

# Numerical Simulation on the Solute Concentration Distribution in Sapphire Crystals During Czochralski Growth Method

Tran-Phu Nguyen 

Ho Chi Minh City University of Technology and Education, Ho Chi Minh City, Vietnam

\*Corresponding author. Email: [phunt@hcmute.edu.vn](mailto:phunt@hcmute.edu.vn)

## ARTICLE INFO

Received: 15/08/2023  
Revised: 26/08/2023  
Accepted: 28/08/2023  
Published: 28/02/2024

## KEYWORDS

Numerical simulation;  
Sapphire crystal;  
Czochralski growth method;  
Solute concentration;  
Chemical reaction.

## ABSTRACT

In this study, the flow, temperature and solute concentration distributions in the melt during the CZ growth process are numerically investigated. The results show that the magnitude and distribution of the solute concentration in the melt is strongly affected by the convective flow and the thermal distribution, since both Prandtl and Schmidt numbers are very high. The buoyancy convection forms a vortex within the melt, flowing up at the sidewall and down at the centerline. When the chemical reaction between the alumina oxide and the tungsten crucible wall is taken into account, the maximum tungsten trioxide concentration always occurs at the crucible sidewall where the maximum temperature in the melt is found and its concentration at the crystal-melt interface increases from the triple point to the centerline. When the graphite effect is considered, the maximum carbon concentration always occurs at the free surface of the melt closed to the crucible sidewall and the carbon concentration at the crystal-melt interface decreases from the triple point to the centerline of crystal.

# Mô Phỏng Số về sự Phân Bố Nồng Độ Tạp Chất Các bon trong Tinh Thể Sa phia Được Phát Triển Bằng Phương Pháp Czochralski

Nguyễn Trần Phú 

Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Thành Phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

\*Tác giả liên hệ. Email: [phunt@hcmute.edu.vn](mailto:phunt@hcmute.edu.vn)

## THÔNG TIN BÀI BÁO

Ngày nhận bài: 15/08/2023  
Ngày hoàn thiện: 26/08/2023  
Ngày chấp nhận đăng: 28/08/2023  
Ngày đăng: 28/02/2024

## TỪ KHÓA

Mô phỏng số;  
Tinh thể sa phia;  
Phương pháp Czochralski;  
Nồng độ tạp chất;  
Phản ứng hóa học.

## TÓM TẮT

Trong nghiên cứu này, sự phân bố dòng chảy, nhiệt độ và nồng độ tạp chất trong sa phia nóng chảy bằng phương pháp Czochralski được nghiên cứu bằng mô hình số. Kết quả cho thấy độ lớn và sự phân bố của nồng độ tạp chất trong sa phia nóng chảy bị ảnh hưởng mạnh mẽ bởi dòng đối lưu và sự phân bố nhiệt, nguyên nhân là do cả số Prandtl và số Schmidt đều có giá trị rất lớn. Dòng chảy đối lưu tạo ra một dòng xoáy bên trong sa phia nóng chảy, đi lên tại phía thành và đi xuống tại tâm của nồi chứa. Khi phản ứng hóa học giữa nhôm ô xít và vonfram được xét đến, vonfram ô xít có nồng độ cao nhất tại thành nồi chứa, nơi có nhiệt độ lớn nhất trong hệ thống, và nồng độ của nó tại bề mặt rắn-lỏng của tinh thể sẽ tăng nếu xét từ điểm ba thể đến đường tâm của tinh thể. Khi các phản ứng hóa học của than chì được xét đến, nồng độ các bon là cực đại ở bề mặt tự do lỏng-khí, gần với vách nồi chứa và nồng độ các bon tại bề mặt rắn-lỏng của tinh thể giảm nếu xét từ điểm ba thể đến đường tâm của tinh thể.

Doi: <https://doi.org/10.54644/jte.2024.1450>

Copyright © JTE. This is an open access article distributed under the terms and conditions of the [Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/) which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium for non-commercial purpose, provided the original work is properly cited.

## 1. Giới thiệu

Hiện nay tinh thể đơn sa phia được sử dụng rộng rãi như là một vật liệu quan trọng trong công nghệ điện tử quang hiện đại và nhu cầu về chất nền sa phia đã tăng lên đáng kể trong những năm gần đây [1]-[2]. Đã có một số nghiên cứu về sự hình thành, phân phối và cơ chế vận chuyển của các bọt khí trong

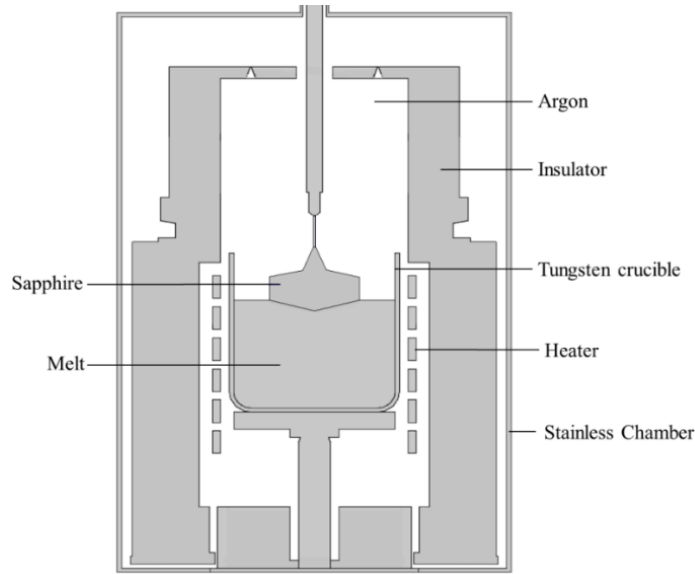
tinh thể sa phía. Bunoiu và các cộng sự [3] phát hiện ra rằng sự hình thành bọt khí trong tinh thể sapphire có thể bắt nguồn từ các nguyên nhân: khí sinh ra từ sự phân hủy nhiệt của alumina nóng chảy; phản ứng giữa oxit nhôm nóng chảy và nồi nấu bằng kim loại, khí hòa tan là thành phần ban đầu trong nguyên liệu thô, không khí quanh nồi, vật liệu nồi nấu và ảnh hưởng của các thiết bị làm bằng than chì. Ngoài ra, khi tính đến ảnh hưởng của than chì, nó có ảnh hưởng chính đến các loại khí chính (CO). Borodin và các cộng sự [4] đã nghiên cứu ảnh hưởng của thiết kế của khuôn đến sự phân bố bọt khí trong các thanh sa phía được sản xuất bằng phương pháp Stepanov trong các thí nghiệm. Kết quả của họ chỉ ra rằng khu vực bề mặt kết tinh nơi vận tốc của sa phía nóng chảy ở mức thấp nhất, thì có nồng độ tạp chất cao nhất. Sau khi phân tích thành phần khí trong hệ thống W-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Kostomarov và các cộng sự [5] tìm ra rằng W(s) có thể phản ứng với Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(l) nóng chảy trong lò áp suất thấp. Li và các cộng sự [6] quan sát thấy rằng ở tốc độ kết tinh thấp trong quá trình phát triển tinh thể bằng phương pháp CZ, bề mặt tinh thể sa phía trở nên phẳng, mật độ bọt khí thấp và tập trung gần cạnh bề mặt tinh thể. Hơn nữa, thành phần của nhôm oxit nóng chảy phụ thuộc rõ rệt vào nhiệt độ của nồi nung kim loại và của sa phía nóng chảy. Cụ thể, các phản ứng phân ly bên trong nhôm oxit nóng chảy có thể tạo thành nhôm và oxy ở nhiệt độ quá cao ( $T > 2150^{\circ}\text{C}$ ). Stoddard và các cộng sự [7] đã nghiên cứu về quá trình hình thành khuyết tật trên bề mặt tinh thể được phát triển bằng phương pháp EFG thông qua loạt thí nghiệm ở cả điều kiện được gia nhiệt và điều kiện môi trường.

Đã có một vài mô phỏng dựa trên phương pháp số về quá trình chuyển động của tạp chất trong quá trình phát triển tinh thể sa phía. Từ năm 2000 đến năm 2005, Nicoara và các cộng sự [8]-[11] đã nghiên cứu dòng nhiệt và sự phân tách tạp chất trong hệ thống phát triển tinh thể EFG thông qua các mô phỏng. Kết quả chỉ ra rằng bọt khí sẽ hình thành ở những nơi có nồng độ tạp chất cao và sự phân tách tạp chất rất quan trọng đối với việc phán đoán phân bố bọt khí. Sự chuyển động của dòng chảy có ảnh hưởng mạnh mẽ đến sự phân tách và phân phối tạp chất, cụ thể là, tạp chất được phát hiện gần khu vực bề mặt sa phía, nơi mà tại đó chuyển động của dòng chảy là khá nhỏ. Mô hình mô phỏng và thực nghiệm kiểm chứng về quá trình hình thành bọt khí trong mô hình cũng đã được xây dựng bởi Borodin và các cộng sự [12]. Các kết quả đều cho thấy rằng sự thay đổi biên dạng dòng chảy trong nồi nấu có ảnh hưởng lớn đến mật độ bọt khí tại mặt kết tinh, cũng như bên trong tinh thể. Năm 2008, Fang và các cộng sự [13] đã mô phỏng sự phân bố nhiệt độ và vận tốc của dòng chảy nhằm làm giảm mật độ bọt khí bằng cách kiểm soát dòng sa phía nóng chảy. Họ phát hiện ra rằng khi tốc độ quay của tinh thể sa phía tăng lên, bề mặt của sa phía thay đổi từ lồi sang lõm, và có thể đẩy các tạp chất ra khỏi bề mặt sa phía. Năm 2017, Hur và các cộng sự [14] đã mô hình hóa sự phân bố tạp chất trong tinh thể sa phía. Họ phát hiện ra rằng bằng cách sử dụng một bộ gia nhiệt bổ sung, độ dốc nhiệt và độ lồi của bề mặt sa phía có thể giảm xuống và các tạp chất sẽ di chuyển đến các cạnh bên ngoài của bề mặt tinh thể. Mô phỏng của oxy và tạp chất carbon trong lò silic đa tinh thể hóa rắn vô hướng đã được nghiên cứu bởi Gao và các cộng sự [15]. Kết quả chỉ ra rằng CO tạo ra được vận chuyển ngược trở lại bề mặt nóng chảy và sau đó đi vào tinh thể nóng chảy bằng khuếch tán hoặc đối lưu, sau đó CO sẽ bị phân tách thành các nguyên tử C và O và đi vào tinh thể. Tuy nhiên, trong tất cả mô phỏng được đề cập trong các tài liệu trên, không có bất kỳ phản ứng hóa học nào trong hệ thống được tính đến. Thay vào đó, giá trị ban đầu của tạp chất được lấy từ các kết quả thí nghiệm và chuyển động của trường tạp chất sau đó được dự đoán thông qua sự di chuyển của dòng lưu chất. Điều này đã dẫn đến sự thiếu chính xác về giá trị của nồng độ tạp chất và khó dự đoán bọt khí trong tinh thể sa phía. Trong bài báo trước đây của tác giả, chỉ có phản ứng hóa học giữa nhôm oxit và tường nồi nung vonfram là được tính đến [16].

Trong nghiên cứu này, ảnh hưởng của trường nhiệt độ và trường vận tốc đối với nồng độ tạp chất trong tinh thể sa phía trong quá trình phát triển tinh thể bằng phương pháp Czochralski (CZ) được nghiên cứu bằng phương pháp số. Các phương trình vi phân chính và điều kiện biên được giải bằng phương pháp phân tử hữu hạn. Các phản ứng hóa học của sự phân hủy của sa phía nóng chảy, giữa than chì và oxy và sự hòa tan của CO trở lại sa phía nóng chảy được tính đến. Điều này có thể giúp cải thiện chất lượng của tinh thể sa phía bằng cách chỉ ra cách giảm mật độ khuyết tật bọt khí, đặc biệt là tạp chất dọc theo bề mặt sa phía, nhờ đó cải thiện chất lượng quang học của tinh thể sa phía.

## 2. Phương trình toán và quy trình mô phỏng

Quá trình truyền nhiệt, trạng thái của dòng chảy và vận chuyển tạp chất trong lò Czochralski được mô hình hóa trên mô hình đối xứng trục 2D; với sơ đồ nguyên lý được thể hiện trong Hình 1. Trong mô hình này, Vonfram được chọn làm vật liệu cho nồi nấu với kích thước 380 mm×400 mm×10 mm (đường kính×chiều cao×bề dày). Dòng khí Ar ở đỉnh lò với lưu lượng 4 lít/phút. Các giả định được áp dụng trong mô hình hiện tại như sau: (1) Mô hình là đối xứng trục 2D; (2) Quá trình được giả định như là ổn định do tốc độ phát triển tinh thể rất chậm (2 mm/giờ); (3) Sa phía nóng chảy được xem là chất lỏng Newton không nén được và khí Argon được coi là chảy tầng; (4) Tổn thất năng lượng do nhót và biên dạng của mặt tự do không đáng kể; (5) Sức căng bề mặt được cho là giảm tuyến tính với sự gia tăng nhiệt độ.



**Hình 1.** Sơ đồ nguyên lý mô hình tinh thể saphia trong lò Czochralski.

Phương trình chính cho trường nhiệt độ, trường vận tốc và trường tạp chất được thể hiện như sau:

Đối với dòng sa phía nóng chảy:

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0, \quad (1)$$

$$\rho_l \vec{u} \cdot \nabla \vec{u} = -\nabla \cdot p + \mu \nabla^2 \vec{u} + \rho_l \beta g (T - T_m) \vec{e}_z, \quad (2)$$

$$\rho_l c_{p,l} \vec{u} \cdot (\nabla T) + \nabla \cdot (-k_l \nabla T) = 0 \quad (3)$$

$$(\vec{u} \cdot \nabla) c_i = \nabla \cdot (D_i \nabla c_i) \quad (4)$$

$$dM = J_c A_c dt - J_e A_s dt - c_i k_0 v A_{cr} \quad (5)$$

Đối với tinh thể sa phía rắn:

$$\rho_c c_{p,c} v \cdot (\nabla T) + \nabla \cdot (-k_c \nabla T) = Q_{rad} \quad (6)$$

Đối với điện trở nhiệt:

$$\nabla \cdot (-k_h \nabla T) = q_h, \quad (7)$$

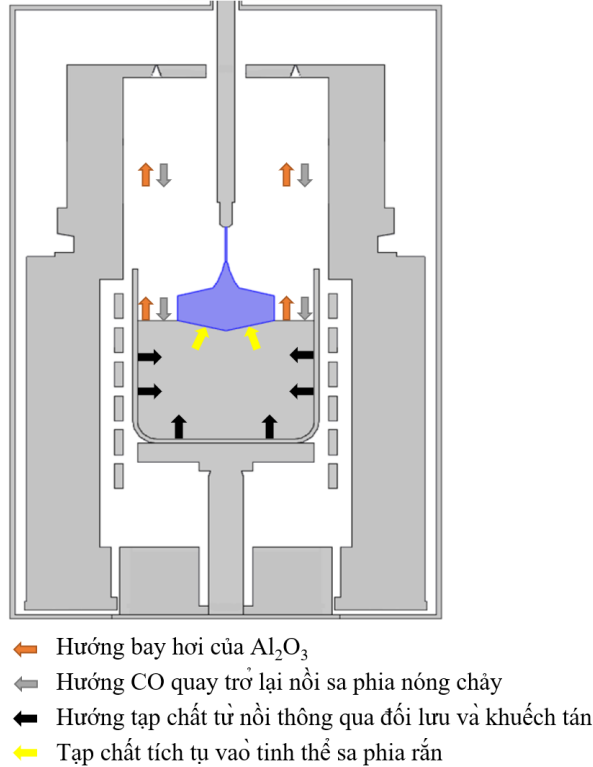
Đối với các vật rắn khác:

$$\nabla \cdot (-k_s \nabla T) = 0, \quad (8)$$

trong đó các chỉ số l, c, s, h, g lần lượt biểu thị phần sa phía nóng chảy, tinh thể rắn, các khối rắn khác, điện trở gia nhiệt và dòng khí;  $\vec{u}$  là vector vận tốc của sa phía nóng chảy;  $\rho$  là khối lượng riêng;  $\mu$  là độ nhớt động lực học;  $\beta$  là hệ số giãn nở nhiệt;  $g$  là gia tốc trọng trường;  $\vec{e}_z$  là vector đơn vị theo phương z;  $T$  là nhiệt độ và  $T_m$  là nhiệt độ nóng chảy của sa phía;  $c_p$  là nhiệt dung ở áp suất không đổi;  $c_i$  là nồng độ tạp chất;  $D_i$  là hệ số khuếch tán chất tan và chỉ số i là loại tạp chất;  $M$  là số chất tan trong dung dịch;  $J_c$  là dòng tạp chất từ quá trình hòa tan nồi nung;  $A_c$  là diện tích tiếp xúc giữa nồi nung và sa phía nóng

chảy;  $J_e$  là dòng bay hơi của dòng tạp chất;  $A_s$  là diện tích của bề mặt nóng chảy tự do;  $k_0$  là hệ số phân ly;  $v$  là tốc độ phát triển tinh thể;  $A_{cr}$  là diện tích phần tiếp xúc giữa phần rắn và nóng chảy của tinh thể;  $k_l$  và  $k_c$  lần lượt là độ dẫn nhiệt của sa phía nóng chảy và tinh thể;  $Q_{rad}$  là nguồn nhiệt từ nội bức xạ và  $q_h$  là nguồn nhiệt từ điện trở nhiệt. Phương trình (5) biểu thị sự bảo toàn khối lượng của các chất hòa tan trong lò CZ, tức là, sự thay đổi của các tạp chất trong quá trình nóng chảy phải bằng các tạp chất sinh ra trong quá trình phân hủy, trừ đi tạp chất rời khỏi sa phía nóng chảy do bay hơi ở bề mặt nóng chảy tự do và bằng cách phân tách tại bề mặt rắn-lỏng của tinh thể sa phía [17]. Trong nghiên cứu này, các phương trình truyền nội bức xạ được giải trực tiếp thông qua Phương pháp Discrete Ordinates [16].

Cơ chế vận chuyển tạp chất trong nghiên cứu này được minh họa trong Hình 2.



**Hình 2.** Cơ chế vận chuyển tạp chất trong lò Czochralski.

Tạp chất trong tinh thể được tạo ra từ 2 nguồn chính:

- Nguồn từ nồi nấu kim loại, bao gồm phản ứng hóa học giữa oxit nhôm và thành nồi nấu kim loại vonfram:



- Các phản ứng hóa học bao gồm sự phân hủy sa phía nóng chảy (10), phản ứng hóa học giữa than chì và oxy (11), và phản ứng hóa học cho sự hòa tan của CO trở lại sa phía nóng chảy (12):



Điều kiện biên cho trường nhiệt độ, vận tốc và tạp chất được thể hiện như sau:

Tại mặt đáy của sa phía lỏng:

$$-k_l \frac{\partial T_l}{\partial n} = \sigma \epsilon_l (T_l^4 - T_{amb,l}^4) \quad (13)$$

$$\vec{u} \cdot \vec{n} = 0 \quad (14)$$

$$\mu_l \frac{\partial u_l}{\partial n} - \mu_g \frac{\partial u_g}{\partial n} = \frac{\partial \gamma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial \tau} \quad (15)$$

$$J_e = D_g \frac{c_i p_A^*}{K T c_{Al_2O_3} Z} \quad (16)$$

Tại bề mặt sa phía rắn:

$$q_{rad} - k_c \frac{\partial T_c}{\partial n} = \sigma \varepsilon_c (T_c^4 - T_{amb,c}^4) \quad (17)$$

Tại bề mặt rắn-lỏng của tinh thể sa phía:

$$T = T_m = 2323K \quad (18)$$

$$k_c \frac{\partial T_c}{\partial n} - k_l \frac{\partial T_l}{\partial n} + q_{rad} = \rho_s \Delta L v \quad (19)$$

$$D_i \frac{\partial c_i}{\partial n} = -v(1 - k_0) c_i \quad (20)$$

Tại đường trục của nồi nung

$$\nabla T \cdot \vec{n} = 0 \quad (21)$$

$$\vec{u} \cdot \vec{n} = 0 \quad (22)$$

Tại bề mặt của các vật rắn khác:

$$-k_s \frac{\partial T_s}{\partial n} = \sigma \varepsilon_s (T_s^4 - T_{amb,s}^4) \quad (23)$$

Tại vách của nồi nung:

$$N_{WO_3} = \frac{1}{60} K_i \left( \frac{1}{M_W} \right) \left( \frac{1}{10^{-4}} \right) \quad (24)$$

$$N_{Al} = 2 \frac{1}{60} K_i \left( \frac{1}{M_W} \right) \left( \frac{1}{10^{-4}} \right) \quad (25)$$

$$K_i = \frac{d\Delta P}{dt} = 9.5 \times 10^2 \times \exp \left( \frac{-70,000}{RT} \right) \quad (26)$$

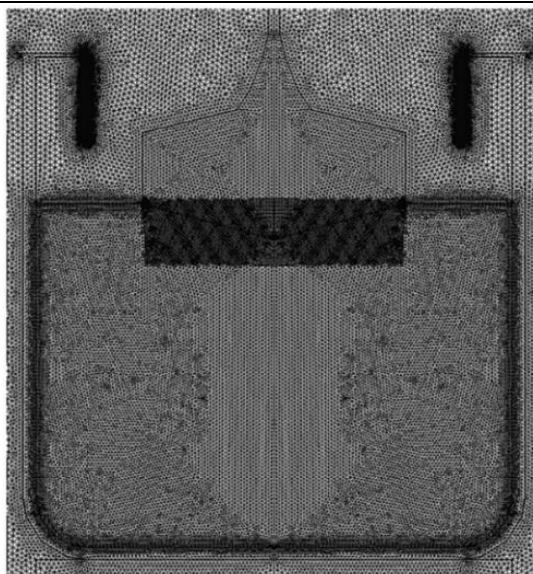
$$\dot{m}_{CO} = \dot{m}_C + \dot{m}_O = \frac{1.75}{\frac{1}{x_O} + 0.75\beta} \left( \frac{q}{H_e - H_w} \right) \left[ \frac{kg}{m^2 s} \right] \quad (27)$$

Tại vách ngoài của lò nung:

$$T = T_{out} = 300K \quad (28)$$

trong đó  $\vec{n}$  and  $\vec{\tau}$  lần lượt là vector đơn vị của phương pháp tuyến và phương tiếp tuyến;  $\gamma$  là sức căng bề mặt của sa phía nóng chảy,  $T_{amb}$  là nhiệt độ môi trường;  $\Delta L$  là nhiệt ẩn của tinh thể sapphire;  $\sigma$  là hằng số Stefan-Boltzmann và  $q_{rad}$  là dòng nhiệt bức xạ;  $D_g$  là hệ số khuếch tán;  $p_A^*$  là áp suất riêng phần của chất tinh khiết;  $K$  là hằng số Boltzmann;  $Z$  là độ sâu cột khí (chiều cao sa phía nóng chảy không lấp đầy) trong nồi nung;  $N$  là dòng tạp chất;  $M_W$  là trọng lượng phân tử của vonfram;  $K_i$  là hằng số tốc độ phản ứng;  $\Delta P$  là khối lượng vonfram mất đi;  $R$  là hằng số khí phổ biến;  $\dot{m}_C$  là tốc độ suy giảm khối lượng của carbon;  $H_e$  là entanpi tại mép lớp biên,  $H_w$  là entanpy tại vách nồi nung;  $x_O$  là tỷ lệ mol của oxy.

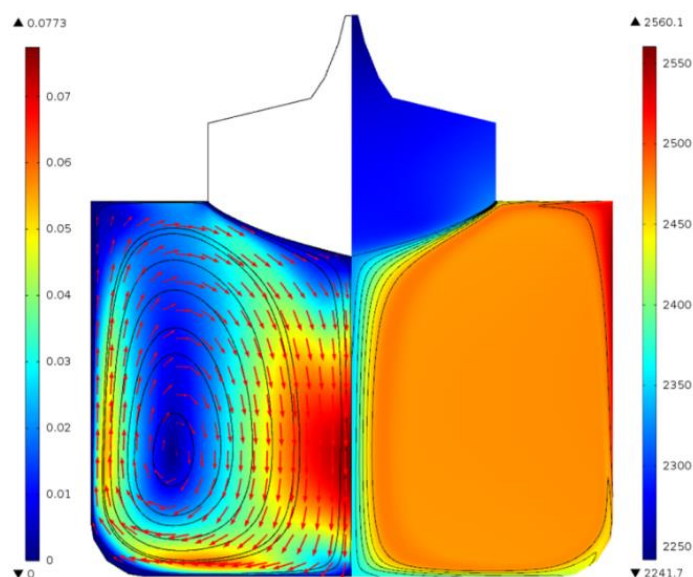
Trong bài báo này, các phương trình vi phân chính và điều kiện biên được giải bằng phần mềm phần tử hữu hạn COMSOL Multiphysics. Trong mô hình này, dạng lưới phi cấu trúc được sử dụng do đặc thù hình học phức tạp của hệ thống. Các vùng lưới gần vách nồi nấu, bề mặt rắn-lỏng của tinh thể và bề mặt lỏng tự do được tinh chỉnh cẩn thận do các vùng này có nồng độ gradient tạp chất cao hơn, như được minh họa trong Hình 3. Để tiết kiệm thời gian tính toán và bộ nhớ máy tính, thông qua thao tác kiểm tra lưới, 116.878 phần tử lưới tam giác được sử dụng cho kết quả có độ chính xác hợp lý. Các đặc tính vật lý của vật liệu được sử dụng trong mô hình này được liệt kê trong Bảng 1.



Hình 3. Phân bố lưới tại khu vực nồi nung và tinh thể rắn.

### 3. Kết quả và bàn luận

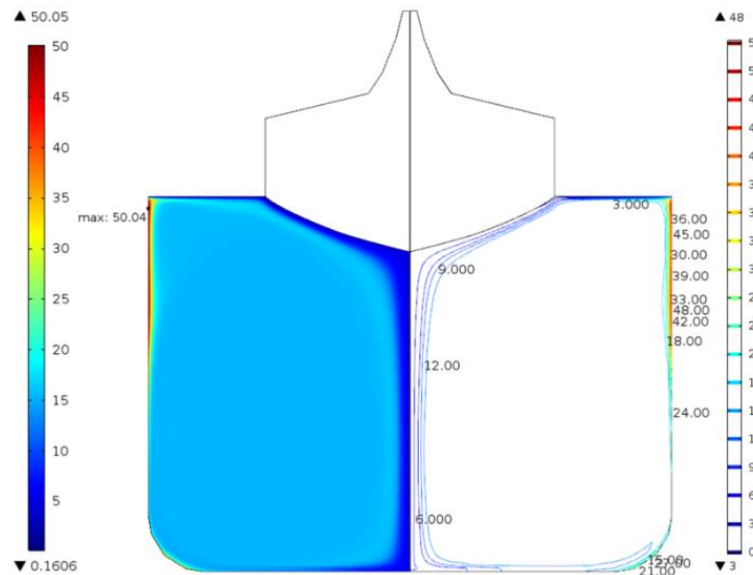
Các trường nhiệt độ, vận tốc và nồng độ tạp chất trong tinh thể sa phía nóng chảy đã được nghiên cứu. Đường kính tinh thể là 210 mm và tổng khối lượng sa phía trong nồi nấu kim loại là 100kg. Tốc độ dòng khí Argon được cố định ở mức 4 lít/phút. Trong nghiên cứu này, chiều dài tinh thể được định nghĩa là chiều cao của tinh thể sa phía tại vị trí có đường kính không đổi, trong trường hợp này là 55 mm. Hình 4 thể hiện các biên dạng dòng chảy, trường vận tốc, trường nhiệt độ và đường đẳng nhiệt trong dòng sa phía nóng chảy. Do số Prandtl của sa phía nóng chảy có giá trị rất cao ( $Pr=12,67$ ), các đường đẳng nhiệt bị ảnh hưởng đáng kể bởi chuyển động của dòng chảy. Hơn nữa, sự đối lưu do sức nổi của nước chiếm ưu thế do số Grashof tương đối cao ( $1,3 \times 10^6 - 4,1 \times 10^6$ ). Chính lực đối lưu nổi này tạo thành một dòng xoáy trong dòng sa phía, có hướng đi lên ở thành bên của nồi nung và hướng đi xuống tại đường tâm của nồi.



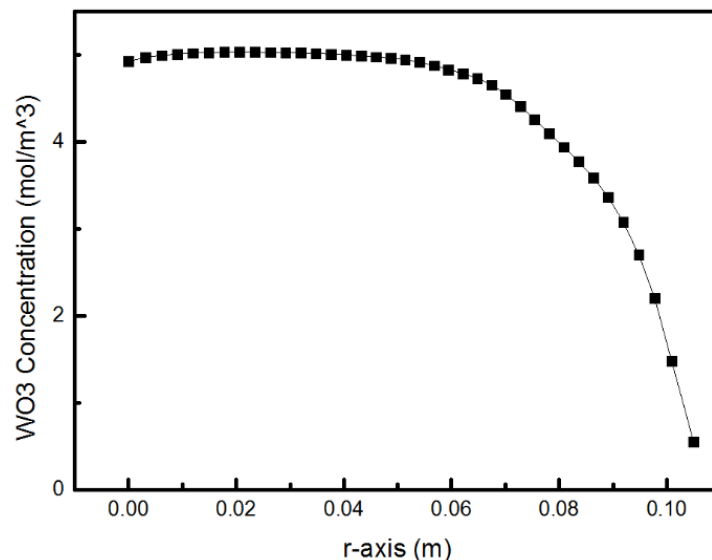
Hình 4. Đường dòng và trường vận tốc (bên trái); trường nhiệt độ và các đường đẳng nhiệt (bên phải) trong dòng sa phía.

Hình 5 cho thấy sự phân bố tungsten trioxide trong quá trình sa phía nóng chảy và hình 6 minh họa phân bố nồng độ  $WO_3$  dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể. Kết quả chỉ ra rằng sự phân bố nồng độ

$\text{WO}_3$  bị ảnh hưởng mạnh mẽ bởi biên dạng của dòng chảy đối lưu. Điều này có thể được giải thích bởi số Schmidt, được định nghĩa là tỷ số giữa độ khuếch tán động lượng với độ khuếch tán khối lượng, có giá trị tương đối cao ( $Sc = 190$ ). Tạp chất tungsten trioxide bắt nguồn từ sự hòa tan của nôi nung tungsten thông qua phản ứng hóa học (9), với hằng số tốc độ tương tác  $K_i$  như được mô tả bởi phương trình (26). Do đó, nồng độ  $\text{WO}_3$  có giá trị cực đại tại vách bên của nôi nung, nơi mà có phân bố nhiệt độ cao nhất. Phương trình (26) cho ta thấy nồng độ  $\text{WO}_3$  có giá trị tỷ lệ thuận với nhiệt độ phân bố. Điều đó được thể hiện rõ khi quan sát sự tương đồng trong phân bố nhiệt độ ở hình 4 và các đường đồng mức nồng độ trong dòng sa phía ở hình 5, đặc biệt là tại khu vực sát với vách nôi nung. Tungsten trioxide sau đó được mang theo bởi dòng chảy đối lưu để tập trung tại những khu vực có dòng chảy có trạng thái tương đối chậm. Sự bay hơi của các tạp chất ở bề mặt lỏng tự do và sự phân tách bề mặt rắn-lỏng của tinh thể tạo ra kết quả là nồng độ thấp ở những vùng này. Nồng độ  $\text{WO}_3$  cũng được quan sát thấy có giá trị thấp ở khu vực đường tâm của nôi nấu. Do hiệu ứng nhớt, dòng chảy gần bề mặt rắn-lỏng của tinh thể rất chậm và độ dày lớp biên tăng dần từ điểm ba thể đến trục của tinh thể. Nồng độ tạp chất tăng từ điểm ba thể đến đường tâm dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể. Điều đó có thể được giải thích là do trạng thái dòng chảy chậm tại khu vực gần bề mặt rắn-lỏng của tinh thể.

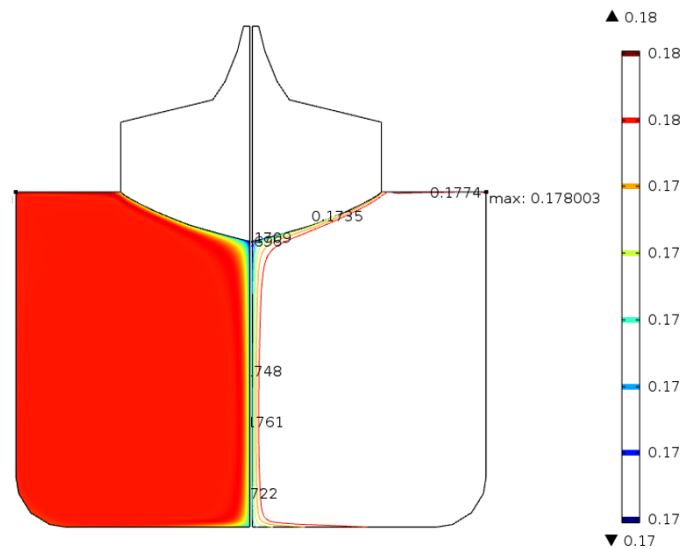


Hình 5. Phân bố nồng độ  $\text{WO}_3$ ,  $\text{mol/m}^3$ , (bên trái) và các đường đồng mức nồng độ (bên phải) trong dòng sa phía.

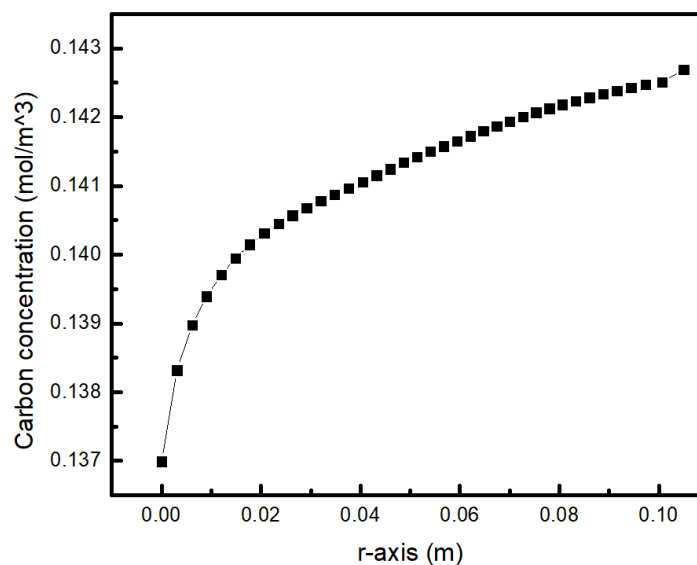


Hình 6. Phân bố nồng độ  $\text{WO}_3$ ,  $\text{mol/m}^3$ , dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể.

Hình 7 cho thấy sự phân bố nồng độ các bon trong sa phía nóng chảy và hình 8 thể hiện phân bố nồng độ các bon dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể. Có thể thấy rằng nồng độ C cao nhất là tại ở bề mặt tự do lỏng của sa phía nóng chảy khu vực gần vách của nồi nung. Độ lớn và sự phân bố của nồng độ C trong sa phía nóng chảy bị ảnh hưởng mạnh mẽ bởi dòng đối lưu, tương tự như sự phân bố  $\text{WO}_3$ . Quá trình vận chuyển C trong sa phía nóng chảy được thúc đẩy bởi chuyển động của dòng chảy khuếch tán và đối lưu. Đối với dòng chảy với số Schmidt cao, lớp biên của tạp chất rất mỏng và sự phân bố tạp chất trong dòng sa phía được kiểm soát chủ yếu bởi chuyển động của dòng đối lưu hơn là sự khuếch tán. Nồng độ C dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể giảm từ điểm ba thể đến đường tâm của tinh thể trong Hình 8. Nó có thể là do nguồn gốc của tạp chất đến từ việc chuyển động của dòng khí CO quay trở lại dòng sa phía nóng chảy tại bề mặt lỏng tự do.



**Hình 7.** Phân bố nồng độ C,  $\text{mol/m}^3$ , (bên trái) và các đường đồng mức nồng độ (bên phải) trong dòng sa phía.



**Hình 8.** Phân bố nồng độ C,  $\text{mol/m}^3$ , dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể.

#### 4. Kết luận

Một mô hình mô phỏng số đã được xây dựng để nhằm nghiên cứu trường nhiệt độ, trường vận tốc, và sự phân bố nồng độ tạp chất trong dòng sa phía nóng chảy trong quá trình tinh thể sa phía phát triển theo phương pháp Czochralski. Kết quả cho thấy rằng cường độ và sự phân bố nồng độ tạp chất trong dòng sa phía nóng chảy bị ảnh hưởng mạnh mẽ bởi dòng chảy đối lưu cũng như sự phân bố nhiệt độ, do cả hai số Prandtl và Schmidt đều rất cao. Nồng độ  $\text{WO}_3$  có giá trị cực đại tại vách bên của nồi nung, trong khi nồng độ C cao nhất là tại ở bề mặt tự do lỏng của sa phía nóng chảy khu vực gần vách của nồi nung. Ngoài ra, nồng độ  $\text{WO}_3$  tăng từ điểm ba thể đến đường tâm dọc theo bề mặt rắn-lỏng của tinh thể. Ngược lại, nồng độ C tại bề mặt rắn-lỏng của tinh thể giảm từ điểm ba thể đến đường tâm của tinh thể.

**Bảng 1.** Các đặc tính vật lý của vật liệu được sử dụng trong mô phỏng

| Vật liệu          | Đặc tính vật lý                         | Giá trị                                                                     |
|-------------------|-----------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------|
| Sa phía nóng chảy | Khối lượng riêng ( $\text{kg/m}^3$ )    | 3000                                                                        |
|                   | Hệ số dẫn nhiệt ( $\text{W/mK}$ )       | 3.5                                                                         |
|                   | Nhiệt dung riêng ( $\text{J/kgK}$ )     | 765                                                                         |
|                   | Hệ số giãn nở nhiệt ( $\text{K}^{-1}$ ) | $1.8 \times 10^{-5}$                                                        |
|                   | Độ nhớt động lực ( $\text{Pas}$ )       | 0.058                                                                       |
|                   | Hệ số phân tách                         | 0.01                                                                        |
| Tinh thể          | Khối lượng riêng ( $\text{kg/m}^3$ )    | 3960                                                                        |
| Khí Ar            | Nhiệt dung riêng ( $\text{J/kgK}$ )     | 521                                                                         |
|                   | Hệ số dẫn nhiệt ( $\text{W/mK}$ )       | $0.01 + 2.5 \times 10^{-5} T$                                               |
|                   | Độ nhớt động lực ( $\text{Pas}$ )       | $8.466 \times 10^{-6} + 5.365 \times 10^{-8} T - 8.682 \times 10^{-12} T^2$ |

#### Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được hỗ trợ từ đề tài T2022-105 do trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật Thành phố Hồ Chí Minh (HCMUTE), Việt Nam là cơ quan chủ trì.

#### Xung đột lợi ích

Các tác giả tuyên bố không có xung đột lợi ích trong bài báo này.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] M. S. Akselrod and F. J. Bruni, "Modern trends in crystal growth and new applications of sapphire," *Journal of Crystal Growth*, vol. 360, pp. 134-135, 2012.
- [2] F. J. Bruni, C. M. Liu, and J. S. Sundberg, "Will Czochralski Growth of Sapphire Once Again Prevail?" *Acta. Phys. Pol. A*, vol. 124, pp. 213-218, 2013.
- [3] O. M. Bunoiu, T. Duffar, and I. Nicoara, "Gas bubbles in shaped sapphire," *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, vol. 56, pp. 123-145, 2010.
- [4] A. Borodin, T. A. Steriopolo, V. O. Tatarchenko, and T. N. Yalovets, "Control over gas bubble distribution in shaped sapphire crystals," *Cryst. Res. Technol.*, vol. 20, pp. 301-306, 1985.
- [5] D. V. Kostomarov, K. S. Bagdasarov, and E. V. Antonov, "Oxidation of Tungsten in the W- $\text{Al}_2\text{O}_3$  System at Temperatures from 2350 to 2500 K and Pressures from 1 to  $10^5$  Pa," *Inorganic Materials*, vol. 47, pp. 152-155, 2011.
- [6] H. Li, E. A. Ghezal, A. Nehabi, G. A. Goget, A. Brenier, and K. Lebbou, "Bubble defects distribution in sapphire bulk crystal grown by Czochralski technique," *Optical Materials*, vol. 35, pp. 1071-1076, 2013.
- [7] N. Stoddard, M. Seitz, M. Seitz, and W. Mushock, "Surface defects in EFG sapphire single crystals," *Journal of Crystal Growth*, vol. 530, p. 125306, 2020.

- [8] I. Nicoara, D. Vizman, and J. Friedrich, "On void engulfment in shaped sapphire crystals using 3D modeling," *Journal of Crystal Growth*, vol. 218, pp. 74-80, 2000.
- [9] O. Bunoiu, T. Duffar, F. Theodore, J. L. Santailler, and I. Nicoara, "Numerical simulation of the flow field and solute segregation in Edge-Defined Film-Fed Growth," *Cryst. Res. Technol.*, vol. 36, pp. 707-717, 2001.
- [10] O. M. Bunoiu, J. L. Santailler, T. Duffar, and I. Nicoara, "Fluid flow and solute segregation in EFG crystal growth process," *Journal of Crystal Growth*, vol. 275, pp. 799-805, 2005.
- [11] L. Carroz and T. Duffar, "Tuning the sapphire EFG process to the growth of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YAG/ZrO<sub>2</sub>:Y eutectic," *Journal of Crystal Growth*, vol. 489, pp. 5-10, 2018.
- [12] A. V. Borodin, V. A. Borodin, "Numerical simulation of the distribution of individual gas bubbles in shaped sapphire crystals," *Journal of Crystal Growth*, vol. 478, pp. 180-186, 2017.
- [13] H. Fang, L. Zheng, H. Zhang, Y. Hong, and Q. Deng, "Reducing melt inclusion by submerged heater or baffle for optical crystal growth," *Cryst. Growth Des.*, vol. 8, pp. 1840-1848, 2008.
- [14] M. J. Hur, X. F. Han, H. G. Choi, and K. W. Yi, "Crystal front shape control by use of an additional heater in a Czochralski sapphire single crystal growth system," *Journal of Crystal Growth*, vol. 747, pp. 24-30, 2017.
- [15] B. Gao, S. Nakako, and K. Kakimoto, "Global Simulation of Coupled Carbon and Oxygen Transport in a Unidirectional Solidification Furnace for Solar Cells," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 157, pp. H153-H159, 2010.
- [16] T. P. Nguyen, Y. T. Hsieh, J. C. Chen, C. Hu, and H. B. Nguyen, "Effect of crucible and crystal rotations on the convexity and the thermal stress in large size sapphire crystals during Czochralski growth," *Journal of Crystal Growth*, vol. 468, pp. 514-525, 2017.
- [17] Z. Liu and T. Carlberg, "A model for dopant concentration in Czochralski silicon melts," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 140, pp. 2052-2057, 1993.



**Nguyen Tran Phu** was born in Khanh Hoa, Vietnam in 1987. He received a B.S. in Engineering and Technology from Nong Lam University, Ho Chi Minh City (Vietnam), in 2009 and a Ph.D. degree in Mechanical Engineering from National Central University (Taiwan), in 2018. From 2020 to the present, he was a lecturer in the Department of Renewable Energy, Ho Chi Minh University of Technology and Education (HCMUTE). His research interests are Heat Transfer and Fluid Mechanics, Computational Fluid Dynamics, Injection Molding, and CAE software. He was section chairperson of many international conferences and received the Excellent Conference Paper Award in the 2023 ICSEVEN. ORCID:  <https://orcid.org/0009-0008-2256-8269>