

– Raport științific –

Etapa 1: Modelarea transportului de căldură într-o configurație de tip Czochralski pentru creșterea cristalelor de siliciu

Activitatea 1.1: Dezvoltarea unui model 3-dimensional de convecție (convecție, difuzie) pentru o configurație Czochralski utilizând programul de simulare STHAMAS3D

Primul pas pentru studierea fenomenelor de transport într-o instalație de tip Czochralski pentru creșterea cristalelor îl reprezintă definirea unui sistem solid-lichid pentru o astfel de configurație. Pentru realizarea modelărilor numerice se utilizează programul de simulare STHAMAS3D, software ce a fost deja validat de rezultate experimentale pentru sisteme de tip Czochralski pentru creșterea Siliciului [1], [2].

Domeniul de calcul constă din două zone, cristal și topitură așa cum se vede în Fig. 1.

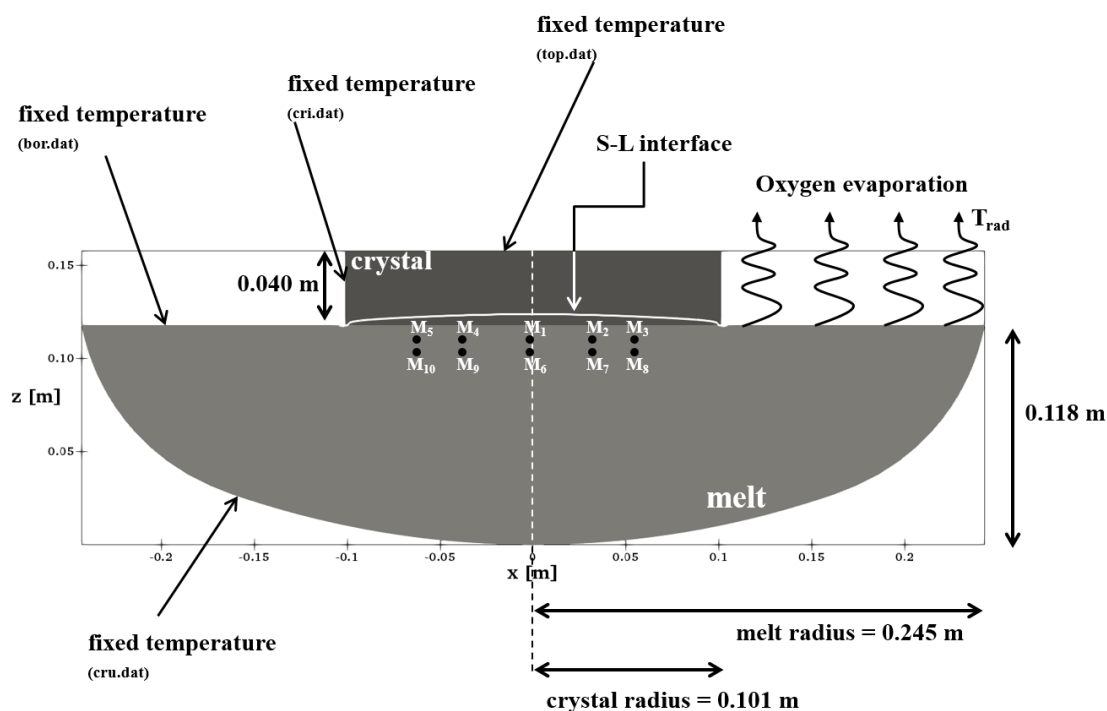


Figura 1. Reprezentarea schematică a geometriei de tip Cz utilizată în modelarea numerică

Modelul numeric tridimensional este format dintr-un cristal cilindric cu diametrul de aproximativ 200 mm și o înălțime de 4 cm. Creuzetul ce conține topitura are o formă emisferică cu un diametru de 490 de mm și o înălțime de 11,8 cm.

Procedura de discretizare a programului de simulare STHAMAS3D se bazează pe metoda volumului finit. Pentru descriere curgerilor turbulente în STHAMAS3D se folosește o combinație între schema cu diferențe finite înainte (UDS) și schema cu diferențe centrate (CDS) pentru interpolarea fluxurilor convective. Pentru corecțiile de presiune se aplică algoritmul SIMPLE, iar pentru rezolvarea integralelor de timp se utilizează metoda Euler implicită. Rețeaua bloc-structurată neortogonală utilizată pentru modelarea numerică a geometriei este împărțită în 11 blocuri formate din volume de control așa cum se vede în Figura 2(a), cu 5 din aceste blocuri fiind utilizate pentru discretizarea domeniului de calcul corespunzător cristalului (Figura 2(b)), iar 6 blocuri sunt utilizate pentru discretizarea topiturii (Figura 2(c)).

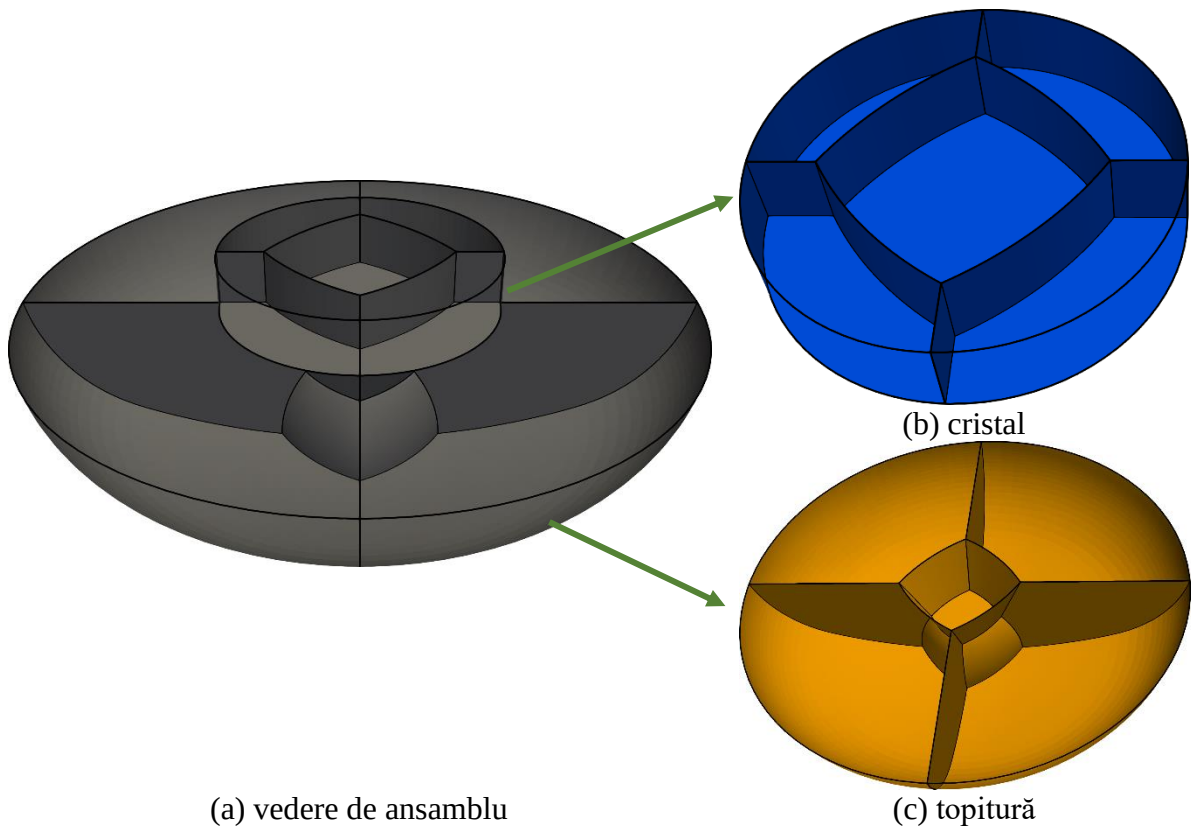


Figura 2. Domeniul de calcul bloc structurat utilizat în modelările numerice ale geometriei Czocharlski

Modelul matematic utilizat pentru descrierea unui fluid incompresibil este compus din ecuațiile Navier-Stokes:

- ecuația de conservare a masei:

$$\nabla \vec{v} = 0$$

- ecuația de conservare a impulsului:

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{v} \nabla \vec{v} \right) = -\nabla p + \mu \nabla^2 \vec{v} + \vec{F}$$

- ecuația de transport a căldurii:

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(k \nabla T) - \rho C_p \vec{v} \nabla T$$

- ecuația pentru difuzia de impurități:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla(D \nabla c) - \vec{v} \nabla c$$

unde $\vec{v}$ este viteza fluidului, ρ densitatea fluidului, p este presiune, C_p este capacitatea calorică iar k reprezintă conductivitatea termică. Pentru ecuația de difuzie a impurităților, se mai adaugă două variabile: c concentrația de impurități și D coeficientul de difuzie al dopanților în topitură

Termenul de forță din ecuația de conservare a impulsului este dat de aproximația Boussinesq:

$$\vec{F} = -\rho T_{ref} \vec{g} (T - T_{ref})$$

unde $\vec{g}$ este accelerația gravitațională.

La nivelul interfeței solid-lichid se ia în considerare generarea de căldură latentă pentru viteza de creștere a cristalului, v_g , fixată, pentru aceste studii, la $2 \cdot 10^{-5}$ m/s:

$$k_S \nabla T|_S k_L \nabla T|_L = \rho_S v_g \Delta H$$

unde k_S și k_L sunt conductivitatea termică în solid, respectiv în lichid, iar ΔH este căldura latentă.

Condițiile pe frontieră pentru temperatură sunt adaptate dintr-o modelare numerică 2D globale a unei geometrii cu dimensiuni similare, realizată la Institutul SINTEF de Materiale și Chimie din Norvegia. Pentru a putea fixa pe frontiere profilul de temperatură preluat din modelarea numerică bidimensională, condiții de tip Dirichlet s-au impus pe perețele creuzetului, pe partea laterală și cea de sus a cristalului, precum și la nivelul suprafeței libere a topiturii. Pentru a încărca aceste condiții pe frontieră pentru temperatură se citesc, în momentul rulării, fișierele *cru.dat*, *cri.dat*, *top.dat* și respectiv, *bor.dat* (așa cum e indicat în Figura 1). Fișierele conțin numărul de puncte în care se fixează temperatura de-a lungul unei frontiere, coordonatele fiecărui punct și temperatura fixată în acel punct.

Pentru a studia difuzia de impurități în topitură, în modelul dezvoltat, s-a luat în calcul posibilitatea de a fixa o concentrație de dopanți pe pereții creuzetului, la interfața dintre topitură și creuzet. Pentru studiul difuziei impurităților de oxigen la intersecția dintre lichid și perețele creuzetului s-a fixat concentrația de oxigen ca o funcție ce depinde de temperatura [3]:

$$C_O(T) = 0.5 \cdot 10^{23} \cdot \frac{1.32 \cdot \exp(-7150/T - 6.99)}{1 - 1.32 \cdot \exp(-7150/T - 6.99)}$$

Concentrația C_O este exprimată în atomi/cm³.

De asemenea, la nivelul suprafeței libere se ia în considerare evaporarea oxigenului[3]:

$$-D_O \nabla C = R(T)C$$

unde D_O reprezintă coeficientul de difuzie al oxigenului în topitura de siliciu, iar C este concentrația de oxigen locală la nivelul suprafeței libere. Viteza de evaporare a oxigenului se consideră a fi o funcție de temperatură, astfel:

$$R(T) = 5.9152 \cdot 10^7 \cdot e^{-\frac{41559}{T}}$$

exprimată în m/s.

La interfața solid-lichid se ia în considerare segregarea impurităților:

$$\rho_S D_S \nabla C|_S - \rho_L D_L \nabla C|_L = \rho_S (1 - k_0) v_g C_L$$

D_L și D_S reprezintă coeficienții de difuzie în topitură și în cristal, iar k_0 este coeficientul de segregare. Pentru a se seta o condiție de flux zero la nivelul interfeței solid-lichid, coeficientul de difuzie al impurităților în solid trebuie fixat la 0, iar coeficientul de segregare, k_0 , se va egala cu 1.

Inițial, în topitură, se consideră a avea o concentrație de impurități nulă.

Proprietățile de material ale topiturii și cristalului de siliciu utilizate în modelul numeric dezvoltat sunt date în Tabelul 1.

Parametru	Valoare		Unitatea de măsură
	<i>Cristal de Si</i>	<i>Topitură de Si</i>	
Conductivitatea termică, $k_{S,L}$	22	66.5	W/m·K
Căldura specifică, c_p	927	911	J/kg·K
Densitatea, ρ	2330	2570	kg/m ³
Temperatura de topire, T_m	1685	1685	K
Vâscozitatea, η	-	0.0008	kg/m.s

Tabelul 1. Proprietățile de material ale siliciului

Viteza pe perețele creuzetului se aproximează cu ajutorul vitezei de rotație a creuzetului, ω_{cru} :

$$\vec{v} = 2\pi\vec{\omega}_{cru} \times r$$

iar la nivelul interfeței solid-lichid, pentru calculul vitezei se ia în considerare viteza de rotație a cristalului, ω_{cry} :

$$\vec{v} = 2\pi\vec{\omega}_{cry} \times r$$

Modelul numeric dezvoltat în cadrul acestei activități va fi utilizat pentru modelările numerice propuse în acest proiect.

Activitatea 1.2: Studiul influenței gradului de rafinare al rețelei de calcul asupra fluctuațiilor de temperatură

În general, într-o instalație Czochralski pentru creșterea cristalelor, pentru a obține un lingou, creuzetul și cristalul se rotesc în direcții opuse. Pentru a pune în evidență influența pe care gradul de rafinare al rețelei îl are asupra fluctuațiilor de temperatură s-a ales un studiu de caz cu o viteză de rotație a creuzetului de 4 rpm și o viteză de rotație a cristalului de -10 rpm.

O problemă importantă pentru calitatea modelărilor numerice o reprezintă alegerea rețelei de calcul. O rafinare a rețelei este necesară pentru a rezolva straturile limită. Pentru a calcula valoarea stratului limită s-au definit câteva mărimi caracteristice [4]:

- lungimea caracteristică, L , s-a ales a fi raza creuzetului:

$$L = D_{cru} = 0.245 \text{ m}$$

- viteza caracteristică, U , se definește în funcție de L și de viteza de rotație a creuzetului:

$$U = L \cdot \omega_{cru}$$

Pentru a respecta unitățile de măsură ale vitezei caracteristice, viteza de rotație a creuzetului trebuie exprimată în rad/s în loc de rpm. Astfel că, $\omega_{cru} = 4 \text{ rpm} = 0.42 \text{ rad/s}$. Prin urmare, viteza caracteristică va fi:

$$U = L \cdot \omega_{cru} = 0.245 \cdot 0.42 = 0.1029 \text{ m/s}$$

Folosind acești parametri și proprietățile de material din Tabelul 1, putem calcula numărul Reynolds astfel:

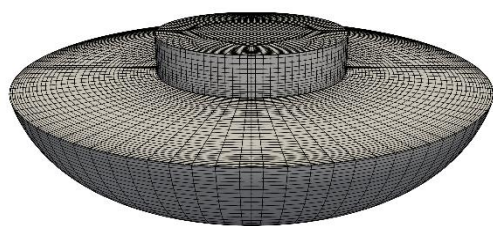
$$Re = \frac{\rho UL}{\eta} \approx 0.81 \cdot 10^5$$

Pentru a curgere cu $Re < 2 \cdot 10^5$, grosimea stratului limită se definește ca [5]:

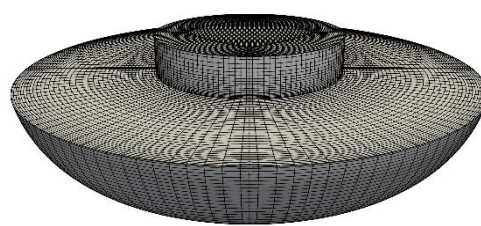
$$\delta = \frac{L \cdot 4.64}{\sqrt{Re}}$$

Prin urmare, în cazul studiat în cadrul acestei activități, statul limită va fi $\delta \approx 4 \text{ mm}$.

Diferite grade de rafinare ale rețelei au fost studiate pentru a determina numărul de volume de control necesare pentru a obține o soluție ce nu depinde de rețeaua de calcul. Simulările au început cu o rețea grosieră cu 286625 volume de control. Această rețea a fost apoi rafinată ajungând astfel la 485760 de volume de control. Cele două rețele de calcul sunt prezentate în Figura 3.



(a) rețea grobă

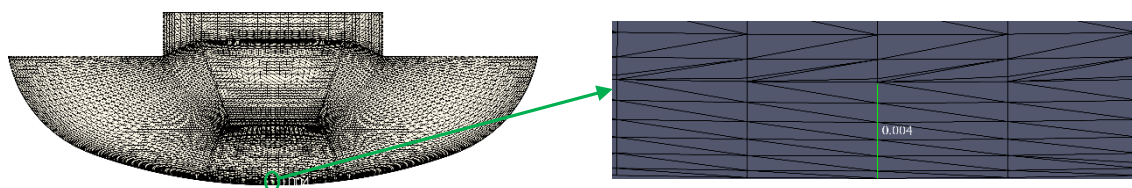


(b) rețea rafinată

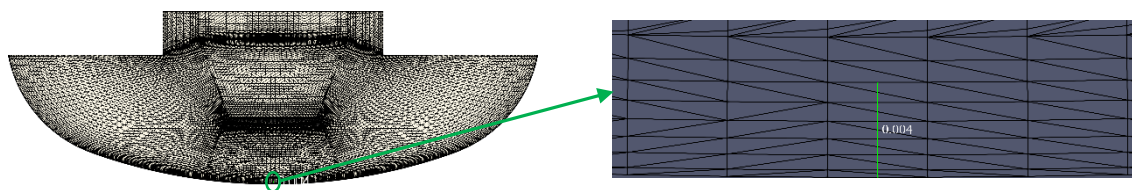
Figura 3. Prezentare de ansamblu a rețelei de calcul utilizate în modelările numerice

Un studiu detaliat al rețelelor de calcul într-o secțiune transversală (Figura 4) ne arată că, în același loc de pe domeniul de calcul, apare o diferență semnificativă între numărul de volume de control cuprinse în stratul limită. Pentru rețeaua grosieră avem 6 volume de control în stratul limită, în timp ce pentru rețeaua rafinată, numărul de volume de control se dublează, Figura 4(b) indicând că, pe o lungime de 4 mm, avem 12 volume de control.

De asemenea, comparând Figura 4(a) cu Figura 4(b) observăm că lățimea fiecărui volum de control este mai mică în cazul rețelei rafinate, ceea ce va duce la un număr mai mare de puncte de rețea în apropiere de marginea creuzetului, iar acest lucru va duce la o mai bună aproximație a soluției numerice.



(a) coarse grid



(b) refined grid

Figura 4. Secțiune transversală (stânga) și strat limită (dreapta) pentru două grade de rafinare a rețelei

În plus, pentru a studia influența pe care gradul de rafinare a rețelei îl are asupra fluctuațiilor de temperatură în apropierea interfeței solid-lichid, 10 puncte monitor au fost alese pentru a înregistra evoluția în timp a temperaturii. Aceste puncte monitor sunt notate în Figura 1 cu MP1-MP10. Primele 5 puncte monitor sunt situate la 5 mm sub interfață, la o înălțime de 11,3 cm. Ultimele 5 puncte sunt la o înălțime de 10,8 cm, 10 mm sub interfața solid-lichid. Pentru discuțiile ce urmează ne vom concentra atenția asupra punctelor MP1, MP3 și MP5

dispuse așa cum se vede în Figura 1. Simulările au fost efectuate utilizând vitezele de rotație pentru creuzet și cristal menționate anterior ($\omega_{\text{cru}} = 4 \text{ rpm}$ și $\omega_{\text{cry}} = -10 \text{ rpm}$, respectiv) și s-au extins pe 300 s, în timp real.

Se observă din Figura 5 că, pentru MP1, situat pe axa de simetrie a cristalului, chiar sub interfața solid lichid, valorile de temperatură sunt mai mici decât în cazul celorlalte două puncte monitor. Se observă, de asemenea, că pentru toate cele trei puncte variațiile de temperatură sunt mai mici în cazul rețelei grosiere comparativ cu rețeaua rafinată. Acest lucru se datorează faptului că, în timp, avem mai multe vârfuri de temperatură în cazul rețelei rafinate. Dar, temperatura medie este mai mică în cazul rețelei rafinate, comparativ cu rețeaua grobă. În medie, temperatura este de 1686,97 K pentru rețeaua rafinată și 1687,13 K pentru rețeaua grosieră.

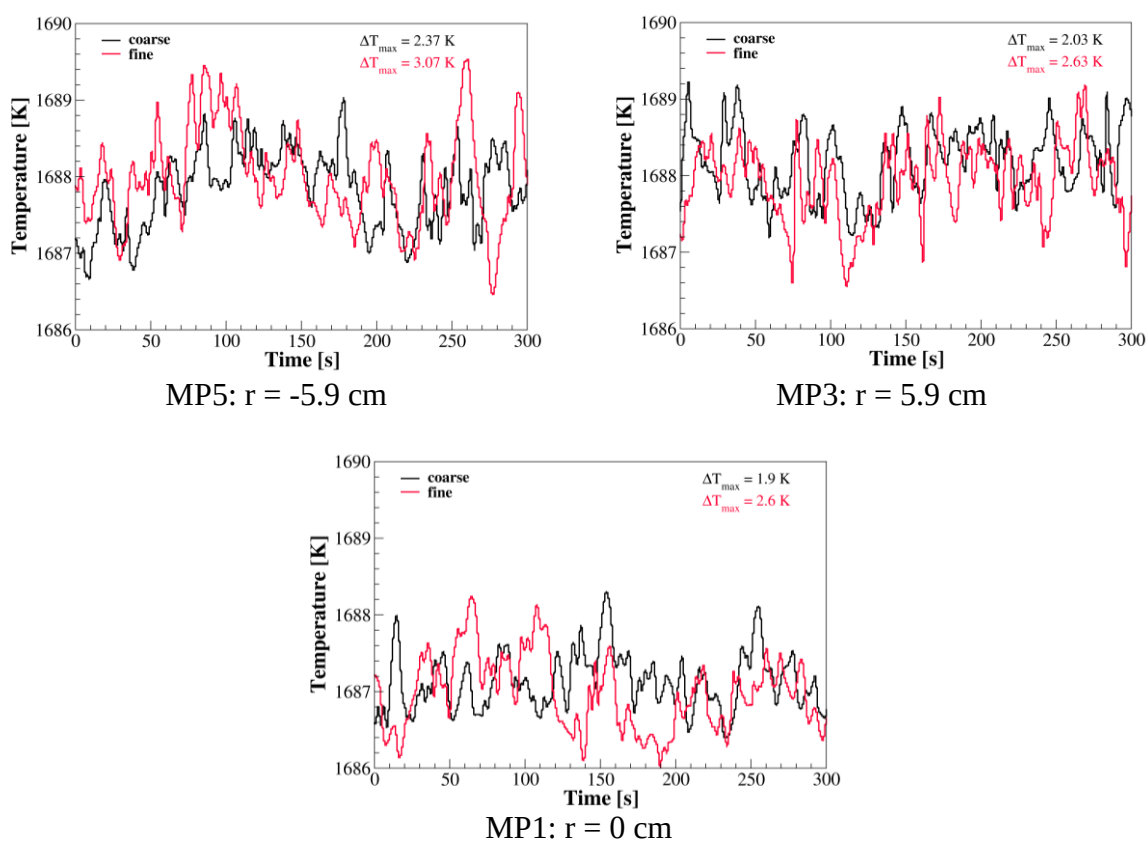


Figura 5. Evoluția în timp a temperaturii în trei puncte monitor situate sub interfața dintre cristal și topitură pe axa centrală a cristalului, MP1, și, simetric față de această axă, MP5 și MP3

Este de așteptat ca temperatura să varieze mai mult în jurul interfeței de solidificare din cauza influenței pe care o are gradientul de temperatură din cristal și datorită pierderii de energie

la nivelul interfeței libere a topiturii. Prin urmare, se poate spune că o rețea mai rafinată poate oferi o descriere mai bună a curgerii topiturii la nivelul interfeței.

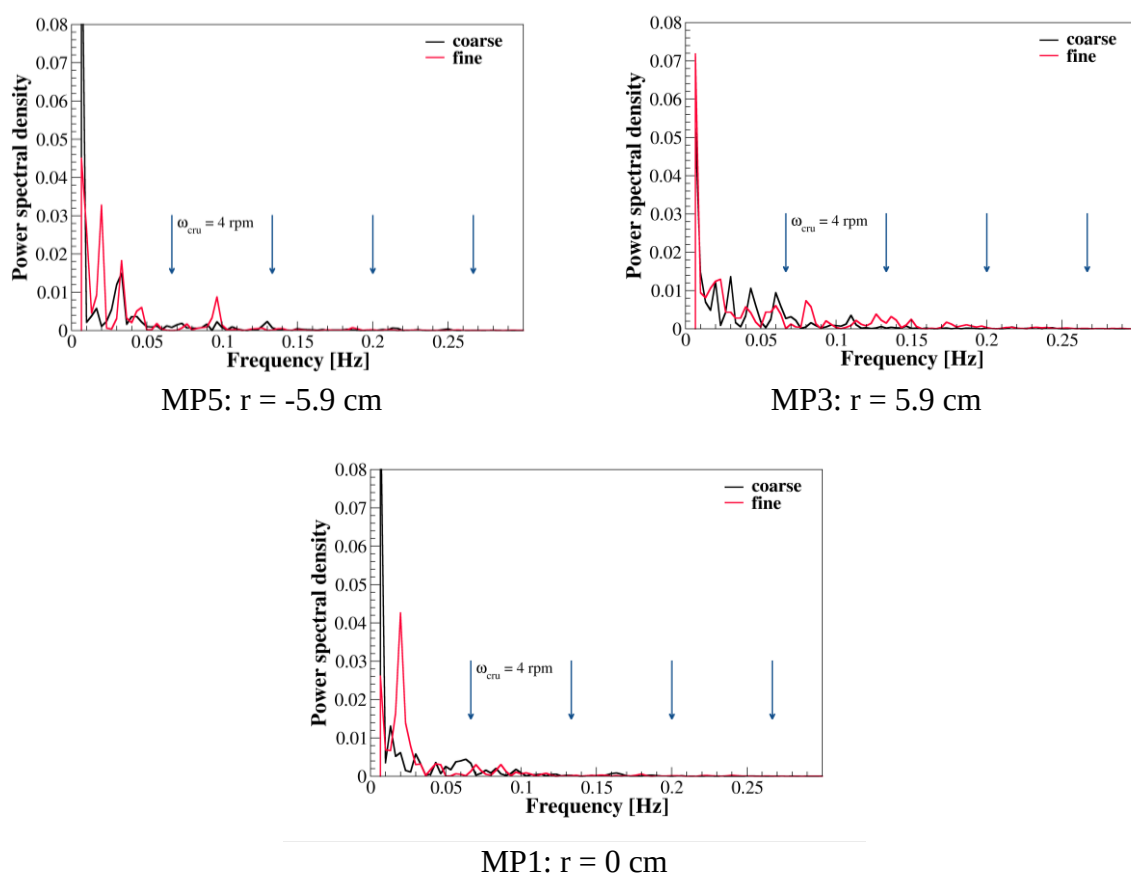


Figura 6. Power spectral density pentru trei puncte monitor: MP1, MP5 și MP3

Din Figura 6 se observă că, pentru punctele situate în apropierea marginilor creuzetului, există o bună corelație între densitatea de putere spectrală între cele două grade de rafinare ale rețelei. Frecvențele dominante se formează în apropierea vitezei de rotație a creuzetului. În cazul punctului central, pentru rețeaua rafinată, se observă o mică deplasare a maximului frecvenței către dreapta.

Secțiunile verticale prezentate în Figura 7 arată că, avem o convecție puternică sub interfața solid-lichid. Figura 7(b) pune în evidență faptul că rețeaua rafinată surprinde mai multe detalii ale curgerii topiturii atât la nivelul suprafeței libere cât și la marginea creuzetului observându-se o îndesire a izotermelor în aceste zone.

Secțiunile orizontale din topitură, situate la o înălțime de 11,3 cm de la baza creuzetului indică faptul că pentru ambele rețele considerate în acest studiu gradientul de temperatura radial este similar cu excepția zonei centrale. În Figura 8 se observă că, în zona aflată sub interfața de solidificare, pentru rețeaua rafinată avem o variație mai mare de temperatură, însă

diferența de temperatură dintre cele două rețele nu este semnificativă, profilul de temperatură fiind aproape la fel pentru cele două rețele.

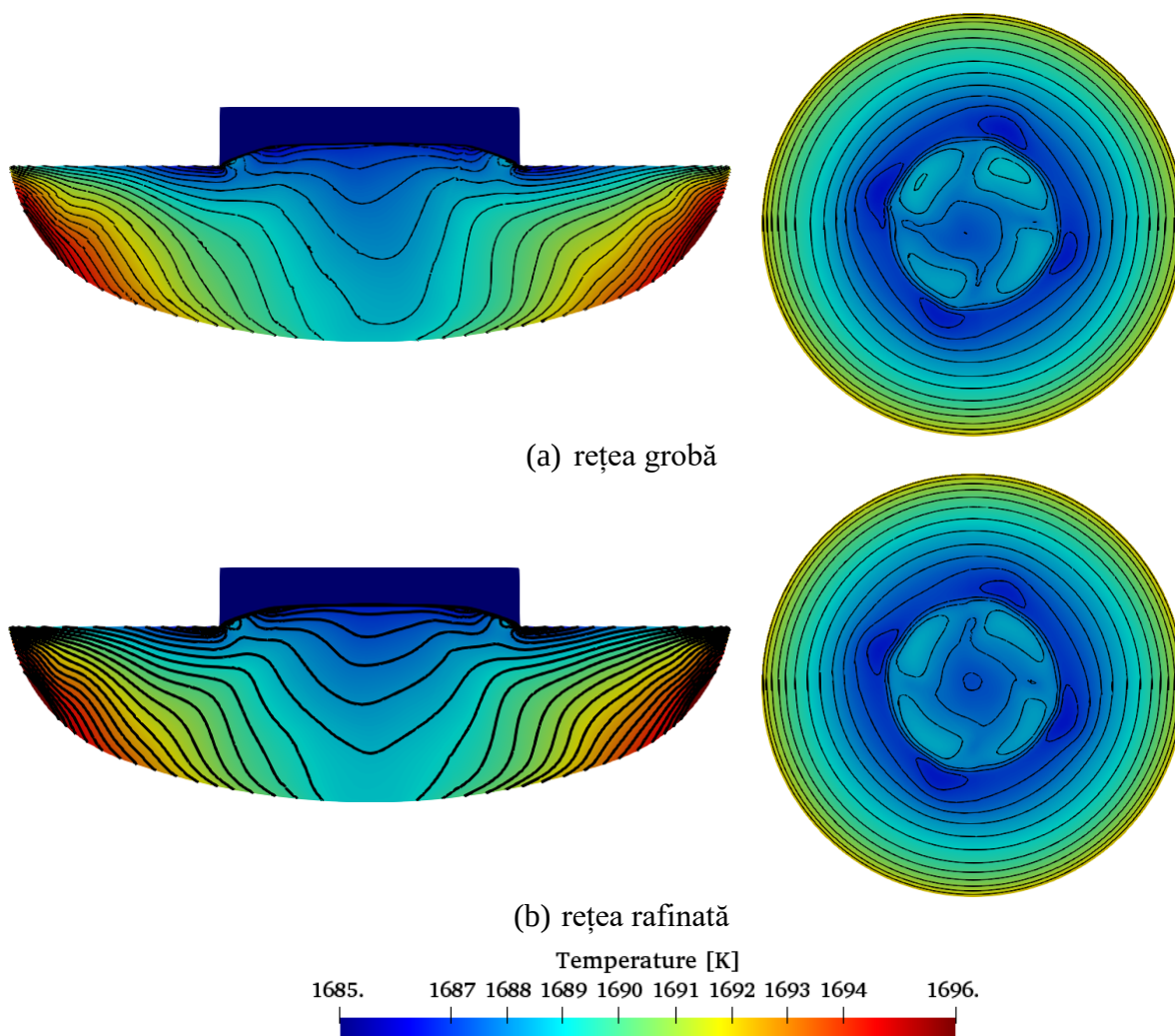


Figura 7. Câmpul de temperatură vertical (stânga) și orizontal (dreapta) pentru două grade de rafinare a rețelei

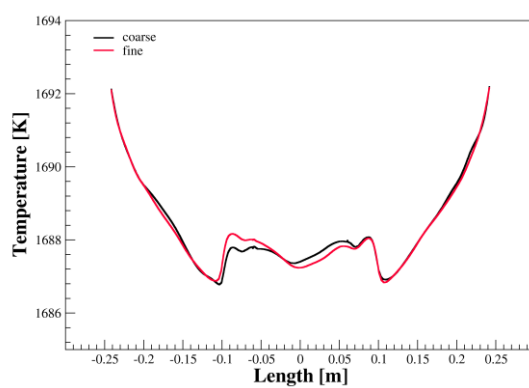


Figura 8. Profil de temperatură de-a lungul unei secțiuni orizontale aflate la 5 mm sub interfața de solidificare

Bazându-ne pe aceste observații, rețeaua rafinată, conținând 485760 de elemente de rețea, va fi utilizată pentru realizarea următoarelor activități propuse în acest proiect.

Bibliografie:

- [1] D. Vizman, J. Friedrich, G. Mueller, *J. Cryst. Growth* 230, 73 (2001).
- [2] D. Vizman, O. Grabner, G. Mueller, *J. Cryst. Growth* 233, 687 (2001).
- [3] S. Hisamatsu et al., *Journal of Crystal Growth* 311, 2615 (2009).
- [4] A. Muiznieks, A. Krauze, B. Nacke, *J. Cryst. Growth* 303, 211 (2007).
- [5] D. Jaćimovski, et al., *Powder Technol.* 303, 68 (2016).