

RÉPUBLIQUE ALGERIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE

Université Mouloud Mammeri Tizi-Ouzou

Faculté De Génie De La Construction

Département De Génie Mécanique



Thèse de Doctorat LMD

Spécialité : Génie Mécanique

Option : Génie des Matériaux

THÈME

Étude de la croissance cristalline de type Kyropoulos

Présentée et soutenue publiquement par

M. ZERMOUT SAMIR

Devant le jury composé de :

M. Ould Ouali Mohand	Professeur	UMMTO	Président
Mme. Mokhtari-Merah Faiza	Professeur	USTHB	Rapporteur
M. Ferhoum Rabah	Professeur	UMMTO	Examineur
M. Almansba Madjid	M.C.A	UMMTO	Examineur
M. Ghezal El hadj Ahmed	M.C.A	UZAD	Examineur
M. Nehari Abdeldjelil	Chargé de Recherche	U/LYON1	Invité

Année 2019-2020

RÉSUMÉ

Le saphir monocristallin (Al_2O_3) possède des propriétés physiques, chimiques et optiques exceptionnelles, ce qui en fait un excellent matériau pour les applications dans la haute technologie telle que les lasers, l'optique non linéaire, l'industrie optoélectronique et autres. Les substrats de saphir ont pris, ces dernières années, une place importante dans la fabrication des dispositifs à semi-conducteurs (SOS) et les performances de ces matériaux dépendent notamment de la qualité et de l'homogénéité du saphir utilisé comme substrat et également des impuretés qu'il contient.

Étant donné que la croissance cristalline de la plupart des cristaux synthétisés s'effectue à des températures très élevées, le processus de cristallisation du saphir doit être très bien contrôlé (la température de fusion du saphir est de 2050 C°). En effet, une mauvaise maîtrise de variation de la température peut mener à l'échec du processus de croissance, et de ce fait, un contrôle bien précis de la température est indispensable. Par conséquent, il apparaît qu'une bonne compréhension du comportement thermique de la chambre chaude de croissance, de même qu'une étude approfondie des phénomènes physico-chimiques impliqués pendant la synthèse tels que l'écoulement du bain fondu ou le transfert de masse, sont des paramètres clés pour réussir la croissance des cristaux de saphir d'un grand diamètre et de haute qualité structurale.

Dans la présente thèse et afin de pouvoir améliorer la qualité des cristaux de saphir obtenus par la méthode Kyropoulos, nous avons mené des simulations numériques en utilisant la méthode des éléments finis dans laquelle nous nous intéressons à la modélisation des mécanismes affectant l'hydrodynamique du saphir liquide au sein du creuset, la thermique dans la chambre chaude de croissance et la thermoélasticité du cristal cultivé. Nous nous concentrons sur les différentes étapes du processus de croissance à savoir : l'étape avant la connexion du germe avec la surface libre du saphir fondu, ensuite à l'étape juste au contact avec la surface libre (début de germination) et enfin au cours de la formation du cristal (étape intermédiaire de la croissance).

Nous y parvenons en étudiant l'effet géométrique des formes d'angle du creuset sur la convection naturelle du bain fondu et nous mettons en évidence les éléments d'information apportés par le chauffage résistif supplémentaire (placé au-dessous de la base du creuset) et la convection forcée générée par la rotation du cristal. En particulier, les champs de température et de vitesse dans un bain de Kyropoulos ainsi que la convexité de l'interface cristal-liquide sont calculés dans chaque configuration étudiée afin de choisir une forme appropriée du creuset en fonction des autres paramètres de contrôle qui régissent le processus de cristallisation. Une série de simulations dans différentes conditions a été également réalisée pour calculer les contraintes thermoélastiques tridimensionnelles (3D) dans le monocristal de saphir suivant l'orientation cristallographique basale c (0001) tout en mettant l'accent sur son aspect anisotrope.

Mots-clés : Saphir, Croissance cristalline, La méthode Kyropoulos, Simulation numérique, Chauffage résistif, Rotation du cristal, Convection naturelle et forcée, Champs de température et de vitesse, Convexité de l'interface cristal-liquide et Contraintes thermoélastiques.

ABSTRACT

Sapphire single crystals (Al_2O_3) has exceptional physical, chemical and optical properties, making it an excellent material for high technology applications such as lasers, nonlinear optics, optoelectronics, and so on. In recent years, sapphire substrates have taken an important place in semiconductor device fabrication (SOS) and the performance of these materials depends in particular on the quality and homogeneity of the sapphire used as substrate and also the impurities it contains.

Since the crystal growth of most synthesized crystals, such as sapphire, takes place at very high temperatures, the crystallization process must be very well controlled (the melting temperature of sapphire is 2050 C°). Consequently, a good understanding of thermal behavior of the hot growth chamber, as well as an in-depth study of the physicochemical phenomena involved during the synthesis such as the melt flow or mass transfer, are key parameters for successful growth of sapphire crystals with large diameter and high structural quality. High thermal stress and large crystal-melt interface convexity are among the main factors affecting the ingot quality.

In this thesis, we conducted numerical simulations using the finite element method for modeling the mechanisms affecting the hydrodynamics of the sapphire liquid in the crucible, the temperature field in the hot growth chamber and the thermoelasticity of the grown crystal. Different stages of the growth process are studied, namely : the first stage “before the connection of the seed with the melt free surface”, the second stage “beginning of seeding growth” and the third stage “intermediate growth stage” (crystal formation).

The effects of crucible's corner shape, additional resistive heating (placed under the crucible bottom) and forced convection generated by crystal rotation on melt flow and pattern of the molten sapphire, temperature field in the whole furnace and convexity of the crystal-melt interface are studied. A series of simulations under different conditions was carried out to calculate the three-dimensional thermal stress (3D) inside sapphire single crystal in basal crystallographic orientation c (0001) taking into account its anisotropic aspect.

Interesting results have been found and some modifications in the growth furnace have been proposed to improve the quality of the sapphire crystals obtained by the Kyropoulos method. In fact, the use of an appropriate crucible shape and an additional heating element is found to be useful to decrease the growth interface convexity and the thermal stress inside sapphire single crystal. Control parameters, such the crystal rotation rate, that govern the growth process and the quality of ingots are provided in each studied case and the optimal values are given.

Keywords : Sapphire, Crystal growth, Kyropoulos method, Numerical simulation, Resistive heating, Crystal rotation, Natural and forced convection, Temperature and flow fields, Crystal-melt interface convexity, Thermal stresses.

{ *A toute ma famille, surtout **mes parents, mes frères et mes sœurs** qui m'ont toujours soutenu et encouragé d'une manière inconditionnelle durant toutes mes années d'études "Dieu merci". Sachez qu'il m'est fort agréable de vous exprimer ici mes vifs remerciements...Qu'Allah vous garde pour moi* }

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier vivement ma directrice de thèse, madame Faiza Mokhtari-Merah qui commença à diriger mon travail en m'accordant toute sa confiance. Ses conseils, sa rigueur scientifique, ainsi que ses connaissances dans le domaine de la croissance cristalline ont été d'une grande importance dans la réussite de cette thèse. Je n'aurai pas pu espérer un meilleur encadrement, tant pour sa disponibilité, sa motivation et son expertise scientifique. Plus qu'une directrice, je tiens à lui exprimer à la fois mon respect ainsi que mon entière gratitude.

Je remercie très chaleureusement monsieur Abdeldjelil Nehari, chargé de recherche à l'Université Lyon 1 (France), qui a directement collaboré à ces travaux de recherche et a suivi avec attention et bienveillance ces travaux et dont les réflexions scientifiques pertinentes m'ont beaucoup apporté. Je tiens à lui exprimer ma sincère reconnaissance.

De même, je souhaite exprimer ma reconnaissance et adresser mes chaleureuses remerciements à monsieur Idir Lasloudji, doctorant à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumédiène d'Alger (USTHB) pour ses conseils, sa disponibilité à chaque fois que j'ai sollicité son aide et le temps passé ensemble pour la réalisation de différents modèles des simulations numériques.

Je souhaite également remercier Dr. Fadila Haddad, enseignante à l'USTHB et Dr. Abdelkrim Merah, enseignant à l'Université M'Hamed Bougara de Boumerdès (UMBB), pour leurs multiples conseils, leurs discussions utiles et pour le temps qu'ils m'ont consacré pour diriger cette thèse.

Un immense merci à tous le personnel du laboratoire de thermodynamique et des systèmes énergétiques (LTSE) de la faculté de physique USTHB d'Alger, permanents thésards qui m'ont accueilli chaleureusement dès mon premier jour là-bas et qui m'ont permis de réaliser mon travail de thèse dans un climat chaleureux.

Mes remerciements vont aussi tout naturellement à monsieur Mohand Ould Ouali, Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO), pour avoir accepté de présider le jury de thèse. A messieurs Pr. Rabah Farhoum et Pr. Madjid Almansba du l'UMMTO ainsi qu'au Pr. El Hadj Ahmed Ghezal de l'Université Ziane Achour de Djelfa (UZAD) d'avoir accepté d'évaluer ce travail de thèse et de faire partie du jury en tant qu'examineur.

Finalement, mes sincères remerciements s'adressent à toutes les personnes qui ont contribué d'une manière ou d'une autre, à la réalisation de ce travail, qu'ils soient professeurs, collègues ou amis.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ	
ABSTRACT	
REMERCIEMENT	
TABLE DES MATIÈRES	i
LISTE DES FIGURES	iv
LISTE DES TABLEAUX	viii
LISTE DES SYMBOLES	ix
INTRODUCTION GÉNÉRALE	1
1 REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	
1.1 Introduction.....	5
1.2 Techniques de croissance cristalline.....	5
1.2.1 Croissance à partir de l'état liquide.....	6
1.2.2 Croissance à partir d'une vapeur.....	6
1.2.3 Croissance à partir d'une solution.....	7
1.2.4 Croissance à partir de l'état solide.....	7
1.3 Histoire de la cristallogénèse du saphir.....	7
1.4 Le saphir monocristallin : Propriétés et applications.....	8
1.5 Les méthodes de croissance cristalline du saphir non dopé.....	9
1.5.1 La méthode Czochralski (CZ).....	11
1.5.2 La méthode Kyropoulos (KY).....	12
1.6 Les défauts dans les cristaux de saphir.....	14
1.6.1 Les bulles.....	15
1.6.2 Les zones de re-fusion.....	16
1.6.3 Les dislocations.....	16
1.6.4 Les fissurations.....	17
1.6.5 Les inclusions.....	18
1.7 Travaux antérieurs.....	18
1.8 Modélisation des contraintes thermoélastiques.....	21
1.9 Conclusion.....	22
2 FORMULATION MATHÉMATIQUE	
2.1 Introduction.....	23
2.2 Modélisation des phénomènes intervenant lors de la de croissance cristalline de type Kyropoulos (KY) : Approche bidimensionnelle axisymétrique (2D axisymétrique).....	23

2.3	Hypothèses simplificatrices.....	25
2.3.1	Chauffage inductif & description phénoménologique.....	25
2.3.1.1	Source de chaleur.....	30
2.3.1.2	Conditions aux limites.....	30
2.3.2	Chauffage résistif.....	31
2.3.3	Écoulement de fluide.....	31
2.3.3.1	Conservation de la masse (Équation de continuité).....	31
2.3.3.2	Mouvement du fluide (Équation de Navier Stokes).....	32
2.3.4	Transfert de chaleur.....	33
2.3.4.1	Transfert de chaleur par Conduction.....	34
2.3.4.2	Transfert de chaleur par Convection.....	34
2.3.4.3	Transfert de chaleur par Rayonnement.....	35
2.3.4.4	Rayonnement entre surfaces.....	35
2.3.5	Rayonnement interne.....	36
2.3.6	Effet Marangoni.....	39
2.3.7	Équations gouvernantes.....	39
2.3.7.1	Conditions aux limites.....	40
2.4	Contraintes thermoélastiques: Approche tridimensionnelle (3D).....	42
2.4.1	Pourquoi calculer les contraintes thermoélastiques ?.....	43
2.4.2	Matrice des constantes élastiques.....	43
2.4.2.1	Aspect anisotrope du cristal.....	44
2.4.3	Vecteur de déformation thermique.....	45
2.4.4	Construction du modèle 3D.....	46
2.4.5	Conditions aux limites pour le calcul des contraintes thermoélastiques	47
2.5	Résolution numérique du problème.....	48
2.5.1	Méthode des éléments finis.....	48
2.5.2	Description du logiciel COMSOL Multiphysics.....	50
2.5.3	Étapes de résolution d'une EDP par éléments finis.....	51
2.5.4	Traitement de l'interface cristal-liquide et calcul des contraintes thermoélastiques tridimensionnelles.....	52
2.5.5	Formulation faible (Équations de Maxwell-Ampère)	54
2.5.5.1	Formulation faible en axisymétrie.....	55
2.6	Conclusion.....	56
3	RÉSULTATS & DISCUSSIONS (ÉTAPES PRIMAIRES DE CROISSANCE)	
3.1	Introduction.....	57
3.2	Étape avant connexion du germe : Before seeding.....	57
3.2.1	Description des configurations géométriques étudiées.....	57
3.2.2	Propriétés thermophysiques & Isotherme de fusion avant connexion.....	58

3.2.3	Champs de température et de vitesse.....	60
3.3	Étape de connexion du germe à la surface libre : Seeding growth.....	69
3.3.1	Propriétés thermophysiques rajoutées & Isotherme de fusion après connexion.....	70
3.3.2	Champs de température et de vitesse.....	71
3.4	Conclusion.....	79
4	RÉSULTATS & DISCUSSIONS (ÉTAPE INTERMÉDIAIRE DE CROISSANCE)	
4.1	Introduction.....	80
4.2	Description des configurations géométriques étudiées.....	80
4.3	Effet du chauffage résistif sur les champs de température et de vitesse....	81
4.4	Effet combiné du chauffage résistif et de la rotation du cristal sur les champs de température et de vitesse.....	84
4.5	Effet du chauffage résistif et de la rotation du cristal sur la convexité de l'interface de croissance cristal-liquide.....	88
4.6	Conclusion.....	93
5	SIMULATION 3D (CALCUL DES CONTRAINTES THERMOÉLASTIQUES)	
5.1	Introduction.....	94
5.2	Domaine de calcul.....	94
5.3	Effet de l'anisotropie du cristal.....	95
5.4	Effet du chauffage résistif.....	100
5.5	Effet de la rotation du cristal.....	102
5.6	Effet combiné de la rotation de cristal et du chauffage résistif.....	104
5.7	Conclusion.....	109
	CONCLUSION GÉNÉRALE & PERSPECTIVES	110
	RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	112
	PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES ACCEPTÉES	

LISTE DES FIGURES

1.1 – Lingots et substrats de saphir synthétique obtenus par la méthode de croissance Kyropoulos. Saphir non dopé (A et a) et saphir dopé Titane (B et b).....	8
1.2 – Techniques de croissance du saphir : (a) Verneuil, (b) Czochralski, (c) Kyropoulos, (d) HEM, (e) GSM, (f) HDSM, (g) EFG, (h) NCS, (i) GES, (j) VST, (k) LHPG, (l) m-PD et (m) ICM. 1 – cristal, 2 – germe, 3 – zone fondue, 4 – filière mouillée, 5 – poudre de charge, 6 – flamme allumée, 7 – tige d'alimentation et 8 – matrice de molybdène avec des fibres.....	10
1.3 – Schéma de la méthode Czochralski (à gauche) et un monocristal de saphir obtenu par cette méthode (à droite).....	11
1.4 – (a) Schéma du procédé de croissance Kyropoulos de son papier original et (b) celui de la chambre chaude du four inductif de la même méthode à une étape intermédiaire de la croissance du saphir monocristallin.....	13
1.5 – Des lingots de saphir de 3 kg, 31 kg, 83 kg et 200 kg, développés par Rubicon Technology.....	14
1.6 – La distribution des bulles dans un lingot de saphir obtenu par la méthode KY.....	15
1.7 – La partie supérieure des lingots de saphir avec des zones de re-fusion plus larges (à gauche) et plus petites (à droite) obtenu par la méthode KY.....	16
1.8 – Gravures de dislocations sur le plan (0001) des substrats de saphir obtenus par la méthode KY: (a) position de l'épaule (shouldering position), (b) position du milieu (equal diameter position).....	17
1.9 – Fissuration dans les cristaux de saphir de grande taille : cristal non fissuré (a) et cristal fissuré (b).....	18
2.1 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance intermédiaire.....	24
2.2 – Phénoménologie du chauffage inductif.....	26
2.3 – Direction du rayonnement surface to surface des parois internes de la chambre chaude de croissance (flèches en rouge suivant la normale à chaque surface) et un zoom sur la surface ajoutée pour que la chambre soit refermée i.e., assimilée à une boîte noire.....	36
2.4 – Interactions entre le milieu participant et le rayonnement.....	37
2.5 – Système de coordonnées pour un cristal trigonal	45
2.6 – Géométrie 3D du four KY après révolution utilisée pour calculer les contraintes thermoélastiques anisotropes en 3D.....	47
2.7 – Vue du haut de la géométrie Cristal-Germe (l'interface Germe-Porte germe est en couleur bleu).....	48

2.8 – Maillage de la géométrie complète du four inductif de la méthode Kyropoulos utilisé au cours de la majorité des calculs 2D axisymétrique (a) et un zoom sur la discrétisation d’une région proche des spires d’induction (b).....	49
2.9 – Le rôle du logiciel Comsol Multiphysics dans la résolution des équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis.....	50
2.10 – Illustration de la discrétisation d’un domaine par éléments finis.....	51
2.11 – Distribution du maillage triangulaire mobile et non structuré. Appliqué avant la modélisation de changement de phase (a) et déformé après la modélisation de changement de phase (b).....	53
3.1 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance dit avant germination (juste avant la connexion du germe avec la surface libre du bain fondu). Trois formes de creuset sont envisagées : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.....	58
3.2 – Isotherme de fusion ($T_f = 2323$ K) pour différentes formes de coin de creuset ((1) : cas 1, (2) : cas 2 et (3) : cas 3) avant la connexion du germe monocristallin (pour toutes les configurations, T_f est située au-dessus du centre de la surface libre de la masse fondue).....	60
3.3 – Champ thermique dans la chambre chaude de la croissance pour les configurations ayant un creuset avec (a) un fond plat, (b) un coin du fond incurvé et (c) un coin du fond escamoté avant la connexion du germe.....	61
3.4 – Champ de température et isothermes (côté droit) et champ de vitesse (côté gauche) calculés pour différentes formes du coin du creuset ((a) : cas 1, (b) : cas 2 et (c) : cas 3) avant la connexion du germe ($T_{max} = 8.3, 8.7$ et 9 cm).....	64
3.5 – Profils de la vitesse radiale le long de la surface libre avant la connexion du germe.....	65
3.6 – Profils de vitesse axiale le long de l’axe de symétrie avant la connexion du germe.....	66
3.7 – Profils de température le long de l’axe de symétrie pour l’étape juste avant la connexion du germe. La variation de température est assez élevée près de la surface libre.....	67
3.8 – Profils de température le long de la surface libre mesurée à l’étape juste avant la connexion du germe.....	68
3.9 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance dit seeding growth (juste après la connexion du germe). Trois formes de creuset sont étudiées dans nos simulations : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.....	69
3.10 – Contour de l’isotherme de fusion ($T_f = 2323$ K) pour différentes formes de coin de creuset ((1) : cas 1, (2) : cas 2 et (3) : cas 3) juste après la connexion du germe (T_f passe sur le point triple germe-saphir liquide-atmosphère pour toutes les configurations).....	71
3.11 – Champ thermique dans la chambre chaude de la croissance pour les configurations ayant un creuset avec (a) un fond plat, (b) un coin du fond	

incurvé et (c) un coin du fond escamoté après la connexion du germe avec la surface libre du saphir liquide.....	72
3.12 – Champ de vitesse (côté gauche) et champ de température (côté droit) calculés pour différentes formes de coins de creusets ((a) : cas 1, (b) : cas 2 et (c) : cas 3) juste après la connexion du germe	74
3.13 – Profils de vitesse le long de la surface libre du bain fondu (étape de Seeding).....	75
3.14 – Profils de vitesse le long de l’axe de symétrie du bain (étape de Seeding).....	76
3.15 – Variations de la température le long de la surface libre du bain (étape de Seeding).....	77
3.16 – Profils de température le long de l’axe de symétrie mesurés en étape juste après la connexion du germe avec la surface libre. B-Ge, Ge-Pg et Pg-Ta indiquent, respectivement, les interfaces bain fondu-germe, germe-porte germe et porte germe-tige d’alumine.....	78
4.1 – Schéma du four inductif/résistif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance intermédiaire. Trois formes du creuset sont utilisées dans nos simulations : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.....	80
4.2 – Champs thermiques (1) et d’écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droit) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 sans rotation du cristal ($\omega_c = 0$ tr/min) à un stade de croissance intermédiaire.....	82
4.3 – Champs thermiques (1) et Champs d’écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droit) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 pour $\omega_c = 2$ tr/min à un stade de croissance intermédiaire.....	86
4.4 – Champs thermiques (1) et Champs d’écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droite) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 pour $\omega_c = 4$ tr/min à un stade de croissance intermédiaire.....	87
4.5 – Convexité de l’interface cristal-liquide sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de coins de creuset.....	88
4.6 – Champ de température et convexité de l’interface cristal-liquide: cas 1 sans C.R pour $\omega_c = 0$ tr/min (à gauche) et cas 3 avec C.R combiné avec la rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min (à droite).....	89
4.7 – Profils de la température (a) le long de la ligne de contact du creuset avec le disque du C.R et (b) le long de la surface du coin inférieur et de la paroi latérale du creuset, calculés pour différentes formes de creuset tenant compte du chauffage résistif et sans chauffage résistif.....	91
4.8 – Variation des gradients de température le long du front de cristallisation sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de creuset et vitesses de rotation du cristal ((a) : $\omega_c = 0$ tr/min, (b) : $\omega_c = 2$ tr/min, (c) : $\omega_c = 4$ tr/min et (d) : Comparaison des gradients de température entre le cas 1 sans	

chauffage résistif et l'absence de rotation du cristal et le cas 3 avec chauffage résistif et rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min).....	92
5.1 – Schéma du système de la croissance cristalline (à gauche). Distribution 2D de la température dans un monocristal de saphir obtenu à partir d'une analyse globale du transfert de chaleur (à droite). La ligne rouge représente l'isotherme de fusion du saphir (2323 K) passant par l'interface cristal-liquide lorsque le chauffage résistif est ajouté.....	95
5.2 – Champ de contraintes 3D de von Mises sur le cristal (1) et l'interface cristal-liquide (vue de dessous) (2) : (a) analyse isotrope, (b) analyse anisotrope	96
5.3 – Distribution des contraintes de von Mises le long de l'interface cristal-liquide pour l'analyse isotrope et anisotrope.....	97
5.4 – Différentes coupes transversales suivant le plan XY à différents niveaux de l'axe de croissance Z. ((1) : $Z_1 = 20$ mm de l'épaule, (2) : $Z_2 = 50$ mm de l'épaule (3) : $Z_3 =$ point triple et (4) : $Z_4 = 20$ mm de l'interface cristal-liquide).....	98
5.5 – Champ de contrainte de Von Mises le long du plan XY à différents niveaux ((1) : 20 mm de l'épaule, (2) : 50 mm de l'épaule (3) : point triple (4) : 20 mm de l'interface cristal-liquide) : (a) analyse isotrope, (b) analyse anisotrope.....	99
5.6 – Champ de contraintes 3D de von Mises dans le cristal et sur l'interface cristal-liquide (vue de dessous). cas de référence : sans chauffage résistif (à gauche). Avec un chauffage résistif supplémentaire (à droite).....	100
5.7 – Effet de la rotation du cristal sur la distribution de la contrainte 3D de von Mises (1) dans le cristal entier et (2) sur l'interface cristal-liquide (vue de dessous) : (a) $\omega_c = 1$ tr/min, (b) $\omega_c = 2$ tr/min, (c) $\omega_c = 3$ tr/min et (d) $\omega_c = 4$ tr/min.....	103
5.8 – Influence de la vitesse de rotation du cristal sur la contrainte 3D maximale de von Mises dans le cristal	104
5.9 – Effet combiné du chauffage résistif et de la rotation de cristal sur la distribution de la contrainte 3D de von Mises dans l'ensemble du cristal (1) et sur l'interface cristal-liquide.....	106
5.10 – Influence du chauffage résistif et de la vitesse de rotation du cristal sur la contrainte maximale de von Mises 3D dans le cristal (a) et sur l'interface cristal-liquide (b).....	107
5.11 – Distribution des contraintes de von Mises et de la température le long de la surface extérieure du cristal avec et sans chauffage résistif ($\omega_c = 0$ tr/min).....	109

LISTE DES TABLEAUX

3.1 – Propriétés thermophysiques du saphir liquide et les autres éléments du four de croissance.....	59
3.2 – Propriétés thermophysiques du germe (cristal), porte germe et la tige d'alumine utilisées dans nos calculs numériques.....	70
3.3 – Comparaison des valeurs maximales de la vitesse d'écoulement de fluide (V_{max}) par rapport à celles de la partie précédente (avant la connexion du germe).....	73
3.4 – Comparaison des valeurs maximales de la vitesse d'écoulement de fluide (V_{max}) tout au long de la surface libre par rapport à celles de la partie précédente (avant la connexion du germe).....	75
3.5 – Comparaison des valeurs maximales de la température, différence de température, le gradient de température le long de la surface libre ainsi que l'écart relatif entre les deux étapes avant et après connexion.....	77
4.1 – Valeurs de la température maximale, la différence de température maximale dans le bain, pour différentes formes de coin de creuset (cas 1, cas 2 et cas 3), sans et avec chauffage résistif.....	83
4.2 – Vitesse maximale dans la masse fondue pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif.....	84
4.3 – Vitesse maximale dans le bain pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif à différentes vitesses de rotation du cristal	85
4.4 – Convexité de l'interface cristal-liquide pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif à différentes vitesses de rotations du cristal.....	89
4.5 – Gradient de température au point triple sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de creusets et vitesses de rotation du cristal.....	93
5.1 – Valeurs maximales et minimales de la contrainte de von Mises suivant différentes positions sur l'axe Z pour l'analyse isotrope et anisotrope sans et avec chauffage résistif (les "effets" en pourcentage sont une diminution de la contrainte maximale de von Mises).....	101
5.2 – Valeurs maximales et minimales de la contrainte de von Mises en différentes positions de l'axe Z, avec et sans chauffage résistif, à différentes rotations du cristal. L'effet positif de la rotation de cristal $\omega_c = 2$ tr/min, à réduire la contrainte de von Mises associé à un chauffage résistif supplémentaire, est clairement démontré.....	108

LISTE DES SYMBOLES

Symboles en lettre romaines et/ou grecques

E	: Champ d'intensité électrique
\mathcal{E}	: Champ d'intensité électrique en notation complexe
\mathcal{E}_i	: Champ d'intensité électrique induit en notation complexe
\mathcal{E}_{ext}	: Champ d'intensité électrique externe en notation complexe
\mathcal{E}^*	: Conjugué du champ d'intensité électrique en notation complexe
B	: Induction magnétique
\mathcal{B}	: Induction magnétique en notation complexe
H	: Champ d'intensité magnétique
\mathcal{H}	: Champ d'intensité magnétique en notation complexe
D	: Densité de flux électrique
\mathcal{D}	: Densité de flux électrique en notation complexe
J	: Densité de courant électrique
\mathcal{J}	: Densité de courant électrique en notation complexe
A	: Potentiel-vecteur magnétique
\mathcal{A}	: Potentiel vecteur-magnétique en notation complexe
\mathcal{A}_θ	: Composante azimutale du potentiel-vecteur magnétique en notation complexe
t	: Temps
ρ_e	: Densité de charges électriques
ϵ_e	: Permittivité électrique absolue
ϵ_0	: Permittivité électrique du vide
ϵ_r	: Permittivité relative du vide
μ	: Perméabilité magnétique absolue
μ_0	: Perméabilité magnétique du vide
μ_r	: Perméabilité relative
σ_e	: Conductibilité électrique
\mathcal{V}	: Potentiel électrique
V_{coil}	: Tension électrique appliqué à l'inducteur (bobine)
ω	: Fréquence angulaire
i	: Nombre imaginaire
Q_{em}	: Source de chaleur issue du chauffage inductif
Q_J	: Source de chaleur issue du chauffage résistif additionnel
Q_r	: Source de chaleur issue du rayonnement interne
Q_c	: Source de refroidissement au niveau des bobines

TABLE DES SYMBOLES

P	: Puissance dissipée par effet Joule
R	: Résistance électrique du conducteur
I	: Intensité du courant électrique
U	: Tension électrique appliqué au disque métallique en graphite dense
ρ	: Masse volumique
\mathbf{V}	: Vecteur vitesse du fluide
V_r	: Vitesse radiale du saphir liquide
V_φ	: Vitesse azimutale du saphir liquide
V_z	: Vitesse verticale du saphir liquide
V_{0r}	: Déplacement imposé dans la direction r
V_{0z}	: Déplacement imposé dans la direction z
μ	: Viscosité dynamique du saphir liquide
p	: Pression
\mathbf{F}	: Force de volume exercée sur l'élément de fluide
\mathbf{g}	: Vecteur gravité
β_T	: Coefficient de dilatation thermique du saphir liquide à pression constante
T	: Température
k	: Conductivité thermique
α	: Diffusivité thermique
μ	: Viscosité dynamique
C_p	: Capacité thermique massique
\mathbf{q}_c	: Flux de chaleur transmis par conduction
\mathbf{q}_r	: Flux de chaleur transmis par rayonnement
σ	: Constante de Stefan-Boltzmann
ε	: Émissivité
\mathbb{R}	: Radiosité
ζ	: Réflectivité de surface
\mathbf{H}_m	: Flux de chaleur reçu par rayonnement
n	: Indice de réfraction du milieu
I	: Intensité du rayonnement
I_b	: Intensité du rayonnement du corps noir
κ	: Coefficient d'absorption du cristal
β_e	: Coefficient d'extinction du cristal
σ_s	: Coefficient de diffusion du cristal
φ	: Fonction de la phase de diffusion
τ	: Epaisseur optique
G	: Radiation incidente
γ	: Gradient de tension superficielle
\mathbf{n}	: Vecteur normal à la paroi
L	: Longueur de la surface libre

H_f	: Chaleur latente
V_{maillage}	: Vitesse normale du déplacement du maillage
r_c	: Rayon du cristal
ω_c	: Vitesse angulaire de rotation du cristal
h	: Coefficient du transfert de chaleur par convection forcée
σ_{ij}	: Tenseur des contraintes
α_{ij}	: Tenseur du coefficient de dilatation thermique du saphir solide
ε'_{ij}	: Déformation totale
ε^e_{ij}	: Déformation élastique
ε^{th}_{ij}	: Déformation thermique
C_{ij}	: Matrice d'élasticité du cristal
c	: Axe de croissance suivant l'orientation cristallographique basale (0001)
E	: Module de Young
ν	: Coefficient de Poisson
Φ^*	: Fonction de pondération
ϕ	: Fonction de base
σ_{Mises}	: Contrainte thermoélastique de von Mises
J_2	: Deuxième invariant de contrainte déviatorique

Notation & Opérateurs

Δ	: Différence
$ $: Valeur absolue
∇_t	: Dérivée tangentielle
∇	: Opérateur gradient
$\nabla \cdot$: Opérateur divergence
∇^2	: Opérateur laplacien

Indices & exposants

l	: Saphir liquide
g	: Gaz d'argon
su	: Sucepteurs
rh	: Élément du chauffage résistif supplémentaire
c	: Cristal
cr	: Creuset
ge	: Système tenant le germe
i	: Isolation thermique
s	: Éléments solides dans la chambre chaude de croissance

f	: Fusion
amb	: Ambiante
ext	: Extérieure de la bobine d'induction
*	: Exposant utilisé pour désigner le conjugué de champ d'intensité électrique

Nombre adimensionnels

Pr	: Nombre de Prandtl
Ma	: Nombre de Marangoni

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Les cristaux naturels ont toujours été appréciés par l'homme pour leur beauté. Mais ce n'est que lorsque leur utilité a été reconnue pour le développement de la connaissance scientifique et pour les besoins d'une société technologique que les spécimens naturels ont laissé une place de plus en plus grande aux monocristaux de synthèse. En effet, la croissance cristalline a alors longtemps existé tel un domaine de praticiens et a été considéré comme un art. Avec le temps, cette attirance s'est développée et transformée en un intérêt scientifique en raison de l'utilisation intensive des cristaux dans les applications de haute technologie. Il est évident qu'il est plus difficile de faire croître des monocristaux que des matériaux polycristallins, et l'effort supplémentaire n'est justifié que si les monocristaux ont des propriétés exceptionnelles. Leurs principaux mérites sont l'uniformité de la composition et l'absence de joints de grains inévitablement présents dans des matériaux polycristallins. La production de cristaux artificiels s'est alors développée et imposée.

De nos jours, de nombreux cristaux sont obtenus par différents processus de cristallisation faisant ainsi entrer le cristal synthétique dans la physique moderne comme la forme parfaite de la matière solide. Des scientifiques, dans plusieurs pays, se sont alors penchés à produire des cristaux de nature différente selon le besoin et selon le domaine d'application. Parmi ces cristaux, nous pouvons citer quelques-uns dits oxydes tels que LN (Lithium Niobate, LiNbO_3), LBO (Lithium Triborate, LiB_3O_5), BSO (Bismuth Silicon Oxyde, Bi_2SiO_7), LGT (Langatate, $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$), LGS (Langastie, $\text{La}_3\text{Ga}_5\text{SiO}_{14}$), YAG (Yttrium Gallium Garnet, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$), Nd:YAG (Neodymium doped Yttrium Aluminium garnet, $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$), Sapphire (Aluminium Oxyde, Al_2O_3), GGG (Gadolinium Gallium Garnet, $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$), TGG (Terbium Gallium Garnet, $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$), YGG (Yttrium Gallium Garnet, $\text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$), YIG (Yttrium Iron Garnet, $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$), BGO (Bismuth Germanate, $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), Ce:YSO (Ceriumdoped Yttrium Oxyorthosilicate, $\text{Ce}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$)...etc.

De ce fait, plusieurs procédés ont ainsi vu naissance dont certains sont la modification de procédés déjà existants. Parmi ces divers processus, nous pouvons citer la méthode Czochralski (CZ), Bridgman (B-H/V), Fusion de Zone (FZ), Heat Exchanger Method (HEM) et la méthode Kyropoulos (KY) qui fait l'objet de notre travail. Toutes ces méthodes susmentionnées sont considérées comme des procédés de croissance dirigée à partir d'un bain fondu.

L'objet de notre étude porte sur la technique KY qui a été créée à l'institut de physique à Göttingen en Allemagne par Spyro Kyropoulos en 1926. Il a proposé pour la première fois cette technique pour faire croître des cristaux d'halogénures alcalins destinés à l'optique de précision. La particularité de la méthode Kyropoulos réside dans la croissance des cristaux de grand diamètre présentant de faibles contraintes thermiques.

La croissance cristalline de type Kyropoulos (KY) permet donc la croissance de cristaux de saphir monocristallins de haute qualité optique avec un minimum de défauts qui seront utilisés par la suite dans des dispositifs tels que les lasers, optique non linéaire et comme des

substrats pour l'industrie des semi-conducteurs en électronique, et autres. La croissance du monocristal du saphir, d'un diamètre de quelques millimètres à quelques centaines de millimètres (plus de 300 mm), se fait sur la base d'un germe de bon état de surface, de qualité et d'orientation cristallographique bien définie et dans un bain fondu à température élevée (la température de fusion est de 2050 C°).

Aujourd'hui, la production de cristaux du saphir de haute qualité optique de plus en plus gros est un perpétuel défi pour l'industrie des composants tels que SOS (Silicon on Sapphire) ou LED (Light Emitting Diode). Cependant, sa croissance cristalline qui se produit à très haute température ne permet pas les recherches expérimentales précises à l'intérieur de la chambre chaude du four. De ce fait, la simulation numérique apparaît comme un outil très efficace permettant d'étudier les différents phénomènes se déroulant durant le procédé et estimer ainsi des paramètres très importants tels que la température, la vitesse d'écoulement et le flux de chaleur en un point quelconque à l'intérieur de l'enceinte du four de croissance d'une façon rapide, ce qui est très difficile à faire expérimentalement.

Étant donné que la croissance cristalline de la plupart des cristaux synthétisés s'effectue à des températures très élevées, les creusets utilisés dans l'industrie sont réalisés généralement en molybdène (Mo) ou en Tungstène (W). La particularité de ces matériaux est leur point de fusion le plus élevé de tous les métaux réfractaires (2620 °C pour Mo et 2900 °C pour W), leur excellente résistance à la corrosion par les gaz chauds et leur faible dilatation thermique ; c'est-à-dire qu'ils gardent leur forme. Cependant, ces creusets ont généralement une forme bien définie à cause des limitations du moule ou de son encombrement rendant l'obtention des cristaux de grand diamètre en quelque sorte très difficile. Cela revient en fait au régime d'écoulement et au champ de température, imposés à l'intérieur de ces creusets influençant ainsi l'évolution d'une interface cristal-liquide stable au cours de la croissance.

Dans ce contexte, est-ce qu'un changement de la géométrie du creuset pourrait contribuer à améliorer la qualité de la croissance ? Dès lors, nous pouvons faire l'hypothèse que si l'on choisit d'utiliser un creuset ayant un coin incurvé ou escamoté, nous nous attendons à ce que l'interface cristal-liquide qui joue un rôle primordial dans la qualité finale du monocristal soit améliorée. Tenant compte des considérations précédentes, nous proposons la modification du procédé de Kyropoulos en optant pour le choix d'un creuset ayant un coin incurvé et/ou escamoté afin de le substituer au creuset cylindrique classique. Dans ces conditions, quelle est la forme appropriée du creuset et quels sont les éventuels avantages de chaque forme du creuset étudié par rapport au creuset traditionnel en ce qui concerne la convexité de l'interface cristal-liquide ainsi que les contraintes thermoélastiques dans le monocristal du saphir? L'utilisation d'un chauffage résistif supplémentaire, placé au-dessous du creuset, à côté du chauffage inductif déjà existant, favorise-t-il les conditions de croissance, donc la qualité du cristal ? Quelle est la nature des effets de la rotation du cristal dans toutes les configurations considérées, sachant que ce paramètre n'a jamais été pris en compte dans ce procédé de croissance (Kyropoulos)?

C'est à l'ensemble de la problématique précédente que nous avons tenté d'apporter une réponse appropriée au niveau de chaque question soulevée et cela, en fonction de l'influence

d'un tel ou tel paramètre de contrôle. En particulier, il s'agit de résoudre simultanément, dans ce contexte, les équations aux dérivées partielles non linéaires régissant les modes de transfert de chaleurs, de quantité de mouvement et d'énergie.

Compte tenu de la complexité du problème, la méthode expérimentale reste longue et coûteuse pour obtenir des résultats acceptables. En revanche, la méthode analytique, voire semi-analytique, ne peut résoudre de tels phénomènes complexes. Seule l'approche numérique nous permet d'obtenir des résultats avec une marge d'erreur contrôlable dans un temps satisfaisant. Ce travail qui est essentiellement numérique a donc pour objectif la modélisation des mécanismes affectant le processus de croissance cristalline du saphir dans un four inductif de type Kyropoulos en vue de dégager les mécanismes et les propriétés attachées au procédé de croissance cristalline tels que la thermique, l'hydrodynamique, le changement de phase et la thermoélasticité.

Dans le but de mieux situer notre sujet, le premier chapitre présente la bibliographie relative à la croissance cristalline du saphir (Al_2O_3). En particulier, ses principales méthodes de croissance, ses propriétés, ses applications ainsi que les principaux défauts rencontrés lors de sa croissance sont également donnés. Au même chapitre, les études antérieures traitant l'optimisation de la forme de l'interface cristal-liquide et la diminution des contraintes thermoélastiques dans le monocristal du saphir sont aussi mentionnées.

Le deuxième chapitre porte sur la description du modèle mathématique utilisé dans nos simulations et les étapes importantes à suivre pour sa résolution numérique. Nous proposons la formulation mathématique générale du problème conduisant à un système d'équations aux dérivées partielles (EDP) fortement non linéaires. Les hypothèses simplificatrices conduisant à un système d'équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et d'énergie auxquelles on rajoute un ensemble de conditions aux limites adéquates correspondant à un four de croissance cristalline de type Kyropoulos. Nous donnons également une description du logiciel COMSOL Multiphysics utilisé dans nos simulations numériques, ses capacités et performances ainsi que la méthode des éléments finis sur laquelle il est basé. Nous détaillons les différentes étapes entamées pour la modélisation globale de la technique de croissance cristalline de saphir par la méthode Kyropoulos, depuis la création de la géométrie du four en passant par l'implémentation des différentes physiques existant dans le four de croissance et le paramétrage dans la modélisation jusqu'à la résolution numérique des équations du problème.

Au troisième chapitre, nous présentons une étude numérique bidimensionnelle axisymétrique dans les trois configurations retenues afin d'analyser l'étape juste avant la connexion du germe monocristallin (Seeding stage) avec la surface libre du bain liquide. Ce chapitre se rapportant aux résultats du premier stade de croissance du saphir est divisé en deux parties, la première est consacrée à une chambre de croissance sans la présence du germe et la seconde avec la présence du germe ainsi que le système qui le tient. Nous détaillons les résultats obtenus de l'effet géométrique de la base du creuset sur le transport de chaleur dans la chambre de croissance et l'hydrodynamique du bain fondu en utilisant le logiciel de calcul COMSOL Multiphysics qui traduit les équations régissant les transferts de

chaleur, de quantité de mouvement et d'énergie pendant la croissance cristalline du saphir par la méthode Kyropoulos.

Après avoir étudié l'influence de l'effet géométrique du creuset sur les premiers stades de croissance, nous étendons cette étude à une étape intermédiaire dans le quatrième chapitre où nous examinons l'effet des deux autres paramètres de contrôle proposés dans le cadre de cette thèse à savoir : l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire et la rotation du cristal). Les effets induits par la forme du coin de la base du creuset (convection naturelle), de la rotation du cristal (convection forcée) et l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire tout en considérant l'effet de la convection de Marangoni se manifestant à la surface libre du bain sont étudiés à une étape intermédiaire de croissance. Dans chaque cas considéré, nous montrons l'avantage des géométries proposées par rapport au creuset de référence et nous discutons les résultats sur l'interface de croissance cristal-liquide, paramètre d'évolution très important qui nous donne des informations sur la qualité finale du monocristal.

Le cinquième chapitre aborde les résultats tridimensionnels (3D) de calcul des contraintes thermoélastiques prédites dans le monocristal du saphir tout en mettant la liaison avec les paramètres cités ci-dessus (l'effet géométrique du creuset, l'ajout d'un chauffage résistif au-dessous du creuset et la rotation du cristal) en comparant entre l'analyse isotrope et anisotrope de la contrainte de von Mises.

Nous terminons par une conclusion générale faisant le bilan de nos travaux tout en mettant en relief les principaux résultats obtenus ainsi que les avantages présentés par les nouvelles modifications dans le procédé Kyropoulos par rapport à la technique traditionnelle. Un prolongement à nos recherches sera également évoqué en mettant l'accent sur la considération de la convection dans l'atmosphère de croissance afin d'améliorer la qualité de la croissance du cristal.

-CHAPITRE 1-

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1 Introduction

Avec le développement de la technologie, les matériaux cristallins sont devenus essentiels pour l'ingénierie moderne. Actuellement, il est possible de réaliser des structures cristallines "artificielles" de plus en plus compliquées, et de produire des couches minces de haute qualité dont l'épaisseur et la rugosité de la surface peuvent être contrôlées à l'échelle atomique. Ainsi, de nos jours, la croissance cristalline à partir du liquide a énormément évolué et a pris de l'ampleur. Actuellement, des cristaux quasi-parfaits de saphir (Al_2O_3) peuvent être cristallisés à partir du liquide avec de grandes masses et différentes formes. Cette réussite a été atteinte non seulement par l'amélioration des techniques de la croissance cristalline, mais surtout grâce aux efforts déployés pour comprendre et décrire les différents phénomènes intervenant lors des procédés de croissance et par la forte demande de ce type de cristaux. Le besoin intense de ce type de cristaux a conduit au développement des différents procédés de production de cristaux, en particulier, les procédés utilisant un bain liquide ; à savoir, techniques Czochralski (CZ) et Kyropoulos (KY).

Les monocristaux de saphir sont préférés dans plusieurs applications telles que l'optique et les dispositifs microélectroniques en raison de leurs excellentes propriétés. La méthode KY est l'une des techniques les plus importantes pour la production de grands monocristaux de saphir de qualité optique suffisante, utilisés comme substrats dans les dispositifs de fabrication de diodes électroluminescentes (LED). Après la croissance du monocristal de saphir, différents types de défauts (dislocations et fissures) sont souvent observés dans le lingot, ce qui réduit considérablement la qualité du saphir et influence les propriétés optoélectroniques de ces cristaux. Par conséquent, une amélioration de ses propriétés optoélectroniques nécessite une amélioration de l'efficacité de la qualité cristalline du saphir durant sa croissance.

Au cours du processus de la croissance de saphir par la technique Kyropoulos, de nombreux phénomènes se produisent, comprenant le phénomène thermique associé au phénomène hydrodynamique, sans négliger le changement de phase au cours de la solidification. Ces étapes entraînent des contraintes résiduelles dans le saphir solide, qui subit d'importants gradients de température et induit une distribution non homogène de fortes contraintes thermoélastiques dans le monocristal. En conséquence, des régions distinctes avec une multiplication intensive de dislocations se manifestent dans le cristal et leur présence est essentiellement due aux contraintes thermoélastiques produites dans le cristal pendant la croissance.

1.2 Techniques de croissance cristalline

L'ingénierie moderne nécessite des cristaux avec des formats bien déterminés et bien contrôlés et c'est pourquoi le développement de nouvelles techniques dans le domaine de la croissance cristalline est toujours en pleine extension. La croissance cristalline est une tâche difficile et la technique suivie pour la croissance des cristaux dépend des caractéristiques des matériaux étudiés, telles que son point de fusion, sa nature volatile, sa solubilité dans l'eau ou dans d'autres solvants organiques, etc.

De nombreuses méthodes, plus ou moins faciles à mettre en œuvre, existent pour faire croître les cristaux. Elles peuvent être regroupées en quatre grandes familles, selon le type d'équilibre mis en jeu entre une phase fluide (gazeuse ou liquide) et une phase solide, susceptible d'être le piège de réactions physico-chimiques et de mouvements hydrodynamiques. Les méthodes de croissance de base disponibles pour la croissance cristalline peuvent être classées comme suit :

- a) Croissance à partir de l'état liquide (Growth from melt) ;
- b) Croissance à partir d'une vapeur (Growth from vapor) ;
- c) Croissance à partir d'une solution (Growth from solution) ;
- d) Croissance à partir de l'état solide (Growth from solid).

1.2.1 Croissance à partir de l'état liquide

La croissance à partir de l'état liquide est le processus de cristallisation d'un matériau pur en suivant le processus de fusion/re-solidification, c.-à-d., si une substance a un point de fusion net comme dans le cas des substances élémentaires et des composés présentant une fusion congruente tels que l'alumine ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$), la matière première qui va servir pour la production de saphir monocristallin, la cristallisation peut être réalisée en procédant à la fusion du solide polycristallin, puis à un abaissement graduel de la température du liquide en dessous de la température de fusion.

Un tour d'horizon de l'utilisation des méthodes de croissance cristalline révèle que près de 80% des cristaux sont produits à partir de l'état liquide suivant le processus de fusion/re-solidification contre environ 7% à partir de la vapeur, 12% par précipitation d'une solution et 3% à partir de l'état solide. Par conséquent, la croissance à partir de la phase liquide est la méthode la plus importante dans le commerce.

1.2.2 Croissance à partir d'une vapeur

Nous pouvons distinguer deux types de processus en phase vapeur. Le premier met en jeu le transport direct de matière par évaporation ou sublimation depuis une zone chaude vers une zone froide de croissance: nous parlons ici de transport physique ou PVT (Physical Vapor Transport). Cette méthode est couramment utilisée pour la croissance de composés II-VI (ZnS, CdS) sous vide ou sous débit gazeux. Dans le deuxième type, le matériau, transporté sous forme de composé chimique (souvent halogénure), se décompose dans une zone de croissance pour redonner le solide de départ : nous parlons de transport chimique ou CVT (Chemical Vapor Transport). Dans les deux cas, la croissance peut être soit auto nucléée, soit avoir lieu par épitaxie, sur un germe du même matériau que celui à croître ou d'un autre matériau de paramètres cristallins proches.

1.2.3 Croissance à partir d'une solution

Des cristaux peuvent être obtenus à partir d'une solution à condition que celle-ci soit saturée, c'est à dire qu'elle contient plus de soluté qu'elle ne peut en contenir lorsqu'elle est

en équilibre avec le solide. Trois techniques principales sont utilisées pour obtenir cette saturation requise :

- le refroidissement lent de la solution (dite la méthode de croissance en flux) ;
- l'évaporation lente du solvant ;
- l'établissement d'un gradient de température entre une zone chaude contenant un excès de solide non dissout et une zone plus froide dans laquelle croît le cristal.

L'avantage essentiel d'un tel processus de croissance est le contrôle qu'il permet sur la température de croissance donc sur la saturation.

1.2.4 Croissance à partir de l'état solide

L'obtention de cristaux à partir de l'état solide, ou recristallisation, consiste en la transformation à l'état solide, d'un échantillon polycristallin à grains fins en un échantillon constitué d'un seul, ou au plus de quelques grands cristaux à des températures proches de la température de fusion. Pour cela, un des grains doit "consommer" tous les autres ou un nouveau grain doit être formé par nucléation adéquate et grossir au détriment des autres. L'accomplissement de ce type de transformation est généralement le résultat d'un traitement thermique ou/et d'une déformation plastique suivi d'un recuit. La cristallisation est surtout utilisée pour les métaux, mais elle a été aussi appliquée pour NaCl [1], Al_2O_3 [2] ou encore les carbures de Ti, Hf, Zn, Nb, N et Ta [3].

1.3 Histoire de la cristallogénèse du saphir

L'équipe du fondateur de la cristallogénèse scientifique, August Verneuil, a été la première au monde à fabriquer un saphir artificiel vers les années 1900 et à introduire les technologies de la croissance cristalline. C'est au cours de cette période (1904) et dans un compte-rendu à l'Académie des Sciences, que Verneuil a décrit également une technique de croissance par fusion à la flamme qui lui a permis d'obtenir des monocristaux de saphir et rubis [4].

Dès 1910, l'industrialisation de cristaux de rubis pour la joaillerie a démarré dans le laboratoire de l'équipe de August Verneuil à Paris, puis dans l'usine Djevahidjian à Monthey en Suisse, c'est le développement de l'électronique et des dispositifs à semi-conducteurs qui ont fait évoluer les techniques de la cristallogénèse. La découverte du transistor dans les laboratoires Bell aux USA en 1950 a permis de lancer le tirage d'un premier cristal industriel de grandes dimensions : le germanium [5]. Puis le silicium, ainsi que les semi-conducteurs III-V (AsGa, InP) et II-VI (CdTe).

La découverte en 1960 du premier cristal laser, le rubis (saphir dopé chrome, $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{+3}$), obtenu par la technique Verneuil, lance le développement de la cristallogénèse des cristaux pour l'optique [6]. C'est d'ailleurs grâce au rubis que l'effet LASER fut mis en évidence, expérimentalement, pour la première fois. L'année suivante, l'effet laser est obtenu à 1,064 μm dans un monocristal de CaWO_4 dopé Nd, obtenu par tirage Czochralski [7].

Vers la fin des années 90, le saphir a pris vraiment son envol avec l'apparition des LEDs (Light Emitting Diodes) et l'amélioration de la technologie SoS (Silicon on Sapphire). En effet, la perfection des cristaux et la faible réactivité chimique ont fait du saphir un excellent substrat dans l'industrie des semi-conducteurs pour les diodes électroluminescentes bleues et les lasers à diodes.

1.4 Le saphir monocristallin : Propriétés et applications

S'il y a un matériau qui a vu son utilisation explosée dans le milieu industriel pour un large domaine d'applications: c'est incontestablement le saphir monocristallin (Al_2O_3). Ses performances exceptionnelles et la combinaison excellente de ses propriétés optiques, mécaniques, thermiques et chimiques ont conduit à l'utiliser largement dans des applications où les conditions sont trop sévères par rapport à des matériaux traditionnels (métaux, superalliages).

De plus, le saphir possède à la fois un indice de réfraction élevé et une large bande de transmission du spectre optique couvrant les bandes ultraviolet (UV~190 nm), visible et infrarouge (IR~5500 nm). Le saphir, avec un niveau de 9 sur l'échelle de Mohs, n'est surpassé en dureté et en résistance à la rayure que par le diamant. Il a aussi un point de fusion élevé (2050°C) ainsi qu'une très bonne conductivité thermique, résistance à la traction, résistance à l'abrasion et aux chocs thermiques. La combinaison favorable d'excellentes propriétés optiques et mécaniques du saphir, associée à une grande durabilité chimique, en fait un matériau structurel attractif pour les applications de haute technologie. La [Figure 1.1](#) présente un lingot de saphir blanc (non dopé) et un saphir coloré (dopé Titane).

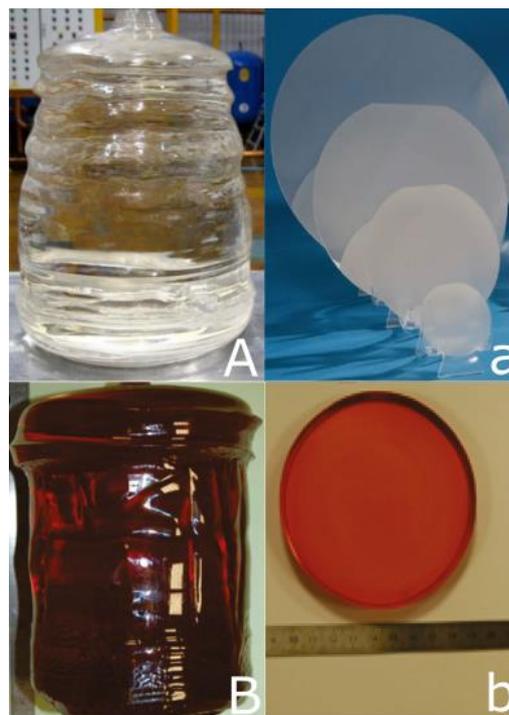


FIGURE 1.1 – Lingots et substrats de saphir synthétique obtenus par la méthode de croissance Kyropoulos. Saphir non dopé (A et a) et saphir dopé Titane (B et b) [8-10].

De nombreuses applications civiles et militaires se sont donc intéressées au saphir en raison de ses excellentes propriétés ainsi que sa stabilité chimique et thermique dans les milieux extrêmes et agressifs [11]. Les applications civiles incluent la joaillerie comme pierres précieuses (les bijoux), les équipements mécaniques durs (verres de montres, les coques d'affichage pour smartphone, hublots, etc.), domaines de thermométrie (procédés à haute température et environnements hostiles) et plus particulièrement celles des semi-conducteurs où il est un excellent substrat pour les diodes électroluminescentes bleues, vertes, ultraviolettes et blanches (LEDs). Les propriétés isolantes intrinsèques du saphir ont été le point de départ pour développer des dispositifs à base de silicium. Il est exploité comme substrat pour l'épitaxie du SiC, GaN et ZnO et comme substrat également pour la production de composants Silicon-on-Sapphire (SoS). Les cristaux de saphir sont utilisés également en chirurgie car ils sont chimiquement inertes et résistants au sang et aux liquides organiques et peuvent-être aussi implantés dans différentes parties du corps comme prothèse, implants et autres instruments médicaux [12]. Quant aux applications militaires, le saphir a été développé pour diverses applications telles que les fenêtres de systèmes de détection par l'avant aux rayons infrarouges (FLIR), systèmes de guidage, radiométrie, les dômes pour missiles à grande vitesse, les détecteurs infrarouges, les lentilles à fibre optique, diverses applications de ciblage et de détection sur les applications navales et aérospatiales. Les cristaux de saphir dopés par Ti^{+3} [10,13,14] et Cr^{+3} [6] sont à leur tour d'excellents matériaux laser.

1.5 Les méthodes de croissance cristalline du saphir non dopé

Comme nous l'avons vu précédemment, le saphir a un très bon potentiel pour servir de matériau de base à l'élaboration des matériaux innovants pour certaines applications de pointe dans la haute technologie (high-tech) et par conséquent sa croissance a énormément évolué et apparaît même comme une renaissance. Aujourd'hui, des cristaux quasi-parfaits de saphir peuvent être synthétisés à partir du liquide avec des masses supérieures à 10 kg et allant parfois jusqu'à 300 kg (cas de la méthode Kyropoulos). Cette réussite a été atteinte non seulement par l'amélioration des techniques de la croissance cristalline, mais surtout grâce aux efforts déployés pour comprendre et décrire les différents phénomènes qui interviennent dans les procédés de croissance et par la forte demande de ce type de cristaux.

Les méthodes de croissance utilisées pour la synthèse du saphir ont un impact important sur la qualité et la forme du saphir produit (Figure 1.2). Des aspects historiques du développement de diverses techniques de croissance des cristaux de saphir sont présentés dans certaines monographies et revues [15-21]. Elles impliquent toutes deux étapes de base: la fusion du matériau brut (l'alumine), et ensuite le refroidissement et sa solidification de façon à ce que les cristaux soient alignés. Toutes ces méthodes de croissance du saphir peuvent être regroupées en trois grandes familles, selon le type d'application :

- Cristaux en vrac (Bulk Crystals) : Verneuil [4,6,22], Czochralski [10,22-31], Kyropoulos [8,32-47], HEM [48-52], HDSM et GSM.
- Cristaux de saphir préformés (Shaped sapphire crystal) : EFG [51-57], NCS, GES et VST.

- La croissance cristalline des fibres de saphir (Sapphire fibre crystal growth) : Micro Pulling down [58-64], LHPG et ICM.

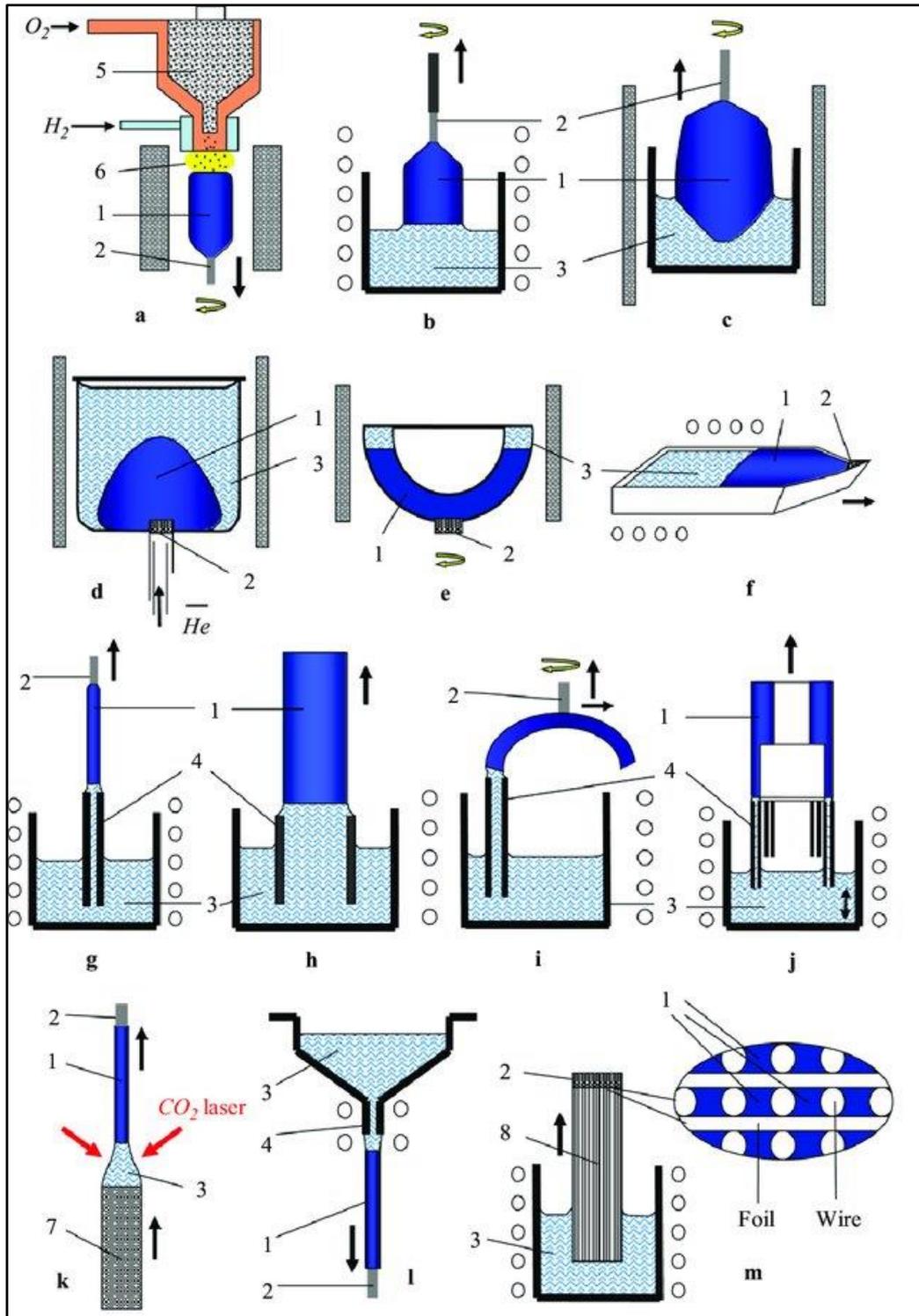


FIGURE 1.2 – Techniques de croissance du saphir : (a) Verneuil, (b) Czochralski, (c) Kyropoulos, (d) HEM, (e) GSM, (f) HDSM, (g) EFG, (h) NCS, (i) GES, (j) VST, (k) LHPG, (l) m-PD et (m) ICM. 1 – cristal, 2 – germe, 3 – zone fondue, 4 – filière mouillée, 5 – poudre de charge, 6 – flamme allumée, 7 – tige d'alimentation et 8 – matrice de molybdène avec des fibres [65].

1.5.1 La méthode Czochralski (CZ)

La méthode de croissance des cristaux dite Czochralski (CZ) a été introduite pour la première fois en 1918 par le chimiste polonais Jan Czochralski (Figure 1.2b) afin qu'il étudie la vitesse de cristallisation de métaux [66]. Par la suite, le procédé a été développé et utilisé dans l'industrie pour la croissance de matériaux semi-conducteurs [67-69] (silicium, GaAs, InP, etc.), de matériaux diélectriques et d'oxydes (saphir, rubis, YAG, LGT [70,71], etc.). La matière première est chargée dans un creuset chimiquement inerte (platine ou iridium) selon la température de fusion nécessaire et est chauffée à une température légèrement supérieure au point de fusion jusqu'à ce que tout soit fondu (Figure 1.3). Ensuite, un germe de cristal avec une orientation cristallographique précise en forme de tige mince de quelques millimètres de diamètre est monté sur un support de germe et est trempé dans le bain fondu et en est retiré selon un rythme bien précis alors que le cristal et le creuset sont entraînés dans une rotation en sens inverse. Le procédé est répété de manière continue, les couches de cristal s'ajoutant les unes aux autres lors de chaque cycle. Tout au long du processus, le refroidissement des spires de chauffage par induction ainsi que le porte-germe est assurée par une circulation d'eau permanente jusqu'à la fin du procédé.

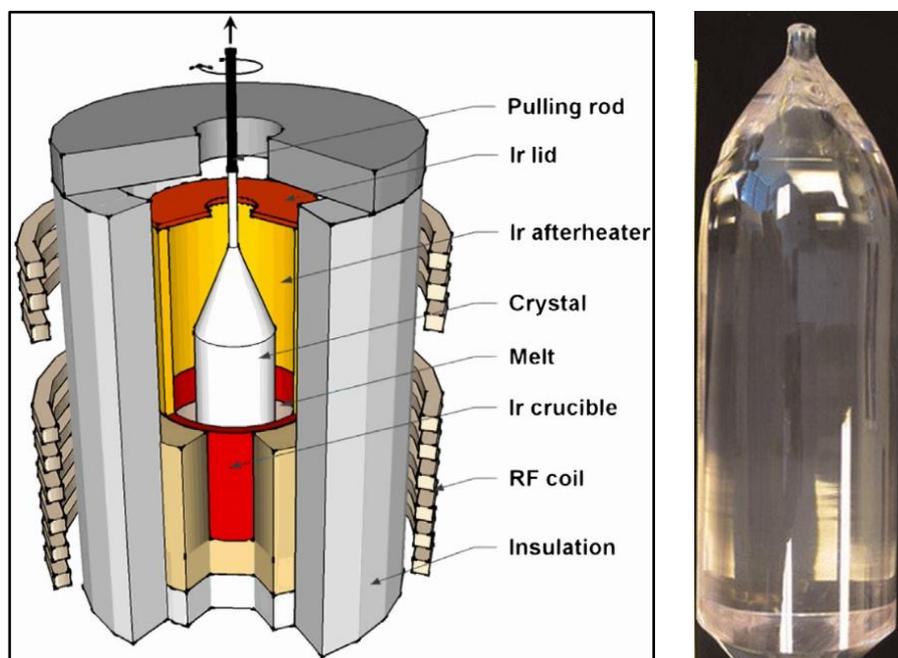


FIGURE 1.3 – Schéma de la méthode Czochralski (à gauche) et un monocristal de saphir obtenu par cette méthode (à droite) [18].

Le poids du cristal en croissance est mesuré en continu par une balance de précision sur laquelle la tige est fixée, ce qui permet un contrôle minutieux du diamètre et de la vitesse de cristallisation du monocristal. Il est possible de relier la balance au générateur électrique qui alimente les bobines afin d'exercer un rétrocontrôle automatisé évitant la nécessité d'un contrôle humain tout au long du procédé. Par exemple, si la masse augmente trop rapidement, c'est qu'une trop grande quantité de fondant cristallise, donc que le creuset est trop froid et qu'une puissance plus grande doit être envoyée dans la bobine. Le procédé

Czochralski reste toutefois une méthode délicate qui requiert une grande attention de la part de l'expérimentateur. En particulier, le contrôle de la température doit être extrêmement minutieux car nous nous devons placer très proche de la fusion du composé : le matériau doit être complètement fondu, mais une température trop élevée provoquerait la fusion du germe qui serait perdu.

La difficulté de mise en œuvre du procédé Czochralski est néanmoins compensée par la qualité des cristaux qu'il génère, ce qui en fait l'une des meilleures méthodes de cristallogenèse. De plus, l'ensemble de l'expérience peut être placée dans une enceinte fermée permettant d'effectuer des croissances sous atmosphère contrôlée. Cela permet de croître des cristaux de composés s'oxydant à l'air à haute température mais aussi de contrôler le degré d'oxydation de dopant par exemple, ce qui est particulièrement utile d'un point de vue technologique. Enfin, cette technique permet également de faire croître des monocristaux dans un espace ouvert, de sorte que le cristal n'entre pas en contact avec le matériau du creuset. Un inconvénient de ce procédé réside dans la difficulté à maintenir l'homogénéité chimique du cristal dans la direction de croissance et il peut prendre jusqu'à huit semaines, exigeant l'utilisation d'une grande énergie et une surveillance en continu.

Le saphir fabriqué de cette manière présente de bonnes propriétés optiques répondant aux lasers, aux fenêtres IR et UV, aux substrats électroniques transparents, aux hublots pour les traitements à haute température et aussi à d'autres applications optiques.

1.5.2 La méthode Kyropoulos (KY)

Bien que la méthode de croissance cristalline de type Kyropoulos (Figure 1.4) ait été utilisée pour plus de 90 ans pour produire des monocristaux de nombreux types, elle n'a pas suscité le même intérêt scientifique consacré à d'autres techniques de croissance telles que Bridgman [72-74] ou Czochralski.

Kyropoulos a proposé pour la première fois cette technique en 1926 à l'institut de physique à Göttingen en Allemagne, comme un moyen de produire des monocristaux d'halogénures alcalins exempts de fissures [75]. Jusque-là, la seule méthode connue pour produire des «grands» monocristaux était la technique Bridgman. Cette technique est bien adaptée à la croissance de matériaux ayant une faible conductivité thermique et un coefficient de dilatation thermique élevé.

La technique de croissance cristalline de type Kyropoulos (Figure 1.4a) s'apparente à la méthode de CZ sur le principe (croissance d'un cristal à partir de sa phase liquide sur un germe monocristallin, orienté et placé dans un gradient thermique). En comparaison avec la technique CZ, où l'interface cristal-liquide est à la surface du bain, est donc les gradients de température locaux sont importants, dans KY, l'interface cristal-liquide est plutôt immergée ; en conséquence toute perturbation mécanique ou thermique dans le four est atténuée par le bain avant d'atteindre l'interface. De plus, le germe cristallin mis en contact avec le bain n'est pas tiré de ce dernier et le cristal croît dans le liquide en prenant une forme hémisphérique sans translation et sans rotation du germe, mais plutôt par une diminution graduelle de la chaleur via un générateur à haute fréquence.

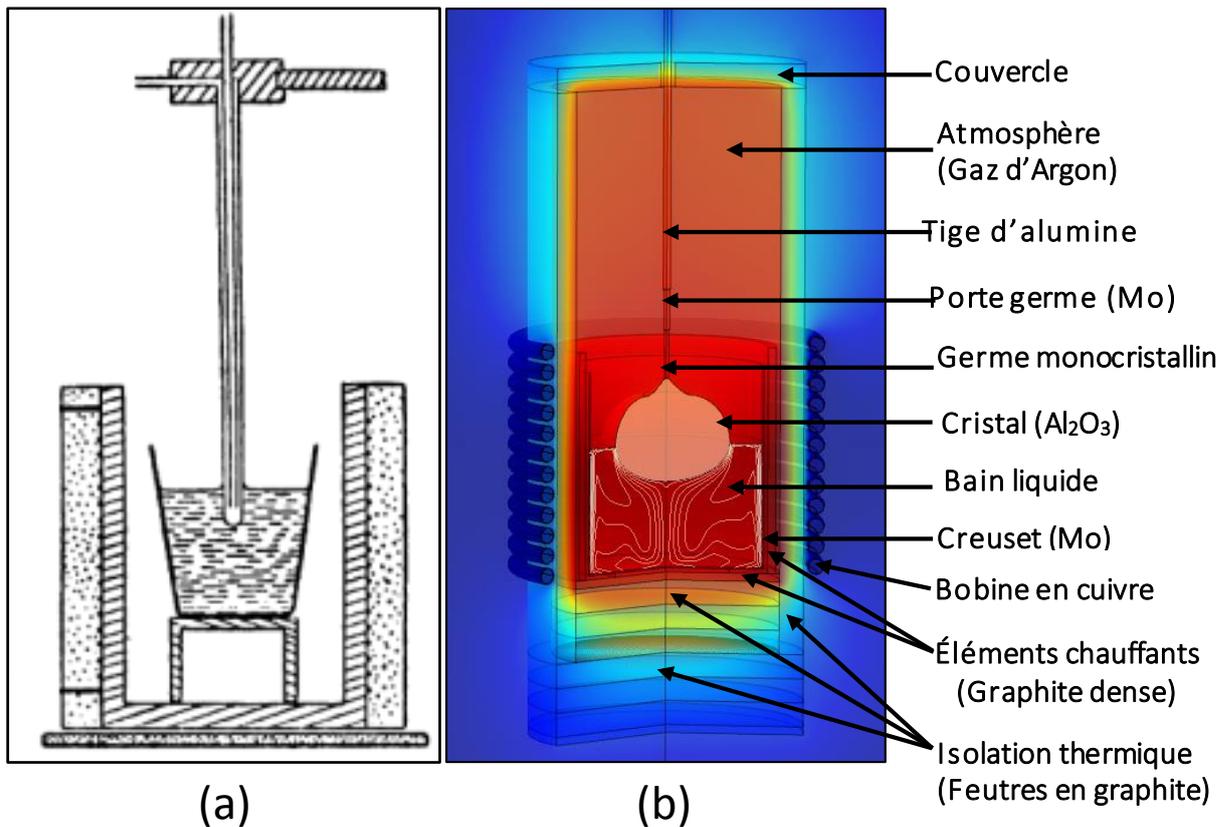


FIGURE 1.4 – (a) Schéma du procédé de croissance Kyropoulos de son papier original [75] et (b) celui de la chambre chaude du four inductif de la même méthode à une étape intermédiaire de la croissance du saphir monocristallin [45].

Cette technique de croissance (KY) repose soit sur le principe du chauffage inductif ; soit résistif pour fournir la puissance thermique requise à la fusion de la matière première. Dans le cas d'un chauffage par induction, la puissance est générée par le passage d'un courant alternatif à travers une bobine en cuivre qui entoure la chambre chaude de la croissance (les éléments chauffants en graphite dense, creuset en molybdène, système d'isolation, monocristal du saphir, germe, porte germe, etc.). Afin d'éviter toute perte de chaleur à l'intérieur de la chambre chaude de croissance, le système est isolé thermiquement dans des feutres en graphite (Figure 1.4b) et pour garantir aussi que la température présente une distribution symétrique dans le four, le centre de tous les composants à l'intérieur du four de croissance doit être maintenu dans la même position axiale.

À l'heure actuelle, la méthode Kyropoulos est l'une des méthodes efficaces pour la croissance des cristaux de grand diamètre et une qualité supérieure à ceux obtenus par toute autre méthode. La progression de la taille des boules de saphir cultivées en utilisant la méthode Kyropoulos (3-200 kg) est présentée dans la Figure 1.5. L'avantage de cette méthode est que la dimension du cristal obtenu par croissance n'est limitée que par la taille du creuset utilisé et les cristaux sont dépourvus de toute fissure ou défaut qui pourrait résulter d'un confinement de dimension restreinte. Les cristaux de saphir produits sont aussi d'une très grande qualité optique répondant aux exigences de la fabrication de lingots et de substrats destinés aux applications telles que LEDs et circuits intégrés Radiofréquences,

fenêtres, lentilles et optiques de précision. Cependant, les boules obtenues par la méthode Kyropoulos présentent des traces périphériques superficielles.



FIGURE 1.5 – Des lingots de saphir de 3 kg, 31 kg, 83 kg et 200 kg, développés par Rubicon Technology [9].

1.6 Les défauts dans les cristaux de saphir

Avec le développement rapide de la science et de la technologie modernes, les exigences des matériaux en saphir sont de plus en plus élevées [76] : pureté $> 99,999\%$, précision d'orientation $< \pm 0,5^\circ$, densité de dislocations $< 1 \times 10^3 \text{ cm}^{-2}$, teneur en carbone $< 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, etc. Cependant, quel que soit le processus de croissance, les cristaux obtenus sont caractérisés par la présence de certains défauts macroscopiques et/ou microscopiques qui affectent leurs qualités optiques et mécaniques limitant ainsi leurs applications malgré l'amélioration de la technologie de croissance des cristaux et la profonde connaissance des propriétés physiques et physico-chimiques de cet oxyde simple.

Ces défauts sont souvent observés dans les cristaux de saphir dont on citera à titre d'exemple, les bulles et microbulles, les fissurations, les zones de re-fusion et les dislocations qui sont plus courants. La présence de chaque type de défauts dans le saphir dépend du procédé utilisé, de la préparation de la matière première formant la charge de départ et au traitement thermique ultérieur.

Afin d'améliorer la qualité des cristaux, il est important d'éliminer ces défauts dans le saphir et de connaître la raison de leurs formations, les causes de leurs propagations, de leurs constitutions, et de leurs diffusions dans le cristal. De même, l'étude de l'origine et du comportement de distribution de ces défauts à l'intérieur du cristal peut permettre de mieux comprendre le processus de croissance des cristaux, ce qui peut fournir des informations solides pour l'amélioration de la production.

1.6.1 Les bulles

Les bulles microscopiques et macroscopiques peuvent être observées assez souvent dans le cristal de saphir. Elles ont une grande influence sur ses propriétés et restent un problème majeur et sérieux dans la croissance cristalline de ce dernier. Elles dégradent les propriétés optiques en diminuant la transparence, ainsi que le rendement des lasers dans le cas du saphir dopé Titane ou Chrome. Pour les applications en microélectronique, elles induisent des défauts de surface irrémédiables pendant le processus de polissage des substrats. Les microbulles concentrées entre les couches cristallisées sont de nature à fragiliser le matériau, et constituent donc de bons candidats pour l'amorce de la fissuration [77]. Les petites bulles, également connues sous le nom de «micro-bulles ou micro-vides», ont généralement une plage de diamètre de plusieurs μm à des dizaines de μm , certaines grosses bulles ont même un diamètre de centaines de μm [57]. Elles appartiennent à la catégorie des «inclusions gazeuses», une sorte de défaut de volume. Si le cristal est suffisamment transparent, sous une forte lumière, les petites bulles peuvent être observées distinctement à l'œil nu comme illustré à la Figure 1.6 présentant la distribution des bulles dans la boule de saphir examinée par le laser He-Ne.



FIGURE 1.6 – La distribution des bulles dans un lingot de saphir obtenu par la méthode KY.

L'origine des microbulles incorporées dans les cristaux de saphir obtenus par la méthode EFG ne provient pas essentiellement de la décomposition de l'alumine fondue ou de la réaction entre l'alumine et le creuset [78] mais du gaz CO dissout dans le bain après décomposition des pièces en graphite. Borodin et al. [79] ont trouvé que les microbulles sont liées aux impuretés rejetées à l'interface de cristallisation (cristal-liquide) et balayées par la convection le long de cette interface vers la périphérie du cristal. Elles peuvent provenir des gaz dissouts dans le liquide, dont la concentration est maximale près du front de cristallisation.

Ces gaz peuvent se trouver dans le liquide à cause de leur présence dans la matière première [80]. Il a été trouvé dans les travaux [26,27] décrivant l'ensemble des phénomènes impliqués lors de l'incorporation des bulles dans les cristaux de saphir non dopés et dopés titane obtenus par la technique Czochralski (CZ) que l'utilisation du saphir craquelé comme charge de départ pourrait être une bonne façon de minimiser la création de bulles et de limiter leurs

propagations. Rekia et al. [64] ont conclu également que la distribution des bulles dans la fibre de saphir tirée par μ -PD est gouvernée principalement par la vitesse de tirage, au travers de l'écoulement du liquide et du rejet de la matière à l'interface de cristallisation. Les directions cristallographiques et les gradients de température sont des paramètres qui peuvent également affecter la distribution des bulles mais à des degrés moindres par rapport au facteur "vitesse de tirage". La pureté de la matière première est un autre facteur important qui peut minimiser la propagation des bulles.

1.6.2 Les zones de re-fusion

Le phénomène connu sous le nom de «zones de re-fusion» est le principal problème rencontré lors de la croissance cristalline du saphir par la méthode Kyropoulos. Si le phénomène de re-fusion se produit excessivement, une partie importante du lingot, a une forte possibilité d'avoir des défauts dégradant à la fois la qualité du cristal et la taille du lingot qui se traduit par la suite par une perte de masse et d'énergie. Certains auteurs ont étudié ce phénomène et proposé des solutions pour retarder son apparition. S.E. Demina et al. [33] ont trouvé qu'un vortex secondaire de faible intensité près de la surface libre modifie la forme de l'interface cristal-liquide et conduit à une zone de re-fusion. C. Chen et al. [40] ont proposé une forme particulière de creuset (coin incurvé de l'extérieur et conique de l'intérieur) pouvait retarder le début du phénomène de re-fusion. H.S. Fang et al. [38] ont conclu que la convection naturelle et thermocapillaire au début de la croissance sont à l'origine de l'apparition d'une zone de re-fusion et la maîtrise de ces deux modes de convection pourrait éviter ce type de défaut.

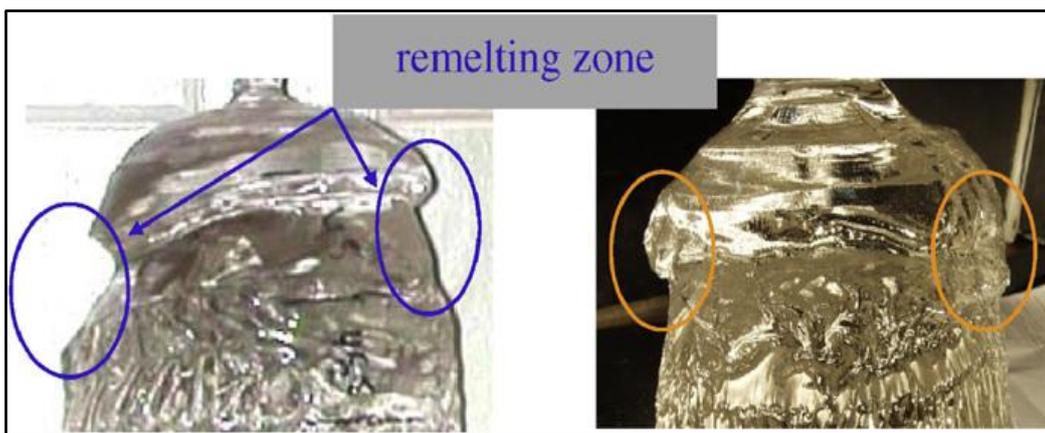


FIGURE 1.7 – La partie supérieure des lingots de saphir avec des zones de re-fusion plus larges (à gauche) et plus petites (à droite) obtenu par la méthode KY [33].

1.6.3 Les dislocations

Les dislocations sont des défauts microscopiques courants des cristaux de saphir. Les origines de ces dislocations sont les suivantes : (1) des dislocations héritées du germe lui-même, y compris les dislocations introduites lors du processus d'usinage et de l'étape de germination. Autrement dit, si au cours de la croissance cristalline, des contraintes thermiques se produisent à cause des forts gradients de température existant dans la chambre

chaude du four, des joints de grains sont susceptibles d'apparaître et ils peuvent être des amorces de propagation de fissures dépendant de l'orientation ; (2) la distorsion du réseau cristallin de saphir est attribuée à des perturbations liées au gradient de température. À haute température, si ces gradients de température transversaux sont intenses, cela provoquerait des contraintes thermoélastiques qui génèrent des dislocations à l'intérieur du cristal.

La Figure 1.8 montre la morphologie des dislocations générées sur le plan (0001) des substrats de saphir obtenus par la technique KY [81]. Les dislocations sous forme de gravures diffèrent d'un plan à un autre. Elles sont des triangles sur le plan (0001), tandis que sur le plan $(11\bar{2}0)$ sont des losanges. En effet, une telle morphologie de dislocation est déterminée par le groupe de points et la structure du cristal. Pendant le processus de croissance ou de refroidissement, le cristal est exposé à de forts gradients de température à l'intérieur de la chambre chaude, ce qui peut provoquer un champ de contraintes thermoélastiques important. Un tel champ de contraintes peut provoquer à son tour une déformation plastique du cristal en activant les systèmes de glissement et plus de dislocations se forment. La Figure 1.8 révèle également que la densité de dislocations n'est pas uniforme suivant les différentes directions de croissance des cristaux de saphir. Elle est plus élevée à l'épaulé et plus petite dans la partie de diamètre égal des cristaux.

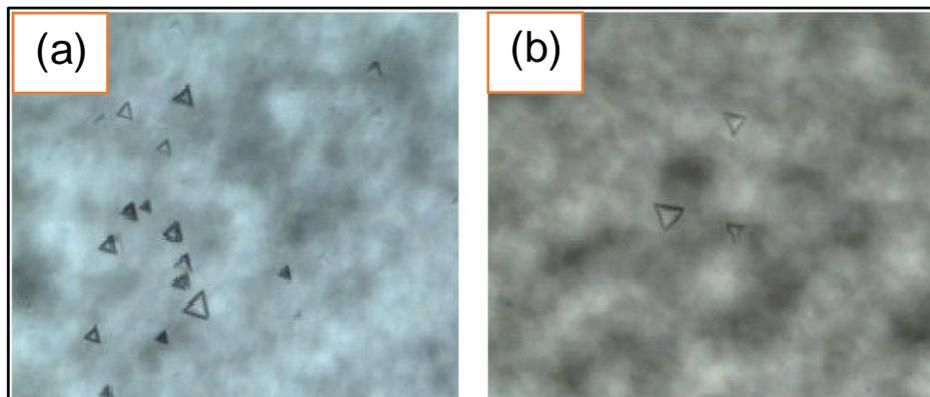


FIGURE 1.8 – Gravures de dislocations sur le plan (0001) des substrats de saphir obtenus par la méthode KY: (a) position de l'épaulé (shouldering position), (b) position du milieu (equal-diameter position) [81].

1.6.4 Les fissurations

La fissuration (cracks) est l'un des défauts apparaissant dans les lingots de saphir de grande taille. Elle est divisée en fissuration sous contrainte (stress cracking) et fissuration polycristalline (polycrystalline cracking), comme le montre la Figure 1.9b. Le cristal sous contrainte est également facile à craquer le long du plan de clivage. Le processus de croissance cristalline est principalement obtenu en contrôlant le système de transport de chaleur. Ainsi, le cristal lui-même est lié à un certain gradient de température dans le champ thermique. Lorsque la vitesse de croissance ou de refroidissement du cristal est trop rapide, cela engendre des contraintes thermoélastiques élevées dans le cristal et par conséquent, des fissures dans le cristal apparaissent lorsque la déformation dépasse la limite d'élasticité.

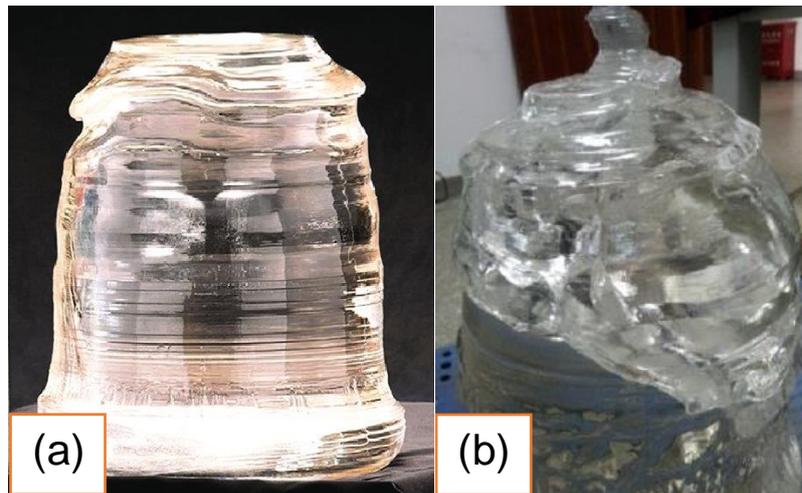


FIGURE 1.9 – Fissuration dans les cristaux de saphir de grande taille : cristal non fissuré (a) et cristal fissuré (b) [9,81].

1.6.5 Les inclusions

L'inclusion solide est un défaut macroscopique qui réduit la qualité des cristaux de saphir et se présente sous forme de triangle, rectangle, ou sous forme d'une farineuse avec des diamètres d'environ 10 à 1000 μm [82]. Elle cause la dispersion et l'absorption de la lumière dans le cristal, générant ainsi des échauffements qui vont causer des tensions mécaniques et des ruptures. Les éléments d'impureté de la matière première (Ca, Fe, Mg, Cu, ..) et du matériau provenant du creuset (W, Mo, Ir), de l'unité de chauffage et des isolants vont former des inclusions dans les cristaux. En raison du phénomène de décharge d'impuretés, les impuretés dans les matières premières sont rejetées vers le bord et les impuretés dans le creuset seront diffusées vers le centre. Ces impuretés précipitent lorsque la concentration dépasse la concentration saturée dans le bain fondu, formant des inclusions. Par conséquent, la grande pureté de la matière première, du creuset et de l'isolant est essentielle à la croissance d'un cristal de saphir de haute qualité.

1.7 Travaux antérieurs

Aujourd'hui, et afin de répondre aux besoins technologiques qui nécessitent une très haute qualité du saphir ; la croissance cristalline de ce dernier, vise à croître des lingots de grande taille qui sont exempts de défauts. La présence de ces défauts est susceptible de dégrader la qualité des cristaux et affecter leurs propriétés mécaniques (dureté, résistance de rupture) [25] et entraîner des contraintes thermiques causant des dégâts optiques importants en diminuant ses performances optiques (la transparence, transmission, guidage, détection et émission, etc.) [27,60]. L'apparition de ces défauts qui dépend principalement des conditions de croissance de chaque procédé, induit non seulement des défauts irrémédiables au cours du polissage du saphir mais aussi de la qualité des composants qui les contiennent. Par conséquent, l'intérêt de faire croître des cristaux de saphir de haute qualité devient une nécessité et un objectif important.

Récemment, G. Alombert-Goget et al. [83] ont caractérisé par différentes techniques les défauts de diffusion particuliers au cristal obtenu par la méthode Kyropoulos et discuté la nature de ces défauts. Dans leur travail, ils ont comparé la technique Czochralski pour laquelle les cristaux ne présentent aucun défaut et ils ont constaté que la forme convexe de l'interface cristal-liquide dans le cas de la technique Kyropoulos était probablement responsable de ce défaut. Ainsi, ils ont proposé d'augmenter la vitesse de rotation du cristal afin de réduire la convexité de l'interface en tant que moyen potentiel d'éliminer le défaut.

De nombreux chercheurs ont déjà effectué des simulations numériques au cours de la croissance cristalline de type KY pour réduire la convexité de l'interface cristal-liquide. En 2007, S.E.Demina et al. [32] ont étudié numériquement la croissance cristalline du saphir dans un four industriel. Ils ont développé un modèle qui prend en compte l'échange de chaleur radiatif dans le cristal et la masse fondue ainsi que la formation du front de cristallisation. Ils ont montré que la convection du bain a un effet sur la forme du front de cristallisation cristal-liquide et sur les gradients de température au sein du cristal et du bain fondu. L'année suivante, S.E.Demina et al. [33] ont suggéré un modèle numérique plus avancé permettant d'analyser plusieurs configurations de croissance et de sélectionner la configuration optimale. Ils ont proposé des modifications du système d'isolation thermique à l'intérieur de la zone chaude du four via l'utilisation des matériaux alternatifs permettant ainsi des changements de température dans l'ensemble de la chambre chaude du four et en particulier sur l'interface de solidification. Ils ont conclu également que ces modifications jouent un rôle très important pour éviter le développement des zones surfondues sur l'épaule du cristal.

W.J.Lee et al. [34] ont étudié numériquement la croissance cristalline du saphir en utilisant la méthode Kyropoulos afin d'optimiser le processus. Ils ont trouvé les résultats suivants :

- Le changement de la géométrie du creuset produit des fluctuations de chauffage qui conduisent aux différents champs thermiques dans le bain de Kyropoulos. Avec l'augmentation du rayon du coin de la base du creuset, le gradient de la température dans le bain dans la direction verticale et la vitesse des tourbillons près de la surface de cristallisation diminuent.
- La présence de la base incurvée du creuset fait diminuer la convexité de l'interface cristal-liquide et supprime le développement de la forme ondulée de l'interface durant la croissance. De ce fait, une telle forme de creuset semble être plus efficace pour éviter une croissance indésirable et améliorer la qualité du cristal de saphir par rapport à celui cultivé dans un creuset cylindrique.

C.H.Chen et al. [35] ont utilisé la simulation numérique pour analyser le transfert de chaleur globale et l'écoulement du bain fondu dans un four KY utilisant un chauffage résistif pendant la croissance cristalline du saphir. Ils ont étudié l'évolution de l'historique de la puissance d'entrée de chauffage, de la forme de cristal, de l'interface cristal-liquide et des champs de vitesse et de température au cours du processus de croissance. Dans cette étude, la génération de chaleur est constante pour l'élément chauffant supérieur près de la paroi

latérale du creuset, tandis qu'elle augmente linéairement à partir de la position où l'élément chauffant supérieur est situé jusqu'au point central de l'élément inférieur (milieu de la base de creuset). Ils ont trouvé qu'aux premiers stades de la croissance, l'interface de croissance est toujours convexe vers le bain ; quand elle est proche de la base du creuset, elle devient plane.

Suite à leur étude précédente et afin de croître un monocristal de saphir de haute qualité, C.H.Chen et al. [36] ont cette fois-ci considéré un système de chauffage différent du premier afin d'améliorer les distributions de température et de vitesse et la forme du cristal. Ce chauffage se compose de trois zones de chauffage au lieu de deux (trois éléments chauffants) avec quatre configurations différentes du rapport de puissance. Ce nouveau dispositif de chauffage permettrait selon eux de fournir des puissances différentes dans les différentes sections et cela afin de contrôler le champ thermique dans le bain pendant le processus de croissance. Les résultats montrent que, pour les arrangements de puissance considérés, les gradients de température sur le front de cristallisation ne dépassent pas 0,05 K/mm et que, après la croissance de l'étape épaulement (shouldering stage), le cristal conserve un diamètre presque constant. Ils ont également conclu qu'un phénomène de re-fusion (remelting phenomena) peut se produire pendant un stade intermédiaire de la croissance lorsque la puissance d'entrée du côté supérieur de l'appareil de chauffage est supérieure à celle du côté inférieur.

H.S.Fang et al. [37] ont étudié l'effet du rayonnement interne dans le saphir par l'utilisation du modèle dit Discrètes Ordinates (DO) pour différentes étapes de la croissance cristalline de type Kyropoulos. Les résultats de cette étude montrent que le rayonnement interne joue un rôle clé au cours de la croissance et qu'une modélisation du rayonnement interne est nécessaire pour prédire une interface légèrement déformée compatible avec l'observation expérimentale. Ils ont trouvé que : le rayonnement interne fait augmenter la capacité du transfert de chaleur entre le bain et le cristal, uniformise la distribution de la température, participe à l'atténuation de la convection dans le bain et réduit les contraintes dans le cristal. L'analyse du mécanisme de re-fusion montre que la convection naturelle aux premières étapes de la croissance et la convection de Marangoni aux dernières étapes de la croissance sont des facteurs responsables de la re-fusion.

Afin d'améliorer les conditions de la croissance du saphir par la méthode Kyropoulos, C.Chen et al. [40] ont étudié le transport de chaleur à l'intérieur de la chambre chaude de croissance et l'écoulement dans le bain, ainsi que la forme de l'interface cristal-liquide. Leur étude porte sur l'analyse de l'effet géométrique du creuset en prenant trois formes différentes à savoir : un creuset cylindrique avec un coin droit (1), avec un coin incurvé (2) et un creuset ayant une forme particulière (3) c'est-à-dire un creuset incurvé de l'extérieur et conique de l'intérieur. Ils ont conclu que l'utilisation de la forme spéciale du creuset se traduisait par une interface cristal-liquide plus stable, un écoulement du bain plus approprié et des gradients de température moins élevés. Par conséquent, cette forme de creuset présente des avantages concernant le transfert de chaleur au cours du processus de croissance du saphir et peut contribuer à obtenir un meilleur comportement à la croissance qu'un creuset cylindrique ou celui ayant un coin incurvé.

Weina Liu et al. [42] ont proposé dans leur étude de modifier la disposition des éléments chauffants dans le four de croissance afin de réduire l'inversion de l'interface et d'ajuster la puissance de chauffage au cours des dernières étapes de la croissance pour obtenir une interface plus stable. Parmi les résultats, ils ont trouvé que le gradient de température dans le bain au niveau de l'interface cristal-liquide a beaucoup d'influence sur la forme de l'interface. Il permet de créer une interface stable en ajustant la puissance des éléments chauffants durant le processus de croissance. Par exemple, une augmentation de la puissance du réchauffeur de fond au dernier stade de la croissance du cristal peut supprimer le phénomène d'inversion de l'interface apparu au centre du cristal. Par conséquent, le réglage de la structure chauffante peut donc optimiser efficacement la forme de l'interface cristal-liquide.

1.8 Modélisation des contraintes thermoélastiques

Récemment, la modélisation numérique des contraintes thermoélastiques au cours de la croissance de cristaux d'oxydes a fait l'objet de beaucoup de travaux. Comme exemple récent dans la littérature, il y a des simulations de croissance de Langatate ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$) [70] où les auteurs ont étudié expérimentalement et numériquement l'addition d'un post-chauffage (after heater) dans un four CZ en tenant compte de l'anisotropie du cristal. Ils ont constaté une diminution considérable de la convexité à l'interface cristal-liquide et des contraintes de von Mises en modifiant les paramètres de croissance. En 2015, Fang et al. [84] ont mené une série d'analyses numériques et théoriques pour discuter des mécanismes de formation de défauts lors de la croissance afin d'améliorer la qualité du cristal. Ils ont constaté que la valeur de la contrainte autour de l'épaule du cristal est la plus grande, alors que celle au fond du germe est la plus petite. Au fur et à mesure que la vitesse de rotation des cristaux augmente, l'interface cristal-liquide devient moins convexe et la contrainte von Mises autour de l'interface diminue considérablement.

Dans le cas du saphir, plusieurs calculs de contraintes thermoélastiques au cours du processus de croissance cristalline ont été étudiés à l'aide de la méthode des éléments finis, mais ils ont presque tous été effectués dans le cas d'une hypothèse axisymétrique à deux dimensions [25,30,32,33,37,39,43,45]. Certaines analyses numériques effectuées pour la croissance CZ du saphir ont révélé que la convexité et les contraintes thermoélastiques du cristal sont fortement dépendantes, ce qui suggère qu'une faible contrainte de von Mises peut être obtenue en diminuant la convexité de l'interface cristal-liquide.

Tran Phu Nguyen et al. [30] a étudié la dépendance des contraintes thermoélastiques à la hauteur du lingot de saphir au cours du processus de croissance de Czochralski. Ils ont constaté que la contrainte maximale de von Mises diminue rapidement à mesure que la longueur du cristal augmente et qu'une diminution significative de la contrainte de von Mises au niveau de l'interface peut être obtenue pour une faible convexité. Fang et al. [93] ont constaté que la qualité des cristaux peut être améliorée en réduisant les contraintes thermoélastiques via la modification de certains paramètres de croissance. Selon leur analyse, il est possible d'obtenir une interface cristal-liquide plane en utilisant la rotation du cristal, ce qui minimise ainsi les contraintes thermoélastiques maximales dans le monocristal.

Demina et al. [32,85] ont étudié la relation entre la qualité de saphir et les paramètres de croissance en améliorant le système de l'isolation thermique à l'intérieur de la zone chaude du four de Kyropoulos. Ils ont constaté que les valeurs maximales de la contrainte de von Mises se situent près du germe, le long de l'interface cristal-liquide et le cou du cristal. H.S. Fang et al. [38] ont trouvé que les facteurs susceptibles de provoquer la fissuration du cristal lors de la croissance du saphir et de fragiliser davantage le cristal sont la croissance polycristalline locale ou les conditions de chauffage non uniformes. Dans une autre étude [37], ils ont montré qu'une diminution de contraintes de von Mises dans le cristal peut être obtenue en tenant compte du rayonnement interne.

Tran Phu Nguyen et al. [46] ont étudié numériquement l'effet de l'historique de la puissance de chauffage sur la forme du cristal et les contraintes thermoélastiques induites pendant le processus de Kyropoulos. Leurs simulations numériques prédisent que les régions à fortes contraintes de von Mises se trouvent à proximité du germe, à la surface du cristal et à l'interface cristal-liquide. C-H.Chen et al. [39] et S. Wang et al. [43] ont étudié numériquement le champ de température et la distribution des contraintes thermoélastiques dans un monocristal de saphir au cours du processus de refroidissement. Les premiers auteurs ont révélé que la contrainte la plus élevée se situe dans la région proche du germe-cristal, au centre du cristal et à la surface du cristal. Tandis que les deuxièmes ont étudié l'effet des rapports de répartition du chauffage où ils ont constaté que les contraintes importantes sont généralement présentes uniquement dans les régions proches du cou de cristal.

Il est à noter que toutes les études susmentionnées montrent l'importance de l'analyse des contraintes thermoélastiques dans les cristaux en croissance pour la prédiction qualitative de la qualité du cristal cultivé. Cependant, à notre connaissance, il n'existe aucun travail tenant compte à la fois de l'anisotropie des cristaux et de la dépendance en température du tenseur élastique et du coefficient de dilatation thermique lors de la croissance cristalline des monocristaux de saphir par la méthode Kyropoulos. C'est pourquoi, ce travail de thèse vient examiner la relation entre les contraintes thermoélastiques tridimensionnelles dans le monocristal du saphir et les différentes conditions de croissance tout en mettant l'accent sur son aspect anisotrope.

1.9 Conclusion

Nous avons recensé dans ce premier chapitre l'essentiel de ce que l'on peut trouver dans la littérature sur le saphir et sa croissance cristalline. L'étude bibliographique nous a permis de faire ressortir les principales techniques de croissance cristalline du saphir à partir de l'état liquide (bain fondu) et les défauts rencontrés lors de sa croissance. En outre, elle a fait apparaître que le choix de la méthode est conditionné par la qualité, la productivité et la forme du cristal désiré. Les rappels que nous venons de faire nous ont permis en les développant d'avoir une vision globale sur les problématiques rencontrés durant la cristallogenèse du saphir non dopé. Ceci nous a donc amenés à réaliser une étude numérique dans le four de Kyropoulos en étudiant différents paramètres optimisant ainsi la forme de l'interface et minimiser les contraintes thermoélastiques dans le cristal cultivé.

-CHAPITRE 2-

FORMULATION MATHÉMATIQUE

2.1 Introduction

Ce chapitre traite de la modélisation de la croissance cristalline du saphir monocristallin par la technique Kyropoulos. Nous avons vu dans le chapitre 1 que la cristallisation du saphir est un problème multi-physique qui fait intervenir un couplage entre les conditions thermiques dans le four, la convection dans la phase liquide (naturelle et/ou forcée) et le changement de phase à l'interface cristal-liquide. Par conséquent, il est nécessaire d'obtenir les informations correctes sur tous ces mécanismes et de les maîtriser à l'intérieur de l'enceinte du four afin de pouvoir produire un monocristal de saphir de bonne qualité.

L'étude expérimentale dans les systèmes réels de la croissance cristalline tels que la méthode Kyropoulos est très limitée. Cela est dû au fait que la visualisation n'est pas possible avec les températures opérant en phase réelle de croissance (se faisant à des températures élevées). Nous proposons ici, de décrire les conditions de travail liées à l'élaboration d'un monocristal de saphir afin de formuler un modèle mathématique qui régit le problème physique considéré. Il s'agit essentiellement d'analyser les aspects phénoménologiques de la croissance cristalline de type Kyropoulos dans les différentes configurations envisagées.

La première partie de ce chapitre donne la description du four de Kyropoulos étudié dans nos simulations, les phénomènes physiques qui interviennent lors du processus de croissance, les équations et les conditions aux limites sont également données pour chaque partie du domaine de l'enceinte de croissance. Quant à la seconde, elle est consacrée à la résolution numérique, les définitions des paramètres choisis et des propriétés utilisées dans les simulations sont aussi fournies.

2.2 Modélisation des phénomènes intervenant lors de la croissance cristalline de type Kyropoulos (KY) : Approche bidimensionnelle axisymétrique (2D axisymétrique)

Notre géométrie illustrée en [Figure 2.1](#) consiste en un four inductif de croissance de Kyropoulos bidimensionnel prenant en considération les phénomènes suivants :

- un chauffage inductif, où deux suscepteurs sont chauffés par induction magnétique, l'un est de forme cylindrique entourant le creuset et l'autre est horizontal placé au-dessous du premier. Les deux éléments en graphite dense chauffent ensuite le creuset par rayonnement et par conduction ;
- un chauffage résistif supplémentaire, où un disque métallique en graphite dense également, est en contact avec la base du creuset en molybdène, est chauffé par effet Joule transférant ensuite de la chaleur au creuset par conduction ;
- les phénomènes thermiques (conduction, convection naturelle et forcée, rayonnement surfacique, le rayonnement interne à l'intérieur du cristal, convection thermocapillaire (dite de Marangoni) à la surface libre du bain) ;

- le changement de phase traitant l'évolution de l'interface cristal-liquide au cours de la croissance.

Le four comprend également un ensemble d'éléments :

- un creuset en molybdène ;
- un inducteur en cuivre où circule l'eau de refroidissement ;
- des isolants en feutre graphite pour maintenir la chaleur produite à l'intérieur du four ;
- La chambre est chargée d'argon gazeux et la paroi de l'enceinte est refroidie par de l'eau.

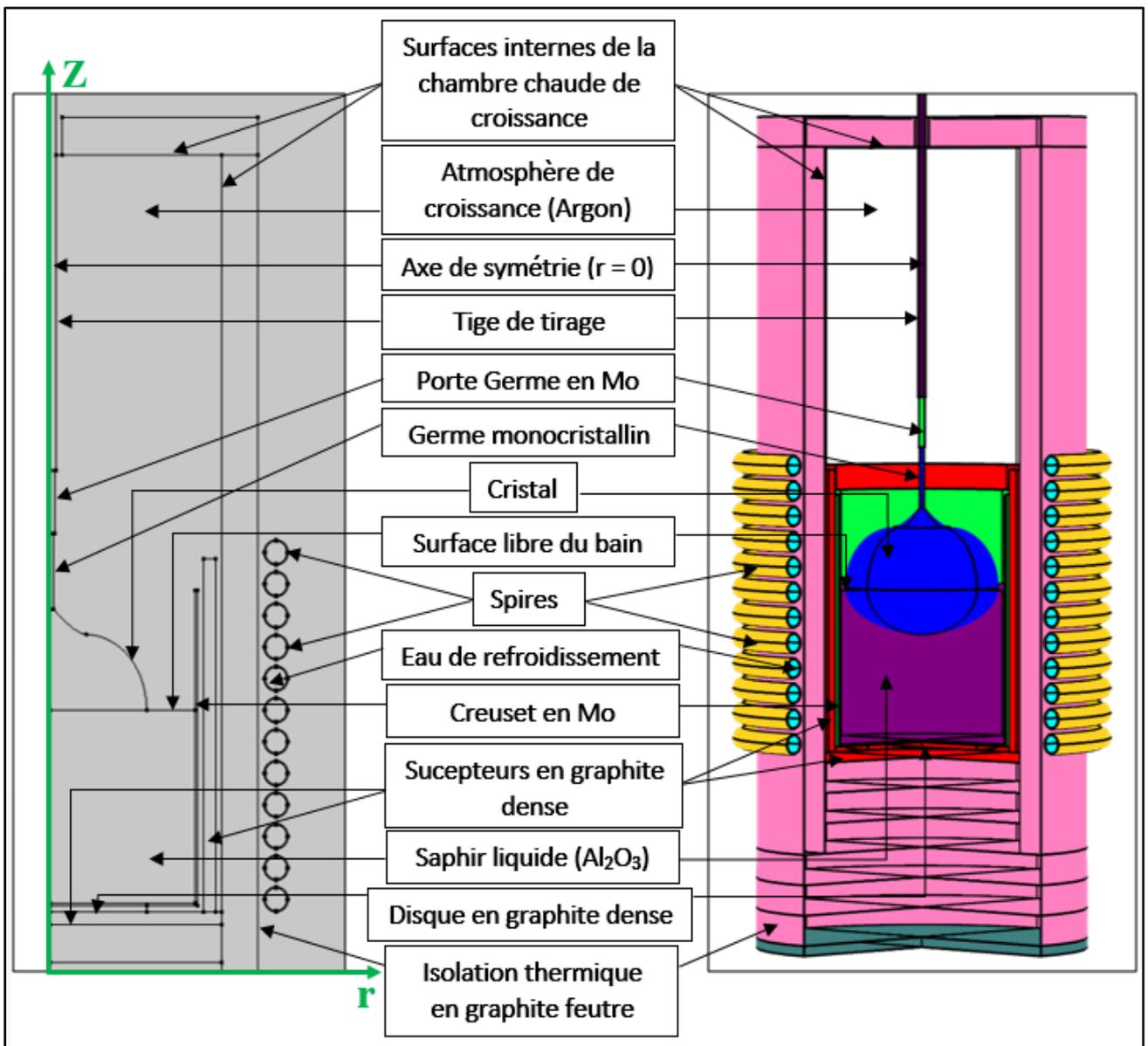


FIGURE 2.1 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance intermédiaire.

2.3 Hypothèses simplificatrices

Notre modèle repose sur les hypothèses suivantes :

(1) le système est axisymétrique bidimensionnel : La forme cylindrique de la géométrie de la croissance cristalline KY nous a permis de décrire l'approche 2D axisymétrique où nous considérons le domaine de calcul comme un plan vertical (transversal) qui coupe le cylindre longitudinalement (dans le sens de la hauteur) dans le but de donner le comportement de l'écoulement, du champ de température et prédire la forme de l'interface de solidification cristal-liquide ;

(2) le système est en régime quasi-stationnaire (étant donné que la vitesse de croissance du saphir pendant le processus KY est trop faible, l'hypothèse d'état quasi-stationnaire est utilisée dans toutes nos simulations) ;

(3) le régime d'écoulement dans le saphir liquide est laminaire sans considération de la dissipation visqueuse ou de la déformation de la surface libre; les dimensions du bain ne sont pas assez grand pour passer à la turbulence ;

(4) le saphir liquide est un fluide newtonien incompressible satisfaisant l'approximation de Boussinesq ;

(5) pour des raisons simplificatrices, nous n'avons pas pris en considération dans ce travail le mode de transfert de chaleur par convection dans l'atmosphère de croissance.

2.3.1 Chauffage inductif & description phénoménologique

Un four à induction est un four électrique fonctionnant grâce au phénomène de chauffage par induction. L'avantage de ce procédé est qu'il est propre, économe en énergie (moins de pertes de chaleur) et permet de mieux contrôler la fusion des métaux. Le chauffage par induction électromagnétique fait partie des techniques électrothermiques qui permettent de chauffer un matériau sans contact direct avec une source d'énergie électrique. Il se distingue cependant nettement des autres techniques (infrarouge et micro-ondes) par la nature des matériaux chauffés et par la bande de fréquence utilisée, c'est-à-dire par la profondeur de pénétration et par les densités de puissance de chauffage obtenues. En effet, de par son principe, il ne s'applique qu'aux matériaux conducteurs de l'électricité, c'est-à-dire aux matériaux de résistivité électrique comprise entre $10^{-8} \Omega.m$ (cuivre) et $10^{-1} \Omega.m$ (verres fondus). La bande de fréquence employée est comprise entre la fréquence industrielle de 50 Hz et quelques mégahertz, si bien que les profondeurs de pénétration s'étagent entre quelques micromètres et quelques centimètres.

Comme dans tout problème de chauffage, la puissance nécessaire au type de traitement thermique recherché est imposée par la masse à chauffer, la température à atteindre et le temps de chauffe. Ainsi, les questions à résoudre sont d'ordre électromagnétique pour optimiser le transfert de puissance entre la source et le matériau, puis d'ordre thermique pour connaître le champ de température et son évolution dans le temps.

Dans les fours dits inductifs, l'induction magnétique est une application directe de deux lois physiques, la loi de Lenz et l'effet Joule. La bobine d'induction parcourue d'un courant électrique, fourni généralement par un générateur statique, génère un champ magnétique variant à la même fréquence dans l'espace environnant (loi d'Ampère). Le champ magnétique variable produit à son tour un champ électrique lui aussi variable comme décrit par la loi de Faraday. Les éléments en graphite dense, placés à l'intérieur de l'inducteur, sont alors pénétrés par ce champ magnétique à une profondeur qui dépend de la fréquence et des propriétés magnétiques de ces pièces. Les parties des pièces traversées par ce champ sont alors le siège de courants électriques induits appelés «*Courants de Foucault*» comme illustré à la [Figure 2.2](#).

La direction et le sens de ces courants induits obéissent à la loi de Lenz qui dit que les courants induits s'opposent à la cause qui leur a donnée naissance (à savoir le courant parcourant l'inducteur). Ainsi, les courants induits ont la même direction que le courant de l'inducteur, mais de sens opposé. Ces courants dissipent de la chaleur par effet Joule dans le matériau où ils ont pris naissance (éléments chauffants en graphite), qui est ensuite transportée par conduction et rayonnement (surfactive) à l'intérieur du creuset et fait fondre la matière première

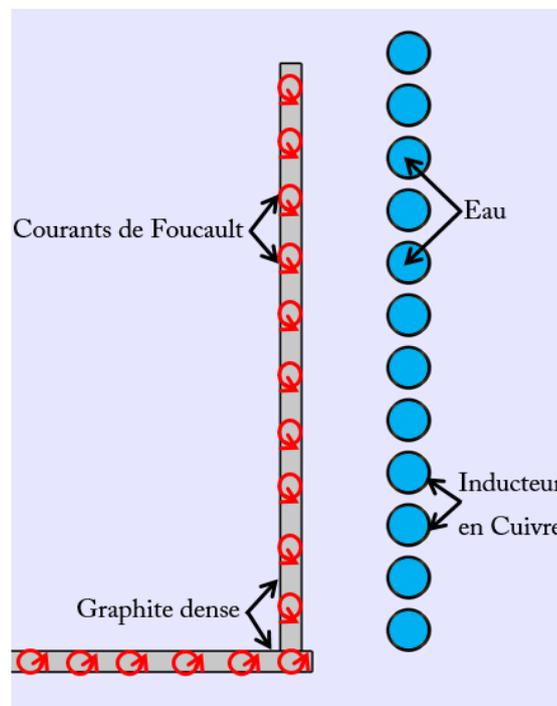


FIGURE 2.2 – Phénoménologie du chauffage inductif.

Le chauffage inductif est décrit par les équations de Maxwell ci-dessous qui permettent d'obtenir la distribution du champ magnétique autour des spires, ceci permet ensuite de calculer un terme source de chaleur qui sera introduit dans l'équation de la chaleur.

Les équations de Maxwell qui gouvernent l'ensemble des phénomènes électromagnétiques, peuvent s'écrire sous la forme différentielle suivante [86] :

Équation de Maxwell-Faraday

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.1)$$

Équation de Maxwell-Ampère

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (2.2)$$

Équation de Gauss

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_e \quad (2.3)$$

Équation de conservation du flux d'induction magnétique

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.4)$$

Équation de continuité de la charge électrique

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (2.5)$$

Avec, les vecteurs \mathbf{E} , \mathbf{H} , \mathbf{B} , \mathbf{D} , \mathbf{J} et ρ_e sont les champs d'intensité électrique, d'intensité magnétique, de densité de flux magnétique, de densité de flux électrique, de densité de courant électrique, de densité de charge électrique respectivement. Ces champs dépendent des coordonnées x , y , z relativement à un repère fixe, et du temps t .

Dans ce système d'équations aux dérivées partielles, seules trois équations (Éq 2.1, 2.2, 2.5) sont indépendantes [87], nous avons utilisé le système suivant :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (2.5)$$

Dans ce système, le nombre d'inconnues est supérieur au nombre d'équations et c'est pourquoi des équations dites constitutives s'ajoutent pour fermer le problème. Ces équations décrivent le comportement des matériaux lorsqu'ils sont soumis aux champs magnétique et/ou électrique liant \mathbf{B} à \mathbf{H} , \mathbf{D} à \mathbf{E} et \mathbf{J} à \mathbf{E} :

$$\mathbf{B} = \mu \mathbf{H} \quad (2.6)$$

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} \quad (2.7)$$

La loi d'ohm

$$\mathbf{J} = \sigma_e \mathbf{E} \quad (2.8)$$

Où

$$\varepsilon_e = \varepsilon_0 \varepsilon_r \quad (2.9)$$

$$\mu = \mu_0 \mu_r \quad (2.10)$$

ε_e : Permittivité électrique absolue

μ : Perméabilité magnétique absolue

σ_e : Conductibilité électrique

ε_0 : Permittivité électrique du vide

ε_r : Permittivité relative du vide

μ_r : Perméabilité magnétique relative

μ_0 : Perméabilité magnétique du vide

Dans ces équations ε_0 , μ et σ_e sont dans le cas général des tenseurs mais dans notre cas nous les considérons pour chaque matériau comme étant constants, ce qui correspond à des matériaux linéaires et isotropes.

L'inducteur qui sert de source d'énergie pour tout le four est alimenté en fait par un courant sinusoïdal d'une certaine fréquence (un courant azimutal variable dans le temps) générant ainsi un champ magnétique oscillant, qui à son tour produit un champ électrique dépendant du temps. Donc, il est commode d'écrire les équations de Maxwell sous la forme dite harmonique. Les grandeurs s'écrivent alors en représentation complexe comme suit :

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left[\exp(i\omega t) \mathcal{J}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.11)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left[\exp(i\omega t) \mathcal{E}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.12)$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left[\exp(i\omega t) \mathcal{D}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.13)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left[\exp(i\omega t) \mathcal{H}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.14)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \text{Re} \left[\exp(i\omega t) \mathcal{B}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.15)$$

Les caractères calligraphiques représentent des grandeurs complexes qui ne dépendent que des variables d'espace.

En remplaçant ces grandeurs en représentation complexe dans les équations (Éq 2.1, 2.2, 2.5, 2.6, 2.7, 2.8) nous obtenons le système suivant :

$$\nabla \times \mathcal{E} = -i\omega \mathcal{B} \quad (2.16)$$

$$\nabla \times \mathcal{H} = -i\omega \mathcal{D} + \mathcal{J} \quad (2.17)$$

$$\nabla \cdot \mathcal{J} = 0 \quad (2.18)$$

$$\mathcal{D} = \varepsilon_e \mathcal{E} \quad (2.19)$$

$$\mathcal{B} = \mu \mathcal{H} \quad (2.20)$$

$$\mathcal{J} = \sigma_e \mathcal{E} \quad (2.21)$$

Pour un meilleur traitement numérique du problème et pour faire intervenir des grandeurs mesurables [87] la formulation dite A-V (potentiel vecteur-potential scalaire) est souvent utilisée, en remarquant que \mathbf{B} est à divergence nulle et qu'il peut donc s'écrire comme suit :

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2.22)$$

Cette équation n'est pas suffisante pour déterminer \mathbf{A} de façon univoque, c'est pourquoi il est nécessaire d'imposer une condition de Gauge :

$$\nabla \cdot \mathbf{A} = 0 \quad (2.23)$$

Donc, il est plus pratique de définir un potentiel vecteur \mathbf{A} car il facilite le traitement mathématique des équations de chauffage inductif [88].

En remplaçant dans l'équation (Éq 2.1) et après écriture de celle-ci en forme harmonique, nous obtenons :

$$\mathcal{E} = -i\omega \mathcal{A} - \nabla \mathcal{V} \quad (2.24)$$

Où \mathcal{V} est le potentiel électrique.

En tenant compte des équations constitutives (Éq 2.19-2.21) et en introduisant le potentiel vecteur, écrit en coordonnées cylindriques, $\mathcal{A} = \mathcal{A}_\theta \mathbf{e}_\theta + \mathcal{A}_r \mathbf{e}_r + \mathcal{A}_z \mathbf{e}_z$, l'équation de Maxwell-Ampère (Éq 2.17) devient :

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathcal{A} \right) = -i\omega \varepsilon \mathcal{E} + \sigma_e \mathcal{E} \quad (2.25)$$

Partant de l'équation (Éq 2.24), nous pouvons décomposer le champ électrique en un champ électrique induit $\mathcal{E}_i = -i\omega \mathcal{A}$ auquel nous ajoutons un champ électrique externe issu de la différence de potentiel (ddp) que nous imposons aux bobines $\mathcal{E}_{ext} = -\nabla \mathcal{V}$. En imposant une ddp que nous noterons V_{coil} à une spire de périmètre $2\pi r$, l'équation (Éq 2.25) s'écrit :

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathcal{A} \right) = (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A} + (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_\theta \quad (2.26)$$

2.3.1.1 Source de chaleur

Les courants de Foucault générés dans l'élément chauffant (graphite dense) produisent de la chaleur par effet Joule. La résolution de l'équation (Éq 2.26) permet d'obtenir le potentiel vecteur et ainsi de calculer le terme source de chaleur électromagnétique Q_{em} générée comme suit :

$$Q_{em} = \frac{1}{2} \sigma_e \mathcal{E} \mathcal{E}^* \quad (2.27)$$

où

$$Q_{em} = \frac{1}{2} \sigma_e \left(-i\omega \mathcal{A}_\theta + \frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \left(-i\omega \mathcal{A}_\theta + \frac{V_{coil}}{2\pi r} \right)^* \quad (2.28)$$

\mathcal{E}^* : désigne le conjugué de \mathcal{E}

2.3.1.2 Conditions aux limites

Au niveau de la frontière du domaine d'étude que nous assimilons aux parois externes du four, nous considérons que la densité de flux magnétique est nulle :

$$\mathcal{B} = \nabla \times \mathcal{A} = 0 \quad (2.29)$$

La chaleur ainsi générée par induction magnétique dans les matériaux conducteurs (graphite dense) se propage à travers les autres composants du four soit par Conduction, Convection et/ou Rayonnement (surface to surface ou rayonnement interne). Dans toutes les parties solides du domaine de calcul, la température est régie par l'équation de la conduction thermique, avec un terme source pour les conducteurs en graphite dense (par effet Joule) et sans terme source dans les autres domaines solides (isolants).

2.3.2 Chauffage résistif

L'effet Joule est la manifestation thermique de la résistance électrique qui se produit lors du passage d'un courant électrique dans tout matériau conducteur. Par conséquent, le chauffage par effet joule (également appelé chauffage ohmique ou résistif) décrit le processus dans lequel l'énergie d'un courant électrique est convertie en chaleur lorsqu'elle traverse une résistance et est régie par les équations suivantes (Éq 2.30-2.33) :

$$P = R.I^2 \quad (2.30)$$

Avec :

Loi d'Ohm
$$R = \frac{U}{I} \quad (2.31)$$

P : La puissance dissipée par effet Joule ;

R : La résistance électrique du conducteur ;

I : L'intensité du courant électrique ;

U : La tension électrique.

Pour modéliser le chauffage résistif et le chauffage dû aux pertes diélectriques, le chauffage par effet Joule combine les courants électriques au transfert de chaleur. Les couplages ajoutent la dissipation de puissance électromagnétique en tant que source de chaleur (Q_j). Elle est donnée par l'équation (Éq 2.32) où \mathbf{J} représente la densité de courant électrique obtenue après la résolution de l'équation de continuité électrique (Éq 2.33) et σ_e représente la conductivité électrique du conducteur :

$$Q_j = \frac{\mathbf{J}^2}{\sigma_e} \quad (2.32)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (2.33)$$

2.3.3 Écoulement de fluide

2.3.3.1 Conservation de la masse (Équation de continuité)

En dynamique des fluides, une équation de continuité est une équation de conservation de la masse. Sa forme différentielle est donnée par

$$\frac{\partial \rho_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l \mathbf{V}) = 0 \quad (2.34)$$

Ou encore

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} + \rho_1 \nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (2.35)$$

ce qui donne en utilisant l'hypothèse d'incompressibilité ($\rho_1 = \text{const}$) :

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (2.36)$$

Où ρ_1 est la densité du saphir liquide, $\mathbf{V} = (V_r, V_\phi, V_z)$ est le vecteur vitesse du fluide et $(\nabla \cdot)$ est l'opérateur divergence.

2.3.3.2 Mouvement du fluide (Équation de Navier Stokes)

Les équations de mouvement d'un fluide sont données par les équations de Navier-Stokes [89,90]

$$\rho_1 \left(\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{V} \right) = \nabla (\mu \nabla \mathbf{V}) - \nabla p + \mathbf{F} \quad (2.37)$$

Ici, le côté gauche comprend le produit de la masse de l'unité et de son accélération, tandis que le côté droit représente la somme des forces externes agissant sur l'unité. Le terme $\nabla (\mu \nabla \mathbf{V})$, où μ est la viscosité dynamique du fluide, exprime l'effet des forces visqueuses. Le frottement interne dû à la nature visqueuse du fluide ne se manifeste que lorsqu'une région de fluide se déplace par rapport à une autre. Des couches en mouvement plus rapides entraînent des couches en mouvement plus lentes, de sorte que la vitesse soit transférée des couches les plus rapides aux couches les plus lentes.

Le gradient de la pression est la force qui agit sur l'élément de fluide lorsque la pression varie d'un point à un autre. Ce n'est pas la pression elle-même mais seulement son gradient qui est requis dans l'équation du mouvement. Le terme \mathbf{F} représente la force de volume exercée sur l'élément de fluide. La gravité est un exemple d'une force de volume. L'effet de la gravité est d'une grande importance dans la convection naturelle qui est entraînée par la différence de densité et empêchée par la viscosité du fluide. La viscosité dissipe l'énergie cinétique tandis que la force de flottabilité libère de l'énergie interne.

Dans notre cas la force de volume est donnée par :

$$\mathbf{F} = -\rho_1 \mathbf{g} \quad (2.38)$$

Dans le bain de saphir fondu, la chaleur est transférée par conduction ainsi que par convection. Dans ce cas-là, l'équation de la chaleur est couplée aux équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement (Navier-Stokes) où la convection est prise en compte par l'approximation de Boussinesq.

L'approximation de Boussinesq suppose que la densité du fluide est constante dans tous les termes à l'exception du terme de flottabilité (forces volumiques) dû à la gravité, c'est-à-

dire le terme multiplié dans l'équation de Navier-Stokes par l'accélération de la pesanteur g , dans lequel ρ est fonction de la température.

Cette hypothèse consiste donc à simplifier l'équation du mouvement en linéarisant l'expression de la densité du fluide en fonction des variations de sa température T et s'écrit sous la forme $\rho \approx \rho_0(1 - \beta_T(T - T_f))$

Où β_T est le coefficient de dilatation thermique du liquide à pression constante et T_f est la température de fusion du saphir (2323 K).

$$\beta_T = -\frac{1}{\rho_l} \left(\frac{\partial \rho_l}{\partial T} \right)_p \quad (2.39)$$

Pour les liquides, β_T est généralement de l'ordre de 10^{-4} , ce qui justifie l'hypothèse de Boussinesq.

L'équation de Navier-Stokes avec l'approximation de Boussinesq s'écrit donc comme suit :

$$\rho_l \left(\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{V} \right) = \mu \nabla^2 \mathbf{V} - \nabla p + \rho_l \mathbf{g} (1 - \beta_T (T - T_f)) \mathbf{e}_z \quad (2.40)$$

2.3.4 Transfert de chaleur

Dans le procédé de croissance cristalline par la méthode Kyropoulos, les trois modes de transfert de chaleur, à savoir la conduction, la convection et le rayonnement (entre surfaces et/ou interne pour les oxydes tels que le saphir) sont présents [89-91].

La conduction fait référence au transfert de chaleur qui se produit sur un solide fixe ou fluide dans lequel existe un gradient de température. En revanche, la convection fait référence au transfert de chaleur qui se produit à travers un fluide en mouvement dans lequel existe également un gradient de température. Le rayonnement désigne le transfert de chaleur entre deux surfaces à des températures différentes, séparées par un milieu transparent aux ondes électromagnétiques émises par les surfaces.

En effet, la chaleur générée par chauffage inductif va servir de terme source dans l'équation de la chaleur. Le champ de température dans le four est couplé à plusieurs autres phénomènes tels que l'écoulement dans le liquide, l'effet Marangoni au niveau de la surface libre du bain, forme de l'interface de solidification et au rayonnement. La forme générale de l'équation de la chaleur est donnée par (Éq 2.41)

$$\rho_l C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) T \right) + \nabla \cdot (-k \nabla T) = Q_r + Q_{em} + Q_c + Q_j \quad (2.41)$$

Avec :

C_p : Chaleur spécifique du fluide à pression constante

k : Conductivité thermique

Q_r : Source de chaleur par rayonnement interne

Q_{em} : Source de chaleur électromagnétique

Q_c : Source de chaleur pour le refroidissement des bobines

Q_j : Source de chaleur par chauffage résistif (effet Joule/ohmique)

2.3.4.1 Transfert de chaleur par Conduction

Dans l'équation (Éq 2.41), le terme $(\nabla \cdot (-k\nabla T))$ correspond au transfert de chaleur par conduction. Lorsqu'il existe un gradient de température dans un corps, de l'énergie calorifique est transférée de la région de haute température vers la région de basse température. Ce phénomène, appelé transfert de chaleur par conduction, est décrit par la loi de Fourier (du nom du physicien français Joseph Fourier).

$$\mathbf{q}_c = -k\nabla T \quad (2.42)$$

Cette équation détermine le vecteur flux de chaleur \mathbf{q}_c transmis par conduction pour un profil de température T et une conductivité thermique k . Un flux de chaleur est défini comme la quantité de chaleur transférée par unité de surface et par unité de temps. La diffusivité thermique α est liée à la conductivité thermique, à la chaleur spécifique C_p et à la densité ρ par la relation :

$$\alpha = \frac{k}{\rho C_p} \quad (2.43)$$

2.3.4.2 Transfert de chaleur par Convection

Dans l'équation (Éq 2.41), le terme $(\rho_1 C_p \mathbf{V} \cdot \nabla T)$ correspond au transfert de chaleur par convection. La convection est généralement la principale forme de transfert de chaleur dans les liquides et les gaz.

Le terme ci-après est utilisé pour caractériser les effets combinés de la conduction et la convection pour un fluide en régime permanent à pression constante ou pour des fluides de densité indépendante de la température. En convection, le transfert de chaleur se produit par le mouvement de parties chaudes ou froides du fluide ainsi que par transfert de chaleur par conduction. En tenant compte de l'équation (Éq 2.43), l'équation de transfert de chaleur dans le bain du saphir fondu, en régime permanent, est donnée comme suit :

$$\alpha \nabla^2 T - \mathbf{V} \cdot \nabla T = 0 \quad (2.44)$$

De même, les particules les plus froides d'un liquide ou d'un gaz remplacent celles des zones les plus chaudes qui remontent vers le haut sous l'effet de la gravité (diminution de leur densité). Ce cycle entraîne une circulation continue et la chaleur est transférée vers des zones les plus froides. Nous distinguons généralement deux types de convection, la convection libre, dans laquelle les forces de gravité et de flottabilité entraînent le mouvement du fluide, et la convection forcée, dans laquelle la rotation du cristal et/ou du creuset est utilisé pour déplacer le fluide.

2.3.4.3 Transfert de chaleur par Rayonnement

Le transfert de chaleur par rayonnement est introduit comme un phénomène de propagation de l'énergie électromagnétique causée par la différence de température. Ce phénomène est décrit par la *loi de Stefan-Boltzmann* de la radiation thermique qui stipule que les pertes par rayonnement sont contrôlées par la différence des températures (à la puissance 4) ainsi que l'émissivité du corps :

$$\mathbf{q}_r = \sigma \varepsilon (T^4 - T_{amb}^4) \quad (2.45)$$

Où \mathbf{q}_r est le flux de chaleur transmis par rayonnement, $\sigma = 5.6703 \times 10^{-8} \text{ W/m}^2 \text{ K}^4$ est la constante de Stefan-Boltzmann, ε est l'émissivité du matériau et T_{amb} est la température ambiante.

Le rayonnement est la seule forme de transfert de chaleur pouvant se produire en l'absence de toute forme de milieu et, par conséquent, il est le seul type de transfert de chaleur se transférant à travers le vide.

2.3.4.4 Rayonnement entre surfaces

Les surfaces internes et/ou externes du four séparées par un milieu complètement transparent (atmosphère de croissance) échangent de la chaleur par rayonnement surface to surface. C'est physiquement raisonnable et permet de séparer les parties convective et radiative du transfert de chaleur sur les surfaces libres du four de croissance, ce qui est important pour la procédure de calcul. Pour en prendre en compte, une méthode basée sur la radiosité notée \mathbb{R} (flux total quittant une surface) est utilisée. Une source de chaleur est introduite au niveau des parois et un bilan d'énergie permet d'écrire :

$$\mathbb{R} = \zeta \mathbf{H}_m (J) + \varepsilon \sigma n^2 T^4 \quad (2.46)$$

Où ζ est la réflectivité de surface qui est égale à $1 - \varepsilon$ pour les surfaces grises diffuses, \mathbf{H}_m est le flux de chaleur reçu par rayonnement de la part des autres surfaces. Ce terme fait intervenir un calcul des facteurs de forme qui se fait grâce à un algorithme appelé Hemicube qui tient compte des effets d'ombre entre les différentes surfaces et n est l'indice de réfraction du milieu transparent (gaz d'argon) qui est égale à 1. L'équation (Éq 2.46) devient alors :

$$\mathbb{R} = (1 - \varepsilon) \mathbf{H}_m(\mathbf{J}) + \varepsilon \sigma T^4 \quad (2.47)$$

Nous notons ici que pour un bon fonctionnement du modèle rayonnement surface to surface utilisé dans notre modèle, les surfaces rayonnantes à l'intérieur de la chambre chaude doivent être assimilées à une boîte noire autrement dit, la chambre chaude doit être refermée. C'est pourquoi dans notre modèle, la frontière qui se trouve entre l'axe de symétrie et la base du couvercle en graphite felt est rajoutée comme illustré par la direction de rayonnement à la Figure 2.3.

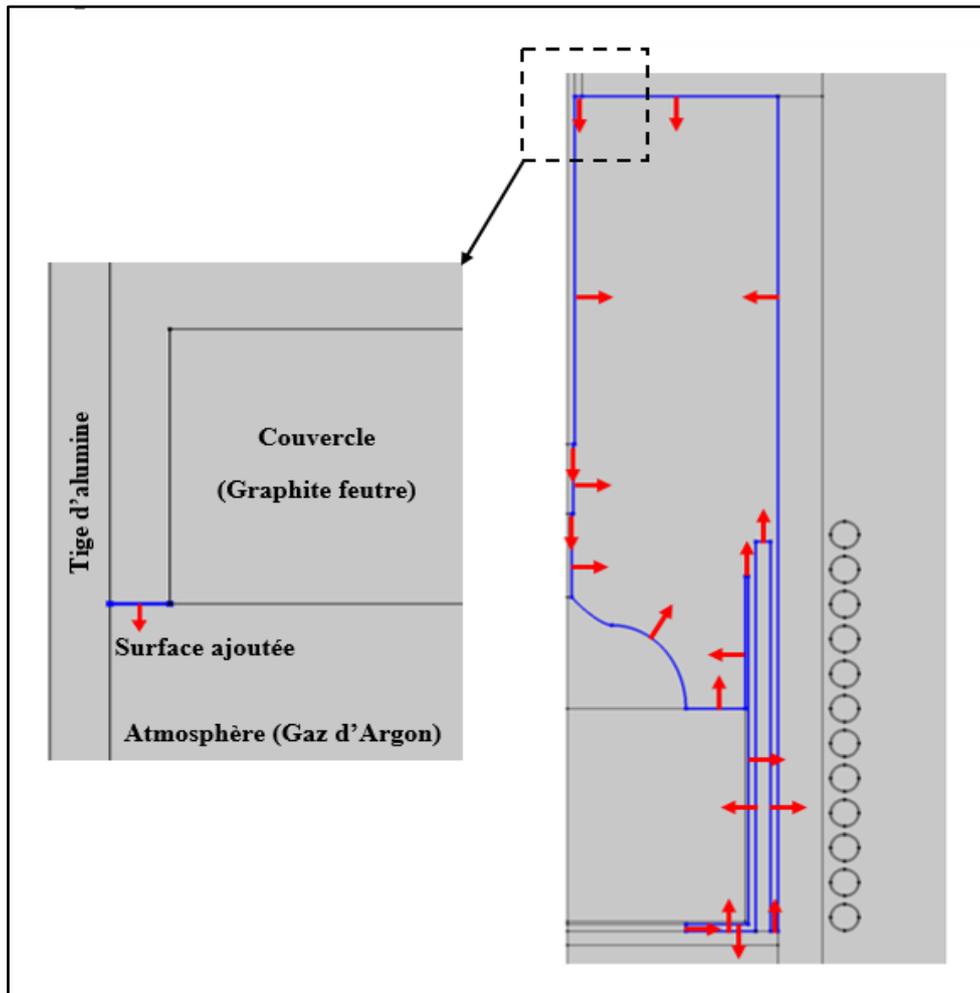


FIGURE 2.3 – Direction du rayonnement surface to surface des parois internes de la chambre chaude de croissance (flèches en rouge suivant la normale à chaque surface) et un zoom sur la surface ajoutée pour que la chambre soit refermée i.e., assimilée à une boîte noire.

2.3.5 Rayonnement interne

Les cristaux de saphir appartiennent aux familles des oxydes. Ils sont alors considérés comme des milieux semi-transparents c'est à dire qu'ils ne sont pas opaques au rayonnement. Ils absorbent une partie de celui-ci sans le diffuser, nous parlons alors de milieu participatif. Pour les matériaux opaques comme les cristaux de silicium par exemple,

les interactions rayonnement-matière, c'est-à-dire les processus de réflexion, d'absorption et d'émission sont considérés comme des phénomènes de surface ou d'interface.

Un milieu semi-transparent est susceptible, non seulement de réfléchir à sa surface une fraction d'un rayonnement incident, mais aussi sur une distance appréciable, voire sur toute son épaisseur, d'absorber, de diffuser ou de transmettre l'autre fraction et simultanément d'émettre.

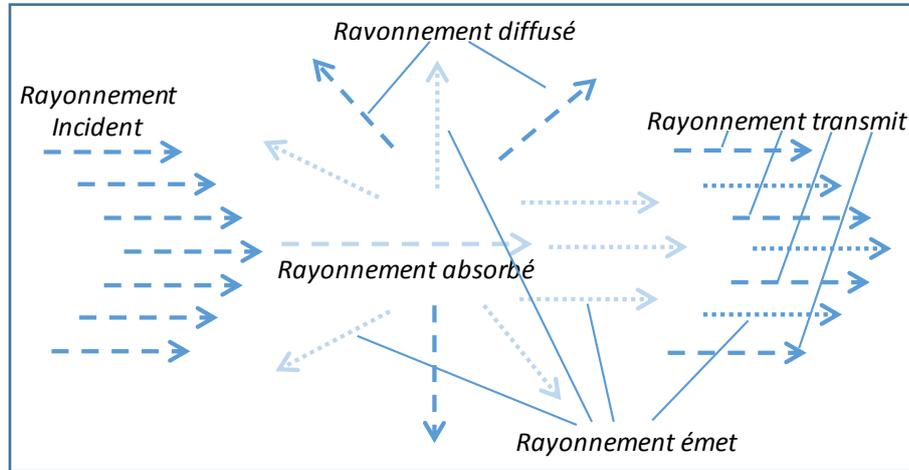


FIGURE 2.4 – Interactions entre le milieu participant et le rayonnement.

Supposons que $I(\Omega)$ désigne l'intensité radiative se déplaçant dans une direction donnée, Ω , l'équation de transfert radiatif (ETR) dans le milieu participatif est donnée comme suit:

$$\Omega \cdot \nabla I(\Omega) = \kappa I_b(T) - \beta_e I(\Omega) + \frac{\sigma_s}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\Omega') \varphi(\Omega', \Omega) d\Omega' \quad (2.48)$$

où

κ , $\beta_e = \kappa + \sigma_s$ et σ_s sont les coefficients d'absorption, d'extinction et de diffusion (dispersion), φ est la fonction de la phase de diffusion.

À travers cette équation, différents types d'interactions sont observés:

- Absorption: le milieu absorbe une fraction du rayonnement incident. La quantité de rayonnement absorbé est $\kappa I(\Omega)$,
- Emission: Le milieu émet un rayonnement dans toutes les directions. La quantité d'intensité radiative émise est égale à κI_b , où $I_b(T) = n^2 \sigma T^4 / \pi$ est l'intensité de rayonnement du corps noir et n est l'indice de réfraction du cristal.
- Diffusion: Une partie du rayonnement provenant d'une direction donnée est diffusée dans d'autres directions. Les propriétés de diffusion du milieu sont décrites par la fonction de phase de diffusion $\varphi(\Omega', \Omega)$, qui donne la probabilité qu'un rayon provenant d'une direction Ω soit diffusé dans la direction Ω' .

Dans le cadre de ce travail, le transport de chaleur par rayonnement à l'intérieur du cristal (le transport radiatif) est pris en compte et est modélisé par un modèle appelé P1. Il consiste à résoudre l'ETR pour un milieu absorbant non diffusant (Éq 2.49) [92], en développant l'intensité I en termes d'harmoniques sphériques tronqués et s'arrêter à l'ordre 1.

$$\frac{dI}{d\tau} + I = I_b(T) \quad (2.49)$$

Avec : $\tau = -\ln(I/I_0)$ est l'épaisseur optique. Elle mesure le degré de transparence du milieu. Cette épaisseur est donnée par la fraction du rayonnement électromagnétique diffusée ou absorbée par le milieu traversé. τ varie entre 0 et ∞ . Il est égal à l'infini pour des matériaux totalement opaques. Pour les milieux totalement transparents, il n'y a presque pas de perte d'énergie du rayonnement et τ tend vers 0.

L'approximation P1 est l'approximation la plus simple fournie par la méthode des harmoniques sphériques (méthode PN). La méthode P1 repose sur l'hypothèse que

- le milieu est optiquement épais: $\tau \gg 1$, où l'épaisseur optique (τ), est définie par l'intégrale du coefficient d'absorption, (κ), le long d'un chemin optique typique:

$$\tau = \int_0^s \kappa ds \quad (2.50)$$

- la diffusion est linéaire isotrope ($\varphi(\Omega', \Omega) = 1$).

Le modèle P1 permet de déterminer la distribution de l'intensité du rayonnement au niveau du cristal et plus exactement une grandeur scalaire appelée le rayonnement incident qui s'écrit de la manière suivante [92]:

$$G = \int_0^{4\pi} I(\Omega) d\Omega \quad (2.51)$$

Cette grandeur est l'intégrale de l'intensité sur l'angle solide $d\Omega$. Dans cette approximation, le rayonnement incident G est obtenu en résolvant l'équation du modèle P1 suivante :

$$-\nabla \cdot \left(\frac{1}{3\kappa} \nabla G \right) = \kappa (G - 4\pi I_b(T)) \quad (2.52)$$

L'obtention de G permet ainsi de calculer le terme source $Q_r = \kappa (G - 4\pi I_b(T))$ qui va être remplacé dans l'équation de la chaleur (Éq 2.39) pour tenir compte de la contribution de l'absorption de ce rayonnement interne dans le cristal de saphir.

2.3.6 Effet Marangoni

Comme il a déjà été mentionné, la convection dans le bain peut être entraînée par la gravité (convection naturelle), les mouvements de rotation (convection forcée) et également par un effet de Marangoni. La convection de Marangoni se produit lorsque la tension superficielle d'une interface (généralement liquide-air) dépend de la concentration d'une espèce ou de la distribution de la température. Dans le cas de la dépendance à la température, l'effet Marangoni est également appelé convection thermocapillaire.

Dans notre cas, l'écoulement de Marangoni se produit donc à la surface libre du bain de saphir liquide, en raison de la différence de température qui génère à son tour une différence de tension superficielle au niveau de celle-ci. L'effet Marangoni induit thermiquement, relie la composante normale de la contrainte de cisaillement à la dérivée tangentielle de la température. Pour un fluide incompressible sans contribution de pression dans un écoulement laminaire tel que le saphir liquide. Cet effet a été modélisé en introduisant la condition limite suivante à la surface libre du bain (Éq 2.53) :

$$\text{La condition de Marangoni : } \left[\mu \left(\nabla V_r + (\nabla V_r)^T \right) \right] \cdot \mathbf{n} = \gamma \nabla_t T \quad (2.53)$$

Avec V_r est la vitesse radiale de fluide, γ est la dérivée de la tension superficielle en fonction de la température et (∇_t) est la dérivée tangentielle.

D'où, le nombre de Marangoni est le nombre adimensionnel qui donne le rapport entre l'effet thermocapillaire et les forces visqueuses.

$$Ma = |\gamma| L \Delta T / (\mu / \alpha) \quad (2.54)$$

L est la longueur de la surface libre, ΔT est la différence de température maximale à travers cette surface.

2.3.7 Équations gouvernantes

Les équations de conservation de la masse et de quantité de mouvement gouvernant l'écoulement dans le saphir liquide sont décrites respectivement aux équations (Éq 2.36) et (Éq 2.40) alors que, les équations fondamentales qui régissent le transport de chaleur (équations d'énergie) permettant ainsi l'obtention du champ thermique dans l'ensemble du four sont les suivantes :

$$\alpha_l \nabla^2 T_l - \mathbf{V}_l \cdot \nabla T_l = 0 \quad \text{Convection et conduction dans le saphir liquide} \quad (2.55)$$

$$\alpha_g \nabla^2 T_g - \mathbf{V}_g \cdot \nabla T_g = 0 \quad \text{Convection et conduction dans le gaz d'Argon} \quad (2.56)$$

$$\nabla^2 T_{su} + \frac{Q_{em}}{k_{su}} = 0 \quad \text{Conduction dans les sucepteurs (graphite dense)} \quad (2.57)$$

$$\nabla^2 T_{rh} + \frac{Q_j}{k_{rh}} = 0 \quad \text{Conduction dans le graphite dense (chauffage résistif)} \quad (2.58)$$

$$\nabla^2 T_c = \frac{Q_r}{k_c} \quad \text{Conduction et rayonnement interne dans le cristal} \quad (2.59)$$

$$\nabla^2 T_{cr} = 0 \quad \text{Conduction dans le creuset} \quad (2.60)$$

$$\nabla^2 T_{gc} = 0 \quad \text{Conduction dans le germe, porte germe et la tige} \quad (2.61)$$

$$\nabla^2 T_i = 0 \quad \text{Conduction dans le reste des éléments du four} \quad (2.62)$$

Où les indices l, g, su, rh, c, cr, ge et i désignent le saphir liquide, le gaz d'argon, les éléments chauffants (sucepteurs), disque en graphite dense cristal, creuset, système tenant le germe et l'isolation thermique du four, respectivement.

2.3.7.1 Conditions aux limites

Comme le modèle utilisé est entièrement couplé, la continuité de la température est considérée entre les domaines adjacents à toutes les frontières à l'intérieur du four. Les conditions aux limites thermiques et dynamiques sont :

a) **Sur l'axe de symétrie :** Dans les calculs axisymétriques, l'axe de symétrie ($r = 0$) est considéré comme une frontière du domaine de calcul. Les conditions de symétrie sont alors imposées.

- champ magnétique :
$$\frac{\partial \mathcal{A}_\theta}{\partial r} = 0 \quad (2.63)$$

- Symétrie au niveau de l'axe
$$\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial p}{\partial r} = 0 \quad (2.64)$$

- champ thermique :
$$\nabla \mathbf{T} \cdot \mathbf{n} = 0 \quad (2.65)$$

b) **À la surface libre du bain fondu :** À la condition de Marangoni donnée à l'équation (Éq 2.53), une autre condition de non pénétration au niveau de la surface libre (Éq 2.66) s'ajoute (i.e. l'argon et le saphir liquide sont deux fluides immiscibles et donc la composante verticale de l'écoulement sur la surface libre est nulle) :

$$V_z = 0 \quad (2.66)$$

c) **Sur les frontières creuset-saphir liquide (c-s) :** Une condition d'adhérence est imposée sur toutes les frontières creuset-saphir liquide

$$\mathbf{V} = 0 \quad (2.67)$$

d) **À l'interface cristal-liquide (c-l) :** Lorsque le cristal en croissance est en rotation, la vitesse à l'interface cristal-liquide est donnée comme suit :

$$V_\varphi = r_c \omega_c \quad (2.68)$$

$$V_r = V_z = 0 \quad (2.69)$$

$$T_{c-l} = T_f = 2323 \text{ k} \quad (2.70)$$

Où ω_c est la vitesse angulaire de rotation du cristal (en tr/min), r_c est le rayon du cristal.

Afin de tenir compte de l'équilibre du flux de chaleur entre le saphir liquide et le cristal, la condition dite de Stefan doit être ajoutée. Dans notre travail, le changement de phase est traité à l'aide de la technique du maillage déformable. Au cours d'une telle transformation, la matière du saphir liquide est éliminée tandis que la même quantité du saphir cristal est ajoutée au domaine solide.

Nous avons imposé la condition de Stefan (Éq 2.71) ci-dessous à l'interface cristal-liquide :

$$k_c \left(\frac{\partial T_c}{\partial \mathbf{n}} \right)_c - k_l \left(\frac{\partial T_l}{\partial \mathbf{n}} \right)_l = \rho_c H_f \mathbf{V}_{\text{maillage}} \quad (2.71)$$

Où H_f est la chaleur latente de fusion, $\mathbf{V}_{\text{maillage}}$ est la vitesse normale du déplacement du maillage.

e) **À la surface extérieure du cristal :** Le traitement du rayonnement interne en utilisant le modèle P1 amène à considérer que la paroi extérieure du cristal est opaque, diffuse et que le rayonnement incident est réfléchi de manière isotrope. La condition à la surface extérieure du cristal est obtenue en intégrant l'intensité du rayonnement I sur toute la surface. Cette condition s'écrit comme suit :

$$Q_r = \mathbf{n} \cdot \left(\frac{\nabla G}{3\kappa} \right) = \frac{\varepsilon_c}{(2(2 - \varepsilon_c))} (4\pi I_b - G) \quad (2.72)$$

En effet, la rotation de l'interface c-l est animée en parallèle avec celle du cristal, du porte germe et de la tige reliée elle-même à un système (rotatif/tirage) extérieur se trouvant au-dessus du four. Cependant, le transfert de chaleur par convection dans l'atmosphère de

croissance n'a pas été pris en considération pour des raisons numériques. La surface extérieure du cristal exposé à cette atmosphère possède une vitesse de rotation nulle.

$$\mathbf{V}_c = 0 \quad (2.73)$$

f) Sur les autres surfaces des solides exposées à l'atmosphère de la chambre chaude de croissance :

$$\mathbf{V}_s = 0 \quad (2.74)$$

Où l'indice s désigne toutes les surfaces des éléments solides exposés à l'atmosphère de croissance à savoir : les éléments chauffants (sucepteurs), l'élément du chauffage résistif supplémentaire, creuset, système tenant le germe et l'isolation thermique du four.

g) Sur les surfaces internes des spires : Afin d'assurer le refroidissement des spires, nous considérons une condition de transfert de chaleur par convection forcée à l'intérieur des bobines. Un débit d'eau s'y écoule à une température $T = 300 \text{ K}$. Ainsi, un flux convectif qui dénote la dissipation thermique par convection de ces surfaces s'écrit comme suit :

$$Q_c = h(T_{\text{ext}} - T) \quad (2.75)$$

Où h est le coefficient du transfert de chaleur par convection forcée et qui dépend du diamètre du tube de la spire (D), la vitesse de l'eau (\mathbf{V}_{eau}) et la température externe de la spire (T_{ext}).

i) Au niveau des parois externes du four (parois de l'enceinte) : Sur la paroi extérieure de l'enceinte (en) du four, ainsi que sur le sommet de la tige en alumine, la température de l'eau de refroidissement est fixée à la température ambiante :

$$T = T_{\text{amb}} = 300 \text{ K} \quad (2.76)$$

2.4 Contraintes thermoélastiques: Approche tridimensionnelle (3D)

Dans les parties précédentes, nous avons formulé mathématiquement notre modèle en se basant sur les hypothèses de conditions axisymétriques à deux dimensions et à l'état stationnaire. Bien que les conditions axisymétriques représentant une grande partie du phénomène de croissance cristalline par la méthode Kyropoulos, une modélisation des contraintes thermoélastiques tridimensionnelles est essentielle et d'un grand intérêt vu l'anisotropie du cristal de saphir.

Les défauts qui sont produits dans les monocristaux de saphir au cours de son processus de croissance affectent considérablement les performances et le rendement des composants qui les contiennent par la suite. Ces défauts micro/macrosopique sont dus au mécanisme de

multiplication de dislocations qui est lui-même causé par la présence de contraintes thermoélastiques importantes à l'intérieur de la chambre chaude, engendrées à leur tour par de forts gradients de température apparaissant pendant la croissance. Par conséquent, notre approche comme première étape pour l'estimation de la densité de dislocations et de la fissuration d'un cristal consiste donc à calculer ces contraintes thermoélastiques dans le cristal afin d'avoir une estimation qualitative de ces dernières.

2.4.1 Pourquoi calculer les contraintes thermoélastiques ?

Comme la croissance cristalline à partir d'un bain fondu est réalisée dans des conditions thermiques sévères et complexes, des contraintes thermoélastiques importantes au cours du processus de croissance sont induites généralement dans le cristal. De telles contraintes pourraient provoquer la multiplication des dislocations qui affectent les performances des dispositifs électroniques/optiques. De ce fait, les études de la mécanique des solides et de la résistance des matériaux sur la croissance de monocristaux de grand diamètre sont importantes pour comprendre et résoudre les problèmes liés à la génération et à la multiplication des dislocations et au craquage de monocristaux (fissuration). Par conséquent, la première étape pour l'estimation de la densité de dislocations et de la fissuration d'un cristal consiste à calculer les contraintes thermoélastiques dans le cristal.

2.4.2 Matrice des constantes élastiques

Pour calculer les contraintes thermoélastiques dans le cristal, le champ thermique obtenu pour chaque itération est utilisé. Le tenseur des contraintes σ_{ij} obéit à l'équation d'équilibre de Cauchy (Éq 2.77) qui s'écrit comme suit lorsque nous négligeons l'effet de force de gravitation sur la déformation :

$$\nabla\sigma_{ij} = 0 \quad (2.77)$$

Une fois décomposée, cette équation donne trois équations pour les six composantes indépendantes du tenseur de contraintes. Des équations supplémentaires sont donc nécessaires pour résoudre le problème. Dans notre cas, nous considérons que le cristal a un comportement élastique linéaire décrit par la loi de Hooke liant le tenseur des contraintes élastiques σ_{ij} au tenseur de déformation élastique ε_{kl}^e donnée par l'équation suivante :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}\varepsilon_{kl}^e \quad (2.78)$$

Où σ_{ij} et ε_{kl}^e sont respectivement le tenseur de contrainte et le tenseur de déformation élastique, et C_{ijkl} désigne le tenseur des constantes élastiques (la matrice d'élasticité du matériau).

Selon Nye [93], les composantes vectorielles de la contrainte σ_i et de la déformation élastique ε_i sont liées à leurs composantes tensorielles correspondantes σ_{ij} et ε_{ij} comme suit :

$$\begin{bmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} \sigma_1 & \sigma_6 & \sigma_5 \\ \sigma_6 & \sigma_2 & \sigma_4 \\ \sigma_5 & \sigma_4 & \sigma_3 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{21} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{31} & \varepsilon_{32} & \varepsilon_{33} \end{bmatrix} \Rightarrow \begin{bmatrix} \varepsilon_1 & \varepsilon_6/2 & \varepsilon_5/2 \\ \varepsilon_6/2 & \varepsilon_2 & \varepsilon_4/2 \\ \varepsilon_5/2 & \varepsilon_4/2 & \varepsilon_3 \end{bmatrix} \quad (2.79)$$

Ensuite, la relation (Éq 2.80) contrainte – déformation est donnée par la notation matricielle comme suit :

$$\sigma_i = C_{ij} \varepsilon_j^e \quad (2.80)$$

Dans un premier temps et pour des raisons simplificatrices, nous supposons que le monocristal du saphir est isotrope, c'est-à-dire que ses propriétés élastiques sont indépendantes à la fois de la direction de la croissance et de la température. La matrice d'élasticité s'écrit alors en fonction du module de Young et du coefficient de Poisson comme suit :

$$[C_{ij}] = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \begin{pmatrix} 1-\nu & \nu & \nu & 0 \\ \nu & 1-\nu & \nu & 0 \\ \nu & \nu & 1-\nu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1-2\nu}{\nu} \end{pmatrix} \quad (2.84)$$

Où E est le module de Young, ν est le coefficient de Poisson. Les valeurs de E et ν sont prises de [39,46].

2.4.2.1 Aspect anisotrope du cristal

Les monocristaux sont de nature anisotrope : ils présentent des propriétés physiques et mécaniques qui dépendent de l'orientation cristallographique donnée. Les atomes devraient pouvoir glisser les uns sur les autres ou se déformer les uns par rapport aux autres plus facilement dans certaines directions que dans d'autres. En regardant les différents plans cristallographiques du saphir par exemple, nous avons vu dans le chapitre précédent que les dislocations [81] et la structure multi-cristalline [94] dans le saphir diffèrent d'un plan à un autre. La nature anisotrope vient du fait que la densité linéaire des atomes dans une direction cristallographique particulière donnée n'est pas toujours la même. L'espacement interatomique varie également avec la direction cristallographique donnée. Par conséquent, le potentiel périodique correspondant dans ces directions sera différent. Si nous mesurons les propriétés physiques telles que la conductivité électrique, le module d'élasticité, etc., le long de ces directions, nous trouvons des valeurs distinctes pour les différentes directions.

Les monocristaux de saphir (Al_2O_3), niobate de lithium (LN, LiNbO_3), tantalate de lithium (LT, LiTaO_3) et de langatate (LGT, $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$) avec un réseau trigonal de classe $3\bar{m}$ présentent une symétrie triple autour de l'axe c , comme le montre la Figure 2.5. Lorsqu'un système de coordonnées cartésien $X_1 X_2 X_3$ à droite est pris de telle sorte que les axes X_1 et X_3 coïncident avec les axes cristallographiques a et c respectivement, comme le montre la Figure 2.5, la matrice d'élasticité s'écrit comme suit en utilisant six constantes indépendantes [95] :

$$[C_{ij}] = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{14} & -C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{14} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & -C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & C_{66} \end{pmatrix}, \quad C_{66} = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12}) \quad (2.81)$$

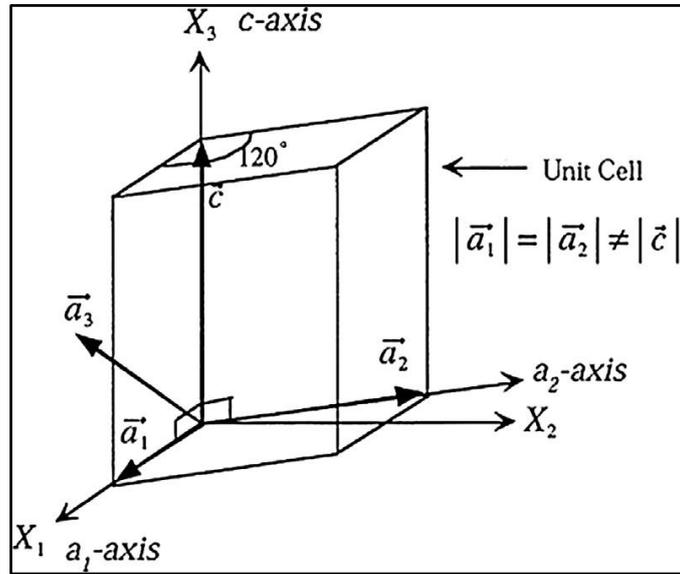


FIGURE 2.5 – Système de coordonnées pour un cristal trigonal [95].

2.4.3 Vecteur de déformation thermique

La déformation totale ε_{ij}^t est décomposée en deux termes : déformation élastique (ε_{ij}^e) et déformation induite par la thermique (ε_{ij}^{th}) :

$$\varepsilon_{ij}^t = \varepsilon_{ij}^e + \varepsilon_{ij}^{th} \quad (2.82)$$

Le tenseur de déformation thermique ε_{ij}^{th} est donné comme suit :

$$\varepsilon_{ij}^{th} = \int \alpha_{ij} dT \quad (2.83)$$

Où α_{ij} est le tenseur du coefficient de dilatation thermique.

Étant donné que le saphir est un matériau anisotrope et qu'il est de classe trigonal 3m, l'analyse des contraintes thermiques doit prendre en compte également l'anisotropie du cristal dans le tenseur de dilatation thermique α_{ij} . La structure de la matrice de dilatation thermique α_{ij} pour un cristal trigonal développé le long de l'axe c est la suivante [95] :

$$\alpha_i = \begin{pmatrix} \alpha_1 & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_2 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_3 \end{pmatrix} \quad (2.84)$$

Pour un monocristal trigonal tel que le saphir, l'équation (Éq 2.83) dans le système $X1$ $X2$ $X3$ illustré à la Figure 2.5 peut être écrite avec deux coefficients de dilatation thermique indépendants α_1 et α_3 [93] :

$$\alpha_2 = \alpha_1 \quad (2.85)$$

$$\begin{Bmatrix} \varepsilon_1^{th} \\ \varepsilon_2^{th} \\ \varepsilon_3^{th} \\ \varepsilon_4^{th} \\ \varepsilon_5^{th} \\ \varepsilon_6^{th} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \int \alpha_{11} dT \\ \int \alpha_{22} dT \\ \int \alpha_{33} dT \\ \int \alpha_{23} dT \\ \int \alpha_{31} dT \\ \int \alpha_{12} dT \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \int \alpha_1 dT \\ \int \alpha_1 dT \\ \int \alpha_3 dT \\ \int 0 dT \\ \int 0 dT \\ \int 0 dT \end{Bmatrix} \quad (2.86)$$

Où ε_i^{th} et α_i sont les composantes du vecteur de déformation thermique et celles du vecteur de coefficient de dilatation thermique, respectivement.

Ainsi, le tenseur de contrainte s'écrit finalement:

$$\sigma_i = C_{ij} (\varepsilon_{ij}^t - \varepsilon_{ij}^{th}) \quad (2.87)$$

Après l'interpolation des données fournies par [96-99], elles ont été utilisées pour obtenir les coefficients élastiques et les coefficients de dilatation thermique en fonction de la température pour prendre en compte l'effet de l'anisotropie du saphir.

2.4.4 Construction du modèle 3D

Pour prendre en compte à la fois l'anisotropie du cristal et la dépendance en température des tenseurs élastiques et celle de la dilatation thermique lors du calcul des contraintes dans le lingot, nous serons dans l'obligation de passer de l'approche précédente (2D

axisymétrique), qui ne peut pas être suffisante que pour donner une estimation du comportement isotrope du cristal, vers l'approche 3D.

Cette nouvelle approche repose en effet, sur l'exportation des flux thermiques obtenus à partir d'un calcul global de transfert de chaleur dans l'approche 2D axisymétrique des domaines cristal et germe et les utiliser par la suite comme conditions initiales pour l'étude 3D. Une fois la géométrie est exportée avec les données thermiques trouvées précédemment dans l'étude 2D axisymétrique, une révolution de 360° autour du l'axe de croissance Z est nécessaire pour avoir la forme 3D du four KY comme le montre la [Figure 2.6](#).

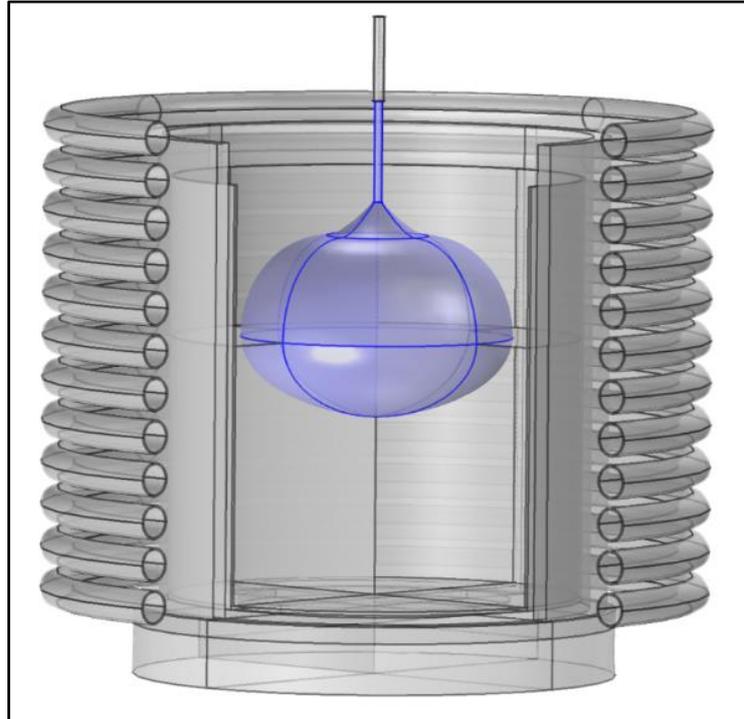


FIGURE 2.6 – Géométrie 3D du four KY après révolution utilisée pour calculer les contraintes thermoélastiques anisotropes en 3D.

Nous procédons ensuite à la l'élimination de tous les domaines à l'exception du cristal et du germe.

2.4.5 Conditions aux limites pour le calcul des contraintes thermoélastiques

a) **Sur l'interface germe-porte germe (g-p) :** Au niveau de la paroi supérieure germe-porte germe, une condition de déplacement nul dans la direction r et z est imposée, signifiant ainsi que le germe est encastré (condition au limite de type Dirichlet) :

$$V_{0r} = V_{0z} = 0 \quad (2.98)$$

D'où, une condition de déformation nulle est imposée automatiquement au niveau de cette paroi :

$$\varepsilon = 0 \tag{2.89}$$

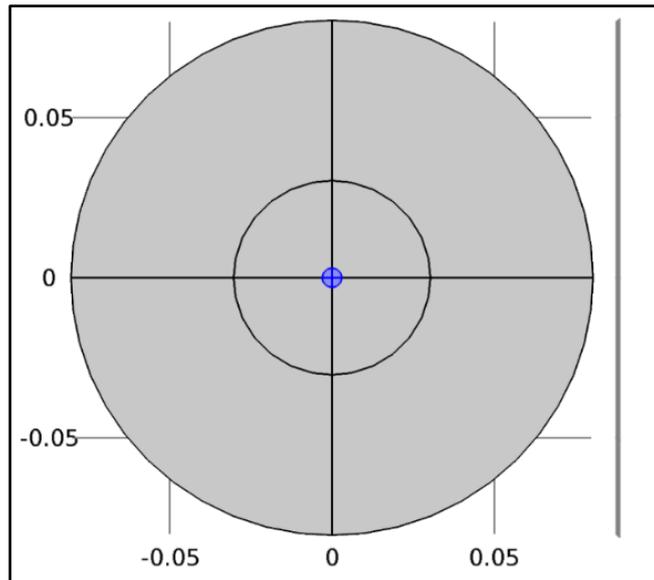


FIGURE 2.7 – Vue du haut de la géométrie Cristal-Germe (l’interface Germe-Porte germe est en couleur bleu).

Les autres surfaces du cristal (y compris l’interface de croissance) sont gardées non encastées c’est-à-dire libres. Par conséquent, une condition de contrainte nulle (Neumann) est imposée au niveau de ces surfaces:

$$\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = 0 \tag{2.90}$$

Où \mathbf{n} est le vecteur normal aux surfaces du cristal.

2.5 Résolution numérique du problème

Les procédés de croissance cristalline dans un four se font à des températures très élevées. Le contrôle du processus ainsi que les phénomènes de l’écoulement et de l’échange de chaleur sont assez complexes. Par ailleurs, les essais expérimentaux sont onéreux. Le passage à l’analyse numérique s’est peu à peu imposé. L’analyse numérique est l’étude des problèmes utilisant des mathématiques discrètes. La résolution numérique de l’équation différentielle passe en premier lieu par la discrétisation de celle-ci puis elle est amenée dans un sous espace de dimension finie où elle est résolue soit par la méthode de différences finies, des volumes finis, soit par la méthode des éléments finis. Nous avons choisi dans notre étude cette dernière méthode que nous détaillons ci-dessous.

2.5.1 Méthode des éléments finis

Contrairement à la méthode des différences finies, qui considère la région de la solution comme un tableau de points de grille, la méthode des éléments finis considère que la région

de la solution est constituée de nombreuses petites sous-régions ou éléments interconnectés. Un modèle de problème en éléments finis donne une approximation par morceaux des équations de base. Le principe de base de la méthode des éléments finis est qu'une région de solution peut être modélisée ou approchée de manière analytique en la remplaçant par un assemblage d'éléments discrets.

Étant donné que ces éléments peuvent être assemblés de différentes manières, ils peuvent être utilisés pour représenter des formes extrêmement complexes. Pour illustrer comment un modèle d'éléments finis peut être utilisé pour représenter une forme géométrique complexe, considérons la section transversale du four inductif de type Kyropoulos dans la Figure 2.6. Le modèle d'éléments finis, utilise l'élément bidimensionnel le plus simple (le triangle) qui donne une meilleure approximation de la région, ainsi que la meilleure représentation de la forme de la frontière, car la limite incurvée est représentée par des lignes droites de toute inclinaison.

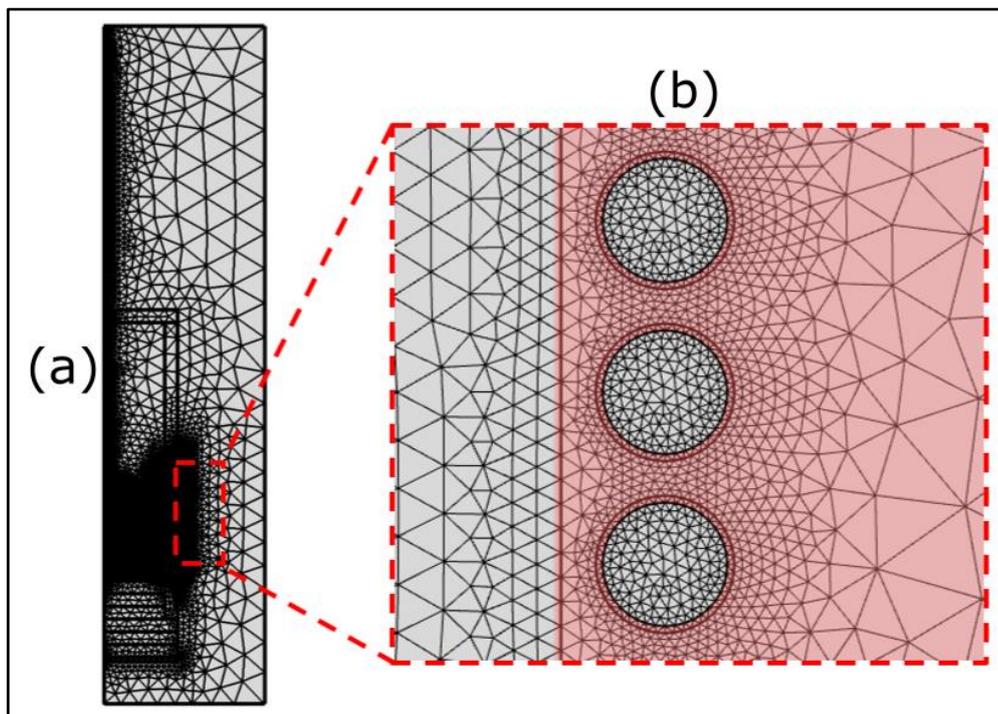


FIGURE 2.8 – Maillage de la géométrie complète du four inductif de la méthode Kyropoulos utilisé au cours de la majorité des calculs 2D axisymétrique (a) et un zoom sur la discrétisation d'une région proche des spires d'induction (b).

Les procédures de discrétisation par éléments finis réduisent le problème à un nombre fini d'inconnues en divisant la région de la solution en éléments et en exprimant la variable de champ inconnu en termes de fonctions d'approximation dans chaque élément. Les fonctions approximatives (parfois appelées fonctions d'interpolation) sont définies en fonction des valeurs des variables de champ en des points spécifiques, appelés nœuds ou points nodaux. Les nœuds se trouvent généralement sur les limites des éléments où les éléments adjacents sont connectés. En plus des nœuds limites, un élément peut également comporter quelques nœuds intérieurs. Les valeurs nodales de la variable de champ et les

fonctions d'interpolation pour les éléments définissent complètement le comportement de la variable de champ au sein des éléments.

Pour la représentation par éléments finis d'un problème, les valeurs nodales de la variable de champ deviennent les inconnues. Une fois ces inconnues trouvées, les fonctions d'interpolation définissent la variable de champ dans l'ensemble des éléments. Il est clair que la nature de la solution et le degré d'approximation dépendent non seulement de la taille et du nombre des éléments utilisés, mais également des fonctions d'interpolation sélectionnées. Cependant, nous ne pouvons pas choisir les fonctions de manière arbitraire, car certaines conditions de compatibilité doivent être remplies. Les fonctions sont souvent choisies de manière à ce que la variable de champ ou ses dérivés soient continus au-delà des limites des éléments adjacents. Celles-ci sont appliquées à la formulation de différents types d'éléments.

Quelle que soit l'approche utilisée pour trouver les propriétés des éléments, la solution d'un problème continu par la méthode des éléments finis suit toujours un processus ordonné, étape par étape. Si la solution varie rapidement dans une région de l'espace, il est nécessaire d'avoir relativement plus d'éléments dans cette région pour modéliser avec précision le comportement de la solution dans cette région. Dans notre cas par exemple, nous raffinons le maillage près de l'interface de croissance plus que d'autres régions dans le four, et cela afin de pouvoir capturer plus précisément les flux de chaleur venant à la fois du saphir liquide et du cristal influençant ainsi la forme de l'interface qui évolue au cours des calculs.

2.5.2 Description du logiciel COMSOL Multiphysics

Le deux modèles 2D axisymétrique et 3D ont été implémentés sous COMSOL Multiphysics. C'est un logiciel de simulation numérique basé sur la méthode des éléments finis. Ce logiciel permet de simuler de nombreuses physiques et applications en ingénierie, et tout particulièrement les phénomènes couplés ou simulation multi-physiques.

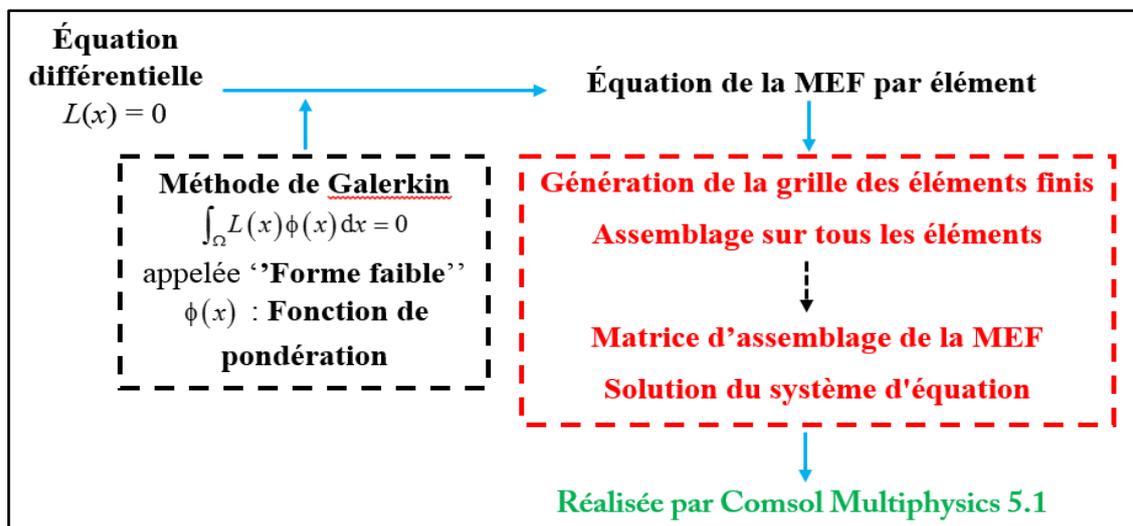


FIGURE 2.9 – Le rôle du logiciel Comsol Multiphysics dans la résolution des équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis.

Ce programme informatique dispose de capacités étendues pour la résolution des systèmes d'équations aux dérivées partielles [100] et l'analyse de problèmes non linéaires susceptibles de présenter des phénomènes à différentes échelles comme ceux présents dans un four de croissance cristalline.

2.5.3 Étapes de résolution d'une EDP par éléments finis

Le principe est de chercher la solution dans un espace doté de propriétés particulières, tels que les espaces de Hilbert, et d'écrire celle-ci sous forme de combinaisons linéaires des fonctions de base ϕ_j :

$$u^h = \sum_j \beta_j \phi_j \quad (2.91)$$

β_j : les degrés de liberté que la méthode vise à déterminer

u^h : l'approximation discrète de la vitesse u

1. Maillage du domaine : Les EDP sont définies sur un domaine continu, la première étape pour les résoudre consiste à subdiviser ce domaine en éléments de formes simples telles que des triangles ou des quadrilatères.

2. Définition des bases nodales : Une fois le maillage réalisé, nous devons définir les bases dites nodales. Ces fonctions de base servent à écrire les inconnues sous forme de combinaisons linéaires de ces fonctions de base.

La base nodale est constituée de fonctions appartenant à des espaces de Hilbert tels que les fonctions de Lagrange linéaires ou quadratiques [111]. Chacune de ces fonctions est non nulle sur le nœud sur lequel elle est définie et nulle ailleurs comme l'illustre la Figure 2.8.

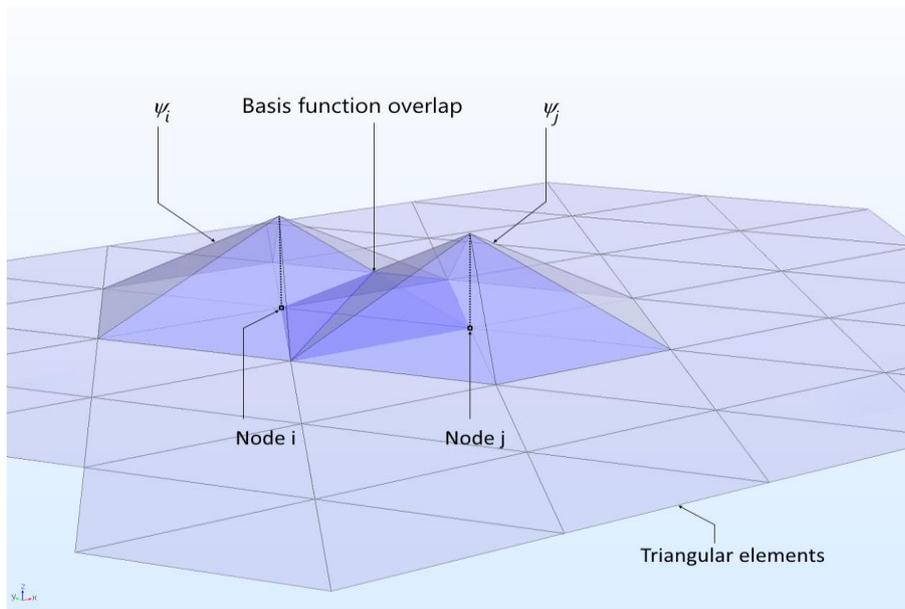


FIGURE 2.10 – Illustration de la discrétisation d'un domaine par éléments finis [112].

3. Obtention de la forme faible de l'EDP : Si nous prenons comme exemple l'équation de la chaleur, c'est une EDP d'ordre 2, la température doit donc avoir une dérivée seconde continue, c'est pourquoi cette EDP est dite forme forte. Pour obtenir la forme dite faible de celle-ci, nous la multiplions par une fonction dite test et nous intégrons par parties. Nous nous retrouvons avec une équation intégrale réduite d'un ordre par rapport à l'EDP d'origine, ce qui réduit donc la condition de régularité de l'inconnue, c'est à dire impose des conditions plus faibles.

4. Assemblage et solution du système: En partant de la forme faible, nous remplaçons les inconnues et les fonctions tests par leurs écritures respectives dans la base de l'espace des fonctions inconnues et des fonctions tests et après linéarisation des termes non-linéaires, nous trouvons un système linéaire qui sera assemblé et résolu numériquement.

2.5.4 Traitement de l'interface cristal-liquide et calcul des contraintes thermoélastiques tridimensionnelles

Les problèmes avec changement de phase revêtent une importance capitale dans les procédés de la mise en forme des matériaux notamment la croissance cristalline. Du point de vue du transfert de chaleur, la mise en croissance implique à la fois la conduction, la convection et le rayonnement (entre surfaces et/ou interne). À cela, le changement de phase (liée à la chaleur latente lors de changement d'état *solidification/fusion*), ajoute une difficulté supplémentaire. En effet, il existe une délimitation physique entre la portion solidifiée et celle encore liquide que l'on nomme le front de solidification. Il s'agit donc d'une interface où des conditions de sauts apparaissent, notamment dans les propriétés physiques.

Actuellement, deux approches numériques différentes sont généralement utilisées par la communauté, distinguées par la manière qu'elles ont de définir et de traiter l'interface cristal-liquide et la définition de rejets de chaleur.

La première approche est une méthode enthalpique. Les différentes phases en présence coexistent au sein du même domaine de calcul. Nous avons donc un seul domaine, avec un seul maillage. Dans chaque maille, nous distinguons les différentes phases grâce au calcul de la fraction volumique de chaque phase. A cette approche, l'interface cristal-liquide n'est donc pas explicitement matérialisée. Autrement dit, la transition d'une phase à l'autre passe par une zone de coexistence des phases. Nous parlons alors d'interface diffuse sur une zone appelée «*Mushy-zone*». Cette méthode enthalpique peut être appliquée au problème de solidification avec un modèle multiphase ou avec un modèle VOF. Le maillage dans cette méthode doit être construit de manière plus dense sur l'ensemble du domaine, et l'interface diffuse empêche de définir une condition aux limites sur l'interface, ce qui influence le champ des vitesses à cause de l'amortissement de ces vitesses dans l'épaisseur de la zone de transition

La deuxième est une méthode multi-domaine. La phase solide et la phase liquide sont chacune associée à un domaine de calcul avec deux maillages indépendants. Les proportions de ces domaines peuvent changer, généralement grâce à des méthodes de maillages

déformables, qui permettent d'ajuster les deux domaines de calcul en fonction du déplacement de l'interface. De cette manière, l'interface cristal-liquide est parfaitement définie et maillée (Figure 2.11). C'est cette dernière méthode que nous avons utilisée dans le présent travail. Pour cette méthode, nous avons les avantages suivants : nous pouvons appliquer une condition aux limites attribuée aux flux sur l'interface, nous pouvons améliorer le raffinement local du maillage près de l'interface avec des maillages de couches limites comme indiqué sur la Figure 2.11, il n'y a pas de zone de transition cristal-liquide et les champs de vitesse obtenus sont donc meilleures. Toutefois, le maillage déformable nécessite un temps de calcul important.

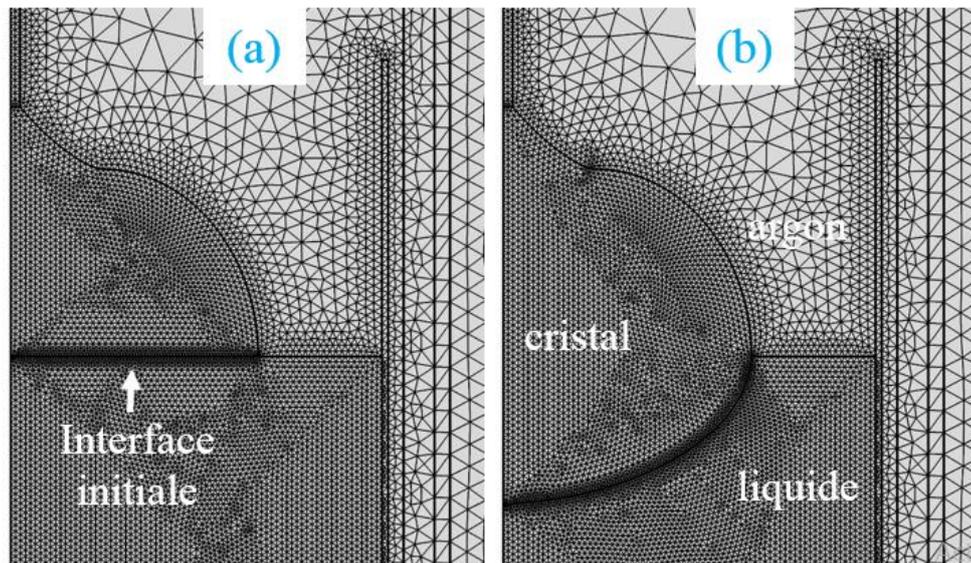


FIGURE 2.11 – Distribution du maillage triangulaire mobile et non structuré. Appliqué avant la modélisation de changement de phase (a) et déformé après la modélisation de changement de phase (b).

Les équations discrètes non linéaires ont été résolues en utilisant une méthode de Newton-Raphson. L'analyse de dépendance à la grille est effectuée avec précision avec différentes distributions de maillage. Nous avons examiné les performances du Comsol Multiphysics pour différentes distributions de maillage utilisé pour les calculs lors du processus de raffinement et de sélection de la grille. Toutes les parties de la grille sont raffinées jusqu'à ce que la distribution de la température et la vitesse dans le bain liquide soit indépendante du maillage, ce qui conduit à un raffinement important aux limites des fluides, en particulier à l'interface cristal-liquide

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, la modélisation globale du transfert de chaleur (conduction, convection et rayonnement), de l'écoulement des fluides et de l'interface cristal-liquide, qui est une zone cruciale pour les simulations, reste aujourd'hui un challenge. De ce fait, le problème de la simulation a été divisé en cinq (05) sous-problèmes : 1) l'écoulement dans la partie du saphir fondu, 2) le transfert de chaleur dans les parties liquide et solide de la configuration de la croissance, y compris le rayonnement surface to surface pour toutes les surfaces exposées à l'atmosphère de croissance, 3) le

rayonnement interne dans le cristal, 4) le problème de changement de phase et 5) calcul des contraintes thermoélastiques tridimensionnelles dans le cristal.

Les quatre premiers sous-problèmes sont simulés en approche bidimensionnelle axisymétrique. Tandis que le cinquième est en 3D. Pour la solution de tel problème, nous avons considéré trois (03) étapes,

Étape 1 : *Calcul progressif* en utilisant la méthode dite ‘‘Damping factor’’ c’est-à-dire que nous multiplions par exemple la densité du fluide par un nombre important afin que le calcul converge aisément et en le faisant diminuer ensuite jusqu’à ce que nous nous approchons de la valeur réelle (multiplication par 1). Dans le cas où le calcul diverge de la solution approchée, le calcul se relance à nouveau à partir du dernier pas où il était convergé en faisant diminuer ensuite le pas du Damping factor.

Étape 2 : *Calcul de la forme de l’interface cristal-liquide.* Dans cette étape, nous cherchons tout d’abord la valeur de la puissance de chauffage devant satisfaire la condition suivante : l’isotherme de fusion coïncide avec le point triple (Figure 2.4a). Ensuite, nous procédons à l’utilisation de la méthode dite ‘‘Géométrie Déformable’’ afin de trouver le front de solidification dans cette étape de croissance (Figure 2.4b).

Étape 3 : *Calcul des contraintes thermoélastiques.* La simulation axisymétrique de contraintes thermoélastiques bidimensionnelles à l’aide de la physique dite ‘‘mécanique du solide’’ implantée dans le COMSOL Multiphysics, a généralement échoué en raison de la non considération de l’anisotropie du saphir. Ajouter une autre dimension aux simulations axisymétriques en régime permanent pour leur simulation signifie augmenter de manière significative la taille des données et le nombre d’opérations de calcul. Cela consomme beaucoup plus de mémoire d’ordinateur et de temps CPU pour le calcul.

2.5.5 Formulation faible (Équations de Maxwell-Ampère)

La formulation faible d’une équation différentielle quelconque consiste à la transformer en un problème variationnel. Cette transformation permet de réduire l’ordre de différentiation des opérateurs d’ordre élevé tels que les laplaciens et d’inclure les conditions aux limites à travers des intégrales de bords.

La résolution de l’équation (Éq 2.26) dite forme forte, peut poser des problèmes si l’inconnue \mathcal{A} n’est pas assez régulière vue qu’elle fait intervenir une dérivée spatiale d’ordre 2. Il est mathématiquement possible de résoudre un problème équivalent mais avec des conditions plus faibles sur les propriétés de la fonction inconnue \mathcal{A} en passant par la forme variationnelle de l’équation (Éq 2.26). Pour se faire nous multiplions l’équation (Éq 2.26) par le conjugué de la fonction test Φ^* appartenant au même espace fonctionnel que celui de la fonction inconnue et nous intégrons sur le domaine de calcul :

$$\int_{\Omega} \nabla \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathcal{A} \right) \cdot \Phi^* \, d\nu = \int_{\Omega} (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A} \cdot \Phi^* \, d\nu + \int_{\Omega} (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_{\theta} \cdot \Phi^* \, d\nu, \forall \Phi^* \in \mathbb{V} \quad (2.92)$$

Où Φ^* sont des fonctions de Lagrange appartenant à l'espace H^1 [111]

En intégrant par parties le premier terme de gauche de l'équation nous obtenons [113] :

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega} \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathcal{A} \right) \cdot (\nabla \times \Phi^*) \, d\nu + \int_{\partial\Omega} \mathbf{n} \times \left(\frac{1}{\mu} \nabla \times \mathcal{A} \right) \cdot \Phi^* \, ds - \int_{\Omega} (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A} \cdot \Phi^* \, d\nu \\ & - \int_{\Omega} (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_{\theta} \cdot \Phi^* \, d\nu = 0 \quad , \forall \Phi^* \in \mathbb{V} \end{aligned} \quad (2.93)$$

En écrivant les opérateurs en coordonnées cylindriques et en tenant compte de la condition aux limites, nous obtenons :

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega} \frac{1}{\mu} \left[\left(\frac{1}{r} \frac{\partial \mathcal{A}_z}{\partial \theta} - \frac{\partial \mathcal{A}_{\theta}}{\partial z} \right) \mathbf{e}_r + \left(\frac{\partial \mathcal{A}_r}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{A}_z}{\partial r} \right) \mathbf{e}_{\theta} + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial (r \mathcal{A}_{\theta})}{\partial r} - \frac{\partial \mathcal{A}_r}{\partial \theta} \right) \mathbf{e}_z \right] \\ & \left[\left(\frac{1}{r} \frac{\partial \Phi_z^*}{\partial \theta} - \frac{\partial \Phi_{\theta}^*}{\partial z} \right) \mathbf{e}_r + \left(\frac{\partial \Phi_r^*}{\partial z} - \frac{\partial \Phi_z^*}{\partial r} \right) \mathbf{e}_{\theta} + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial (r \Phi_{\theta}^*)}{\partial r} - \frac{\partial \Phi_r^*}{\partial \theta} \right) \mathbf{e}_z \right] r \, dr \, d\theta \, dz \\ & - \int_{\Omega} (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A} \cdot \Phi^* \, r \, dr \, d\theta \, dz - \int_{\Omega} (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_{\theta} \cdot \Phi^* \, r \, dr \, d\theta \, dz = 0 \quad , \forall \Phi^* \in \mathbb{V} \end{aligned} \quad (2.94)$$

2.5.5.1 Formulation faible en axisymétrie

Sachant que le courant imposé est azimutal ($\mathcal{A}_z = 0$ et $\mathcal{A}_r = 0$ car le vecteur déplacement \mathcal{A} et le courant électrique \mathbf{I} ont la même direction) et en considérant que le problème est à symétrie axiale $\left(\frac{\partial \mathcal{A}_{\theta}}{\partial \theta} = 0 \right)$ nous avons : $\mathcal{A} = \mathcal{A}_{\theta}(r, z) \mathbf{e}_{\theta}$, en remplaçant dans (Éq 2.94),

nous trouvons :

$$\begin{aligned} & \int_{r,z} \left[\frac{1}{\mu} \left(-\frac{\partial \mathcal{A}_{\theta}}{\partial z} \right) \mathbf{e}_r + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial (r \mathcal{A}_{\theta})}{\partial r} \right) \mathbf{e}_z \right] \cdot \left[\left(-\frac{\partial \Phi_{\theta}^*}{\partial z} \right) \mathbf{e}_r + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial (r \Phi_{\theta}^*)}{\partial r} \right) \mathbf{e}_z \right] 2\pi r \, dr \, dz \\ & - \int_{r,z} (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A}_{\theta} \cdot \Phi_{\theta}^* \, 2\pi r \, dr \, dz - \int_{\Omega} (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_{\theta} \cdot \Phi^* \, r \, dr \, d\theta \, dz = 0 \quad , \forall \Phi^* \in \mathbb{V} \end{aligned} \quad (2.95)$$

Après simplification, la forme faible est : Trouver $\mathcal{A}_{\theta} \in \mathbb{V}$ tel que

$$\int_{r,z} \frac{1}{\mu} \left[\left(-\frac{\partial \mathcal{A}_\theta}{\partial z} \right) \left(-\frac{\partial \Phi_\theta^*}{\partial z} \right) + \left(\frac{\partial (\mathcal{A}_\theta)}{\partial r} + \frac{\mathcal{A}_\theta}{r} \right) \left(\frac{\partial (\Phi_\theta^*)}{\partial r} + \frac{\Phi_\theta^*}{r} \right) \right] 2\pi r \, dr \, dz$$

$$- \int_{r,z} (\omega^2 \varepsilon - i\omega \sigma_e) \mathcal{A}_\theta \cdot \Phi_\theta^* 2\pi r \, dr \, dz - \int_{\Omega} (\sigma_e + i\omega \varepsilon) \left(\frac{V_{coil}}{2\pi r} \right) \mathbf{e}_\theta \cdot \Phi^* r \, dr \, d\theta \, dz = 0 \quad , \forall \Phi^* \in \mathbb{V}$$

(2.96)

Avec $\mathbb{V} = \{f \in H^1(\Omega) \text{ avec } \phi(\partial\Omega) = 0\}$ et $H^1 = \{f \in L^2(\Omega) \text{ et } f' \in L^2(\Omega)\}$

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons procédé à la mise en équations magnétiques, dynamiques, thermiques et thermoélastiques gouvernant le problème étudié ainsi qu'à l'établissement des conditions aux limites associées. Au début, nous nous sommes intéressés, en particulier, à mettre en évidence les mécanismes qui interviennent lors de la croissance cristalline du saphir par la méthode Kyropoulos, commençant par des phénomènes électrothermiques (chauffage inductif et résistif) utilisés pour la chauffe, les différents modes de transfert de chaleur qui s'installent à l'intérieur de la chambre chaude de la croissance et arrivant à l'écoulement du bain fondu. Par la suite, nous avons essayé de décrire le changement de phase et la méthode avec laquelle nous avons traité l'interface de solidification cristalline, passant par la méthodologie suivie pour le calcul des contraintes thermoélastiques tridimensionnelles prenant en compte l'effet de l'anisotropie du cristal. Enfin, nous avons terminé avec la présentation de la méthode de résolution numérique du problème tout en mettant l'accent sur la méthode des éléments finis et la description du logiciel COMSOL Multiphysics utilisé dans nos calculs.

-CHAPITRE 3-

**RÉSULTATS & DISCUSSIONS (ÉTAPES
PRIMAIRES DE CROISSANCE)**

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, notre démarche consiste à analyser numériquement les différents paramètres affectant le procédé de Kyropoulos. Nous nous concentrons sur les différentes étapes du processus de croissance du saphir par la méthode Kyropoulos à savoir : avant l'étape de la connexion du germe (before seeding), ensuite à l'étape de connexion avec la surface libre du bain du saphir (seeding stage). Nous y parvenons en étudiant la réponse d'un modèle hydrodynamique et thermique complet pour les systèmes de croissance des oxydes par la méthode Kyropoulos avec différentes configurations de creuset.

Notre objectif est donc d'étudier l'effet de l'aspect géométrique du creuset à travers la variation de son coin de base ainsi que l'ajout d'un chauffage résistif et la rotation du cristal sur la thermoconvection à l'intérieur du bain fondu du saphir c.-à-d. les champs thermiques et dynamiques et nous présentons également la forme de l'interface cristal-liquide du cristal résultant pour chaque configuration étudiée dans un stade avancé du processus de cristallisation.

3.2 Étape avant connexion du germe : Before seeding

La procédure de croissance d'un cristal par la méthode de KY commence premièrement par la charge du creuset avec un matériau polycristallin de haute pureté qui est dans notre cas l'alumine de type α (α -Al₂O₃). Ensuite, le creuset est chauffé par rayonnement via le graphite dense (élément chauffant vertical et horizontal) qui est lui-même chauffé par induction, pour faire fondre cette matière première. L'objectif de ces calculs dans cette étape de croissance (juste avant le processus dit germination) est d'étudier l'effet de la géométrie de la base du creuset combinée à la convection naturelle et la convection de Marangoni sur l'écoulement de fluide et le champ de température. Nous voulons comparer les résultats pour le cas d'un creuset de forme cylindrique à celui du creuset avec un coin de forme incurvé ou escamoté. Dans cette étape, la masse initiale d'oxyde d'aluminium à l'intérieur des trois creusets est environ 80% du volume total.

3.2.1 Description des configurations géométriques étudiées

Le schéma de principe du système de four de croissance à cette étape est présenté à la [Figure 3.1](#). Trois configurations du creuset sont envisagées, à savoir : le creuset cylindrique (cas 1), le creuset avec un coin incurvé (cas 2) et le creuset avec un coin escamoté (cas 3).

Dans ce four de croissance de type Kyropoulos, un creuset cylindrique en molybdène de 240 mm de diamètre, 200 mm de hauteur et 2 mm d'épaisseur est chauffé par rayonnement provenant d'un sucepteur en graphite de hautes densité et conductivité électrique. Ce sucepteur est soumis à un champ électrique oscillant en raison du champ magnétique oscillant généré par une bobine Radio Fréquence dans laquelle circule un courant électrique de 10 kHz. Ce champ électrique induit à son tour des courants de Foucault qui chauffent le graphite. Afin de garantir le refroidissement des spires, une circulation d'eau à une vitesse bien déterminée est indispensable.

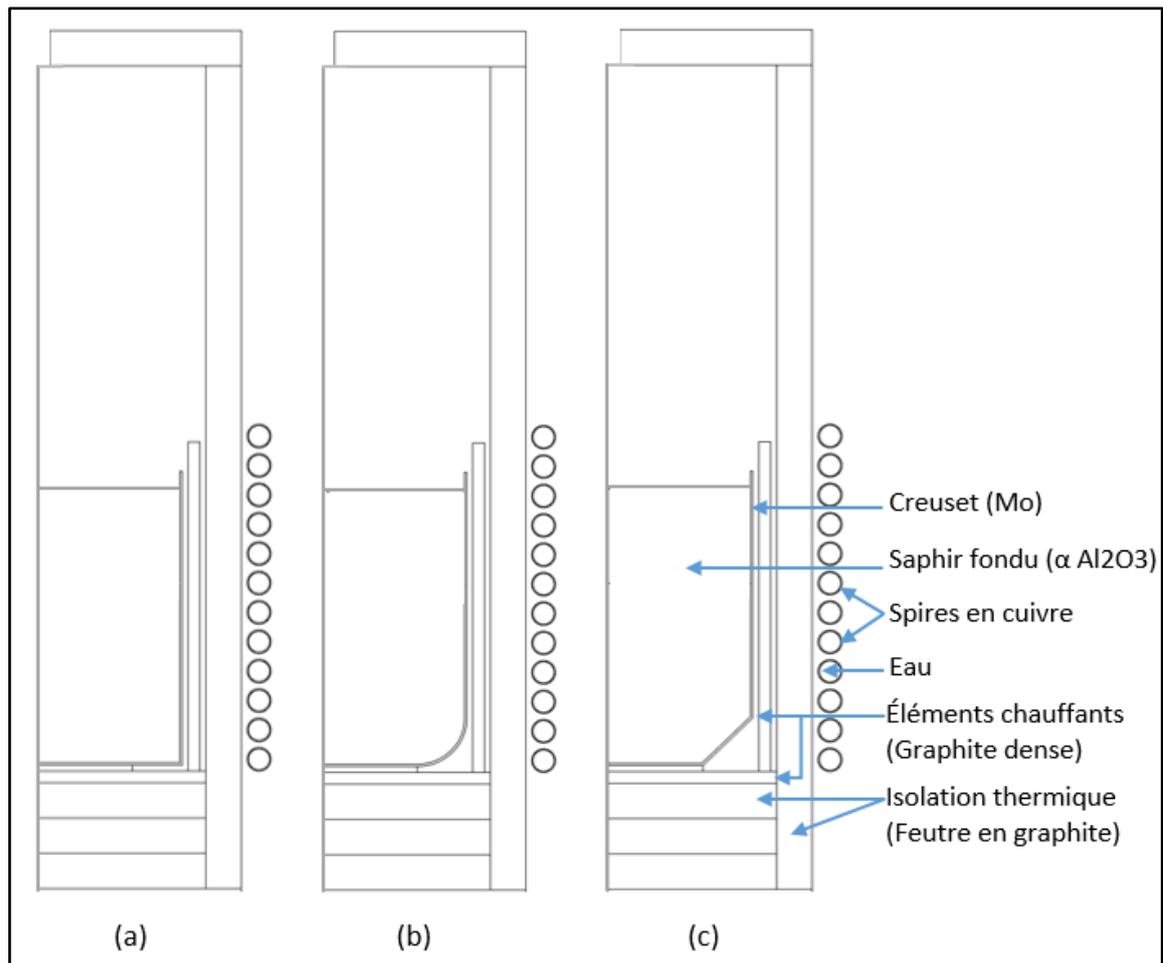


FIGURE 3.1 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance dit avant germination (juste avant la connexion du germe avec la surface libre du bain fondu). Trois formes de creuset sont envisagées : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.

3.2.2 Propriétés thermophysiques & Isotherme de fusion avant connexion

Les valeurs des propriétés physiques utilisées dans nos calculs sont données dans le [Tableau 3.1](#) [30, 35, 36]. Le nombre de Prandtl qui caractérise le saphir liquide est $Pr = 12.78$. Dans tous les calculs, la température ambiante est de 25 C° et la fréquence du courant électrique d'entrée est de 10 kHz quant à la puissance de chauffage elle varie suivant le cas étudié.

La croissance des cristaux à partir de l'état liquide, ne peut se produire que si le matériau polycristallin de départ à l'intérieur du creuset est complètement fondu c.-à-d. que sa température minimale soit au-dessus de son point de fusion et cela afin de s'assurer qu'aucune impureté ou une fraction solide n'est introduite dans le processus de croissance provenant de la matière première. Donc, à cette étape et pour toutes les configurations, l'isotherme de fusion de saphir ($T_f = 2323\text{ K}$) doit être située au-dessus du centre de la surface libre de la masse fondue pour que nous nous assurons que toute l'alumine à l'intérieur du creuset est fondue. Par conséquent, le centre de la surface libre est le point le plus froid

du bain fondu. *Ce n'est pas une condition limite, mais il devrait être un résultat des calculs.* La température au centre de la surface libre (où le germe cristallin sera placé par la suite) est à 20 K au-dessus du point de fusion de saphir (correspondant à l'état réel du processus de germination) comme indiqué sur la [Figure 3.2](#).

TABLEAU 3.1 – Propriétés thermophysiques du saphir liquide et les autres éléments du four.

Description (unité) et symbole	Valeur
Température de fusion (K) T_f	2323
Chaleur latent (J/kg) H_f	11×10^5
Densité (kg/m ³) ρ	
• Saphir liquide	3000
• Graphite dense (éléments chauffants)	1830
• Feutre en Graphite (isolation)	170
• Creuset	9770
Conductivité thermique (W/m.K) k	
• Saphir liquide	3.5
• Graphite dense (éléments chauffants)	60
• Feutre en Graphite (isolation)	1.2
• Creuset	87.27
Capacité calorifique (J/kg.K) C_p	
• Saphir liquide	765
• Graphite dense (éléments chauffants)	700
• Feutre en Graphite (isolation)	700
• Creuset	423
Emissivité (-) ε	
• Saphir liquide	0.33
• Graphite dense (éléments chauffants)	0.9
• Feutre en Graphite (isolation)	0.4
• Creuset	0.28
Viscosité Dynamique du saphir liquide (Pa.s) μ	0.058
Coefficient de dilatation thermique du saphir liquide (m ⁻¹) β_T	1.8×10^{-5}
Gradient de tension superficielle du saphir liquide (N/m.K) γ	0.00035
Constante de Stephan-Boltzman (W/m ² .K ⁴) σ	5.67×10^{-8}
Coefficient d'absorption du saphir liquide (m ⁻¹) κ	1×10^{10}
Indice de réfraction du milieu transparent (gaz d'argon) (-) n	1

La forme de l'interface gaz-bain fondu (dans cette partie est une surface libre) est considérée comme plane et cela pour toutes les parties de ce travail. Il convient de mentionner également que le couplage inductif avec un oxyde fondu contenu dans un creuset en métal est insignifiant pour la fréquence considérée (10 kHz). Par conséquent, la génération de chaleur par induction dans le bain est très faible.

En raison de la différence de volume du bain fondu causée par les différentes formes d'angle du creuset, la puissance de chauffe fournie dans la configuration de référence (cas 1) est systématiquement la plus élevée par rapport aux deux autres cas (cas 2 et 3). Elle est de l'ordre de 44,7 kW, 44,2 kW et 43,8 kW pour les configurations ayant un creuset à base plane, avec un coin incurvé et escamoté, respectivement. Au cours du processus de la

croissance cristalline de type Kyropoulos, cette puissance d'entrée est réduite à mesure que le cristal se développe.

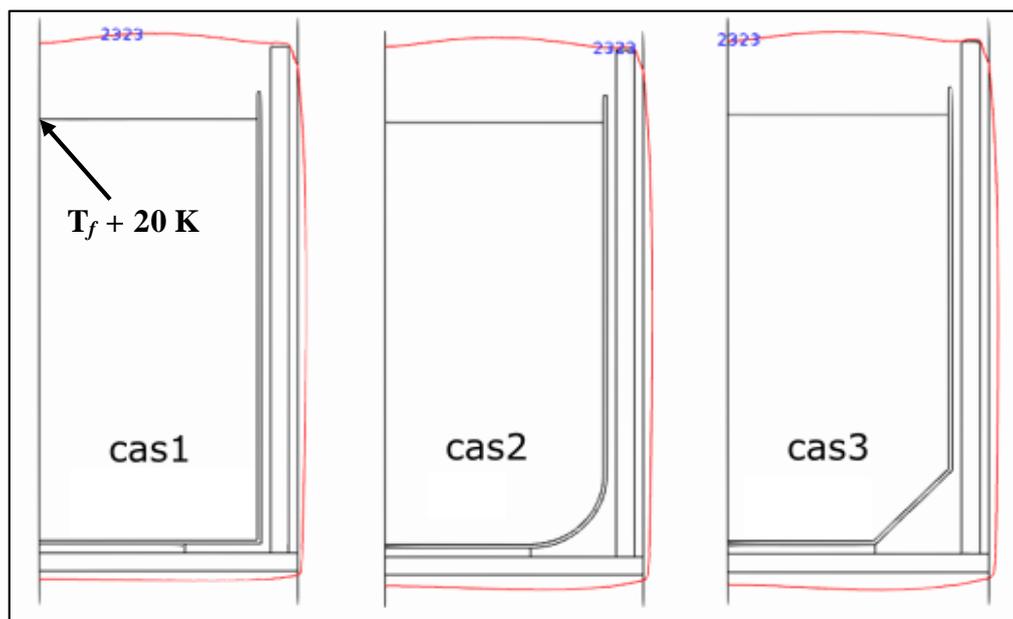


FIGURE 3.2 – Isotherme de fusion ($T_f = 2323$ K) pour différentes formes de coin de creuset ((1) : cas 1, (2) : cas 2 et (3) : cas 3) avant la connexion du germe monocristallin (pour toutes les configurations, T_f est située au-dessus du centre de la surface libre de la masse fondue).

3.2.3 Champs de température et de vitesse

Les lignes de courant et les isothermes peuvent fournir des informations qualitatives et globales sur l'écoulement du fluide et le champ de température dans le bain fondu et à l'intérieur de la chambre chaude du four de croissance.

La Figure 3.3 montre la carte des isothermes pour les trois configurations du creuset et cela pour l'étape précédant la connexion du germe. La température maximale dans la chambre chaude de la croissance pour la configuration ayant un creuset à base plane (cas 1) est $T_{\max(a)} = 2600$ K, et elle est supérieure de 10 K pour les deux autres configurations (cas 2 et 3) $T_{\max(b \text{ et } c)} = 2610$ K tandis que la température minimale obtenue est la même pour les trois configurations $T_{\min(a,b \text{ et } c)} = 2050$ K. Pour toutes les configurations, on constate que les isothermes les plus élevées sont situées dans la partie inférieure de la chambre chaude où se trouvent les éléments chauffants.

Tandis que les températures moyennes sont situées au-dessus de la surface libre et les moins élevées se trouvent dans la partie supérieure de la chambre chaude loin de la surface libre. En effet, les éléments chauffants transfèrent à leur tour de la chaleur aux parois du creuset par rayonnement via l'élément chauffant vertical et par conduction et rayonnement surface à surface via l'élément chauffant horizontal. Ensuite, cette chaleur se transfère uniquement par conduction à travers le creuset puisque sa matière est opaque (Molybdène). Une fois cette chaleur arrivée à la paroi intérieure du creuset, elle est ensuite transférée aux particules du fluide adjacentes par conduction.

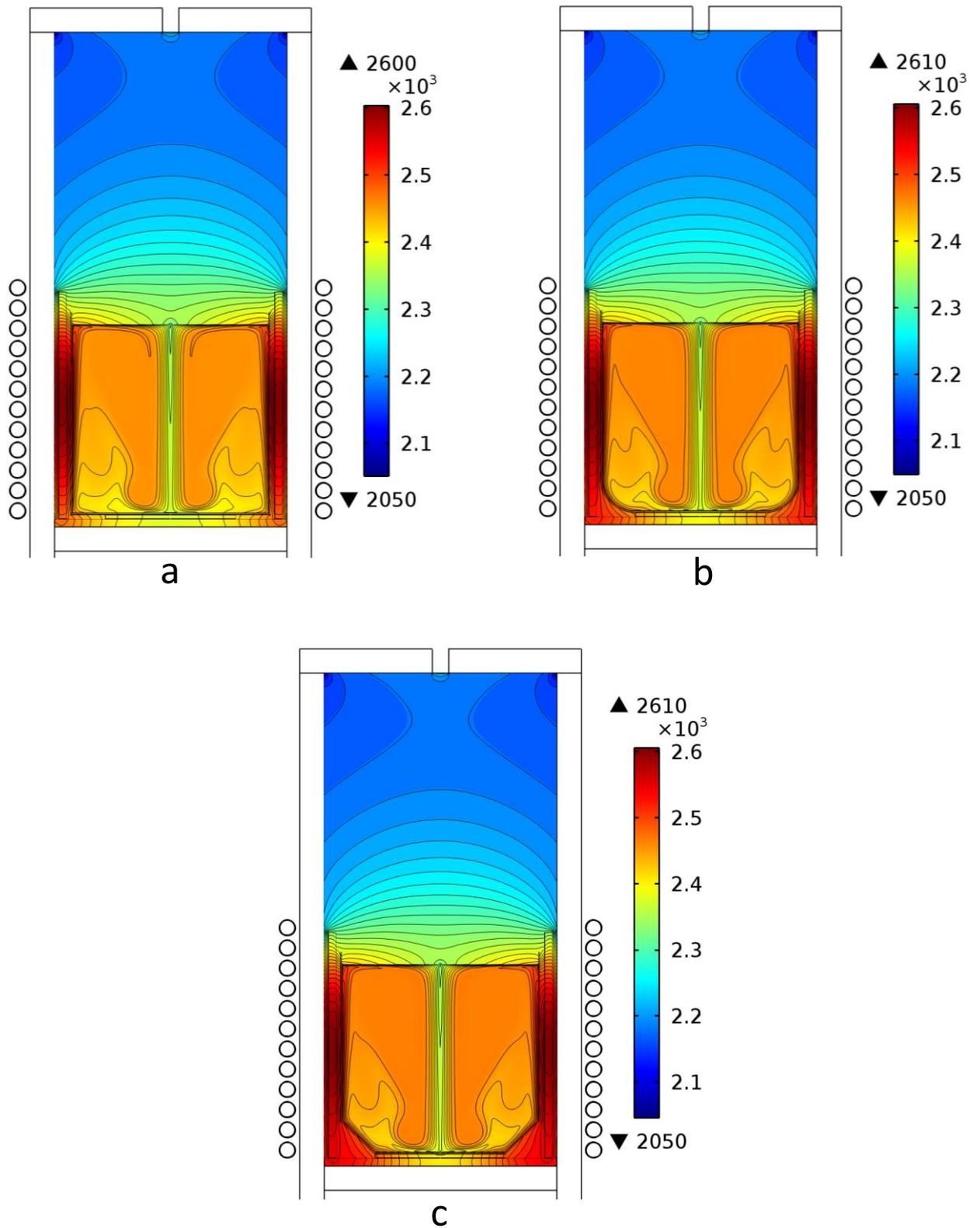


FIGURE 3.3 – Champ thermique dans la chambre chaude de la croissance pour les configurations ayant un creuset avec (a) un fond plat, (b) un coin du fond incurvé et (c) un coin du fond escamoté avant la connexion du germe.

Au sein du fluide, le transfert de chaleur s'effectue principalement par conduction et par convection naturelle. Il est à noter que le rayonnement interne dans le saphir liquide est négligé. Il est considéré comme opaque dans toutes nos simulations car son coefficient d'absorption est très élevé comparant à celui du saphir liquide ($\text{abs}_{(\text{saphir solide})} = 28 \text{ m}^{-1}$ et $\text{abs}_{(\text{saphir fondu})} = 10^{10} \text{ m}^{-1}$).

Il convient de mentionner que les formes des isothermes sont influencées par la structure et la dynamique de l'écoulement du fluide dans le saphir liquide (présence de la convection). Quant à la partie atmosphère, la forme parabolique des isothermes (convexes vers le haut) est due en effet à l'absence de la convection dans ce domaine où le rayonnement est le mode de transfert de chaleur dominant. Les isothermes sous forme de champignons dans la partie atmosphère se génèrent en démarrant sur l'un des côtés de l'élément chauffant et retombent sur l'autre côté. À cause de la manifestation de la convection thermocapillaire au voisinage de la surface libre du saphir liquide, les isothermes sont déviées vers le bain fondu.

Il est à noter qu'en s'éloignant de la surface libre dans toutes les configurations, l'espace entre les isothermes augmente donnant naissance à des formes convexes vers le haut à l'exception de la région supérieure de la chambre à proximité du couvercle où nous observons de faibles stratifications de la température au centre ainsi qu'au coin de la chambre. Cette convexité est plus importante dans le cas 1 par rapport aux cas 2 et cas 3. De plus, on constate que la forme parabolique des isothermes dans la quasi-totalité de la chambre devient relativement pointue en s'approchant du couvercle dans le cas 1 par rapport au cas 2 et 3.

Pour toutes les configurations, la température maximale dans le creuset est située sur la paroi latérale de ce dernier. Sa valeur et sa position sont différentes pour les trois cas. Elle est de 2551.3 K (cas 1), 2555.9 K (cas 2) et 2557.1 K (cas 3) et éloignée de 8.3 cm, 8.7 cm et 9 cm de la surface libre, pour les cas 1, 2 et 3 respectivement. De ce fait, malgré la puissance d'entrée élevée dans la configuration du creuset cylindrique (cas 1) par rapport aux autres formes (coin incurvé et escamoté), cela conduit donc à augmenter la température maximale (T_{max}) dans le creuset et déplace son emplacement vers le bas. Cela est dû en fait à la forme escamotée et incurvée du creuset qui favorise le transfert de chaleur par conduction dans le creuset. Cependant, la partie supérieure de la zone chaude est relativement plus froide et la température minimale se trouve au sommet de creuset pour toutes les configurations étudiées.

La [Figure 3.4](#) représente les champs d'écoulement dans le bain fondu (à gauche) au stade précédant la connexion du germe cristallin et le champ de température (à droite) dans le bain liquide, le creuset et le graphite dense (élément chauffant) pour différentes formes de creuset. Les isothermes et les lignes de courant sont montrées pour assurer la compréhension des structures, directions d'écoulement et le transfert de chaleur dans le bain fondu du saphir.

Le champ d'écoulement, entraîné par la variation de la masse volumique à l'intérieur du bain est illustré au moyen d'une cartographie des lignes de courant où la vitesse d'écoulement est tangente en tout point aux lignes de courant. Le champ d'écoulement en est représenté par des contours de la fonction de courant $\psi(r, z)$, également espacés de ψ_{min} à ψ_{max} et par le module de la vitesse. Les lignes de courant sont tracées en couleur blanche,

tandis que la norme du vecteur vitesse est représentée par des couleurs variant du rouge pour le maximum au bleu pour le minimum. En 2D axisymétrique, la fonction de courant est définie par :

$$V_r = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z}, \quad V_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r}$$

Où V_r et V_z sont les composantes radiale et axiale de la vitesse.

Le champ de température dans la partie fondue du saphir des trois configurations est fortement influencé par la convection naturelle et la convection de Marangoni, ce qui est courant pour les matériaux à nombre de Prandtl élevé. Dans les oxydes fondus (tels que le saphir, le YAG et l'aluminate de lithium), le rôle de la convection est plus important que celui de la conduction dans le mécanisme de transfert de chaleur et, par conséquent, les formes des isothermes ont une déviation proportionnelle au mode de convection et à la structure d'écoulement. Les isothermes dans le bain sont poussées le long des côtés du creuset, déviés vers l'axe de symétrie près de la surface libre et l'axe de symétrie. Au voisinage de l'axe de symétrie, elles sont déformées vers le bas où elles sont plus espacées comparant à celles au voisinage de l'axe de symétrie et la surface libre où elles sont plus serrées les unes aux autres.

Comme le saphir fondu se caractérise par un nombre de Prandtl élevé ($Pr = \mu.C_p/k = 12,78$), le champ de température dans le bain est influencé de manière significative par convection. Cette relation entre la température et la convection à l'état fondu est présentée par le terme gauche de l'équation de la chaleur (Éq 2.44). Ce nombre adimensionnel (Pr) qui mesure le rapport entre la diffusivité visqueuse et la diffusivité thermique, signifie ainsi dans notre cas qu'une chaleur plus importante est transférée dans le bain fondu par convection plutôt que par conduction.

Nous notons qu'il existe une différence légère des isothermes dans la partie inférieure du bain des trois configurations. Ceci est le résultat de différentes quantités de chaleur arrivant à cette région du bain à cause de la forme géométrique du coin de chaque creuset.

Dans les trois configurations, nous constatons qu'un grand tourbillon existe dans le bain, tournant dans le sens horaire. Il résulte de la présence de la convection naturelle et la convection thermique de Marangoni (induite par les gradients de la tension superficielle). Cet écoulement transfère la chaleur de la paroi du creuset à la partie centrale (où sera posé le germe cristallin dans l'étape suivante de la croissance : La connexion du germe). Ces cellules sont assez intenses près de l'axe de symétrie et de la surface libre et s'étendent de la paroi latérale du creuset (la partie la plus chaude du bain) jusqu'à l'axe de symétrie, occupant ainsi pratiquement tout le bain.

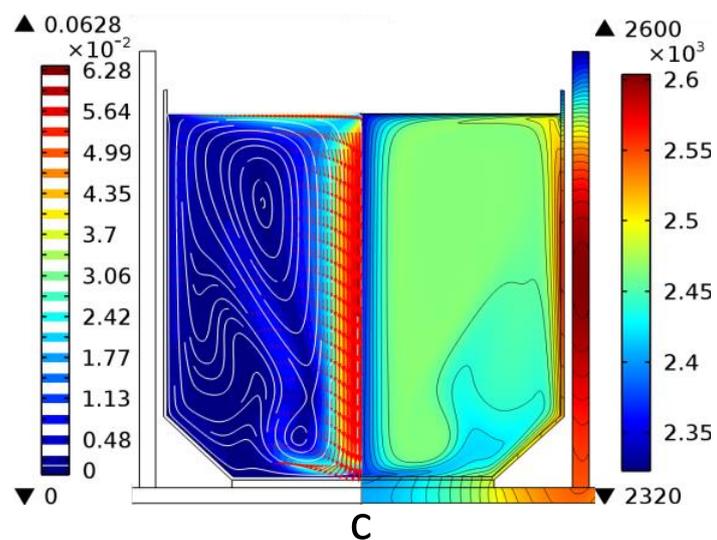
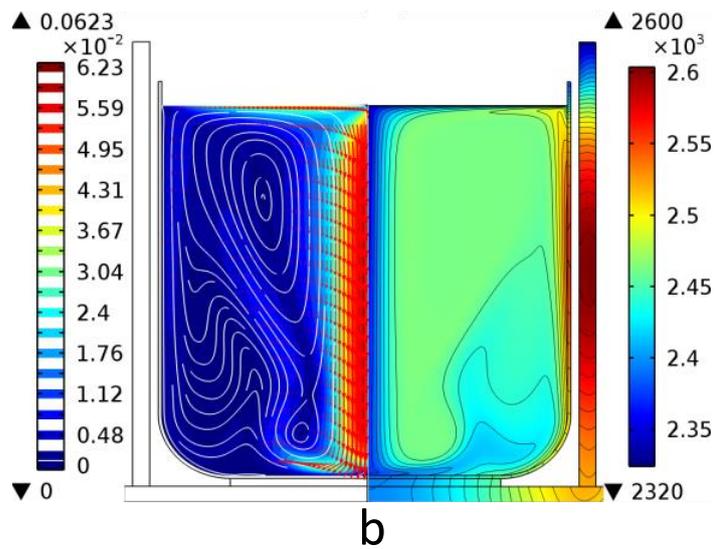
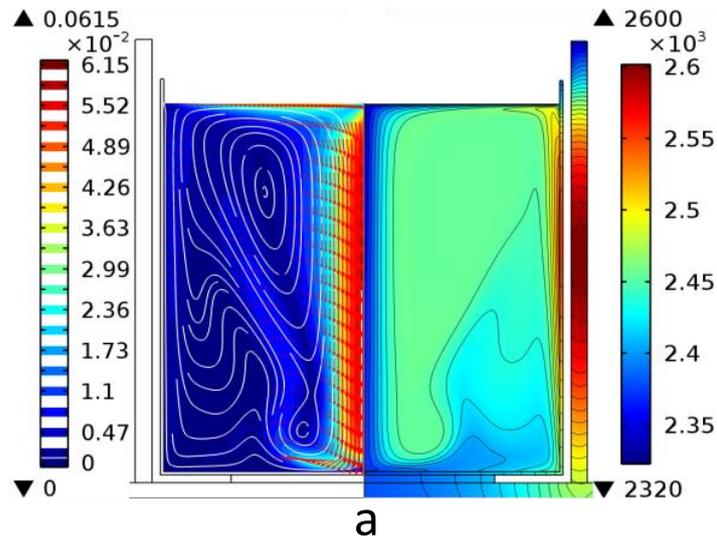


FIGURE 3.4 – Champ de température et isothermes (côté droit) et champ de vitesse (côté gauche) calculés pour différentes formes du coin du creuset ((a) : cas 1, (b) : cas 2 et (c) : cas 3) avant la connexion du germe ($T_{\max} = 8.3, 8.7$ et 9 cm).

En analysant les résultats obtenus pour les trois formes de creuset, nous remarquons que la forme des lignes de courant demeure qualitativement identique. Mais quantitativement parlant, les valeurs maximales de la vitesse augmentent sous l'effet de la forme du coin du creuset. Autrement dit, la valeur maximale est trouvée avec un creuset ayant un coin escamoté ($V_{\max\text{-cas1}} = 6.15 \times 10^{-2}$ m/s) puis incurvé ($V_{\max\text{-cas2}} = 6.23 \times 10^{-2}$ m/s) en comparant avec le creuset cylindrique de référence ($V_{\max\text{-cas3}} = 6.28 \times 10^{-2}$ m/s). Toutes ces vitesses maximales sont situées près de l'axe de symétrie dans les trois configurations.

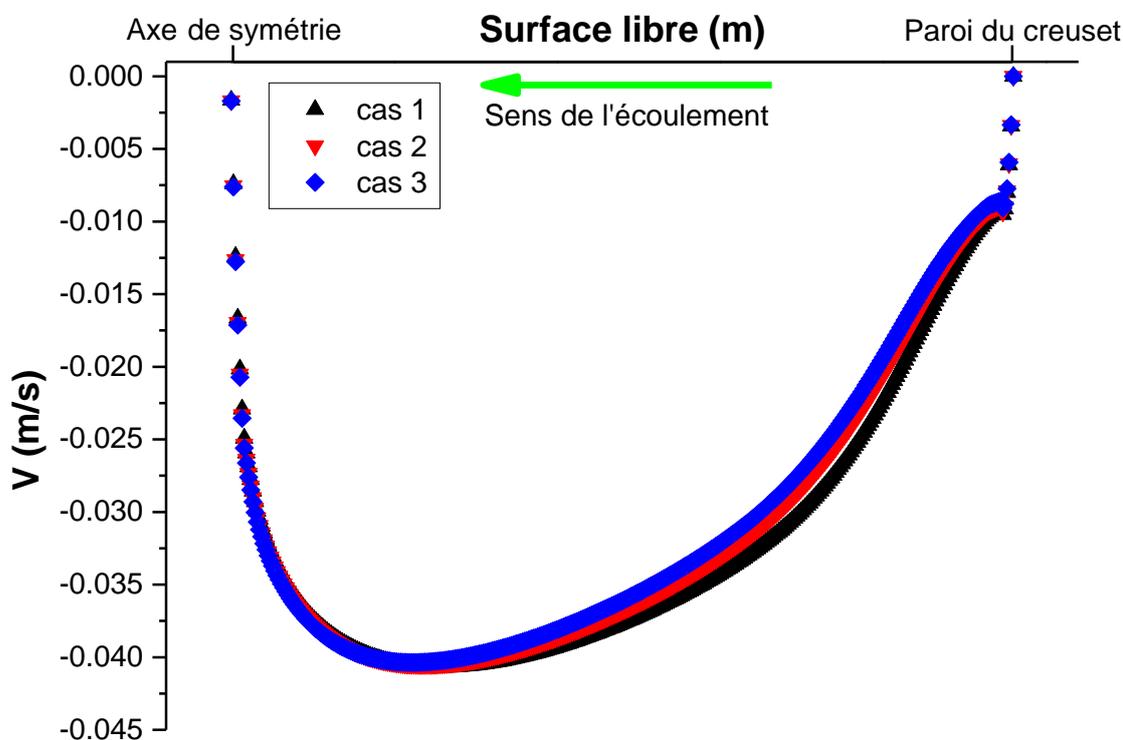


FIGURE 3.5 – Profils de la vitesse radiale le long de la surface libre avant la connexion du germe.

La Figure 3.5 montre la variation de vitesse radiale le long de la surface libre du bain fondu dans les trois cas considérés. Ce profil est tracé donc de la paroi du creuset jusqu'à l'axe de symétrie avec des valeurs négatives signifiant que l'écoulement est dans le sens opposé de l'axe des abscisses. La vitesse à la paroi du creuset est nulle à cause de la condition d'adhérence imposée sur cette dernière.

En s'éloignant de la paroi du creuset, la vitesse radiale augmente jusqu'à une valeur maximale $V_{\max\text{-cas1}}(\text{surface libre}) = 4.0683 \times 10^{-2}$ m/s, $V_{\max\text{-cas2}}(\text{surface libre}) = 4.0513 \times 10^{-2}$ m/s et $V_{\max\text{-cas3}}(\text{surface libre}) = 4.0358 \times 10^{-2}$ m/s pour les configurations 1, 2 et 3 respectivement à une distance de 3.26 cm, 2.94 cm et 2.8 cm de l'axe de symétrie. Ensuite, cette vitesse diminue en s'approchant de l'axe de symétrie où elle est très faible mais qui ne s'annule pas cette

fois-ci ($V_{\max - (\text{surface libre})} \approx 1.6 \times 10^{-3}$ m/s). Cette diminution de la vitesse est le résultat de deux facteurs. Le premier est celui de la cohésion des particules de fluide arrivant à cet endroit via deux directions opposées perdant ainsi leur quantité de mouvement. Le deuxième est dû au passage d'écoulement purement radial et qui devient axial sous l'effet de la gravité.

La Figure 3.6 montre que l'écoulement, près de l'axe de symétrie, est descendant c'est-à-dire qu'il est dirigé de la surface libre du bain vers le fond du creuset. Nous remarquons que la vitesse au voisinage des extrémités de cet axe est très faible et voire nulle au contact avec le fond du creuset pour les raisons citées auparavant. Dans le reste de cet axe et sous l'effet de la gravité, les particules fluides possèdent une vitesse importante.

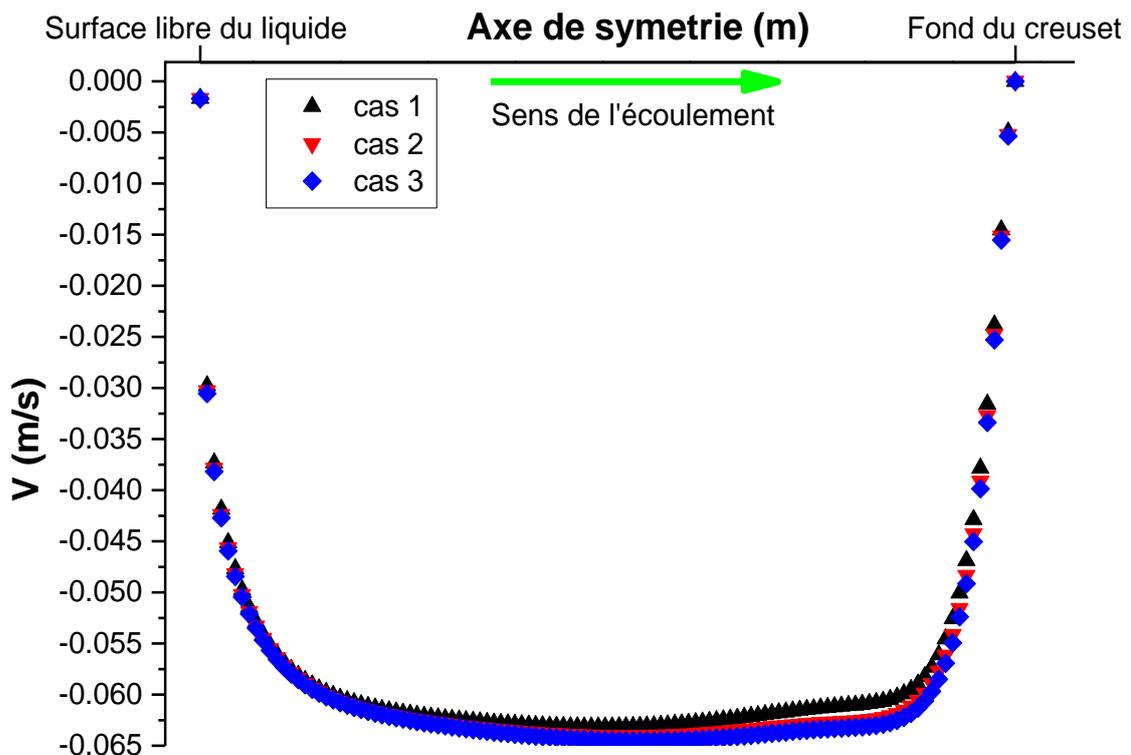


FIGURE 3.6 – Profils de vitesse axiale le long de l'axe de symétrie avant la connexion du germe.

La Figure 3.7 représente le profil de température des trois configurations le long de l'axe de symétrie ($r = 0$), où il est tracé depuis le fond du creuset jusqu'au couvercle supérieur de la chambre chaude. En analysant cette figure, nous constatons que la température maximale sur cet axe est située au niveau du fond du creuset et cela pour les trois cas étudiés. La valeur maximale de la température sur l'axe est trouvée avec la configuration ayant un coin de creuset escamoté ($T_{\max - \text{cas3}} = 2400$ K). Tandis qu'elle est diminuée dans les deux autres configurations ($T_{\max - \text{cas2}} = 2393$ K et $T_{\max - \text{cas1}} = 2380$ K). La différence de température (ΔT) dans la partie du bain sur cet axe est alors de l'ordre de $\Delta T_{\text{cas1}} \approx 57$ K, $\Delta T_{\text{cas2}} \approx 68$ K et ΔT_{cas3}

≈ 76 K pour le cas 1, 2 et 3 respectivement. Ce qui résulte d'un gradient de température un peu élevé dans le cas 3 en comparant à celui des cas 1 et 2. C'est bien ce gradient thermique qui est à l'origine d'une vitesse importante dans le cas 3 par rapport aux deux autres (voir les intensités des vitesses sur la [Figure 3.4](#)).

Cette figure montre aussi qu'au niveau de l'axe de symétrie des trois configurations, le gradient de température est élevé près de la surface libre en raison du fort échange thermique entre le bain (convection) et l'atmosphère environnante (conduction) alors qu'en s'éloignant de la surface libre, nous remarquons une légère différence au voisinage du couvercle.

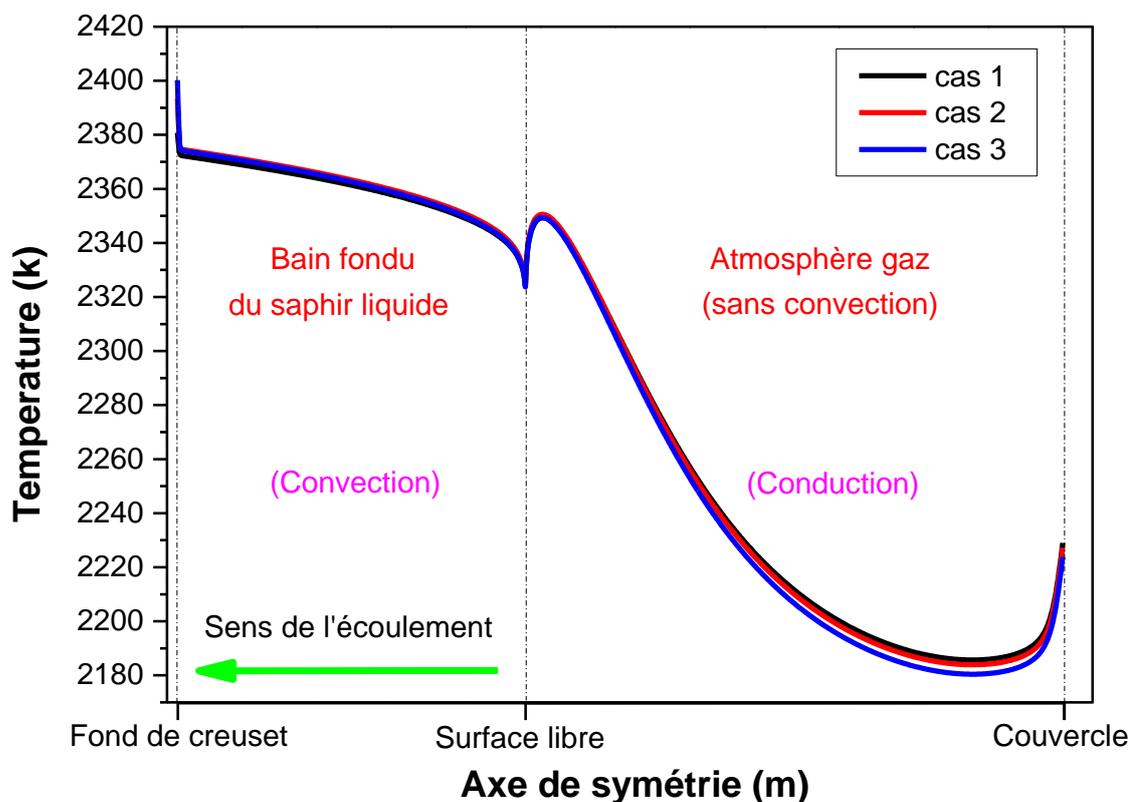


FIGURE 3.7 – Profils de température le long de l'axe de symétrie pour l'étape juste avant la connexion du germe. La variation de température est assez élevée près de la surface libre.

La convection thermocapillaire qui se manifeste à la surface libre du liquide provoque la déviation parallèle des isothermes à cette surface menant ainsi à une intensification de l'écoulement. Juste au-dessus de la surface libre, les isothermes se rapprochent de plus en plus les unes des autres puis elles s'aplanissent au niveau de la hauteur de l'élément chauffant.

La [Figure 3.8](#) donne, pour les trois géométries du creuset, la distribution de la température tout au long de la surface libre du saphir liquide. Ce profil de la température est tracé de la paroi latérale du creuset jusqu'à l'axe de symétrie. Dans cette figure, nous pouvons constater que la valeur maximale de la température sur cette distance pour les trois configurations est située toujours sur la paroi latérale chaude des trois creusets tandis que la valeur minimale

est située à l'axe de symétrie ($T_{\min} > 2323$ K) où le germe monocristallin sera placé par la suite. La valeur maximale de la différence de température sur cette interface est $\Delta T_{\text{cas1}} \cong 116$ K, $\Delta T_{\text{cas2}} \cong 114$ K, $\Delta T_{\text{cas3}} \cong 112$ K ainsi le gradient de température radial sur cette interface est de l'ordre de $\nabla T_{\text{cas1}} \sim 0.96$ K/mm, $\nabla T_{\text{cas2}} \sim 0.95$ K/mm et $\nabla T_{\text{cas3}} \sim 0.93$ K/mm.

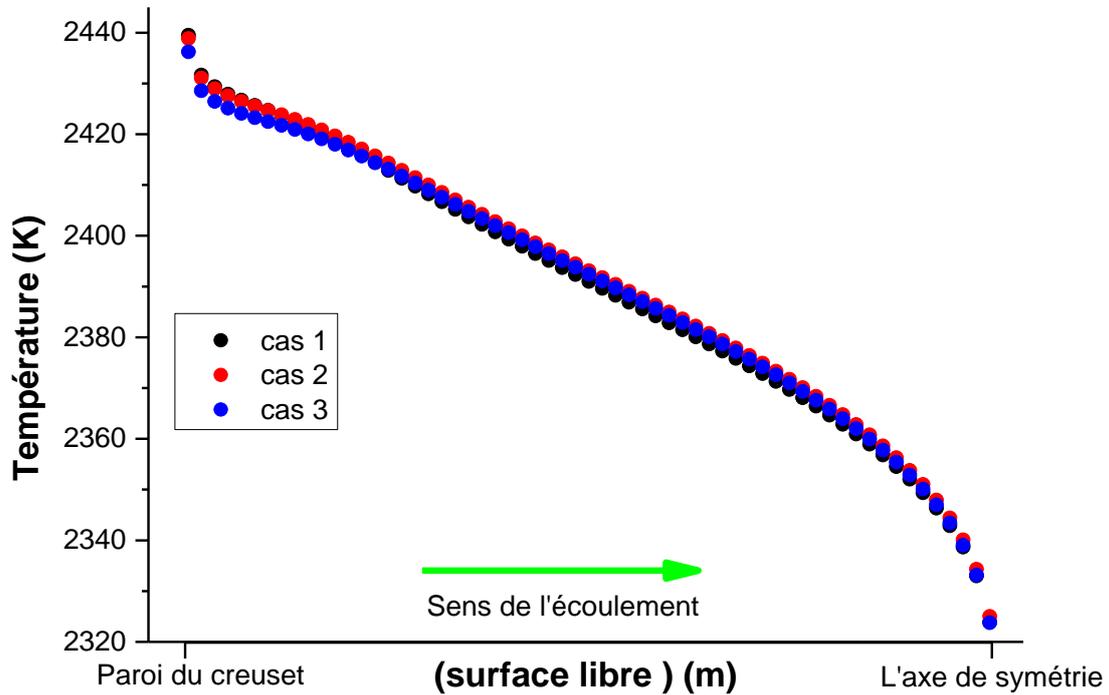


FIGURE 3.8 – Profils de température le long de la surface libre mesurée à l'étape juste avant la connexion du germe.

3.3 Étape de connexion du germe à la surface libre : Seeding growth

Après avoir présenté les résultats de la modélisation de la thermique et de l'écoulement dans un stade précédant la connexion du germe monocristallin avec la surface libre du bain fondu, cette partie présentera la modélisation du processus de la croissance cristalline du saphir par la méthode Kyropoulos, mais cette fois-ci, à une étape dite début de germination c'est à dire juste après la connexion du germe avec la surface libre. Dans cette étape de croissance, les mécanismes de transferts de chaleur et l'écoulement dans le bain fondu seront également étudiés en prenant toujours l'effet géométrique de coin du creuset.

Nous considérons un germe cristallin cylindrique de 6 mm de diamètre et de 8 cm de longueur qui est attaché à un porte germe en Molybdène et qui est lui-même fixé à une tige d'alumine reliée à un système de contrôle au-dessus de l'enceinte du four de croissance. Les géométries étudiées dans les trois cas (coin du creuset : plat, incurvé et escamoté) sont données en Figure 3.9.

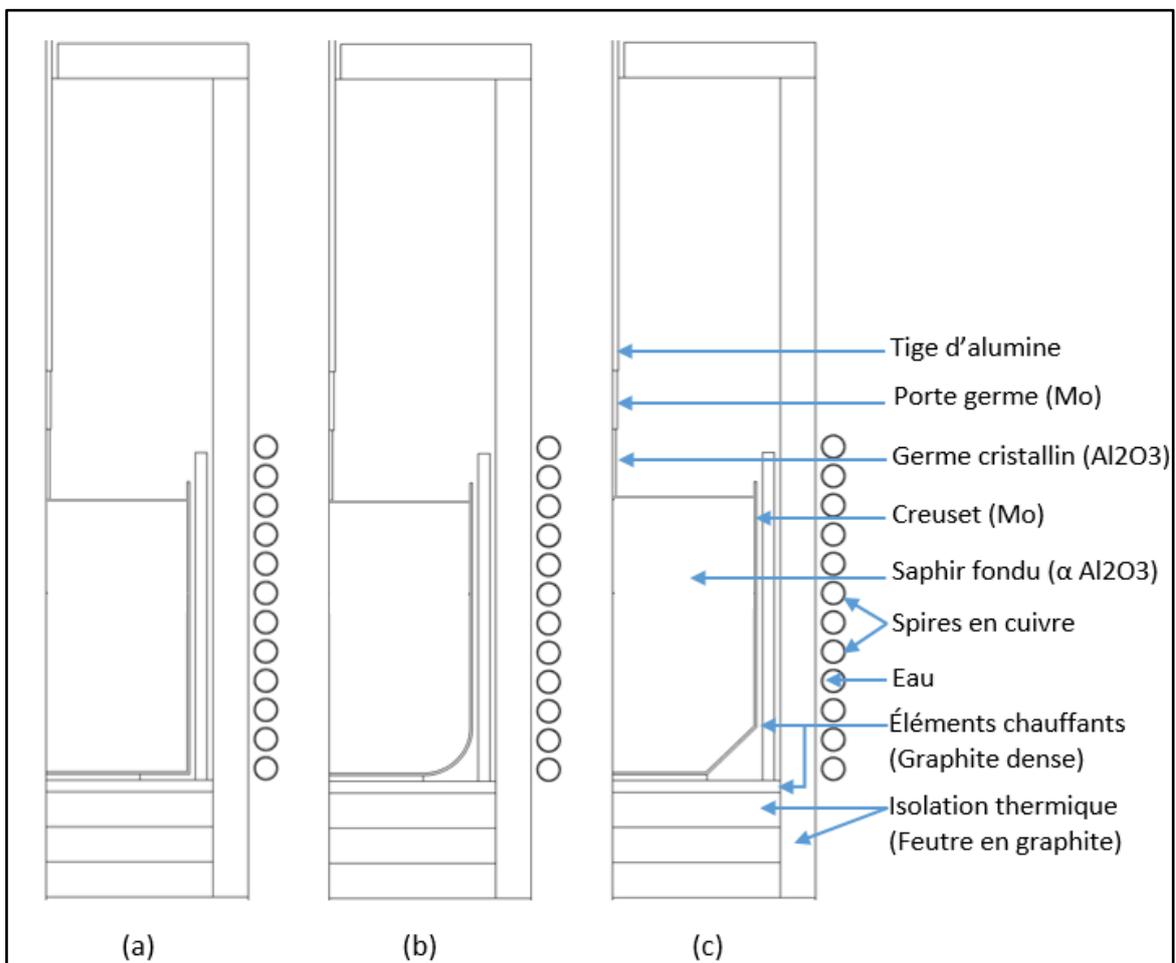


FIGURE 3.9 – Schéma du four inductif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance dit seeding growth (juste après la connexion du germe). Trois formes de creuset sont étudiées dans nos simulations : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.

3.3.1 Propriétés thermophysiques rajoutées & Isotherme de fusion après connexion

En plus des valeurs des propriétés thermophysiques données au [Tableau 3.1](#) (Partie 1), nous rajoutons les propriétés de nouveaux éléments au [Tableau 3.2](#) : le germe cristallin, porte germe et la tige d'alumine.

TABLEAU 3.2 – Propriétés thermophysiques du germe (cristal), porte germe et la tige d'alumine utilisées dans nos calculs numériques [30, 35, 36].

Description (unité) et symbole	Valeur
Densité (kg/m ³) ρ	
• Germe/Cristal	3960
• Porte germe	3000
• Tige d'alumine	3900
Conductivité thermique (W/m.K) k	
• Germe/Cristal	3.5
• Porte germe	87
• Tige d'alumine	9.1
Capacité calorifique (J/kg.K) C_p	
• Germe/Cristal	765
• Porte germe	9770
• Tige d'alumine	900
Emissivité (-) ε	
• Germe/Cristal	0.4
• Porte germe	0.28
• Tige d'alumine	0.4
Coefficient d'absorption du cristal (m ⁻¹) κ	28
Indice de réfraction du cristal (-) n	1.78
Coefficient de diffusion du cristal (m ⁻¹) σ_e	0

Comme il a été déjà mentionné, le début de processus de croissance d'un monocristal du saphir à partir de l'état liquide par la technique KY ne peut se produire qu'après avoir atteint la puissance nécessaire du générateur qui permet la fusion totale de toute la matière première solide existante dans le creuset. Une fois l'équilibre thermique atteint, un germe monocristallin peut alors être approché et connecté au bain saphir liquide où une interface cristal-liquide stable est établie. Puis, le processus de croissance se fera en diminuant lentement et progressivement la puissance de générateur à haute fréquence. Aussi et afin d'éviter les excès de chauffe menant à la fusion du germe et à la génération des dislocations dans cette étape, nous varions numériquement la puissance de chauffe progressivement de telle façon à avoir la coïncidence de l'isotherme de fusion (T_f) avec le point triple du système (germe-liquide-atmosphère) et cela devrait être trouvé pour toutes les configurations comme indiqué sur la [Figure 3.10](#).

Au cours du processus de cristallisation, l'interface germe-liquide (base du germe) peut être modifiée selon les flux de chaleur provenant du germe cristallin et du bain fondu.

Autrement dit, notre approche numérique s'appuie sur la variation de la puissance du chauffage afin de trouver l'isotherme de fusion (T_f) passant par le point triple du système (germe-gaz-liquide). L'interface germe-liquide est obtenue ainsi par sa modification itérative jusqu'à ce qu'elle s'approche de l'isotherme de fusion en utilisant la méthode dite frontière mobile (moving boundary method). La température ambiante à l'extérieur du four de croissance est de 273.15 K (25 C°) et la fréquence du courant électrique d'entrée est de 10 kHz.

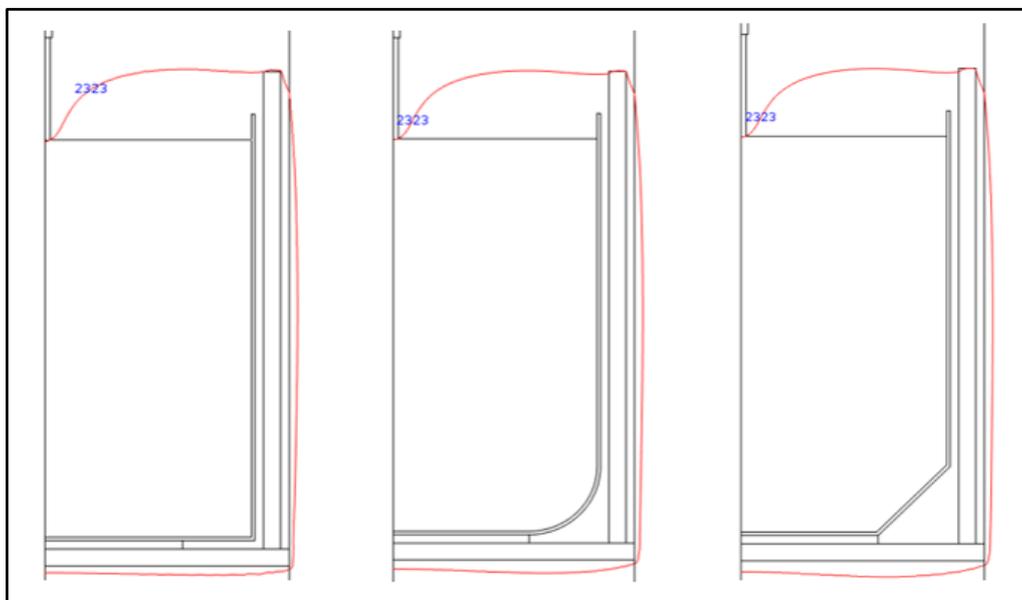


FIGURE 3.10 – Contour de l'isotherme de fusion ($T_f = 2323$ K) pour différentes formes de coin de creuset ((1) : cas 1, (2) : cas 2 et (3) : cas 3) juste après la connexion du germe (T_f passe sur le point triple germe-saphir liquide-atmosphère pour toutes les configurations).

Dans cette partie, la forme de l'interface gaz-bain fondu est considérée comme plane dans l'étape avant connexion du germe. Il convient de mentionner ici que le couplage inductif avec le germe qui est un oxyde solide semi-transparent est également insignifiant pour la fréquence considérée (10 kHz). Par conséquent, la génération de la chaleur par induction électromagnétique dans ce domaine solide (germe) peut être négligée. En raison de la présence du système qui tient le germe cristallin à l'intérieur de la chambre chaude de croissance, la puissance fournie au four (P) diminue pour toutes les configurations en comparant avec l'étape précédente. C'est ce qui se fait aussi dans les fours expérimentaux. Elle est de l'ordre de 44,416 kW, 43,878 kW et 43,530 kW pour la configuration ayant un creuset à base plane, coin incurvé et coin escamoté, respectivement. Pour des raisons qui ont été mentionnées auparavant, la puissance fournie est constamment élevée dans la configuration de référence (cas 1) par rapport au deux autres cas.

3.3.2 Champs de température et de vitesse

Le champ de température à l'intérieur de la chambre chaude du four pour les trois configurations est illustré en Figure 3.11 correspondant au début de croissance du saphir où le germe est mis en contact avec la surface libre du saphir liquide.

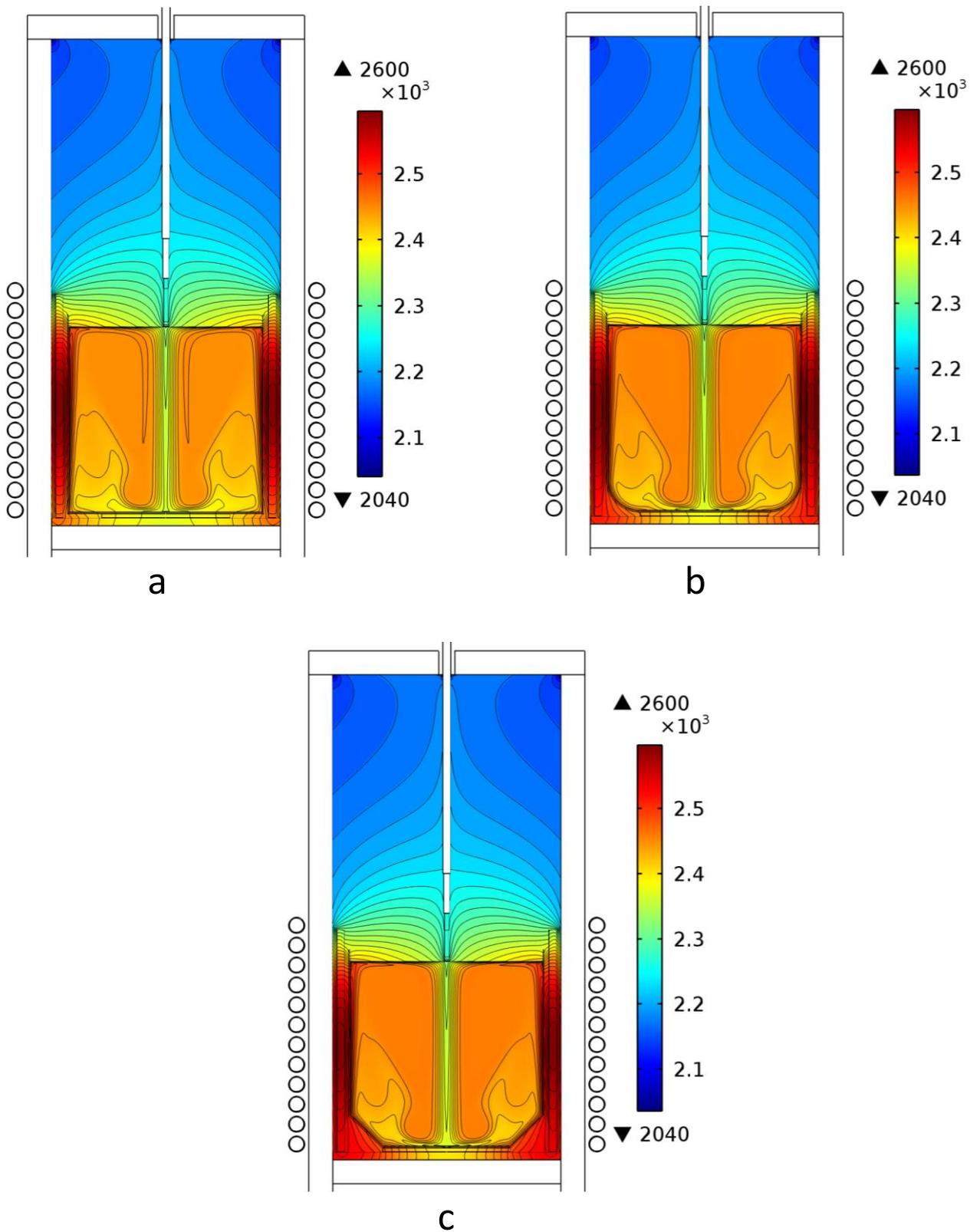


FIGURE 3.11 – Champ thermique dans la chambre chaude de la croissance pour les configurations ayant un creuset avec (a) un fond plat, (b) un coin du fond incurvé et (c) un coin du fond escamoté après la connexion du germe avec la surface libre du saphir liquide.

Il est à noter que la présence du système qui tient le germe monocristallin dans la chambre chaude (c'est-à-dire la tige d'alumine et le porte germe) a considérablement influencé le champ de température, notamment dans sa partie supérieure (atmosphère de croissance). De ce fait, la forme des isothermes n'est plus parabolique en comparant avec l'étape avant connexion du germe. Elles sont plutôt déviées vers le bas en s'approchant de plus en plus du germe et du porte germe ainsi qu'au-dessus de la surface libre du saphir liquide.

Elles divergent également vers le haut dans le reste de l'atmosphère de la chambre chaude ainsi qu'au voisinage de la tige d'alumine à l'exception du coin de l'isolation où nous observons également une faible région de stratification de la température telle qu'elles sont trouvées dans l'étape précédente. En effet, ce changement de forme des isothermes est dû à la différence entre les conductivités thermiques du système tenant le germe et celle de l'atmosphère ($k_{\text{système qui tient le germe}} / k_{\text{atmosphère}} \approx 10^3$) qui engendre à son tour un flux thermique assez puissant et modifie ainsi le champ de température dans la partie atmosphère.

La [Figure 3.12](#) montre à la fois le champ d'écoulement dans le bain fondu (à gauche) et le champ thermique dans le bain, germe, creuset et éléments chauffants (à droite) pour les différentes formes de creuset lorsque le germe est connecté à la surface libre. Pour les trois formes de creusets, le mouvement du bain est amorcé le long de la paroi latérale chaude des creusets puis tourne à la surface libre du saphir liquide et poursuit son mouvement jusqu'à la ligne centrale puis descend le long de l'axe de symétrie comme le montre la [Figure 3.12](#).

Il semblerait que les lignes de courants obtenues, représentées sur la [Figure 3.12](#) sont identiques à celles de la partie précédente (voir la [Figure 3.3](#)), avec seulement une différence relativement faible des valeurs maximales de la vitesse causée principalement par la diminution du chauffe à cette étape de la croissance. La différence de la puissance (ΔP) du chauffage fournie lors des deux étapes n'est pas très importante ($\Delta P_{\text{cas1}} \sim 0.6\%$, $\Delta P_{\text{cas2}} \sim 0.7\%$, $\Delta P_{\text{cas3}} \sim 0.6\%$). Le [Tableau 3.3](#) donne une comparaison quantitative entre les résultats trouvés dans les deux parties.

TABLEAU 3.3 – Comparaison des valeurs maximales de la vitesse d'écoulement de fluide (V_{max}) par rapport à celles de la partie précédente (avant la connexion du germe).

cas	$V_{\text{max (bain)}} \text{ (m/s)} \times 10^{-2}$		
	Après la connexion du germe	Avant la connexion du germe	Écart relatif (%)
cas 1	6.12	6.15	0.48
cas 2	6.20	6.23	0.48
cas 3	6.25	6.28	0.47

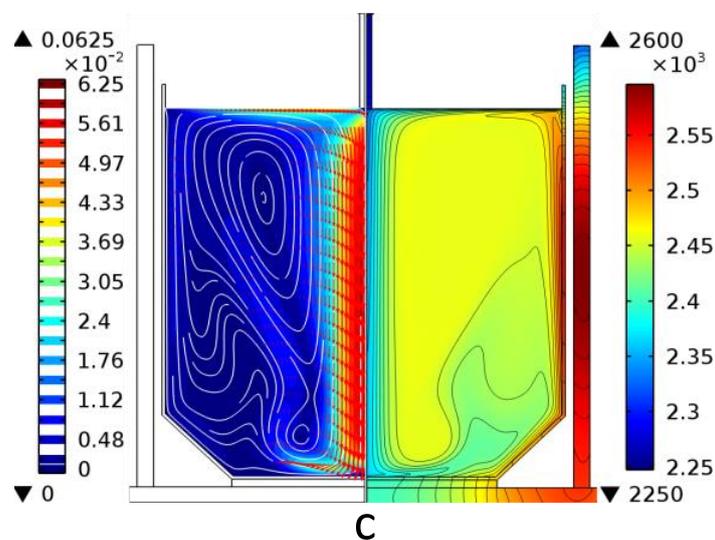
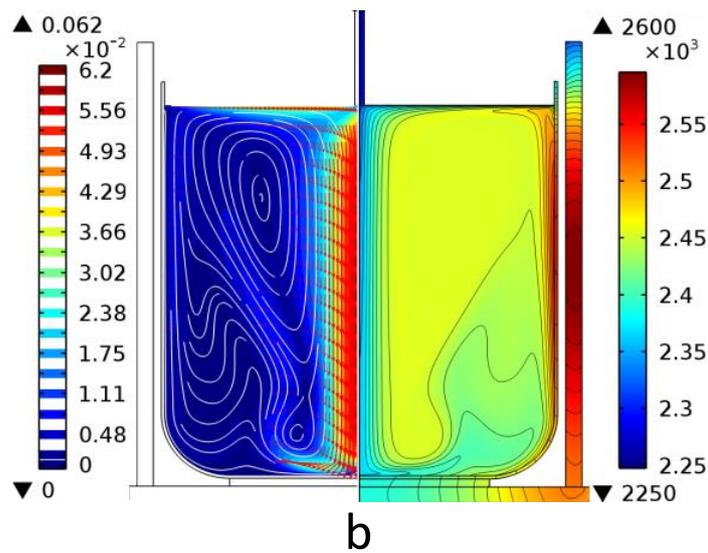
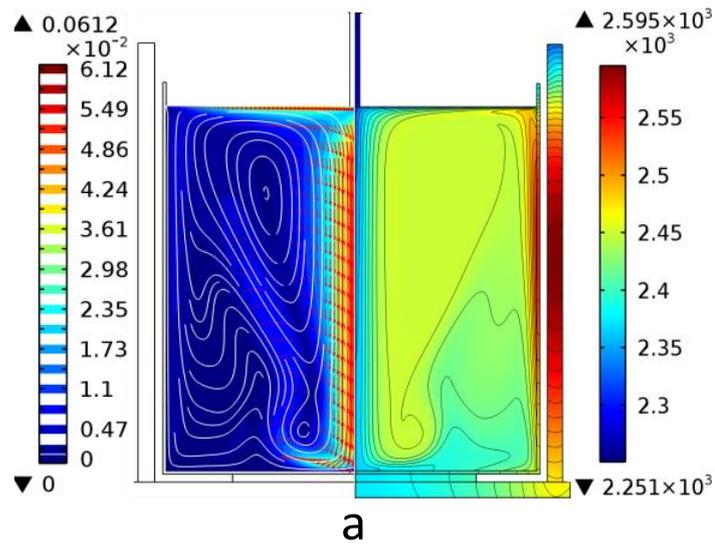


FIGURE 3.12 – Champ de vitesse (côté gauche) et champ de température (côté droit) calculés pour différentes formes de coins de creusets ((a) : cas 1, (b) : cas 2 et (c) : cas 3) juste après la connexion du germe.

Le profil de vitesse le long de la surface libre est représenté sur la [Figure 3.13](#). Il est tracé cette fois-ci de la paroi du creuset à la paroi du germe (3 mm de l'axe de symétrie). En suivant le sens d'écoulement désigné sur la [Figure 3.13](#) par une flèche verte, nous constatons que la vitesse augmente le long de cette surface libre jusqu'à ce que la valeur maximale, soit atteinte à la position 2.9 cm, 2.65 cm et 2.5 de la paroi du germe pour les configurations 1, 2 et 3, respectivement. Nous notons que le long de cette première distance de la surface libre des trois formes de creuset, la vitesse du saphir liquide dans le cas 1 est légèrement supérieure par rapport aux cas 2 et 3.

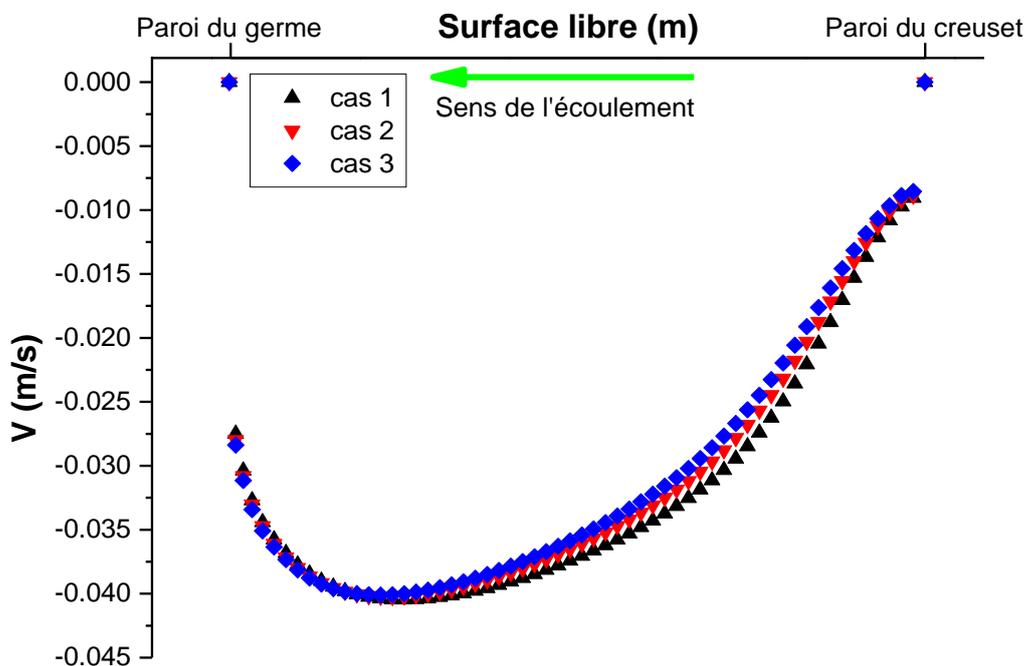


FIGURE 3.13 – Profils de vitesse le long de la surface libre du bain fondu (étape de Seeding).

Au-delà de ces distances, la vitesse diminue en s'approchant de la paroi du germe d'une façon quasiment équivalente jusqu'à ce qu'elle s'annule au point triple ($V = 0$ m/s). Le [Tableau 3.4](#) donne une comparaison quantitative entre les résultats trouvés dans cette partie et ceux de la partie où le germe n'est pas encore en contact avec la surface libre du liquide.

TABLEAU 3.4 – Comparaison des valeurs maximales de la vitesse d'écoulement de fluide (V_{\max}) tout au long de la surface libre par rapport à celles de la partie précédente (avant la connexion du germe).

cas	V_{\max} (surface libre) (m/s) $\times 10^{-2}$		
	Après la connexion du germe	Avant la connexion du germe	Écart relatif (%)
cas 1	4.0452	4.0683	0.56
cas 2	4.0246	4.0513	0.65
cas 3	4.0104	4.0358	0.62

Ces résultats montrent que la vitesse maximale sur la surface libre est, également, légèrement affectée par la présence du germe. Cela est montré également par l'écart relatif de la vitesse maximale du fluide l'étape après et avant connexion du germe dans les trois cas étudiés et est trouvé insignifiant et n'excédant pas 1%.

La vitesse du fluide le long de l'axe de symétrie pour les différentes formes de creuset est représentée sur la [Figure 3.14](#). Nous remarquons que la vitesse est nulle à l'interface germe-liquide ainsi qu'au fond du creuset vu la condition d'adhérence imposée par les conditions aux limites. Cependant, elle est importante dans la majeure partie de cet axe. Cette Figure révèle que la vitesse axiale des particules fluides augmente d'une façon très rapide sous l'effet de la gravité en quittant l'interface germe-liquide. La valeur maximale est atteinte à une distance de 10.3 cm du fond du creuset et ce pour les trois creusets où elle est relativement importante dans le cas 3 par rapport aux deux autres. Elle diminue ensuite progressivement puis très vite au voisinage du fond des creusets.

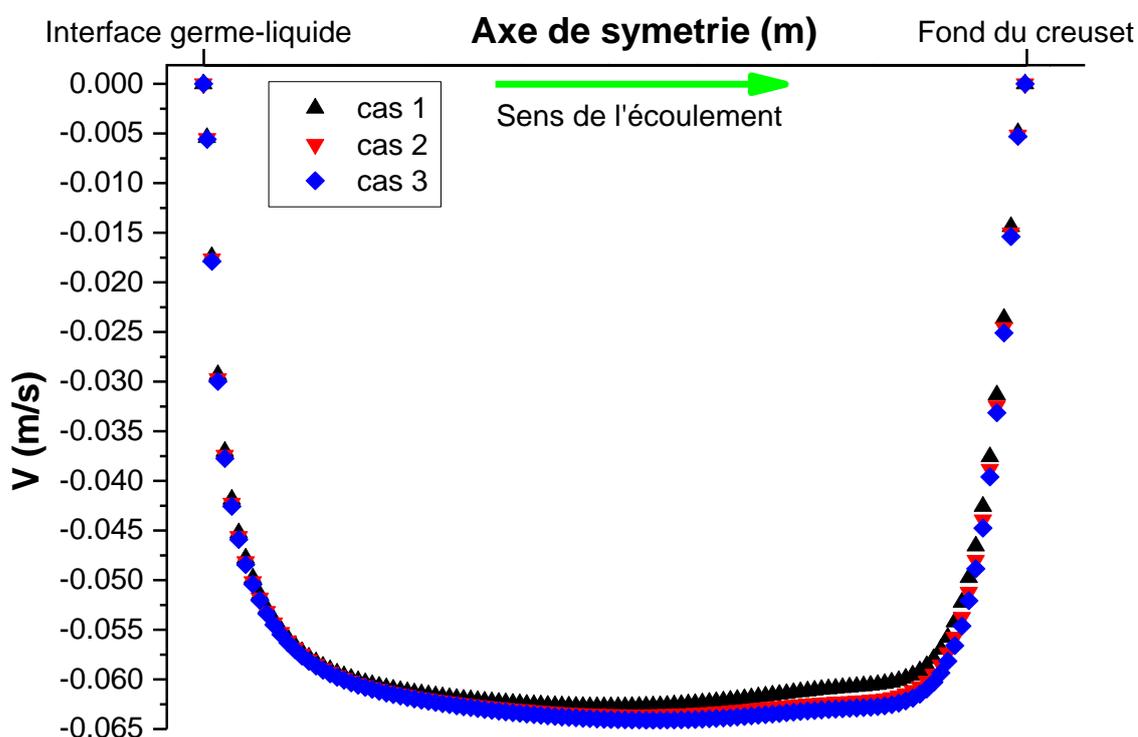


FIGURE 3.14 – Profils de vitesse le long de l'axe de symétrie du bain (étape de Seeding).

La [Figure 3.15](#) représente la distribution de la température le long de la surface libre du saphir liquide pour différentes géométries du creuset. Il est clair que, quel que soit le creuset, la température maximale (T_{\max}) est située sur la paroi latérale des creusets et diminue jusqu'à ce que la température minimale ($T_{\min} = T_f = 2323$ K) à la paroi du germe, point triple, soit atteinte.

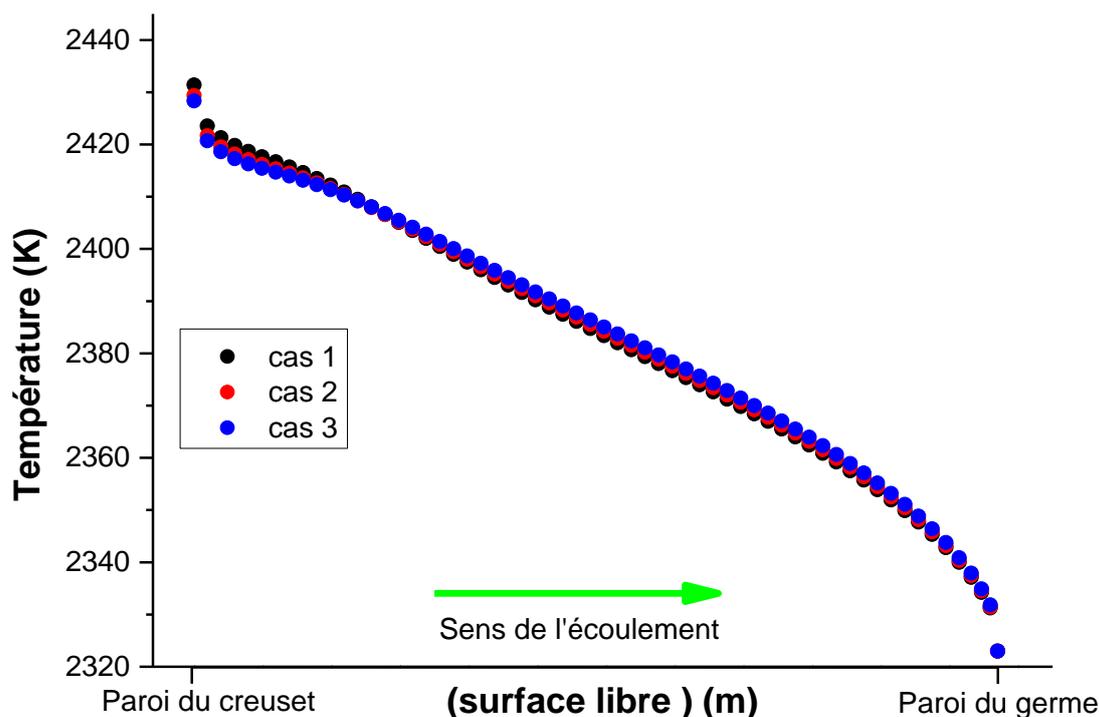


FIGURE 3.15 – Variations de la température le long de la surface libre du bain (étape de Seeding).

La différence de température entre la paroi chaude du creuset et le germe (point triple) donne un gradient thermique radial. Le [Tableau 3.5](#) donne la température maximale, différence maximale de la température, le gradient de température sur cette interface ainsi que l'écart relatif de chaque paramètre par rapport à ceux de la partie I (étape avant connexion).

TABLEAU 3.5 – Comparaison des valeurs maximales de la température, différence de température, le gradient de température le long de la surface libre ainsi que l'écart relatif entre les deux étapes avant et après connexion.

cas	Surface libre								
	Après la connexion du germe			Avant la connexion du germe			Écart relatif		
	T_{\max} (K)	ΔT_{\max} (K)	δT (K/mm)	T_{\max} (K)	ΔT_{\max} (K)	δT (K/mm)	T_{\max} (%)	ΔT_{\max} (%)	δT (%)
cas 1	2431.4	108.4	0.926	2439.5	115.6	0.963	0.33	6.22	3.84
cas 2	2429.4	106.4	0.909	2437.8	113.5	0.945	0.34	6.25	3.81
cas 3	2428.3	105.3	0.900	2436.2	112.4	0.936	0.32	6.31	3.84

La comparaison quantitative des deux étapes montre que l'écart relatif de la température maximale de la surface libre n'excède pas 0.35% et reste insignifiant quel que soit le type de creuset. Cependant, celui de la différence de la température est trouvé affecté surtout en ce qui concerne le cas 3 (6.31%).

En traçant la température au niveau de l'axe central, nous obtenons la courbe de la [Figure 3.16](#) (le profil est tracé depuis le fond du creuset jusqu'au couvercle supérieur de la chambre chaude). Tout au long de cet axe central, une légère différence a été enregistrée entre les trois cas étudiés. Au fond des creusets, la température est élevée dans le cas 3 par rapport aux deux autres (cas 2 et 1). Quant à la partie atmosphère, la température cette fois-ci est un peu supérieure dans le cas 1 en comparant avec les cas 2 et 3. En analysant [Figure 3.16](#), nous pouvons remarquer clairement que la présence du système qui tient le germe monocristallin dans la chambre chaude de la croissance affecte considérablement la distribution de température au-dessus de la surface libre jusqu'au couvercle de la chambre.

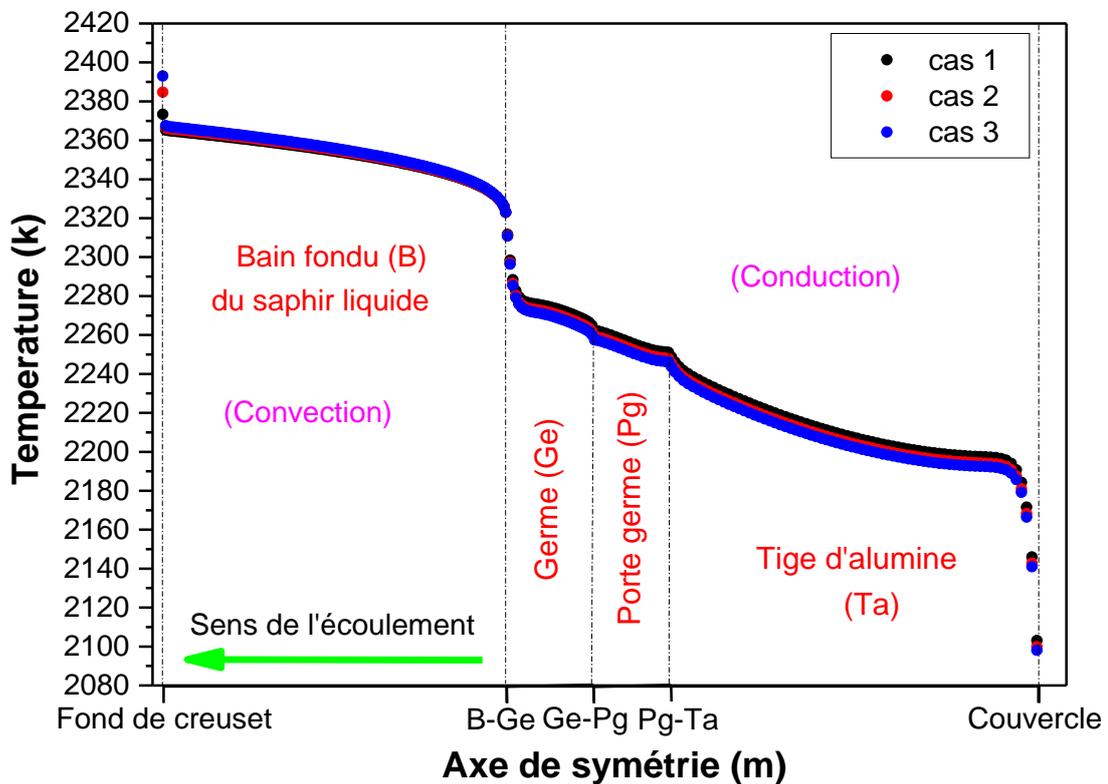


FIGURE 3.16 – Profils de température le long de l'axe de symétrie mesurés en étape juste après la connexion du germe avec la surface libre. B-Ge, Ge-Pg et Pg-Ta indiquent, respectivement, les interfaces bain fondu-germe, germe-porte germe et porte germe-tige d'alumine.

Cette distribution de la température est différente de celle observée dans le cas d'absence du germe (voir la [Figure 3.7](#)). En réalité, la cause principale de cette différence revient à la conductivité thermique élevée des matériaux solides (germe, porte germe et la tige) par rapport à celle du gaz d'argon.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons conclu que la présence du germe monocristallin juste au-dessus de la surface libre du saphir liquide influe considérablement sur la thermique dans la chambre chaude de croissance et en particulier dans l'atmosphère de croissance. Cette thermique devrait être contrôlée soigneusement vu son influence sur la qualité finale du monocristal. En effet, une mauvaise maîtrise de variation de la température peut mener à la fusion du germe ou à la génération de contraintes résiduelles importantes causées par la présence des forts gradients de température à ce stade de croissance. Concernant le champ de vitesse, un effet négligeable a été trouvé pour toutes les configurations envisagées.

Après avoir présenté ces résultats numériques de la modélisation de la thermique et de l'écoulement dans un stade après la connexion du germe monocristallin avec la surface libre du saphir liquide, la partie suivante présente la modélisation des effets du chauffage résistif supplémentaire ainsi que la rotation du cristal liés au changement de phase pour les trois configurations à un stade intermédiaire de croissance.

-CHAPITRE 4-

**RÉSULTATS & DISCUSSIONS (ÉTAPE
INTERMÉDIARE DE CROISSANCE)**

4.1 Introduction

Une fois l'équilibre thermique atteint le bain fondu et le germe monocristallin mis en contact avec la surface libre, où une interface germe-liquide stable est établie, nous procédons à la diminution de la puissance qui permet la formation du cristal qui s'enfonçant graduellement dans le liquide. Pour cela, nous avons réalisé une modélisation bidimensionnelle axisymétrique en état quasi-stationnaire par la méthode Kyropoulos à chauffage inductif pour une étape intermédiaire de la croissance cristalline du saphir. L'objectif de ces calculs est d'étudier les effets de la géométrie du creuset, l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire (C.R) au-dessous de la base du creuset et la rotation du cristal sur la distribution de la température dans le système KY, la structure et la vitesse d'écoulement dans le bain fondu ainsi que la morphologie de l'interface cristal-liquide.

4.2 Description des configurations géométriques étudiées

Le schéma de principe du système de four à cette étape de croissance est présenté à la Figure 4.1 avec les trois formes de la base du creuset envisagées et le rajout d'un C.R.

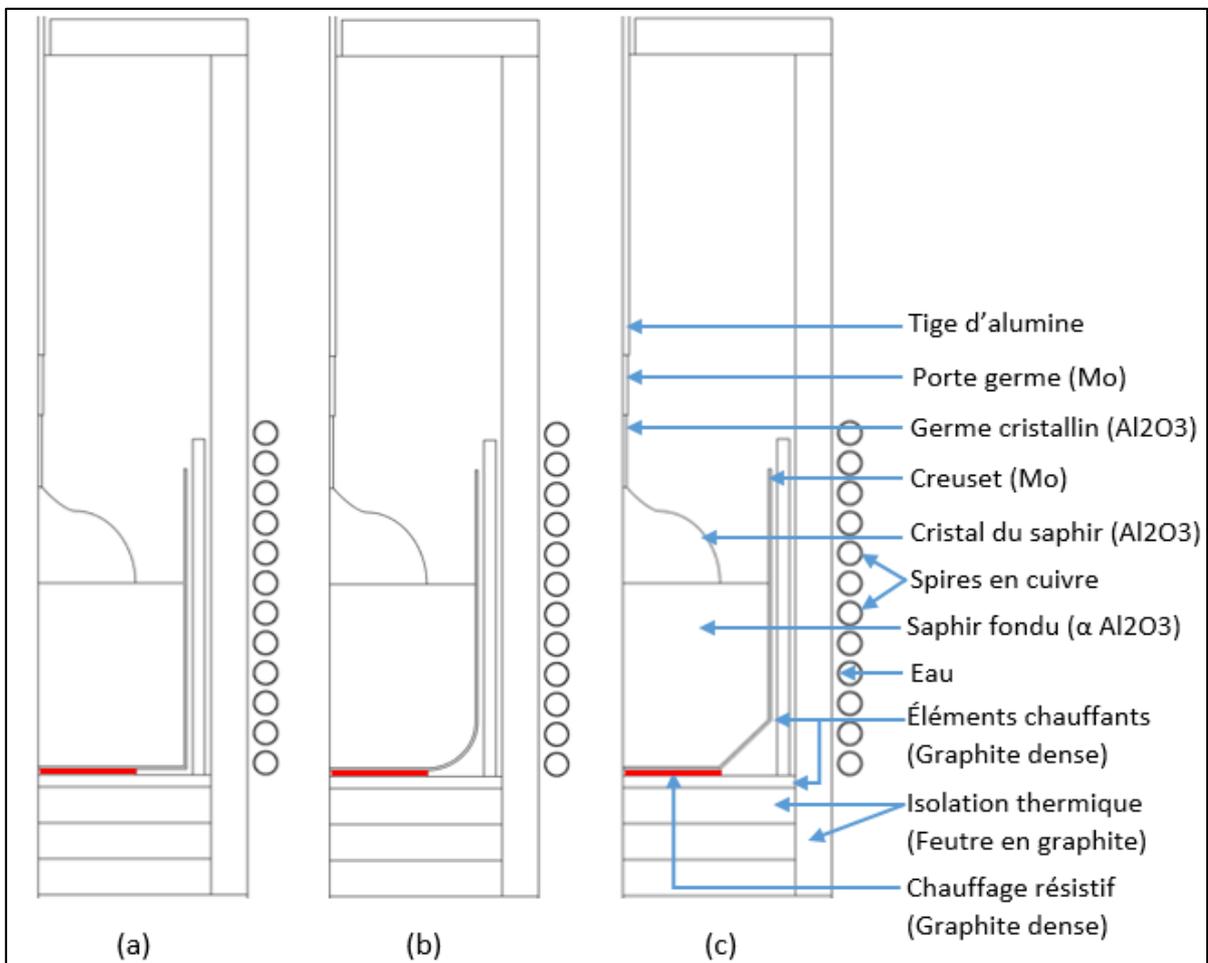


FIGURE 4.1 – Schéma du four inductif/résistif de la méthode Kyropoulos à un stade de croissance intermédiaire. Trois formes du creuset sont utilisées dans nos simulations : (a) creuset cylindrique (b) coin incurvé à la base et (c) coin escamoté à la base.

En plus du chauffage inductif qui sert à la fusion de l'alumine, le creuset est cette fois-ci placé sur un disque en graphite dense, électriquement conducteur, de 160 mm de diamètre et de 5 mm d'épaisseur. Ce disque est soumis à une tension contrôlée (de l'extérieure du four) de manière externe pour fournir un chauffage résistif supplémentaire au fond du creuset.

Afin de simplifier notre procédure numérique, la forme de l'interface gaz-bain fondu (surface libre) est considérée comme étant plane telle que les étapes de croissance précédentes (avant et après connexion du germe). Il convient de mentionner que la génération de la chaleur dans le cristal est négligée car le couplage électromagnétique avec cet élément qui est un solide également semi-transparent est insignifiant pour la fréquence considérée (10 kHz). Il a été déjà mentionné que la puissance d'entrée du générateur est réduite à mesure que le cristal se développe.

Dans cette étape de croissance, la puissance de la chauffe par induction magnétique trouvée est de l'ordre de 42,5 kW. Elle est diminuée d'environ 5% par rapport à l'étape avant/après la connexion du germe. Comme expliqué auparavant, cette puissance doit satisfaire la condition suivante: l'isotherme de fusion du saphir (T_f) doit passer par le point triple (gaz-cristal-liquide) pour toutes les configurations étudiées. Afin d'étudier l'effet de l'ajout du chauffage résistif, proposé dans le cadre de ce travail, la puissance fournie par le chauffage inductif est gardée constante pour tous nos calculs.

4.3 Effet du chauffage résistif sur les champs de température et de vitesse

La Figure 4.2 présente les champs thermique et d'écoulement obtenus numériquement pour les différentes configurations envisagées. Le modèle étant en axisymétrique, pour chacun des trois cas, nous présentons la distribution de la température et la norme de la vitesse sans (à gauche) et avec (à droite) chauffage résistif ainsi que la forme de l'interface cristal-liquide. Étant donné que le chauffage inductif génère de la chaleur principalement au niveau de la partie centrale du graphite dense vertical (la température maximale dans le four se trouve sur ce suscepteur), la paroi latérale du creuset exposée à cet élément chauffant est chauffée dans ce cas-là par un rayonnement surfacique (surface to surface). La chaleur est transférée ensuite du bain au front de cristallisation par conduction et convection, puis transférée de l'interface au cristal par conduction et rayonnement interne.

En comparant les trois configurations à cette phase intermédiaire de croissance, nous constatons que lorsque le chauffage par induction est le seul type de chauffage utilisé dans le four de croissance, les isothermes dans le bain apparaissent plus dispersées (séparées) pour le cas 1 et plus proches les unes des autres pour les cas 2 et 3 près de l'interface de croissance et de l'axe de symétrie. Nous pouvons également constater que ces isothermes sont fortement déformées au voisinage des parois du creuset dans tous les cas en raison du chauffage inductif générant des gradients thermiques principalement dans la direction radiale.

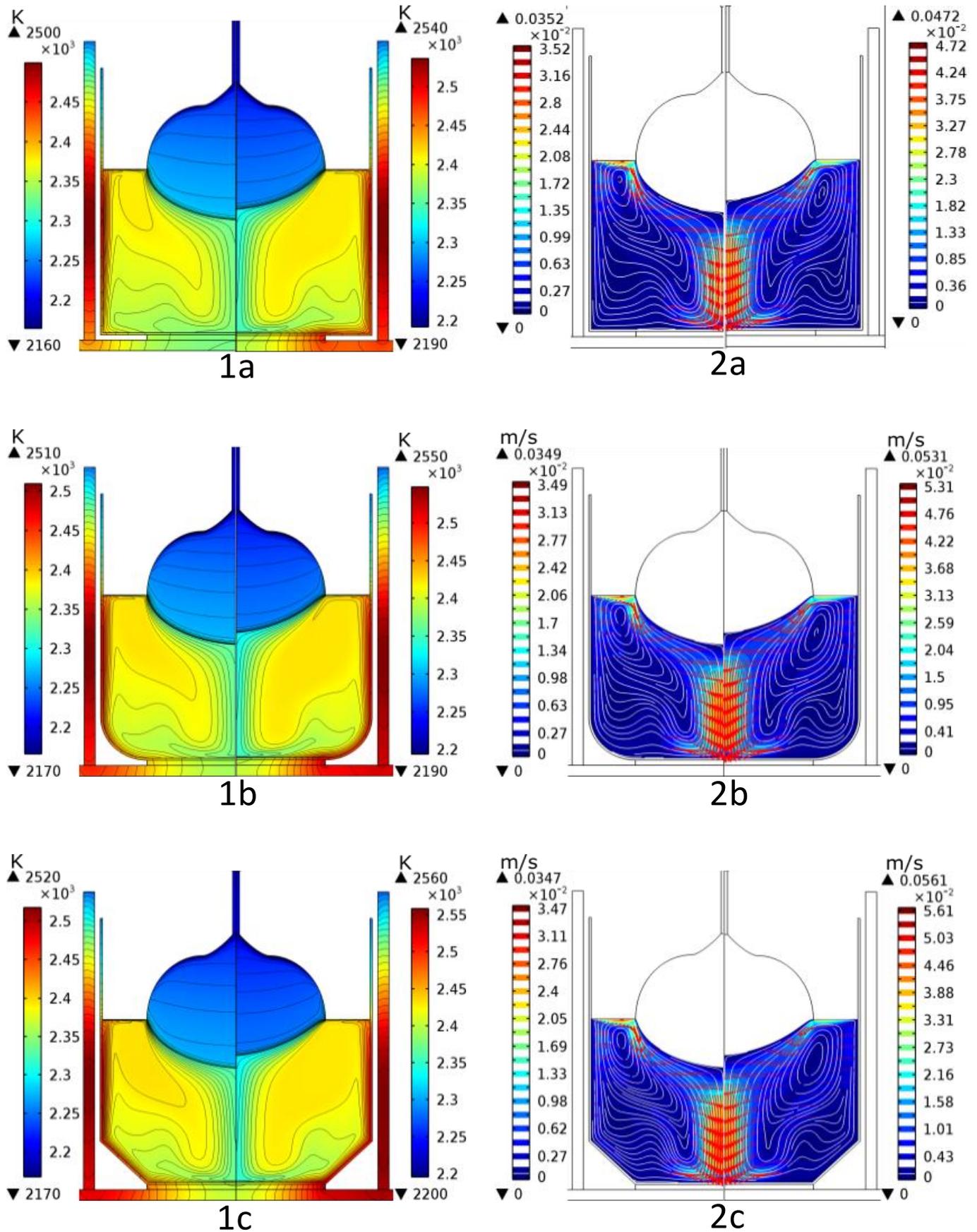


FIGURE 4.2 – Champs thermiques (1) et d'écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droit) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 sans rotation du cristal ($\omega_c = 0$ tr/min) à un stade de croissance intermédiaire.

Nous constatons également que lorsque l'élément du chauffage résistif est rajouté sous la base du creuset, la température est considérablement affectée dans le bain fondu en particulier, et est influencée également dans toutes les parties environnantes de la pièce, à savoir la partie inférieure et latérale du creuset, le sucepteur horizontal et vertical, le cristal et le germe. Du fait de l'élévation de la température au niveau de la paroi inférieure et latérale du creuset avec l'ajout du chauffage résistif, le transfert de chaleur par convection au sein du bain fondu est affecté également par rapport au cas sans chauffage résistif.

En effet, ce chauffage additionnel influence non seulement le champ de température et le champ de l'écoulement dans le bain, mais il affecte aussi la morphologie de l'interface cristal-liquide. En analysant les résultats sans chauffage résistif, nous constatons que l'effet géométrique du creuset a un faible impact sur la convexité de l'interface. En revanche, avec la présence du chauffage résistif, nous pouvons observer que la convexité de l'interface a diminué dans tous les cas étudiés notamment avec les formes de coin de creuset proposées (incurvée et escamotée) en comparaison avec le creuset cylindrique de référence. Ces résultats montrent aussi qu'en raison du transfert de chaleur par rayonnement interne dans le cristal, les isothermes sont convexes vers le bain dans la partie inférieure et concave dans la partie supérieure dans tous les cas. La forme des isothermes dans le bain est fortement influencée par la structure et la dynamique de l'écoulement. Cela peut s'expliquer par le fait que la convection dans le bain fondu affecte fortement le champ de température et vice versa, comme indiqué dans les premiers stades de la croissance.

Il a été constaté que le chauffage inductif génère des gradients thermiques principalement dans la direction radiale, cependant, le gradient de température axial généré par le chauffage résistif aide à faire fondre l'interface de croissance dans tous les cas, en particulier dans le cas 3. Par conséquent, une faible convexité est obtenue dans le cas 3 par rapport aux cas 1 et 2. Les valeurs maximales de la température dans le bain et de la différence de température dans chaque cas sont indiquées dans le [Tableau 4.1](#). Pour toutes les configurations, la température maximale est située sur la paroi latérale du creuset, sous la surface libre. Sa valeur et sa position sont différentes pour les trois cas. Le chauffage résistif a conduit à l'augmentation de la température maximale (T_{max}) de 40 K et à son déplacement vers le bas.

TABLEAU 4.1 – Valeurs de la température maximale, la différence de température maximale dans le bain, pour différentes formes de coin de creuset (cas 1, cas 2 et cas 3), sans et avec chauffage résistif.

Température (K)	cas 1	cas 2	cas 3
	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R
T_{max} dans la masse fondue	2450.5/2489.4	2462.1/2502.9	2470.7/2525.5
$T_{max} - T_f$ dans la masse fondue	127.9/181.9	139.4/210.1	147.9/231.2
T_{max} sur la surface libre	2400.3/2443.8	2406.7/2451.2	2411.2/2456.6

Le [Tableau 4.1](#) montre que la température la plus élevée (T_{max}) dans le bain est trouvée dans le cas 3 avec chauffage résistif. Cela est dû à la partie escamotée (glissée) du coin

inférieur du creuset, qui favorise le transfert de chaleur de l'élément chauffant supplémentaire au fond du creuset, puis à l'interface cristal-liquide. Cependant, pour les cas 1 et 2, une quantité de chaleur est dépensée pour chauffer le coin inférieur dans le cas 1 et la courbure inférieure dans le cas 2. Dans cette figure également (Figure 4.2.2), nous observons bien que les particules de fluide se déplacent vers le haut le long de la paroi chaude du creuset, puis se déplacent radialement le long de la surface libre du bain entraînée par la variation de température de la tension superficielle. Près de l'interface cristal-liquide, les particules de fluide deviennent plus froides et tombent sous l'effet de la gravité le long de l'axe centrale formant ainsi un tourbillon (*vortex*) occupant toute la partie du bain liquide.

Le centre de vortex est situé dans la partie supérieure du bain pour les trois configurations, indiquant que l'écoulement est plus fort à cette position car les lignes de courant sont plus proches les unes des autres. La vitesse maximale présentée dans le Tableau 4.2 indique qu'un écoulement de fluide relativement stable est obtenu en introduisant un fond escamoté (Figure 4.2.2c) et un fond incurvé (Figure 4.2.2b) par rapport au cas 1 (Figure 4.2.2a).

TABLEAU 4.2 – Vitesse maximale dans la masse fondue pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif.

cas étudié ($\omega_c = 0$ tr/min)	V_{\max} (m/s) $\times 10^{-2}$	
	Sans C.R / Avec C.R	Réduction (%)
cas 1	0.0352/0.0472	25.42
cas 2	0.0349/0.0531	34.27
cas 3	0.0347/0.0561	38.46

Il est important de noter que l'addition du chauffage résistif sous le fond des trois creusets délivre plus de chaleur à ces derniers accélérant, par conséquent, l'écoulement du fluide dans le bain en entraînant le déplacement du centre du vortex vers le bas. Le chauffage résistif crée un gradient de température axial supplémentaire entre le fond du creuset et l'interface de croissance cristal-liquide, générant ainsi une force de flottabilité supplémentaire qui génère un fort écoulement vertical le long de l'axe de symétrie du bain. Cet écoulement supplémentaire augmente d'avantage la vitesse maximale des particules fluides de 25%, 34% et 38% pour les cas 1, 2 et 3 respectivement (voir le Tableau 4.2).

4.4 Effet combiné du chauffage résistif et de la rotation du cristal sur les champs de température et de vitesse

Dans la partie précédente, le procédé de cristallisation du saphir par la méthode KY a été étudié en régime de convection naturelle sans rotation du cristal. Dans cette partie, nous présentons les résultats des calculs des champs de température et de vitesse, en régime de convection forcée, obtenus pour différentes vitesses de rotation du cristal variées de $\omega_c = 1-4$ tr/min. En appliquant une vitesse de rotation $\omega_c = 2$ tr/min, nous constatons que la forme des isothermes devient plus structurée (moins convective) comme indiqué sur la Figure 4.3.2, et donc les gradients thermiques radiaux diminuent également sous l'effet de la

convection forcée. Ces résultats sont comparés à ceux avec chauffage résistif mais sans rotation du cristal (Figure 4.2.2). L'effet de la rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min est illustré à la Figure 4.4.2. Nous pouvons voir que les isothermes dans le bain sont plus déformées en raison de la vitesse de rotation relativement élevée du cristal. Elles ont une forme sinueuse pour toutes les formes du creuset et les gradients thermiques radiaux augmentent par rapport aux autres vitesses de rotation ($\omega_c = 0$ et 2 tr/min). Avec la présence du chauffage résistif, les isothermes se resserrent dans le bain, donnant naissance à une région isotherme plus importante au milieu du liquide avec la vitesse de rotation $\omega_c = 2$ tr/min qu'avec $\omega_c = 4$ tr/min.

Puisque la convexité de l'interface cristal-liquide est plus importante dans le cas 1, l'écoulement généré par la rotation du cristal est légèrement plus intense par rapport aux cas 2 et 3, comme indiqué dans les côtés gauches des Figures 4.5.2 et 4.6.2. Bien que la vitesse maximale ne soit pas trop modifiée par la rotation du cristal lorsque le chauffage par induction est le seul type du chauffage utilisé (absence du chauffage résistif), la structure de l'écoulement est fortement affectée. L'intensité de l'écoulement descendant près de l'axe de symétrie diminue considérablement et les particules de fluide dans la région supérieure du bain deviennent plus rapides en raison de la rotation du cristal. Ainsi, la région à grande vitesse se déplace de la ligne centrale vers la partie supérieure du bain sous l'interface.

TABLEAU 4.3 – Vitesse maximale dans le bain pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif à différentes vitesses de rotation du cristal.

ω_c (tr/min)	V_{max} (m/s)		
	cas 1	cas 2	cas 3
	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R
	Max/Min	Max/Min	Max/Min
0 effet de C.R (%)	0.0352/0.0472 (25.42%)	0.0349/0.0531 (34.27%)	0.0347/0.0561 (38.46%)
2 Effet de C.R + rotation (%)	0.0352/0.0578 (39.10%)	0.0349/0.0637 (45.21%)	0.0346/0.0561 (38.32%)
4 Effet de C.R + rotation (%)	0.0353/0.0585 (39.65%)	0.0349/0.0646 (45.97%)	0.0347/0.0671 (48.28%)

Comme indiqué ci-avant (Figure 4.2.2), la vitesse du fluide est plus élevée dans le cas 3 que dans les deux autres cas (cas 1 et 2) quand le cristal n'est pas mis en rotation. Cependant, lorsque le chauffage résistif est combiné à la convection forcée générée par la rotation du cristal, le champ de vitesse dans le bain s'intensifie pour toutes les configurations et l'intensité de l'écoulement vertical descendant près de l'axe de symétrie diminue considérablement notamment avec une vitesse de rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min et les particules de fluide sous l'interface deviennent cette fois-ci plus rapides en raison de la quantité de mouvement acquise par la rotation du cristal à cette endroit. Ainsi, la région à grande vitesse se déplace de la ligne centrale à la partie supérieure de la masse fondue sous l'interface cristal-liquide comme indiqué dans la Figure 4.4.2.

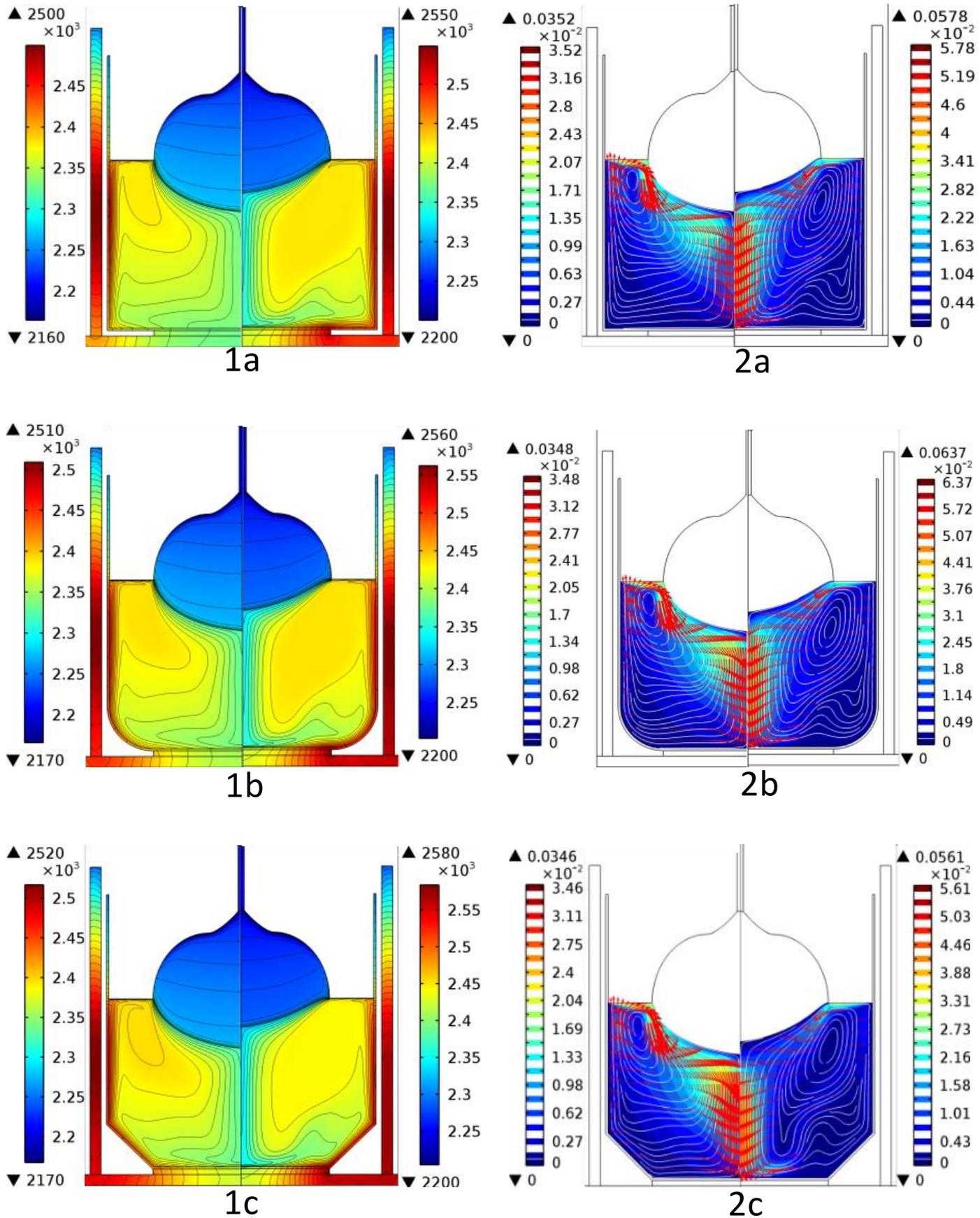


FIGURE 4.3 – Champs thermiques (1) et Champs d'écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droit) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 pour $\omega_c = 2$ tr/min à un stade de croissance intermédiaire.

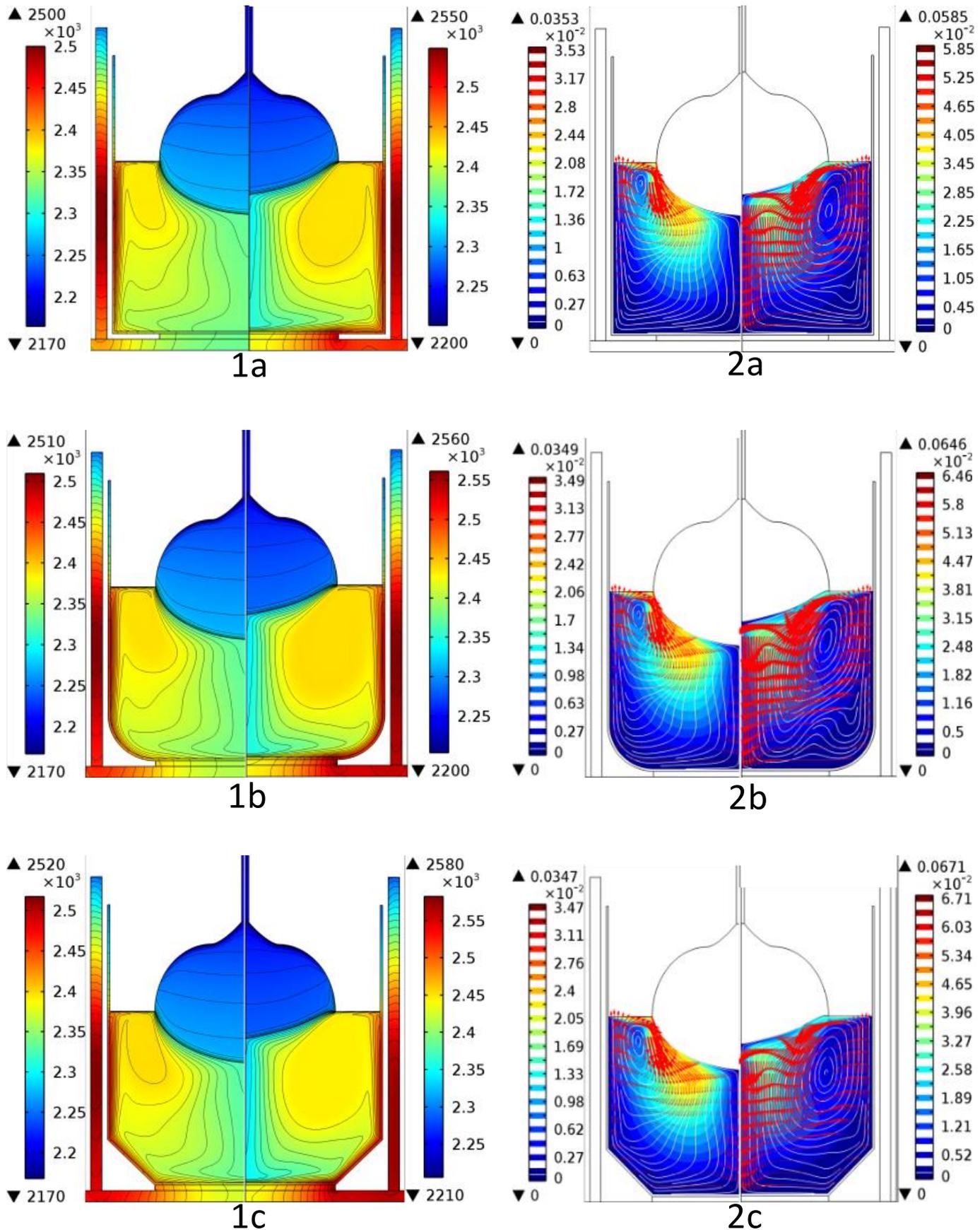


FIGURE 4.4 – Champs thermiques (1) et Champs d'écoulement (2) sans chauffage résistif (côté gauche) et avec chauffage résistif (côté droite) : (a) cas 1, (b) cas 2 et (c) cas 3 pour $\omega_c = 4$ tr/min à un stade de croissance intermédiaire.

4.5 Effet du chauffage résistif et de la rotation du cristal sur la convexité de l'interface de croissance cristal-liquide

La convexité de l'interface est l'un des paramètres les plus importants affectant la qualité du cristal. Elle est définie comme la distance axiale entre le point triple et le point le plus bas de l'interface cristal-liquide. En effet, une faible convexité de l'interface est nécessaire pour obtenir des cristaux de bonne qualité [48]. H et h sont les convexités de l'interface correspondant à chaque configuration sans et avec chauffage résistif respectivement. Prenons le cas sans rotation du cristal, la convexité de l'interface pour différentes formes de creuset sans et avec chauffage résistif est présentée à la Figure 4.5. En première observation, l'interface présente une forme convexe pour toutes les configurations et sa valeur décroît du cas 1 au cas 3.

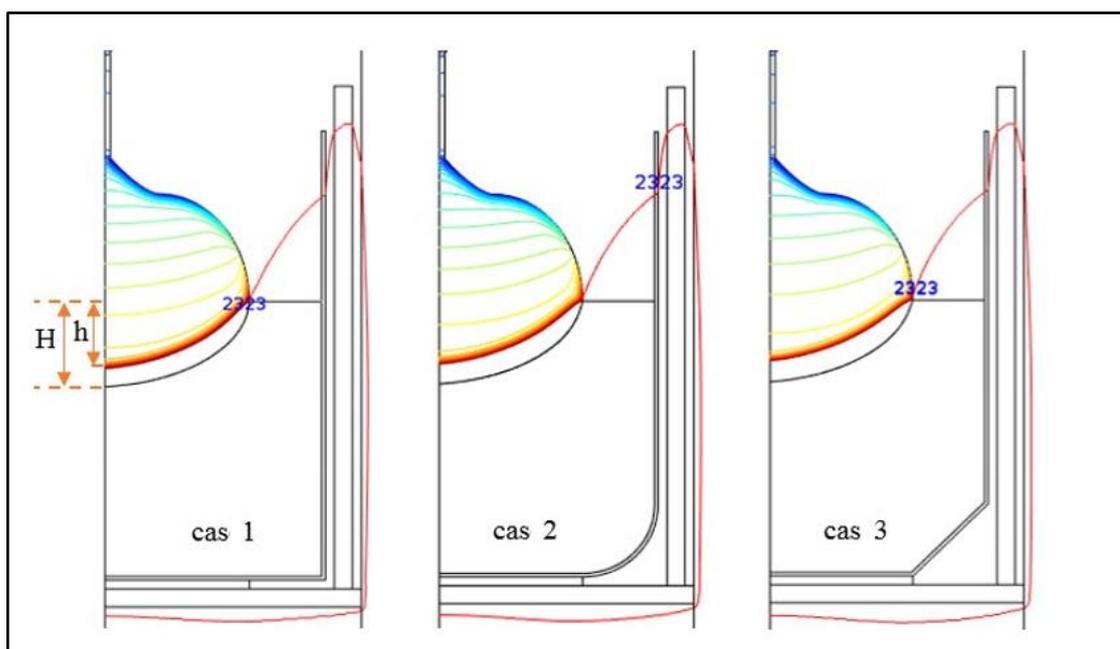


FIGURE 4.5 – Convexité de l'interface cristal-liquide sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de coins de creuset.

Le Tableau 4.4 montre clairement l'effet du chauffage résistif qui fait diminuer la déflexion de l'interface pour les trois cas. Nous observons également que la convexité pour le creuset ayant un coin du fond escamoté est inférieure à celle des cas 1 et 2. En fait, le chauffage résistif au fond du creuset ajoute plus de chaleur à la partie centrale du bain, puis à l'interface de croissance. Ainsi, le transport de chaleur et la vitesse d'écoulement près de l'interface cristal-liquide sont assez forts, ce qui conduit à une diminution de la convexité de l'interface.

Le maximum de cette diminution peut atteindre 22%, 24% et 26% pour les cas 1, 2 et 3 respectivement. En outre, l'effet combiné du chauffage résistif et de la forme escamotée du coin du creuset entraînent une diminution significative d'environ 30% (comparaison du cas 1 sans C.R et du cas 3 avec C.R). Lorsque la vitesse de rotation du cristal varie de 0 tr/min à

2 tr/min, la convexité change légèrement (± 1 mm) en absence du chauffage résistif. Cependant, elle diminue de 35%, 38% et 41% pour les cas 1, 2 et 3 respectivement, lorsqu'un chauffage résistif est ajouté.

TABLEAU 4.4 – Convexité de l'interface cristal-liquide pour les cas 1, 2 et 3 sans et avec chauffage résistif à différentes vitesses de rotations du cristal.

ω_c (tr/min)	Convexité de l'interface c-l (mm)		
	cas 1	cas 2	cas 3
	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R
0 Effet de C.R (%)	47.4/37.18 (22%)	46.52/35.33 (24%)	45.8/33.9 (26%)
2 Effet de C.R + rotation (%)	47.07/30.8 (35%)	45.91/28.32 (38%)	45.03/26.44 (41%)
4 Effet de C.R + rotation (%)	47.95/29.69 (38%)	46.89/26.37 (44%)	46.04/24.04 (48%)

La Figure 4.6 présente le résultat le plus important obtenu avec le creuset ayant un coin escamoté lorsque le chauffage résistif est combiné avec la vitesse de rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min. La diminution de la convexité dans ce cas atteint 49% (comparaison du cas 1 sans C.R pour $\omega_c = 0$ tr/min et du cas 3 avec C.R combiné avec la rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min), ce qui peut être considéré comme une amélioration cruciale de la morphologie de l'interface de croissance.

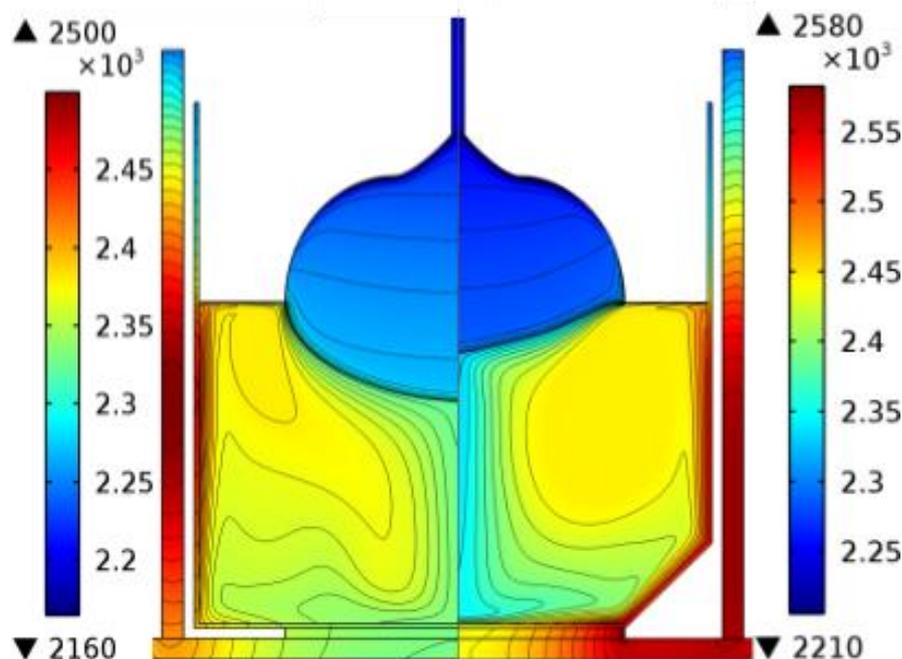
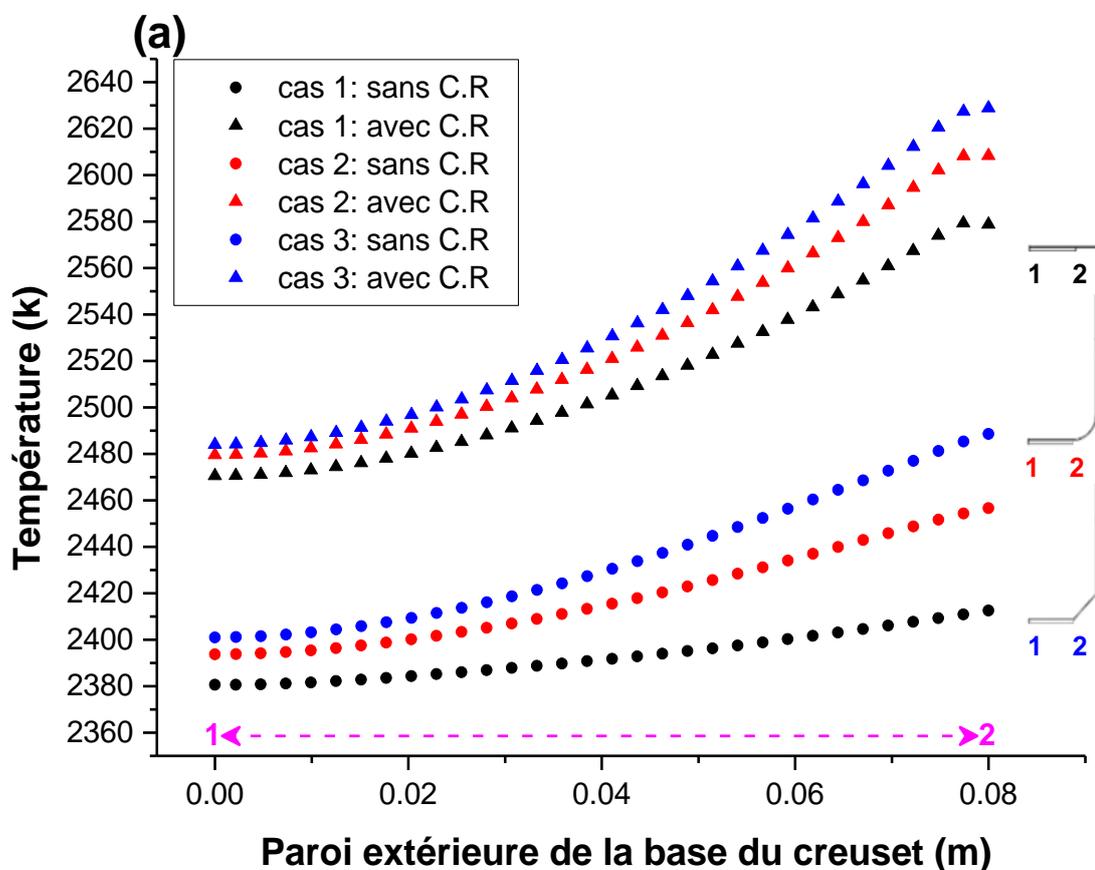


FIGURE 4.6 – Champ de température et convexité de l'interface cristal-liquide: cas 1 sans C.R pour $\omega_c = 0$ tr/min (à gauche) et cas 3 avec C.R combiné avec la rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min (à droite).

Cette importante diminution de la convexité d'interface permet d'éviter un comportement indésirable de la croissance et rend la solidification trop lente et par conséquent ; le processus devient stable et peut être contrôlé. De ce fait, l'optimisation du chauffage résistif et de la rotation du cristal semble être efficace pour contrôler la convexité de l'interface cristal-liquide afin d'obtenir une meilleure qualité de cristal saphir.

Il est très important de connaître la répartition de la température générée par le chauffage inductif et même résistif dans le creuset, compte tenu des informations intéressantes qu'ils fournissent. La Figure 4.7a montre la répartition de la température le long de la ligne de contact du disque de chauffage résistif avec la paroi extérieure du creuset. La température maximale est située à la fin du disque métallique et le minimum est situé à l'axe de symétrie dans tous les cas. Cependant, la température la plus élevée est enregistrée pour le creuset avec un coin escamoté malgré la même puissance de chauffage. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que la chaleur est transportée facilement avec la forme escamotée par rapport aux autres formes. Lorsque le chauffage résistif est ajouté, plus de chaleur est apportée jusqu'au bord du creuset et il en résulte les élévations des températures maximales et minimales dans la partie inférieure du creuset.



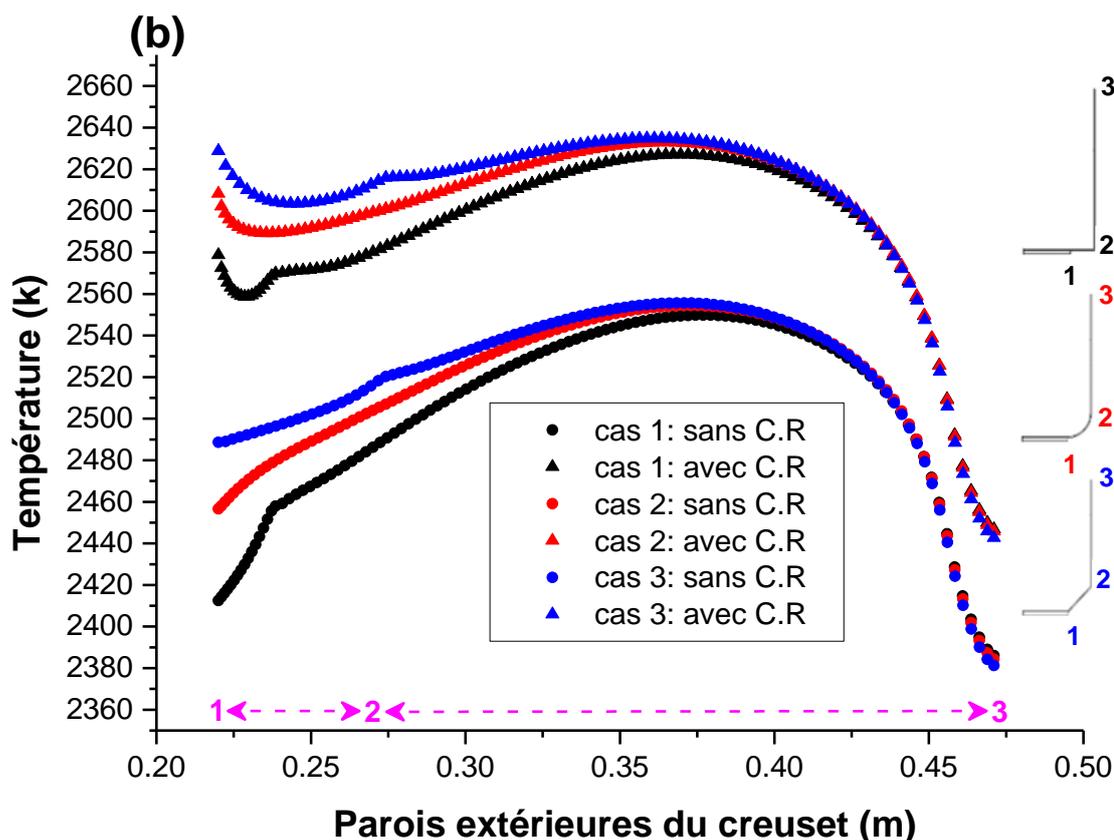


FIGURE 4.7 – Profils de la température (a) le long de la ligne de contact du creuset avec le disque du C.R et (b) le long de la surface du coin inférieur et de la paroi latérale du creuset, calculés pour différentes formes de creuset tenant compte du chauffage résistif et sans chauffage résistif.

La Figure 4.7b présente la distribution de la température à la base et à la paroi latérale du creuset (la partie en contact avec l'élément du chauffage résistif n'est pas considérée ici, elle présentée en Figure 4.7a). La température augmente progressivement jusqu'à ce qu'elle atteigne sa valeur maximale au milieu de la paroi du creuset, puis elle diminue rapidement jusqu'à 2260 K pour tous les cas sans chauffage résistif. En conséquence de l'ajout du chauffage résistif, le point le plus chaud est déplacé vers le bas pour les cas 2 et 3 et reste au même endroit pour le cas 1.

Comme le faible gradient thermique à l'interface cristal-liquide est une caractéristique de l'instabilité de l'interface cristal-liquide, il est important de mettre en évidence l'effet de chauffage résistif et de la rotation du cristal sur ces gradients et trouver le cas correspondant à une interface de croissance stable. La Figure 4.8 montre le gradient de température radial le long de l'interface cristal-liquide sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de creuset et vitesses de rotation du cristal. Dans tous les graphiques, l'axe vertical représente le gradient de température et l'axe des abscisses représente la distance entre l'axe de symétrie et le point triple à l'interface.

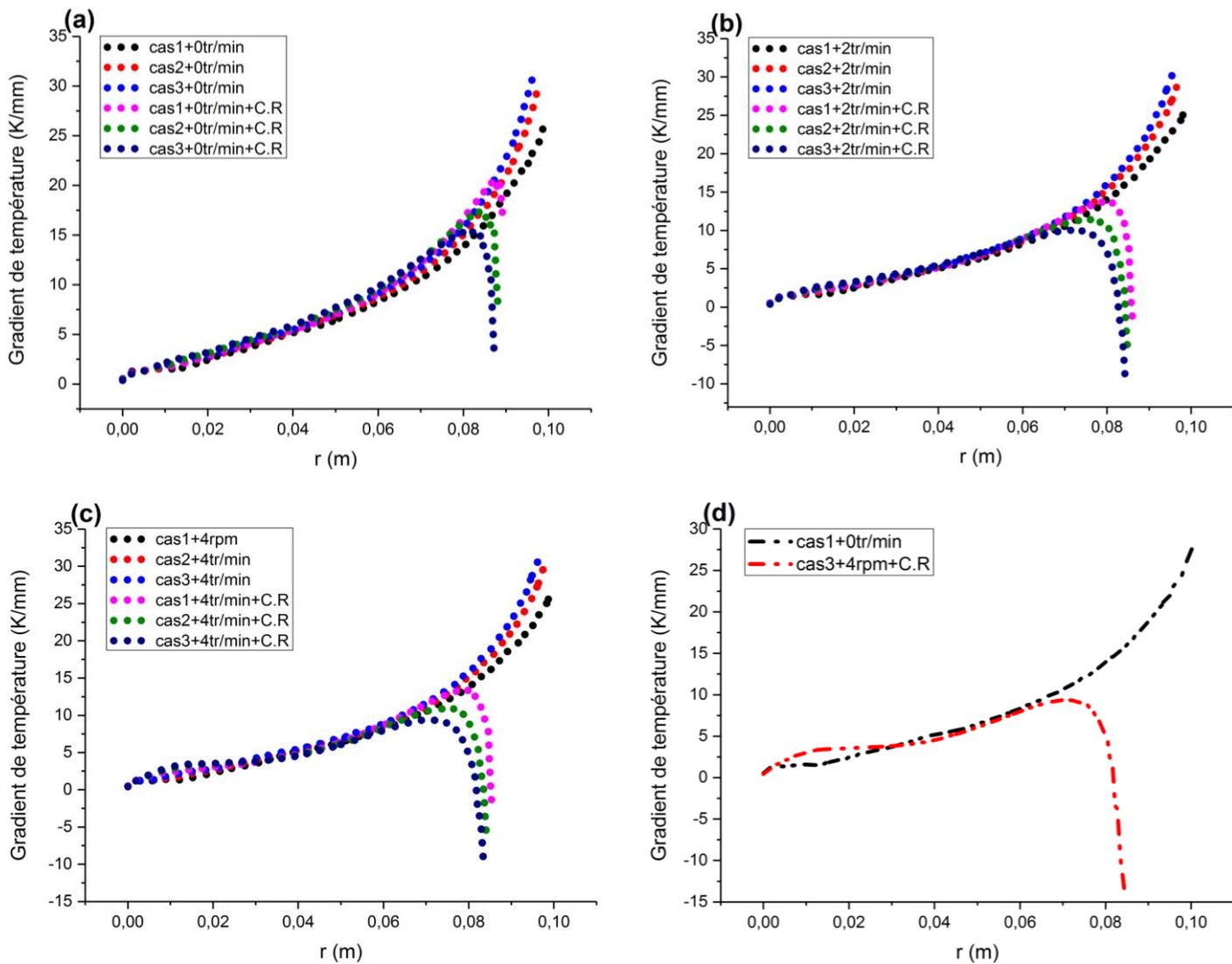


FIGURE 4.8 – Variation des gradients de température le long du front de cristallisation sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de creuset et vitesses de rotation du cristal ((a) : $\omega_c = 0$ tr/min, (b) : $\omega_c = 2$ tr/min, (c) : $\omega_c = 4$ tr/min et (d) : Comparaison des gradients de température entre le cas 1 sans chauffage résistif et l'absence de rotation du cristal et le cas 3 avec chauffage résistif et rotation du cristal $\omega_c = 4$ tr/min).

Pour les trois formes de creuset et lorsque le chauffage résistif n'est pas pris en compte, les gradients de température ont des tendances de variation similaires : le gradient de température minimum apparaît toujours au centre de l'interface et le gradient de température maximum apparaît près du point triple. Les Figures 4.8a, b et c correspondant respectivement aux vitesses 0, 2 et 4 tr/min montrent que les gradients de température ne sont pas vraiment affectés par la rotation du cristal et cela lorsque seulement le chauffage inductif est utilisé pour les différentes formes de creusets à savoir : cylindrique, coin incurvé et coin escamoté puisque les courbes correspondantes sont presque identiques. Ce résultat est cohérent avec notre conclusion sur la convexité de l'interface, qui a été trouvée presque identique pour toutes les vitesses de rotation du cristal considérées (voir le Tableau 4.4). Cependant, le chauffage résistif placé au-dessous du creuset a pour effet de réduire le gradient de

température à l'interface de croissance, particulièrement au niveau du point triple, qui devient le point avec les gradients de température les plus faibles.

Cette diminution est estimée à environ 37%, 74% et 92% pour les creusets ayant un coin de fond plat, incurvé et escamoté, respectivement, lorsque la rotation du cristal n'est pas prise en compte. Ce résultat est en bon accord avec la diminution de la convexité de l'interface cristal-liquide et du champ de vitesse mentionné ci-avant. Lorsque le chauffage résistif est combiné avec la rotation du cristal, le gradient de température diminue davantage et devient négatif près du point triple. Une diminution des gradients thermiques au-delà de 100% signifie qu'une inflexion se produit dans cet endroit de l'interface (interface concave), comme illustré sur les côtés gauches des Figures 4.3.2 et 4.4.2. La Figure 4.8d compare les gradients de température entre le cas 3 (fond avec coin escamoté) avec chauffage résistif et une rotation du cristal de 4 tr/min d'un côté et le cas 1 (creuset cylindrique) sans chauffage résistif et sans rotation du cristal de l'autre côté. La comparaison montre une diminution notable des gradients de température coïncidant avec une convexité plus faible de l'interface, indiquant ainsi que la convexité de l'interface cristal-liquide se transforme en une forme stable.

TABLEAU 4.5 – Gradient de température au point triple sans et avec chauffage résistif pour différentes formes de creusets et vitesses de rotation du cristal.

ω_c (tr/min)	Gradients de température (K/mm)		
	cas 1	cas 2	cas 3
	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R	Sans / Avec C.R
	Max/Min	Max/Min	Max/Min
0 Effet de C.R (%)	27.98/17.51 (37%)	32.42/8.39 (74%)	33.71/2.73 (92%)
2 Effet C.R + rotation (%)	28.09/-1.72 (106%)	32.51/-7.75 (124%)	33.80/-12.07 (135%)
4 Effet C.R + rotation (%)	28.53/-2.83 (110%)	32.68/-8.90 (127%)	33.88/-13.35 (139%)

4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, une modélisation bidimensionnelle axisymétrique en état quasi stationnaire du mécanisme de transport de la chaleur et d'écoulement dans un four de Kyropoulos à chauffage inductif en étape intermédiaire de croissance a été réalisée. L'un des principaux avantages de cette modélisation est la possibilité d'attribuer des réponses à des modifications spécifiques des paramètres de croissance du saphir par la méthode KY, ce qui permet de mieux comprendre les interactions des transferts de chaleur et prédire ainsi les contraintes thermoélastiques qui peuvent se produire dans le cristal en croissance en raison des gradients de température induits par les différentes physiques intervenant dans cette étape de croissance. La diminution la plus importante de la convexité (49%) et du gradient thermique radial à l'interface de croissance (139%) est obtenue en utilisant un coin de fond du creuset escamoté combiné à la fois avec la présence du chauffage résistif proposé et une vitesse de rotation du cristal donnée ($\omega_c = 4$ tr/min).

-CHAPITRE 5-

**SIMULATION 3D (CALCUL DES
CONTRAINTES THERMOÉLASTIQUES)**

5.1 Introduction

Au cours de l'élaboration du saphir monocristallin par la technique Kyropoulos, de nombreux phénomènes s'installent, comprenant le phénomène thermique associé au phénomène hydrodynamique, sans négliger le changement de phase dans lequel le bain fondu se transforme en un solide. Ces derniers entraînent d'importants gradients de température, générant ainsi une distribution non homogène de fortes contraintes thermoélastiques dans le monocristal du saphir. En conséquence, des régions distinctes avec une multiplication intensive de dislocations se manifestent dans le cristal et nuisent considérablement sa qualité finale. De ce fait, la réduction de ces contraintes thermoélastiques lors de la croissance des matériaux monocristallins devient un objectif important et sérieux et cela afin d'optimiser les performances et la fiabilité des dispositifs électroniques et/ou optoélectroniques qui les comportent.

Dans ce chapitre, une série de simulations dans différentes conditions a été réalisée pour calculer les contraintes thermoélastiques tridimensionnelles dans le monocristal du saphir. Nous allons voir dans un premier temps la composante de contrainte 3D de von Mises comparée entre l'analyse isotrope et anisotrope. Puis dans une seconde étape, l'effet de l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire et celui de la rotation du cristal. Enfin, nous discutons également l'effet combiné de ces paramètres sur la contrainte résiduelle de von Mises.

5.2 Domaine de calcul

Dans cette partie, nous utilisons le champ de température obtenu dans nos calculs 2D axisymétriques précédents comme conditions aux limites pour obtenir les champs thermiques et de contraintes tridimensionnels (3D) dans un monocristal du saphir suivant l'axe de croissance c . Le calcul des contraintes thermoélastiques s'effectue dans deux domaines du four de croissance, à savoir, le cristal et le germe. Il est à noter ici que la contrainte mécanique liée à la l'encastrement du germe n'est pas présenté dans ce travail et la seule contrainte affichée est celle qui est due uniquement à la thermique existant dans la chambre chaude de la croissance.

Il a été conclu dans nos résultats numériques précédents que la convexité de l'interface cristal-liquide peut être diminuée en utilisant une forme de coin de la base du creuset bien appropriée, un chauffage résistif supplémentaire placé au-dessous de la base du creuset et une convection forcée au sein du bain fondu animée par la rotation du cristal. En effet, cela nous a amené à faire également une investigation sur l'influence de ces paramètres sur les contraintes thermoélastiques résiduelles dans le cristal en utilisant la configuration de référence (cas 1). Nous étudions en premiers lieu, l'effet de l'anisotropie du cristal, puis celui de l'ajout d'un chauffage résistif et ensuite celui de la rotation de cristal et nous terminerons par la combinaison de leur effet sur les contraintes thermoélastiques. Le diagramme schématique du système de croissance utilisé pour le transfert de chaleur global axisymétrique 2D et l'analyse de contrainte thermoélastique 3D sont présentés à la [Figure 5.1](#).

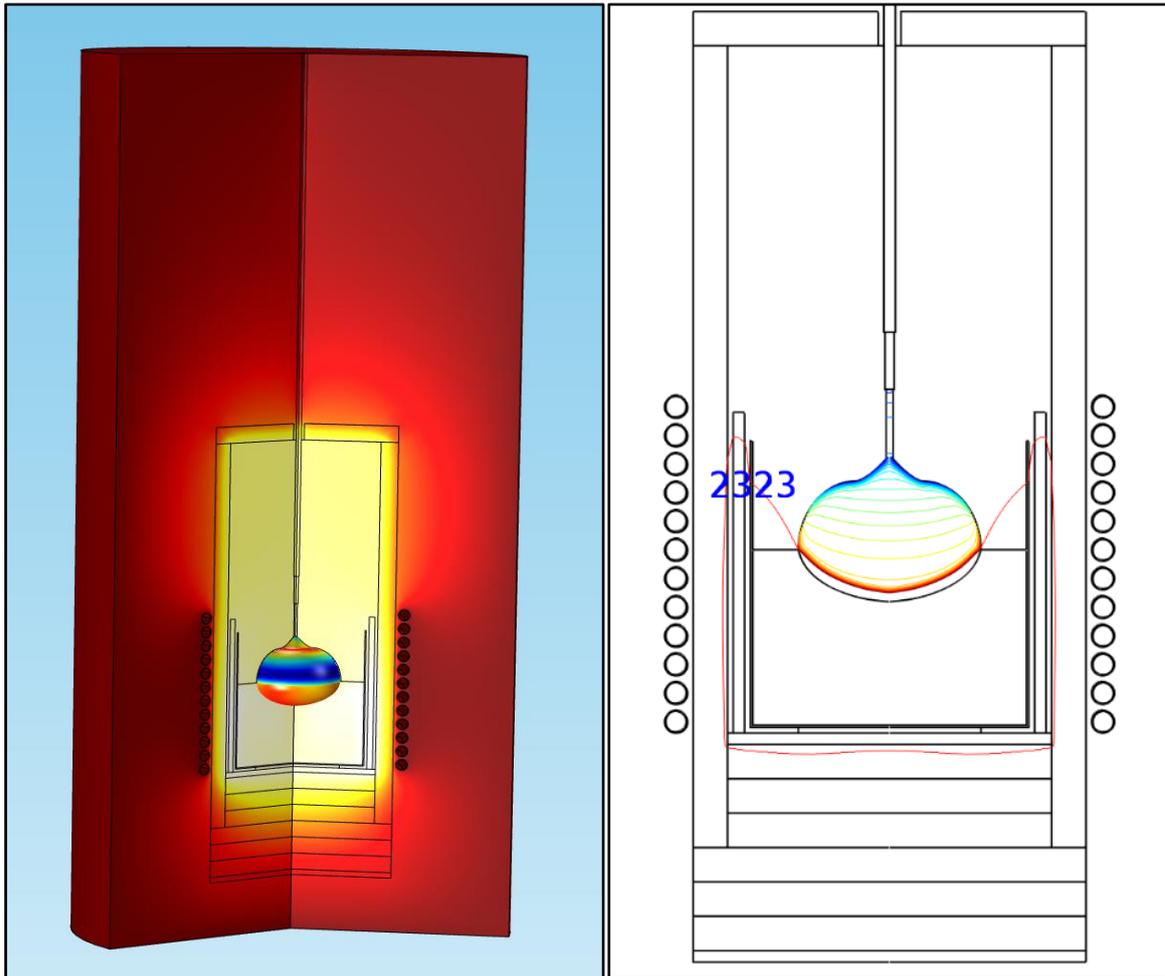


FIGURE 5.1 – Schéma du système de la croissance cristalline (à gauche). Distribution 2D de la température dans un monocristal de saphir obtenu à partir d'une analyse globale du transfert de chaleur (à droite). La ligne rouge représente l'isotherme de fusion du saphir (2323 K) passant par l'interface cristal-liquide lorsque le chauffage résistif est ajouté [45,47].

5.3 Effet de l'anisotropie du cristal

Dans cette partie, nous nous intéressons principalement à mener une étude en analysant l'effet de l'anisotropie du saphir sur les contraintes 3D de von Mises. Nous voulons comparer les résultats pour le cas de l'analyse isotrope en utilisant le module de Young et le coefficient de Poisson avec celui de l'analyse anisotrope tenant compte à la fois de la dépendance des constantes élastiques et les coefficients de dilatation thermique en température (Figure 5.2).

Afin d'évaluer l'effet de l'anisotropie du cristal uniquement, la rotation de cristal est prise égale à 0 tr/min et aucun chauffage résistif supplémentaire n'est envisagé. Il est à noter que toutes les études antérieures qui ont été faites sur l'estimation des contraintes thermoélastiques au cours de la croissance cristalline du saphir n'ont pas pris en considération son aspect anisotrope. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés dans ce travail à faire cette investigation originale afin de monter l'importance de cet effet qui n'aurait pas dû être négligé.

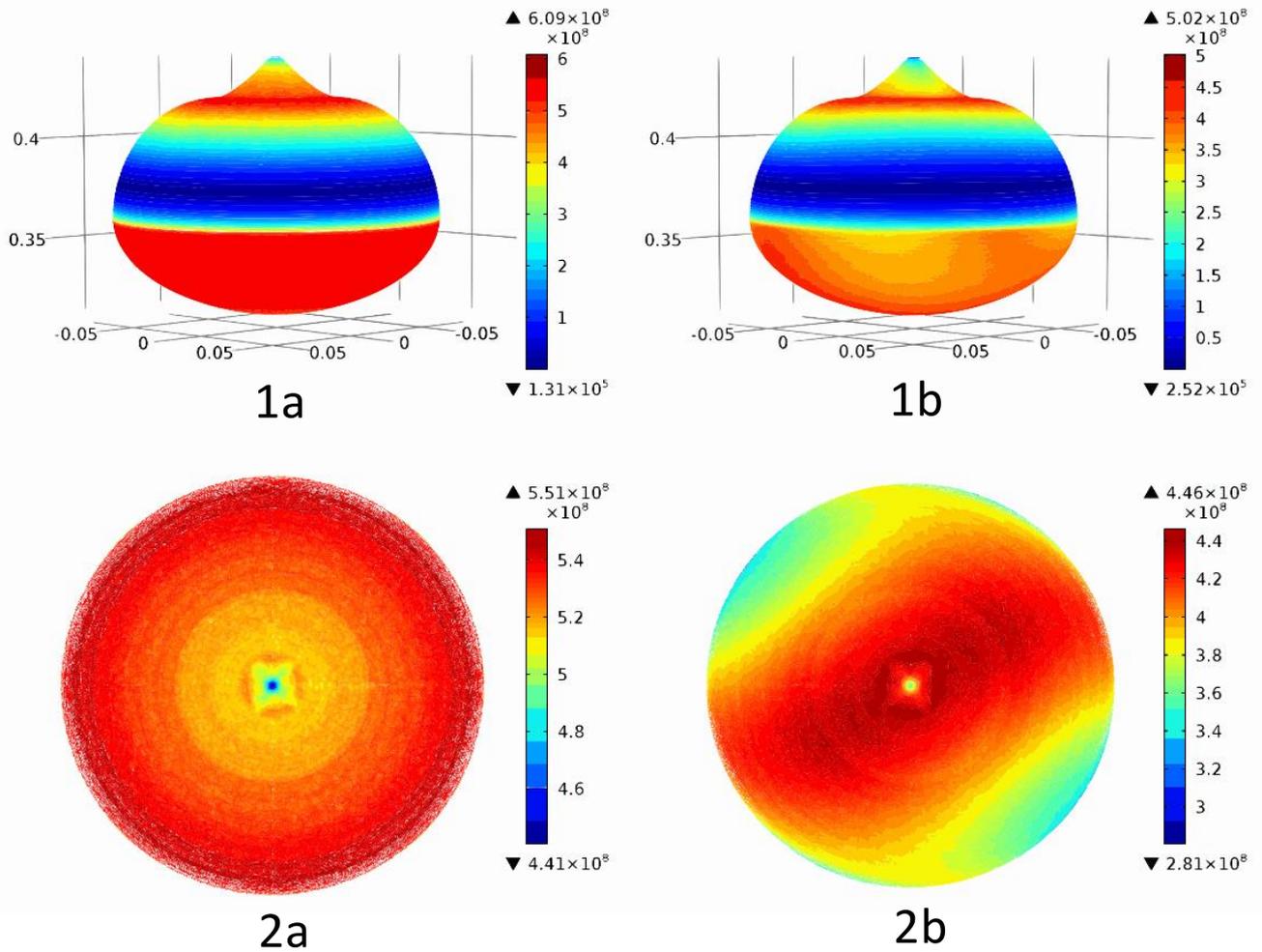


FIGURE 5.2 – Champ de contraintes 3D de von Mises sur le cristal (1) et l'interface cristal-liquide (vue de dessous) (2) : (a) analyse isotrope, (b) analyse anisotrope.

Les contraintes thermoélastiques tridimensionnelles à l'intérieur du monocristal de saphir sont calculées à l'aide de la distribution de température obtenue lors de notre précédente analyse numérique globale du transfert de chaleur au cours de la croissance cristalline KY [45]. La contrainte thermoélastique de von Mises ($\sigma_{\text{Mises}} = \sqrt{3J_2}$) est présentée à la Figure 5.2, où J_2 est le deuxième invariant de contrainte déviatorique.

En analysant ces résultats, Nous pouvons voir que la distribution des contraintes thermoélastiques obtenues à partir de l'analyse isotrope est différente de celle obtenue à partir de l'analyse anisotrope. Cette différence est clairement illustrée par les contours de la contrainte de von Mises à la surface du cristal, en particulier au voisinage du germe (cou du cristal) et à l'interface cristal-liquide. Nous pouvons également voir que l'hypothèse isotrope surestime la valeur maximale de von Mises par rapport à l'analyse anisotrope et sous-estime aussi la valeur minimale de von Mises.

Deux régions remarquables correspondent à deux maxima des contraintes de von Mises des analyses isotrope et anisotrope, l'une à l'interface cristal-liquide et l'autre à la périphérie

de la région proche du germe. La contrainte thermoélastique maximale à la périphérie du cristal est supérieure à celle de l'interface cristal-liquide.

En outre, la simulation de l'analyse isotrope montre une contrainte thermoélastique plus élevée (609 MPa, voir la [Figure 5.2.1a](#)) dans presque toute la périphérie du cristal par rapport à l'analyse anisotrope (502 MPa, voir la [Figure 5.2.1b](#)), ce qui est cohérent avec les résultats de la simulation numérique obtenue par Miyazaki et al. [95].

La [Figure 5.3](#) donne la distribution des contraintes de von Mises le long de l'interface cristal-liquide. Il existe des différences significatives entre l'analyse isotrope et l'analyse anisotrope. Concernant l'analyse isotrope, la contrainte de von Mises est constante pour la majeure partie de l'interface cristal-liquide, alors, qu'elle est fortement affectée quand l'aspect anisotrope du cristal est considéré. Le long de l'interface cristal-liquide, le point triple et l'extrémité du cristal sont caractérisés par une faible contrainte thermoélastique comparativement à d'autres niveaux de l'interface.

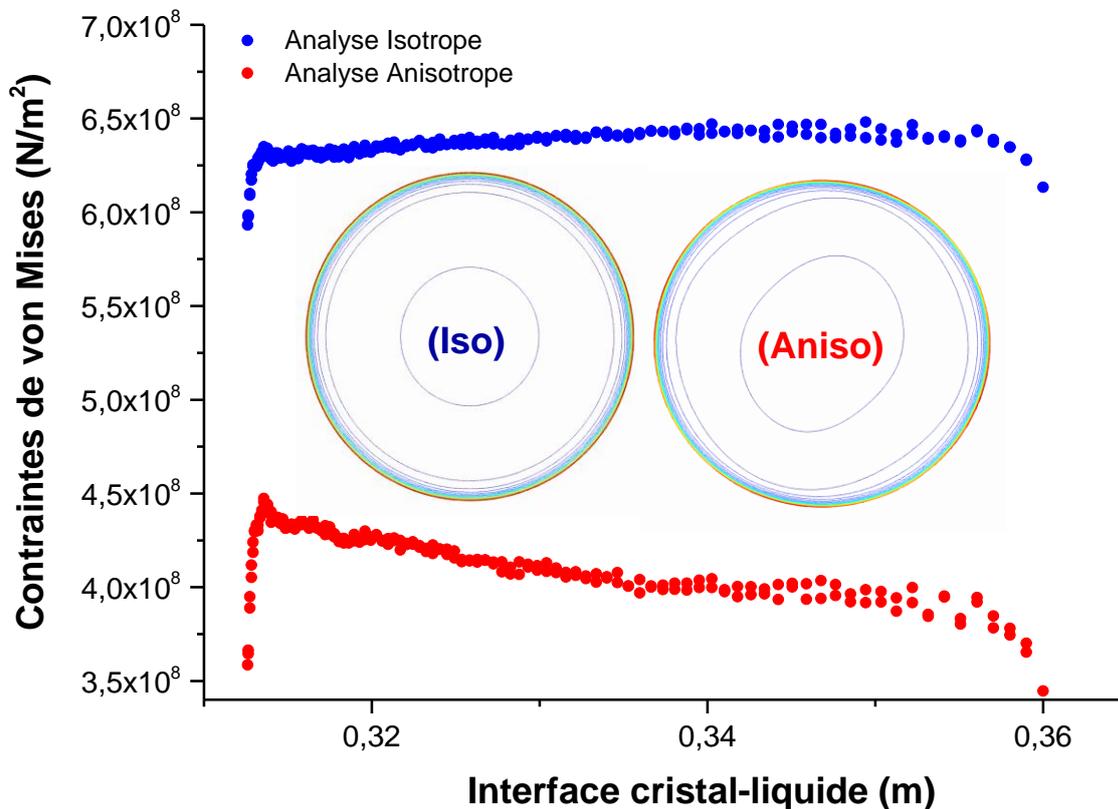


FIGURE 5.3 – Distribution des contraintes de von Mises le long de l'interface cristal-liquide pour l'analyse isotrope et anisotrope.

Pour montrer le champ de contraintes thermoélastique dans la partie interne du cristal, nous faisons différentes coupes transversales suivant le plan XY comme illustré dans la [Figure 5.4](#).

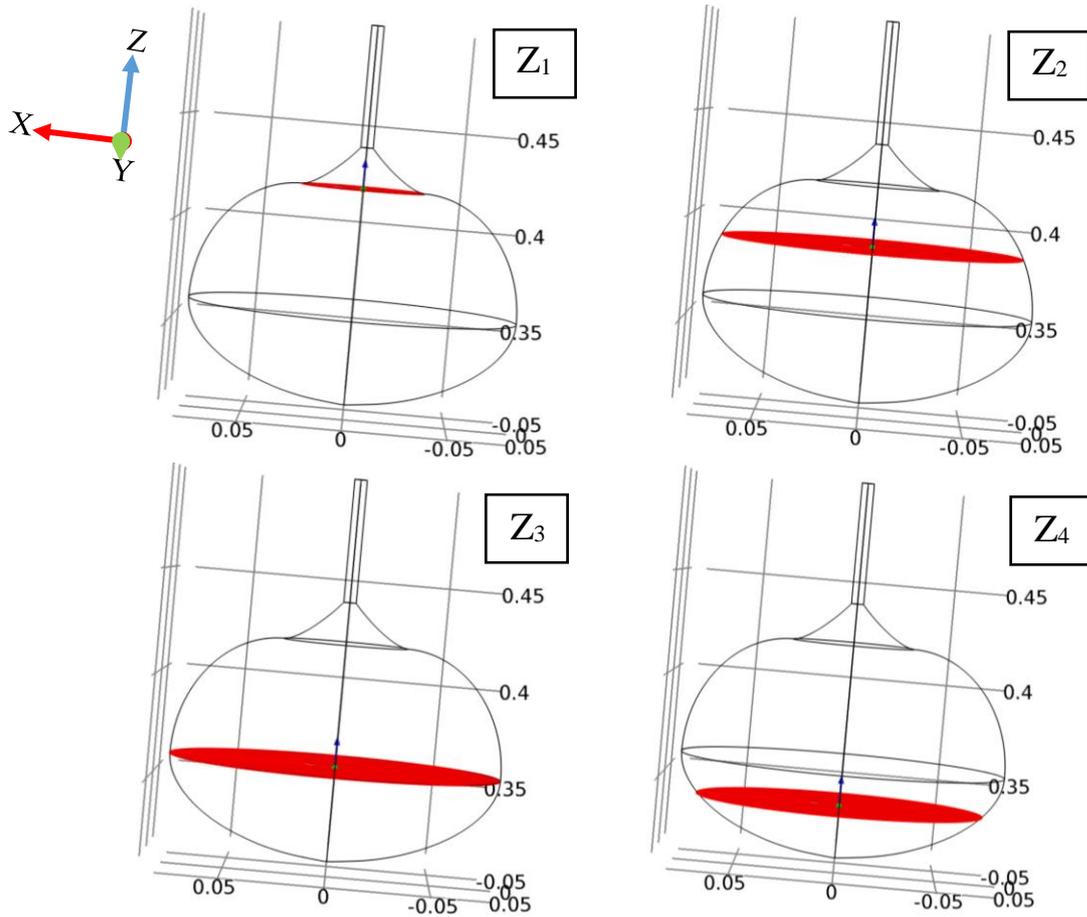
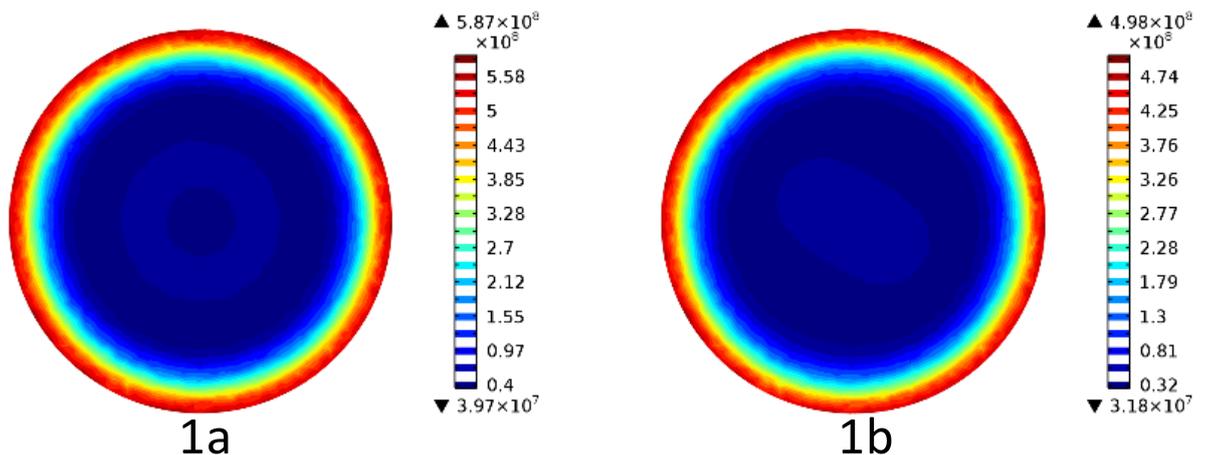


FIGURE 5.4 – Différentes coupes transversales suivant le plan XY à différents niveaux de l’axe de croissance Z. ((1) : $Z_1 = 20$ mm de l’épaulement, (2) : $Z_2 = 50$ mm de l’épaulement (3) : $Z_3 =$ point triple et (4) : $Z_4 = 20$ mm de l’interface cristal-liquide).

Les lignes de contour de la contrainte de von Mises dans les sections transversales (coupes XY) en différentes positions de l’axe Z (30 et 60 mm au-dessus de l’interface cristal-liquide et à 20 mm sous l’interface) sont présentées dans la Figure 5.5. Dans toutes les sections XY, la différence entre la valeur maximale (en rouge) et la valeur minimale (en bleu) de la contrainte de von Mises est divisée en vingt portions égales.



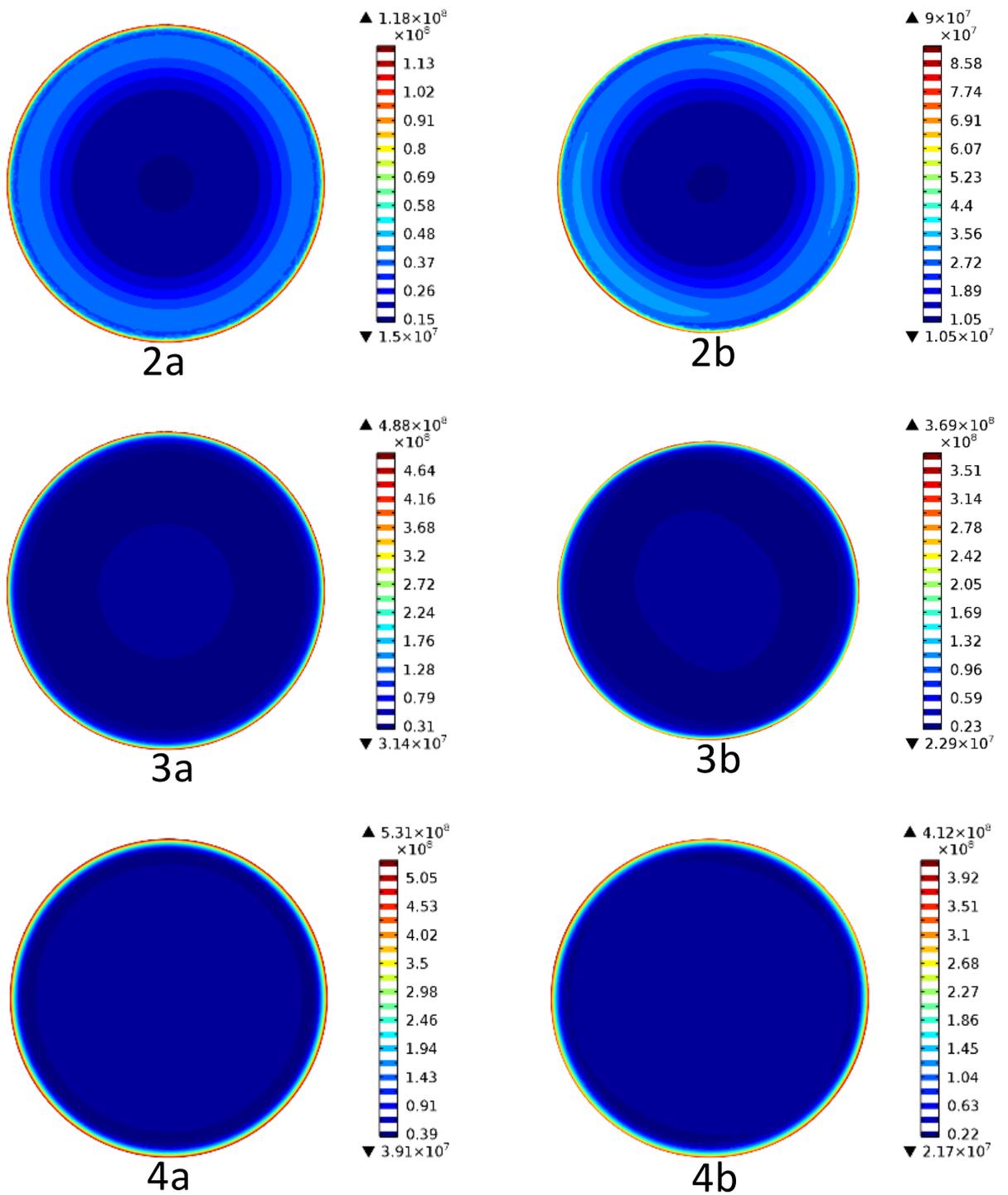


FIGURE 5.5 – Champ de contrainte de von Mises le long du plan XY à différents niveaux ((1) : 20 mm de l'épaupe, (2) : 50 mm de l'épaupe (3) : point triple (4) : 20 mm de l'interface cristal-liquide) : (a) analyse isotrope, (b) analyse anisotrope.

La différence entre la distribution des contraintes thermoélastiques prédites par l'analyse isotrope et anisotrope est également bien montrée à travers les différents plans XY présentés à la Figure 5.5. Pour tous les niveaux, nous constatons que la valeur maximale de la contrainte de von Mises se produit constamment au niveau de la région périphérique du

cristal et à l'interface cristal-liquide pour les deux cas isotrope et anisotrope. Quant à la zone à faible contrainte thermique, elle apparaît à la partie interne du monocristal de saphir en raison de l'exposition de la surface externe du cristal aux gradients de température élevés existant dans l'atmosphère de croissance environnante par rapport à sa partie intérieure.

En comparant les deux cas, Nous pouvons facilement voir que dans le cas isotrope, les contours sont parfaitement symétriques (des cercles concentriques) quant au cas anisotrope, ils sont dissymétriques et ont des intensités plus faibles. En conséquence, le rôle de l'anisotropie est clairement démontré par cette comparaison. Par conséquent, l'anisotropie des cristaux est un facteur important qui influe sur les calculs des contraintes thermoélastiques lors de la croissance d'un monocristal du saphir et doit être prise en compte. Dans la suite de ce chapitre, tous les résultats sont calculés en prenant en considération l'anisotropie du cristal pour une analyse quantitative plus réaliste.

5.4 Effet du chauffage résistif

La Figure 5.6 présente respectivement l'effet du chauffage résistif sur le champ de contrainte thermoélastique dans le cristal et sur l'interface cristal-liquide.

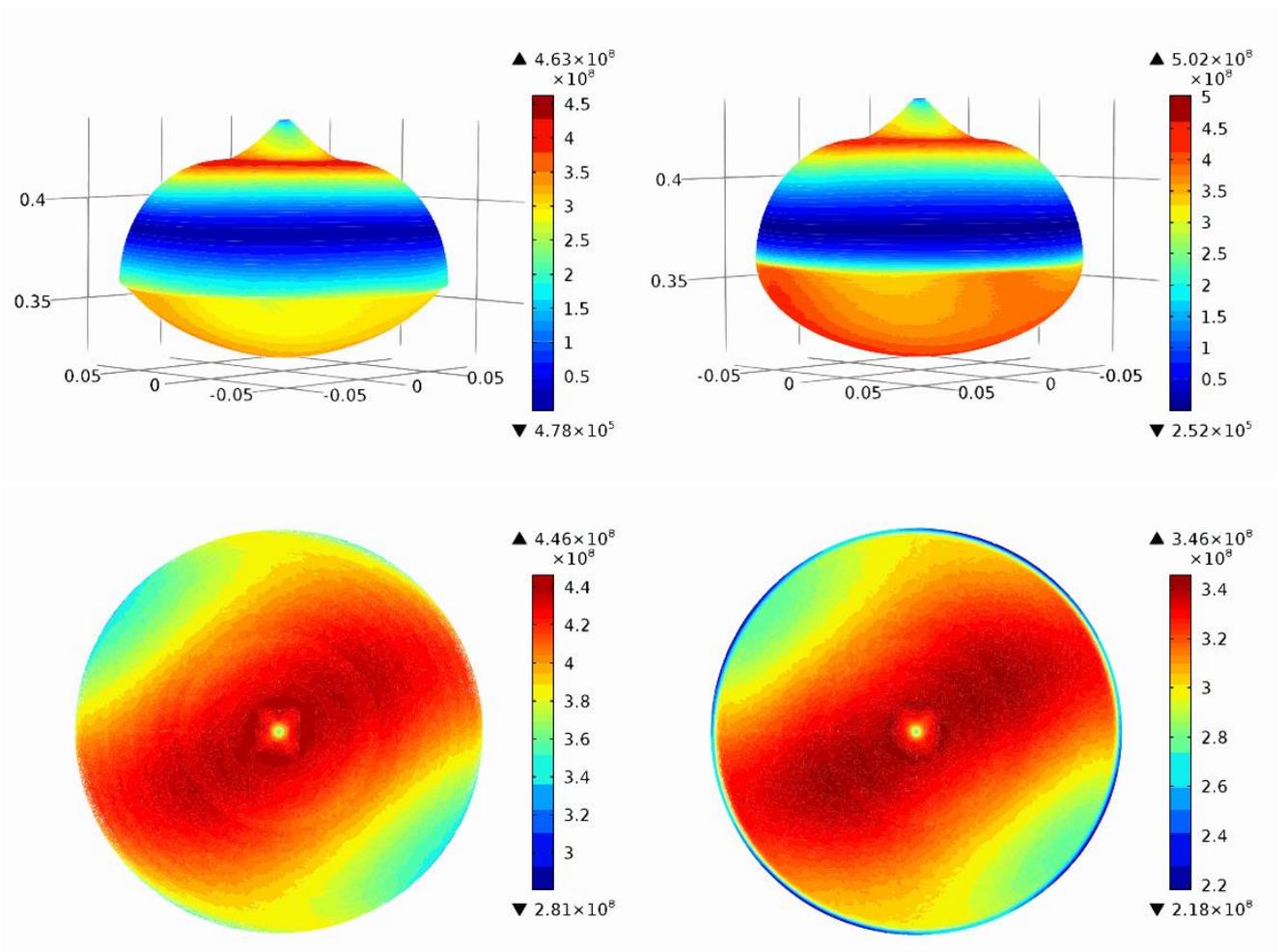


FIGURE 5.6 – Champ de contraintes 3D de von Mises dans le cristal et sur l'interface cristal-liquide (vue de dessous). cas de référence : sans chauffage résistif (à gauche). Avec un chauffage résistif supplémentaire (à droite).

Il a été montré dans le chapitre précédent, que l'utilisation d'un chauffage résistif additionnel diminue la convexité de l'interface cristal-liquide et conduit à avoir une interface cristal-liquide de croissance plus stable [45]. Dans cette section, nous pouvons observer également que l'ajout de ce chauffage résistif peut réduire les contraintes de von Mises dans le cristal ainsi qu'à l'interface cristal-liquide et cette diminution peut être constatée à partir des valeurs maximales et minimales de la légende de la contrainte de von Mises affichée à droite de chaque cas étudié. Nous notons, en particulier que l'interface de croissance est plus détendue (relaxée) par rapport au cas sans chauffage résistif.

Une mince région à faibles contraintes de von Mises est apparue autour du point triple, cette dernière est due à l'inflexion de l'interface cristal-liquide au niveau de cette région. Par conséquent, un chauffage résistif supplémentaire contribue à son tour à diminuer non seulement la convexité de l'interface, mais également à modifier la distribution des contraintes de von Mises et à réduire la contrainte maximale de von Mises d'environ 7,76% et 22,24% à l'intérieur du monocristal et le long de l'interface cristal-liquide, respectivement. L'effet positif du chauffage résistif supplémentaire sur la réduction de la contrainte de von Mises à l'intérieur du cristal a été démontré pour différents niveaux du cristal (Z) et les valeurs maximales et minimales de la contrainte de von Mises équivalente $\sigma_{Mises} = \sqrt{3J_2}$ pour les positions respectives sont résumées dans le [Tableau 5.1](#).

TABLEAU 5.1 – Valeurs maximales et minimales de la contrainte de von Mises suivant différentes positions sur l'axe Z pour l'analyse isotrope et anisotrope sans et avec chauffage résistif (les "effets" en pourcentage sont une diminution de la contrainte maximale de von Mises).

Position sur l'axe Z (m)	Contraintes de von Mises (MPa)		
	Sans C.R	Avec C.R	Diminution (%)
	Max/Min	Max/Min	
20 mm de l'épaule ($Z_1 = 0.42$)	498/31.8	463/29.1	7.02
50 mm de l'épaule ($Z_2 = 0.39$)	90/10.7	35.3/3.8	60.77
Ligne de point triple c-1 ($Z_3 = 0.36$)	369/22.9	271/33.8	26.55
20 mm de l'interface c-1 ($Z_4 = 0.34$)	412/21.7	332/17.3	19.41

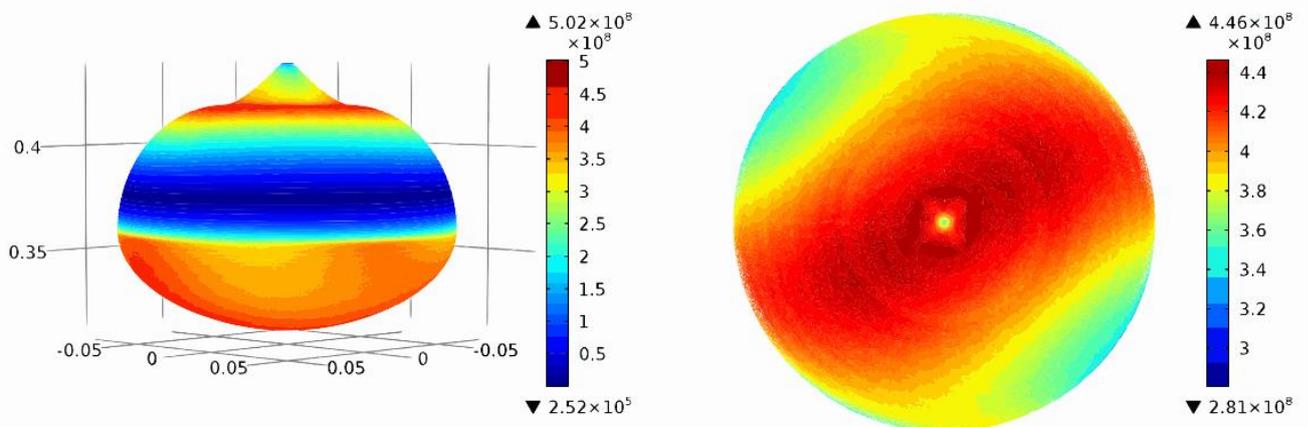
Le [Tableau 5.1](#) montre que les contraintes de von Mises maximales sont réduites pour tous les niveaux en introduisant un chauffage résistif supplémentaire au fond du creuset. La diminution à la position de 50 mm d'épaule est plus importante que les autres positions (d'environ 61%). À partir de ce tableau, nous pouvons remarquer que les contraintes de von Mises maximales sont concentrées autour du cou de cristal (20 mm d'épaule) et à la surface externe de l'interface cristal-liquide pour les deux configurations, sans et avec chauffage résistif. Cependant, les valeurs de la contrainte minimale sont trouvées à la surface externe de la partie de l'épaule (50 mm d'épaule).

5.5 Effet de la rotation du cristal

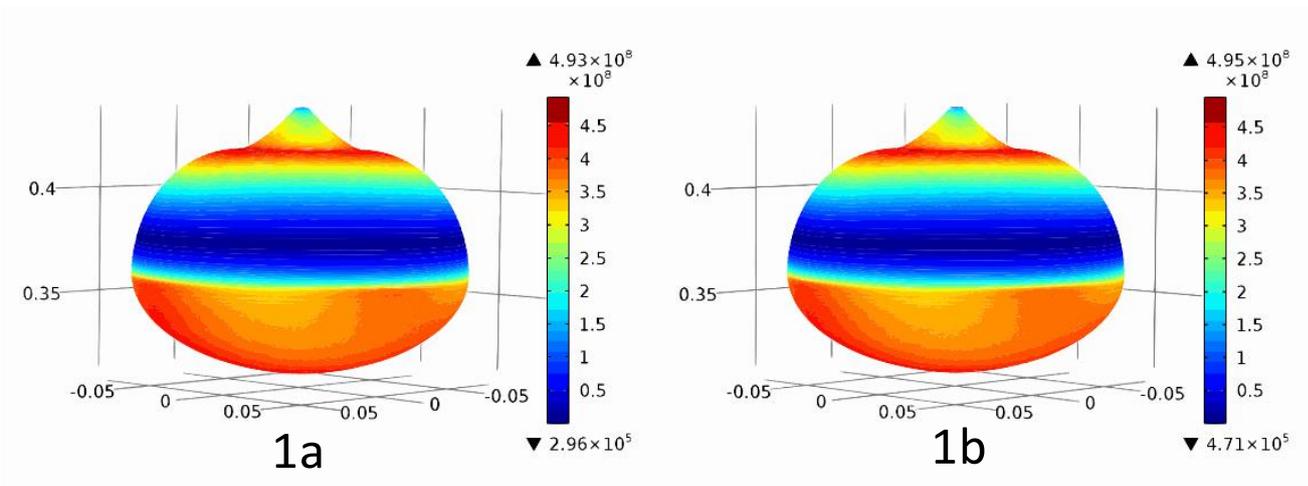
Comme indiqué ci-avant, nous montrons dans cette partie l'étude des résultats obtenus pour l'influence de la rotation du cristal sur la distribution des contraintes thermoélastiques dans le monocristal du saphir et sur l'interface cristal-liquide au cours de la croissance cristalline du saphir.

Commençons d'abord par le cas sans chauffage résistif et essayons de voir l'effet de la convection forcée seule. Pour cela, quatre vitesses de rotation de cristal ont été prises en compte et ont été variées de 1 tr/min jusqu'à 4 tr/min, comme indiqué à la Figure 5.7. Ces vitesses de rotation du cristal sont choisies en accord avec les conclusions de l'étude 2D axisymétrique des résultats en thermique, en hydrodynamique et en changement de phase.

En passant d'une vitesse de rotation nulle à une vitesse non nulle (1 tr/min), les valeurs des contraintes thermoélastiques diminuent légèrement. Ensuite, en faisant encore augmenter cette vitesse de 1 tr/min jusqu'à 4 tr/min, nous observons que la contrainte de von Mises n'est pas vraiment sensible à la rotation du cristal en absence du chauffage résistif.



cas de référence (sans chauffage résistif et sans rotation du cristal)



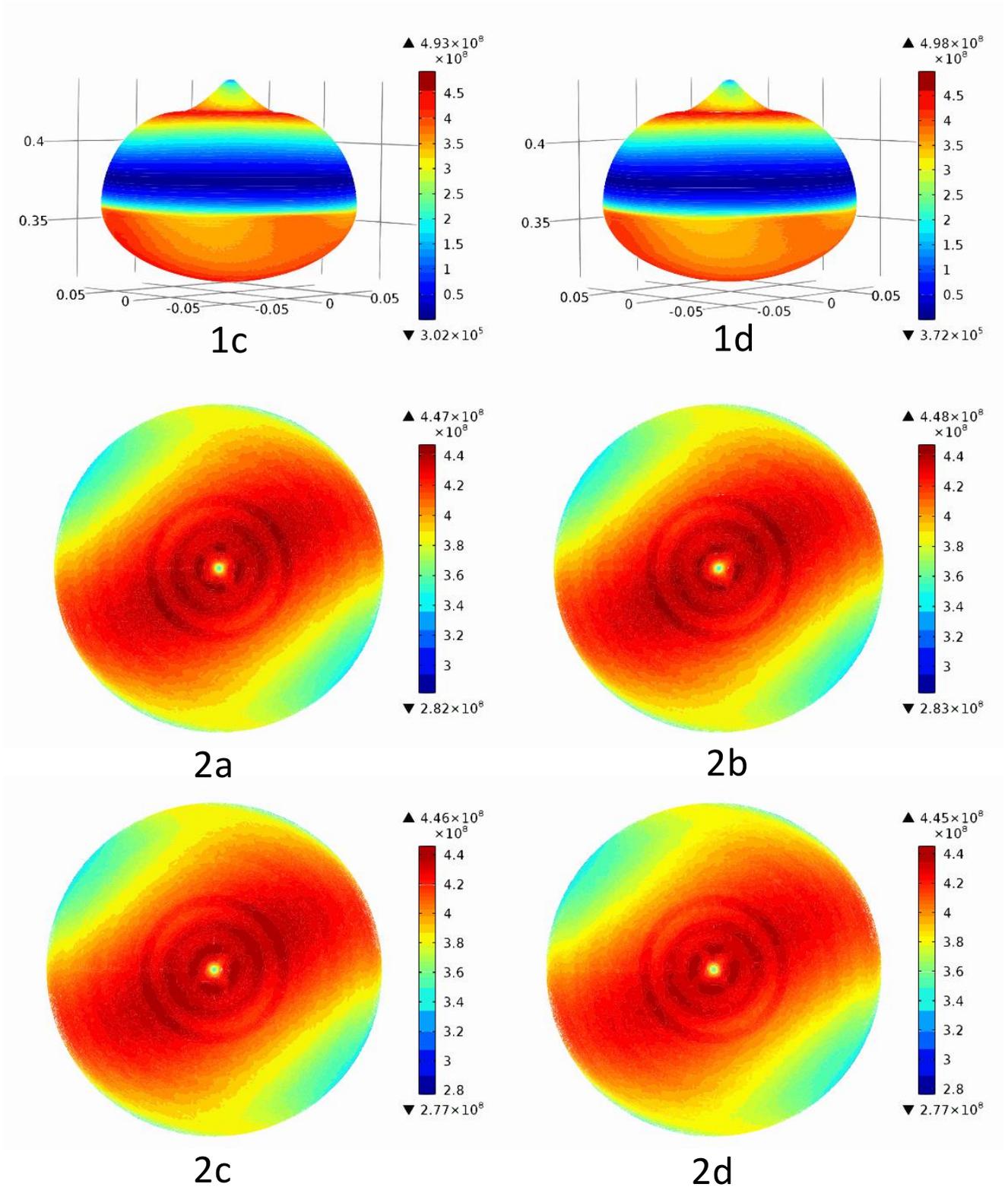


FIGURE 5.7 – Effet de la rotation du cristal sur la distribution de la contrainte 3D de von Mises (1) dans le cristal entier et (2) sur l'interface cristal-liquide (vue de dessous) : (a) $\omega_c = 1$ tr/min, (b) $\omega_c = 2$ tr/min, (c) $\omega_c = 3$ tr/min et (d) $\omega_c = 4$ tr/min.

Nous pouvons noter que pour la Figure 5.7, le maximum de la contrainte de von Mises apparaît à la région périphérique à proximité du germe, alors que la valeur la plus faible est située au centre de l'interface de croissance. Les contours non symétriques dans le cristal (surtout à l'interface) montrent clairement l'effet d'anisotropie décrit à la première section de ce chapitre. Lorsque le cristal ne tourne pas, la contrainte de von Mises est plus forte et se concentre principalement au coup du cristal. Cependant, lorsque le cristal tourne avec une vitesse $\omega_c = 1$ tr/min, la contrainte maximale de von Mises diminue dans le cristal (Figure 5.7.1a) et continue à diminuer jusqu'à la rotation du cristal $\omega_c = 1.5$ tr/min.

La diminution la plus importante de la contrainte de von Mises est atteinte pour la vitesse de rotation $\omega_c = 1.5$ tr/min. Ce résultat est en bon accord avec la variation de la convexité de l'interface cristal-liquide, qui a également été trouvée plus petite pour la même vitesse de rotation. Au-delà de cette vitesse de rotation, la contrainte maximale de von Mises augmente légèrement puis reste presque la même pour les vitesses de rotation supérieures (Figure 5.8).

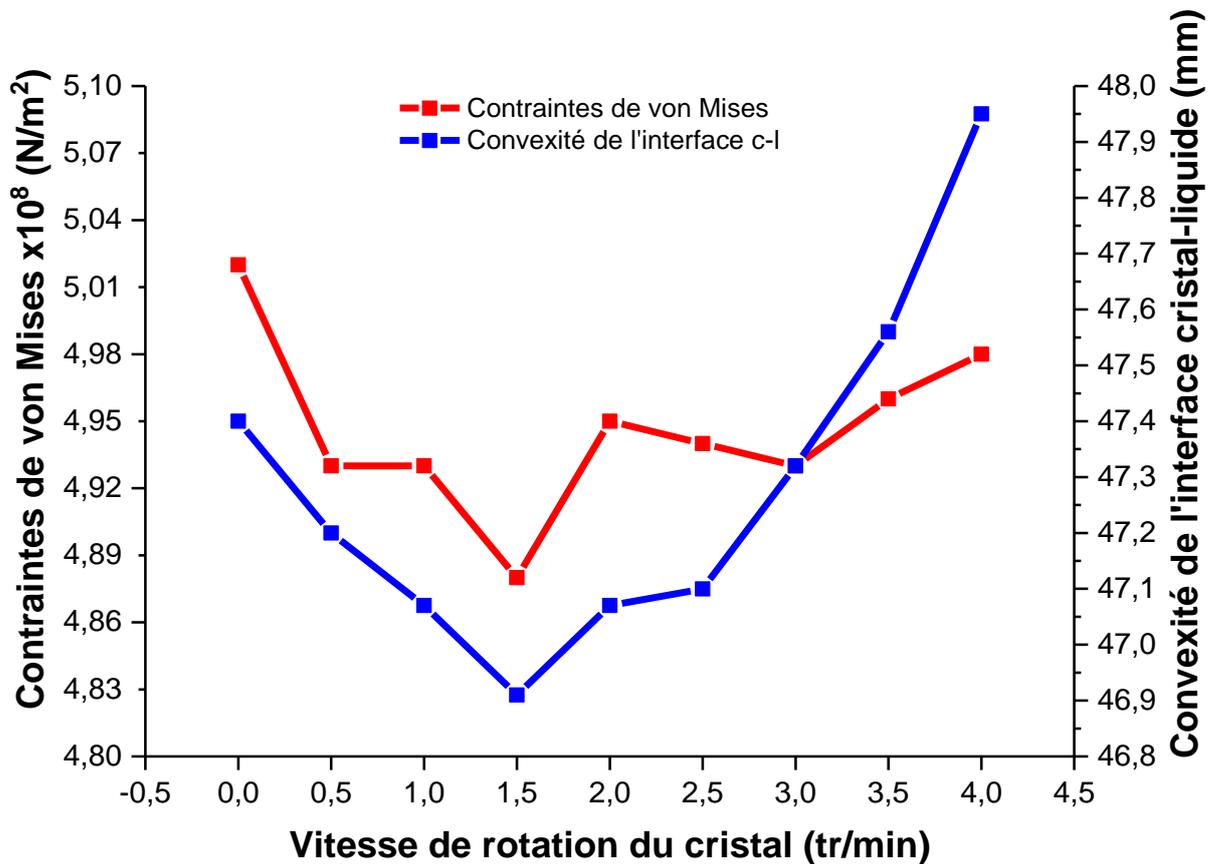
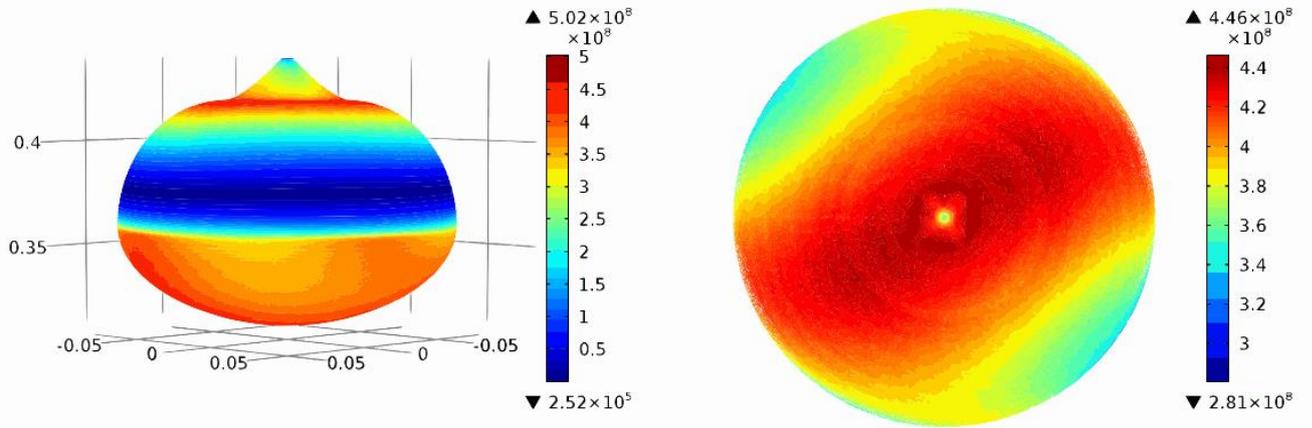


FIGURE 5.8 – Influence de la vitesse de rotation du cristal sur la contrainte 3D maximale de von Mises dans le cristal.

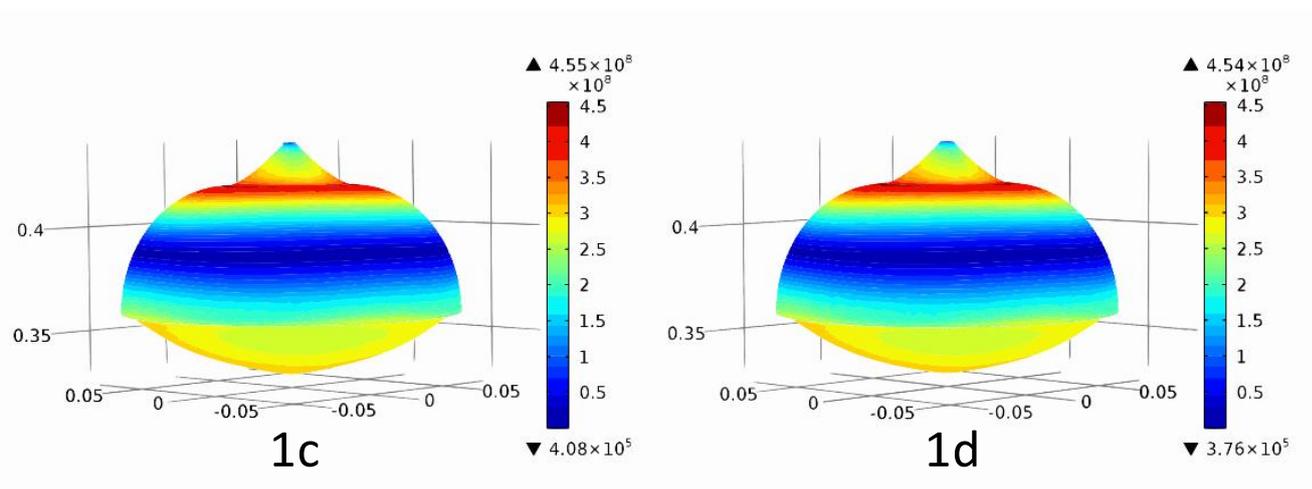
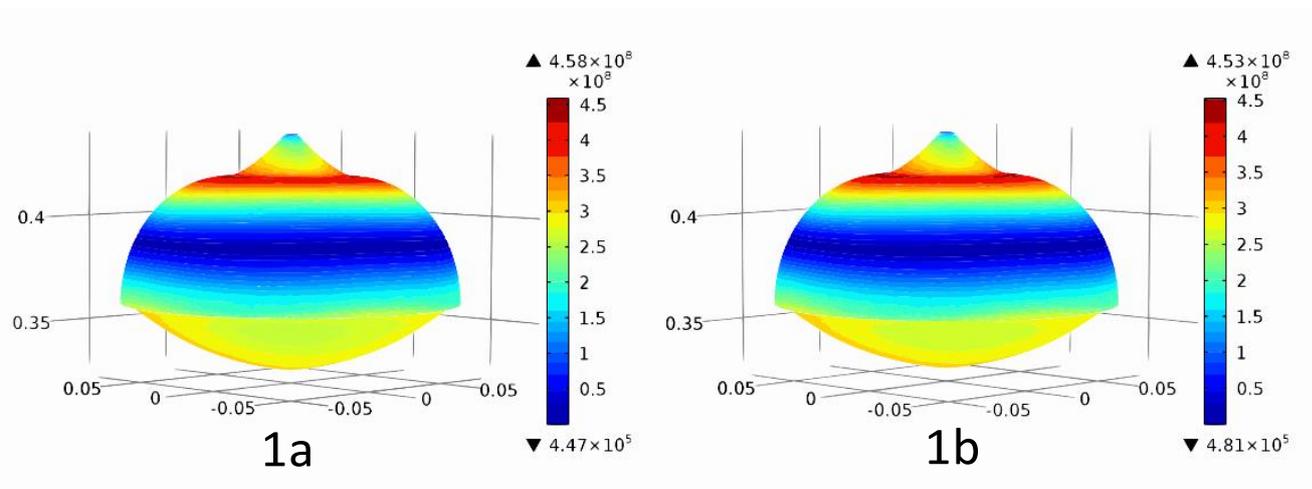
5.6 Effet combiné de la rotation de cristal et du chauffage résistif

Cette fois-ci, nous étudions l'effet combiné des trois paramètres précédents qui sont susceptibles d'affecter considérablement les contraintes thermoélastiques de von Mises dans

le cristal du saphir et sur l'interface cristal-liquide au cours de la croissance cristalline du saphir par la technique KY, à savoir : l'aspect anisotrope du cristal, la présence du chauffage résistif et de la rotation de cristal.



cas de référence (sans chauffage résistif et sans rotation du cristal)



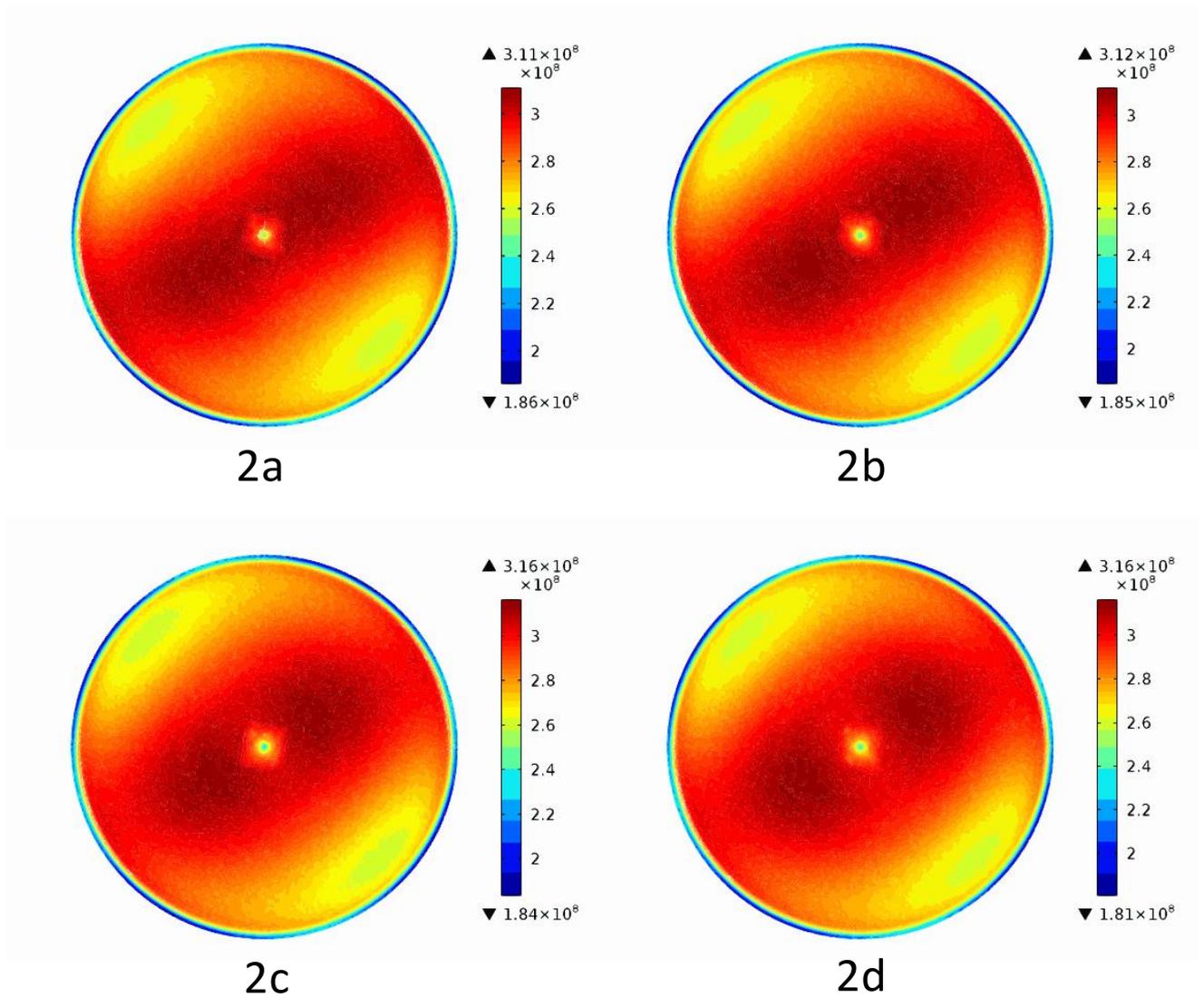


FIGURE 5.9 – Effet combiné du chauffage résistif et de la rotation de cristal sur la distribution de la contrainte 3D de von Mises dans l'ensemble du cristal (1) et sur l'interface cristal-liquide (vue de dessous) (2) : (a) $\omega_c = 1$ tr/min, (b) $\omega_c = 2$ tr/min, (c) $\omega_c = 3$ tr/min et (d) $\omega_c = 4$ tr/min.

Nous pouvons constater sur la [Figure 5.9](#) que lorsque le chauffage résistif est combiné avec la rotation du cristal, la contrainte de von Mises dans l'ensemble du cristal et en particulier sur l'interface c-l ne dépasse jamais les valeurs maximales et minimales trouvées que ce soit dans le cas de référence (absence du C.R et de la rotation du cristal), où dans le cas de la présence d'un chauffage résistif uniquement. En comparant avec les cas précédents, la contrainte de von Mises la plus élevée n'est observée qu'au voisinage du cou du cristal, tandis que l'interface c-l apparaît plus détendue (relaxée) notamment la ligne du point triple.

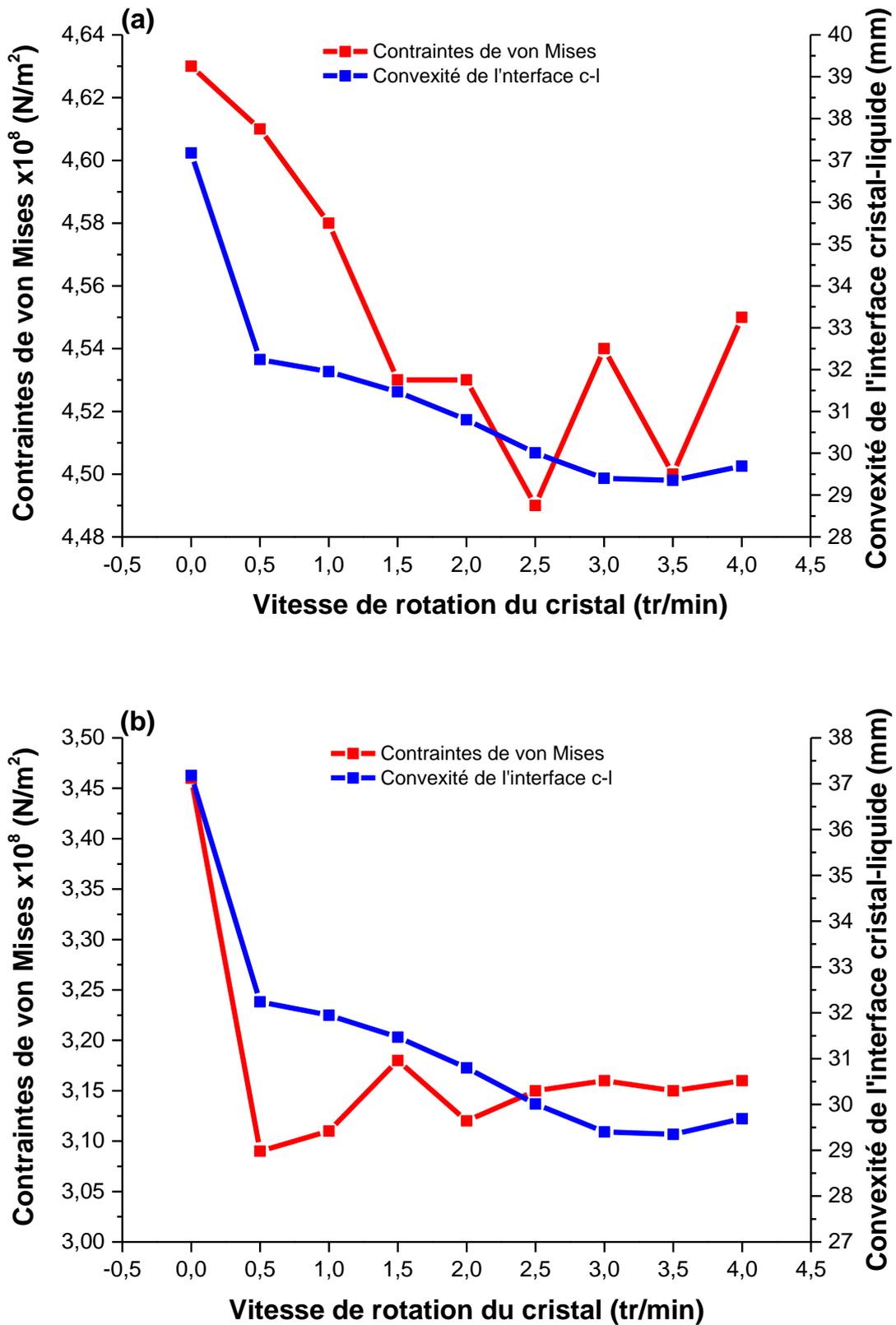


FIGURE 5.10 – Influence du chauffage résistif et de la vitesse de rotation du cristal sur la contrainte maximale de von Mises 3D dans le cristal (a) et sur l'interface cristal-liquide (b).

La contrainte de von Mises la plus élevée dans le cristal apparaît au niveau de la région périphérique près du germe cristallin avec une rotation $\omega_c = 0$ tr/min et la valeur minimale est trouvée lorsque le chauffage résistif est combiné à une rotation de cristal $\omega_c = 2,5$ tr/min. La contrainte de von Mises à l'interface c-l est également réduite et la valeur la plus basse est observée dans le cas de la rotation de cristal $\omega_c = 0,5$ tr/min (Figure 5.10a). En conséquence, la combinaison du chauffage résistif et de la rotation du cristal a non seulement un effet significatif sur la convexité de l'interface de croissance, comme démontré dans le chapitre précédent, mais également sur la distribution des contraintes de von Mises dans le cristal (Figure 5.10b).

Les valeurs maximales et minimales de la contrainte équivalente de von Mises $\sigma_{\text{Mises}} = \sqrt{3J_2}$ à différentes positions de l'axe Z lorsque la rotation du cristal est prise en compte et lorsque la rotation du cristal est combinée à un chauffage résistif sont résumées dans le Tableau 5.2.

TABLEAU 5.2 – Valeurs maximales et minimales de la contrainte de von Mises en différentes positions de l'axe Z, avec et sans chauffage résistif, à différentes rotations du cristal. L'effet positif de la rotation de cristal $\omega_c = 2$ tr/min, à réduire la contrainte de von Mises associé à un chauffage résistif supplémentaire, est clairement démontré.

Position sur l'axe Z (m)	Contraintes de von Mises (MPa)		
	Sans C.R	Avec C.R	Diminution (%)
	Max/Min	Max/Min	
20 mm de l'épaupe ($Z_1 = 0.42$)			
1 tr/min	496/31.2	447/29.1	9.879
2 tr/min	499/31.5	247/28.5	50.50
3 tr/min	503/31.8	450/28.7	10.53
4 tr/min	497/32.0	446/28.4	10.26
Ligne c-l de point triple ($Z_3 = 0.36$)			
1 tr/min	375/23.1	255/36.0	32.00
2 tr/min	377/23.2	249/35.2	33.95
3 tr/min	376/23.2	254/34.7	32.44
4 tr/min	372/23.1	254/35.0	31.72
20 mm de l'interface c-l ($Z_4 = 0.34$)			
1 tr/min	413/21.5	299/14.7	27.60
2 tr/min	414/21.4	301/13.5	27.29
3 tr/min	412/21.5	304/13.2	26.21
4 tr/min	415/21.6	305/13.8	26.50

La diminution de la contrainte maximale de von Mises est due à la diminution de la convexité de l'interface cristal-liquide et plus précisément à la non-linéarité du champ de température dans cette région. La répartition de la contrainte de von Mises et du profil de la température le long de la surface extérieure du cristal sont présentés à la Figure 5.11, avec et sans chauffage résistif. Nous notons que la valeur la plus élevée de la contrainte de von Mises correspond à la région à forte courbure de la température comme indiqué dans la même figure (cercle jaune épais).

Cette région est située à proximité du cou de cristal et la deuxième région où la contrainte de von Mises est importante est située à l'interface cristal-liquide. La contrainte minimale de von Mises coïncide avec la partie linéaire du profil de température (partie centrale du cristal) et la partie basse de l'interface cristal-liquide. Avec la présence du chauffage résistif au cours du processus de croissance, la contrainte maximale de von Mises est réduite à l'intérieur du cristal, comme indiqué ci-dessus, et elle est considérablement réduite à l'interface cristal-liquide. Ce résultat indique effectivement que la génération des contraintes thermoélastiques est liée aux non-linéarités de la température (courbure) et non aux gradients de température. Ce résultat est en très bon accord avec le travail de Peter Rudolph [114].

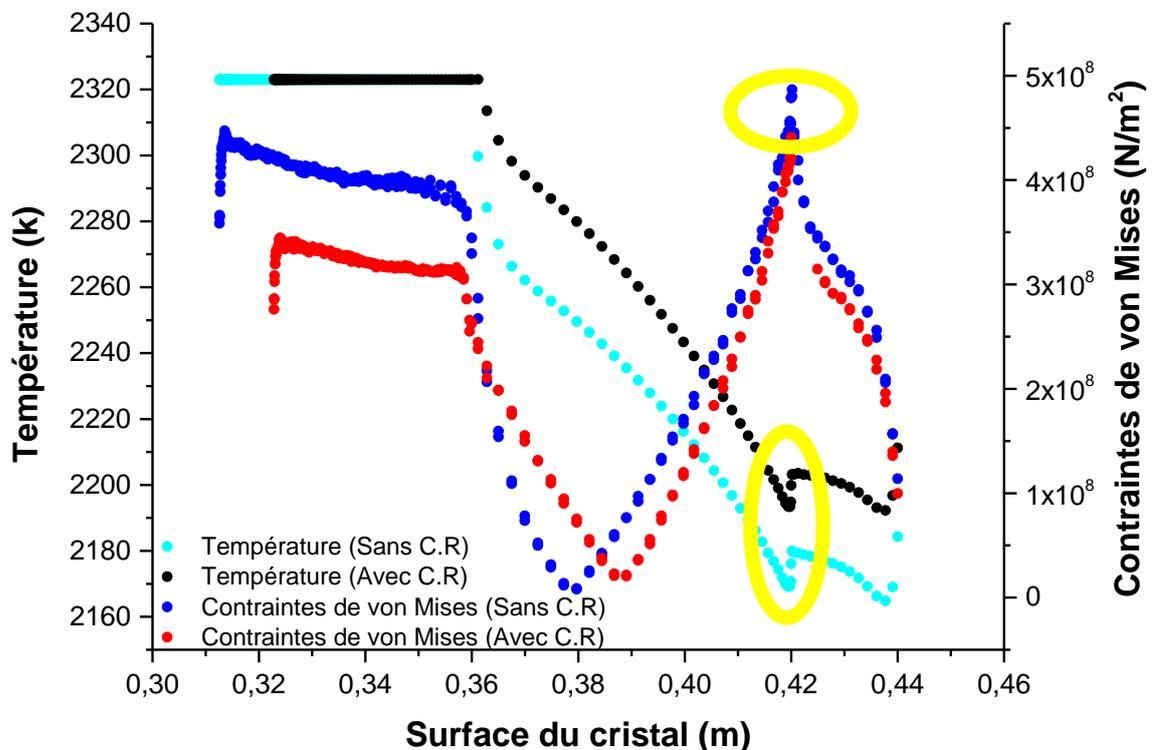


FIGURE 5.11 – Distribution des contraintes de von Mises et de la température le long de la surface extérieure du cristal avec et sans chauffage résistif ($\omega_c = 0$ tr/min).

5.7 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté des résultats numériques sur les contraintes thermoélastiques lors de la croissance cristalline du saphir par le procédé de Kyropoulos, en faisant varier des paramètres tels que l'anisotropie du cristal, l'ajout d'un chauffage résistif et enfin la rotation du cristal. Les résultats des calculs tridimensionnels des contraintes thermoélastiques sont comparés entre une analyse isotrope utilisant le module de Young et le coefficient de Poisson et une analyse anisotrope prenant en compte les constantes élastiques et les coefficients de dilatation thermique ainsi que leur dépendance en température dans le cas de la croissance suivant l'orientation cristallographique c (0001).

L'analyse isotrope fournit une distribution de von Mises complètement axisymétrique tandis que l'analyse anisotrope montre une distribution asymétrique. Les contraintes thermoélastiques obtenues lors de l'analyse isotrope sont plus élevées que celles trouvées avec l'analyse anisotrope. Par conséquent, l'évaluation des contraintes thermoélastiques dans le cristal du saphir au cours de la croissance ne peut être obtenue sans tenir compte de l'anisotropie du cristal. Pour les deux analyses, les résultats de la simulation prévoient des valeurs des contraintes thermoélastiques très élevées autour de la région proche de l'interface cristal-germe et cristal-liquide, tandis que de faibles contraintes thermoélastiques sont détectées au niveau de la partie centrale du cristal. Lorsque le chauffage résistif est ajouté au-dessous de la base du creuset, les contraintes de von Mises diminuent dans tout le cristal du saphir, y compris à l'interface cristal-liquide, permettant ainsi d'obtenir des cristaux de saphir de haute qualité.

La combinaison de la rotation de cristal avec le chauffage résistif supplémentaire au fond du creuset entraîne une diminution supplémentaire de la contrainte maximale de von Mises, ce qui permet d'améliorer la qualité du monocristal du saphir. La relation entre la non-linéarité de la température et les contraintes thermoélastiques de von Mises a été bien mise en évidence.

CONCLUSION GÉNÉRALE & PERSPECTIVES

L'objectif principal de cette thèse est d'étudier numériquement la croissance cristalline de type Kyropoulos (KY) permettant la croissance d'un monocristal de saphir de grand diamètre et de haute qualité optique. Nous nous sommes intéressés aux effets de la forme géométrique du creuset via le changement du coin de sa base inférieure (coin incurvé et/ou escamoté), l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire et de la rotation du cristal sur l'écoulement du fluide au sein du bain fondu, le transfert de chaleur dans la chambre chaude de croissance ainsi que la morphologie de l'interface cristal-liquide qui joue un rôle très important dans la qualité finale du lingot.

En effet, deux approches numériques ont été adoptées, à savoir : 2D axisymétrique et 3D. La première est utilisée pour le calcul des champs d'écoulement et de température ainsi que l'interface de croissance. Quant à la deuxième, elle est destinée aux calculs (3D) de contraintes thermoélastiques tridimensionnelles de von Mises tenant compte de l'anisotropie du monocristal de saphir. Notre modèle prend en compte le chauffage par induction, le chauffage résistif, le transfert de chaleur par conduction dans tous les éléments du four, la convection naturelle dans le bain fondu, l'échange de rayonnement entre les surfaces internes du four, la convection thermocapillaire à la surface libre du bain, le rayonnement interne dans le monocristal de saphir et le changement de phase.

Nous avons montré l'avantage d'utiliser un chauffage résistif supplémentaire au-dessous des trois creusets et la rotation de cristal, en particulier pour le cas du creuset à coin escamoté. En comparant avec le creuset de référence (creuset cylindrique), le creuset ayant une forme de coin escamotée ou incurvée diminue à la fois l'intensité de l'écoulement du saphir fondu et la convexité de l'interface cristal-liquide.

En plus des gradients thermiques radiaux induits par le chauffage inductif dans le bain fondu du saphir, l'ajout d'un chauffage résistif au-dessous du creuset apporte plus de chaleur aux parois de creuset générant ainsi des gradients thermiques axiaux entre le fond du creuset et l'interface de croissance cristal-liquide. En effet, ce chauffage additionnel contribue non seulement d'intensifier l'écoulement dans le bain liquide mais aide aussi à obtenir une convexité d'interface faible permettant ainsi d'obtenir des cristaux de saphir de meilleure qualité.

Pour toutes les formes du creuset, la rotation du cristal induit des modifications insignifiantes en matière de convexité de l'interface et cela lorsque la chaleur est générée uniquement par le chauffage inductif. En revanche, la combinaison de la rotation du cristal avec le chauffage résistif permet de diminuer le gradient thermique radial à l'interface de la croissance et d'obtenir ainsi une convexité d'interface encore plus faible qui améliore à son tour la qualité finale du cristal.

La convexité de l'interface cristal-liquide est réduite de 22%, 24% et 26% en cas d'utilisation d'un chauffage résistif supplémentaire et de 38%, 44% et 48% lorsque ce

chauffage est combiné avec la rotation du cristal pour le creuset de référence (creuset cylindrique), le creuset à coin incurvé et escamoté, respectivement. Une interface de croissance moins convexe et plus stable a été obtenue en utilisant un creuset à coin escamoté et un chauffage résistif supplémentaire au fond du creuset pour une vitesse de rotation du cristal donnée ($\omega_c = 4$ tr/min).

Concernant les calculs tridimensionnels (3D), le champ thermique et les contraintes thermoélastiques engendrées dans le saphir pendant la croissance de KY sont présentés. Les effets d'un chauffage résistif supplémentaire et de la rotation du cristal sont étudiés et une comparaison est faite entre l'analyse isotrope et l'analyse anisotrope dans le monocristal de saphir de classe trigonale $3\bar{m}$. Seul le module de Young et le coefficient de Poisson sont utilisés dans le calcul des contraintes thermoélastiques dans le cas isotrope. En revanche, l'anisotropie et la dépendance des coefficients de la matrice d'élasticité ainsi que les coefficients de dilatation thermique sont utilisés dans le cas anisotrope.

Les résultats tridimensionnels obtenus montrent que les contraintes thermoélastiques sont plus faibles dans l'analyse anisotrope que dans l'analyse isotrope et une différence significative est observée dans leurs modèles de distribution respectifs. Nous avons constaté que la contrainte de von Mises est sensible à la convexité de l'interface cristal-liquide, qui est réduite par l'ajout d'un chauffage résistif supplémentaire au-dessous du creuset.

En outre, la rotation du cristal, combinée au chauffage résistif, diminue considérablement les contraintes thermoélastiques à l'intérieur du monocristal de saphir et le long de l'interface cristal-liquide lorsque l'anisotropie du saphir est prise en compte. Sur la base de nos analyses, l'optimisation des conditions de chauffage et l'utilisation d'une rotation appropriée du cristal semblent être bénéfiques pour réduire les défauts liés aux contraintes thermoélastiques pendant le processus de croissance du saphir par la méthode Kyropoulos.

Comme perspectives à ce travail, nous proposons :

- D'étendre cette étude à d'autres stades de croissance avec une gamme de rotation plus large afin d'étudier la thermoconvection au sein du bain fondu ainsi que la forme de l'interface cristal-liquide ;
- D'inclure le mode de transfert de chaleur par convection dans l'atmosphère de croissance de la chambre chaude, vu sa contribution importante dans le transport de chaleur globale dans le four ;
- On outre, des calculs tridimensionnels en instationnaire pourraient également être réalisés pour les cas considérés afin de reproduire une situation plus proche des conditions de croissance réelle durant le procédé de croissance cristalline de type Kyropoulos ;
- De calculer la densité de dislocation dans le cristal dans le cadre d'une étude instationnaire tridimensionnelle en considérant le comportement élasto-plastique du cristal ;
- Enfin, il est aussi d'une grande importance de vérifier les résultats numériques par des expériences pour vérifier et valider la modélisation et les résultats obtenus.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Gyulai, Z. (1963). Das Weiterwachsen von plastisch deformierten NaCl-Kristallen. *Zeitschrift für Physik*, 176(4), 370-379.
- [2] Sellers, D. J., Heuer, A. H., Rhodes, W. H., & Vasilos, T. (1967). Alumina Crystal Growth by Solid-State Techniques. *Journal of the American Ceramic Society*, 50(4), 217-218.
- [3] Fleischer, L. R., & Tobin, J. M. (1971). Growth of transition metal carbide single crystals by recrystallization: I. Preparation of fully-dense transition metal carbide. *Journal of Crystal Growth*, 8(3), 235-242.
- [4] Verneuil, A. (1904). Reproduction artificielle du rubis par fusion. *Nature (Paris)*, 32, 77.
- [5] Teal, G. K., & Little, J. B. (1950, January). Growth of germanium single crystals. In *Physical review* (Vol. 78, No. 5, pp. 647-647).
- [6] Theodore, H. M. (1960). Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187, 493-94.
- [7] Johnson, L. F., & Nassau, K. (1961). First continuous operation of an optically pumped solid-state laser in Nd: CaWO₄ at 1.06 microns. *Proc. IRE*, 49, 1704.
- [8] Timofeev, V. V., Kalaev, V. V., & Ivanov, V. G. (2016). Effect of heating conditions on flow patterns during the seeding stage of Kyropoulos sapphire crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, 445, 47-52.
- [9] <http://www.rubicontechnology.com/>
- [10] Nehari, A., Brenier, A., Panzer, G., Lebbou, K., Godfroy, J., Labor, S., Legal, H., Chériaux, G., Chambaret, J., Duffar, T., & Moncorgé, R. (2010). Ti-Doped Sapphire (Al₂O₃) Single crystals grown by the Kyropoulos technique and optical characterizations. *Crystal growth & design*, 11(2), 445-448.
- [11] <http://www.yole.fr/>
- [12] Kononets, V. (2014). *Growth from melt by micro-pulling down (μ -PD) and Czochralski (Cz) techniques and characterization of LGSO and garnet scintillator crystals* (Doctoral dissertation).
- [13] Alombert-Goget, G., Sen, G., Pezzani, C., Barthalay, N., Duffar, T., & Lebbou, K. (2016). Large Ti-doped sapphire single crystals grown by the kyropoulos technique for petawatt power laser application. *Optical Materials*, 61, 21-24.
- [14] Alombert-Goget, G., Lebbou, K., Barthalay, N., Legal, H., & Chériaux, G. (2014). Large Ti-doped sapphire bulk crystal for high power laser applications. *Optical Materials*, 36(12), 2004-2006.
- [15] Dobrovinskaya, E. R., Lytvynov, L. A., & Pishchik, V. (2009). *Sapphire: material, manufacturing, applications*. Springer Science & Business Media.

- [16] Antonov, P. I., & Kurlov, V. N. (2002). A review of developments in shaped crystal growth of sapphire by the Stepanov and related techniques. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 44(2), 63-122.
- [17] Harris, D. C. (2009, August). A century of sapphire crystal growth: origin of the EFG method. In *Optical Materials and Structures Technologies IV* (Vol. 7425, p. 74250P). International Society for Optics and Photonics.
- [18] Akselrod, M. S., & Bruni, F. J. (2012). Modern trends in crystal growth and new applications of sapphire. *Journal of crystal growth*, 360, 134-145.
- [19] Scheel, H. J. (2000). Historical aspects of crystal growth technology. *Journal of Crystal Growth*, 211(1-4), 1-12.
- [20] Kurlov, V. N., Rossolenko, S. N., Abrosimov, N. V., & Lebbou, K. (2010). Crystal Growth Processes Based on Capillarity: Czochralski, Floating Zone, Shaping and Crucible Techniques. Chapter 5. Shaped Crystal Growth (pages 277-354).
- [21] Tatarchenko, V. A. (1993). *Shaped crystal growth* (Vol. 20). Springer Science & Business Media.
- [22] Alombert-Goget, G., Li, H., Faria, J., Labor, S., Guignier, D., & Lebbou, K. (2016). Titanium distribution in Ti-sapphire single crystals grown by Czochralski and Verneuil technique. *Optical Materials*, 51, 1-4.
- [23] Samanta, G., Yeckel, A., Daggolu, P., Fang, H., Bourret-Courchesne, E. D., & Derby, J. J. (2011). Analysis of limits for sapphire growth in a micro-pulling-down system. *Journal of Crystal Growth*, 335(1), 148-159.
- [24] Fang, H., Tian, J., Zhang, Q., Pan, Y., & Wang, S. (2012). Study of melt convection and interface shape during sapphire crystal growth by Czochralski method. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 55(25-26), 8003-8009.
- [25] Fang, H. S., Pan, Y. Y., Zheng, L. L., Zhang, Q. J., Wang, S., & Jin, Z. L. (2013). To investigate interface shape and thermal stress during sapphire single crystal growth by the Cz method. *Journal of Crystal Growth*, 363, 25-32.
- [26] Li, H., Ghezal, E. A., Nehari, A., Alombert-Goget, G., Brenier, A., & Lebbou, K. (2013). Bubbles defects distribution in sapphire bulk crystals grown by Czochralski technique. *Optical Materials*, 35(5), 1071-1076.
- [27] Li, H., Ghezal, E. A., Alombert-Goget, G., Breton, G., Ingargiola, J. M., Brenier, A., & Lebbou, K. (2014). Qualitative and quantitative bubbles defects analysis in undoped and Ti-doped sapphire crystals grown by Czochralski technique. *Optical Materials*, 37, 132-138.
- [28] Hur, M. J., Han, X. F., Song, D. S., Kim, T. H., Lee, N. J., Jeong, Y. J., & Yi, K. W. (2014). The influence of crucible and crystal rotation on the sapphire single crystal growth interface shape in a resistance heated Czochralski system. *Journal of Crystal Growth*, 385, 22-27.

- [29] Alombert-Goget, G., Li, H., Guyot, Y., Brenier, A., & Lebbou, K. (2016). Luminescence and coloration of undoped and Ti-doped sapphire crystals grown by Czochralski technique. *Journal of Luminescence*, *169*, 516-519.
- [30] Nguyen, T. P., Hsieh, Y. T., Chen, J. C., Hu, C., & Nguyen, H. B. (2017). 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*, *468*, 514-525.
- [31] Nguyen, T. P., & Chen, J. C. (2019). Effect of crucible and crystal rotations on the solute distribution in large size sapphire crystals during Czochralski growth. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *130*, 1307-1321.
- [32] Demina, S. E., Bystrova, E. N., Lukanina, M. A., Mamedov, V. M., Yuferev, V. S., Eskov, E. V., & KalaeV, V. V. (2007). Numerical analysis of sapphire crystal growth by the Kyropoulos technique. *Optical Materials*, *30*(1), 62-65.
- [33] Demina, S. E., Bystrova, E. N., Postolov, V. S., Eskov, E. V., Nikolenko, M. V., Marshanin, D. A., & KalaeV, V. V. (2008). Use of numerical simulation for growing high-quality sapphire crystals by the Kyropoulos method. *Journal of Crystal Growth*, *310*(7-9), 1443-1447.
- [34] Lee, W. J., Lee, Y. C., Jo, H. H., & Park, Y. H. (2011). Effect of crucible geometry on melt convection and interface shape during Kyropoulos growth of sapphire single crystal. *Journal of Crystal Growth*, *324*(1), 248-254.
- [35] Chen, C. H., Chen, J. C., Lu, C. W., & Liu, C. M. (2011). Numerical simulation of heat and fluid flows for sapphire single crystal growth by the Kyropoulos method. *Journal of Crystal Growth*, *318*(1), 162-167.
- [36] Chen, C. H., Chen, J. C., Lu, C. W., & Liu, C. M. (2012). Effect of power arrangement on the crystal shape during the Kyropoulos sapphire crystal growth process. *Journal of Crystal Growth*, *352*(1), 9-15.
- [37] Fang, H. S., Jin, Z. L., Zhang, M. J., Zhang, Z., & Zhao, C. J. (2013). Role of internal radiation at the different growth stages of sapphire by Kyropoulos method. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *67*, 967-973.
- [38] Fang, H. S., Wang, S., Jin, Z. L., Tian, J., & Xu, J. F. (2013). Crystal cracking analysis and three-dimensional effects during Kyropoulos sapphire growth. *Crystal Research and Technology*, *48*(9), 649-657.
- [39] Chen, C. H., Chen, J. C., Chiue, Y. S., Chang, C. H., Liu, C. M., & Chen, C. Y. (2014). Thermal and stress distributions in larger sapphire crystals during the cooling process in a Kyropoulos furnace. *Journal of Crystal Growth*, *385*, 55-60.
- [40] Chen, C., Chen, H. J., Yan, W. B., Min, C. H., Yu, H. Q., Wang, Y. M., & Liu, C. C. (2014). Effect of crucible shape on heat transport and melt-crystal interface during the Kyropoulos sapphire crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, *388*, 29-34.

- [41] Timofeev, V. V., Kalaev, V. V., & Ivanov, V. G. (2015). 3D melt convection in sapphire crystal growth: Evaluation of physical properties. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *87*, 42-48.
- [42] Liu, W., Lu, J., Chen, H., Yan, W., Min, C., Lian, Q., Wang, Y., Cheng, P., Liu, C., & Xu, Y. (2015). Study on crystal-melt interface shape of sapphire crystal growth by the KY method. *Journal of Crystal Growth*, *431*, 15-23.
- [43] Wang, S., & Fang, H. (2016). Dependence of thermal stress evolution on power allocation during Kyropoulos sapphire cooling process. *Applied Thermal Engineering*, *95*, 150-156.
- [44] Alombert-Goget, G., Sen, G., Pezzani, C., Barthalay, N., Duffar, T., & Lebbou, K. (2016). Large Ti-doped sapphire single crystals grown by the kyropoulos technique for petawatt power laser application. *Optical Materials*, *61*, 21-24.
- [45] Zermout, S., Mokhtari, F., Nehari, A., & Lasloudji, I. (2018). Numerical study on the effect of additional resistive heating and crystal rotation on sapphire single crystals (Al_2O_3) grown by the Kyropoulos method. *CrystEngComm*, *20*(35), 5220-5227.
- [46] Nguyen, T. P., Chuang, H. T., Chen, J. C., & Hu, C. (2018). Effect of power history on the shape and the thermal stress of a large sapphire crystal during the Kyropoulos process. *Journal of Crystal Growth*, *484*, 43-49.
- [47] Zermout, S., Mokhtari, F., Nehari, A., Lasloudji, I., Haddad, F., & Merah, A. (2019). 3D Anisotropic Stress Analysis during Kyropoulos Growth of Sapphire Single Crystal. *Crystal Research and Technology*, *54*(8), 1900058.
- [48] Chen, J. C., & Lu, C. W. (2004). Influence of the crucible geometry on the shape of the melt-crystal interface during growth of sapphire crystal using a heat exchanger method. *Journal of crystal growth*, *266*(1-3), 239-245.
- [49] Wu, M., Zhao, W., Liu, L., Yang, Y., Ma, W., & Wang, Y. (2014). Effects of crucible cover on heat transfer during sapphire crystal growth by heat exchanger method. *Journal of Crystal Growth*, *404*, 130-135.
- [50] Wu, M., Liu, L., & Ma, W. (2017). Control of melt-crystal interface shape during sapphire crystal growth by heat exchanger method. *Journal of Crystal Growth*, *474*, 31-36.
- [51] Ma, W., & Liu, L. (2017). Investigation of heat transfer and thermal stress during sapphire crystal growth process by heat exchanger method: Evaluation of radiation models. *Journal of Crystal Growth*, *468*, 909-913.
- [52] Xu, X., Dai, B., Yang, L., Han, J., & Zhu, J. (2019). Axisymmetric lattice Boltzmann simulation of the heat-exchanger method-based sapphire crystal growth. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *129*, 299-309.
- [53] Kuandykov, L. L., Bakholdin, S. I., & Antonov, P. I. (2005). An experimental study of thermal field jumps in a sapphire single-crystal ribbon grown by the Stepanov/EFG method. *Journal of Crystal Growth*, *275*(1-2), e619-e624.

- [54] Bunoïu, O., Defoort, F., Santailier, J. L., Duffar, T., & Nicoara, I. (2005). Thermodynamic analyses of gases formed during the EFG sapphire growth process. *Journal of Crystal Growth*, 275(1-2), e1707-e1713.
- [55] Yu, Q., Liu, L., Jiang, B., Li, Z., Xu, Y., & Xue, K. (2014). 3D numerical investigation and improvement to the design of the thermal field before seeding in a multi-die edge-defined film-fed growth system for sapphire ribbon crystals. *Journal of Crystal Growth*, 385, 49-54.
- [56] Stoddard, N., Seitz, M., Seitz, M., & Mushock, W. (2020). Surface defects in EFG sapphire single crystals. *Journal of Crystal Growth*, 530, 125306.
- [57] Bunoïu, O. M., Duffar, T., & Nicoara, I. (2010). Gas bubbles in shaped sapphire. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 56(3-4), 123-145.
- [58] Nehari, A., Mehnaoui, M., Breton, G., Gullin, Y., Orival, S., Panczer, G., Brenier, A., Lebbou, K., Godfroy, J., Labor, S & Legal, H. (2010). Al₂O₃ shaped crystals grown under stationary stable state and optical characterizations. *Optical Materials*, 32(7), 780-782.
- [59] Nehari, A., Laidoune, A., Khetib, M., Grosvalet, L., Brenier, A., Panczer, G., Godfroy, J., Labor, S & Lebbou, K. (2011). Fibers and square sapphire shaped single crystals grown from the melt and optical characterization. *Optical Materials*, 34(2), 365-367.
- [60] Ghezal, E. A., Li, H., Nehari, A., Alombert-Goget, G., Brenier, A., Lebbou, K., Joubert, M. F & Soltani, M. T. (2012). Effect of Pulling Rate on Bubbles Distribution in Sapphire Crystals Grown by the Micropulling Down (μ -PD) Technique. *Crystal Growth & Design*, 12(8), 4098-4103.
- [61] Ghezal, E. A., Nehari, A., Lebbou, K., & Duffar, T. (2012). Observation of gas bubble incorporation during micropulling-down growth of sapphire. *Crystal Growth & Design*, 12(11), 5715-5719.
- [62] Samanta, G., Yeckel, A., Bourret-Courchesne, E. D., & Derby, J. J. (2012). Parametric sensitivity and temporal dynamics of sapphire crystal growth via the micro-pulling-down method. *Journal of Crystal Growth*, 359, 99-106.
- [63] Yokota, Y., Chani, V., Sato, M., Tota, K., Onodera, K., Yanagida, T., & Yoshikawa, A. (2011). Growth and crystallinity of shaped and multiple sapphire crystals by a micro-pulling-down method. *Journal of Crystal Growth*, 318(1), 983-986.
- [64] Bouaita, R., Alombert-Goget, G., Ghezal, E. A., Nehari, A., Benamara, O., Benchiheub, M., Cagnoli, G., Yamamoto, K., Xu, X., Li, H., Dujardin, C., & Lebbou, K. (2019). Seed orientation and pulling rate effects on bubbles and strains distribution on sapphire crystal grown by micro-pulling down method. *CrystEngComm*.
- [65] Kurlov, V. N. (2016) Sapphire: Properties, Growth, and Applications, *Reference Module in Materials Science and Materials Engineering*. Oxford: Elsevier. 1-11.
- [66] Czochralski, J. (1918). Ein neues verfahren zur messung der kristallisationsgeschwindigkeit der metalle. *Zeitschrift für physikalische Chemie*, 92(1), 219-221.

- [67] Mokhtari, F., Bouabdallah, A., Zizi, M., & Alemany, A. (2006). Crystal growth in the process of modified Czochralski. *MagnetoHydroDynamics*, 42, 451-468.
- [68] Mokhtari, F., Bouabdallah, A., Zizi, M., Hanchi, S., & Alemany, A. (2009). Combined effects of crucible geometry and Marangoni convection on silicon Czochralski crystal growth. *Crystal Research and Technology: Journal of Experimental and Industrial Crystallography*, 44(8), 787-799.
- [69] Mokhtari, F., Bouabdallah, A., Merah, A., Zizi, M., Hanchi, S., & Alemany, A. (2010). Three-dimensional study of the pressure field and advantages of hemispherical crucible in silicon Czochralski crystal growth. *Crystal Research and Technology: Journal of Experimental and Industrial Crystallography*, 45(6), 573-582.
- [70] Lasloudji, I., Mokhtari, F., Nehari, A., Alombert-Goget, G., & Lebbou, K. (2018). Experimental and numerical effects of active afterheater addition on the growth of langatate ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$) crystals by the Czochralski method. *CrystEngComm*, 20(8), 1110-1115.
- [71] Nehari, A., Alombert-Goget, G., Benamara, O., Cabane, H., Dumortier, M., Jeandel, P., Lasloudji, I., Mokhtari, F., Baron, T., Wong, G., Allani, M., Boy, J., Alzuaga, S., Arapan, L., Gegot, F., Dufar, T., & Lebbou, K. (2019). Czochralski crystal growth and characterization of large langatate ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$, LGT) crystals for SAW applications. *CrystEngComm*, 21(11), 1764-1771.
- [72] Miyagawa, C., Kobayashi, T., Taishi, T., & Hoshikawa, K. (2013). Demonstration of crack-free c-axis sapphire crystal growth using the vertical Bridgman method. *Journal of crystal growth*, 372, 95-99.
- [73] Miyagawa, C., Kobayashi, T., Taishi, T., & Hoshikawa, K. (2014). Development of the vertical Bridgman technique for 6-inch diameter c-axis sapphire growth supported by numerical simulation. *Journal of crystal growth*, 402, 83-89.
- [74] Hoshikawa, K., Osada, J., Saitou, Y., Ohba, E., Miyagawa, C., Kobayashi, T., Yanagisawa, J., Shinozuka, M., & Kanno, K. (2014). Vertical Bridgman growth of sapphire-Seed crystal shapes and seeding characteristics. *Journal of crystal growth*, 395, 80-89.
- [75] Kyropoulos, S. (1926). Ein Verfahren zur Herstellung großer Kristalle. *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie*, 154(1), 308-313.
- [76] Zhou, H., & Yao, S. (2005). Study of the system of quality inspection for sapphire wafer. *Applied Science and Technology*. 32(11). 21-24.
- [77] Theodore, F. (1998). *Preformage de monocristaux de saphir optique optimisation de la croissance hors fissuration par simulation numerique du probleme thermomecanique* (Doctoral dissertation, Grenoble INPG).
- [78] Musatov, M. (1977). Causes of bubbles in Corundum Crystals, *Zvestiya Akademii Nauk SSSR, Neorganicheskie Materialy*. 15(10), 1805-1810.
- [79] Borodin, V., Steriopolo. T., Tatarchenko, V., Yolovets, T., & Bondarenko, L. (1983) Effect of growth conditions on the actual structures of profiled sapphire crystals, *Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Seriya Fizicheskaya*, X. 49(12), 2380-2385.

- [80] Ivantsov, V., & Antonov, P. (1994). Gaseous Inclusions in shaped α - Al_2O_3 , Their Features and Elimination, *Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Seriya Fizicheskaya*, 58(9), 1482-1486.
- [81] Tang, H., Li, H., & Xu, J. (2013). Growth and development of sapphire crystal for LED applications. *Advanced Topics on Crystal Growth*, 310-312.
- [82] Wang, G. G., Zhang, M. F., Zuo, H. B., HE, X. D., & HAN, J. C. (2006). Study on inclusions in large sapphire optical crystal grown by SAPMAC method. *Chinese Journal of Aeronautics*, 19(Supplement), S31-S35.
- [83] Alombert-Goget, G., Guyot, Y., Nehari, A., Benamara, O., Blanchard, N., Brenier, A., & Lebbou, K. (2018). Scattering defect in large diameter titanium-doped sapphire crystals grown by the Kyropoulos technique. *CrystEngComm*, 20(4), 412-419.
- [84] Fang, H. S., Lin, J. Z., Zheng, L. L., & Huang, X. M. (2015). Analysis and optimization of Czochralski laser oxide crystal growth. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 85, 505-512.
- [85] Demina, S. E., & KalaeV, V. V. (2011). 3D unsteady computer modeling of industrial scale Ky and Cz sapphire crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, 320(1), 23-27.
- [86] Magnus, W., & Schoenmaker, W. (2005). Introduction to electromagnetism. *Handbook of Numerical Analysis*, 13, 3-103.
- [87] SCHILDERS, W. H., & Ter Maten, E. J. W. (2005). *Numerical Methods in Electromagnetics: Special Volume* (Vol. 13). Elsevier.
- [88] Mills, A. F. (2009). *Heat and mass transfer*.
- [89] Rappaz, M., Bellet, M., & Deville, M. (2003). *Numerical modeling in materials science and engineering*. Springer Science & Verlag 2003.
- [90] Derby, J. J., & Brown, R. A. (1988). On the quasi-steady-state assumption in modeling Czochralski crystal growth. *Journal of crystal growth*, 87(2-3), 251-260.
- [91] Allgower, E. L., & Georg, K. (2003). *Introduction to numerical continuation methods* (Vol. 45). SIAM.
- [92] Modest, M. F. (2013). *Radiative heat transfer*. Academic press.
- [93] Nye, J. F. (1985). *Physical properties of crystals: their representation by tensors and matrices*. Oxford university press.
- [94] Chen, W., Tang, H., Wang, J., Yuan, Q., Jiang, D., Qian, X., & Xu, J. (2014). Research on the multi-crystalline structure in sapphire grown by Kyropoulos technique. *Crystal Research and Technology*, 49(7), 507-513.
- [95] Miyazaki, N. (2002). Development of a thermal stress analysis system for anisotropic single crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, 236(1-3), 455-465.
- [96] Zouboulis, E. S., & Grimsditch, M. (1991). Refractive index and elastic properties of single-crystal corundum (α - Al_2O_3) up to 2100 K. *Journal of applied physics*, 70(2), 772-776.

- [97] Sinogeikin, S. V., Lakshtanov, D. L., Nicholas, J. D., Jackson, J. M., & Bass, J. D. (2005). High temperature elasticity measurements on oxides by Brillouin spectroscopy with resistive and IR laser heating. *Journal of the European Ceramic Society*, 25(8), 1313-1324.
- [98] Goto, T., Anderson, O. L., Ohno, I., & Yamamoto, S. (1989). Elastic constants of corundum up to 1825 K. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 94(B6), 7588-7602.
- [99] Salem, J. A., Li, Z., & Bradt, R. C. (1994). Thermal expansion and elastic anisotropy in single crystal Al₂O₃ and SiC Reinforcements.
- [100] P.G. Ciarlet. (1998). Handbook of Numerical Analysis, Elsevier.
- [111] Logg, A., Mardal, K. A., & Wells, G. (Eds.). (2012). *Automated solution of differential equations by the finite element method: The FEniCS book* (Vol. 84). Springer Science & Business Media.
- [112] <https://www.comsol.eu/multiphysics/finite-element-method>.
- [113] CHEN, L. (2016). Finite Element Methods for Maxwell Equations. *Lecture Notes*.
- [114] Rudolph, P. (2016). Fundamentals and engineering of defects. *Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials*, 62(2), 89-110.

PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES

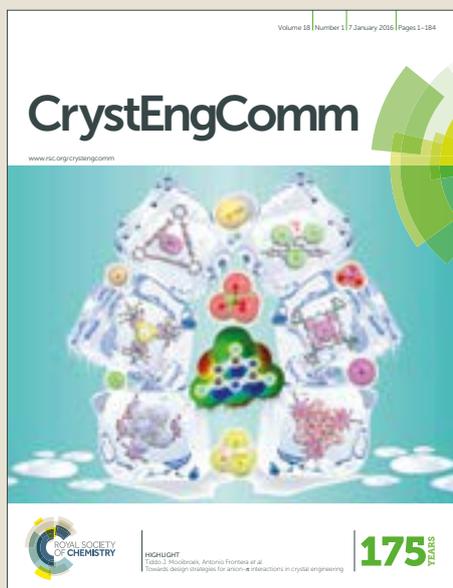
ACCEPTÉES

CrystEngComm

Accepted Manuscript



This article can be cited before page numbers have been issued, to do this please use: S. Zermout, F. Mokhtari, A. Nehari and I. Lasloudji, *CrystEngComm*, 2018, DOI: 10.1039/C8CE00972D.



This is an Accepted Manuscript, which has been through the Royal Society of Chemistry peer review process and has been accepted for publication.

Accepted Manuscripts are published online shortly after acceptance, before technical editing, formatting and proof reading. Using this free service, authors can make their results available to the community, in citable form, before we publish the edited article. We will replace this Accepted Manuscript with the edited and formatted Advance Article as soon as it is available.

You can find more information about Accepted Manuscripts in the [author guidelines](#).

Please note that technical editing may introduce minor changes to the text and/or graphics, which may alter content. The journal's standard [Terms & Conditions](#) and the ethical guidelines, outlined in our [author and reviewer resource centre](#), still apply. In no event shall the Royal Society of Chemistry be held responsible for any errors or omissions in this Accepted Manuscript or any consequences arising from the use of any information it contains.

Cite this: DOI: 10.1039/xxxxxxxxxx

Numerical study on the effect of additional resistive heating and crystal rotation on sapphire single crystals (Al_2O_3) grown by Kyropoulos method

Samir Zermout,^a Faiza Mokhtari,^b Abdeldjelil Nehari,^c and Idir Lasloudji*^b

Received Date

Accepted Date

DOI: 10.1039/xxxxxxxxxx

www.rsc.org/journalname

In this paper, numerical simulations were performed to investigate the effects of additional heater and crystal rotation on Kyropoulos (Ky) sapphire crystal growth for different crucible's corner shapes. The present model takes into account inductive heating, resistive heating, heat transfer by conduction in all furnace parts, free convection in melt, radiation exchange between inner furnace surfaces, thermo-capillary at the melt free surface, internal radiation inside sapphire crystal and phase change. The computational results show the advantage of using the additional heater and crystal rotation especially when slipped crucible bottom corner is used. The crucible with slipped and curved corner shapes decreases both the convexity of the melt-crystal interface and the flow intensity of the molten sapphire more than cylindrical crucible. The convexity of the melt-crystal interface is reduced by 22 %, 24 % and 26 % when additional heater is used and by 38 %, 44 % and 48 % when this heater is used with crystal rotation for cylindrical, curved and slipped crucible bottom shape respectively. Less convex and more stable growth interface can be obtained when using slipped crucible bottom shape and additional heater at the crucible bottom for a given crystal rotation rate.

1 Introduction

Sapphire single crystals are widely used in several applications because of the favorable combination of excellent optical, mechanical, thermal and chemical properties.¹ Today, several growth techniques allow producing sapphire crystals, namely Czochralski (Cz),^{2–4} heat exchanger method (HEM)^{5–7} and edge-defined film fed growth method (EFG).⁸ However, the most effective technique to produce large and high-perfection sapphire single crystals is Kyropoulos (Ky) method.^{9–11} Sapphire wafers are used in the semiconductor industry as a substrate for light emitting diodes (LED) and silicon-on-sapphire (SoS) wafers, optical systems and high power laser components. Sapphire has a melting point of over 2050 Celsius and excellent mechanical properties, making it ideal for high-temperature and high pressure applications.

Since crystal growth experiments at such high temperatures in which sapphire is grown are expensive and time consuming, numerical modeling could be an effective tool for studying dif-

ferent phenomena existing in the furnace and optimizing the growth process. A variety of modern high-tech applications requires growing high-quality sapphire crystals that are free of microscopic (such as microbubbles) and macroscopic defects (bubbles) that reduce the performance and reliability of devices. The presence of these defects can have a negative effect on the mechanical properties¹² and leads to thermal stresses, which cause great optical damage by decreasing transparency.^{3,13} Therefore, the decrease in the density of these defects inside large crystals becomes an important objective. Some studies have been made in this direction in order to analyze and remedy it.

Recently, G. Alombert-Goget *et al.*¹⁴ characterized by different techniques the scattering defect particular to Kyropoulos grown crystal and discussed the nature of this defect. In their work, they compared with the Czochralski technique for which the crystals present no defect and they found that the convex interface shape in the Kyropoulos is probably responsible of this defect. Thus, they propose to increase the rotation speed in the Kyropoulos growth in order to reduce the interface convexity as a potential way to eliminate the defect.

Many researchers have already carried out numerical simulation during Ky growth to reduce crystal-melt interface. Demina *et al.*^{9,10} discussed the relationship between quality of sapphire crystal and growing parameters by improving the hot zone of the Kyropoulos furnace. They showed the important effect of melt

^a Department of Mechanical Engineering, Mouloud Mammeri University of Tizi-Ouzou, B.P.17 RP, 15000, Algeria.

^b LTSE Laboratory, University of Science and Technology Houari Boumediene, BP 32 Elalia, Bab Ezzouar, Algiers, Algeria. E-mail: idir.lasloudji@etu.usthb.dz

^c Université de Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, CNRS, Institut Lumière Matière, F-69622 Villeurbanne, France.

convection on the crystal-melt interface and compared two hot zone configurations in order to get a more suitable flow structure for a stable solidification front. Later, Chun-Hung Chen *et al.*^{15,16} investigated the effects of the heater arrangement on thermal and flow transport, the shape of the melt-crystal interface, and the power requirements during the growth process in a resistance heated furnace to avoid the remelting phenomenon. H.S. Fang *et al.*¹⁷ studied the influence of internal radiation at different growth stages of sapphire and showed that it increases both the heat transfer in the melt and crystal and the convexity of the melt-crystal interface. They have shown also that at early growth stage, the interface and surface remelting are affected by Marangoni convection. C. Chen *et al.*¹⁸ proposed a special crucible shape that can lower the maximum velocity, the temperature gradient in the melt and the convexity of melt-crystal interface during crystal growth. In their paper, they investigated the effect of three different crucible shapes and they concluded that inverted conical crucible shape results in a more stable crystal-melt interface, a less intense melt flow and better temperature gradients. W.J. Lee *et al.*¹⁹ already showed the importance of the crucible geometry on the shape of melt-crystal interface and they found that the crucible with a curved bottom has advantages for the crystallization of the sapphire using the Kyropoulos method. In their simulations, they considered a cylindrical crucible with different bottom corner radius and they found that the convexity of the melt-crystal interface decreases with increasing radius. Weina Liu *et al.*²⁰ proposed to modify the heater arrangement to reduce the interface inversion and to adjust the power supply during final growth steps to get a more stable interface.

The previously mentioned studies show the importance of crystal-melt interface control for obtaining good quality crystals.

In this work, we propose to modify the heat zone temperature distribution by adding an electrically conductive disc under the crucible bottom in order to control the melt-crystal interface convexity for three different crucible shapes and different crystal rotation rates. Titanium addition is not taken into account in our study. This dopant modifies the absorption properties of the crystal resulting in a more convex crystal-melt interface compared to the one obtained in pure sapphire growth, however, we believe that the described furnace modifications will still have a positive effect in the presence of titanium.

At first, a global analysis of the inductively heated Ky furnace during the seeding process is developed to analyze the effect of the heat transport mechanism and natural convection in the melt generated by different crucible bottom shapes (cylindrical, curved and slipped corners). Then at an intermediate growth stage, the effect of an additional resistive heating and the rotation of crystal on the temperature distribution, melt convection behavior and shape of crystal-melt interface is investigated.

2 Modeling

2.1 Description of the geometrical configurations

In this Kyropoulos growth furnace, a Molybdenum crucible of 240 mm diameter, 200 mm height and 2 mm thickness is heated by radiation coming from a graphite susceptor. This graphite suscep-

tor is subject to an oscillating electric field due to the oscillating magnetic field generated by an RF coil in which a 10 kHz electric current flows. This electric field in turn induces Foucault currents that heat the graphite by Ohm's effect. The crucible is surrounded by a graphite-felt insulation and is placed on an electrically conductive disc of 160 mm diameter and 5mm thickness.

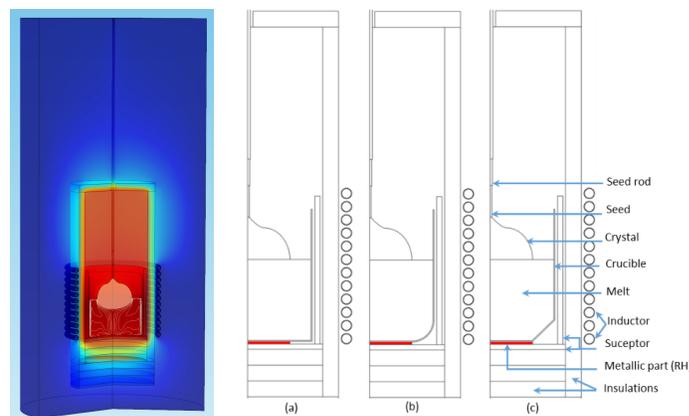


Fig. 1 Schematic of the Kyropoulos furnace at an intermediate growth stage: The temperature distribution of the whole system (left). Three crucible shapes used in our simulation: (a) cylindrical crucible (b) curved corner bottom and (c) slipped corner bottom (right).

This disc is submitted to an externally controlled tension to provide an additional heating to the bottom of the crucible. The schematic diagram of the growth system is shown in Fig. 1. Three crucible configurations are considered: Cylindrical crucible (Case 1), Curved crucible corner (Case 2) and Slipped crucible corner (Case 3) as shown in Figs. 1a, b and c respectively.

2.2 Numerical resolution

The simulations were performed using the finite element method (FEM). In order to take into account the resistive heating, a source term Q_{RH} is added to the heat equation. It is given by equation (1) where \mathbf{j} represents the electric current density obtained after solving electric continuity equation (2). σ is the electrical conductivity.

$$Q_{RH} = \frac{\mathbf{j}^2}{\sigma} \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{j} = 0 \quad (2)$$

In the sapphire melt, heat is transferred by conduction and convection. The following assumptions are applied in the present model: 1) the molten sapphire is assumed to be Newtonian incompressible and the convection is taken into account through Boussinesq approximation; 2) the whole system is assumed to be axisymmetric in quasi-steady state approximation. The governing equations for thermal and flow fields are as follows:

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (3)$$

$$\rho_l (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \mu_l \Delta \mathbf{v} + \mathbf{F} \quad (4)$$

$$\rho_l C p_l (\mathbf{v} \cdot \nabla T) + \nabla \cdot (-k_l \nabla T) = 0 \quad (5)$$

\mathbf{v} is the velocity field in the melt. ρ_l , μ_l and k_l are density, dynamic viscosity and thermal conductivity of melt. p is pressure. F is the buoyancy force expressed via Boussinesq approximation which assumes that variations in melt density are considered in the buoyancy term only.

We computed the melt-crystal interface using a deformed mesh. During such a transformation, matter from sapphire liquid is removed while the same amount of sapphire solid is added to the domain and the position of this interface is calculated according to the Stefan energy balance condition. We imposed the Stefan condition (6) on the interface:

$$k_l \left(\frac{\partial T}{\partial \mathbf{n}} \right)_l - k_c \left(\frac{\partial T}{\partial \mathbf{n}} \right)_c = \rho_c \Delta H_f V_{mesh} \quad (6)$$

Where k_c is thermal conductivity of crystal, \mathbf{n} is the normal vector to the interface, ΔH_f is the latent heat of fusion and V_{mesh} is the mesh velocity at the interface. More details about mathematical model can be found in Lasloudji *et al.*²¹.

3 Results and discussion

In investigating the influence of additional resistive heating and crystal rotation on temperature and flow fields, three different crucible shapes are considered: (Case 1), (Case 2) and (Case 3) corresponding to cylindrical, curved and slipped crucible corner shapes respectively as shown in Fig. 1. At first, the induction heating analysis is performed simultaneously with the computation of temperature and flow fields, as well as the melt-crystal interface shape, and then resistive heating and crystal rotation are added separately and simultaneously in order to study their effects/combined effects on the convexity of a c-axis sapphire crystal during Kyropoulos growth technique. Two growth stages are considered: (1) the first: before connecting the seed, (the initial mass of aluminum oxide (Al_2O_3) inside the crucible is about 80% of its entire volume). The second stage corresponds to an intermediate growth stage where the diameter of the grown crystal is 160 mm.

3.1 Stage before connection

At this stage and for all configurations, the isotherm of fusion (melting point of sapphire $T_m = 2323K$) must be located above the center of the melt free surface (the coldest point inside the melt is located at the middle of melt free surface) to be sure that all mass inside the crucible is melted. Due to the difference of melt volume caused by the different crucible corner shapes, the power in the reference crucible (Case 1) is the highest. During the growth process, the input power is reduced as the crystal grows.

Fig. 2 shows the velocity and temperature fields in the melt at the stage before connecting the seed-crystal for different crucible shapes. The temperature field and isotherms are shown on the right and the velocity field, strength of velocity (vectors with red arrows) and streamlines (white lines) on the left. We note that for the three crucible shapes, the melt flow and temperature field are approximately similar, however the different incoming heat

transferred from each crucible to the molten sapphire induces a slight change. As the molten sapphire is characterized by a high Prandtl number ($Pr = \frac{\mu C_p}{k} = 12.78$), the temperature field in the melt for all configurations is significantly influenced by the melt convection and the isotherms in the melt are deflected by the flow. This relationship between temperature and melt convection is presented by the right hand term of heat equation (4). Pr is a non-dimensional number, which measures the ratio of viscous diffusivity to heat diffusivity and this means that a larger heat is transferred within the melt by convection than by conduction. For all Cases, one large vortex exists in the melt. It arises from the presence of buoyancy and thermocapillary convection. These cells are quite intense near the centerline and the melt free surface and extend from the crucible side wall (the hottest part of the melt) to the centerline occupying thus practically all the melt and their center are located in the upper part of melt under melt free surface.

3.2 At an intermediate growth stage

Fig. 3 shows the distributions of temperature and velocity for different crucible shapes in the cases without resistive heating (left), and with resistive heating (right) during an intermediate growth stage. Heat is conducted from the melt to the crystallization front by convection and transferred then from the hot m-c interface to the as-grown crystal by conduction and internal radiation. Due to the internal radiation heat transfer in the crystal, the isotherms are convex toward the melt in the lower part and concave in the upper part for all cases. The isotherms shape in the melt is strongly influenced by the structure and dynamics of fluid motion. This can be explained by the fact that the melt convection affects strongly the temperature field as discussed above for the first growth stage. As inductive heater generates heat mostly at the crucible sidewall, the fluid particles move upward along this hot wall, and then move radially along the melt free surface driven by temperature variation of surface tension. Near the crystal-melt interface the fluid particles become colder and fall down under gravity effect (Fig. 3). The vortex center is located at the upper part of the melt for the three cases indicating that the flow is stronger at this position as streamlines are closer to each other. The maximum velocity of melt convection presented in Table.1 indicates that a relatively stable fluid flow is obtained by introducing slipped (Fig. 3c) and curved bottom (Fig. 3b) compared with Case 1 (Fig. 3a).

3.3 Effect of additional heating on temperature and velocity fields

By comparing the three configurations when only inductive heating is used, the isotherms in the melt appear sparse for Case 1 and closer to each other for Case 2 and Case 3 near the m-c interface and the symmetry axis. It can also be seen that these isotherms are strongly distorted in the vicinity of the crucible walls for all cases. Inductive heating generates thermal gradients mostly in the radial direction. When this additional heater is placed under the crucible bottom, temperature changes in all parts including crucible bottom and sidewall, horizontal susceptor, melt, crystal

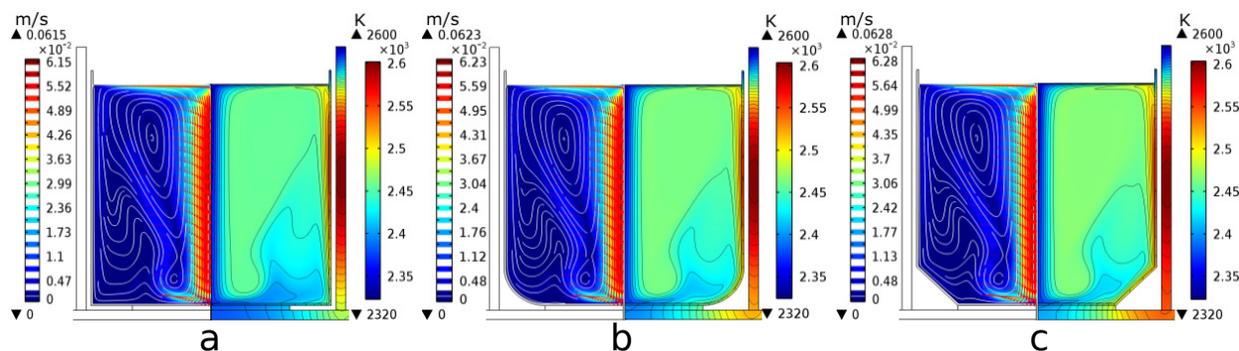


Fig. 2 Temperature field and isotherms (right side) and velocity field (left side) computed for different crucible corner shapes ((a): Case 1, (b): Case 2 and (c): Case 3) before the connexion of the seed-crystal.

and seed. It should be mentioned that when additional heater is used, the induction heater power must be reduced to fit the triple point temperature. Because the temperature at the crucible sidewall and crucible bottom edge arises considerably, heat transfer mechanism in the melt is markedly different. This change increases both temperature, melt velocity, and as a result, shapes of isotherms and thermal convection are affected. Therefore, melt-crystal interface shape is affected directly in turn.

Addition of Joule heating under crucible bottom gives more heat to the crucible then accelerates the fluid flow in the melt and leads to the displacement of the vortex center downward and the fluid streams are concentrated just under the crystal edge. From Case 1 (Fig. 3a) to Case 3 (Fig. 3c), a gradually moving downward of the vortex center from just under melt surface to close crystal-melt interface is shown. The additional bottom heating creates an additional axial temperature gradient between the crucible bottom and the growth interface generating then a supplementary buoyant force that gives rise to a strong vertical flow along the centerline of the melt. This thermal buoyant flow increases the maximum velocity of melt convection by 25%, 34% and 38% for Case 1, Case 2 and Case 3 respectively (see Table. 1). Axial temperature gradient helps to melt the growth interface in all cases and especially in Case 3 as flow intensity is stronger. This fact leads to a small convexity in Case 3 compared to Cases 1 and 2. The maximum values of melt temperature and temperature difference in each case with respect to melting point are shown in Table. 2. For all configurations, the maximum temperature is located at the inner crucible sidewall below the melt free surface; its value and position are different for the three Cases. The additional heating leads to increase T_{max} by 40 K and shifts its location downward. Table 1 shows that the higher value of T_{max} is found for Case 3 with resistive heating. This is due to the slipped part of the bottom corner, which favors the heat transfer from the additional heating element to the crucible bottom and then to the melt. However, for Case 1 and Case 2 an amount of joule heat is used for heating the bottom corner in Case 1 and bottom curvature in Case 2.

In our computations, three crystal rotation rates ($\omega_{crystal}$) are considered, 0rpm (without crystal rotation), 2 rpm and 4 rpm. Isotherms becomes structured (less convective) for 2 rpm as shown in Fig. 4 and radial thermal gradients are found to de-

crease. Although the maximum velocity is not changed by forced convection when only inductive heating is used, the flow structure is strongly affected as shown in the left hand sides of Figs. 3, 4 and 5. The downward flow intensity near the axis decreases considerably and the fluid particles under the interface become faster due to crystal rotation. Thus, high velocity region moves from the centerline to the upper part of the melt under the interface. When additional heating is combined to forced convection generated by crystal rotation, the vertical downward flow along the symmetry axis increases for curved and cylindrical bottom shapes compared to the slipped crucible corner.

3.4 Effect of additional heater on interface convexity

The interface convexity is one of the most important parameters affecting the crystal quality. Indeed, a small convexity of the melt-crystal interface is required to obtain good quality crystals.¹⁴ H and h are the convexity of the m-c interface corresponding to the configuration without and with resistive heating respectively, which is defined as the axial distance between the triple point and the lowest point of the interface. The convexity of melt-crystal interface for different crucible corner shapes without/with additional heating including the rotation of crystal is presented in Table. 3. As first observation, the melt-crystal interface exhibits more or less convex shape for all configurations and its value decreases from Case 1 to Case 3.

Table. 3 shows that additional heating decreases the interface deflection for the three Cases and that convexity for slipped crucible bottom configuration is smaller than that in Case 1 and Case 2. Resistive heating at the crucible bottom adds more heat to the central part of the melt then to the growth interface. Thus, the heat transport and melt velocity near melt-crystal interface are quite strong, leading then to decrease the interface convexity. The maximum of this decrease can reach 22%, 24% and 26% for Cases 1, 2 and 3 respectively. In addition, the combined effect of both resistive heating and slipped crucible corner shape leads to a significant decrease of about 30% (comparison of Case 1 without RH and Case 3 with RH). When crystal rotation rate varies from 0 rpm to 2 rpm, the convexity changes slightly ($\pm 1mm$). However, it decreases by 35%, 38% and 41% for Cases 1, 2 and 3 respectively when resistive heating is added. The most important result is found when resistive heating is combined to crystal rotation

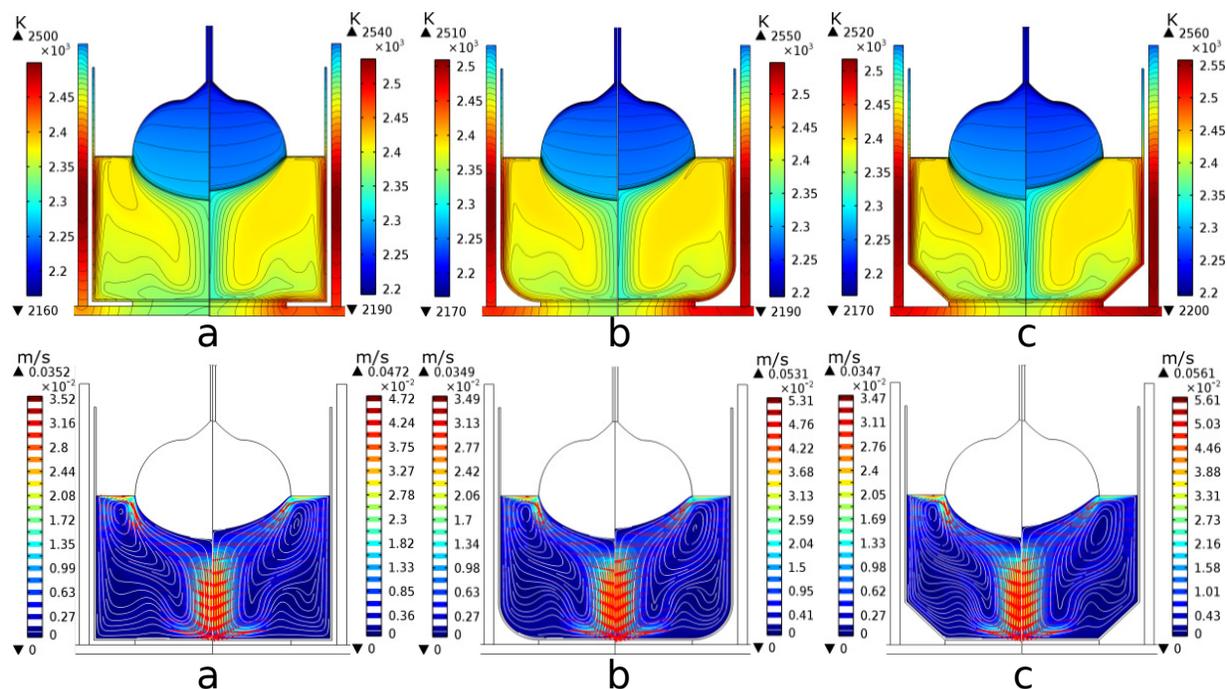


Fig. 3 Temperature and velocity fields without (left-hand side) and with additional heating (right-hand side): (a) Case 1, (b) Case 2 and (c) Case 3 without crystal rotation ($\omega_{crystal} = 0rpm$) at an intermediate growth stage.

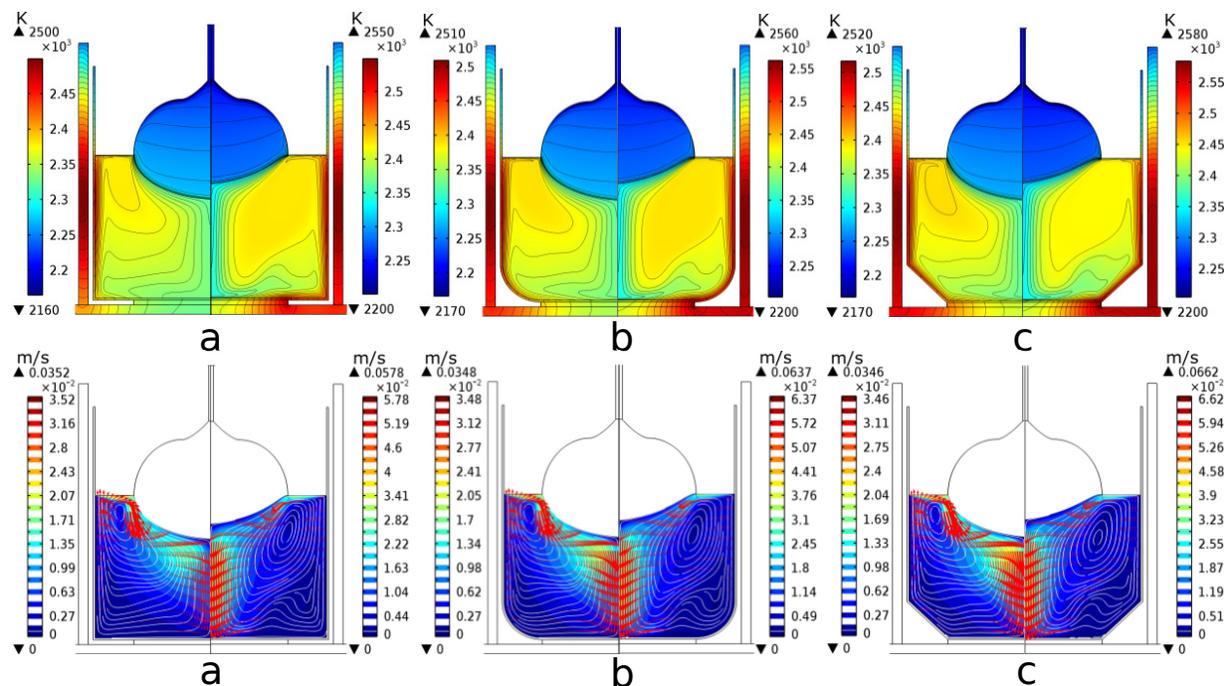


Fig. 4 Temperature and velocity fields without (left-hand side) and with additional heating (right-hand side): (a) Case 1, (b) Case 2 and (c) Case 3 for $\omega_{crystal} = 2rpm$ at an intermediate growth stage.

Table 1 maximum velocity for Case 1, Case 2 and Case 3 without and with additional heating at different crystal rotations (percentage "effects" are an increase in maximum velocity)

Vmax in the melt (m/s)	Case 1 without RH / with RH	Case 2 without RH / with RH	Case 3 without RH / with RH
0 rpm RH effect (%)	0.0352/0.0472 (25%)	0.0349/0.0531 (34%)	0.0347/0.0561 (38%)
2 rpm RH + rotation effect (%)	0.0352/0.0578 (39%)	0.0349/0.0637 (45%)	0.0346/0.0561 (38%)
4 rpm RH + rotation effect (%)	0.0353/0.0585 (40%)	0.0349/0.0646 (46%)	0.0347/0.0671 (48%)

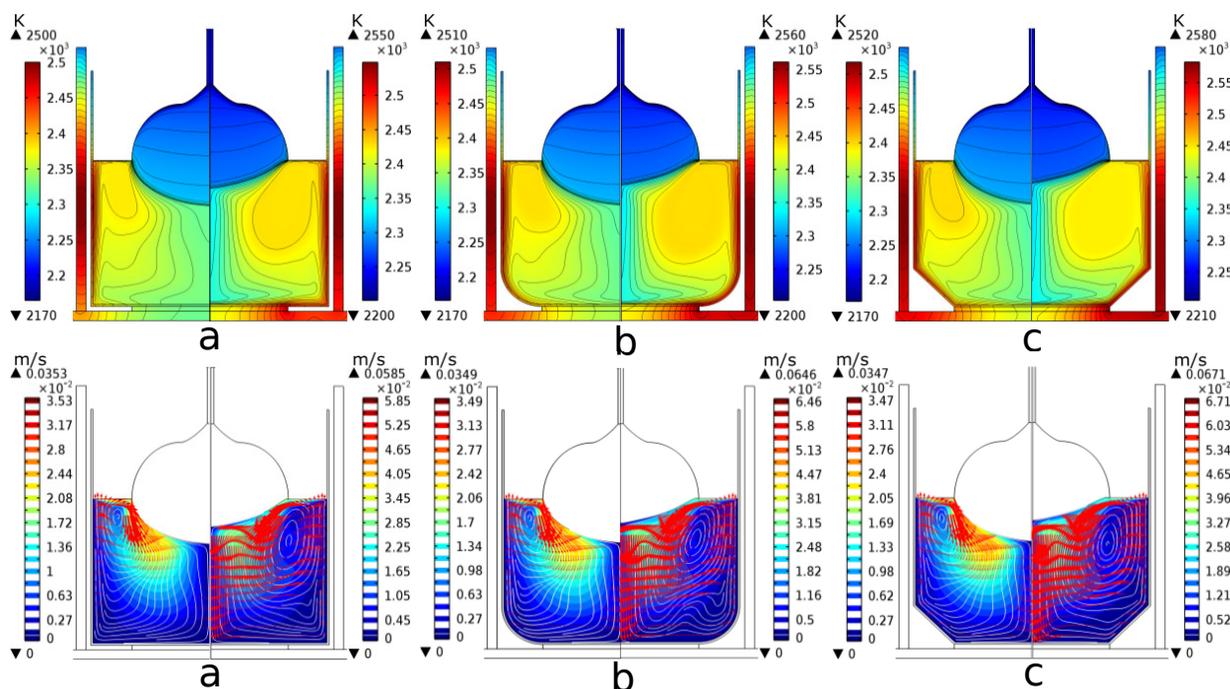


Fig. 5 Temperature and velocity fields without (left-hand side) and with additional heating (right-hand side): (a) Case 1, (b) Case 2 and (c) Case 3 for $\omega_{crystal} = 4rpm$ at an intermediate growth stage.

Table 2 Details of maximum temperature and temperature difference in the melt, for different crucible corner shapes (Case 1, Case 2 and Case 3) without (wo) and with (w) additional heating

$\omega_{crystal}$ (rpm)	Case 1 wo RH/ w RH	Case 2 wo RH / w RH	Case 3 wo RH / w RH
Tmax in the melt (K)			
0rpm	2450.5/2489.4	2462.1/2502.9	2470.7/2525.5
2rpm	2450.3/2508	2461.9/2536.1	2470.4/2556.3
4rpm	2450.9/2504.9	2462.4/2533.1	2470.9/2554.2
Tmax-Tmelting (K)			
0rpm	127.9/181.9	139.4/210.1	147.9/231.2
2rpm	127.3/185	138.9/213.1	147.4/233.3
4rpm	127.5/166.4	139.1/179.9	147.7/202.5
Tmax at the melt free surface (K)			
0rpm	2400.3/2443.8	2406.7/2451.2	2411.2/2456.6
2rpm	2399.6/2443.3	2406.1/2439.3	2410.7/2455.7
4rpm	2399.7/2432.5	2406.3/2439.3	2410.9/2444.1

Table 3 Details of the interface convexity for Case 1, Case 2 and Case3 without and with additional heating at different crystal rotations (percentage "effects" are a decrease in convexity)

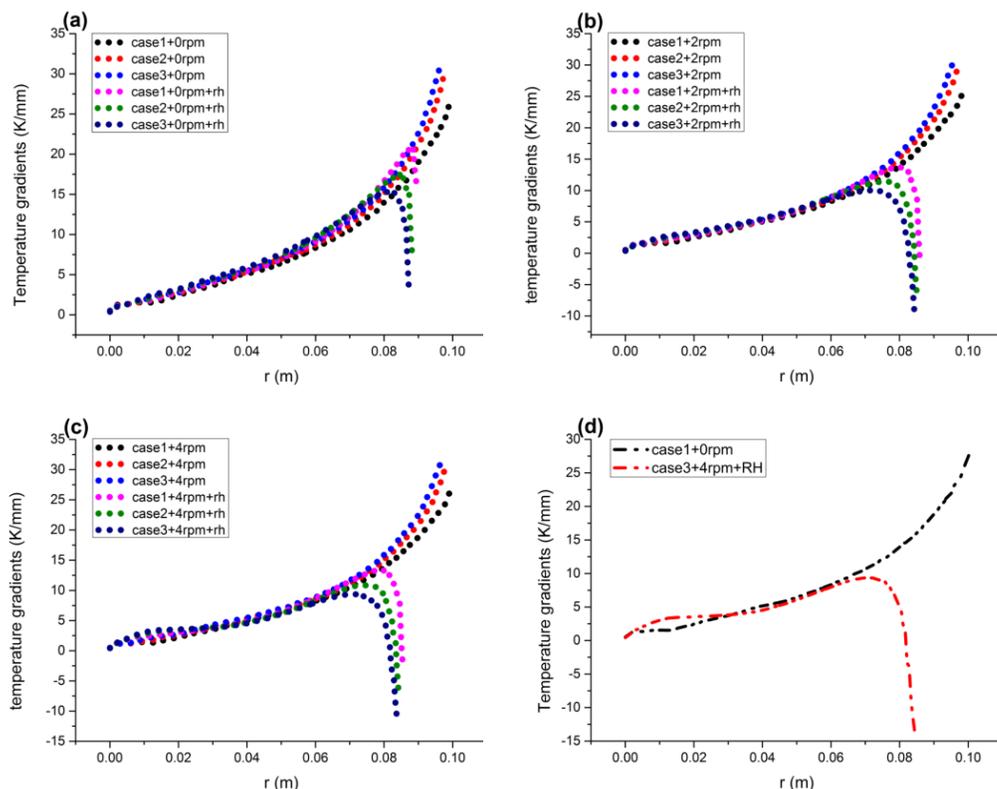
Convexity of m-c interface (mm)	Case 1 wo RH / w RH	Case 2 wo RH / w RH	Case 3 wo RH / w RH
0 rpm RH effect (%)	47.4/37.18 (22%)	46.52/35.33 (24%)	45.8/33.9 (26%)
2 rpm RH + rotation effect (%)	47.07/30.8(35%)	45.91/28.32 (38%)	45.03/26.44 (41%)
4 rpm RH + rotation effect (%)	47.95/29.69 (38%)	46.89/26.37 (44%)	46.04/24.04 (48%)

with a rate of 4 rpm in the slipped crucible bottom. The decrease of convexity reaches 49% (comparison of Case 1 without RH for 0rpm and Case 3 with RH for 4rpm), which can be considered as a crucial improvement of the growth front morphology. This important decrease in the melt-crystal convexity allows avoiding undesirable growth behavior and makes the solidification very slow thus; the process becomes stable and can be controlled. As a result, optimizing the resistive heating and crystal rotation seems to be efficient for controlling the convexity of melt-crystal interface in order to grow a better sapphire crystal quality.

As low temperature gradient in melt at crystal-melt interface is a feature for the crystal-melt interface instability,²⁰ it is important to highlight the effect of resistive heating and crystal rotation on these gradients and find the Case corresponding to a stable growth interface. Fig. 6 shows the radial temperature gradient along the melt-crystal interface without and with resistive heating for different crucible shapes and crystal rotation rates. In all plots, the vertical axis represents temperature gradient and the horizontal axis represents the distance from the central axis to the triple point at the melt-crystal interface. For the three crucible shapes

Table 4 Temperature gradient at the triple point without and with additional heating for different crucible shapes and crystal rotation rates (percentage "effects" are a decrease in thermal gradient (see below))

Max/Min Temperature gradients (K/mm)	Case 1 wo RH / w RH	Case 2 wo RH / w RH	Case 3 wo RH / w RH
0 rpm RH effect (%)	27.98 / 17.51 (37%)	32.42 / 8.39 (74%)	33.71 / 2.73 (92%)
2 rpm RH + rotation effect (%)	28.09 / -1.72 (106%)	32.51 / -7.75 (124%)	33.80 / -12.07 (135%)
4 rpm RH + rotation effect (%)	28.53 / -2.83 (110%)	32.68 / -8.90 (127%)	33.88 / -13.35 (139%)

**Fig. 6** Variation of the temperature gradients along the crystallization front without and with additional heating for different crucible shapes and crystal rotation rates (a: $\omega_{crystal} = 0 rpm$, b: $\omega_{crystal} = 2 rpm$, c: $\omega_{crystal} = 4 rpm$ and d: Comparison of temperature gradients between Case 1 without additional heating and no crystal rotation and Case 3 with resistive heating and crystal rotation $\omega_{crystal} = 4 rpm$)

and when resistive heating is not considered, the temperature gradients have similar variation tendencies: the minimum temperature gradient appears always at the center of the crystal-melt interface and the maximum temperature gradient usually appears at the crystal edge. Figs. 6a, b and c corresponding respectively to 0, 2 and 4 rpm show that temperature gradients are not clearly affected by crystal rotation when only inductive heating is used for cylindrical, curved and slipped crucible shapes since the corresponding curves are nearly the same. This result is coherent with our conclusion about interface convexity, which has been found almost the same for all crystal rotation rates considered in our work (see Table. 3). However, additional heating on the bottom acts to decrease the temperature gradient at the growth interface especially at the triple point (crystal edge), which becomes the point with smallest temperature gradients. This decrease is estimated about 37%, 74% and 92% for cylindrical, curved and slipped crucible bottom shape respectively when crystal rotation is not considered. This result is in good agreement with the de-

crease of melt-crystal interface convexity and velocity field discussed above. When resistive heating is combined to crystal rotation, temperature gradient decreases further and becomes negative near the triple point. A decrease of the thermal gradients beyond 100% actually means that an interface inflection occurs as shown in Fig 4 and 5 and summarized in tab 4. Fig. 6d gives a comparison of the temperature gradients between Case 3 (slipped crucible) with resistive heating and crystal rotation of 4 rpm and Case 1 (cylindrical crucible bottom) with no resistive heating and no crystal rotation. The comparison shows a noticeable decrease of temperature gradients coinciding with a lower convexity indicating that the crystal-melt interface convexity turns into a stable shape.

4 Conclusions

In this study, the effect of additional resistive heating, crucible geometry and crystal rotation on the temperature distribution, flow field in side the melt and the melt-crystal interface is analyzed

numerically in sapphire Kyropoulos furnace. From the numerical simulations, the following conclusions can be drawn:

1. In addition to radial thermal gradient induced by inductive heating, more heat is brought by resistive heating to the molten sapphire generating then additional axial thermal gradient between the crucible bottom and the m-c interface, which contribute together in the buoyant motion.
2. Controlling the hot-zone temperature distribution by adding resistive heating at the crucible bottom reduces significantly the radial temperature gradients at the interface and crystal-melt convexity, which leads to grow higher quality sapphire crystals.
3. Crystal rotation induces a slight change on the interface convexity when heat is generated only by inductive heating for all crucible shapes.
4. Combination of crystal rotation with additional resistive heating at the bottom leads to obtain a low interface convexity.
5. The most important decrease of convexity (49%) and radial thermal gradient at the interface are achieved when using slipped crucible bottom, additional heater at the bottom and crystal rotation. Combination of these three modifications in Kyropoulos furnace can be proposed to improve sapphire crystal quality.

Conflicts of interest

There are no conflicts of interest to declare.

Notes and references

- 1 M. S. Akselrod and F. J. Bruni, *J. Cryst. Growth*, 2012, **360**, 134–145.
- 2 H. Li, E. Ghezal, A. Nehari, G. Alombert-Goget, A. Brenier and K. Lebbou, *Opt. Mater. (Amst.)*, 2013, **35**, 1071–1076.
- 3 H. Li, E. Ghezal, G. Alombert-Goget, G. Breton, J. Ingargiola, A. Brenier and K. Lebbou, *Opt. Mater. (Amst.)*, 2014, **37**, 132–138.
- 4 H. S. Fang, S. Wang, Z. L. Jin, J. Tian and J. F. Xu, *Cryst. Res. Technol.*, 2013, **48**, 649–657.
- 5 C.-W. Lu and P.-H. Chi, *Cryst. Res. Technol.*, 2007, **42**, 1259–1265.
- 6 J.-C. Chen and C.-W. Lu, *J. Cryst. Growth*, 2004, **266**, 239–245.
- 7 W. Ma, L. Zhao, G. Ding, Y. Yang, T. Lv, M. Wu and L. Liu, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 2014, **72**, 452–460.
- 8 O. Bunoiu, I. Nicoara and T. Duffar, *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, 2005, **7**, 615–618.
- 9 S. Demina, E. Bystrova, M. Lukanina, V. Mamedov, V. Yuferev, E. Eskov, M. Nikolenko, V. Postolov and V. Kalaev, *Opt. Mater. (Amst.)*, 2007, **30**, 62–65.
- 10 S. Demina, E. Bystrova, V. Postolov, E. Eskov, M. Nikolenko, D. Marshanin, V. Yuferev and V. Kalaev, *J. Cryst. Growth*, 2008, **310**, 1443–1447.
- 11 A. Nehari, A. Brenier, G. Panzer, K. Lebbou, J. Godfroy, S. Labor, H. Legal, G. Chériaux, J. P. Chambaret, T. Duffar and R. Moncorgé, *Cryst. Growth Des.*, 2011, **11**, 445–448.
- 12 H. Fang, Y. Pan, L. Zheng, Q. Zhang, S. Wang and Z. Jin, *J. Cryst. Growth*, 2013, **363**, 25–32.
- 13 E. A. Ghezal, H. Li, A. Nehari, G. Alombert-Goget, A. Brenier, K. Lebbou, M. F. Joubert and M. T. Soltani, *Cryst. Growth Des.*, 2012, **12**, 4098–4103.
- 14 G. Alombert-Goget, Y. Guyot, A. Nehari, O. Benamara, N. Blanchard, A. Brenier, N. Barthalay and K. Lebbou, *CrystEngComm*, 2018, **20**, 412–419.
- 15 C.-H. Chen, J.-C. Chen, C.-W. Lu and C.-M. Liu, *J. Cryst. Growth*, 2011, **318**, 162–167.
- 16 C.-H. Chen, J.-C. Chen, C.-W. Lu and C.-M. Liu, *J. Cryst. Growth*, 2012, **352**, 9–15.
- 17 H. Fang, Z. Jin, M. Zhang, Z. Zhang and C. Zhao, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 2013, **67**, 967–973.
- 18 C. Chen, H. Chen, W. Yan, C. Min, H. Yu, Y. Wang, P. Cheng and C. Liu, *J. Cryst. Growth*, 2014, **388**, 29–34.
- 19 W. Lee, Y. Lee, H. Jo and Y. Park, *J. Cryst. Growth*, 2011, **324**, 248–254.
- 20 W. Liu, J. Lu, H. Chen, W. Yan, C. Min, Q. Lian, Y. Wang, P. Cheng, C. Liu and Y. Xu, *J. Cryst. Growth*, 2015, **431**, 15–23.
- 21 I. Lasludji, F. Mokhtari, A. Nehari, G. Alombert-Goget and K. Lebbou, *CrystEngComm*, 2018, **20**, 1110–1115.

3D Anisotropic Stress Analysis during Kyropoulos Growth of Sapphire Single Crystal

S. Zermout, F. Mokhtari,* A. Nehari, I. Lasloudji, F. Haddad, and A. Merah

By using 3D finite element calculations, numerical simulations are performed to predict the thermal field as well as the thermal stress in a *c*-axis sapphire single crystal grown by Kyropoulos technique. The effects of additional resistive heating (placed under the crucible bottom) and crystal rotation are investigated and a comparison is made between the isotropic and anisotropic analysis. The anisotropy of the elastic constants and thermal expansion coefficients as well as their temperature dependence are considered in the anisotropy calculations while Young's modulus and the Poisson ratio are used in the isotropic analysis. Thermal stress is found to be smaller in the anisotropy analysis than that in the isotropic analysis and significant differences are found in their respective distribution patterns. Additional resistive heating acts to decrease both of the crystal–melt interface convexity and the von Mises stress. In addition, crystal rotation combined with additional resistive heating decreases significantly the thermal stress inside the sapphire crystal and along the melt–crystal interface. Therefore, optimizing the heating conditions and using a suitable crystal rotation rate seem to be favorable to control the growth interface shape and to reduce thermal-stress-related defects during the growth process.

high tensile strength, high compressive strength, thermal conductivity comparable to metals, high electrical insulation, high inertness and resistance to attack in most process environments, low friction coefficient, exceptional optical transparency, it can transmit ultraviolet, visible, infrared, and microwaves covering a large wave band, etc.

The Kyropoulos (KY) method is one of the most important techniques for producing large sapphire single crystals of sufficient optical quality, used as substrates in devices of Light Emitting Diodes (LEDs) manufacturing. After the growth of sapphire, various types of defects (bubbles, low angle grain boundary, dislocations, and cracking) are often observed in the ingot, which greatly reduces the quality of sapphire and influence the optoelectronic properties of sapphire crystals.^[1] Therefore, improving the productivity of sapphire single crystals requires an enhancement of the quality

1. Introduction

Sapphire single crystals are preferred in several applications such as optics and microelectronics devices due to their excellent optical, mechanical, thermal, and chemical properties.^[1] Sapphire has high melting temperature, high Young's modulus,

of crystalline sapphire that can be used as materials for devices.

During the growth process of single crystals, numerous phenomena occur, including thermal/hydrodynamic coupling phenomena, without neglecting the phase change during solidification. These stages result in important temperature gradients and inhomogeneous distribution of strong thermal stress in the solid sapphire. Accordingly, distinct regions with intensive multiplication of dislocations are manifested in the crystal and their presence is essentially due to the thermal stresses produced in the crystal during the growth. Therefore, it is important to reduce the thermal stress as low as possible to obtain low dislocation density in sapphire crystals. On the other hand, if the stresses are quite important, there is a high risk of cracking.^[2]

Recently, there has been much attention on numerical modeling of thermal stress during the growth of oxide crystals. As a recent example in the literature, calculations of thermal stress in Langatate ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$) crystals have been performed taking into account the crystal anisotropy.^[3] The authors investigated experimentally and numerically the addition of an afterheater in a Czochralski furnace and found a considerable decrease of both of the melt–crystal interface convexity and von Mises stress. In 2015, Fang et al.^[4] conducted a series of numerical and theoretical analyses to discuss the mechanisms of defect formation during the GGG crystal growth. They found that the stress value is the

Dr. S. Zermout

Department of Mechanical Engineering
Mouloud Mammeri University of Tizi-Ouzou
B.P.N°17 RP, 15000 Tizi-Ouzou, Algeria

Prof. F. Mokhtari, Dr. I. Lasloudji, Dr. F. Haddad
LTSE Laboratory
University of Science and Technology Houari Boumediene
BP 32 Elalia, Bab Ezzouar, 16000 Algiers, Algeria
E-mail: faiza_mokhtari@yahoo.fr

Dr. A. Nehari
Institut Lumière Matière (UMR 5306)
Université de Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1
Centre National de la Recherche Scientifique
F-69622 Villeurbanne, France

A. Merah
Université M'hamed Bougara
Avenue de l'Indépendance, 35000 Boumerdès, Algeria

 The ORCID identification number(s) for the author(s) of this article can be found under <https://doi.org/10.1002/crat.201900058>

DOI: 10.1002/crat.201900058

largest around the crystal shoulder and the smallest at the seed bottom. As the crystal rotation rate increases, the melt–crystal interface becomes less convex, and the von Mises stress around the interface decreases strongly.

In the case of sapphire, several thermal stress computations during crystal growth process have been investigated using finite element method, but most of them were performed under 2D axisymmetric assumption.^[5–11] Through some numerical analyses performed for Cz growth of sapphire, it was found that the convexity and the thermal stress of the crystal are strongly dependent, suggesting that a low von Mises stress can be achieved by decreasing the crystal–melt interface convexity. Nguyen^[5] investigated the dependence of the thermal stress on the size of the sapphire crystal. They found that the maximum von Mises stress reduces rapidly as the crystal length gets larger and a significant decrease in the von Mises stress at the melt–crystal interface can be obtained with lower convexity. Fang et al.^[6] found that the crystal quality could be improved by reducing thermal stress through modifying certain growth parameters during the Czochralski growth process. According to their analysis, a flat melt–crystal interface can be achieved with crystal rotation, minimizing thus the maximum thermal stress.

Demina et al.^[5,7–12] discussed the relationship between the quality of sapphire crystals and the growing parameters by improving the heat shield system inside the hot zone of the Kyropoulos furnace. They found that maximum values of von Mises stress are located near the seed, along the crystal–melt interface and the bottleneck of the crystal.

Thermal stress computations during sapphire growth conducted by Fang et al.^[1] predict very low thermal stresses in the central part of the crystal. They concluded that the locally polycrystalline growth or the three-dimensionally non-uniform heating conditions may cause crystal cracking during Kyropoulos sapphire growth and make the crystal more fragile. In another study, they found that a decrease of the von Mises stress in the crystal can be achieved by taking into account the internal radiation.^[9]

Nguyen et al.^[5] investigated numerically the effect of the power history on the shape of a sapphire crystal and the thermal stress during the Kyropoulos process. Their computational results indicate that the high von Mises stress regions are found close to the seed of the crystal, the crystal surface with high curvature and the crystal–melt interface. Chen et al.^[10] and Wang et al.^[11] investigated numerically the temperature field and thermal stress distribution in sapphire single crystal grown by Kyropoulos technique during the cooling process. The first ones found that the higher stress is located in the region near the sapphire seed crystal, the crystal center, and at the crystal surfaces with large curvature. The second ones studied the effect of power ratios and they found that large stresses are usually present in the regions near the throat and bottleneck of the crystal.

The previously mentioned studies show the importance of thermal stress analysis for predicting the quality of the grown crystal. However, to our best knowledge, no works exist taking into account both of the crystal anisotropy and the temperature dependency of elastic and thermal expansion tensors when computing the thermal stress in sapphire single crystal grown by Kyropoulos. In this study, a series of simulations under different conditions were conducted to calculate the 3D thermal stress in

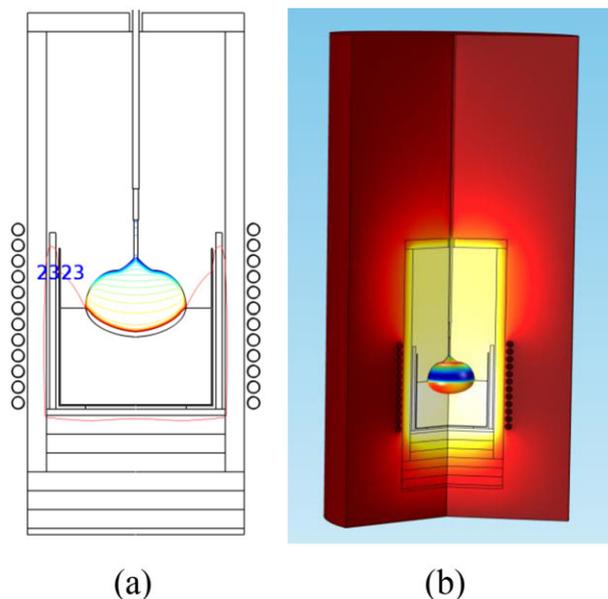


Figure 1. Schematic diagram of the growth system: a) Isothermal contours in sapphire crystal obtained from the global computation of heat transfer in an inductively heated KY furnace. The red line is the melt–crystal interface when resistive heating is added. b) 3D thermal stress calculation in a *c*-axis sapphire crystal.

a *c*-axis sapphire single crystal. At first, comparison is made between the anisotropic and the isotropic analysis, and then the effect of additional resistive heating and crystal rotation as well as their combined effect on von Mises stress are discussed.

2. Model

In this work, the temperature field obtained in our previous 2D-axisymmetric calculations^[13] is used as boundary conditions to obtain 3D temperature and thermal stress fields in a sapphire single crystal. The schematic diagram of the growth system used for 2D axisymmetric global heat transfer and 3D thermal stress analysis is shown in **Figure 1**.

The temperature field is obtained by solving the heat equation with a heat source that takes into account the effect of internal radiation in the semitransparent crystal through the P1 model.

$$-\nabla \cdot (k \nabla T) + a (4\pi I_b(T) - G) = 0$$

$$I_b(T) = \frac{n^2 \sigma T^4}{\pi}$$

I_b is the blackbody radiation intensity, k and a are the thermal conductivity and the absorption coefficient respectively, G is the incident radiation and is obtained by solving the following partial differential equation of the P1 model

$$-\nabla \cdot \left(\frac{1}{3a} \nabla G \right) = a (G - 4\pi I_b)$$

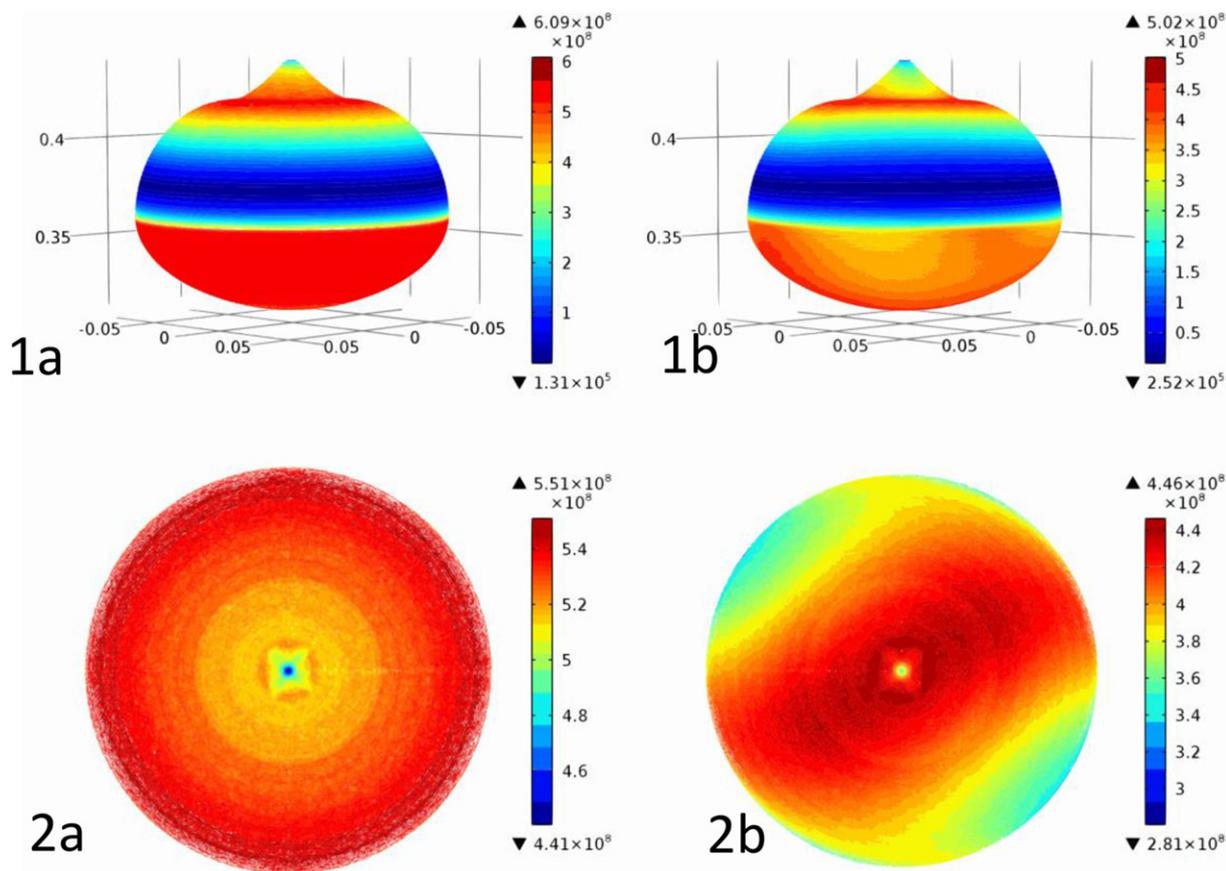


Figure 2. 3D von Mises stress field in the crystal (1) and at the crystal–melt interface (bottom view) (2): a) Isotropic analysis, b) anisotropic analysis.

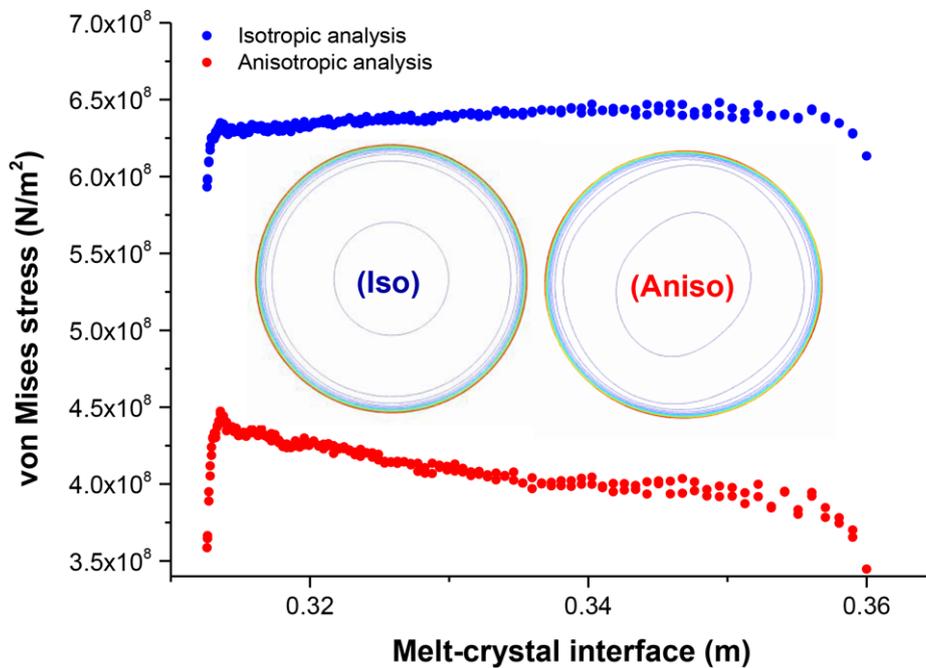


Figure 3. von Mises stress distribution along the melt–crystal interface for isotropic and anisotropic analysis. Snapshots present the contours lines of von Mises stress in a cross section at the triple point position.

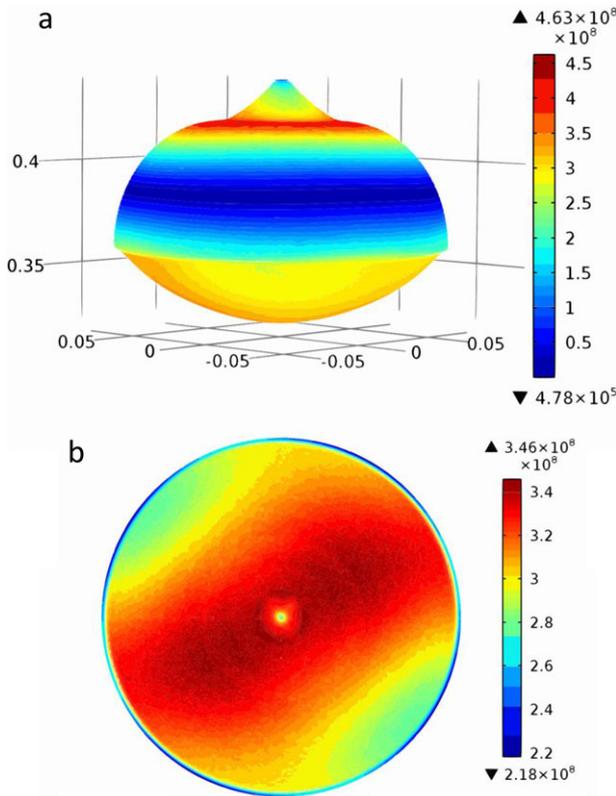


Figure 4. 3D von Mises stress field in the a) crystal and at the b) melt-crystal interface (bottom view) with additional resistive heating.

The stress tensor σ obeys the Cauchy equilibrium equation as follows:

$$\nabla \sigma = 0$$

We assume the crystal to have a linear elastic behavior as described by Hooke's law relating stress tensor σ to elastic strain tensor $\varepsilon_{\text{elas}}$ through the elasticity matrix C ,

$$\sigma = C : \varepsilon_{\text{elas}}$$

In addition to elastic strain, thermal induced strain $\varepsilon_{\text{therm}} = \alpha(T - T_{\text{ref}})$ contributes to total strain ε_{tot} .

Where α is the thermal expansion coefficient, T_{ref} is the reference temperature, and C is the elasticity matrix.

For the isotropic analysis C is given as follows:

$$C = \frac{E}{(1 + \gamma)(1 - 2\gamma)} \begin{pmatrix} 1 - \gamma & \gamma & \gamma & 0 \\ \gamma & 1 - \gamma & \gamma & 0 \\ \gamma & \gamma & 1 - \gamma & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1 - 2\gamma}{\gamma} \end{pmatrix}$$

E is the elastic modulus and γ is Poisson's ratio. The values of E and γ for sapphire crystal are given in refs. [14,15].

Since the sapphire crystal is an anisotropic material and is classified as a trigonal class 3m single crystal, thermal stress analysis has to consider the crystal anisotropy in the elasticity and thermal expansion tensors. The structure of elasticity matrix C and thermal expansion matrix α for a trigonal crystal grown along z-axis

is as follows:[16]

$$C = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{13} & C_{13} & -C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & -C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & C_{66} \end{pmatrix},$$

$$C_{66} = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12})$$

and

$$\alpha = \begin{pmatrix} \alpha_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{33} \end{pmatrix}, \quad \alpha_{11} = \alpha_{22}$$

The data given by refs. [17–20] are used to get the temperature dependence of the elastic constants and that of the thermal expansion coefficients, respectively.

$$C_{11} = (-2.78188 \times 10^{-6} T^2 - 0.0383 T + 501.12323) \times 10^9$$

$$C_{12} = (6.80614 \times 10^{-6} T^2 - 0.02268 T + 173.62276) \times 10^9$$

$$C_{13} = (5.63245 \times 10^{-7} T^2 - 0.01352 T + 120.89608) \times 10^9$$

$$C_{33} = (-8.51378 \times 10^{-6} T^2 - 0.02299 T + 499.64191) \times 10^9$$

$$C_{44} = (-2.54996 \times 10^{-7} T^2 - 0.02413 T + 151.4176) \times 10^9$$

$$C_{14} = (1.26038 \times 10^{-6} T^2 - 0.00405 T - 21.27497) \times 10^9$$

and

$$\alpha_{11} = \alpha_{22} = (-3.88 T^2) \times 10^{-14} + (3.17 T) \times 10^{-9} + 6.34 \times 10^{-6}$$

$$\alpha_{33} = (-5.69 T^2) \times 10^{-14} + (4.03 T) \times 10^{-9} + 7.12 \times 10^{-6}$$

where T [K] denotes temperature.

The melting point of Al_2O_3 (T_m) is 2323 K.

A zero displacement condition (Dirichlet boundary condition) is imposed at the top of the seed while the remaining crystal walls are left unconstrained (Neumann boundary condition). More details about mathematical model can be found in refs. [3,13,21].

Table 1. Maximum and minimum values of von Mises stress at different positions on the z-axis for anisotropic analysis without and with resistive heating. The decrease in max von Mises stress is given in percentage.

Position on the z-axis [m]	von Mises [MPa]		
	Without RH Max/Min	With RH Max/Min	Decrease [%]
20 mm of shoulder ($z = 0.42$)	498/31.8	463/29.1	7.02
50 mm of shoulder ($z = 0.39$)	90/10.7	35.3/3.8	60.77
Free surface level ($z = 0.36$)	369/22.9	271/33.8	26.55
20 mm of m-c interface ($z = 0.34$)	412/21.7	332/17.3	19.41

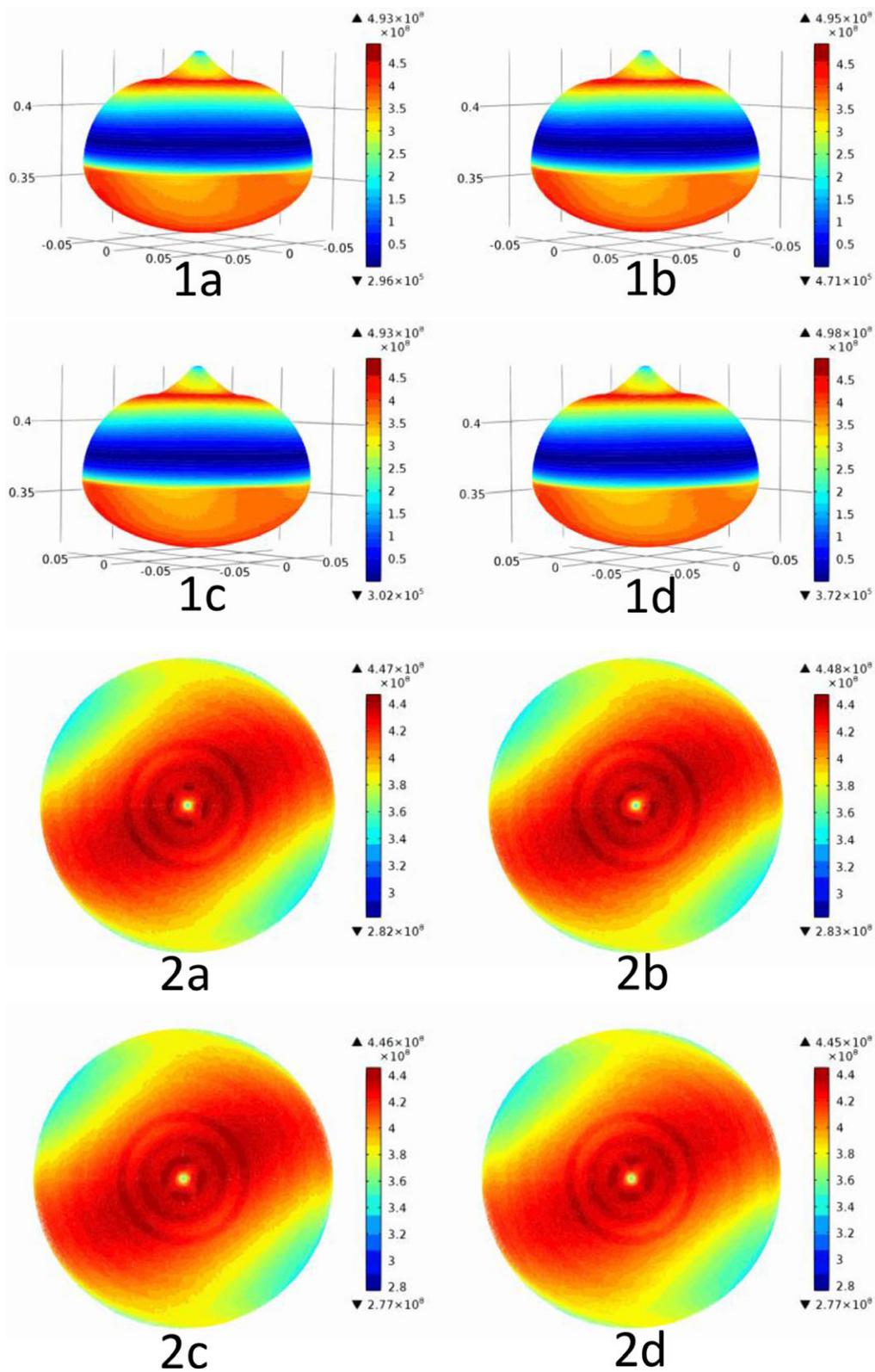


Figure 5. Effect of crystal rotation on the distributions of 3D von Mises stress (1) in the entire crystal and (2) on the melt–crystal interface (bottom view): a) $\omega = 1$ rpm, b) $\omega = 2$ rpm, c) $\omega = 3$ rpm, and d) $\omega = 4$ rpm.

3. Results and Discussion

The three-dimensional thermal stress inside sapphire single crystal of 160 mm in diameter is calculated using the temperature distribution obtained from our previous 2D global analysis of heat transfer during KY growth.^[13]

The effects of crystal anisotropy, additional resistive heating, and crystal rotation on the thermal stress distribution are analyzed separately and then combined. We represent in all cases, the von Mises stress in sapphire crystal and melt–crystal interface.

3.1. Effect of Crystal Anisotropy

In this section, we are mainly concerned with the effect of the sapphire anisotropy on 3D von Mises stress field. The results for the case of isotropic analysis using Young’s modulus and the Poisson ratio are compared to the case of anisotropy analysis taking account of the temperature variation of both of the elasticity matrix and thermal expansion coefficients. In order to evaluate the effect of the crystal anisotropy alone, crystal rotation is set to 0 rpm and additional resistive heating is not considered for both cases.

The 3D von Mises stress $\sigma_{\text{Mises}} = \sqrt{3J_2}$ is presented in Figure 2 at the crystal periphery and the growth interface, where J_2 is the second deviatoric stress invariant. It is clearly seen that the thermal stress distributions obtained from isotropic analysis are different from those obtained from anisotropic analysis especially at the crystal periphery near the seed and at the crystal–melt interface.

To show the internal part of the crystal, the contour lines of von Mises stress in the cross section (XY slice) at the triple point position are presented in the snapshots of Figure 3. For the isotropic

analysis, von Mises stress is almost uniform and axisymmetric for most of the melt–crystal interface while anisotropy induces non-uniformity and asymmetry of von Mises distribution.

Furthermore, the isotropic assumption overestimates the maximal von Mises value compared to the anisotropic analysis and underestimates its minimal value.

For both isotropic and anisotropic analyses, high von Mises stress regions are found close to the seed while the triple point and the end of the crystal are characterized by weak thermal stress values. In the isotropic case, larger thermal stress (609 MPa Figure 2.1a) is found in almost the whole periphery of the crystal compared to anisotropic analysis (502 MPa Figure 2.1b). This result agrees well with the results of numerical simulation obtained by Miyazaki et al.^[16]

The effect of anisotropy is clearly demonstrated through this comparison. Therefore, the crystal anisotropy is a significant factor affecting thermal stress calculations during the growth of sapphire single crystal and then has to be considered. In the following, all results are computed using crystal anisotropy for more realistic quantitative analysis.

3.2. Effect of Additional Resistive Heating

Figure 4a,b presents the effect of additional resistive heating on thermal stress field at the crystal periphery and the growth interface respectively. When resistive heating is added under the crucible bottom, von Mises stress values are decreased and hence the dislocations density may be expected to decrease.^[2] The main effect of RH is observed at the crystal–melt interface that appears more relaxed compared to the case without additional resistive heating (Figure 2). A thin region of small von Mises stress is generated around the triple point (Figure 4b) caused probably by the inflexion of m-c interface at this region.

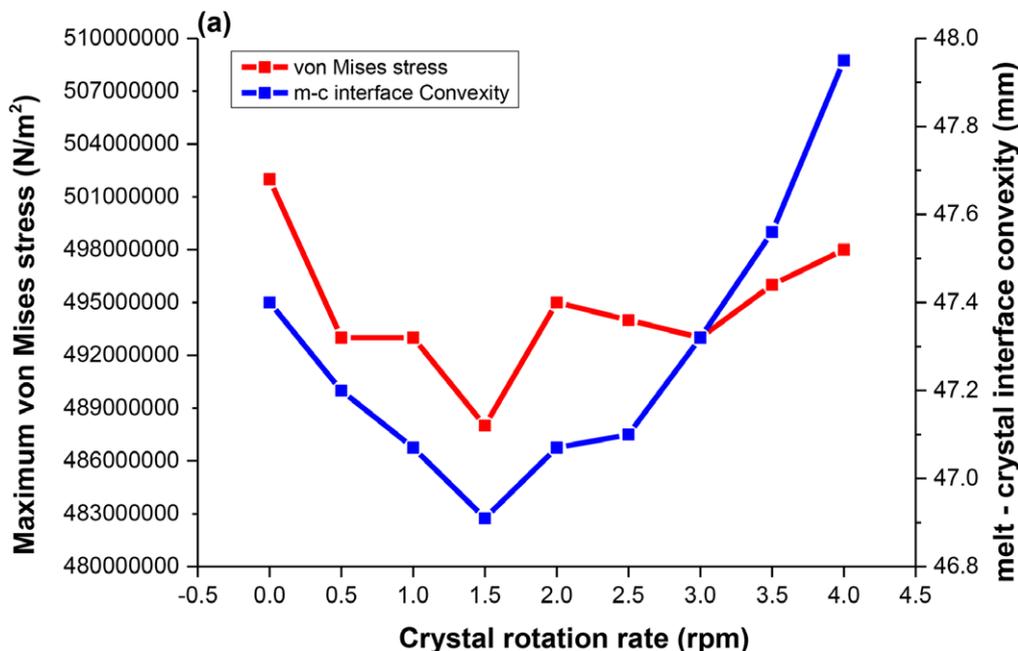


Figure 6. Influence of crystal rotation on maximum 3D von Mises stress in the crystal.

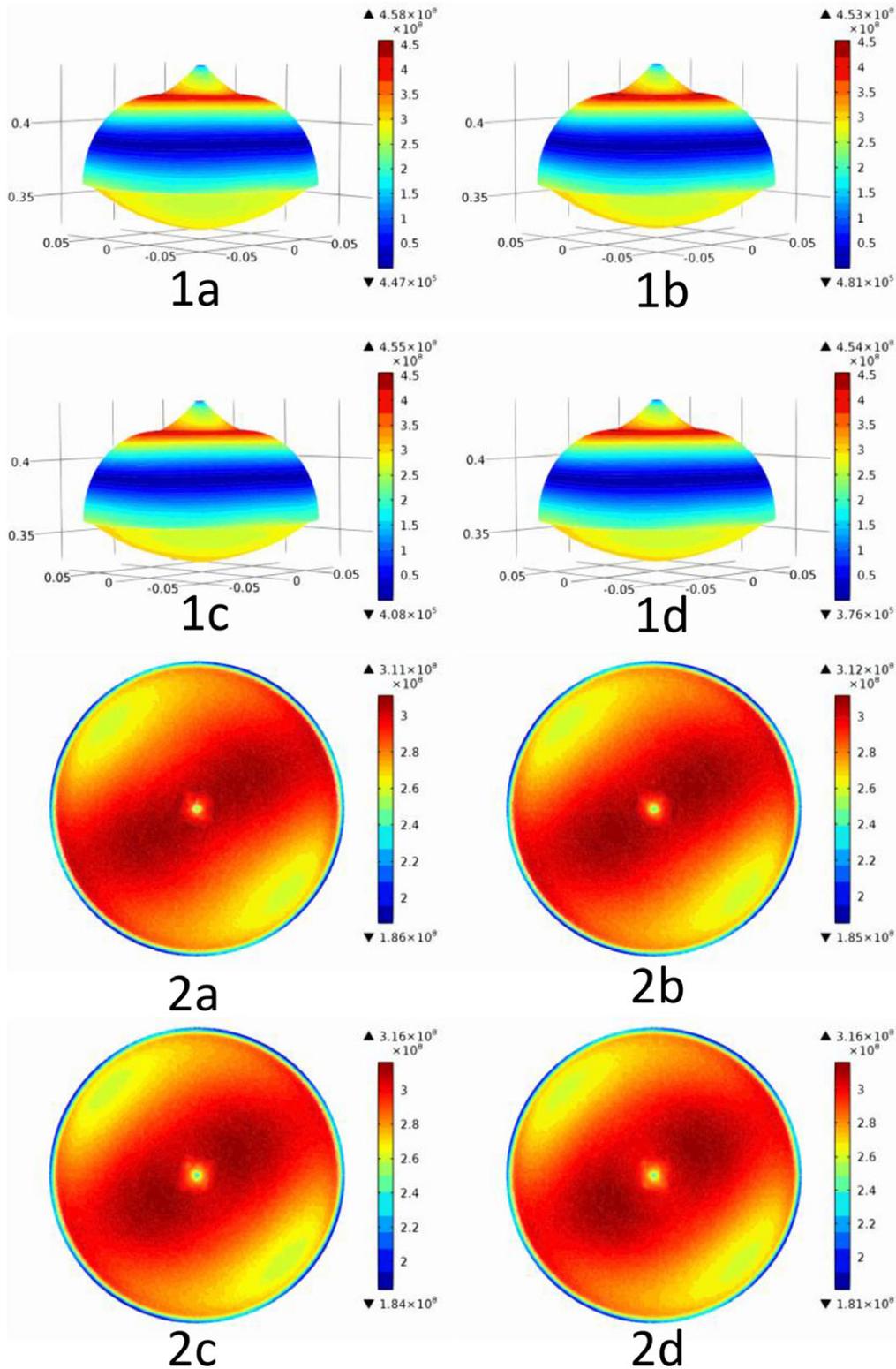


Figure 7. Combined effect of resistive heating and crystal rotation on the distributions of 3D von Mises stress in the entire crystal (1) and on the melt-crystal interface (bottom view) (2): a) $\omega = 1$ rpm, b) $\omega = 2$ rpm, c) $\omega = 3$ rpm, and d) $\omega = 4$ rpm.

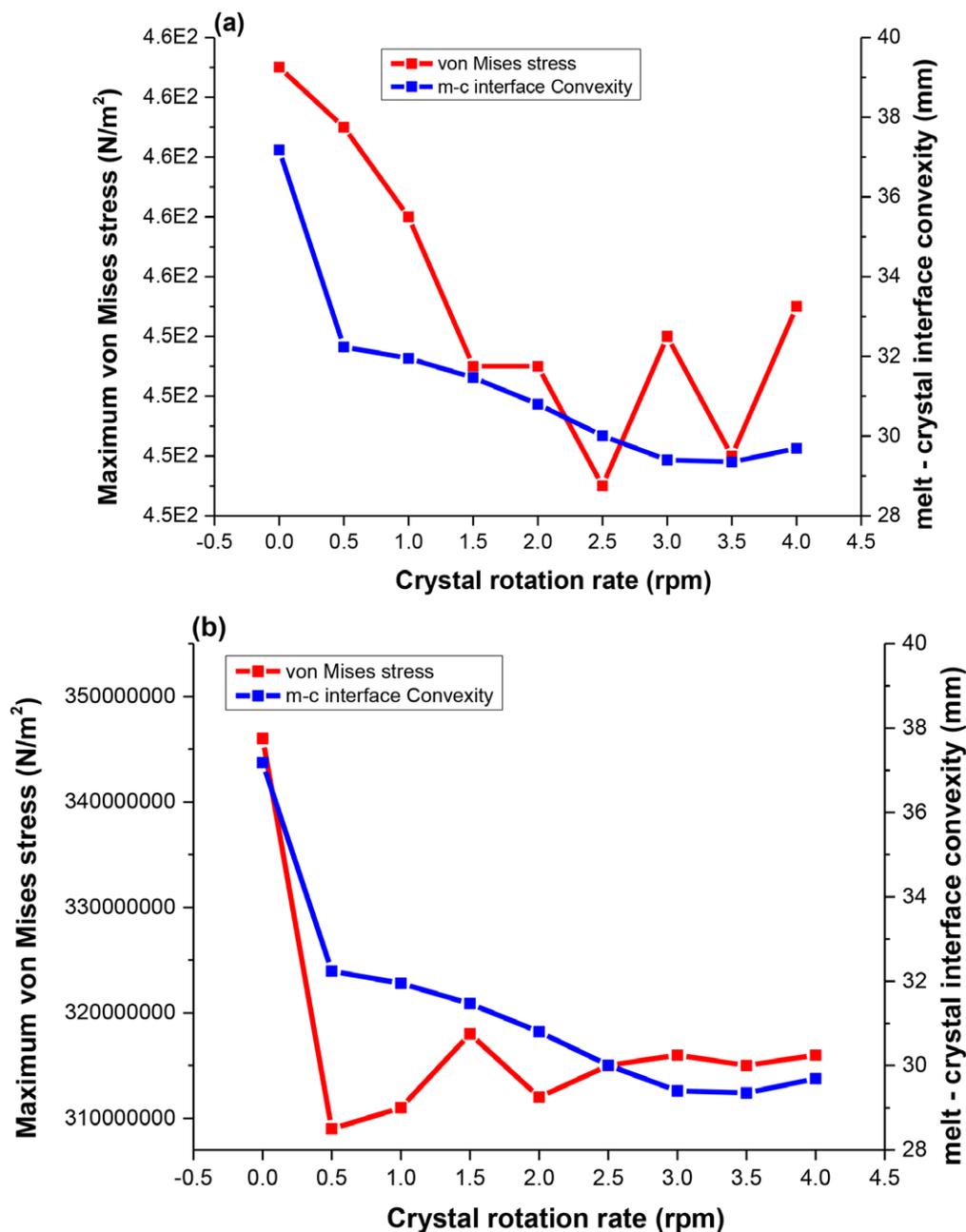


Figure 8. Influence of resistive heating and crystal rotation on maximum 3D von Mises stress in the a) crystal and on the b) melt–crystal interface.

Therefore, additional resistive heating acts to decrease not only the convexity of the m-c interface but also the maximum von Mises stress of about 7.76% and 22.24% inside the sapphire crystal and along the melt–crystal interface, respectively. The positive effect of additional resistive heating to reduce the thermal stress inside the crystal was demonstrated for different cross sections (Z-levels) as shown in Table 1. The maximum von Mises stress regions are located around the crystal neck (20 mm of shoulder) and at the outer melt–crystal interface while the minimum value is found at the outer surface of shoulder part.

Consequently, introducing an additional resistive heater at the bottom of the crucible helps to decrease the maximum von Mises

stress in all ingot sections especially at the position of 50 mm of shoulder (60.77%).

3.3. Effect of Crystal Rotation

In this section, we show how the crystal rotation influences the von Mises stress for rotation rates from 0 to 4 rpm. In all cases, the maximum von Mises appears at the peripheral region near the seed, while the minimum is observed at the center of the growth interface (Figure 5). Non-symmetric contours of von Mises in the crystal show clearly the anisotropy effect as

discussed above. When the crystal is not rotating (Figure 2), von Mises stress is larger and is mainly concentrated near both of the seed and crystal–melt interface. However, as the crystal rotates ($\omega = 1$ rpm), the maximum von Mises stress decreases in the crystal (Figure 5.1a), and continues to decrease until reaching the most important decrease for the rate $\omega = 1.5$ rpm. This result is in good agreement with the variation of the crystal–melt interface convexity, which has been found also smaller for $\omega = 1.5$ rpm. Beyond this value, the maximum von Mises stress increases slightly then remains almost the same for relatively large rotation rates (Figure 6).

3.4. Combined Effect of Crystal Rotation and Additional Heating

When resistive heating is combined with crystal rotation (Figures 7 and 8), the von Mises stress is low compared to the reference case (no RH and no crystal rotation, Figure 2). The maximum von Mises stress is observed only near the seed region, while the m-c interface appears more relaxed because of its lower convexity. It should be noted that the highest thermal stress is found for crystal rotation $\omega = 0$ rpm and the minimum value is found when resistive heating is combined with crystal rotation of 2.5 rpm. Moreover, the von Mises stress at the m-c interface is also reduced and the lowest value is now observed in the case of crystal rotation $\omega = 0.5$ rpm (3.09 Pa) (Figure 8b). Consequently, the combination of resistive heating and crystal rotation has not only a significant effect on the growth interface convexity as demonstrated in our previous work,^[13] but also on the von Mises stress distribution in the crystal.

The maximum and the minimum values of the von Mises equivalent stress at different positions on the z-axis when crystal rotation is considered and when crystal rotation is combined with resistive heating are summarized in Table 2. The positive effect of crystal rotation $\omega = 2$ rpm, when resistive heating is added under the crucible, is visibly confirmed at all levels.

Table 2. Maximum and minimum values of von Mises stress at different positions on the z-axis without and with additional heating for different crystal rotation rates.

Position on the z-axis [m]	von Mises [MPa]		
	Without RH Max/Min	With RH Max/Min	Decrease [%]
20 mm of shoulder (z = 0.42)			
1 rpm	496/31.2	447/29.1	9.879
2 rpm	499/31.5	247/28.5	50.50
3 rpm	503/31.8	450/28.7	10.53
4 rpm	497/32	446/28.4	10.26
Free surface level (z = 0.36)			
1 rpm	375/23.1	255/36.0	32.00
2 rpm	377/23.2	249/35.2	33.95
3 rpm	376/23.2	254/34.7	32.44
4 rpm	372/23.1	254/35.0	31.72
20 mm of m-c interface (z = 0.34)			
1 rpm	413/21.5	299/14.7	27.60
2 rpm	414/21.4	301/13.5	27.29
3 rpm	412/21.5	304/13.2	26.21
4 rpm	415/21.6	305/13.8	26.50

This decay in maximum von Mises stress is due to the decrease of the interface convexity and more accurately to the linearity of temperature field in this region. Rudolph^[22] provides more details on the relationship between thermal stress and the linearity of temperature. In order to thoroughly highlight this relationship, von Mises stress and temperature distribution along the outer surface of the crystal without and with resistive heating are presented together in Figure 9. It is clearly seen that the regions of high thermal stress correspond to the high curvature

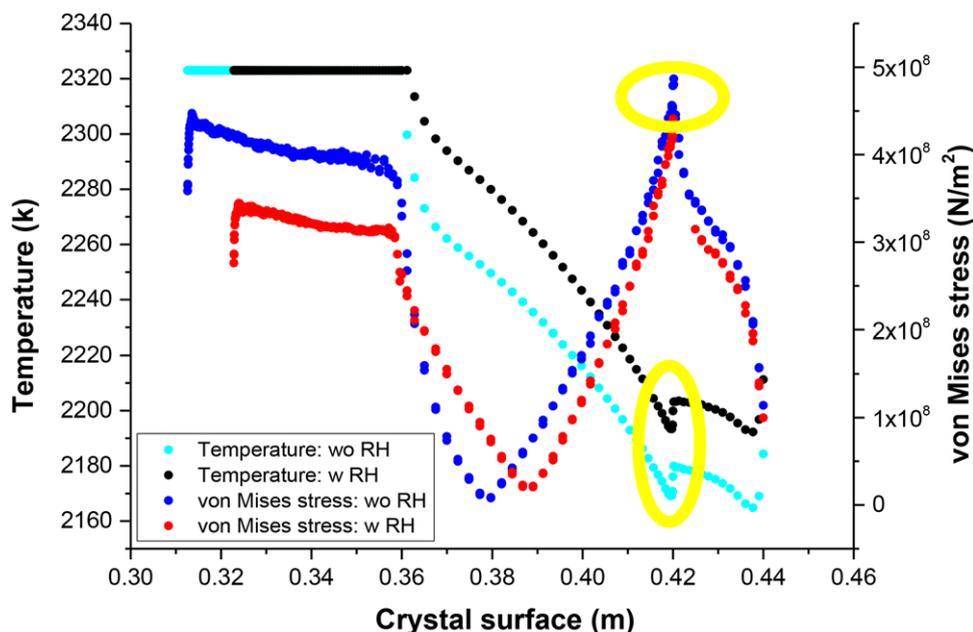


Figure 9. von Mises stress and temperature distributions along the crystal surface without and with additional resistive heating (RH).

of temperature profile as shown by thick yellow circles. These regions are located close to crystal neck and at the melt–crystal interface. However, the regions of small von Mises stress coincide with the linear part of the temperature profile (central part) and at the end of the melt–crystal interface. By adding resistive heating to the process, the maximum von Mises stress is reduced inside the crystal as discussed above and it is reduced considerably at the melt–crystal interface. This result indicates effectively that the generation of thermal stress is related to the temperature nonlinearities (curvature) and not to the temperature gradient.

4. Conclusion

Numerical study of the effect of additional resistive heating and crystal rotation on 3D thermal stress in sapphire single crystal grown by Kyropoulos technique is presented in this paper.

A nearly axisymmetric von Mises distribution is provided by the isotropic analysis while the anisotropic analysis shows asymmetric distribution. Thermal stress obtained in the anisotropic analysis is lower than in the isotropic analysis. Therefore, crystal anisotropy and temperature dependency of thermal expansion and elasticity coefficients have to be considered in the thermal stress computation.

For both analyses, the simulation results predict very high thermal stress values around the region near the seed and melt–crystal interface while a low thermal stress is found at the central part of the crystal. When resistive heating is added at the crucible bottom, von Mises stress decreases in the entire sapphire including melt–crystal interface, thus higher quality sapphire crystals can be obtained.

The combination of crystal rotation and additional resistive heating at the bottom leads to a further decrease in the maximum von Mises stress which allows improving sapphire crystal quality. The relationship between temperature non-linearity and von Mises thermal stress has been clearly illustrated.

Through these results, some points related to Kyropoulos crystal growth were clarified and we have shown that the modification in the parameters process can be benefit for crystallization of good quality sapphire crystals through the weakening of thermal stress leading then to decrease the dislocations density inside the crystal.

Conflict of Interest

The authors declare no conflict of interest.

Keywords

additional resistive heating, crystal anisotropy, crystal rotation, Kyropoulos method, sapphire single crystal, thermal stress analysis

Received: April 11, 2019

Revised: June 14, 2019

Published online:

- [1] H. S. Fang, S. Wang, Z. L. Jin, J. Tian, J. F. Xu, *Cryst. Res. Technol.* **2013**, *48*, 649.
- [2] N. Miyazaki, *Handbook of Crystal Growth*, Elsevier, Amsterdam **2015**.
- [3] I. Lasludji, F. Mokhtari, A. Nehari, G. A. Goget, K. Lebbou, *CrystEngComm* **2018**, *20*, 1110.
- [4] H. S. Fang, J. Z. Lin, L. L. Zheng, X. M. Huang, *Int. J. Heat Mass Transfer* **2015**, *85*, 505.
- [5] T. P. Nguyen, Y. T. Hsieh, J. C. Chen, C. Hu, H. B. Nguyen, *J. Cryst. Growth* **2017**, *468*, 514.
- [6] H. S. Fang, Y. Y. Pan, Q. J. Zhang, S. Wang, Z. L. Jin, *J. Cryst. Growth* **2013**, *363*, 25.
- [7] S. Demina, E. Bystrova, M. Lukanina, V. Mamedov, V. Yuferev, E. Eskov, M. Nikolenko, V. Postolov, V. Kalaev, *Opt. Mater.* **2007**, *30*, 62.
- [8] S. Demina, E. Bystrova, V. Postolov, E. Eskov, M. Nikolenko, D. Marsharin, V. Yuferev, V. Kalaev, *J. Cryst. Growth* **2008**, *310*, 1443.
- [9] H. S. Fang, Z. L. Jin, M. J. Zhang, Z. Zhang, C. J. Zhao, *Int. J. Heat Mass Transfer* **2013**, *67*, 967.
- [10] C. Chen, H. J. Chen, W. B. Yan, C. H. Min, H. Q. Yu, Y. M. Wang, P. Cheng, C. C. Liu, *J. Cryst. Growth* **2014**, *388*, 29.
- [11] S. Wang, H. Fang, *Appl. Therm. Eng.* **2016**, *95*, 150.
- [12] S. Demina, V. Kalaev, *J. Cryst. Growth* **2011**, *320*, 23.
- [13] S. Zermout, F. Mokhtari, A. Nehari, I. Lasludji, *CrystEngComm* **2018**, *20*, 5220.
- [14] T. P. Nguyen, H. T. Chuang, J. C. Chen, C. Hu, *J. Cryst. Growth* **2018**, *484*, 43.
- [15] C.-H. Chen, J.-C. Chen, Y.-S. Chiue, C.-H. Chang, C.-M. Liu, C.-Y. Chen, *J. Cryst. Growth* **2014**, *385*, 55.
- [16] N. Miyazaki, *J. Cryst. Growth* **2002**, *236*, 455.
- [17] E. S. Zouboulis, M. Grimsditch, *J. Appl. Phys.* **1991**, *70*, 772.
- [18] V. S. Sinogeikin, D. L. Lakshtanov, J. D. Nicholas, J. M. Jackson, J. D. Bass, *J. Eur. Ceram. Soc.* **2005**, *25*, 1313.
- [19] T. Goto, O. L. Anderson, *J. Geophys. Res.* **1989**, *94*, 7588.
- [20] J. A. Salem, Z. Li, R. C. Bradt, *Thermal expansion and elastic anisotropy in single crystal Al₂O₃ and SiC reinforcements*, NASA Technical Report, NASA-TM-106516, **1994**.
- [21] M. G. Larson, F. Bengzon, *The Finite Element Method: Theory, Implementation, and Applications*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg **2013**.
- [22] P. Rudolph, *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **2016**, *62*, 89.

Study of Kyropoulos crystal growth method *

ZERMOUT SAMIR **

Department : Mechanical Engineering

Specialty : Mechanical Engineering

Option : Materials Engineering

Abstract : Sapphire single crystals (Al_2O_3) has exceptional physical, chemical and optical properties, making it an excellent material for high technology applications such as lasers, nonlinear optics, optoelectronics, and so on. In recent years, sapphire substrates have taken an important place in semiconductor device fabrication (SOS) and the performance of these materials depends in particular on the quality and homogeneity of the sapphire used as substrate and also the impurities it contains.

Since the crystal growth of most synthesized crystals, such as sapphire, takes place at very high temperatures, the crystallization process must be very well controlled (the melting temperature of sapphire is 2050 C°). Consequently, a good understanding of thermal behavior of the hot growth chamber, as well as an in-depth study of the physicochemical phenomena involved during the synthesis such as the melt flow or mass transfer, are key parameters for successful growth of sapphire crystals with large diameter and high structural quality. High thermal stress and large crystal-melt interface convexity are among the main factors affecting the ingot quality.

In this thesis, we conducted numerical simulations using the finite element method for modeling the mechanisms affecting the hydrodynamics of the sapphire liquid in the crucible, the temperature field in the hot growth chamber and the thermoelasticity of the grown crystal. Different stages of the growth process are studied, namely : the first stage “before the connection of the seed with the melt free surface”, the second stage “beginning of seeding growth” and the third stage “intermediate growth stage” (crystal formation).

The effects of crucible's corner shape, additional resistive heating (placed under the crucible bottom) and forced convection generated by crystal rotation on melt flow and pattern of the molten sapphire, temperature field in the whole furnace and convexity of the crystal-melt interface are studied. A series of simulations under different conditions was carried out to calculate the three-dimensional thermal stress (3D) inside sapphire single crystal in basal crystallographic orientation c (0001) taking into account its anisotropic aspect.

Interesting results have been found and some modifications in the growth furnace have been proposed to improve the quality of the sapphire crystals obtained by the Kyropoulos method. In fact, the use of an appropriate crucible shape and an additional heating element is found to be useful to decrease the growth interface convexity and the thermal stress inside sapphire single crystal. Control parameters, such the crystal rotation rate, that govern the growth process and the quality of ingots are provided in each studied case and the optimal values are given.

Mots-clés : Saphir, Croissance cristalline, La méthode Kyropoulos, Simulation numérique, Chauffage résistif, Rotation du cristal, Convection naturelle et forcée, Champs de température et de vitesse, Convexité de l'interface cristal-liquide et Contraintes thermoélastiques.

* Doctoral thesis 3th Cycle (LMD)

** Thesis director : Mokhtari-Merah Faiza, Professor, Faculty of Physics, USTHB (Algiers)

Étude de la croissance cristalline de type Kyropoulos*

ZERMOUT SAMIR **

Département : Génie Mécanique

Spécialité : Génie Mécanique

Option : Génie des Matériaux

Résumé : Le saphir monocristallin (Al_2O_3) possède des propriétés physiques, chimiques et optiques exceptionnelles, ce qui en fait un excellent matériau pour les applications dans la haute technologie telle que les lasers, l'optique non linéaire, l'industrie optoélectronique et autres. Les substrats de saphir ont pris, ces dernières années, une place importante dans la fabrication des dispositifs à semi-conducteurs (SOS) et les performances de ces matériaux dépendent notamment de la qualité et de l'homogénéité du saphir utilisé comme substrat et également des impuretés qu'il contient.

Étant donné que la croissance cristalline de la plupart des cristaux synthétisés s'effectue à des températures très élevées, le processus de cristallisation du saphir doit être très bien contrôlé (la température de fusion du saphir est de 2050 C°). En effet, une mauvaise maîtrise de variation de la température peut mener à l'échec du processus de croissance, et de ce fait, un contrôle bien précis de la température est indispensable. Par conséquent, il apparaît qu'une bonne compréhension du comportement thermique de la chambre chaude de croissance, de même qu'une étude approfondie des phénomènes physico-chimiques impliqués pendant la synthèse tels que l'écoulement du bain fondu ou le transfert de masse, sont des paramètres clés pour réussir la croissance des cristaux de saphir d'un grand diamètre et de haute qualité structurale.

Dans la présente thèse et afin de pouvoir améliorer la qualité des cristaux de saphir obtenus par la méthode Kyropoulos, nous avons mené des simulations numériques en utilisant la méthode des éléments finis dans laquelle nous nous intéressons à la modélisation des mécanismes affectant l'hydrodynamique du saphir liquide au sein du creuset, la thermique dans la chambre chaude de croissance et la thermoélasticité du cristal cultivé. Nous nous concentrons sur les différentes étapes du processus de croissance à savoir : l'étape avant la connexion du germe avec la surface libre du saphir fondu, ensuite à l'étape juste au contact avec la surface libre (début de germination) et enfin au cours de la formation du cristal (étape intermédiaire de la croissance).

Nous y parvenons en étudiant l'effet géométrique des formes d'angle du creuset sur la convection naturelle du bain fondu et nous mettons en évidence les éléments d'information apportés par le chauffage résistif supplémentaire (placé au-dessous de la base du creuset) et la convection forcée générée par la rotation du cristal. En particulier, les champs de température et de vitesse dans un bain de Kyropoulos ainsi que la convexité de l'interface cristal-liquide sont calculés dans chaque configuration étudiée afin de choisir une forme appropriée du creuset en fonction des autres paramètres de contrôle qui régissent le processus de cristallisation. Une série de simulations dans différentes conditions a été également réalisée pour calculer les contraintes thermoélastiques tridimensionnelles (3D) dans le monocristal de saphir suivant l'orientation cristallographique basale c (0001) tout en mettant l'accent sur son aspect anisotrope.

Mots-clés : Saphir, Croissance cristalline, La méthode Kyropoulos, Simulation numérique, Chauffage résistif, Rotation du cristal, Convection naturelle et forcée, Champs de température et de vitesse, Convexité de l'interface cristal-liquide et Contraintes thermoélastiques.

* Thèse de Doctorat 3^{ème} Cycle (LMD)

** Directeur de thèse : Mme. Mokhtari-Merah Faiza, Professeur, Faculté de Physique, USTHB (Alger)