden, wenn sich hierfür eine Gelegenheit bot (gemeinsame Tagungen und Seminare). Die enge Zusammenarbeit bei der Softwareentwicklung mit SERCO Ltd. [5] (vormals AEA Technology), UK, hat dazu geführt, dass der verwendete Code um Grössenordnungen effizienter abläuft, als bei kommerziellen Produkten dieser Art.

6. Darstellung der erzielten Ergebnisse

Die Simulationsrechnungen stellten den Schwerpunkt des Vorhabens dar und wurden von Messungen der Viskositäten und Oberflächenspannungen an YAG und YVO₄ begleitet. Zu beiden Programmpunkten waren umfangreiche Hardware-Investitionen aus Projektmitteln erforderlich.

6.1. Numerische Untersuchungen

Die Aufrüstung des SUN-Enterprise 450-Computerservers war die Voraussetzung für die Installation einer leistungsfähigen HPC-Software. Mit der Forte 7 Workshop-Edition konnte

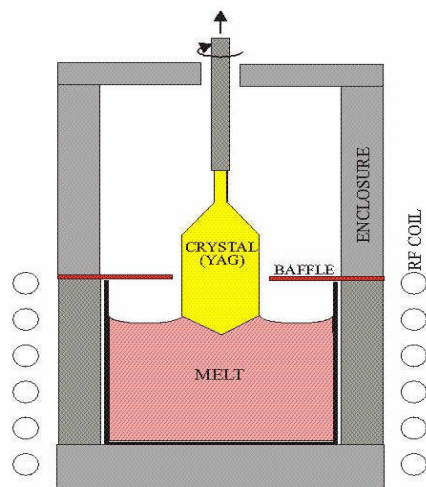


Fig. 1: Skizze der Czochralski-Züchtungsanlage

ein neues Produkt der Firma SUN, bestehend aus hochoptimierenden Compilern und dazugehörigen Analysewerkzeugen, eingesetzt werden. Es wurden zwei Varianten des HPC-Computing, die Clusterbildung mit mehreren Workstations und eine SMP (shared memory) Lösung unter Verwendung der MPI-Software getestet. Die zu lösende Randwertaufgabe beschränkt sich nicht mehr auf die starken Nichtlinearitäten der Hydrodynamik, sondern wird durch hochgradig nichtlineare Prozesse der internen und externen Wärmestrahlung wesentlich komplizierter, d.h. die Lösungsvielfalt möglicher nichtlinearer Strukturen nimmt zu und führt zu erhöhtem Rechenaufwand. Der schrittweise Übergang zu Multiprozessoranwendungen war daher unumgänglich.

Der Durchsatz bei numerischen Experimenten reduzierte sich dadurch für das 2D-Modell von ursprünglich mehreren Stunden auf ca. 15 Minuten, so dass der Umfang der Parameterstudien wesentlich erweitert werden konnte. Mit Hilfe des Programmpaketes „Mathematica“ ist eine automatisierte Überführung der grundlegenden PDE's in den entsprechenden Quellcode möglich. Gestützt auf die bei FEE durchgeführten Temperaturmessungen ist die Modellierung immer näher an reale Verhältnisse angepasst worden. Sie verfolgt das Ziel, einen optimalen Verlauf der Kristallrotation während des

Der Durchsatz bei numerischen Experimenten reduzierte sich dadurch für das 2D-Modell von ursprünglich mehreren Stunden auf ca. 15 Minuten, so dass der Umfang der Parameterstudien wesentlich erweitert werden konnte. Mit Hilfe des Programmpaketes „Mathematica“ ist eine automatisierte Überführung der grundlegenden PDE's in den entsprechenden Quellcode möglich. Gestützt auf die bei FEE durchgeführten Temperaturmessungen ist die Modellierung immer näher an reale Verhältnisse angepasst worden. Sie verfolgt das Ziel, einen optimalen Verlauf der Kristallrotation während des

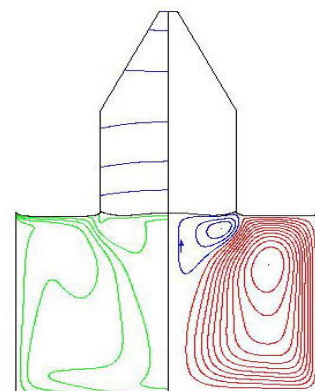


Fig. 2: Ohne innere Strahlung. Rotationsrate 10 rpm.

Züchtungsprozesses vorzugeben. In Fig. 1 ist der prinzipielle Aufbau einer Czochralski-Anlage für die Oxidkristallzucht dargestellt. Für die optische Qualität der Kristalle ist

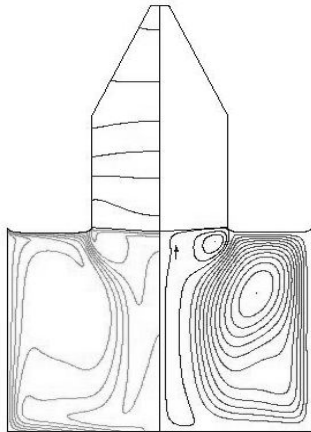


Fig. 3: Mit innerer Strahlung.
Rotationsrate 23 rpm.

entscheidend, dass die Phasengrenze Kristall/Schmelze möglichst eben bleibt („flat interface“). Anfängliche Vergleichsrechnungen zeigten sehr schnell, dass die vorhandene Diskrepanz zum realen Züchtungsverhalten nicht mit den bisherigen Modellvorstellungen vereinbar war. Die Modellexperimente ohne Wärmestrahlung an der JLU gaben den entscheidenden Hinweis über die Größenordnung der Abweichungen und die dort durchgeführten Transmissionsmessungen lieferten auch die notwendigen Stoffdaten, die eine numerische Analyse der sogenannten inneren Strahlung im Kristall ermöglichte. Im Unterschied zu Halbleiterkristallen, die im wesentlichen – auch für das unsichtbare Licht – nicht transparent sind, wird bei oxidischen Kristallen ein beträchtlicher Anteil der Wärme durch Strahlung im Kristall transportiert. Modelliert wird dieser Effekt durch ein zusätzliches System partieller DGL'n mit nichtlinearen

Randbedingungen. Welche Bedeutung dieser Effekt für die Nd:YAG Züchtung hat, kann durch Fig. 2 und Fig.3 belegt werden. Eine Simulation mit und ohne innere Strahlung für eine konstante Kristalllänge zeigt deutlich die Unterschiede in den hydrodynamischen und thermischen Strukturen (Stromlinien rechts, Isothermen links). Wegen des zusätzlichen Wärmetransportes im Kristall ist eine höhere Rotationsrate (23 rpm in Fig. 3 gegenüber 10 rpm in Fig. 2) erforderlich, um „flat interface“ zu erreichen. Die Veränderung der Rotationsrate durch Berücksichtigung von Einbauten (Baffle) und innerer Strahlung zeigt Fig. 4 und ein Vergleich der im FEE empirisch gewonnenen Rotationskurve mit der berechneten zeigt Fig. 5. Angesichts der Fehlermöglichkeiten, insbesondere bei den Transmissionsmessungen und den hydrodynamischen Stoffdaten, ist die Übereinstimmung bemerkenswert.

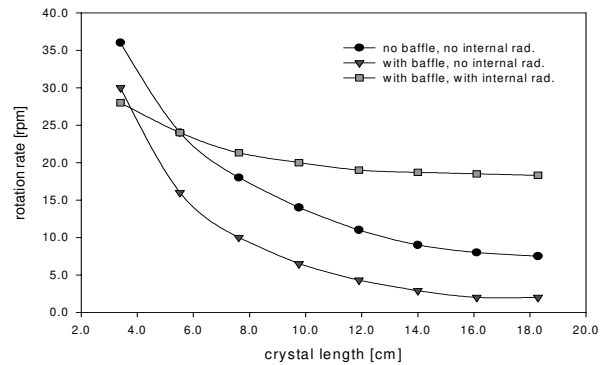


Fig. 4: Rotationsrate vs. Kristalllänge

Entsprechende Untersuchungsergebnisse für YVO_4 sind ebenfalls verfügbar. Die reale Züchtung am FEE bestätigt die niedrigen Rotationsraten, um „flat interface“ zu erreichen.

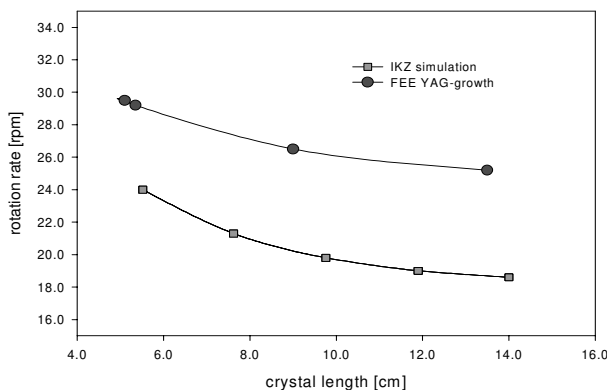


Fig. 5: Rotationsrate vs. Kristalllänge.
Theorie und Experiment

Ausserdem gewinnt für dieses Material, mit seinen komplizierten thermischen und stöchiometrischen Eigenschaften, die Geometrie der Einbauten (Baffle, Nachheizer) eine besondere Bedeutung. Dies wird deutlich bei der Betrachtung einer charakteristischen Situation (Fig. 6), die numerische Ergebnisse für einen Kristall mittlerer Länge zeigt. Ein YVO_4 -Kristall besitzt ein wesentlich höheres Absorptionsvermögen für die thermische Strahlung als YAG (siehe auch Messungen der JLU). Dadurch ist die „Schulter“ des oberen Kristallendes viel flacher als bei

YAG, da nur auf diese Weise eine Totalreflektion der Wärmestrahlung im Kristall verhindert wird. In der numerischen Realisierung äussert sich dieser Umstand dadurch, dass die Iterationen zur Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems (4-te Ordnung in der Temperatur, 2-te Ordnung in den Strömungsgeschwindigkeiten) nur für diese „Schulter“-Geometrie konvergieren. Temperaturmessungen am FEE und die Schulterform der dort gezüchteten Kristalle bestätigen diese Ergebnisse.

Als wichtiger „Seitenzweig“ der o.g. numerischen Analyse ist der Transport eines Dotierstoffes in der Schmelze untersucht worden. Für ein definiertes Nd:YAG

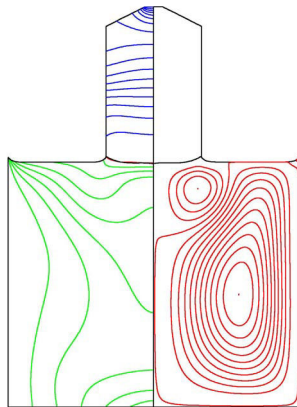


Fig. 6: YVO₄-Züchtung mit „flacher Schulter“

Züchtungsexperiment am FEE sind korrespondierende Zustände numerisch ermittelt worden. Die vorgegebene Nd-Konzentration in der Schmelze wird durch hydrodynamische Vorgänge modifiziert, so dass sich eine charakteristische Nd-Verteilung in der Schmelze einstellt. Unter der Annahme, dass die solutalen Effekte die hydrodynamischen Strukturen nicht beeinflussen, ist die Schmidt-Zahl ein Mass für das Verhältnis von konvektivem zu diffusivem Stofftransport. Die dazugehörige Nd-Verteilung in der Phasengrenze, wo sie in das Gitter des YAG-Kristalls eingebaut wird zeigt Fig. 7. Damit gelingt eine indirekte Bestimmung des Diffusionskoeffizienten D (Schmidt-Zahl: $Sc=v/D$), wenn die kinematische Viskosität v bekannt ist. Es musste nur eine Scheibe aus dem am FEE gezogenen Referenzkristall herausgeschnitten und die Proben per ICP (Inductively Coupled Plasma) am IKZ analysiert werden. Durch

Selektion aus der Kurvenschar von Fig. 7 erhält man dann (erstmalig für Nd:YAG) einen Zahlenwert für den Diffusionskoeffizienten (hier ca. $5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$).

Es wurde bereits darauf hingewiesen, dass die optische Qualität von YAG-Laserstäben davon abhängt, ob mit „flat interface“ gezüchtet wurde. Es war daher naheliegend, die kinematischen Zusammenhänge zwischen hydrodynamischer Wechselwirkung und Kristallrotation zu untersuchen. In parallelen Arbeitsschritten sind an der JLU experimentelle Untersuchungen am Modellsystem NaNO₃-Schmelze und am IKZ entsprechende numerische Rechnungen gelaufen. Dieser

kritische Prozessschritt bereitet den Züchtern nach wie vor grosse Probleme, weil schon kleine Änderungen der Rotation die Form der Phasengrenze stark verändern können. Dieses subjektive Empfinden ist durch die genannten Untersuchungen voll bestätigt worden, d.h. der Zusammenhang zwischen Durchbiegung der Phasengrenze (K/r) und Rotationsrate ist nicht linear (Fig. 8). Besonders in der Nähe von „flat interface“ reagiert das System sehr sensibel.

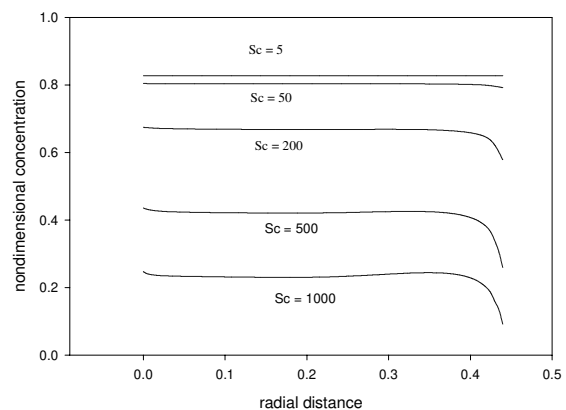


Fig. 7: Kurvenschar der Nd-Konzentration in YAG mit der Schmidt-Zahl als Parameter

6.2. Bestimmung von Stoffparametern

Ein zweiter Punkt war die Vorbereitung und Durchführung von Messungen der Viskosität und Oberflächenspannung an YAG- und YVO₄-Schmelzen, um die für die numerische Simulation notwendigen Stoffdaten zu ermitteln. Die erforderlichen Geräte (Viskosimeter mit Iridium-Rotationskörper, Iridium-Wilhelmi-Platte) wurden in IKZ- Züchtungsanlagen eingebaut und die dazugehörige Messtechnik (Thermoelemente) installiert. Als Referenzschmelze eignet

sich Lithiumniobat (LiNbO_3), da dieses Material bereits intensiv auf seine Eigenschaften untersucht worden ist. Als problematisch erwies sich in beiden Fällen, beim Absenken der Temperatur möglichst dicht an den Schmelzpunkt heranzukommen, ohne dass in Teilbereichen an der Oberfläche schon Kristallisationserscheinungen zu beobachten waren. Fig. 9 zeigt eine repräsentative Messung der dynamischen Viskosität von LiNbO_3 . Die Messung erfolgte bei 60 U/min, nachdem geprüft worden war, dass in diesem Bereich die Messwerte unabhängig von der Rotationsgeschwindigkeit des Prüfkörpers sind. Im Hinblick auf Referenzergebnisse in der Fachliteratur (die Schwankungsbreiten von bis zu 50 % sind bereits herausgemittelt) kann dieses Ergebnis als gut bezeichnet werden und die Ausdehnung dieser Messungen auf andere Kristallschmelzen (YAG , YVO_4) konnte erfolgen.

Bei Messungen der Oberflächenspannung von LiNbO_3 wurde ähnlich verfahren. Ausgehend von einer Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes wurde die Wilhelmi-Platte bei konstanter Temperatur langsam aus der Schmelze herausgezogen. Vorher war durch mehrere Versuche gesichert worden, dass die Hubrate von 1 mm/min das Ergebnis nicht beeinflusst. Die Abreisskraft kann dann unmittelbar an der vorhandenen, sehr empfindlichen Waage der IKZ-Züchtungsanlage, abgelesen und die Oberflächenspannung ermittelt werden. Dieser Vorgang wurde dann nach Absenkung der Temperatur um jeweils ca. 20 °C wiederholt, bis die beginnende Kristallisation auf der Wilhelmi-Platte die Messergebnisse verfälschte. Fig. 10 zeigt eine Gegenüberstellung mit neueren Literaturangaben. Die sichtbare Streuung kann durch längere Homogenisierung der Temperatur noch verringert werden. Wichtig ist aber, dass der Anstieg der Kurve, d.h. die Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Temperatur richtig wiedergegeben wird.

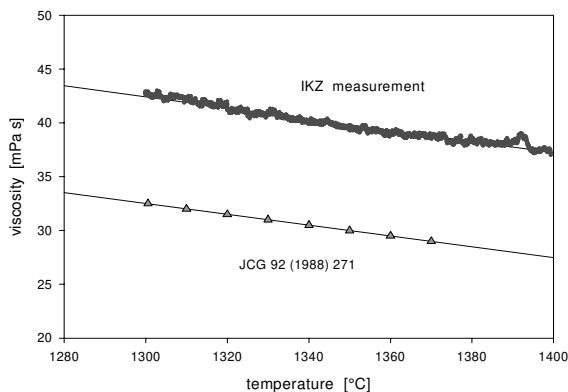


Fig.9: Dynamische Viskosität vs. Temperatur einer LiNbO_3 -Schmelze

Nächster Schritt war die Vorbereitung und Durchführung von Messungen der Viskosität und Oberflächenspannung an YAG - und YVO_4 -Schmelzen. Die notwendigen Messeinrichtungen für die bei über 1800°C schmelzenden Stoffe (Iridium-Rotationskörper für das Viskosimeter, Iridium-Wilhelmi-Platte) wurden beschafft, und in die Züchtungsanlagen eingebaut. Die Eichung der Thermoelemente bei den hohen Temperaturen gelingt nur durch präzise Beobachtung der Schmelzober-

fläche. Die Eichung der Thermoelemente bei den hohen Temperaturen gelingt nur durch präzise Beobachtung der Schmelzober-

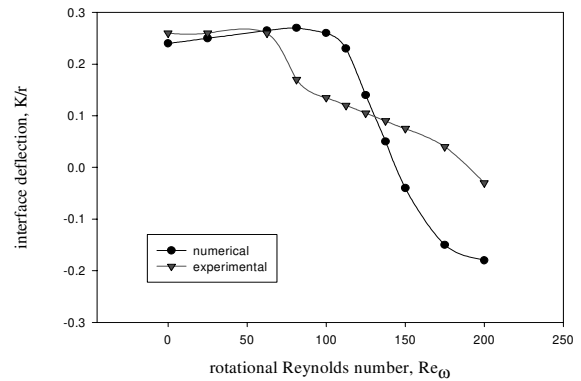


Fig. 8: Interface-Durchbiegung vs. Rotationsrate für eine NaNO_3 -Schmelze

fläche. Ausgehend von einer Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes wurde die Wilhelmi-Platte bei konstanter Temperatur langsam aus der Schmelze herausgezogen. Vorher war durch mehrere Versuche gesichert worden, dass die Hubrate von 1 mm/min das Ergebnis nicht beeinflusst. Die Abreisskraft kann dann unmittelbar an der vorhandenen, sehr empfindlichen Waage der IKZ-Züchtungsanlage, abgelesen und die Oberflächenspannung ermittelt werden. Dieser Vorgang wurde dann nach Absenkung der Temperatur um jeweils ca. 20 °C wiederholt, bis die beginnende Kristallisation auf der Wilhelmi-Platte die Messergebnisse verfälschte. Fig. 10 zeigt eine Gegenüberstellung mit neueren Literaturangaben. Die sichtbare Streuung kann durch längere Homogenisierung der Temperatur noch verringert werden. Wichtig ist aber, dass der Anstieg der Kurve, d.h. die Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Temperatur richtig wiedergegeben wird.

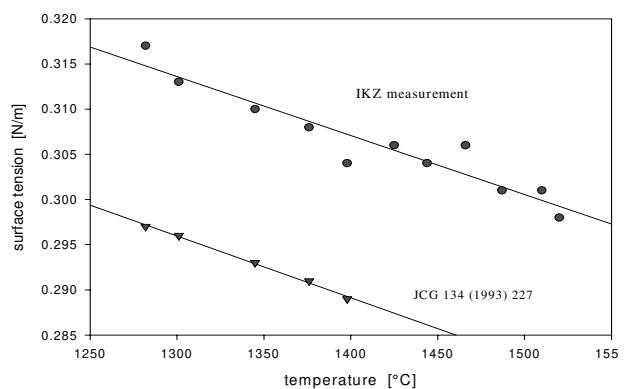


Fig. 10: Oberflächenspannung vs. Temperatur einer LiNbO_3 -Schmelze

fläche, um festzustellen, ob in Teilbereichen an der Oberfläche schon Kristallisationserscheinungen zu beobachten sind. Dieser Einstellung wird dann die Schmelztemperatur zugeordnet. Erschwerend kommt hinzu, dass bei mehreren Messzyklen mit Aufschmelzen/Abkühlen ein hohes Risiko der Deformation und/oder Zerstörung des teuren Iridiumtiegels besteht.

Dennoch ist die Bestimmung der Viskositäten bei verschiedenen Temperaturen eine gut reproduzierbare und robuste Angelegenheit. Einen Vergleich mit Literaturangaben zeigt Fig. 11 für YAG. Die Streuung lässt sich noch durch eine höhere Rotationsrate des Drehkörpers vermindern, zeigt aber im Mittel einen durchaus akzeptablen Verlauf.

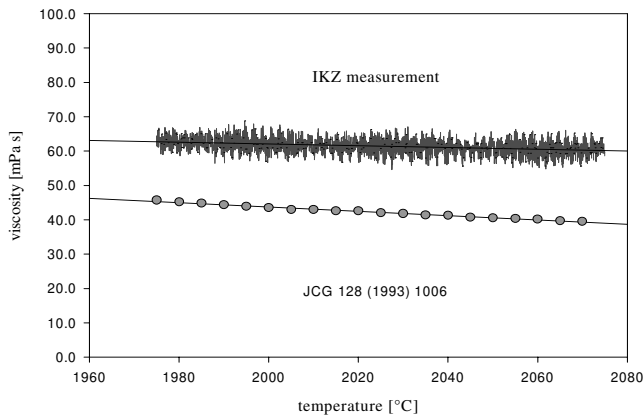


Fig. 11: Viskosität der YAG-Schmelze, als Vergleich existiert nur diese Publikation

und langsam angehoben. Die Abreisskraft ist ebenfalls ein Mass für die Oberflächenspannung. Mit diesem Verfahren gelang es zwar die Oberflächenspannung der YAG- und YVO_4 -Schmelze zu messen, jedoch konnte eine – zweifellos vorhandene – Abhängigkeit von der Temperatur (Maximalwert 2100°C) für YVO_4 nicht eindeutig festgestellt werden. Die YAG-Werte liegen in der Größenordnung der Referenzliteratur (Fig. 12).

Zusammenfassend wird eingeschätzt, dass die Erfahrungen mit dem Rotationsviskosimeter durchweg positiv sind. Einer Anwendung dieser Methode für andere Schmelzen und bei hohen Temperaturen sollte nichts im Wege stehen.

Bei der Messung der Oberflächenspannung von YAG-ähnlichen Schmelzen ist das o.g. Verfahren anwendbar aber eigentlich nicht zu empfehlen. Insbesondere Benetzungsprobleme und die Risiken bei der notwendigen Verwendung teurer Iridiumtiegel bei Temperaturen um 2000°C sollten dazu führen ein anderes Verfahren zu erproben. Für YVO_4 -Schmelzen kommt

erschwerend hinzu, dass dieses Material auch chemisch nicht stabil ist und seine Konsistenz während der Messung ändert. Es gibt bereits Überlegungen, die sogenannte Blasenmethode einzusetzen, für die am IKZ gute apparative Voraussetzungen bestehen.

Die Messungen der Oberflächenspannung an einer YAG-Schmelze war bedeutend schwieriger. Ausgehend von einer Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes wurde die Wilhelmi-Platte bei konstanter Temperatur langsam aus der Schmelze herausgezogen. Das schlechte Benetzungsverhalten der Schmelze führt aber dazu, dass der an der Platte haftende Flüssigkeitsfilm durch das Eigengewicht abreißt, bevor der für die Oberflächenspannung signifikante Hub erreicht ist. Abhilfe schaffte zunächst der Einsatz des sogenannten Du Nouy-Ringes. Dabei wird ein schmaler Iridiumring mit der Schmelzoberfläche in Kontakt gebracht

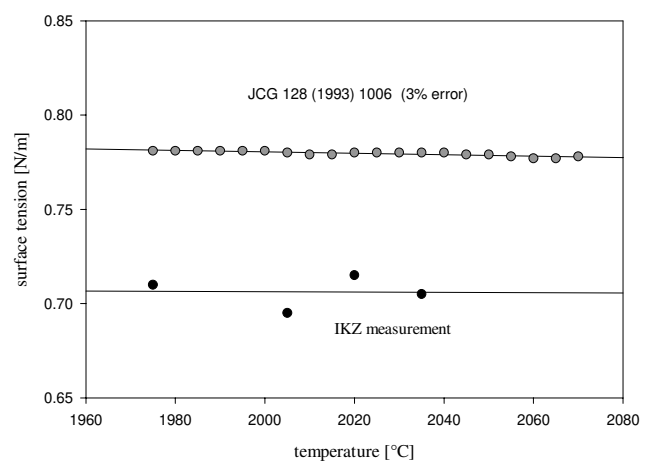


Fig. 12: Oberflächenspannung der YAG-Schmelze, als Vergleich existiert nur diese Publikation

6.3. Verwertbarkeit der Ergebnisse

Das Projekt war für die Partner, FEE und JLU, bis zum 30.04.2003 verlängert worden. Insofern müssen in ein abschliessendes Urteil auch deren Belange einfließen, insbesondere der Industriepartner FEE wird dazu detailliert Auskunft geben.

Aus Sicht des ZE wird das numerische 2D-Modell vom Projektpartner FEE und im IKZ herangezogen, um den Züchtungsvorgang zu optimieren. Es gibt ferner ein grosses Interesse von Fachkollegen anderer Universitäten und von KMU-Vertretern, die Oxidkristalle produzieren. Es wird allerdings meistens erwartet, dass vom IKZ eine Dienstleistung in Form der Bereitstellung der spezifischen numerischen Ergebnisse erfolgt. Dafür fehlt aber die personelle Grundlage.

Die Entwicklungsarbeit am Quellcode des numerischen Verfahrens ENTWIFE [5] (Abstimmung Hardware/Software) wird im IKZ verbreitet für andere Simulationsaufgaben genutzt. Die Implementierung des MPI-Konzeptes in Verbindung mit dem am IKZ installierten Linux-Cluster haben dazu geführt, dass der Code zur Standardsoftware bei der Simulation verschiedener Kristallzüchtungsverfahren geworden ist.

Zur Zeit wird geprüft, ob die Optimierung der thermisch aktiven Einbauten im Züchtungsgefäss Gegenstand von Schutzrechten sein sollte. Von Seiten der Numerik sind die Voraussetzungen gegeben, wenn diese Einbauten rotationssymmetrisch angeordnet sind (2D). Abschliessende Tests und die Bewertung durch Züchter des IKZ und seitens des FEE steht noch aus.

6.4. Erreichter Stand und Publikationen

Die in dem Projekt zusammengefasste Kompetenz der drei Partner hat zu einem hohen Stand der Aufklärung nichtlinearer dynamischer Vorgänge bei der Czochralski-Züchtung von Oxidkristallen geführt. Die sinnvolle Kombination von Modellexperimenten (JLU), Transmissionsmessungen (JLU), Züchtungsexperimenten (FEE), Messung von Stoffparametern (IKZ) und numerischer Analyse (IKZ) haben den Erkenntnisstand zur „flat interface“ Züchtung ganz wesentlich erweitert. Als Referenz sei insbesondere auf ein BMBF-Projekt „Grundlagen für die Züchtung grossvolumiger Nd:YAG-Kristalle mit flacher Interface für Hochleistungs-Festkörperlaser“ (FKZ.: 13 N 5949) [6] verwiesen, das zwar in seiner technologischen Sichtweise befriedigt, im Hinblick auf die Behandlung der nichtlinearen physikalischen Phänomene aber diverse Schwachstellen aufweist.

Andererseits muss kritisch vermerkt werden, dass einige wichtige geplante Ziele nicht, oder nur teilweise erreicht wurden. Dass sich die Messungen der Stoffparameter bei YVO₄-Schmelzen so problematisch gestalten würden, war nicht vorauszusehen, zumal der Schmelzpunkt niedriger ist als bei YAG. Viel wichtiger aus der Sicht des ZE ist, dass es im Projektzeitraum nicht gelang, den wichtigen Übergang von der 2D zur 3D-Simulation zu vollziehen. Wichtige, nicht hinreichend geklärte Phänomene bei der Züchtung von Oxidkristallen aus der Schmelze, wie „spoke pattern“, „striations“ und „Korkenzieherwachstum“, sind 3D-Erscheinungen.

Die Ergebnisse sind auf verschiedenen nationalen und internationalen Fachtagungen vorgestellt worden. Die Untersuchungen zur Parameteridentifikation (Diffusionskoeffizient) hochschmelzender Oxide sind in HEAT TRANSFER III, „Advanced Computational Methods“, WITpress 2002, veröffentlicht.

Folgende Publikationen zu den Ergebnissen sind erschienen:

Z. Galazka, H. Wilke, „Influence of Marangoni convection on the flow pattern in the melt during growth of $Y_3Al_5O_{12}$ single crystals by the Czochralski method”, J. Crystal Growth 216 (2000) 389

Z. Galazka, H. Wilke, „Heat transfer and fluid flow during growth of $Y_3Al_5O_{12}$ single crystals using the Czochralski method”, Cryst. Res. Technol. 35 (2000) 1263

P. Hintz, D. Schwabe, H. Wilke, „Convection in a Czochralski crucible – Part I: non-rotating crystal“, J. Crystal Growth 222 (2001) 343

Folgende Publikationen zu den Ergebnissen sind eingereicht:

Z. Galazka, D. Schwabe, H. Wilke, „Influence of internal radiation on the heat transfer during growth of YAG single crystals by the Czochralski method”, Cryst. Res. Technol., 2003

D. Schwabe, R. R. Sumathi, H. Wilke, Interface shapes and interface inversion of high melting point oxides: experimental and numerical modeling“, J. Crystal Growth, 2003

6.5. Literaturangaben

1. M. Mihelcic, H. Wenzel, K. Wingerath, Berichte des Forschungszentrums Jülich, Nr. 2697(1992)
2. S. Kuppurao, S. Brandon, J.J.Derby, J. Crystal Growth 155 (1995) 93
3. S. Kuppurao, J.J. Derby, S. Brandon, University of Minnesota, Report USMI 94/205
4. Q. Xiao, S Kuppurao, A.Yeckel, J.J. Derby, University of Minnesota, Report USMI 95/134
5. K.A. Cliffe, www.sercoassurance.com/entwife/,
6. „Grundlagen für die Züchtung grossvolumiger Nd:YAG-Kristalle mit flacher Interface für Hochleistungs-Festkörperlaser“ BMBF-Projekt, FKZ.: 13 N 5949