



Ministério da  
Ciência e Tecnologia



INPE-16656-TDI/1614

## MODELAGEM TRIDIMENSIONAL DE REATOR DE FILAMENTO QUENTE PARA CRESCIMENTO DE DIAMANTE

Viviane Ribeiro de Siqueira

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Engenharia e Tecnologia Espaciais/Ciência e Tecnologia de Materiais e Sensores, orientada pelos Drs. Jerônimo dos Santos Travelho, e Evaldo José Corat, aprovada em 14 de dezembro de 2009.

Registro do documento original:

<<http://urlib.net/sid.inpe.br/mtc-m19@80/2009/11.30.18.24>>

INPE  
São José dos Campos  
2010

## **PUBLICADO POR:**

Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais - INPE

Gabinete do Diretor (GB)

Serviço de Informação e Documentação (SID)

Caixa Postal 515 - CEP 12.245-970

São José dos Campos - SP - Brasil

Tel.:(012) 3945-6911/6923

Fax: (012) 3945-6919

E-mail: [pubtc@sid.inpe.br](mailto:pubtc@sid.inpe.br)

## **CONSELHO DE EDITORAÇÃO:**

### **Presidente:**

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação Observação da Terra (OBT)

### **Membros:**

Dr<sup>a</sup> Maria do Carmo de Andrade Nono - Conselho de Pós-Graduação

Dr. Haroldo Fraga de Campos Velho - Centro de Tecnologias Especiais (CTE)

Dr<sup>a</sup> Inez Staciarini Batista - Coordenação Ciências Espaciais e Atmosféricas (CEA)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Dr. Ralf Gielow - Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPT)

Dr. Wilson Yamaguti - Coordenação Engenharia e Tecnologia Espacial (ETE)

## **BIBLIOTECA DIGITAL:**

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação de Observação da Terra (OBT)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Jefferson Andrade Ancelmo - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Simone A. Del-Ducca Barbedo - Serviço de Informação e Documentação (SID)

## **REVISÃO E NORMALIZAÇÃO DOCUMENTÁRIA:**

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Marilúcia Santos Melo Cid - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Yolanda Ribeiro da Silva Souza - Serviço de Informação e Documentação (SID)

## **EDITORAÇÃO ELETRÔNICA:**

Viveca Sant´Ana Lemos - Serviço de Informação e Documentação (SID)



Ministério da  
Ciência e Tecnologia



INPE-16656-TDI/1614

## MODELAGEM TRIDIMENSIONAL DE REATOR DE FILAMENTO QUENTE PARA CRESCIMENTO DE DIAMANTE

Viviane Ribeiro de Siqueira

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Engenharia e Tecnologia Espaciais/Ciência e Tecnologia de Materiais e Sensores, orientada pelos Drs. Jerônimo dos Santos Travelho, e Evaldo José Corat, aprovada em 14 de dezembro de 2009.

Registro do documento original:

<<http://urlib.net/sid.inpe.br/mtc-m19@80/2009/11.30.18.24>>

INPE  
São José dos Campos  
2010

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)

---

Siqueira, Viviane Ribeiro de.

Si12m Modelagem tridimensional de reator de filamento quente para crescimento de diamante / Viviane Ribeiro de Siqueira. – São José dos Campos : INPE, 2010.

164 p. ; (INPE-16656-TDI/1614)

Tese (Doutorado em Engenharia e Tecnologia Espaciais/Ciência e Tecnologia de Materiais e Sensores) – Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, 2009.

Orientadores : Drs. Jerônimo dos Santos Travelho, e Evaldo José Corat.

1. Diamante. 2. Deposição química a vapor. 3. Filamento quente. 4. Modelagem computacional. 5. Modelagem tridimensional. I. Título.

CDU 679.826:532

---

Copyright © 2010 do MCT/INPE. Nenhuma parte desta publicação pode ser reproduzida, armazenada em um sistema de recuperação, ou transmitida sob qualquer forma ou por qualquer meio, eletrônico, mecânico, fotográfico, reprográfico, de microfilmagem ou outros, sem a permissão escrita do INPE, com exceção de qualquer material fornecido especificamente com o propósito de ser entrado e executado num sistema computacional, para o uso exclusivo do leitor da obra.

Copyright © 2010 by MCT/INPE. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, microfilming, or otherwise, without written permission from INPE, with the exception of any material supplied specifically for the purpose of being entered and executed on a computer system, for exclusive use of the reader of the work.

**Aprovado (a) pela Banca Examinadora  
em cumprimento ao requisito exigido para  
obtenção do Título de Doutor(a) em  
ETE/Ciência e Tecnologia de Materiais e  
Sensores**

**Dr. Vladimir Jesus Trava Airoidi**



---

Presidente / INPE / SJCampos - SP

**Dr. Jerônimo dos Santos Travelho**



---

Orientador(a) / INPE / SJCampos - SP

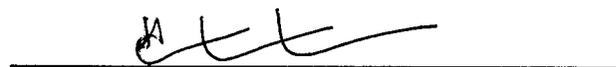
**Dr. Evaldo José Corat**



---

Orientador(a) / INPE / SJCampos - SP

**Dr. Helcio Francisco Villa Nova**



---

Convidado(a) / UFABC / Santo André - SP

**Dr. João Roberto Moro**



---

Convidado(a) / UNICAMP / Limeira - SP

**Aluno (a): Viviane Ribeiro de Siqueira**

**São José dos Campos, 14 de dezembro de 2009**



*À minha família,  
verdadeira fonte de amor.*



## **Agradecimentos**

A Deus, pois sem Ele nada disto seria possível.

A minha amada mãe, Benedita, e meu querido pai, Siqueira, pelo amor, incentivo e orações que me ajudaram a concluir mais uma etapa da minha vida.

Aos meus queridos irmãos, Camilo e Alessandra, pela grande força, torcida e incontáveis alegrias.

Ao meu amado marido, Alisson, pelo amor, companheirismo, e muita paciência, ajudando-me a enfrentar os desafios e a realizar meus sonhos.

Ao Prof. Dr. Jerônimo dos Santos Travelho pela valiosa orientação, inúmeras discussões, conversas e todo apoio oferecido para a realização deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Evaldo José Corat por sua ajuda essencial para a execução deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Vladimir Jesus Trava-Aroldi, ao Prof. Dr. Helcio Francisco Villa Nova, ao Prof. Dr. João Roberto Moro, por aceitarem fazer parte da banca examinadora, pela disponibilidade e atenção.

A todo o pessoal do grupo DIMARE pela colaboração e discussões que enriqueceram este trabalho.

A todos do INPE que ajudaram e incentivaram a realização desta tese.

Ao INPE pela oportunidade de estudos e utilização de suas instalações.

À CAPES e ao CNPQ, pelo apoio financeiro.

Enfim, agradeço a todos que, de alguma forma, contribuíram para que este trabalho fosse concluído.

## RESUMO

O filamento quente é parte primordial no processo de crescimento de filmes de diamante utilizando reatores de deposição química a vapor assistidos por filamento quente. Desta maneira, realizou-se o estudo da eficiência energética de filamentos de diferentes diâmetros, localizados a diferentes distâncias do substrato. Para a realização deste estudo foi empregado um aplicativo comercial de dinâmica dos fluidos computacional. Com a utilização deste software foram realizadas modelagens tridimensionais do reator HFCVD considerando o transporte de calor e massa, a química de fase gasosa e de superfícies para ambientes contendo somente hidrogênio e para ambientes com hidrogênio, metano e radicais precursores ao crescimento. Nessas modelagens foram utilizados parâmetros fixos e variáveis. Os parâmetros fixos foram a temperatura do filamento, temperatura do substrato, a temperatura da parede do reator e o fluxo de entrada do gás. Os parâmetros variáveis foram o diâmetro do filamento, o número de filamentos, a distância entre filamento e substrato, a distância entre filamentos e a pressão de trabalho do reator. Com a realização das modelagens foi possível obter a eficiência energética do filamento quente, os perfis de temperatura, a velocidade e a concentração de espécies. Isto permite uma análise dos resultados, de onde é possível indicar a melhor configuração de reator para obter a maior quantidade de hidrogênio atômico na região do filamento quente e na região do substrato, obter a melhor distância entre filamento e substrato e a melhor distância entre os filamentos.



## **THREE-DIMENSIONAL MODELING OF HOT FILAMENT REACTOR FOR DIAMOND GROWTH**

### **ABSTRACT**

The hot filament is a key part in the growth process of thin films of diamond using HFCVD reactors. Thus, the study of the energy efficiency of filaments of different diameters, located at different distances from the substrate was done. For this study, commercial software for computational fluid dynamics was used. By using this software, a three-dimensional modeling of the HFCVD reactor is done, considering heat and mass transport, gas-phase and surface chemistries, reactor environments containing only hydrogen and containing hydrogen, methane. These modeling used fixed and variable parameters. The fixed parameters were the filament temperature, substrate temperature, the wall temperature and the flow of the gas. The variable parameters were the filament diameter, the number of filaments, the filament-substrate deep, the filaments distance and the internal reactor pressure. With this modeling the energy efficiency of the hot filament, the profiles of temperature, speed and species concentration were obtained. The results analysis shows the best direction of reactor configuration.



## SUMÁRIO

Pág.

LISTA DE FIGURAS

LISTA DE TABELAS

LISTA DE SÍMBOLOS

<b>1. INTRODUÇÃO .....</b>	<b>25</b>
1.1. O processo de crescimento de filmes de diamante .....	26
1.2. A importância do hidrogênio atômico no processo de crescimento .....	29
1.3. Modelos de crescimentos de diamante .....	30
1.4. A importância das reações heterogêneas no processo de crescimento .....	30
1.5. Estudos teóricos do crescimento de diamante .....	33
1.6. Proposta do trabalho .....	34
1.7. Organização do trabalho .....	38
<b>2. FORMULAÇÃO MATEMÁTICA DO PROBLEMA.....</b>	<b>39</b>
2.1. A importância da dinâmica dos fluidos computacional (DFC) .....	39
2.2. Teoria matemática da DFC .....	40
2.3. A metodologia da DFC .....	41
2.4. Descrição do software comercial ANSYS CFX 11.0 .....	43
2.4.1. Definição da geometria e a geração da malha .....	44
2.4.2. ANSYS CFX-Pre 11.0 .....	44
2.4.3. ANSYS CFX-Solver 11.0 .....	45
2.4.4. ANSYS CFX-Post 11.0 .....	45
2.5. Discretização numérica e algoritmo de solução do ANSYS CFX 11.0 .....	46
2.6. Validação do ANSYS CFX 11.0 para realização de modelagens de reatores para o crescimento de diamante .....	50
2.6.1. Efeitos da convecção livre em um cilindro horizontal .....	51
2.6.2. Resultado da modelagem tridimensional independente da malha utilizada .....	58
2.6.3. Comparação dos resultados numéricos com resultados experimentais .....	59
2.7. Estudo da eficiência energética do filamento quente .....	61
2.7.1. A eficiência energética do filamento quente via expressões analíticas da mecânica dos fluidos .....	62
2.7.2. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator .....	66
2.7.3. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator e reações de dissociação do hidrogênio .....	69
2.7.4. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator e reações de fase gasosa .....	70
2.7.5. Dificuldades encontradas durante o processo de modelagem .....	71
<b>3. RESULTADOS E DISCUSSÕES .....</b>	<b>77</b>
3.1. Eficiência energética do filamento quente .....	77
3.2. Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento quente .....	84
3.3. Concentração molar de hidrogênio atômico no substrato .....	89
3.4. Modelagem 3D com diferentes distâncias entre filamentos paralelos .....	101
3.5. Modelagem 3D com a adição de hidrocarbonetos na fase gasosa .....	104

<b>4. CONCLUSÕES.....</b>	<b>109</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....</b>	<b>113</b>
<b>APÊNDICE A .....</b>	<b>119</b>

## LISTA DE FIGURAS

	Pág.
1.1 Pressão de equilíbrio das fases diamante e grafite.....	26
1.2 Fenômenos que ocorrem durante o crescimento do diamante.....	27
1.3 Comparação entre simulação unidimensional e cálculo de equilíbrio mostrando o efeito do não equilíbrio térmico na região do filamento.....	29
1.4 Figura esquemática de um típico reator HFCVD.....	35
1.5 Figura esquemática da geometria do reator de crescimento de diamante HFCVD utilizada nas modelagens.....	36
1.6 Figura esquemática da distância entre filamentos.....	37
2.1 Figura esquemática de: (a) malha estruturada, (b) malha não estruturada.....	42
2.2 Módulos de operação do ANSYS CFX 11.0.....	44
2.3 Volume de controle usado na discretização do ANSYS CFX 11.0.....	46
2.4 Esquema de malhas usadas na técnica multigrid.....	50
2.5 Domínio utilizado na modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal.....	51
2.6 Malha da geometria utilizada para a modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal. Vista I.....	55
2.7 Malha da geometria utilizada para a modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal. Vista II.....	55
2.8 Comparação dos resultados da validação.....	56
2.9 Perfil de temperatura da modelagem tridimensional para o caso (a): $d_{fio} = 1$ mm e $T_{fio} = 400$ K. Vista frontal.....	57
2.10 Perfil de temperatura da modelagem tridimensional para o caso (a): $d_{fio} = 1$ mm e $T_{fio} = 400$ K. Vista lateral.....	58
2.11 Comparação do perfil de temperatura entre filamento e substrato. (a) Modelagem numérica, (b) Zumbach et. al (1997), (c) Harris e Weiner (1993).....	60
2.12 Perfil de concentração molar de hidrogênio atômico. (a) modelagem numérica e (b) resultados experimentais.....	61
2.13 Gráfico do fluxo de calor.....	65
2.14 Gráfico da potência consumida no filamento.....	65
2.15 Gráfico da eficiência energética do filamento.....	66
2.16 Gráfico da perda de calor total do filamento quente versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm, (c) 7 mm, (d) 10 mm, (e) 13 mm e (f) 15 mm.....	67
2.17 Gráfico da potência consumida no filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm, (c) 7 mm, (d) 10 mm, (e) 13 mm e (f) 15 mm.....	67
2.18 Perfil de velocidades da modelagem do transporte de calor no reator.....	68
2.19 Perfil de temperatura da modelagem do transporte de calor no reator.....	68
2.20 Perfil de temperatura utilizando uma malha mais grossa.....	72
2.21 Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas.....	73
2.22 Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas região entre o filamento e o substrato.....	74
2.23 Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas -	

	detalhe do refinamento da malha na região do filamento.....	74
2.24	Perfil inconsistente de fração molar do hidrogênio atômico.....	76
3.1	Fluxo de calor na parede do filamento onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.....	78
3.2	Fluxo de calor na parede do filamento onde (a) 1 filamento, (b) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm.....	79
3.3	Potência dissipada no filamento onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.....	80
3.4	Eficiência energética do filamento quente onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.....	81
3.5	Eficiência energética do filamento quente onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.....	82
3.6	Eficiência energética do filamento quente para: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm.....	83
3.7	Eficiência energética do filamento quente onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.....	84
3.8	Figura esquemática da região onde foram realizadas as medidas de concentração molar do filamento quente.....	84
3.9	Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 1 filamento e pressão 20 Torr.....	85
3.10	Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 3 filamentos e pressão 50 Torr.....	86
3.11	Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 5 filamentos e pressão 100 Torr.....	86
3.12	Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5	

filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.....	87
3.13 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm onde (a) 20 Torr, (b) 50 Torr, (c) 100 Torr.....	88
3.14 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 1 filamento e pressão 20 Torr.....	89
3.15 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 3 filamentos e pressão 50 Torr.....	90
3.16 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 5 filamentos e pressão 100 Torr.....	90
3.17 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.....	92
3.18 Razão da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato e da potência total dissipada no filamento onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.....	93
3.19 Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (I).....	94
3.20 Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (II).....	95
3.21 Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (III).....	95
3.22 Planos de corte para visualização dos resultados.....	96
3.23 Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (I).....	97
3.24 Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (II).....	98
3.25 Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (III).....	99
3.26 Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (I).....	100
3.27 Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (II).....	100
3.28 Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (III).....	101
3.29 Figura esquemática do posicionamento dos filamentos sobre o substrato.....	101
3.30 Eficiência energética do filamento quente para 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.....	102
3.31 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento para 5 filamentos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.....	103
3.32 Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato para 5 filamentos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.....	103
3.33 Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 20 Torr.....	104

3.34	Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 50 Torr.....	105
3.35	Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 100 Torr.....	105
3.36	Taxa de crescimento versus a pressão e a razão da taxa de crescimento e da potência total no filamento versus a pressão do reator.....	107

## LISTA DE TABELAS

	Pág.
2.1 Constantes para convecção livre sobre um cilindro circular horizontal.....	53
2.2 Propriedades termofísicas do ar.....	54
2.3 Comparação dos resultados.....	56
2.4 Comparação dos Resultados.....	59
2.5 Comparação dos resultados experimentais versus resultados numéricos.....	60
2.6 Mecanismo de reação de fase gasosa, onde as unidades são cm <sup>3</sup> , mol, s, kcal e K, $k_f = ATn e^{-E_a/RT}$ , $R = 1,99 \cdot 10^{-3}$ kcal/ mol $\cdot$ K.....	70
3.1 Resultados da modelagem com a adição de hidrocarbonetos na fase gasosa.....	106
4.1 Resumo da melhor configuração de reator.....	109



## LISTA DE SÍMBOLOS

$C_p$	Calor específico a pressão constante
$d$	Diâmetro
$g$	Aceleração da gravidade
$Gr$	Número de Grashof
$h$	Coefficiente de transferência de calor por convecção
$k$	Condutividade térmica
$K$	Constante de equilíbrio
$k_f$	Coefficientes da reação direta
$\bar{k}_f$	Coefficientes da reação inversa
$Nu$	Número de Nusselt
$p$	Pressão
$Pr$	Número de Prandtl
$Q$	Taxa de produção de átomos de hidrogênio
$q$	Fluxo de calor
$q''_{conv}$	Perda de calor devido à convecção
$q''_{diss}$	Calor utilizado para a dissociação de moléculas de hidrogênio.
$q''_{rad}$	Perda de calor devido à radiação
$q''_{tot}$	Perda de calor total no filamento
$q'_{tot}$	Potência dissipada no filamento quente
$r$	Raio
$R$	Constante universal dos gases
$Ra$	Número de Rayleigh
$R_H$	Recombinação do hidrogênio atômico
$\dot{S}$	Calor gerado/consumido devido às reações químicas
$t$	Tempo
$T$	Temperatura
$\vec{v}$	Vetor velocidade
$\bar{v}$	Velocidade térmica média
$[H]_{subs}$	Concentração do hidrogênio molecular na região do substrato
$\alpha$	Difusividade térmica
$\beta$	Coefficiente de expansão térmica
$\varepsilon$	Emissividade do filamento
$\gamma$	Coefficiente de recombinação dos átomos de hidrogênio.
$\eta$	Eficiência energética do filamento quente
$\nu$	Viscosidade cinemática
$\rho$	Massa específica do fluido
$\sigma$	Constante de Stefan-Boltzmann
$\tau$	Tensão de cisalhamento
$\Delta H$	Entalpia de formação de hidrogênio atômico
$\Delta_r G^\theta$	Energia livre de Gibbs.



## **LISTA DE SIGLAS E ABREVIATURAS**

CVD	Chemical Vapor Deposition
DFC	Dinâmica dos Fluidos Computacional
HFCVD	Hot Filament Chemical Vapor Deposition
HPHT	High Pressure High Temperature



## 1. INTRODUÇÃO

O presente trabalho foi realizado dentro da linha de pesquisa de crescimento de filmes finos e auto-sustentados de diamante a partir da deposição química da fase vapor, CVD - do inglês Chemical Vapor Deposition. O objetivo deste trabalho é obter a eficiência energética do filamento quente através de modelagens computacionais de fenômenos físico-químicos que ocorrem dentro do reator, durante o crescimento de filmes de diamante.

O diamante é um material que possui propriedades consideradas ideais para muitas aplicações tecnológicas. Podemos destacar o uso de diamante em ferramentas de corte na indústria, como protetor de células solares e superfícies sujeitas a bombardeamento de partículas, dissipadores de calor e dispositivos eletrônicos, como também seu uso nas áreas médica e odontológica (LEE, ZHANGDA E JIANG, 1999; GOZELOTO ET AL, 2003).

A produção artificial de diamante tornou-se realidade na década de 50 através do método HPHT – do inglês High Pressure High Temperature, alta pressão e alta temperatura, e deposição química a vapor (SPEAR E DISMUKES, 1994). O diamante sintético possui propriedades iguais, ou em alguns casos superiores, ao diamante natural, mas com um diferencial positivo, com custo consideravelmente menor (PIERSON, 1993). A busca por métodos artificiais de produção foi motivada por suas propriedades excepcionais e devido ao alto custo e raridade do diamante em sua forma natural.

A produção de filmes de diamante à baixa pressão não é simplesmente a deposição de átomos de carbono. O crescimento de diamante à baixa pressão acontece devido a vários fatores como a adsorção de átomos de carbono e sua incorporação na rede cristalina pela ação do hidrogênio atômico (PIERSON, 1999). Na Figura 1.1 é mostrado o diagrama de fase do carbono, com os respectivos campos de estabilidade do diamante e da grafite. Pela figura podemos notar que o crescimento de diamante é estável a altas pressões, e o crescimento da grafite é estável a baixas pressões. A chave do processo de crescimento

de diamante a baixas pressões é impedir a formação preferencial da grafite. Para isso é necessária uma supersaturação de hidrogênio atômico no ambiente de crescimento, como elucidaremos a seguir.

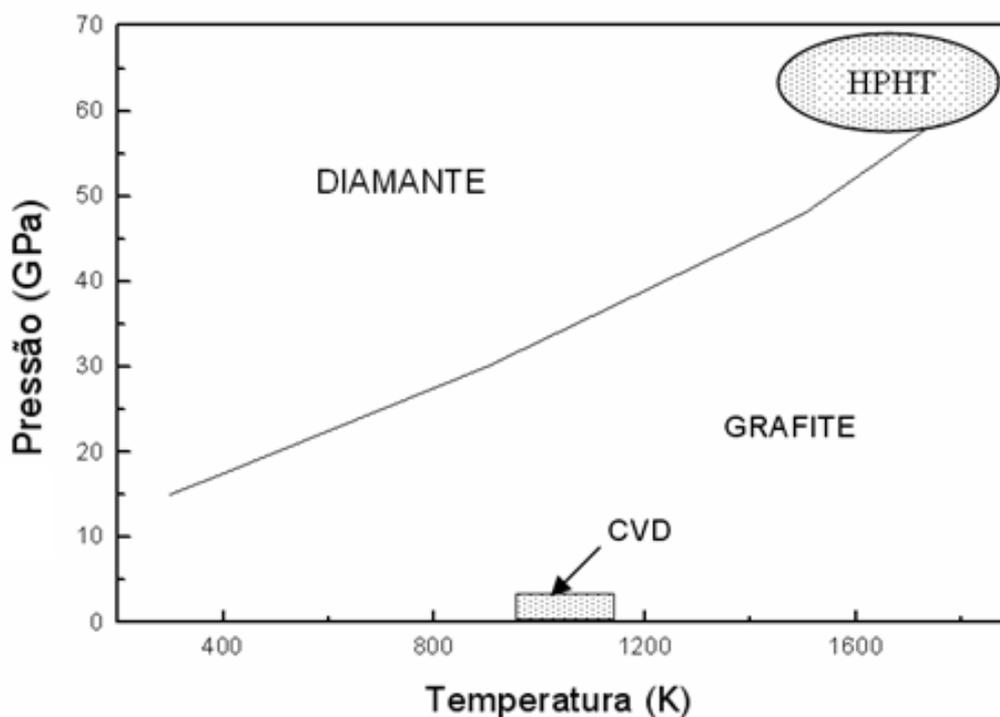


Figura 1.1 - Pressão de equilíbrio das fases diamante e grafite.

FONTE: Adaptada de Silva (2001).

### 1.1. O processo de crescimento de filmes de diamante

O processo de crescimento de filmes de diamante CVD atraiu a atenção de muitos autores nos últimos anos. Vários estudos experimentais e teóricos, com o intuito de entender o processo de crescimento, são encontrados na literatura. De acordo com Anthony (1997) a complexidade do entendimento do processo de deposição do diamante CVD é causada pela interdependência de alguns fatores: formação de radicais no filamento, reações químicas na fase gasosa, transporte das espécies reativas para a superfície, reações químicas sobre a superfície e transporte dos produtos na superfície.

O processo de crescimento do diamante CVD será descrito conforme o esquema mostrado na Figura 1.2. Inicialmente ocorre a introdução dos reagentes no reator. Os reagentes são gases da mistura de entrada, geralmente composta de hidrogênio molecular com pequenas porcentagens de hidrocarbonetos. O metano é amplamente usado com concentrações que variam entre 0,3% a 5%.

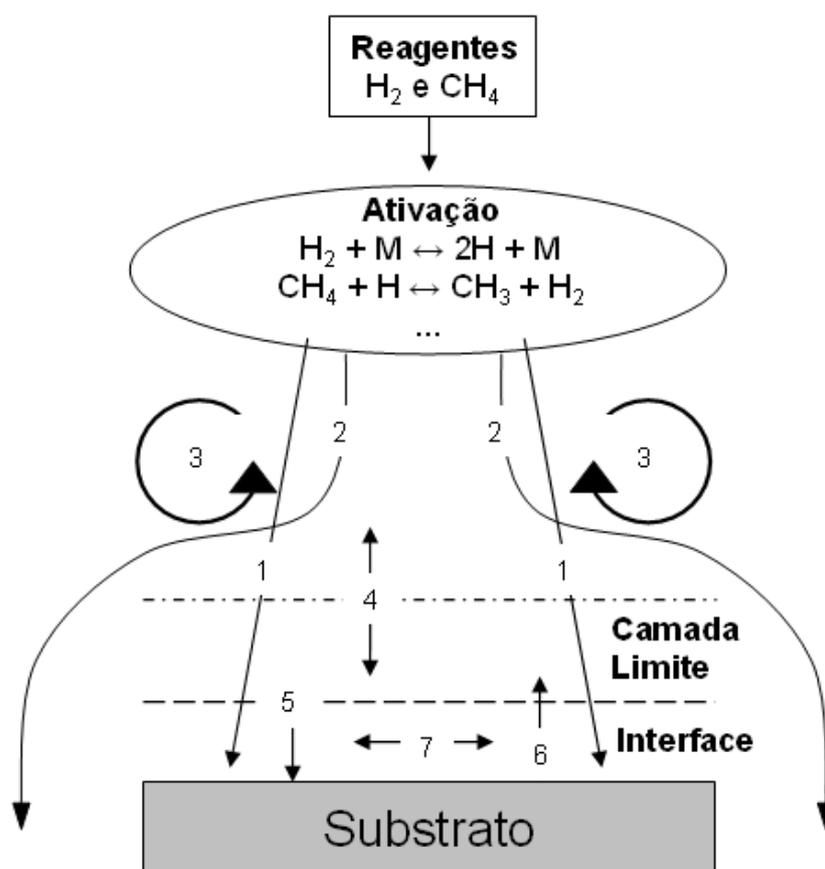


Figura 1.2 - Fenômenos que ocorrem durante o crescimento do diamante: (1) Difusão; (2) Fluxo Laminar; (3) Convecção Natural; (4) Difusão através da camada limite; (5) Adsorção; (6) Dessorção; (7) Difusão na Superfície.

FONTE: Adaptada de Spear e Dismukes (1994).

Os reagentes entram em uma região de alta temperatura onde o gás é ativado. Na região de ativação ocorre a dissociação do hidrogênio molecular em hidrogênio atômico e a dissociação das espécies de hidrocarbonetos. O gás pode ser ativado por filamento quente, plasma ou chama de combustão.

As espécies chegam à superfície de crescimento por uma combinação de processos de transporte do gás no reator. Convecção natural, convecção forçada e difusão transportam as espécies no reator. A linha tracejada horizontal, da Figura 1.2, representa uma possível camada limite da interação do fluxo de gás com o substrato. No substrato podem ocorrer reações químicas, adsorção, dessorção e difusão de espécies (SPEAR E DISMUKES, 1994).

A ativação do gás representa uma parte importante do processo de crescimento de diamante. Não basta apenas a dissociação dos gases componentes da mistura, mas é necessária uma condição que provoque o não equilíbrio térmico, como ocorre com a existência de altos gradientes de temperatura na região de ativação.

De acordo com os cálculos de equilíbrio químico não haveria indícios de concentração de hidrogênio atômico na região do substrato (temperatura aproximadamente 1000 K). Porém, por resultados experimentais e estudos numéricos de crescimento de diamante, verifica-se a presença de hidrogênio atômico nesta região. Isto se deve ao fato da existência de altos gradientes de temperatura na região de ativação (região próxima ao filamento) ocasionando o não equilíbrio térmico na mesma. Podemos visualizar este fenômeno no gráfico da Figura 1.3, onde realizamos uma comparação entre valores de concentração de hidrogênio atômico obtidos por cálculos de equilíbrio e valores obtidos a partir de simulação unidimensional, realizada por Siqueira (2005), onde foram considerados os fenômenos de difusão de calor e de difusão de espécies.

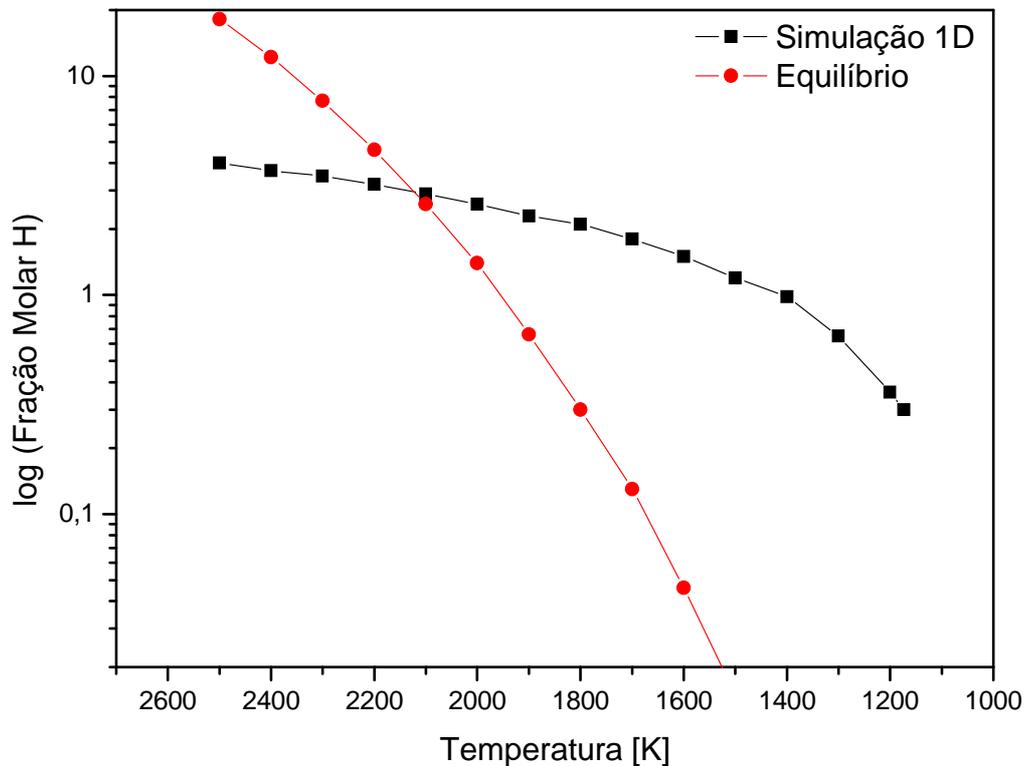


Figura 1.3 – Comparação entre simulação unidimensional e cálculo de equilíbrio mostrando o efeito do não equilíbrio térmico na região de ativação.

## 1.2. A importância do hidrogênio atômico no processo de crescimento

O hidrogênio atômico tem um papel fundamental no processo de crescimento de filmes de diamante. Podemos elucidar esse papel do hidrogênio atômico em três etapas. Primeira, promove a química da fase gasosa. Em condições de supersaturação promove o crescimento atacando espécies estáveis e produzindo radicais de hidrocarbonetos, os quais são possíveis precursores do crescimento (WOLDEN E GLEASON, 1993).

Segunda e muito importante, a remoção da grafite. O hidrogênio atômico ataca a grafite a uma taxa muito mais alta que o diamante. Essa teoria assume que a grafite e o diamante são formados simultaneamente, mas a grafite, ou fases grafíticas, são destruídas por reações com os átomos de hidrogênio, enquanto o diamante não, ou não na mesma extensão (FRENKLACH, 1989).

Terceira, cria sítios de crescimento através de reações de abstração e recombinação sobre a superfície, e estabiliza a superfície do diamante. Uma superfície de diamante terminada com hidrogênio é mais estável (SPEAR E DISMUKES, 1994).

Assim, o meio de ativação deve ser capaz de produzir uma quantidade abundante de hidrogênio atômico.

### **1.3. Modelos de crescimentos de diamante**

Vários mecanismos, de fase gasosa para crescimento de diamante, foram propostos com o intuito de esclarecer qual é a principal espécie precursora (metano ou o acetileno) de carbono na superfície de crescimento do diamante.

A primeira tentativa de esclarecer o crescimento do diamante em escala atômica foi dada por Tsuda, Nakajima e Oikawa (1986). Neste estudo propuseram o crescimento do diamante utilizando cátions de  $\text{CH}_3^+$ . Frenklach e Spear (1988) propuseram que o acetileno é o principal precursor para o crescimento dos filmes de diamante. Porém, em seus estudos, Harris (1989) verificou que o metano é o principal precursor do crescimento. O modelo proposto neste trabalho de Harris, e descrito com mais detalhes no capítulo 3, foi o modelo utilizado para a modelagem de toda a química de fase gasosa, nesta tese de doutorado.

Mais tarde, foi comprovado que o radical metila é a principal espécie precursora para o crescimento de diamante. Harris e Martin (1990) e Martin e Hill (1990) mostraram que radical metila ou o metano são mais eficazes que o acetileno para o crescimento dos filmes de diamante. Isto foi verificado por Chu et al. (1991), indicando que o radical metila é o precursor dominante do crescimento sob as condições HFCVD.

### **1.4. A importância das reações heterogêneas no processo de crescimento**

Além das reações de fase gasosa, reações de superfície devem ser inseridas no processo, para a modelagem da dissociação catalítica do hidrogênio na superfície do filamento e a recombinação dos átomos de hidrogênio na superfície do substrato.

A dissociação catalítica do hidrogênio molecular na superfície de um filamento de tungstênio aquecido foi descoberta por Irving Langmuir em 1912. Em seus estudos foram realizados cálculos e experimentos da potência consumida pelo filamento de tungstênio em um tubo de vidro de 5 cm de diâmetro. Comparando os resultados, valores calculados com valores experimentais, ele verificou que os mesmos não concordavam, demonstrando uma perda de energia nos valores experimentais. Com um estudo mais rigoroso ele comprovou que essa perda de energia era devida à dissociação do hidrogênio molecular na superfície do filamento quente, gerando assim átomos de hidrogênio.

Uma das complexidades da modelagem computacional do processo de crescimento de filmes de diamante via HFCVD é a obtenção da taxa de dissociação do hidrogênio na superfície do filamento quente. Este é um dos parâmetros cinéticos fundamentais para a simulação e modelagem do processo que ainda são desconhecidos na literatura. Alguns autores (ZUMBACH ET AL. (1997), QI E CHEN E WANG (2003)) utilizam um valor fixo da concentração de hidrogênio atômico na superfície do filamento quente e outros utilizam, através de tentativa e erro, acertar o valor dessa taxa no filamento, como veremos a seguir.

Devido à complexidade na obtenção dessa taxa, alguns autores consideravam somente a química de fase gasosa (GOODWIN E GAVILLET (1990), WOLDEN E GLEASON (1993)). Em 1989, Jansen e Chen e Machonkin realizaram experimentos recobrindo o filamento quente com quartzo a fim de medir a concentração de hidrogênio atômico no ambiente do reator. De acordo com este estudo, recobrindo o filamento com quartzo, não há indícios de formação de hidrogênio atômico na superfície do filamento quente.

Porém, o hidrogênio atômico é muito importante no processo de crescimento, como mostrado por Frenklach (1989). Ele observou a importância do hidrogênio atômico no processo, como a erosão da grafite da superfície de crescimento e a formação de espécies precursoras para crescimento. É imprescindível, como veremos a seguir, que a dissociação catalítica do filamento seja incorporada na modelagem.

Em 1990, Goodwin e Gavillet comprovaram o papel fundamental que as reações heterogêneas têm no processo de crescimento de diamante. Eles realizaram uma modelagem unidimensional de um reator de crescimento de diamante. O objetivo do trabalho era obter a velocidade de difusão de espécies, o perfil de temperatura e de concentração de espécies. Nessa modelagem eles consideraram somente a química na fase gasosa e seus resultados não foram satisfatórios quando comparados com dados experimentais, devido à ausência da dissociação do hidrogênio na superfície do filamento.

Wolden e Gleason (1993) realizaram um estudo numérico utilizando um modelo bidimensional do reator HFCVD. Seus estudos estavam focados na relativa importância da química homogênea e heterogênea de produção de hidrogênio atômico. Nesse estudo consideraram um valor fixo de concentração de hidrogênio atômico no filamento. Seus cálculos mostraram que, pelo menos, 95% da produção do hidrogênio atômico é devida à reação heterogênea do hidrogênio com o filamento quente. Outro modelo computacional unidimensional para a química de fase gasosa e processos de transporte foi empregado por Zumbach et al. (1997). Com esse estudo eles identificaram a importância da dissociação catalítica nas modelagens.

Qi e Chen e Wang (2003) estudaram a formação de hidrogênio atômico na superfície do filamento através de uma modelagem unidimensional de um reator de crescimento. Nesta simulação foram consideradas reações heterogêneas e de fase gasosa em um reator onde o gás era composto somente de hidrogênio. Eles obtiveram bons resultados, que concordavam com dados experimentais, de temperatura e concentração de hidrogênio atômico. O valor da taxa de produção do hidrogênio na superfície do filamento quente utilizada neste estudo foi de aproximadamente  $8,0 \text{ mol/ m}^2 \cdot \text{s}$ , para os seguintes parâmetros de reator: temperatura do filamento: 2500 K, temperatura do substrato: 1130 K, pressão: 20 Torr, diâmetro do filamento: 250  $\mu\text{m}$ , distância entre filamento e substrato: 7 mm.

## 1.5. Estudos teóricos do crescimento de diamante

Vários estudos teóricos foram realizados ao longo dos anos. Simulações unidimensionais, bidimensionais e tridimensionais, problemas estacionários e dependentes do tempo, abordagem contínua e discreta, simulações de fase gasosa, mecanismos de crescimento na superfície, estudos da energia de ativação, morfologia foram realizadas. Destacaremos aqui os estudos mais significativos para o desenvolvimento deste trabalho.

Com um modelo simplificado da química gás-superfície que ocorre durante a deposição de filmes de diamante a partir de CVD, Goodwin (1993) apresentou uma expressão para o cálculo da taxa numérica de crescimento dos filmes de diamante. Expressão esta usada para o cálculo da taxa de crescimento dos resultados obtidos neste trabalho.

Em 1992, Tankala e DebRoy realizaram uma simulação bidimensional dos fenômenos de transporte, química de fase gasosa e de dissociação catalítica do hidrogênio e compararam seus resultados com dados experimentais da literatura. O método de obtenção da taxa de dissociação catalítica do hidrogênio foi utilizada como base para a taxa de dissociação utilizada nesta tese.

Das simulações tridimensionais de reatores HFCVD presentes na literatura, destacamos duas que mais se aproximam das modelagens realizadas neste trabalho. Mankelevich, Rakhimov e Suetin (1998) realizaram uma modelagem tridimensional de um reator HFCVD para estudar reações de fase gasosa e de superfície. Seu modelo consiste em três blocos que descrevem: a) os processos de fase gasosa (transferência de calor e massa); b) reações gás-superfície no substrato e c) dissociação catalítica no filamento. A taxa de geração dos átomos de hidrogênio foi estimada através das comparações dos resultados obtidos com dados experimentais. Por questões de simplificação e facilidade nos cálculos, as equações da mecânica dos fluidos foram utilizadas em coordenadas cartesianas. Os parâmetros do processo considerados nessa modelagem foram: 1 filamento sobre o substrato a uma distância de 7 mm, pressão de 20 Torr, mistura gasosa 0,5% de CH<sub>4</sub> em H<sub>2</sub> escoando a uma taxa de 100 sccm.

A outra simulação que destacamos foi realizada por Barbosa, Villa-Nova e Baldan (2006). O modelo consiste na simulação dos processos de transferência de calor no reator HFCVD utilizando o software comercial CFX-5 para a obtenção dos perfis de velocidades e temperatura. Os parâmetros do processo considerados nessa modelagem foram: 1 filamento localizado paralelamente ao substrato a uma distância de 7 mm, cujo diâmetro é de 250  $\mu\text{m}$ , pressão de 30 Torr, mistura gasosa 1% de  $\text{CH}_4$  em  $\text{H}_2$  escoando a uma taxa de 100 sccm. As temperaturas do substrato e do filamento foram mantidas a 1000 K e 2500 K, respectivamente, e a temperatura da parede do reator a 328 K.

### **1.6. Proposta do trabalho**

A proposta deste trabalho é a modelagem tridimensional de reatores CVD utilizando um software comercial de dinâmica dos fluidos computacional (DFC), de maneira a obter a eficiência energética do filamento quente. Para esse estudo foi considerado um reator CVD ativado por filamento quente (HFCVD - do inglês hot filament chemical vapor deposition). O crescimento de diamante pelo método HFCVD é amplamente utilizado devido ao baixo custo e simplicidade de produção dos reatores, comparados com outros métodos CVD (PIERSON, 1993).

Na Figura 1.4 temos um esquema simplificado de um reator HFCVD. Notamos, nesta figura, que os gases reagentes entram no reator e passam pelo filamento quente, onde são ativados e posteriormente reagem com o substrato de maneira a produzir o filme de diamante.

Os detalhes da geometria do reator utilizado nas modelagens são mostrados na Figura 1.5. Os parâmetros utilizados foram aproximadamente:

- (a) Diâmetro interno do reator: 57 mm;
- (b) Altura do reator: 210 mm;
- (c) Diâmetro interno do tubo de entrada de gases: 2 mm;
- (d) Altura do tubo de entrada de gases: 97 mm;

- (e) Distância entre tubo de entrada de gases e o filamento quente: 36 mm;
- (f) Distância entre o porta-substrato e o fundo do reator: 70 mm;
- (g) Comprimento e largura do porta-substrato de 35 mm;
- (h) Espessura do porta-substrato: 2 mm;
- (i) Diâmetro interno do tubo de saída de gás: 4,8 mm.

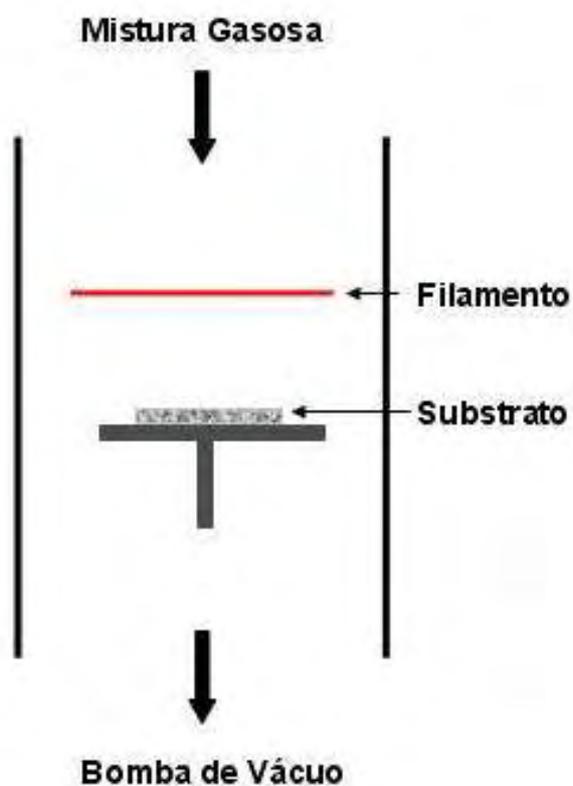


Figura 1.4 - Figura esquemática de um típico reator HFCVD.

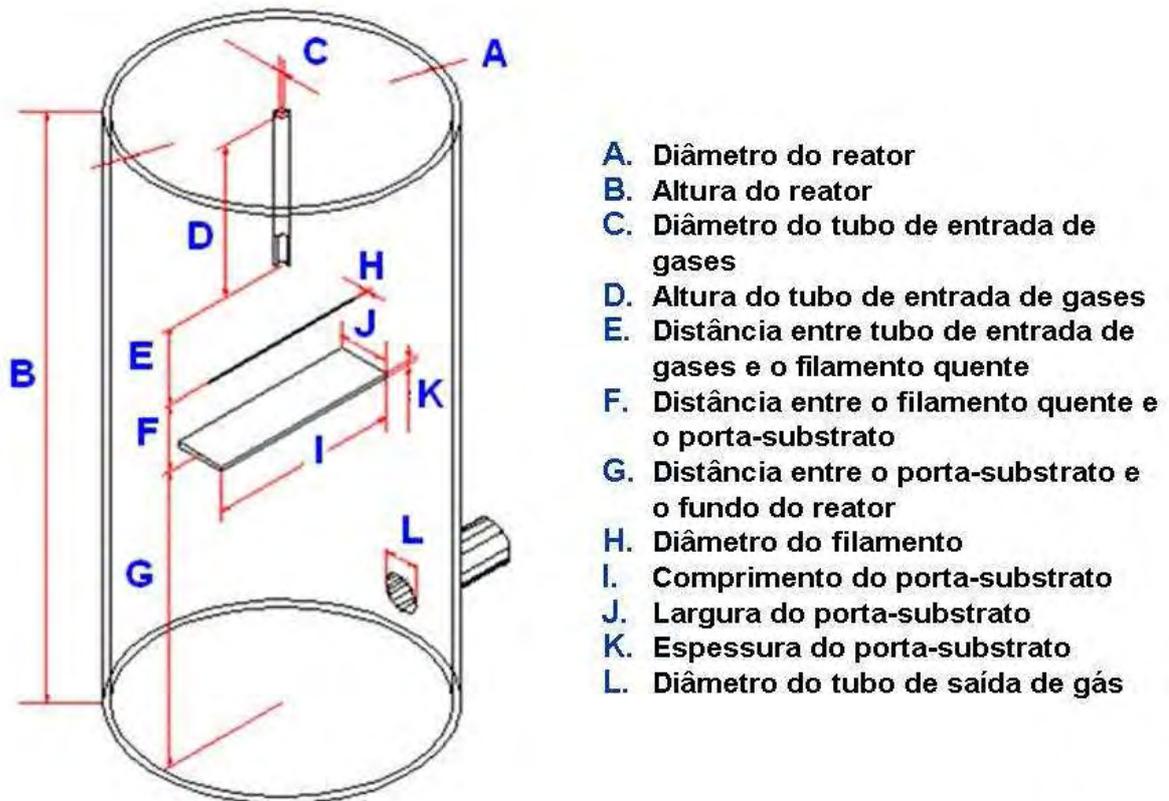


Figura 1.5 - Figura esquemática da geometria do reator de crescimento de diamante HFCVD utilizada nas modelagens

Outros parâmetros da geometria foram variados, como:

- (a) O diâmetro do filamento. Foram utilizados 8 diferentes diâmetros de filamento: 50  $\mu\text{m}$ , 85  $\mu\text{m}$ , 100  $\mu\text{m}$ , 123  $\mu\text{m}$ , 200  $\mu\text{m}$ , 250  $\mu\text{m}$ , 500  $\mu\text{m}$  e 1 mm.
- (b) A distância entre o filamento quente e o substrato. Foram utilizadas as seguintes distâncias entre filamento e substrato: 3 mm, 5 mm, 7 mm, 10 mm, 13 mm e 15 mm.
- (c) O número de filamentos. As modelagens foram realizadas utilizando 1 filamento, 3 e 5 filamentos.
- (d) A distância entre os filamentos. Para as modelagens com mais de um filamento foram utilizadas as distâncias (i) 3,5 mm; (ii) 5 mm e (iii) 4 e 5 mm. Estes

filamentos foram posicionados paralelos entre si e acima do substrato, como vemos na Figura 1.6.

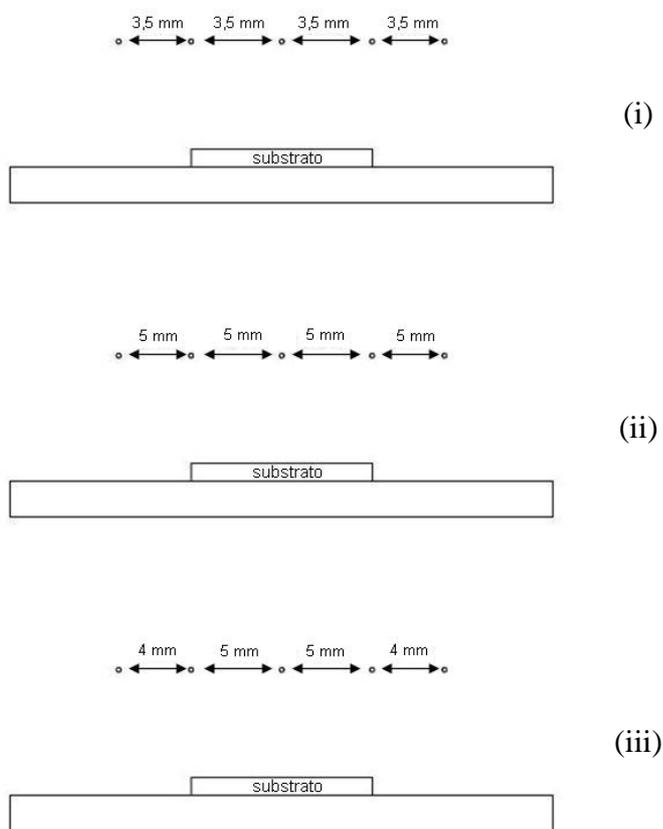


Figura 1.6 - Figura esquemática da distância entre filamentos

Além dos parâmetros da geometria, outros parâmetros foram utilizados nas modelagens como: a temperatura do filamento de 2500 K, a temperatura do substrato 1130 K, a entrada dos reagentes 100 sccm; gases reagentes:  $H_2$  e 1%  $CH_4$  em  $H_2$ . A pressão de trabalho do reator foi mais um dos parâmetros variáveis nas modelagens, onde foram modelados reatores operando a 20, 50 e 100 Torr.

Nossos estudos foram focados na formação e transporte das espécies químicas responsáveis pelo crescimento. Desta maneira fenômenos como convecção natural, convecção forçada, condução de calor, transporte de espécies químicas e as reações

químicas presentes na fase gasosa foram inseridas na modelagem, de maneira a obter valores que identifiquem o melhor diâmetro de filamento, a melhor distância entre filamento e substrato, como também o melhor posicionamento entre vários filamentos paralelos.

### **1.7. Organização do trabalho**

Este trabalho foi dividido em cinco partes:

1. Introdução: onde é apresentada uma breve discussão sobre o processo de crescimento de filmes de diamante identificando os principais fenômenos que ocorrem durante o processo de crescimento.
2. Revisão bibliográfica: onde são apresentados alguns trabalhos teóricos que servem como base para o entendimento das modelagens realizadas neste trabalho. Modelos de mecanismos de crescimento de diamante, estudos da taxa de dissociação de hidrogênio na superfície de crescimento e algumas modelagens 2D e 3D encontradas na literatura, são apresentadas.
3. Formulação matemática do problema: é apresentada a importância de estudos de dinâmica dos fluidos computacional, bem como uma descrição do software comercial utilizado, o ANSYS CFX 11.0, e a validação deste software para realização de modelagens numéricas de reatores HFCVD para crescimento de diamante. Neste capítulo, apresentamos também, o estudo da eficiência energética do filamento quente através da análise via expressões numéricas da literatura e também da modelagem 3D do transporte de calor no reator HFCVD, reações químicas de fase gasosa, taxas de produção e sumidouro de hidrogênio atômico e radical metila para diferentes pressões internas do reator e para casos com 1, 3 e 5 filamentos paralelos.
4. Resultados e discussões: onde são apresentados os resultados e as discussões deste trabalho.
5. E no capítulo 5 são apresentadas as conclusões deste trabalho.

## **2. FORMULAÇÃO MATEMÁTICA DO PROBLEMA**

A investigação numérica de fenômenos que ocorrem durante o processo de crescimento de diamante, em um reator assistido por filamento quente, é uma etapa importante para contribuir com as pesquisas experimentais já realizadas, resultando em um trabalho conjunto cujo intuito é obter, de maneira efetiva, filmes de diamante de boa qualidade.

### **2.1. A importância da dinâmica dos fluidos computacional (DFC)**

A dinâmica dos fluidos computacional é a área da computação científica que estuda métodos computacionais para simulação e modelagem de fenômenos que envolvem fluidos em movimento, cujo objetivo é reduzir o número de experimentos e analisar fenômenos que não poderiam ser estudados em laboratório (FORTUNA, 2000).

A DFC é uma ferramenta baseada na modelagem numérica do comportamento de sistemas envolvendo o escoamento de fluidos, a transferência de calor, convecção, turbulência e outros processos físicos relacionados. A DFC trabalha pela solução de equações do problema de um sistema, sobre uma região de interesse, baseando-se nas condições de contorno referentes a esta região. É amplamente usada por engenheiros e cientistas em um vasto campo de aplicações, destacando a modelagem de reatores químicos, a investigação dos efeitos de fogo e fumaça, a modelagem de sistemas de combustão, a aerodinâmica dos carros, transferência de calor nos circuitos eletrônicos, dispersão de poluentes no ar ou na água (ANSYS CFX 11.0, 2007).

A DFC pode ser usada para determinar a validade de um processo na fase de projeto ou para encontrar formas de melhorar as características de processos em operação. É uma ferramenta de baixo custo comparada com experimentos. Modificações de projeto podem ser realizadas através de mudanças na geometria do problema e simulações podem ser realizadas a fim de verificar os efeitos dessas mudanças. Outro ponto positivo da DFC é a possibilidade de aperfeiçoar processos através de comparações com resultados experimentais.

## 2.2. Teoria matemática da DFC

As equações básicas da mecânica dos fluidos descrevem o balanço de massa, quantidade de movimento, energia e espécies químicas de um sistema (BIRD ET AL., 1960; Incropera e DeWitt, 2002; Kuo 1986; Williams, 1965).

Estas equações são usadas para a modelagem de escoamentos compressíveis e incompressíveis, turbulentos e laminares. A complexidade matemática dessas equações dificulta o uso de soluções analíticas para análises teóricas. Mas, dependendo das propriedades do escoamento e do fluido, é possível simplificar consideravelmente esse conjunto de equações (FORTUNA, 2000).

- (a) Equação da Continuidade: a conservação de massa requer que a taxa líquida da massa acumulada em uma região seja igual à diferença entre a taxa do fluxo de massa para dentro e para fora;

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot \rho \vec{v} \quad (2.1)$$

onde  $\rho$  é a massa específica do fluido,  $t$  é o tempo e  $\vec{v}$  o vetor velocidade.

- (b) Equação de quantidade de movimento: a conservação da quantidade de movimento requer que a taxa líquida da quantidade de movimento acumulada em uma região seja igual à diferença entre a taxa da quantidade de movimento para dentro e para fora da região, mais a soma das forças que agem no sistema;

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho \vec{v} = -[\nabla \cdot \rho \vec{v} \vec{v}] - \nabla p - [\nabla \cdot \tau] + \rho g \quad (2.2)$$

onde  $p$  é o termo de pressão,  $\tau$  é a tensão de cisalhamento e  $g$  é a aceleração da gravidade.

(c) Equação da energia: a taxa da acumulação da energia interna e cinética em uma região é igual à taxa líquida da energia interna e cinética devida à convecção, mais a taxa líquida do fluxo de calor devida à condução, mais a taxa de trabalho feita no fluido, mais o termo devido às reações químicas.

$$\rho C_p \frac{DT}{Dt} = -\nabla \cdot q + \frac{Dp}{Dt} + \dot{S} \quad (2.3)$$

onde  $q$  representa o fluxo de calor,  $C_p$  é o calor específico do fluido,  $T$  é a temperatura,  $k$  é a condutividade térmica do fluido e  $\dot{S}$  representa o calor gerado/consumido devido as reações químicas na mistura gasosa.

Estas equações não têm uma solução analítica geral conhecida, mas podem ser discretizadas e resolvidas numericamente. Existem vários métodos de discretização numérica. Um método numérico amplamente usado para solucionar esse conjunto de equações é o método dos volumes finitos, método utilizado pelo ANSYS CFX 11.0, 2007. Neste método a região de interesse é dividida em pequenas sub-regiões, volumes de controle finitos, denominadas células. As equações governantes são integradas sobre cada volume de controle, de maneira que quantidades relevantes como massa, momento e energia são conservadas para cada volume de controle. As equações discretizadas são resolvidas iterativamente para cada célula. Como resultado, uma aproximação do valor de cada variável em pontos específicos dentro do domínio é obtida. Equações que descrevem outros processos, como combustão, podem ser resolvidas em conjunto com as equações básicas da mecânica dos fluidos.

### **2.3. A metodologia da DFC**

O estudo de um problema através da DFC pode ser dividido em quatro estágios. O primeiro estágio consiste em identificar a região de interesse, o domínio do problema, definindo assim a geometria da região que será estudada. Essa região deve ser discretizada em um conjunto de pontos ou subdomínios. A essa discretização damos o

nome de malha. Uma malha é uma estrutura geométrica formada por linhas regulares ou não. Em um modelo de DFC a malha pode ser estruturada, não estruturada ou mista.

Uma malha estruturada apresenta regularidade na disposição dos pontos. Esses pontos são uniformemente espaçados e a numeração dos mesmos é realizada em uma sequência natural. A célula ou ponto interno tem sempre o mesmo número de vizinhos. Este tipo de discretização apresenta uma série de vantagens para a implementação do modelo computacional, pois a regra de ordenação dos elementos simplifica todas as rotinas (MALISKA, 1995).

Já uma malha não estruturada recebe este nome devido à ausência de regularidade na disposição dos pontos. Este aspecto é caracterizado como uma desvantagem, pois dificulta estabelecer uma regra de ordenação dos pontos. É bastante utilizada em geometrias complexas devido à facilidade de adaptação a contornos difíceis. Uma malha mista é composta de elementos estruturados e não estruturados. Na Figura 2.1 (a) temos um esquema de malha estruturada e na Figura 2.1 (b) um esquema de malha não estruturada.

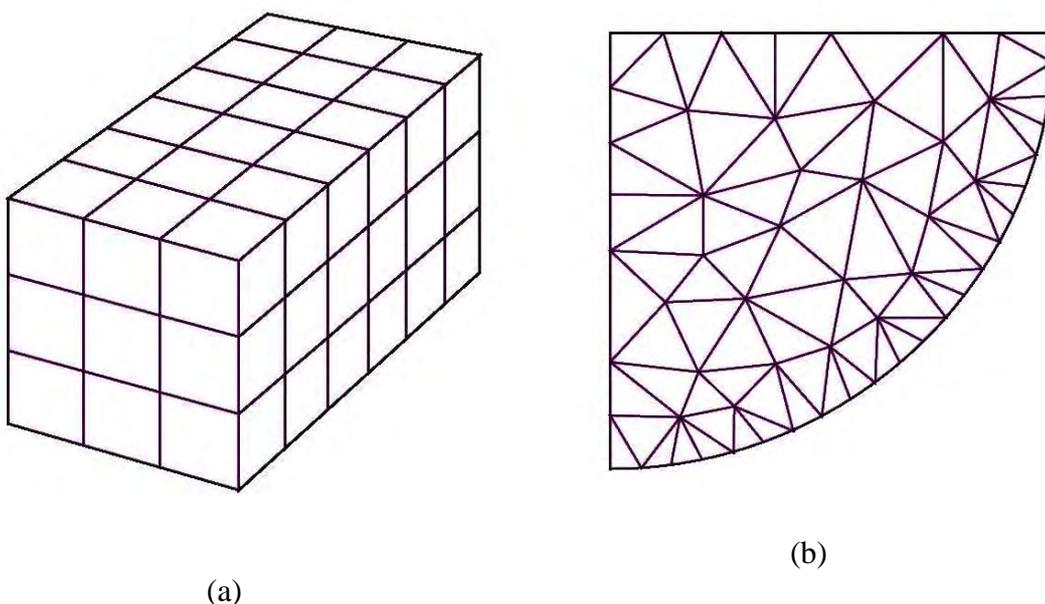


Figura 2.1 – Figura esquemática de: (a) malha estruturada, (b) malha não estruturada.

No segundo estágio é realizada a especificação do modelo físico, definindo o tipo de escoamento, as propriedades do fluido, as equações governantes, as condições de contorno e as condições iniciais do problema.

No terceiro estágio ocorre o processo iterativo de solução das equações e a geração da solução do problema. Esta solução deve ser analisada e interpretada para verificar se está correta. A comparação dos resultados numéricos com dados experimentais é muito importante para a verificação dos resultados obtidos numericamente. Uma boa solução numérica depende de uma malha com boa qualidade, ou seja, uma malha refinada nas regiões de interesse. Quanto maior for o número de pontos ou células, mais preciso será o resultado numérico obtido. Em contraponto, maior também será o custo computacional.

E no quarto estágio é realizada a visualização dos resultados, promovendo um entendimento do comportamento do fluido na região de estudo. A visualização por planos de corte ajuda a analisar os resultados de modelagens tridimensionais. Um plano corta o domínio e as propriedades do escoamento, que estão contidas neste plano, são exibidas na tela (FORTUNA, 2000).

#### **2.4. Descrição do software comercial ANSYS CFX 11.0**

Para a modelagem tridimensional proposta para este trabalho foi utilizado o software comercial ANSYS CFX 11.0. Este software combina o uso de um *solver* robusto com uma grande capacidade de pré e pós-processamento. O software tem a capacidade de modelar sistemas transitórios e estacionários, escoamentos laminares e turbulentos, transferência de calor e radiação térmica, escoamento multifase, combustão e algumas outras particularidades físicas. O ANSYS CFX 11.0 consiste basicamente de um pacote com três módulos de operação mais o módulo de criação de geometria e geração da malha, como verificamos na Figura 2.2.

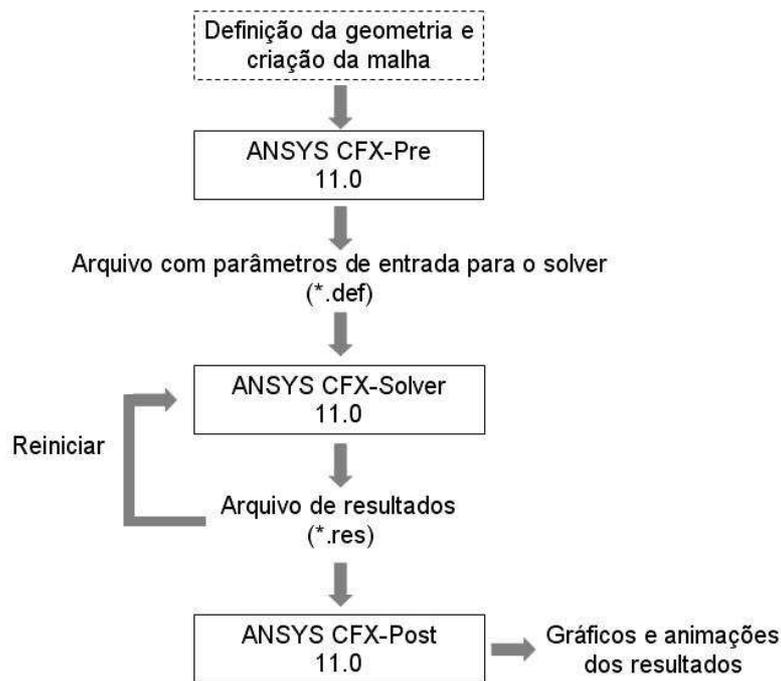


Figura 2.2 – Módulos de operação do ANSYS CFX 11.0.

FONTE: Adaptada de ANSYS CFX 11.0 (2007).

#### 2.4.1. Definição da geometria e a geração da malha

Para a especificação da geometria e a geração da malha foi utilizado o software ANSYS ICEM CFD 11.0, que vem em complemento ao pacote comercial ANSYS CFX 11.0. Além de definir e criar a região de interesse, neste estágio são criadas regiões de escoamento do fluido, regiões sólidas e a malha de todo esse conjunto. Há também a possibilidade de criar a geometria em outro software e importá-la para o ICEM CFD 11.0 a fim de gerar a malha da mesma.

#### 2.4.2. ANSYS CFX-Pre 11.0

Módulo de definição da física do modelo. São criadas as entradas necessárias para a execução do *solver*. O arquivo da malha é carregado na interface do programa, são

definidos o tipo de escoamento a ser estudado, as condições de contorno, os valores iniciais e as propriedades do fluido.

### **2.4.3. ANSYS CFX-Solver 11.0**

Módulo de solução do problema. Utilizando como dados de entrada o arquivo gerado na definição do modelo, vai ativar o *solver* para obter a solução do problema. Um problema em DFC é resolvido da seguinte maneira: são aplicadas as leis de conservação a cada célula da malha, gerando um conjunto de expressões numéricas, ou seja, um sistema de equações algébricas. A partir do sistema pronto é realizada a solução iterativa dessas equações.

O processo iterativo é necessário por causa da natureza não-linear das equações. Assume-se que o processo está convergindo à medida que a solução se aproxima da solução exata. Para cada iteração, um erro ou resíduo é comparado a uma precisão especificada. Quão próximo o resultado vai ficar da solução exata depende de uma série de fatores, entre eles o tamanho e formato do volume de controle e a ordem de grandeza dos resíduos.

Processos físicos complexos, tais como combustão e turbulência, geralmente são modelados usando relações empíricas e, as aproximações, inerentes a esses modelos, também contribuem para aumentar ou diminuir a diferença entre a solução da DFC e o resultado real. O *solver* produz um arquivo com os resultados que são passados para o pós-processador.

### **2.4.4. ANSYS CFX-Post 11.0**

Módulo de visualização, apresentação e análise dos resultados obtidos. O módulo de visualização é uma forma flexível, estado da arte do pós-processador para ANSYS CFX 11.0. Ele é projetado para permitir a fácil visualização e pós-processamento quantitativo dos resultados das simulações de DFC. Múltiplos arquivos podem ser lidos de uma só vez para o pós-processamento simultâneo e a realização de comparações. Este módulo possui ferramentas gráficas para:

- (a) Visualização da geometria, da malha e de volumes de controle;
- (b) Gráfico dos vetores mostrando a direção e a magnitude do escoamento;
- (c) Cromogramas para a visualização de grandezas escalares como a temperatura e pressão;
- (d) Animações.

## 2.5. Discretização numérica e algoritmo de solução do ANSYS CFX 11.0

Soluções analíticas para as equações de Navier-Stokes existem apenas para escoamentos mais simples, sob condições ideais. Para obter soluções para escoamentos reais um método numérico deve ser usado, onde as equações são substituídas por aproximações algébricas que podem ser resolvidas numericamente (ANSYS CFX 11.0, 2007). Como mencionado anteriormente, o método dos Volumes Finitos é a aproximação utilizada para a discretização das equações no Ansys CFX 11.0. A Figura 2.3 mostra uma malha típica na qual a superfície de um volume de controle é representada pela área sombreada. Nesta figura cada nó está rodeado por um conjunto de superfícies que definem o volume de controle. Todas as soluções das variáveis e propriedades do fluido são armazenadas nos nós da malha.

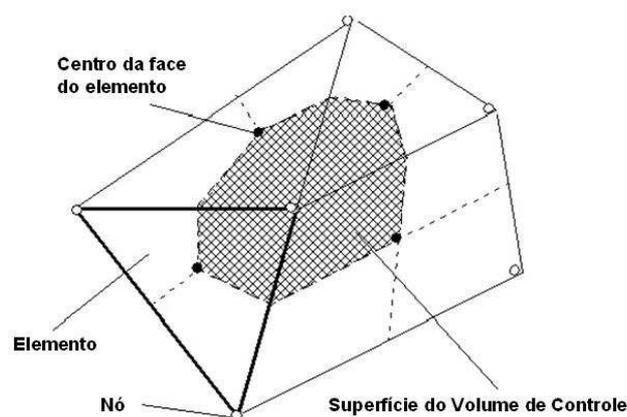


Figura 2.3 – Volume de controle usado na discretização do ANSYS CFX 11.0.

FONTE: Adaptada de ANSYS CFX 11.0 (2007).

Muitos algoritmos usam uma estratégia de solução onde as equações de momento são resolvidas primeiro, utilizando uma condição inicial para a pressão e uma equação para a correção da pressão é obtida. Devido à natureza “previsão e correção” deste sistema, um grande número de iterações é necessário para atingir a convergência além de requerer uma seleção cuidadosa dos parâmetros de relaxação das variáveis. O ANSYS CFX 11.0 usa um algoritmo que resolve as equações hidrodinâmicas (para velocidade e pressão) como um único sistema. Esta solução aproximada usa uma discretização totalmente implícita das equações em qualquer avanço de tempo. Para problemas em estado estacionário, o avanço de tempo se comporta como um parâmetro de aceleração, que leva a solução aproximada, de uma maneira física, a um estado estacionário. Isto reduz o número de iterações necessárias para a convergência no estado estacionário, ou a necessidade de calcular a solução para cada passo de tempo em análises dependentes do tempo (ANSYS CFX 11.0, 2007).

A solução de cada conjunto de equações consiste de duas operações numéricas intensivas. Para cada passo de tempo, tem-se:

1. *Geração de Coeficientes*: As equações não-lineares são linearizadas pela iteração dos coeficientes e montadas em uma matriz de solução;
2. *Soluções das Equações*: As equações lineares são resolvidas usando um método algébrico *multigrid*, descrito a seguir.

A iteração a cada passo de tempo é controlada pelo passo de tempo físico (global) ou fator de passo de tempo local, ajustado para avançar a solução no tempo para cada estado estacionário da simulação.

Para a solução do sistema de equações discretas linearizadas, o ANSYS CFX 11.0 usa a técnica de fatorização *Multigrid ILU*, do inglês Incomplete Lower Upper. Esta é uma técnica iterativa de solução onde a solução exata das equações é aproximada durante a execução de várias iterações. A técnica *multigrid* nasceu da necessidade de se reduzir o tempo de processamento na obtenção de soluções numéricas para equações diferenciais e integrais.

O sistema de equações discretas, explicitado anteriormente, pode ser escrito na forma matricial:

$$[A][\phi]=[b] \quad (2.4)$$

onde  $[A]$  é a matriz dos coeficientes,  $[\phi]$  é o vetor solução e  $[b]$  é o vetor dos termos independentes. O sistema de equações acima pode ser resolvido iterativamente, começando com uma solução aproximada  $\phi^n$ , que será aprimorada com uma correção  $\phi'$ , levando a uma solução melhor  $\phi^{n+1}$ , ou seja:

$$\phi^{n+1} = \phi^n + \phi' \quad (2.5)$$

onde  $\phi'$  é a solução para:

$$A\phi' = r^n \quad (2.6)$$

e  $r^n$  é o resíduo, obtido por:

$$r^n = b - A\phi^n \quad (2.7)$$

Repetidas aplicações deste algoritmo levarão a uma solução com a precisão desejada.

Algoritmos iterativos como o *ILU* tendem a perder em desempenho quando o número de volumes de controle da malha aumenta. O desempenho do algoritmo pode ser consideravelmente melhorado empregando a técnica *multigrid*.

A técnica *multigrid* é uma técnica iterativa que demanda menor tempo de processamento que outras técnicas quando aplicada à resolução de equações

diferenciais. Pode ser utilizada para tratar de problemas lineares e não lineares, e pode ser implementada utilizando um método iterativo qualquer.

Para se obter o máximo de vantagem da técnica *multigrid*, várias malhas devem ser utilizadas. Normalmente o tamanho dos elementos contidos nas malhas é aumentado por um fator de dois a cada nível de malha que se acrescenta. A passagem de cálculo de uma malha mais refinada para uma mais grosseira, ou seja, com menor número de nós, ocorre na fase conhecida por restrição. A passagem dos cálculos de uma malha para outra mais refinada ocorre na etapa de prolongação. A seqüência de restrições e prolongações adotadas na marcha de cálculo recebe o nome de ciclo (ANSYS CFX 11.0, 2007).

Do ponto de vista numérico a técnica *multigrid* traz uma vantagem significativa, pois para um dado refinamento de malha, algoritmos iterativos são eficientes na redução de erros que tem escala da ordem do espaçamento da malha. Assim, enquanto erros de pequena escala desaparecem rapidamente, erros de escala maiores, da ordem da dimensão do domínio em estudo, podem levar um tempo extremamente longo para desaparecer. A técnica *multigrid* resolve este problema usando uma série de malhas grosseiras de maneira que erros de escala maior aparecem como pequenos, relativos ao espaçamento da malha.

Para evitar a necessidade de criar malhas para a geometria usando uma série de diferentes espaçamentos, o ANSYS CFX 11.0 usa a técnica de *multigrid* Algébrica. Essa técnica forma um sistema de equações discretas para uma malha grosseira pela soma das equações da malha refinada. Isto faz com que se trabalhe virtualmente em uma malha grosseira e se obtenha o resultado real com a malha refinada. Esta técnica melhora significativamente a taxa de convergência, além de ser menos custosa do que outras técnicas *multigrid*, uma vez que a discretização das equações não-lineares é feita apenas uma vez, para a malha refinada.

A Figura 2.4 mostra a criação das malhas virtuais a partir da malha refinada original. As equações da malha grosseira, então, impõem as leis de conservação sobre um volume maior e, fazendo isso, reduz a componente devida a erros numéricos de larga escala.

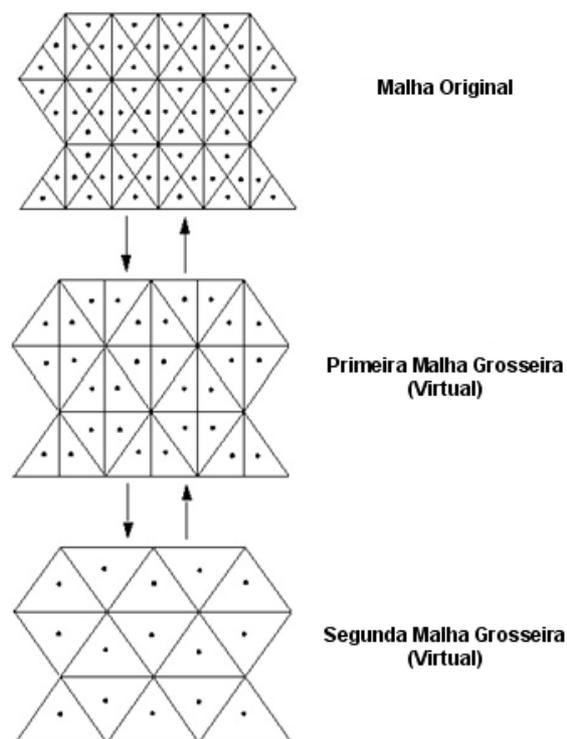


Figura 2.4 – Esquema de malhas usadas na técnica *multigrid*.

FONTE: Adaptada de ANSYS CFX 11.0 (2007).

## 2.6. Validação do ANSYS CFX 11.0 para realização de modelagens de reatores para o crescimento de diamante

A modelagem numérica utilizando softwares comerciais de DFC é uma ferramenta muito poderosa, pois integra em um único software rotinas de pré e pós-processamento, facilitando a definição do problema e a obtenção dos resultados. Porém, a utilização desses softwares pode se tornar uma grande armadilha se o problema em estudo não for especificado de maneira correta, respeitando as leis físicas. Se o modelo em estudo for especificado de maneira incorreta pode retornar resultados que não são confiáveis.

Sendo assim, a primeira etapa do desenvolvimento deste trabalho foi o conhecimento das facilidades e limitações do software. A validação do software para o estudo que se deseja realizar é muito importante. A primeira etapa da validação foi a modelagem de

problemas bem estabelecidos na literatura e a comparação dos resultados, verificando a confiabilidade dos resultados obtidos.

### 2.6.1. Efeitos da convecção livre em um cilindro horizontal

A primeira etapa da validação constituiu-se da modelagem de um problema bem estabelecido na área de engenharia e mecânica dos fluidos: os efeitos da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal, baseando-se nos experimentos realizados por Ayrton e Kilgor em 1892. Neste trabalho, resultados experimentais e teóricos da temperatura para filamentos com diferentes diâmetros são apresentados. Apesar de ter sido publicado há certo tempo, este artigo é muito utilizado e referenciado na área de Mecânica dos Fluidos. A escolha deste problema também é justificada devido à semelhança com a geometria do reator HFCVD para crescimento de diamante. Na Figura 2.5 temos um esquema da geometria utilizada para a modelagem desse problema.

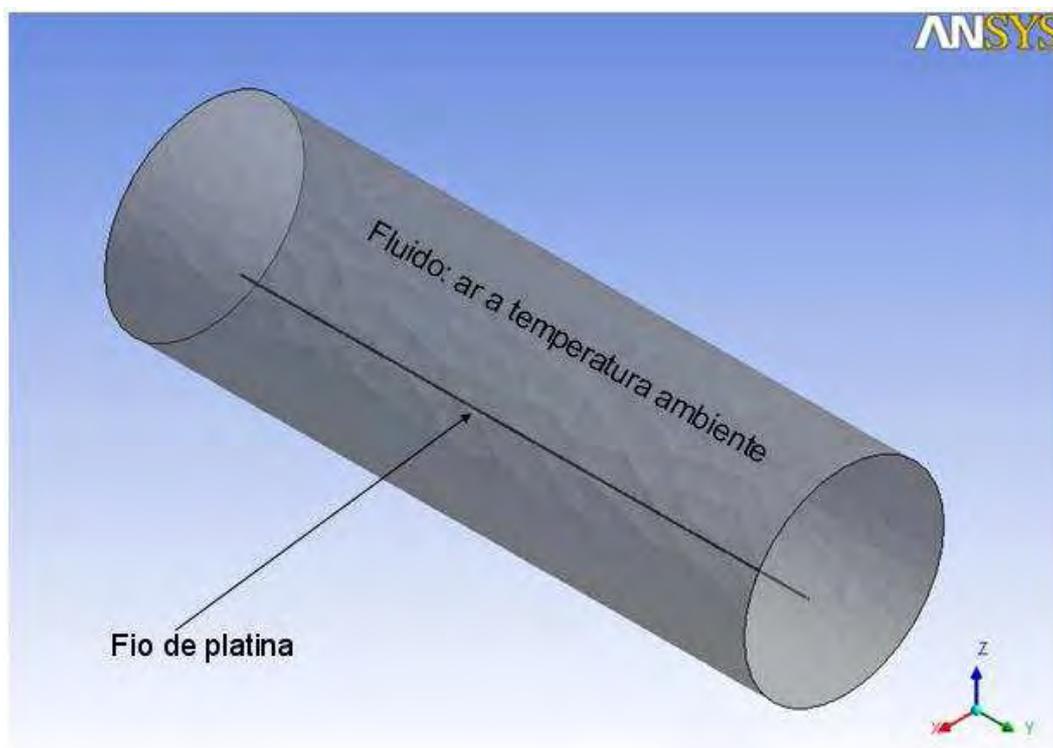


Figura 2.5 – Domínio utilizado na modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal.

Os valores de temperatura medidos nesse estudo, bem como o diâmetro e comprimento do fio de platina, o diâmetro e comprimento do tubo descritos no artigo foram utilizados como parâmetros de entrada para a modelagem tridimensional. Os resultados obtidos pela modelagem foram comparados com os resultados experimentais e também através de expressões numéricas para os números adimensionais de Rayleigh e Nusselt.

Os números adimensionais são muito importantes, uma vez que eles têm um significado físico que caracteriza determinadas medidas de comportamento para alguns sistemas, independentemente de escalas físicas e unidades. Eles nos permitem aplicar os resultados para um problema que contém uma série de condições geometricamente similares, porém com condições físicas completamente diferentes.

As correlações empíricas da transferência de calor e da convecção livre em escoamentos externos relacionam os números adimensionais de Rayleigh ( $Ra$ ) e Nusselt ( $Nu$ ). O número de Rayleigh para um cilindro circular horizontal é simplesmente o produto dos números de Grashof e Prandtl (INCROPERA E DEWITT, 2002):

$$Ra = Gr Pr = \frac{g\beta(T_{cilindro} - T_{ambiente})d_{cilindro}^3}{\nu\alpha} \quad (2.8)$$

onde  $Gr$  é o número de Grashof,  $Pr$  é o número de Prandtl,  $g$  é a aceleração da gravidade ( $m/s^2$ ),  $\beta$  é o coeficiente de expansão térmica ( $K^{-1}$ ),  $T_{cilindro}$  é a temperatura da superfície do fio de platina (K),  $T_{ambiente}$  é a temperatura ambiente (K),  $d_{cilindro}$  é o diâmetro do fio de platina (m),  $\nu$  é a viscosidade cinemática ( $m^2/s$ ) e  $\alpha$  é a difusividade térmica ( $m^2/s$ ).

O número de Nusselt representa o gradiente adimensional na superfície, proporcionando uma medida da transferência de calor por convecção nesta superfície. É definido através da seguinte expressão:

$$Nu = \frac{hd_{cilindro}}{k} \quad (2.9)$$

onde  $h$  é o coeficiente de transferência de calor por convecção ( $\text{W}/\text{m}^2\cdot\text{K}$ ) e  $k$  é a condutividade térmica ( $\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ ).

Uma possível correlação entre o número de Nusselt e Rayleigh é mostrada na expressão abaixo (INCROPERA E DEWITT, 2002):

$$Nu = CRa^n \quad (2.10)$$

onde  $C$  e  $n$  são constantes descritas na Tabela 2.1.

Tabela 2.1 – Constantes para convecção livre sobre um cilindro circular horizontal

$Ra$	$C$	$n$
$10^{-10} - 10^{-2}$	0,675	0,058
$10^{-2} - 10^2$	1,02	0,148
$10^2 - 10^4$	0,850	0,188
$10^4 - 10^7$	0,480	0,250
$10^7 - 10^{12}$	0,125	0,333

FONTE: Incropera e DeWitt (2002).

Outra correlação, para uma ampla faixa do número de Rayleigh ( $Ra \leq 10^{12}$ ), é apresentada em (3.11). Esta expressão é resultado de um ajuste de curva de dados experimentais para convecção natural (INCROPERA E DEWITT, 2002):

$$Nu = \left\{ 0,60 + \frac{0,387Ra^{1/6}}{\left[ 1 + (0,559/Pr)^{9/16} \right]^{8/27}} \right\}^2 \quad (2.11)$$

As propriedades termofísicas do gás em estudo, necessárias para os cálculos de  $Ra$  e  $Nu$  estão descritas, de maneira sucinta, na Tabela 2.2.

Tabela 2.2 - Propriedades termofísicas do ar

$T$ (K)	$\nu$ (m <sup>2</sup> /s)	$k$ (W/m.K)	$\alpha$ (m <sup>2</sup> /s)	Pr	$\beta$ (K <sup>-1</sup> )
100	2,000E-06	9,34E-03	2,54E-06	0,786	1,00E-02
150	4,426E-06	1,38E-02	5,84E-06	0,758	6,67E-03
200	7,590E-06	1,81E-02	1,03E-05	1,737	5,00E-03
250	1,144E-05	2,23E-02	1,59E-05	0,720	4,00E-03
300	1,589E-05	2,63E-02	2,25E-05	0,707	3,33E-03
350	2,092E-05	3,00E-02	2,99E-05	0,700	2,86E-03
400	2,641E-05	3,38E-02	3,83E-05	0,690	2,50E-03
450	3,239E-05	3,73E-02	4,72E-05	0,686	2,22E-03
500	3,879E-05	4,07E-02	5,67E-05	0,684	2,00E-03
550	4,557E-05	4,39E-02	6,67E-05	0,683	1,82E-03
600	5,269E-05	4,69E-02	7,69E-05	0,685	1,67E-03
650	6,021E-05	4,97E-02	8,73E-05	0,690	1,54E-03
700	6,810E-05	5,24E-02	9,80E-05	0,695	1,43E-03
750	7,637E-05	5,49E-02	1,09E-04	0,702	1,33E-03
800	8,493E-05	5,73E-02	1,20E-04	0,709	1,25E-03

FONTE: Adaptada de Incropera e DeWitt (2002).

A malha utilizada na modelagem é apresentada nas Figuras 3.6 e 3.7. Na modelagem utilizamos tubos de 40 e 80 mm de diâmetro; com comprimentos que variaram entre 30 e 120 mm. Foram utilizados fios de platina de 282  $\mu$ m; 356  $\mu$ m e 1 mm de diâmetro. O ar, à temperatura ambiente, foi o fluido utilizado na modelagem. Na Tabela 2.3 e Figura 2.8 temos a comparação dos valores obtidos através dos experimentos e da modelagem com ANSYS CFX 11.0.

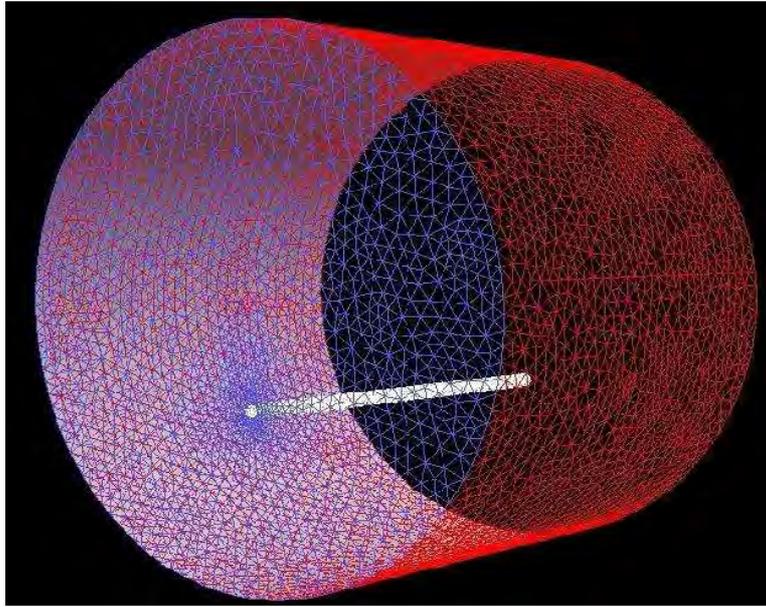


Figura 2.6 – Malha da geometria utilizada para a modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal. Vista I.

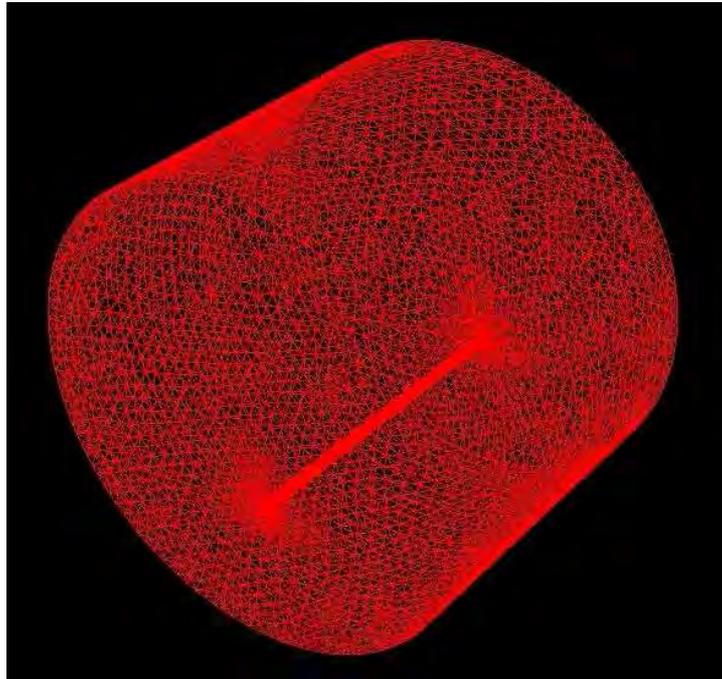


Figura 2.7 – Malha da geometria utilizada para a modelagem da convecção livre na transferência de calor em um cilindro circular horizontal. Vista II.

Tabela 2.3– Comparação dos resultados

	Valores Experimentais Ayrton e Kilgor (1892)	Modelagem Numérica
(a) $d_{\text{fio}} = 1 \text{ mm}$ $T_{\text{fio}} = 400 \text{ K}$	$Ra = 4,48$ $Nu = 1,27$ $q'' = 3820,00 \text{ W/m}^2$ $h = 38,2 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$	$Ra = 4,17$ $Nu = 1,26$ $q'' = 3772,35 \text{ W/m}^2$ $h = 37,72 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$
(b) $d_{\text{fio}} = 0,356 \text{ mm}$ $T_{\text{fio}} = 577 \text{ K}$	$Ra = 0,21$ $Nu = 0,81$ $q'' = 23761,92 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ $h = 82,01 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$	$Ra = 0,18$ $Nu = 0,79$ $q'' = 23161,00 \text{ W/m}^2$ $h = 80,00 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$
(c) $d_{\text{fio}} = 0,282 \text{ mm}$ $T_{\text{fio}} = 546,7 \text{ K}$	$Ra = 0,11$ $Nu = 0,74$ $q'' = 23642,72 \text{ W/m}^2$ $h = 91,39 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$	$Ra = 0,10$ $Nu = 0,72$ $q'' = 23177,80 \text{ W/m}^2$ $h = 89,59 \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^{-1}$

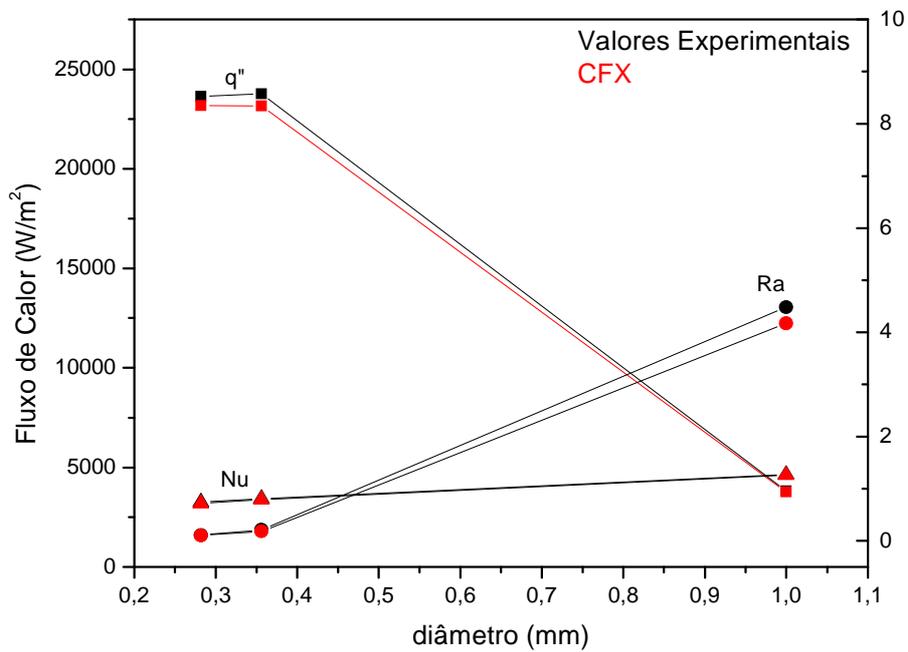


Figura 2.8 – Comparação dos resultados da validação.

Examinado os resultados obtidos através da modelagem numérica percebemos que estão muito próximos aos dados experimentais obtidos por Ayrton e Kilgor, 1892. Com a comparação destes resultados podemos dizer que o software de DFC utilizado está obtendo resultados confiáveis, podendo ser aplicado para o reator HFCVD para estudos do efeito do filamento quente no crescimento de filmes de diamante. Apresentamos ainda, o perfil de temperaturas de uma das modelagens utilizadas na validação. Esses resultados se referem à modelagem onde  $d_{cilindro} = 1$  mm e  $T_{cilindro} = 400$  K. Na Figura 2.10 temos a vista frontal do perfil de temperaturas e na Figura 2.10 temos a vista lateral do perfil de temperaturas.

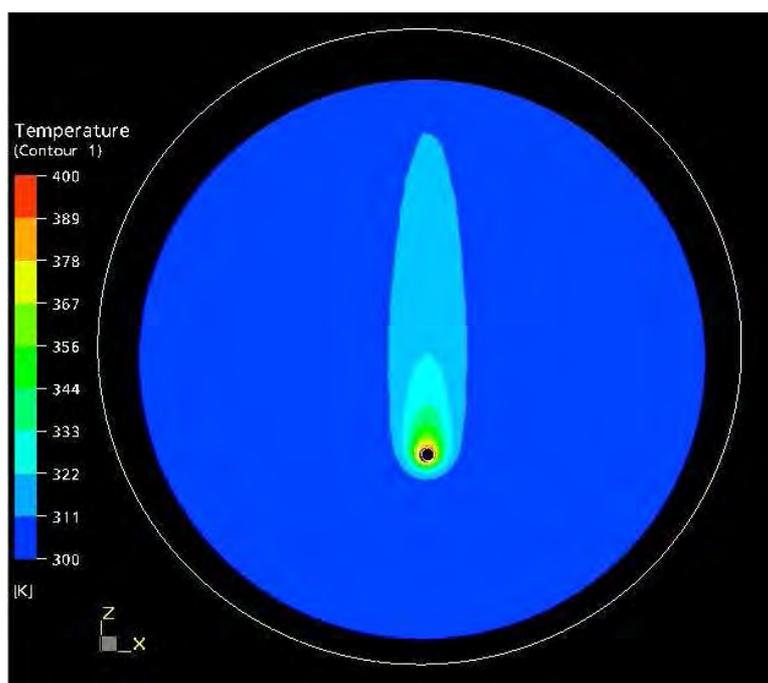


Figura 2.9 – Perfil de temperatura da modelagem tridimensional para o caso (a):  $d_{filo} = 1$  mm e  $T_{filo} = 400$  K. Vista frontal.

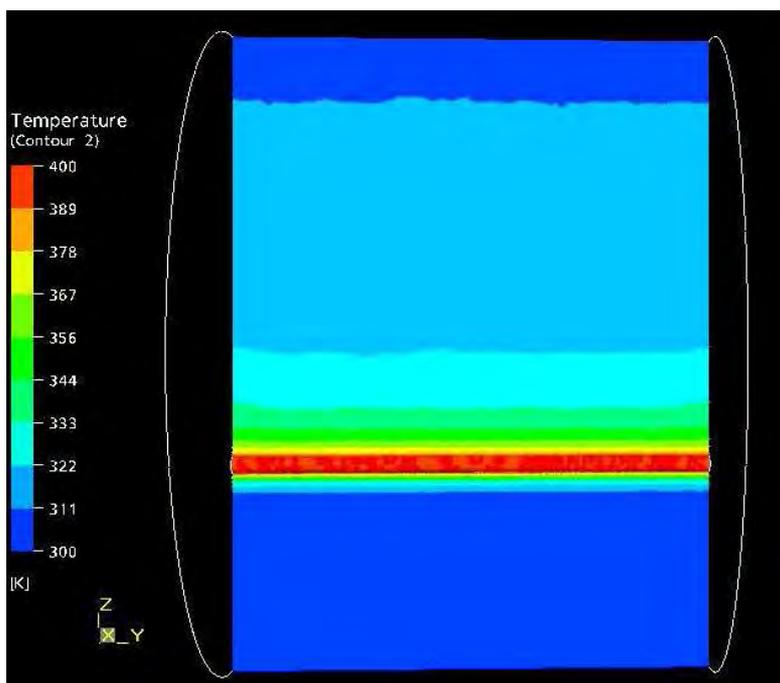


Figura 2.10 – Perfil de temperatura da modelagem tridimensional para o caso (a):  $d_{\text{fio}} = 1 \text{ mm}$  e  $T_{\text{fio}} = 400 \text{ K}$ . Vista lateral.

## 2.6.2. Resultado da modelagem tridimensional independente da malha utilizada

Outro aspecto importante a ser verificado em um problema de modelagem computacional é certificar se os resultados são independentes da malha utilizada, ou seja, o programa deve ser capaz de resolver as expressões do problema para malhas mais grossas e mais refinadas, porém o resultado deve prevalecer o mesmo, independente da malha utilizada.

Para esta validação adotamos o seguinte critério: realizamos a modelagem do transporte de calor no reator HFCVD com um filamento de  $250 \mu\text{m}$  de diâmetro. Foram realizadas modelagens para a mesma geometria de reator HFCVD com os mesmos parâmetros de crescimento - temperatura, pressão - porém com três malhas diferentes. A primeira malha é uma malha bem refinada com aproximadamente 2.293.365 elementos. A segunda malha é uma malha mais grossa com aproximadamente 990.170 elementos e a terceira malha, ainda mais grossa com aproximadamente 621.823 elementos.

Na Tabela 2.4 temos os resultados obtidos pelas modelagens. Podemos perceber que esses resultados são muito próximos, com uma diferença menor que 1,5%. Concluímos assim que o programa responde bem a esse aspecto, obtendo resultados que são independentes da malha utilizada.

Tabela 2.4 – Comparação dos Resultados

Malha	Elementos	q" CFX (W/m <sup>2</sup> )	diferença	%
I	2.293.365	7,75E+05	I-II	0,91
II	990.170	7,82E+05	I-III	0,52
III	621.823	7,71E+05	II-III	1,42

### 2.6.3. Comparação dos resultados numéricos com resultados experimentais

Outra parte importante da validação do software foi realizada através da comparação dos resultados obtidos nas modelagens com resultados experimentais disponíveis na literatura. A temperatura da fase gasosa, a razão entre a concentração molar de hidrogênio atômico e hidrogênio molecular e a fração molar de espécies foram as variáveis utilizadas para essa validação. Para a realização dessa validação foram considerados os seguintes parâmetros do reator: filamento de 250 µm de diâmetro a 2500 K, pressão interna do reator de 20 Torr, substrato a 1100 K, distância entre filamento e substrato de 7 e 15 mm.

Na Tabela 2.5 temos uma comparação entre a razão da concentração molar de hidrogênio atômico e hidrogênio molecular na região do filamento e na região do substrato, comparando nossos resultados numéricos com os resultados experimentais apresentados por Childs et al. (1996). Verificamos que os resultados numéricos estão muito próximos dos resultados experimentais para o caso de transporte de calor e reações químicas de fase gasosa com gás composto somente de hidrogênio.

Na Figura 2.11 temos o perfil de temperaturas obtido através da modelagem utilizando o ANSYS CFX 11.0 e três resultados experimentais encontrados na literatura.

Verificamos que o resultado do modelo numérico está coerente com os resultados experimentais para a temperatura da fase gasosa do reator.

Na Figura 2.12 temos o perfil de concentração molar obtido pela modelagem numérica utilizando o ANSYS CFX 11.0 e resultado experimental obtido por Chenevier et al. (1994). Analisando a figura verificamos que os resultados numéricos correspondem à mesma tendência dos resultados experimentais, podendo assim afirmar que o software ANSYS CFX 11.0 está apto a realizar modelagens numéricas de reatores HFCVD para crescimento de filmes de diamante.

Tabela 2.5 – Comparação dos resultados experimentais Childs et al. (1996) versus resultados numéricos

	[H]/[H <sub>2</sub> ] experimental	[H]/[H <sub>2</sub> ] numérico
<b>filamento</b>	2,35E-02	2,42E-02
<b>substrato</b>	4,93E-03	4,87E-03

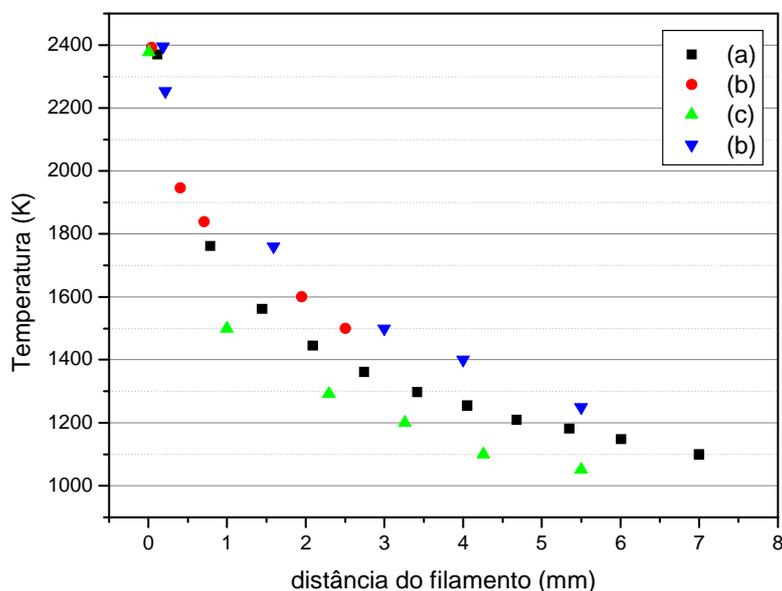


Figura 2.11 – Comparação do perfil de temperatura entre filamento e substrato. (a) Modelagem numérica, (b) Zumbach et. al (1997), (c) Harris e Weiner (1993).

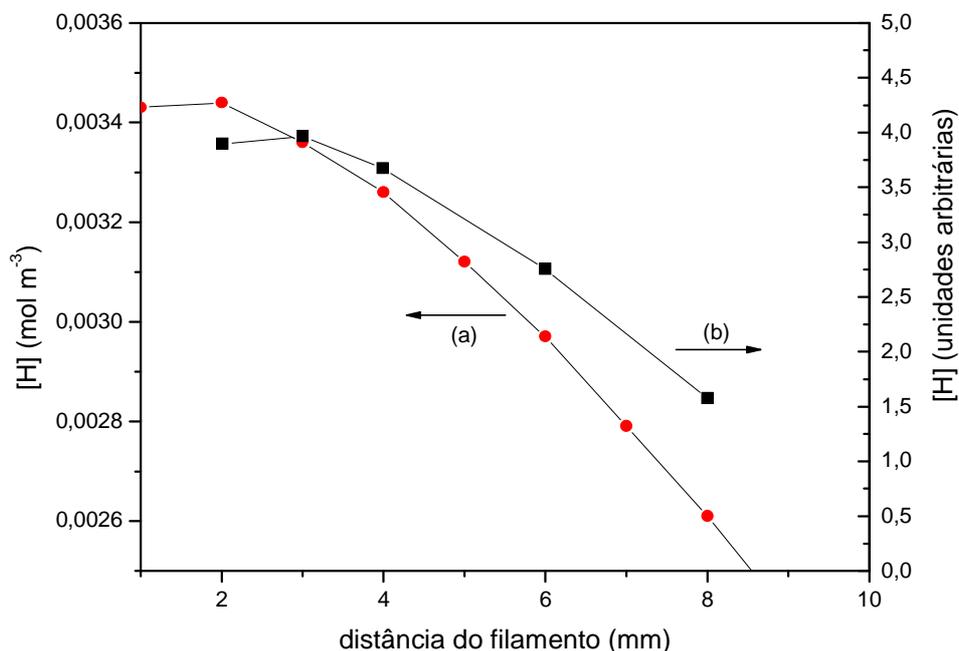


Figura 2.12 – Perfil de concentração molar de hidrogênio atômico. (a) modelagem numérica e (b) resultados experimentais.

## 2.7. Estudo da eficiência energética do filamento quente

Para a fase inicial deste estudo foram utilizadas expressões numéricas para os cálculos da transferência de calor por convecção, radiação e dissociação de moléculas de hidrogênio (INCROPERA E DEWITT, 2002). Esses cálculos foram realizados considerando um filamento de tungstênio de 1 m de comprimento, variando seu diâmetro de 0,05 a 1 mm. Neste estudo a influência do substrato e da pressão de trabalho no reator não são considerados, pois somente a temperatura do filamento quente e a temperatura do gás são consideradas nessas expressões numéricas.

A segunda etapa desta análise se refere à modelagem tridimensional do reator HFCVD. Primeiramente somente os efeitos do transporte de calor foram considerados - transporte de calor por convecção natural e forçada, difusão e radiação de calor. O hidrogênio molecular foi o gás de estudo nesta fase da análise.

Na terceira etapa, reações químicas de dissociação de hidrogênio foram inseridas nas análises, bem como a variação da geometria do reator, com o aumento do número de filamentos e a variação da pressão interna do reator. Modelagens com reações químicas para a formação de radicais precursores de crescimento de diamante também foram realizadas.

Para as modelagens foram utilizados os seguintes parâmetros:

- (a) Pressão de 20, 50 e 100 Torr;
- (b) Reagente: H<sub>2</sub> escoando a 100 sccm e 1% CH<sub>4</sub> em H<sub>2</sub> escoando a 100 sccm,;
- (c) Temperatura: filamento = 2500 K, substrato = 1130 K;
- (d) Distância entre filamento e substrato de 3, 5, 7, 10, 13 e 15 mm;
- (e) Distância entre filamentos: 3,5; 4 e 5 mm.

### **2.7.1. A eficiência energética do filamento quente via expressões analíticas da mecânica dos fluidos**

A perda de calor no filamento é definida pela seguinte expressão:

$$q''_{tot} = q''_{conv} + q''_{rad} + q''_{diss} \quad (\text{W/m}^2) \quad (2.12)$$

onde  $q''_{conv}$  é a perda de calor devido à convecção,  $q''_{rad}$  é a perda de calor devido à radiação e  $q''_{diss}$  é o calor utilizado para a dissociação de moléculas de hidrogênio.

A perda de calor devido à convecção é obtida através da lei de resfriamento de Newton:

$$q''_{conv} = h(T_{filamento} - T_{ambiente}) \quad (\text{W/m}^2) \quad (2.13)$$

onde  $T_{filamento}$  é a temperatura do filamento (K),  $T_{ambiente}$  é a temperatura do gás (K) e  $h$  é o coeficiente de transferência de calor por convecção ( $\text{W/m}^2\cdot\text{K}$ ). O coeficiente de transferência de calor por convecção é obtido pela expressão  $Nu = \frac{hd_{filamento}}{k}$ .

A perda de calor devido à radiação é obtida por:

$$q''_{rad} = \sigma \epsilon T_{filamento}^4 \quad (\text{W/m}^2) \quad (2.14)$$

onde  $\sigma$  é a constante de Stefan-Boltzmann ( $\sigma = 5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W/m}^2\cdot\text{K}^4$ ),  $\epsilon$  é a emissividade do filamento ( $\epsilon = 0,29$  para  $T_{filamento} = 2500 \text{ K}$ ).

O calor utilizado para a dissociação de moléculas de hidrogênio é obtida pela seguinte expressão:

$$q''_{diss} = Q\Delta H \quad (\text{W/m}^2) \quad (2.15)$$

onde  $Q$  é a taxa de produção de átomos de hidrogênio e  $\Delta H$  é a entalpia de formação de hidrogênio atômico ( $\Delta H = 2,29 \cdot 10^5 \text{ J/mol}$ ).

A taxa de produção de átomos de hidrogênio depende da temperatura do filamento, da pressão do gás e do diâmetro do filamento (LANGMUIR, 1912). Os parâmetros cinéticos para essa taxa ainda são desconhecidos na literatura.

Alguns autores utilizam um valor fixo da concentração de hidrogênio atômico na superfície do filamento quente (WOLDEN E GLEASON, 1993). Outros preferem, através de tentativa e erro, acertar o valor dessa taxa até conseguirem obter resultados numéricos que concordem com dados experimentais da literatura (MANKELEVICH, RAKHIMOV E SUETIN, 1998; QI, CHEN E WANG, 2003; TANKALA E DEBROY, 1992).

A potência dissipada no filamento quente é dada por:

$$q'_{tot} = q''_{tot} * 2\pi r_{fil} \quad (\text{W/m}) \quad (2.16)$$

onde  $r_{fil}$  é o raio do filamento quente.

A eficiência energética do filamento quente foi definida neste trabalho como:

$$\eta = \frac{q''_{diss}}{q''_{tot}} \quad (2.17)$$

Os parâmetros utilizados nos cálculos foram:  $T_{filamento} = 2500 \text{ K}$  e  $T_{gás} = 300 \text{ K}$ . As propriedades termofísicas do gás foram obtidas em Incropera e DeWitt (2002).

Na Figura 2.13 temos o gráfico do fluxo de calor versus o diâmetro do filamento, na Figura 2.14 temos o gráfico da potência dissipada no filamento versus o diâmetro do filamento e na Figura 2.15 temos o gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento.

Pelas figuras verificamos que a potência dissipada no filamento aumenta à medida que o diâmetro do filamento aumenta. Filamentos mais grossos dissipam mais calor que filamentos mais finos. E, verificamos que, filamentos quente com diâmetros maiores serão mais eficientes energeticamente. Isto pode ser explicado devido ao aumento relativo da área em um filamento com diâmetro maior.

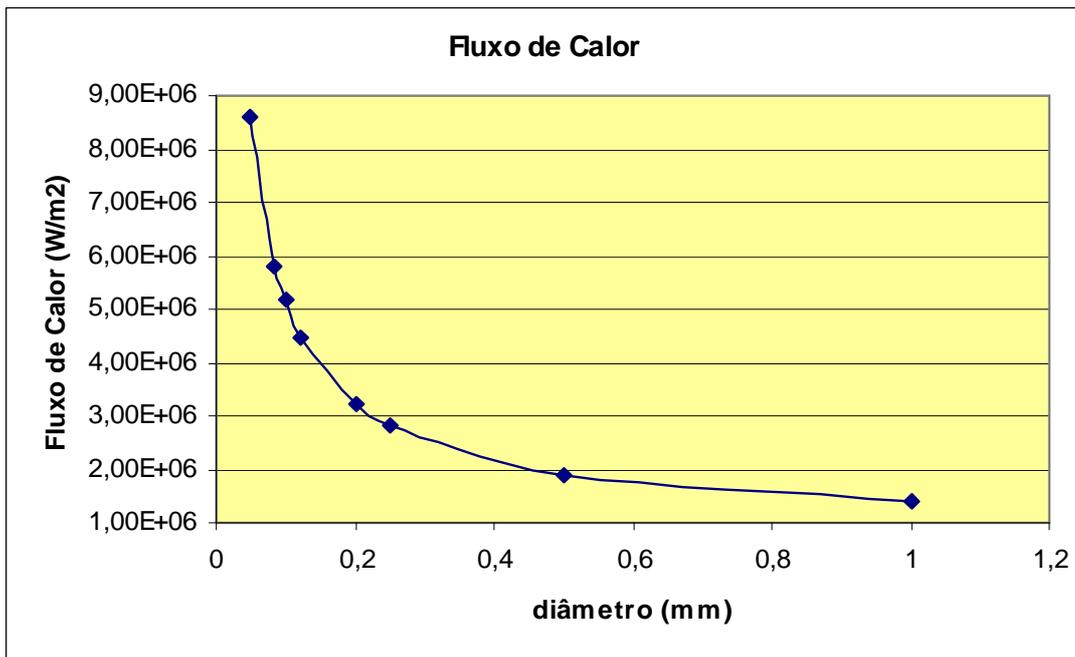


Figura 2.13 – Gráfico do fluxo de calor.

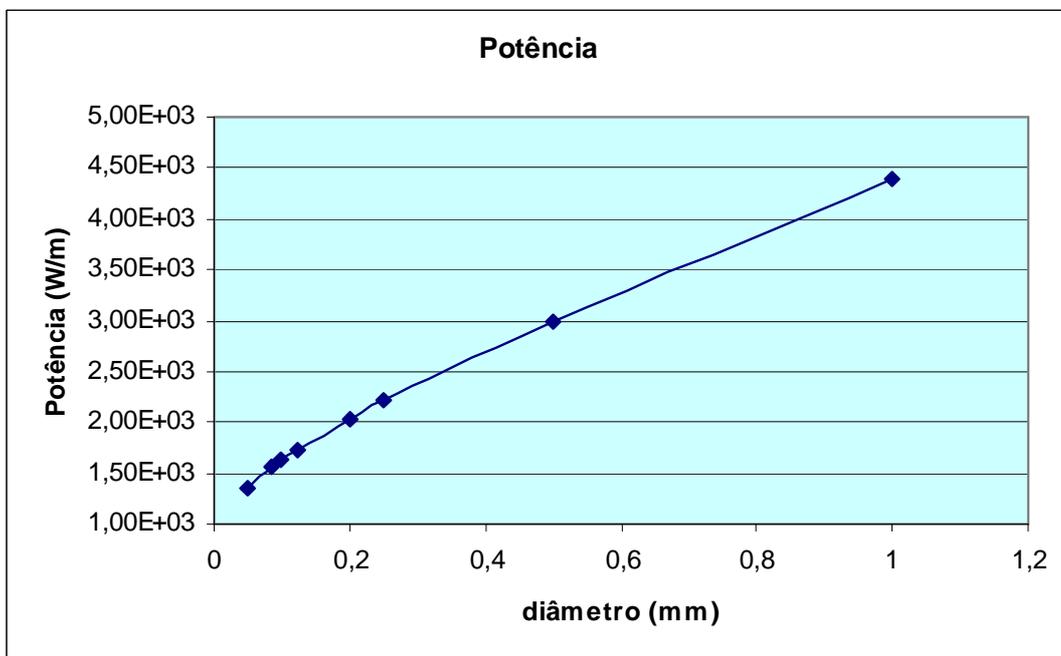


Figura 2.14 – Gráfico da potência consumida no filamento.

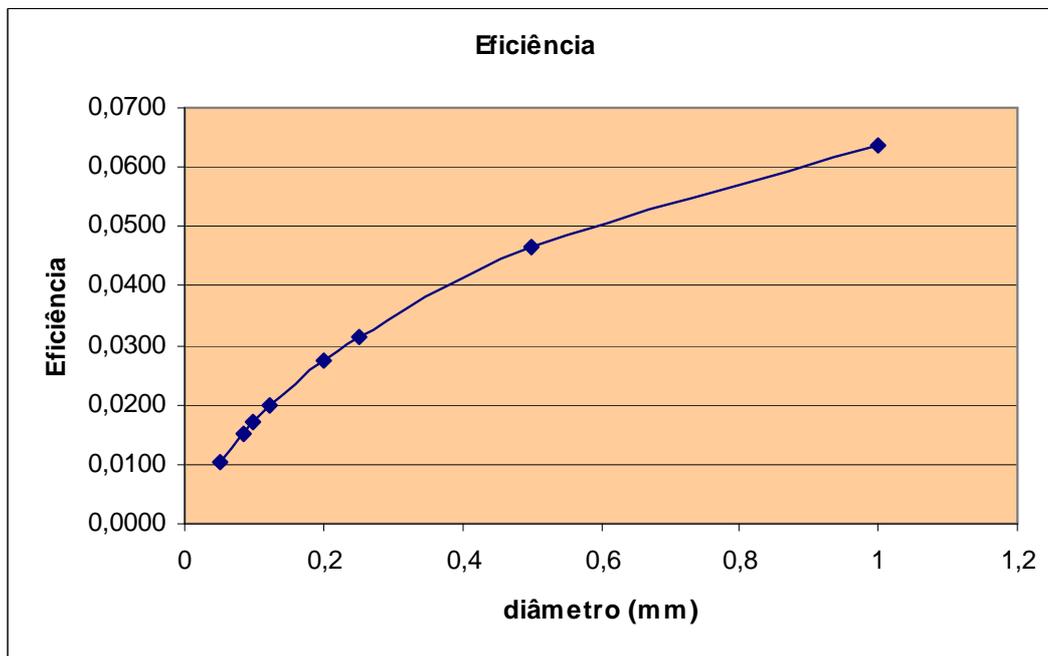


Figura 2.15 – Gráfico da eficiência energética do filamento.

### 2.7.2. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator

Da modelagem tridimensional utilizando o software ANSYS CFX 11.0 obtivemos valores da perda de calor devido ao transporte convectivo e difusivo na superfície do filamento quente. Para os cálculos da perda de calor total e potência do filamento quente utilizamos as expressões (3.12) e (3.16). Como não foram consideradas reações químicas nesta etapa da análise, a contribuição devida à dissociação do hidrogênio não foi considerada.

Na Figura 2.16 temos o gráfico do fluxo de calor versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato e na Figura 2.17 temos o gráfico da potência dissipada no filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato. Verificamos a mesma tendência obtida para o caso utilizando as expressões numéricas da mecânica dos fluidos.

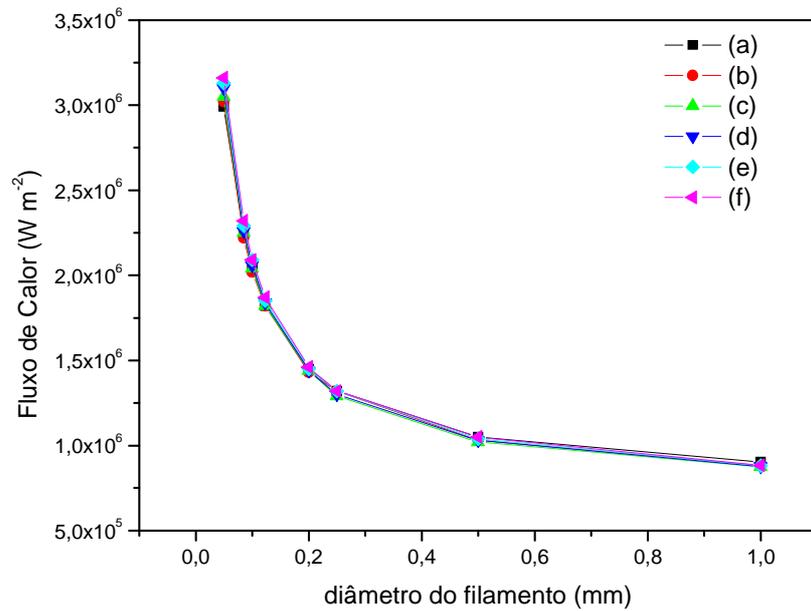


Figura 2.16 - Gráfico da perda de calor total do filamento quente versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm, (c) 7 mm, (d) 10 mm, (e) 13 mm e (f) 15 mm.

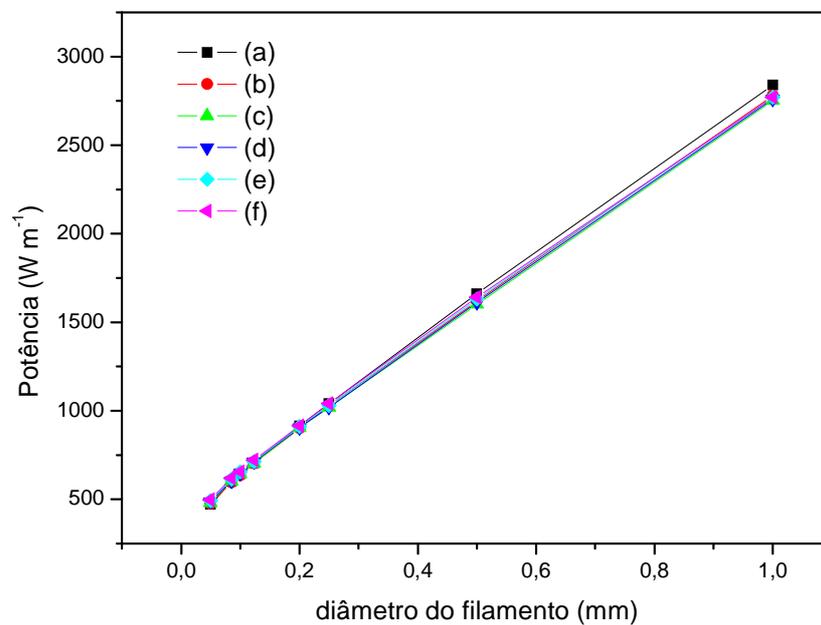


Figura 2.17 - Gráfico da potência consumida no filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm, (c) 7 mm, (d) 10 mm, (e) 13 mm e (f) 15 mm.

Na Figura 2.18 temos o perfil de velocidade na região que engloba o filamento e o substrato e na Figura 2.19 temos o perfil de temperatura para a geometria completa do reator. Esses resultados se referem à modelagem utilizando 1 filamento de 250  $\mu\text{m}$  diâmetro, pressão 20 Torr, gás  $\text{H}_2$  escoando a 100 sccm; temperatura do filamento de 2500 K, temperatura do substrato 1130 K, distância entre filamento e substrato de 7 mm.

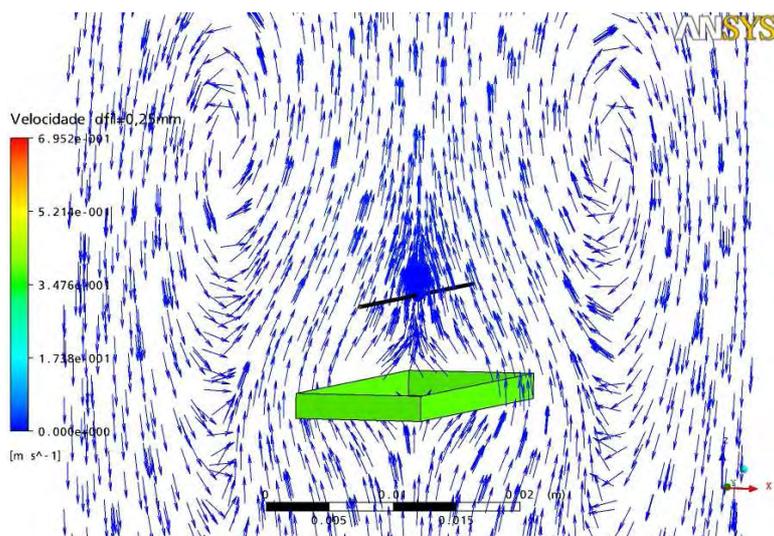


Figura 2.18 – Perfil de velocidades da modelagem do transporte de calor no reator.

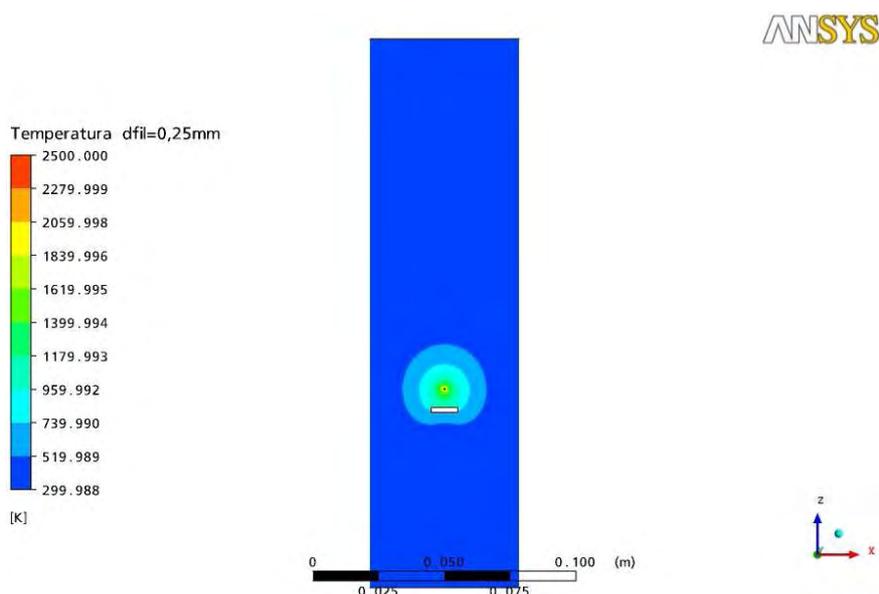


Figura 2.19 – Perfil de temperatura da modelagem do transporte de calor no reator.

### 2.7.3. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator e reações de dissociação do hidrogênio

Nesta etapa, além dos processos de transporte descritos anteriormente, a dissociação do hidrogênio molecular na superfície do filamento, reações de fase gasosa entre  $H_2$  e  $H$  e a recombinação do hidrogênio atômico na superfície do substrato foram inseridas nas modelagens.

A taxa de dissociação do hidrogênio molecular na superfície do filamento quente foi inserida na modelagem através da expressão (3.15). A taxa de recombinação do hidrogênio atômico na superfície do substrato é obtida através da seguinte expressão (3.7) (QI, CHEN E WANG, 2003):

$$R_H = \frac{1}{4} \gamma [H]_{subs} \bar{v} \quad (2.18)$$

onde  $[H]_{subs}$  é a concentração do hidrogênio molecular na região do substrato,  $\bar{v}$  é a velocidade térmica média e  $\gamma$  é o coeficiente de recombinação dos átomos de hidrogênio.

E a reação química de fase gasosa (QI, CHEN E WANG, 2003):



onde os coeficientes da reação direta e inversa:

$$k_f = 7,09 \cdot 10^{11} T^{-0,68} \exp\left(\frac{-5,27 \cdot 10^4}{T}\right) (\text{m}^3 \text{mol}^{-1} \text{s}^{-1}) \quad (2.20)$$

$$k_r = 9,26 \cdot 10^4 \cdot T^{-0,6} (\text{m}^6 \text{mol}^{-2} \text{s}^{-1}) \quad (2.21)$$

Os resultados obtidos através dessas modelagens são mostrados no [Apêndice A](#).

#### 2.7.4. Modelagem tridimensional do transporte de calor no reator e reações de fase gasosa

Depois de concluída toda modelagem onde o gás de estudo era composto somente de hidrogênio atômico, iniciou-se o estudo considerando 1% de CH<sub>4</sub> na entrada dos gases e reações de formação de radicais precursores do crescimento.

A grande dificuldade em se realizar a modelagem com as reações de formação de radicais precursores do crescimento foi o tempo gasto no processamento. Com o acréscimo dessas reações o tempo de processamento aumentou de maneira muito significativa. Foram gastos, em média, cerca de 3000 horas de processamento, aproximadamente quatro meses, para o caso com somente um filamento quente.

O mecanismo de fase gasosa utilizado na modelagem foi descrito por Harris em 1989. Esse mecanismo é composto de 25 reações de fase gasosa e 12 espécies químicas como vemos na Tabela 2.6.

Tabela 2.6 – Mecanismo de reação de fase gasosa, onde as unidades são cm<sup>3</sup>, mol, s, kcal e K,  $k_f = AT^n e^{(-E_a/RT)}$ ,  $R = 1,99 \cdot 10^{-3}$  kcal/ mol · K;

n°	Reação	A	n	E <sub>a</sub>
1	H + H + M ↔ H <sub>2</sub> + M	9,7·10 <sup>16</sup>	-0,6	0,0
2	CH <sub>3</sub> + H + M ↔ CH <sub>4</sub> + M	8,0·10 <sup>16</sup>	-3,0	0,0
3	CH <sub>4</sub> + H ↔ CH <sub>3</sub> + H <sub>2</sub>	2,2·10 <sup>4</sup>	3,0	8,8
4	CH <sub>4</sub> + CH <sub>2</sub> ↔ CH <sub>3</sub> + CH <sub>3</sub>	1,0·10 <sup>13</sup>	0,0	0,0
5	CH <sub>3</sub> + CH <sub>3</sub> ↔ C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + H	8,0·10 <sup>14</sup>	0,0	26,5
6	CH <sub>3</sub> + H ↔ CH <sub>2</sub> + H <sub>2</sub>	7,2·10 <sup>14</sup>	0,0	15,1
7	CH <sub>3</sub> + CH <sub>2</sub> ↔ C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + H	2,0·10 <sup>13</sup>	0,0	0,0
8	CH <sub>3</sub> + M ↔ CH <sub>2</sub> + H + M	1,0·10 <sup>16</sup>	0,0	90,6
9	CH <sub>2</sub> + H ↔ CH + H <sub>2</sub>	4,0·10 <sup>13</sup>	0,0	0,0
10	CH + CH <sub>4</sub> ↔ C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + H	6,0·10 <sup>13</sup>	0,0	0,0
11	CH + CH <sub>3</sub> ↔ C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> + H	3,0·10 <sup>13</sup>	0,0	0,0
12	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + H ↔ C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + H <sub>2</sub>	5,4·10 <sup>2</sup>	3,5	5,2
13	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + CH <sub>3</sub> ↔ C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + CH <sub>4</sub>	5,5·10 <sup>-1</sup>	4,0	8,3
14	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> + M ↔ CH <sub>3</sub> + CH <sub>3</sub> + M	1,0·10 <sup>19</sup>	0,0	68,0
15	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> + M ↔ C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> + H + M	1,0·10 <sup>17</sup>	0,0	31,0

16	$C_2H_5 + CH_3 \leftrightarrow C_2H_4 + CH_4$	$7,0 \cdot 10^{11}$	0,0	0,0
17	$C_2H_4 + M \leftrightarrow C_2H_2 + H_2 + M$	$2,6 \cdot 10^{17}$	0,0	79,4
18	$C_2H_4 + M \leftrightarrow C_2H_3 + H + M$	$2,6 \cdot 10^{17}$	0,0	96,6
19	$C_2H_4 + H \leftrightarrow C_2H_3 + H_2$	$1,5 \cdot 10^{14}$	0,0	10,2
20	$C_2H_4 + CH_3 \leftrightarrow CH_4 + C_2H_3$	$4,2 \cdot 10^{11}$	0,0	11,2
21	$C_2H_3 + H \leftrightarrow C_2H_2 + H_2$	$2,0 \cdot 10^{13}$	0,0	0,0
22	$C_2H_3 + M \leftrightarrow C_2H_2 + H + M$	$3,0 \cdot 10^{15}$	0,0	32,0
23	$C_2H_3 + CH_3 \leftrightarrow C_2H_2 + CH_4$	$7,9 \cdot 10^{11}$	0,0	0,0
24	$C_2H_2 + M \leftrightarrow C_2H + H + M$	$4,6 \cdot 10^{16}$	0,0	107,0
25	$C_2H_2 + H \leftrightarrow C_2H + H_2$	$6,0 \cdot 10^{13}$	0,0	23,7

FONTE: Adaptada de Harris (1989).

As taxas de reação inversa foram obtidas através das expressões termodinâmicas (DENBIGH, 1971):

$$K = \frac{k_f}{k_r} \quad (2.22)$$

onde K é a constante de equilíbrio. E:

$$RT \ln K = -\Delta_r G^\theta \quad (2.23)$$

onde R é a constante universal dos gases e  $\Delta_r G^\theta$  é a energia livre de Gibbs.

### 2.7.5. Dificuldades encontradas durante o processo de modelagem

A primeira dificuldade que encontramos para a realização deste trabalho foi a geração da malha. Em razão das pequenas dimensões do filamento quente sua malha deve ser bem refinada para respeitar os contornos da geometria. A região ao redor do filamento também deve ser bem refinada, pois é a região de maior interesse na análise numérica do estudo da eficiência energética.

Várias tentativas de geração de malhas foram realizadas. Umas com sucesso, porém com uma quantidade muito grande de elementos, o que acarreta no aumento do tempo de solução das equações. Outras, porém, com uma quantidade menor de elementos, mas que ao final do processamento, não retornaram bons resultados devido à má qualidade da malha. Na Figura 2.21 temos o exemplo de uma malha de má qualidade.

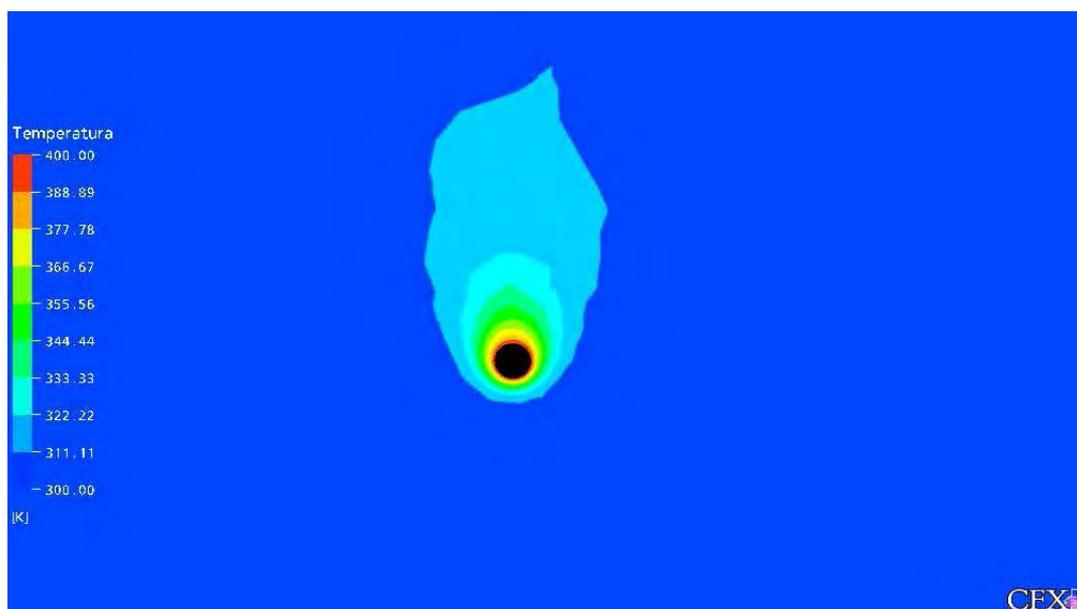


Figura 2.20 – Perfil de temperatura utilizando uma malha mais grossa.

Devido à presença de reações químicas, o tempo de processamento das equações aumenta consideravelmente. Assim, tínhamos um grande desafio pela frente, gerar uma malha de qualidade, refinada nas regiões de interesse, porém com uma quantidade de elementos que não sobrecarregasse o *solver* do programa. Como estratégia para diminuir o tempo de processamento, e não perder a qualidade dos resultados, dividimos a geometria do reator em três partes e geramos três diferentes malhas, para cada parte do reator, como verificamos na Figura 2.21. Na região de entrada e saída de gás utilizamos uma malha mais grossa, ou seja, com elementos maiores e na região entre o filamento e

o substrato, utilizamos uma malha bem refinada, como podemos visualizar nas Figuras 3.22 e 3.23.



Figura 2.21 – Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas.

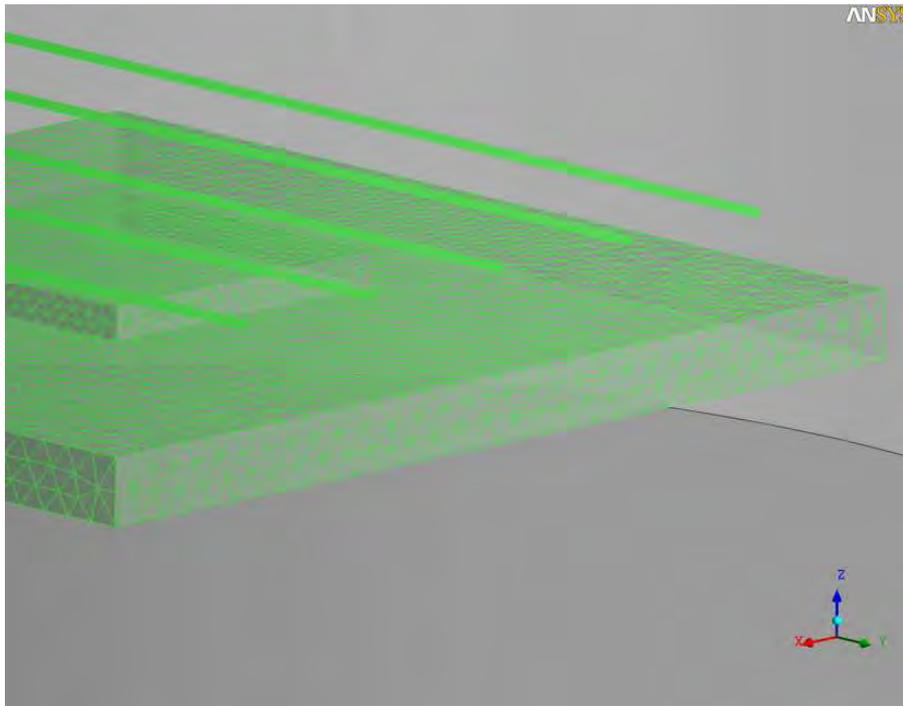


Figura 2.22 - Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas – região entre o filamento e o substrato.

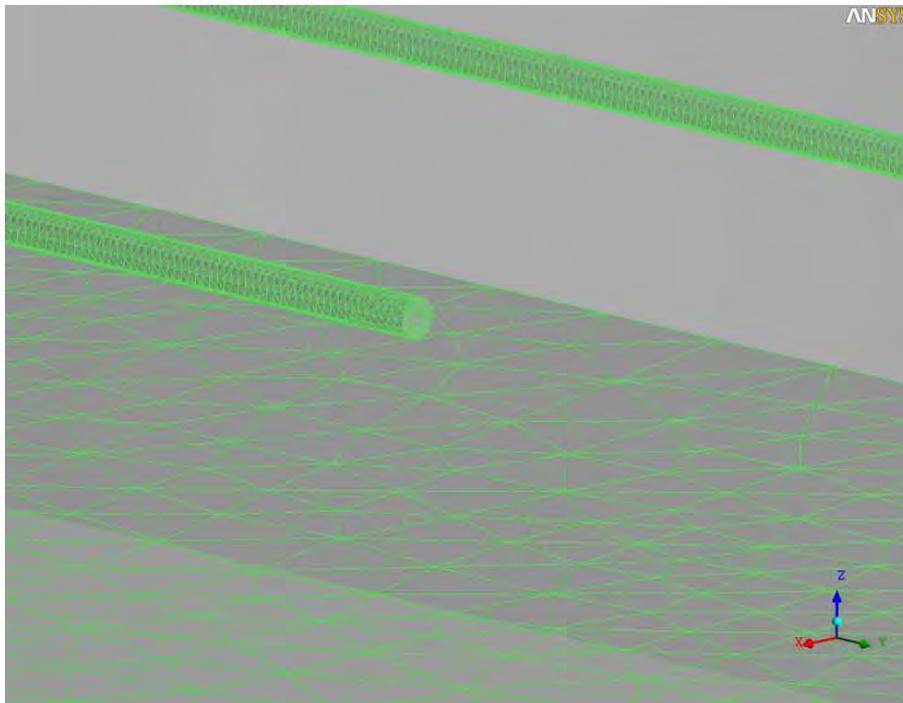


Figura 2.23 - Malha utilizada para a modelagem da fase gasosa com reações químicas – detalhe do refinamento da malha na região do filamento.

A especificação da física do problema também foi bastante custosa. Parâmetros como pressão interna do reator, velocidade de entrada, vazão na saída foram incessantemente testados e os resultados obtidos comparados com dados experimentais, a fim de obter resultados confiáveis.

Vários parâmetros cinéticos são necessários para a descrição e modelagem de determinado fenômeno. Em um mundo ideal nós seremos capazes de encontrar todas as informações necessárias na literatura. Entretanto, no mundo real há determinados parâmetros que ainda não foram completamente esclarecidos. Esse é o caso da taxa de produção dos átomos de hidrogênio na superfície do filamento quente, como mencionamos anteriormente.

Devido à configuração oferecida pelo software, optamos em ajustar o valor da taxa de produção de hidrogênio atômico no filamento. Esta foi outra grande dificuldade que enfrentamos. Várias tentativas foram realizadas, como a utilização de valores mostrados em outros trabalhos numéricos (QI, CHEN E WANG, 2003; MANKELEVICH, RAKHIMOV E SUETIN, 1998; TANKALA E DEBROY, 1992). Muitas dessas tentativas retornaram valores incoerentes com dados experimentais. A maior parte do hidrogênio molecular era dissociado, o que não ocorre em situações reais. Provavelmente, não conseguimos utilizar os valores descritos na literatura, pois muitos desses estudos são extremamente simplificados, com geometrias e parâmetros completamente diferentes dos parâmetros utilizados neste trabalho de doutorado.

Na Figura 2.24 temos o perfil da fração molar do hidrogênio atômico na região que engloba o substrato e o filamento. O resultado desta figura é inconsistente quando comparado com dados experimentais da literatura, indicando que a taxa de produção de hidrogênio atômico utilizada no modelo é, aproximadamente, 10 vezes maior do que o valor real. Vemos, também, na figura que a malha utilizada também não está adequada, devendo ser mais refinada a fim de obter melhores resultados.

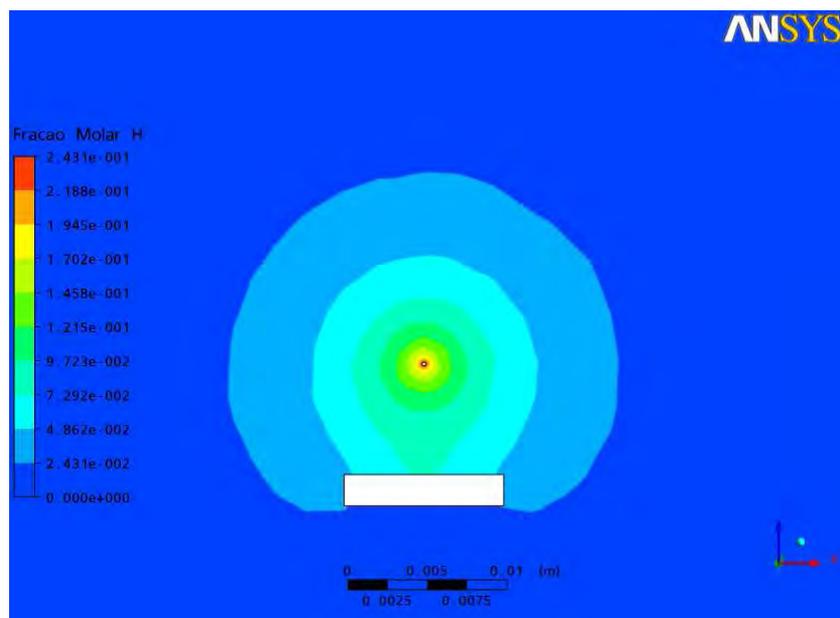


Figura 2.24 – Perfil inconsistente de fração molar do hidrogênio atômico.

E, por fim, quando utilizamos todo o mecanismo de reações de fase gasosa, tivemos que especificar um avanço de tempo bastante pequeno, para conseguir observar a formação dos radicais precursores do crescimento. Isso acarretou em um considerável tempo de processamento, quatro meses, como dito anteriormente.

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

O objetivo deste trabalho foi a obtenção da eficiência energética do filamento quente através da modelagem computacional de fenômenos físico-químicos que ocorrem dentro do reator HFCVD. Baseados nesta idéia são comparados os resultados obtidos pelo uso do software ANSYS CFX 11.0 a fim de obter a melhor configuração de reator como: a identificação do melhor diâmetro de filamento, da pressão mais adequada, da melhor distância entre filamento e substrato e da melhor distância entre filamentos paralelos.

Como foram realizadas várias modelagens variando determinados parâmetros, apresentamos neste capítulo os resultados mais significativos para análises e discussões. Os demais resultados obtidos pelas modelagens realizadas é mostrado no [Apêndice A](#).

De maneira a facilitar a compreensão dos resultados aqui analisados e discutidos, em todas as figuras, a grandeza em análise se refere a resultados do filamento central, para os casos modelados com mais de um filamento sobre o substrato.

#### 3.1. Eficiência energética do filamento quente

Para obter a eficiência energética do filamento quente utilizamos os resultados obtidos pela modelagem através do ANSYS CFX 11.0 e as expressões descritas no capítulo 3 deste trabalho. Na Figura 3.1 temos o gráfico do fluxo de calor versus o diâmetro do filamento quente para pressão interna de 20 Torr e distância entre filamento e substrato de 3 mm. Pela figura podemos notar que a modelagem utilizando somente 1 filamento apresenta o maior fluxo de calor e notamos ainda que, quanto menor o diâmetro do filamento maior será o fluxo de calor na parede do mesmo.

Como os valores de fluxo de calor, para os diferentes casos mostrados na figura, são muito próximos uma dúvida surge a respeito da análise da figura: realmente utilizando somente 1 filamento quente sobre o substrato obteremos a maior quantidade de fluxo de calor, ou esta conclusão é devida a presença de erros numéricos. Erros numéricos nessas

modelagens podem ocorrer devido ao truncamento e arredondamento dos números, ou até mesmo às três diferentes malhas utilizadas na modelagem.

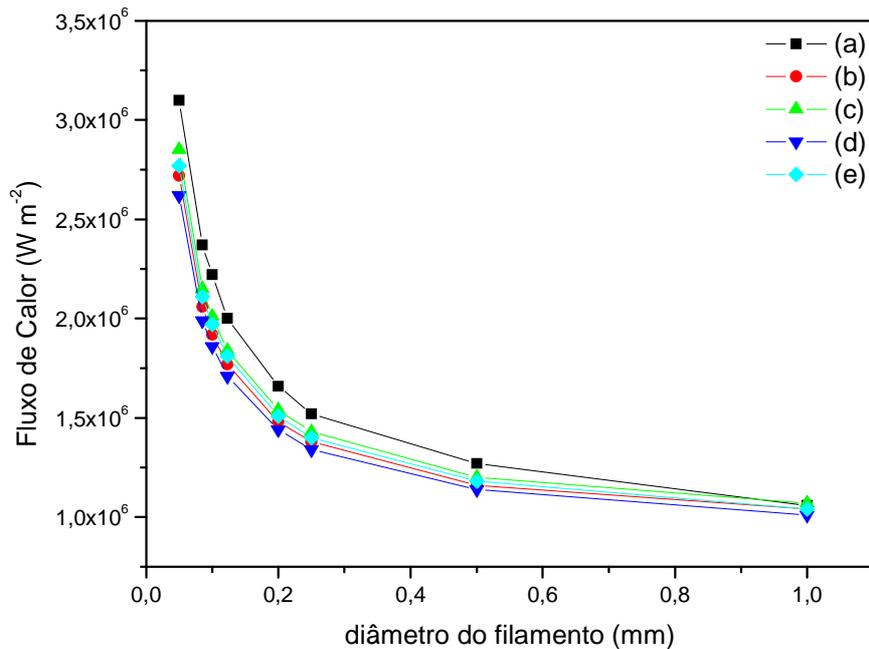


Figura 3.1 – Fluxo de calor na parede do filamento onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.

Para esclarecer se os resultados são coerentes, e independentes de erros numéricos, mostramos na Figura 3.2 os dois casos onde temos o maior e o menor valor de fluxo de calor da análise: (a) 1 filamento quente e (b) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, juntamente com a barra de erros dos resultados. Pela figura fica claro que realmente o caso com 1 filamento apresenta a maior quantidade de fluxo de calor.

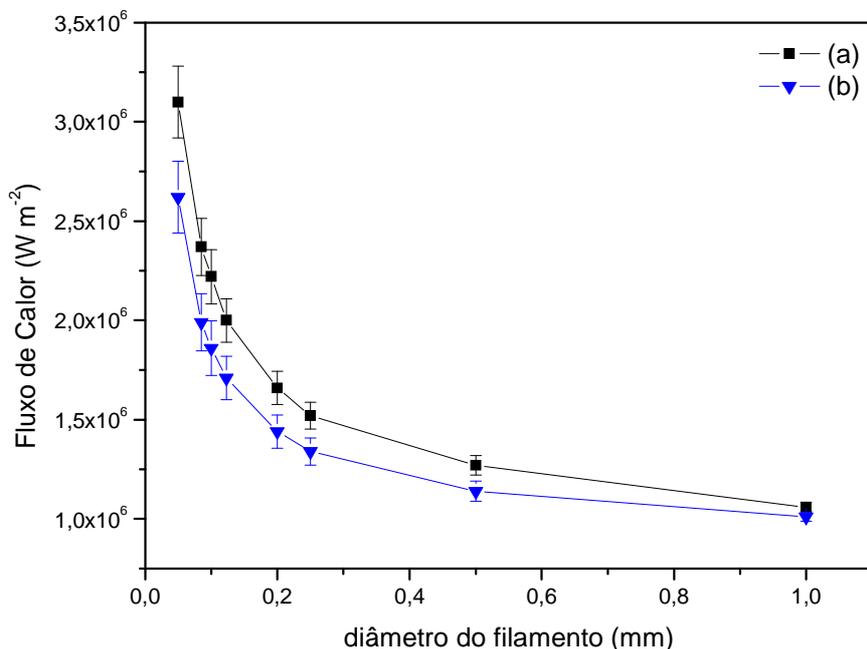


Figura 3.2 – Fluxo de calor na parede do filamento onde (a) 1 filamento, (b) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm.

Na Figura 3.3 temos o gráfico da potência dissipada no filamento quente versus o diâmetro do filamento. Esses resultados são referentes à pressão de trabalho igual a 50 Torr e distância entre filamento e substrato de 5 mm. Podemos notar que a modelagem tridimensional (transporte de calor + reações de fase gasosa+ reações de superfície) concorda com os resultados obtidos através das expressões da mecânica dos fluidos e da modelagem do transporte de calor. Quanto maior o diâmetro do filamento, maior será a potência dissipada no mesmo.

Outra importante observação é que a modelagem utilizando somente 1 filamento sobre o substrato apresenta a maior potência dissipada. O erro numérico para este resultado foi estimado em  $\pm 3,9\%$ . É importante notar que a diferença devido ao erro numérico, neste caso, é consistente. Podemos concluir, portanto, que para a modelagem utilizando pressão de 50 Torr e distância entre filamento e substrato de 5 mm, o caso com somente 1 filamento sobre o substrato apresenta a maior potência dissipada no filamento.

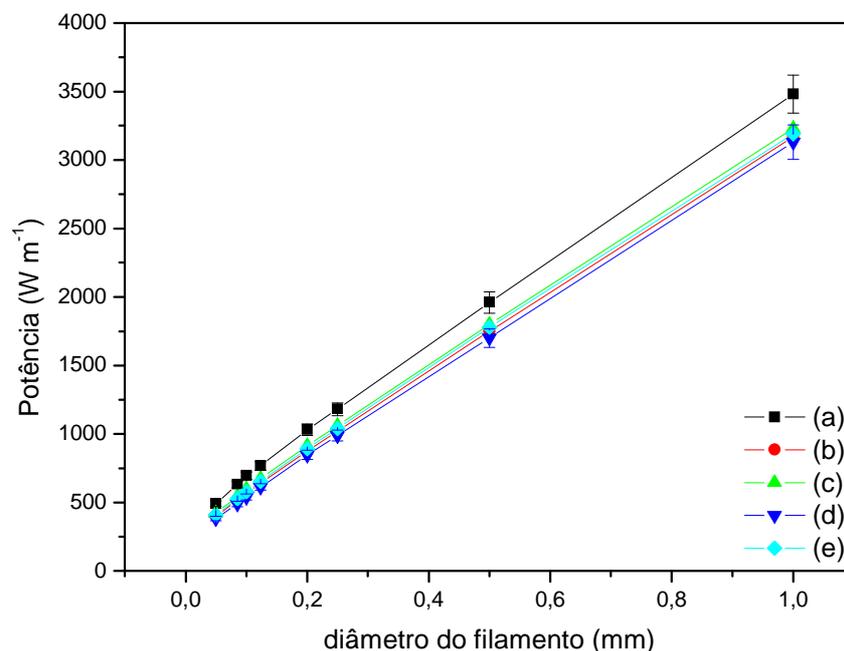


Figura 3.3 – Potência dissipada no filamento onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.

Agora, analisaremos o gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento quente para modelagem com pressão interna de 100 Torr e distância entre filamento e substrato de 7 mm. Como verificamos na Figura 3.4, este resultado também concorda com as discussões apresentadas no capítulo 3, mostrando filamentos mais grossos são mais eficientes que filamentos mais finos.

O erro numérico, aqui neste caso, foi estimado em  $\pm 5\%$ . Notamos que, devido ao erro numérico, não existe uma melhor tendência da eficiência energética no filamento quente quando o parâmetro em questão é a quantidade de filamentos sobre o substrato.

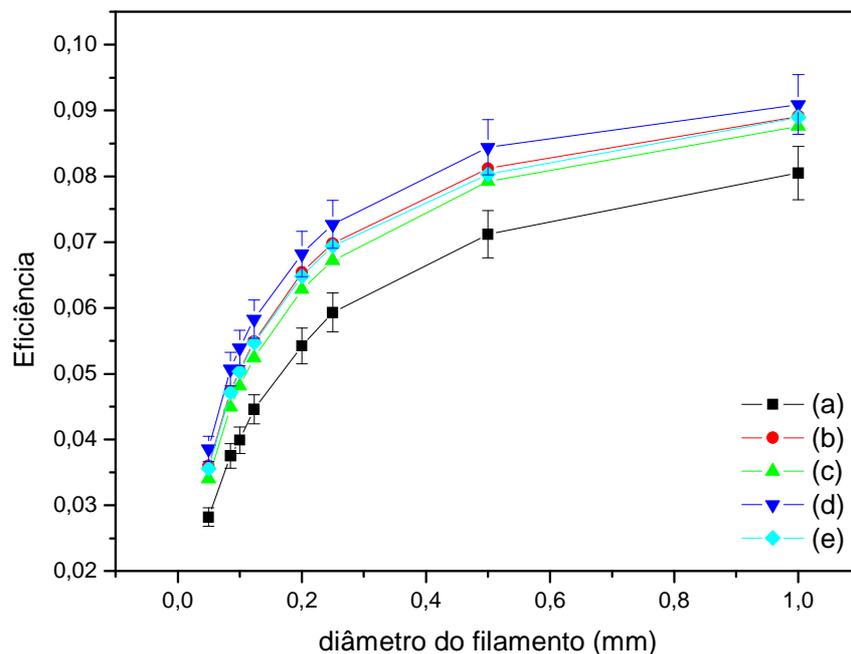


Figura 3.4 – Eficiência energética do filamento quente onde (a) 1 filamento, (b) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (c) 3 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm, (d) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 3,5 mm, (e) 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de 5 mm.

Com a análise dos resultados já exibidos podemos afirmar que filamentos com os maiores diâmetros serão mais eficientes energeticamente. Porém, para utilizar um filamento grosso durante os experimentos, alguns cuidados devem ser tomados. Primeiro, é necessário refrigerar o substrato e segundo, ocorre a dificuldade em posicionar esse filamento paralelamente ao substrato durante o processo de crescimento dos filmes de diamante. Desta forma, a fim de obter os outros parâmetros que determinam a melhor configuração de reator analisaremos os resultados obtidos através de filamentos de 250  $\mu\text{m}$  de diâmetro, diâmetro grosso de filamento, porém aceitável para estudos experimentais.

Na Figura 3.5 temos um gráfico comparativo da eficiência energética do filamento quente versus a distância entre filamento e substrato para os vários casos modelados com diâmetro do filamento igual a 250  $\mu\text{m}$ . Conseguimos, com estes resultados,

identificar o caso mais e menos eficiente. A menor eficiência é obtida utilizando somente um filamento sobre o substrato. À medida que aumentamos o número de filamentos sobre o substrato, aumentamos a eficiência energética do mesmo. Isso se deve ao fato do filamento central perder menos calor para o ambiente gasoso do reator, devido à presença dos filamentos vizinhos. Também verificamos que à medida que aumentamos a distância entre o filamento e o substrato, também aumentamos a eficiência energética do filamento quente.

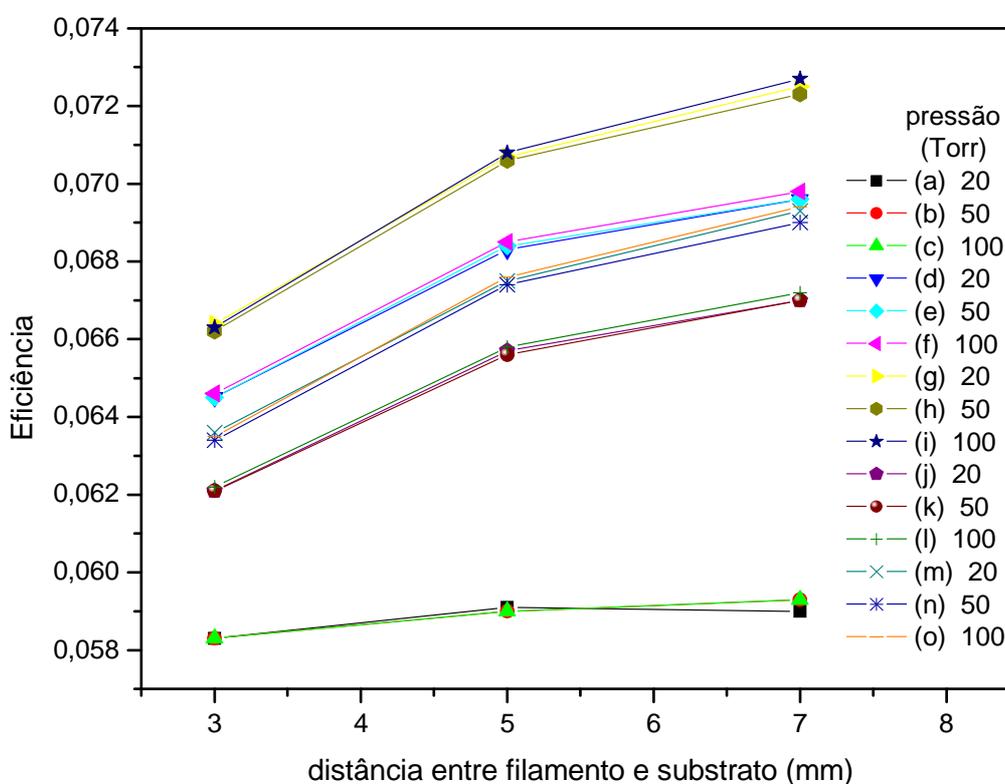


Figura 3.5 – Eficiência energética do filamento quente onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.

Os resultados obtidos são muito próximos, e assim, não podemos simplesmente definir a melhor configuração sem levar em consideração o erro numérico presente nos resultados das modelagens. O erro, para este caso, foi estimado em  $\pm 5\%$ . Para facilitar a compreensão e discussão dos resultados, analisaremos as figuras a seguir. Pela Figura 3.6 podemos verificar que não existe uma melhor tendência para a pressão interna do reator, bem como não há melhor tendência para a distância entre filamentos. Já o número de filamentos pode ser definido, como verificamos na Figura 3.7. Quanto maior o número de filamentos, mais eficiente será o filamento quente.

Assim, podemos identificar como a melhor configuração de reator a fim de obter a melhor eficiência energética no filamento é usar vários filamentos, utilizar filamentos de diâmetros maiores a uma distância de 7 mm do substrato.

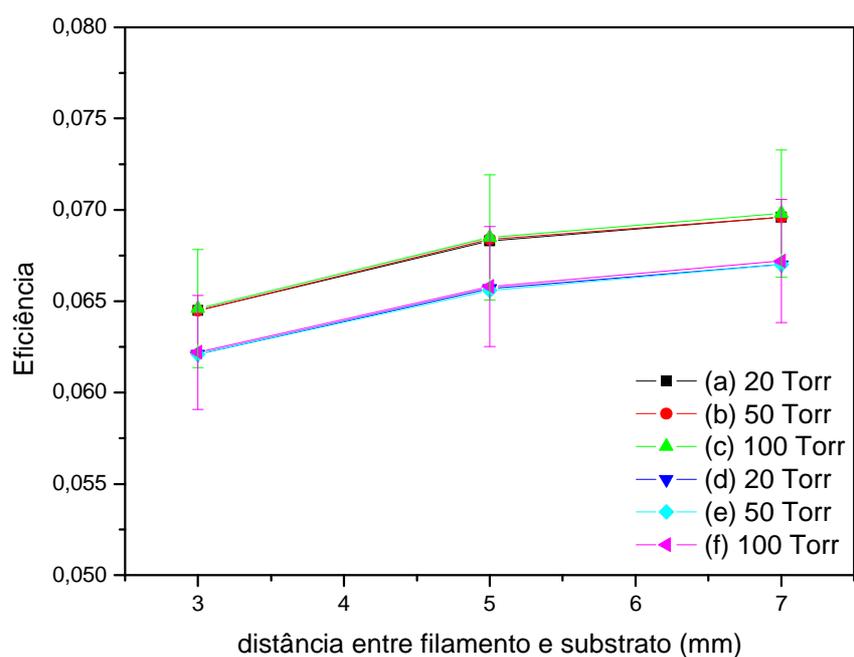


Figura 3.6 – Eficiência energética do filamento quente para: (a), (b) e (c) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.

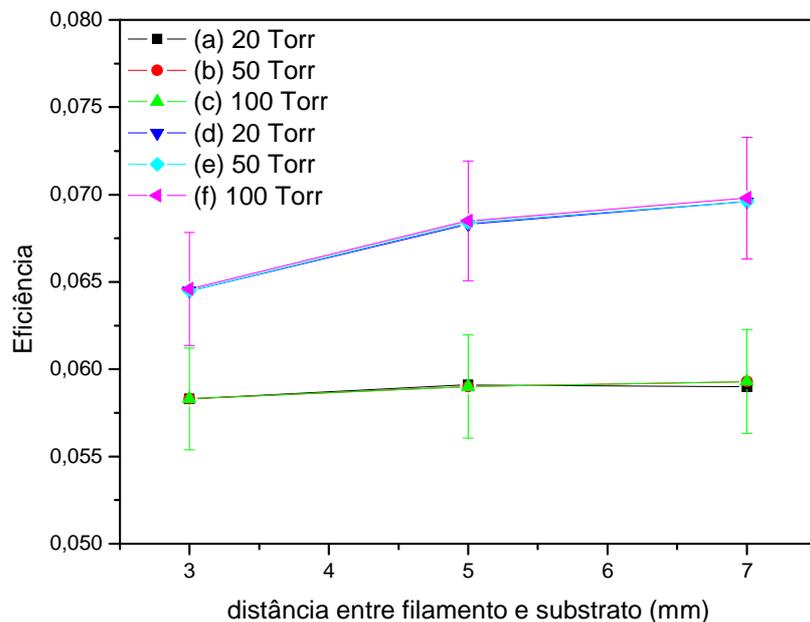


Figura 3.7 – Eficiência energética do filamento quente onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm.

### 3.2. Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento quente

Os resultados analisados sobre a concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento quente foram medidos a 1 mm de distância do centro do filamento, conforme mostrado na Figura 3.8.

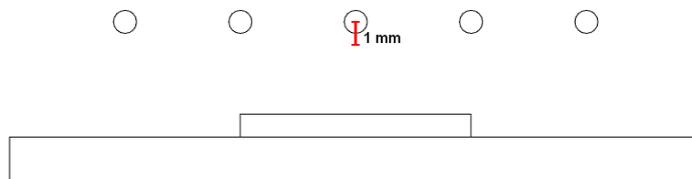


Figura 3.8 – Figura esquemática da região onde foram realizadas as medidas de concentração molar do filamento quente.

Na Figura 3.9 temos o gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento versus o diâmetro do filamento quente para pressão interna de 20 Torr e um filamento sobre o substrato. Filamentos mais grossos são mais eficientes na

produção de hidrogênio atômico e menores distâncias entre filamento e substrato proporcionam uma maior quantidade de hidrogênio atômico na região do filamento.

O mesmo efeito é verificado para o caso com 3 filamentos paralelos, distância entre filamentos de 3,5 mm e pressão interna de 50 Torr, representado na Figura 3.10 e 5 filamentos paralelos, distância entre os filamentos de 5 mm e pressão interna de 100 Torr, mostrado na Figura 3.11.

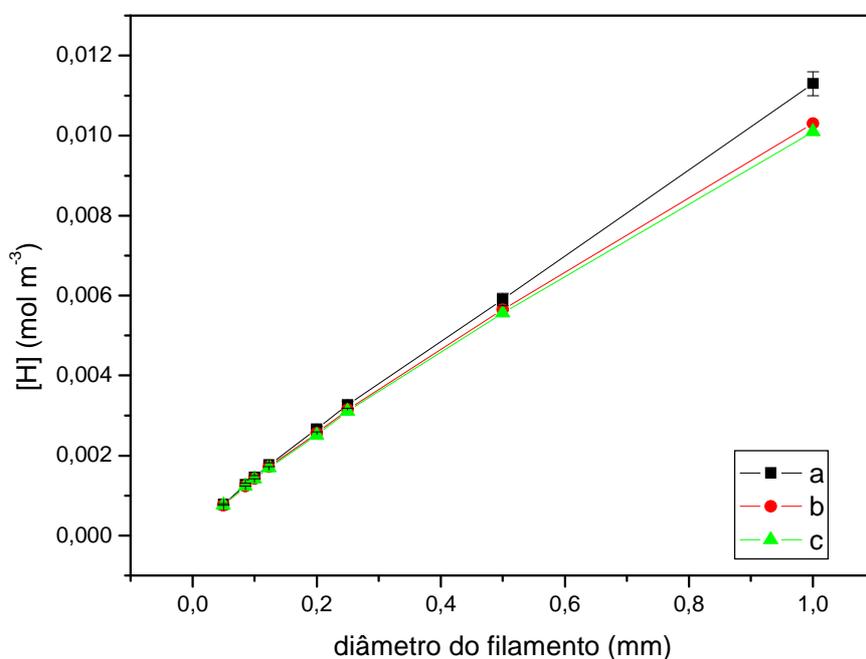


Figura 3.9 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 1 filamento e pressão 20 Torr.

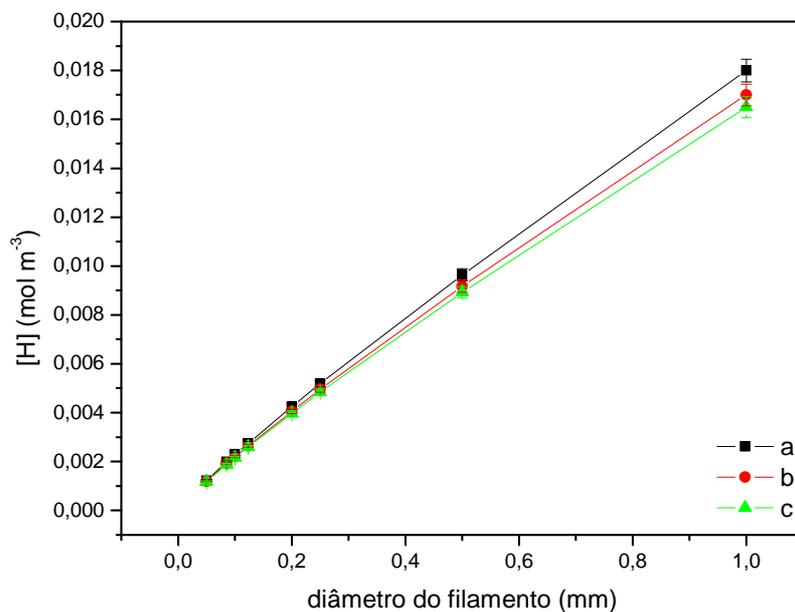


Figura 3.10 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 3 filamentos e pressão 50 Torr.

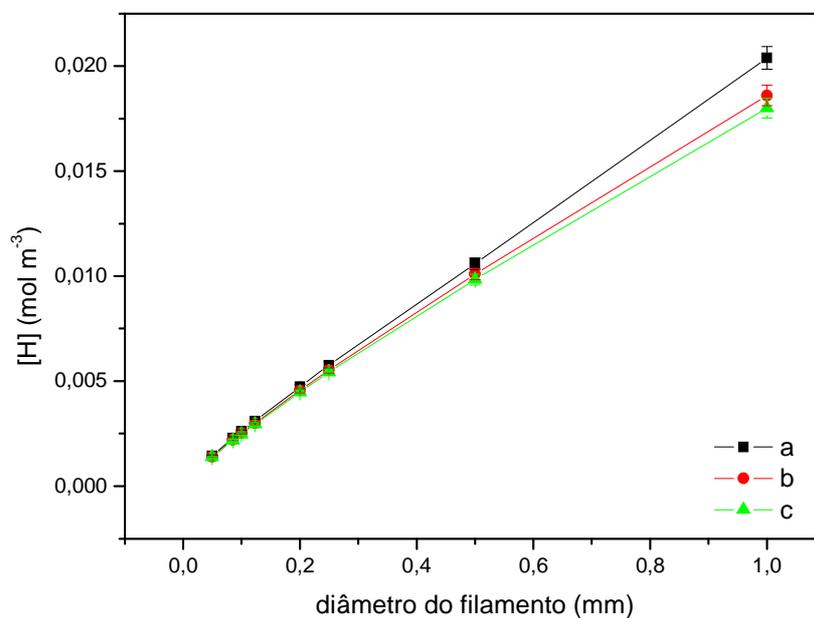


Figura 3.11 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 5 filamentos e pressão 100 Torr.

Para os três casos, descritos anteriormente, verificamos que à medida que aumentamos a pressão e o número de filamentos, a concentração no filamento também aumenta. Encontramos no primeiro caso  $[H]_{\text{filamento}} \cong 0,011 \text{ mol/m}^3$ , para o segundo caso  $[H]_{\text{filamento}} \cong 0,018 \text{ mol/m}^3$  e para o terceiro caso  $[H]_{\text{filamento}} \cong 0,020 \text{ mol/m}^3$ .

Seguindo o mesmo raciocínio da análise da eficiência energética, analisaremos os resultados obtidos através das modelagens utilizando filamentos de 250  $\mu\text{m}$  de diâmetro, a fim de obter a melhor configuração de reator para encontrar a maior quantidade de hidrogênio atômico na região do filamento, onde os resultados são mostrados na Figura 3.12.

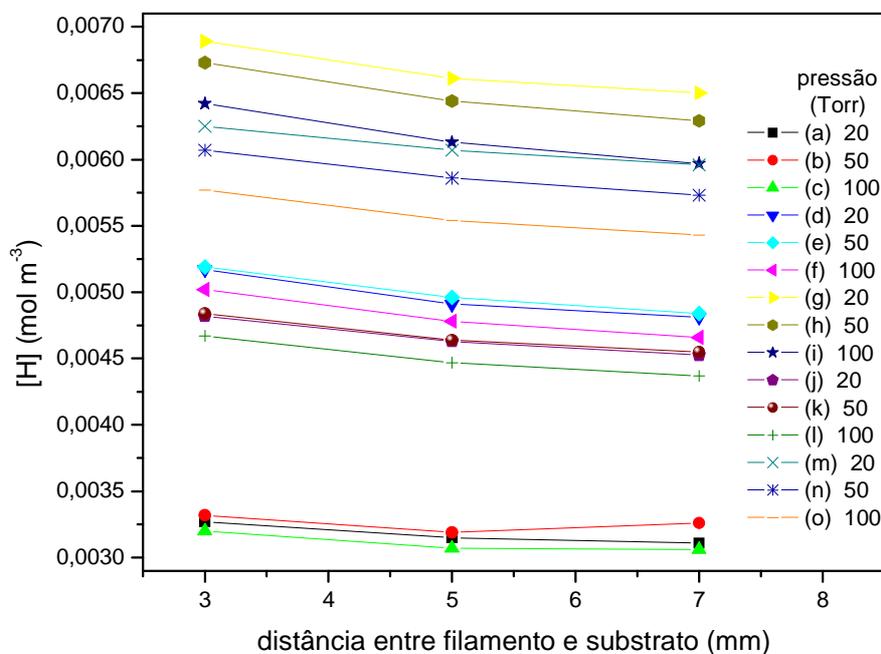


Figura 3.12 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.

Na Figura 3.12 temos um gráfico comparativo da concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento quente versus a distância entre filamento e substrato para os vários casos modelados com diâmetro do filamento igual a 250  $\mu\text{m}$ . O erro numérico estimado neste caso é de  $\pm 2,6\%$ . Podemos notar que é consistente a tendência da menor distância entre filamento e substrato para obter uma maior concentração de hidrogênio atômico na região. Também verificamos que aumentando o número de filamentos, também aumentamos a quantidade de hidrogênio atômico produzido no filamento. E, pela Figura 3.13, conseguimos verificar a tendência da pressão. Utilizar um reator operando a 20 e 50 Torr, para este caso, é melhor que utilizar um reator operando a 100 Torr.

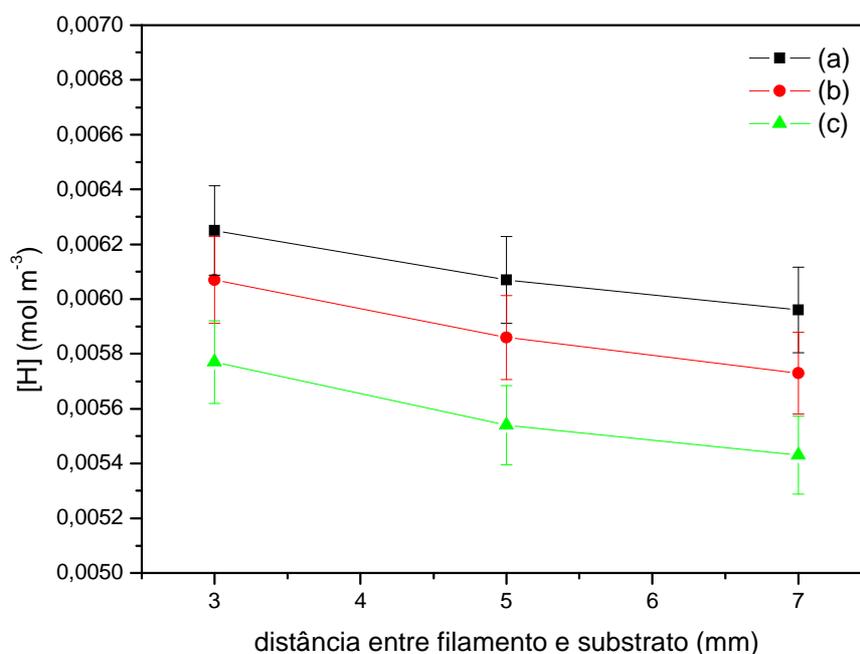


Figura 3.13 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm onde (a) 20 Torr, (b) 50 Torr, (c) 100 Torr.

### 3.3. Concentração molar de hidrogênio atômico no substrato

Agora, iniciaremos a análise da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato. Como a concentração do hidrogênio varia de ponto a ponto no substrato, foi utilizada para as análises a concentração média do hidrogênio atômico no substrato.

De maneira similar as análises anteriores, elucidaremos primeiramente a concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento quente para pressão interna de 20 Torr e 1 filamento sobre o substrato, verificado na Figura 3.14. Em seguida apresentamos os resultados para pressão interna de 50 Torr, 3 filamentos paralelos e 3,5 mm de distância entre os filamentos, mostrados na Figura 3.15. E por último, na Figura 3.16 temos os resultados para pressão interna de 100 Torr, 5 filamentos paralelos e 5 mm de distância entre os filamentos.

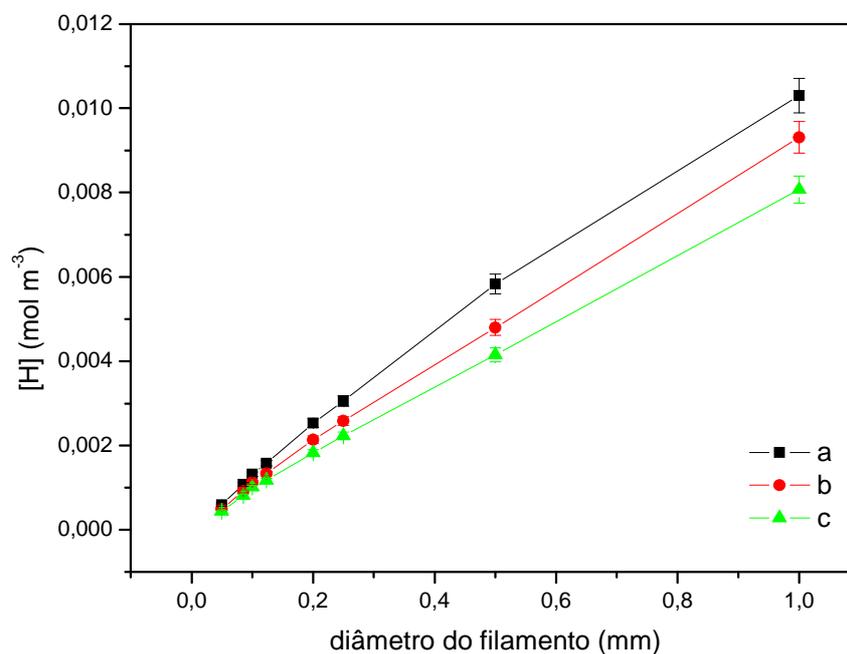


Figura 3.14 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 1 filamento e pressão 20 Torr.

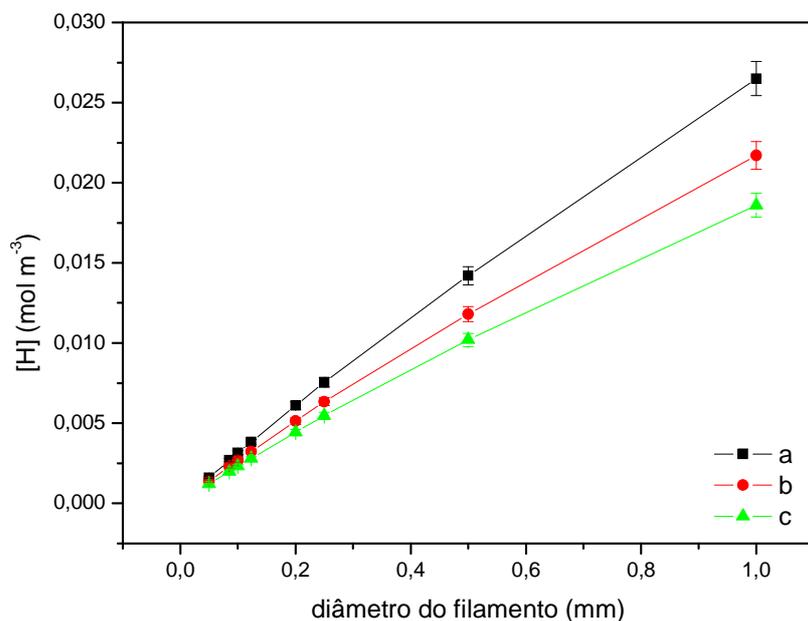


Figura 3.15 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 3 filamentos e pressão 50 Torr.

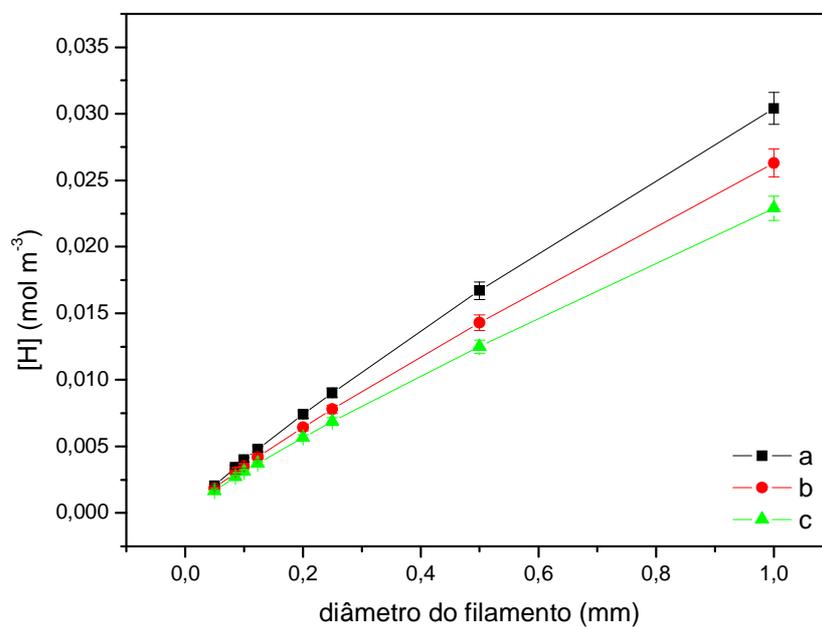


Figura 3.16 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde a distância entre filamento e substrato: (a) 3 mm, (b) 5 mm e (c) 7mm. 5 filamentos e pressão 100 Torr.

Verificamos que os três casos apresentam a mesma tendência: quanto maior o diâmetro do filamento e quanto menor a distância entre filamento e substrato, maior será a quantidade de hidrogênio atômico no substrato. Outro importante aspecto a ser observado é, devido o aumento da pressão e do número de filamentos para cada caso, verificamos um aumento na concentração no substrato. No primeiro caso  $[H]_{substrato} \cong 0,01 \text{ mol/m}^3$ , para o segundo caso  $[H]_{substrato} \cong 0,026 \text{ mol/m}^3$  e para o terceiro caso  $[H]_{substrato} \cong 0,030 \text{ mol/m}^3$ . Verificamos a ocorrência de um aumento significativo do primeiro para o segundo caso.

A fim de obter a melhor configuração de reator para encontrar a maior quantidade de hidrogênio atômico na região do substrato analisaremos os resultados obtidos através das modelagens utilizando filamentos de 250  $\mu\text{m}$  de diâmetro, mesmo procedimento realizado nas análises anteriores.

Na Figura 3.17 temos um gráfico comparativo da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus a distância entre filamento e substrato. O erro numérico estimado neste caso é de  $\pm 4 \%$ . Podemos notar que, aumentando o número de filamentos sobre o substrato, aumentamos a quantidade de hidrogênio atômico na superfície de crescimento.

Outro importante aspecto observado é que para menores distâncias entre filamento e substrato, também aumentamos a quantidade de hidrogênio atômico. Como os resultados das modelagens para diferentes pressões de trabalho e diferentes distâncias entre os filamentos são muito próximos, somente analisando a Figura 3.17 não conseguimos identificar a melhor tendência para esses parâmetros.

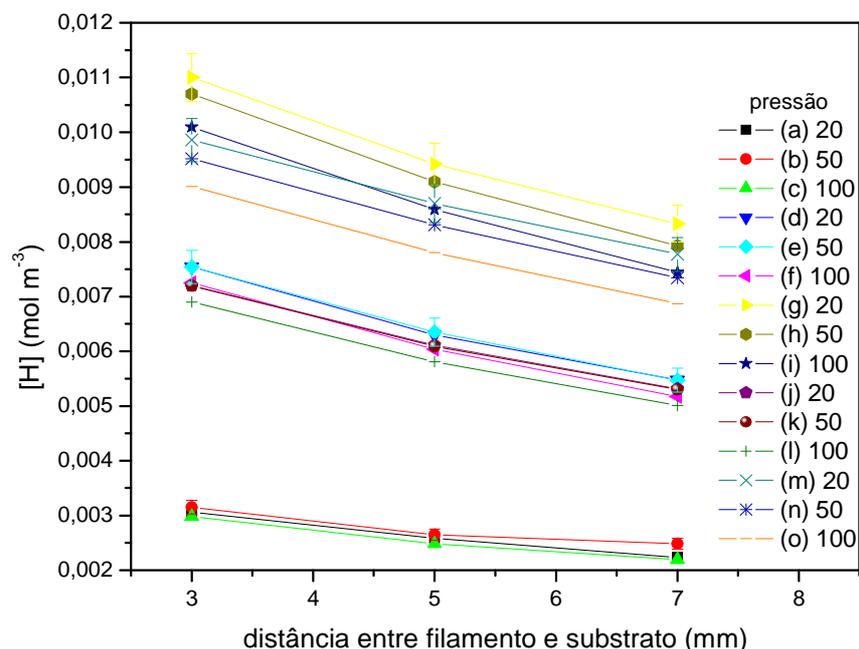


Figura 3.17 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.

Na Figura 3.18 temos a razão da concentração molar do hidrogênio atômico no substrato e da potência total dissipada no filamento versus a distância entre filamento e substrato. Para mais de um filamento sobre o substrato a potência total dissipada no filamento é a soma da potência dissipada em cada um desses filamentos. Quando aumentamos o número de filamentos, aumentamos a produção de hidrogênio atômico. Em contrapartida, aumentamos a potência total dissipada. Esta figura nos indica a eficiência do conjunto de filamentos para cada caso modelado. É importante ressaltar que, a melhor configuração deve ser determinada de acordo com o intuito do trabalho a ser realizado. Se o objetivo for a obter a melhor eficiência energética do filamento, pela

figura podemos notar que o ideal é utilizar somente 1 filamento sobre o substrato, com uma pressão de 20 Torr. Mas, se o intuito é a quantidade de hidrogênio atômico, o ideal é utilizar mais de um filamento sobre o substrato.

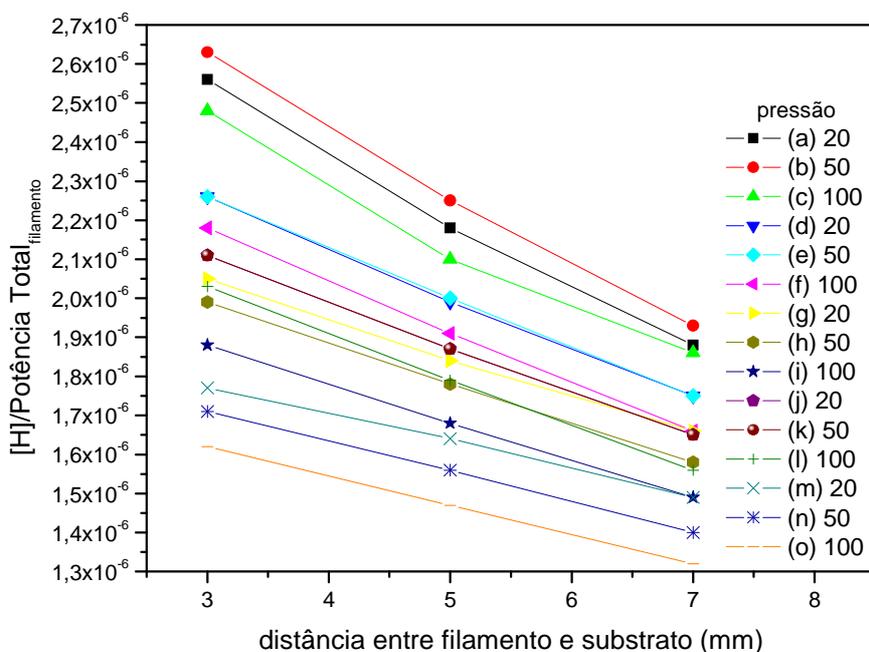


Figura 3.18 – Razão da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato e da potência total dissipada no filamento onde: (a), (b) e (c) 1 filamento; (d), (e), (f) 3 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (g), (h), (i) 5 filamentos e distância entre filamentos de 3,5 mm; (j), (k), (l) 3 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm; (m), (n), (o) 5 filamentos e distância entre filamentos de 5 mm.

A seguir serão apresentados os cromogramas da concentração do hidrogênio atômico na superfície do substrato. Esses resultados são referentes às modelagens utilizando filamentos de 250  $\mu\text{m}$  de diâmetro, distância entre filamento e substrato de 3 mm e (I) pressão interna de 20 Torr e 1 filamento - Figura 3.19, (II) pressão interna de 50 Torr, 3 filamentos paralelos e 3,5 mm de distância entre os filamentos - Figura 3.20 e (III)

pressão interna de 100 Torr, 5 filamentos paralelos e 5 mm de distância entre os filamentos - Figura 3.21.

Verificamos que à medida que aumentamos o número de filamentos sobre o substrato a concentração de hidrogênio atômico na superfície de crescimento tende a diminuir. Com um único filamento, a maior concentração de hidrogênio atômico é exatamente sob o filamento. Com a utilização de 3 filamentos encontramos a maior concentração de hidrogênio atômico nas bordas sob o filamento central. E, para 5 filamentos, a maior concentração de hidrogênio atômico está localizada nos cantos do substrato.

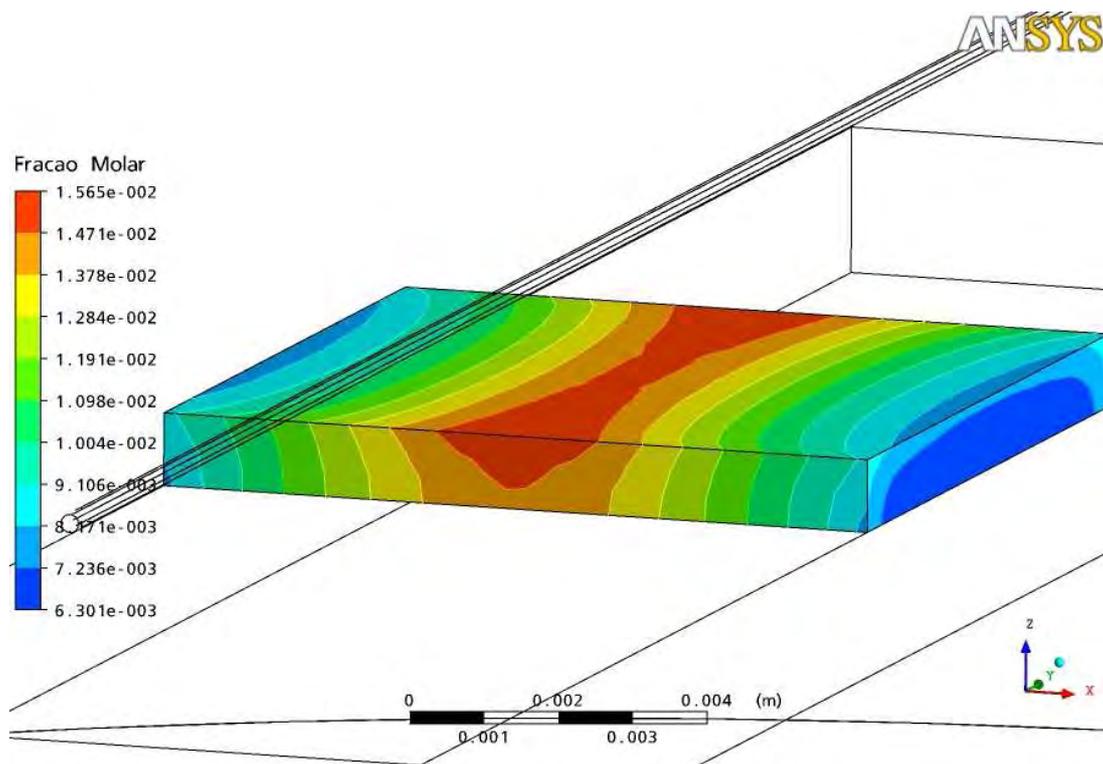


Figura 3.19 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (I).

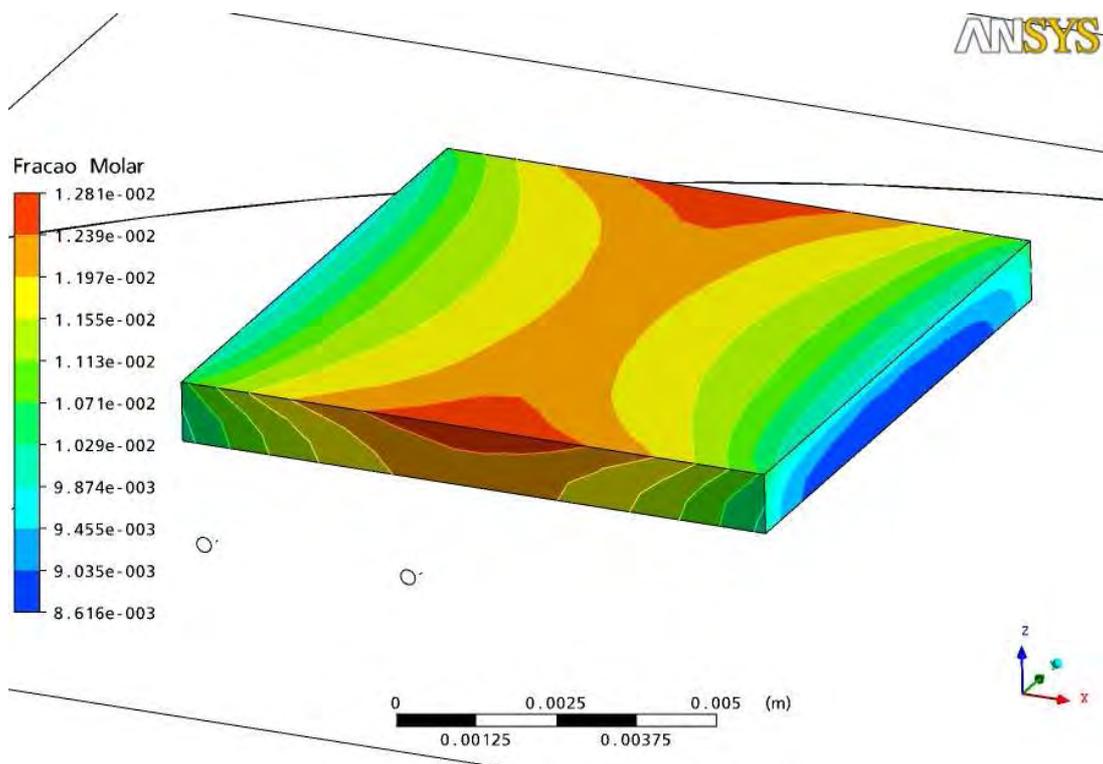


Figura 3.20 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (II).

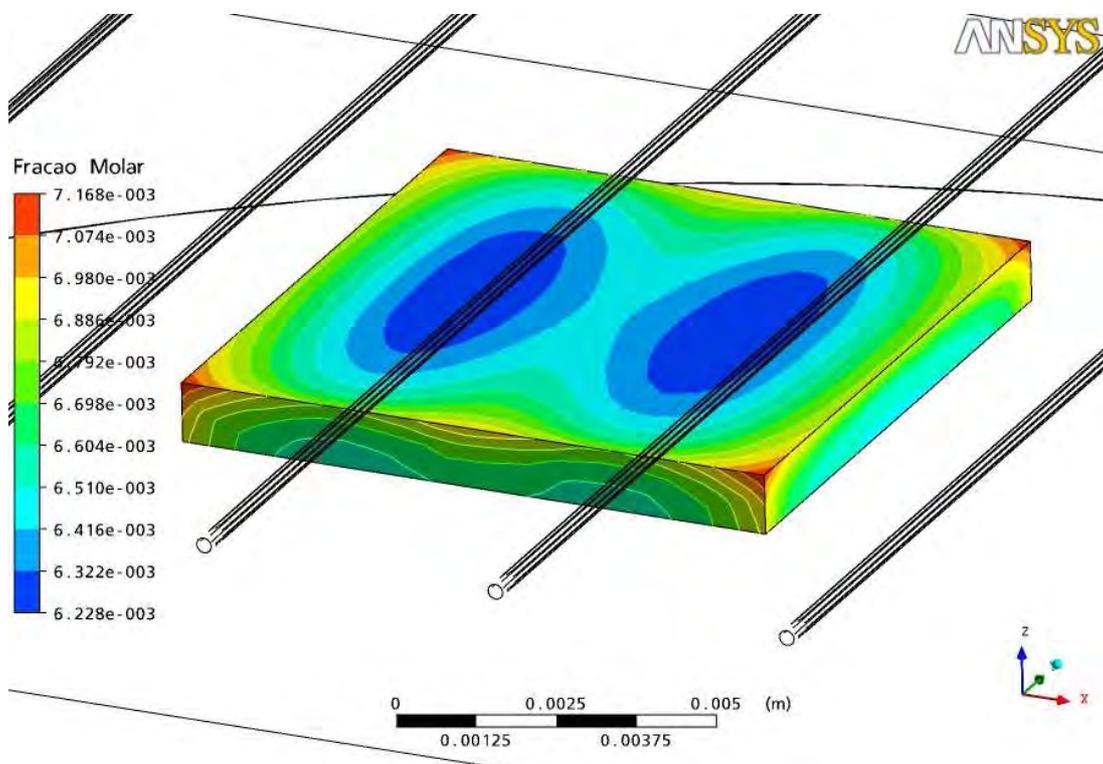


Figura 3.21 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (III).

Para entender o que ocorre, utilizamos quatro planos de corte, em diferentes posições sobre o substrato, para a visualização da concentração do hidrogênio atômico no ambiente do reator, como mostrado na Figura 3.26. As Figuras 4.23, 4.24 e 4.25 representam esses planos de corte, onde (1) no centro do substrato; (2) à um quarto do substrato, (3) em uma das extremidades do substrato e (4) logo após uma das extremidades do substrato.

Com um único filamento o hidrogênio atômico consegue se difundir mais facilmente, porém com múltiplos filamentos, essa difusão se torna mais custosa. Verificamos também que à medida que nos distanciamos do centro do substrato o hidrogênio atômico conseguiu se difundir mais facilmente. Isso explica a maior concentração de hidrogênio atômico nas bordas do substrato e a menor concentração logo abaixo do filamento, para múltiplos filamentos sobre o substrato.

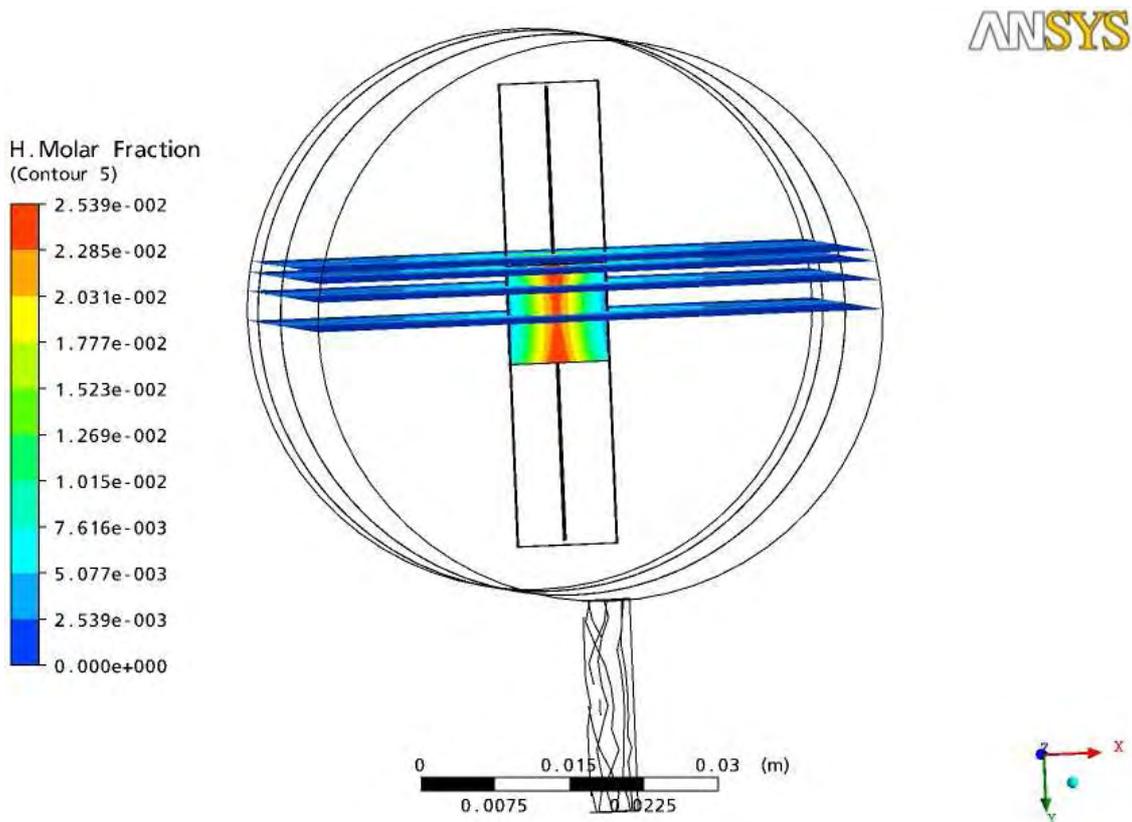


Figura 3.22 – Planos de corte para visualização dos resultados.

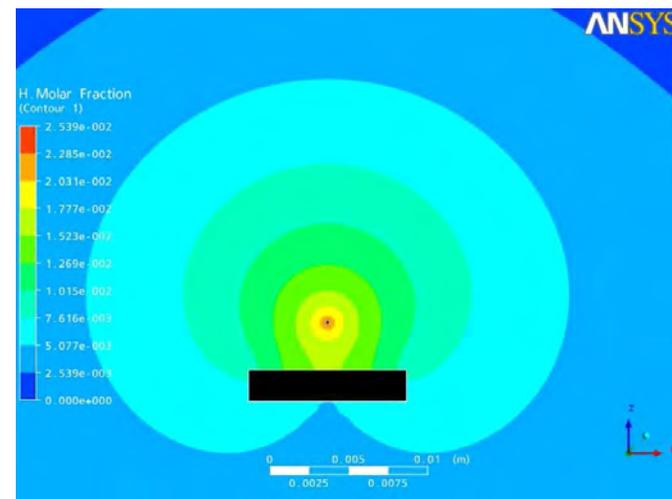
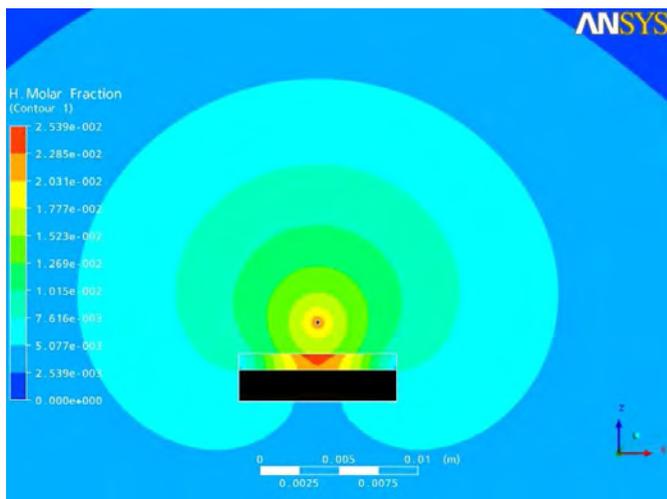
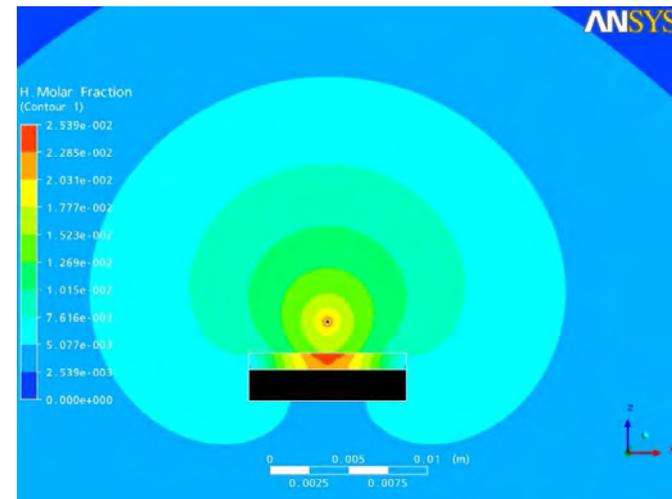
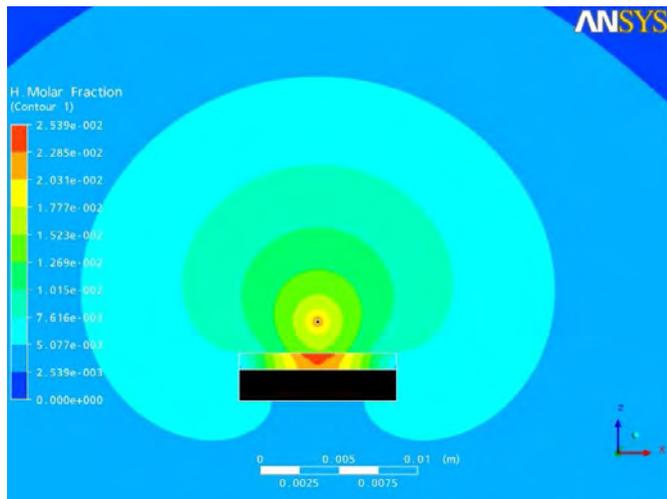


Figura 3.23 – Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (I).

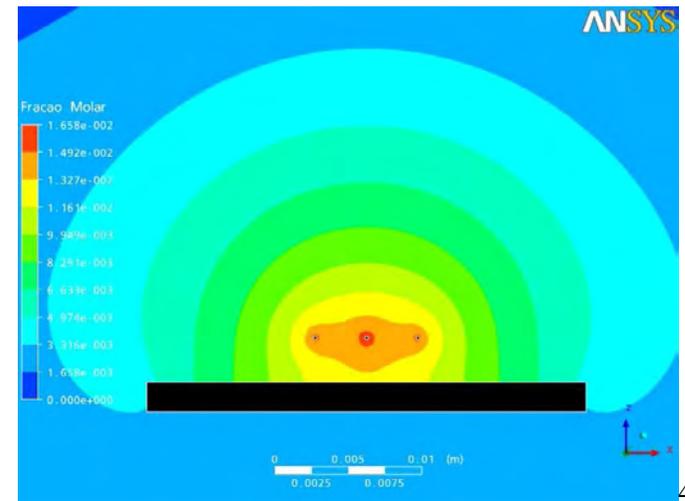
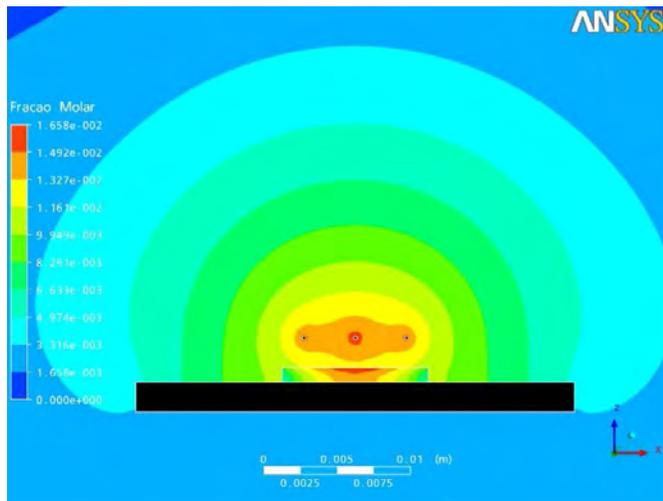
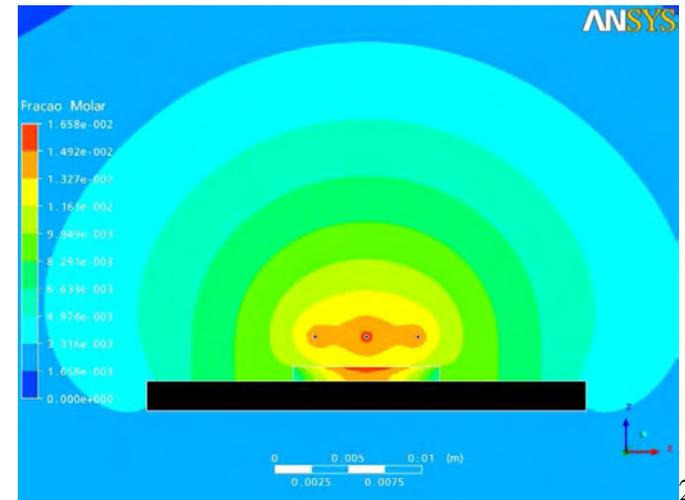
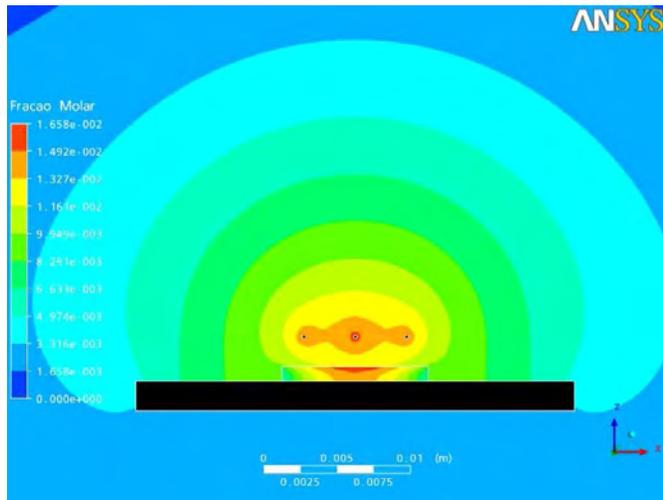


Figura 3.24 – Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (II).

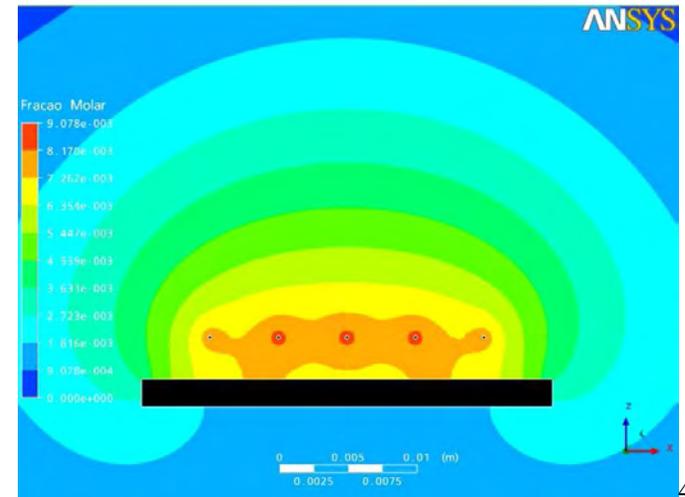
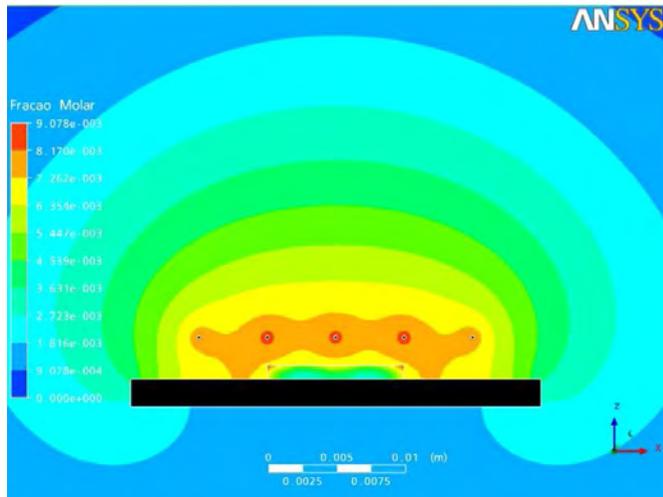
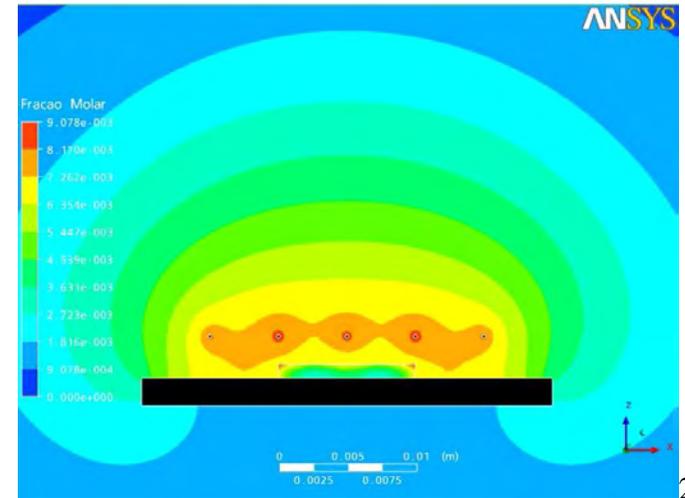
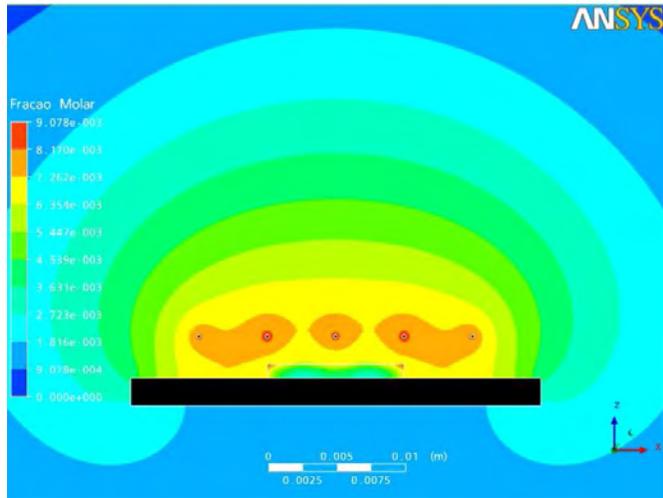


Figura 3.25 – Planos de corte para visualização dos resultados - Caso (III).

E, na Figura 3.26, Figura 3.27 e Figura 3.28 temos as isolinhas da concentração do hidrogênio atômico na superfície do substrato e na região que compreende o filamento e o substrato, para os três casos explicitados:

ANSYS

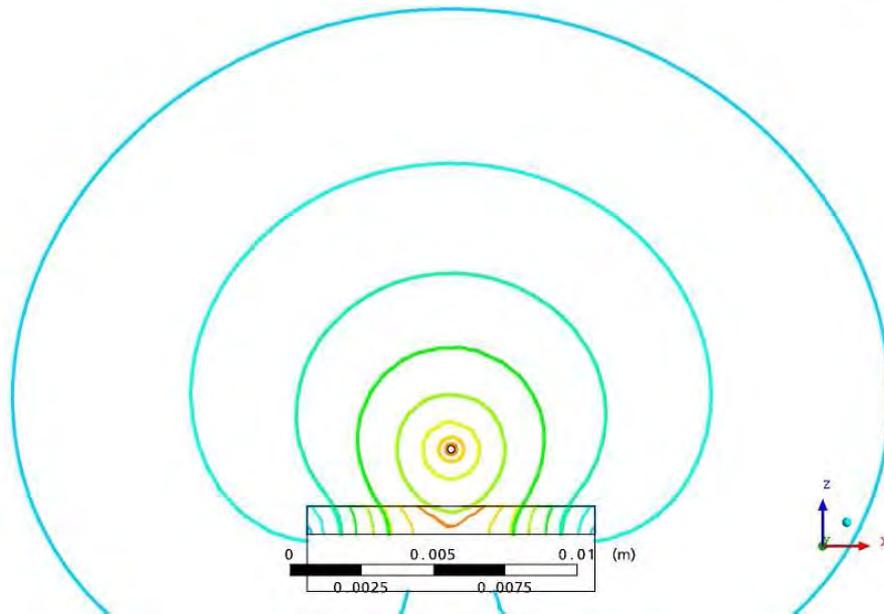


Figura 3.26 – Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (I).

ANSYS

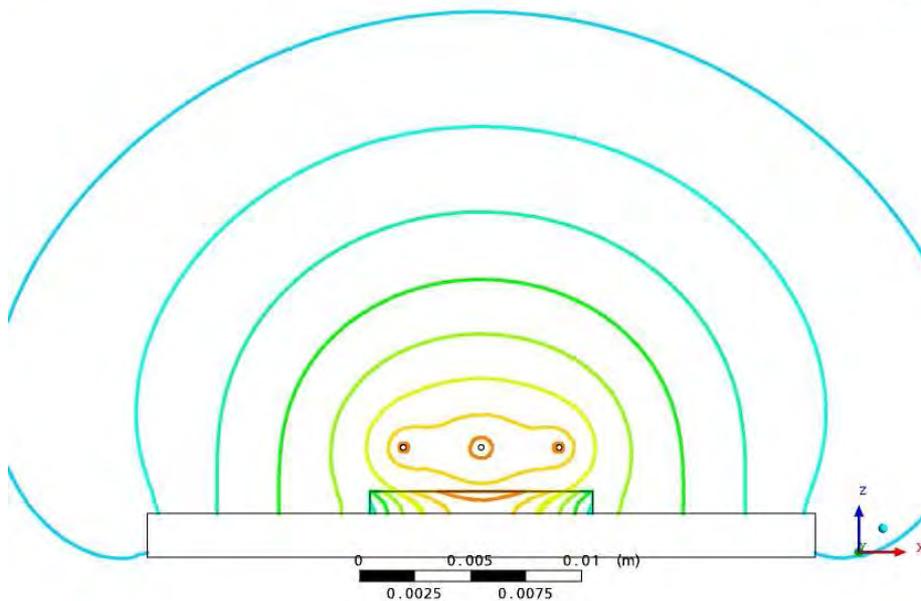


Figura 3.27 – Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (II).

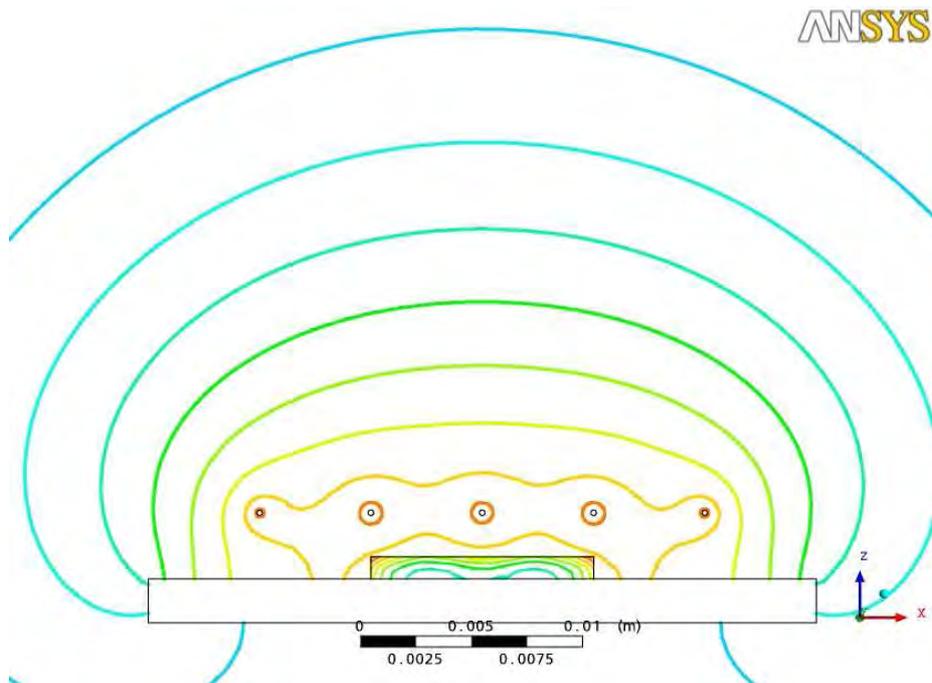


Figura 3.28 – Isolinhas da fração molar do hidrogênio atômico no substrato. Caso (III).

### 3.4. Modelagem 3D com diferentes distâncias entre filamentos paralelos

Outra importante análise que realizamos foi a modelagem utilizando diferentes distâncias entre filamentos paralelos a fim de verificar a influência de um filamento sobre outro, devido à sua proximidade. Foram utilizados 5 filamentos paralelos ao substrato e entre si, de diferentes diâmetros e as distâncias de 5 e 4 mm como verificamos na Figura 3.29. Os parâmetros utilizados nesta modelagem foram: pressão interna de 20 Torr, distância entre filamento e substrato de 3 mm, temperatura dos filamentos e substrato de 2500 K e 1130 K, respectivamente; gás de entrada H<sub>2</sub> a 100 sccm.

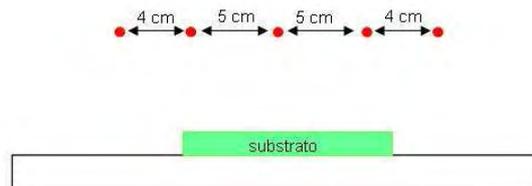


Figura 3.29 – Figura esquemática do posicionamento dos filamentos sobre o substrato.

Os resultados obtidos por essa modelagem foram comparados com os resultados obtidos pelas modelagens onde a distância entre filamentos foi de 3,5 e 5 mm. Com essa comparação conseguiremos determinar a melhor o melhor posicionamento de filamentos paralelos sobre o substrato.

Na Figura 3.30 temos o resultado da eficiência energética do filamento quente para vários diâmetros de filamento. Variando a distância entre os filamentos, não temos uma melhor tendência para determinar a melhor configuração. Analisando, na Figura 3.31, a concentração molar de hidrogênio atômico na região do filamento versus o diâmetro do filamento. Verificamos que a melhor configuração é utilizar 5 filamentos paralelos a uma distância de 3,5 mm entre os filamento. Por fim, na Figura 3.32, temos a concentração molar de hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento. Verificamos que a nova configuração de filamentos não é favorável para aumentar a quantidade de hidrogênio atômico na região. O ideal é usar 5 filamentos paralelos a uma distância de 3,5 mm entre os filamento.

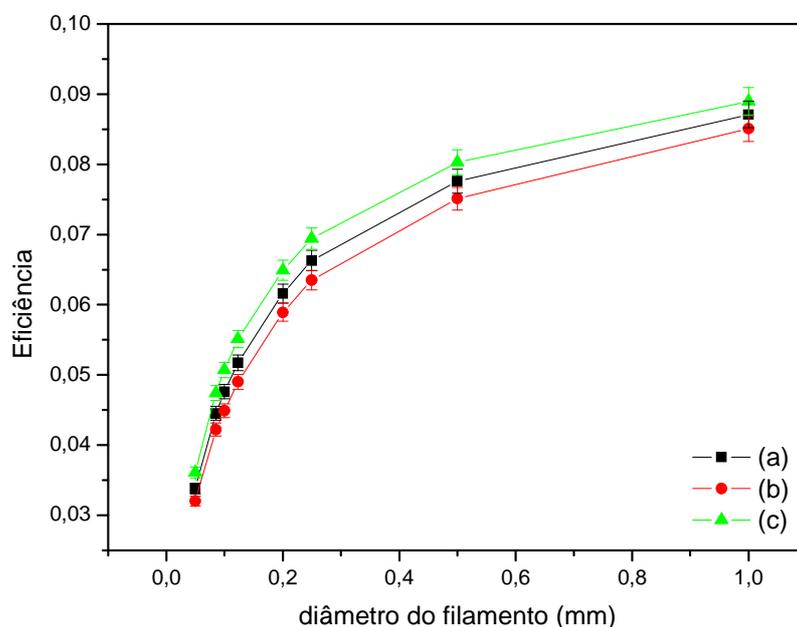


Figura 3.30 – Eficiência energética do filamento quente para 5 filamentos paralelos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.

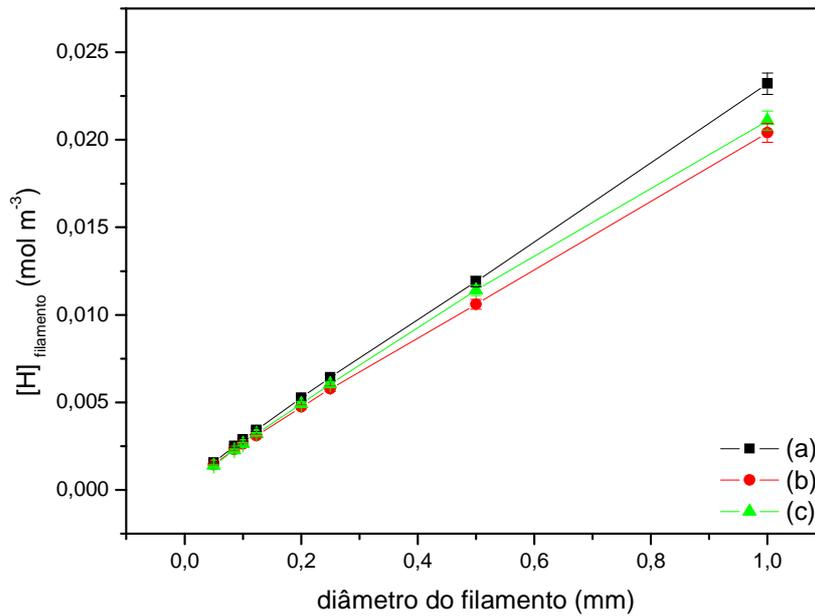


Figura 3.31 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do filamento para 5 filamentos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.

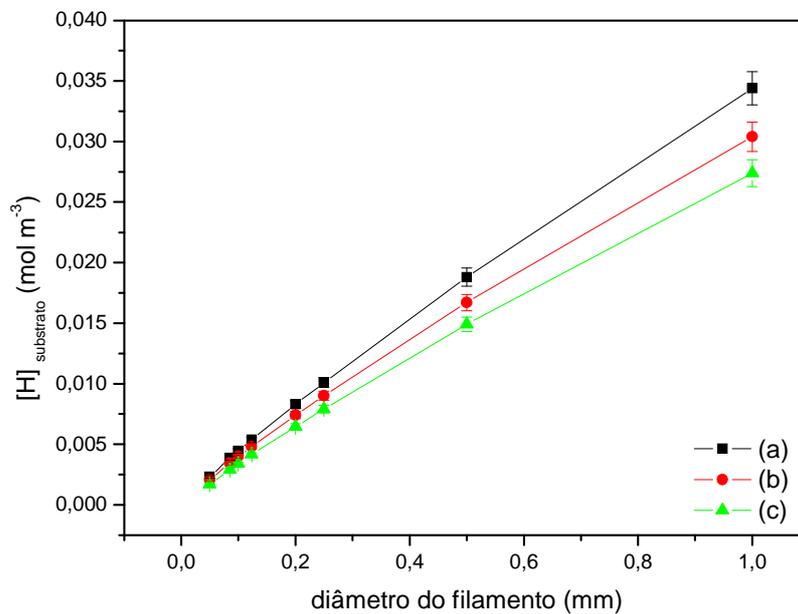


Figura 3.32 – Concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato para 5 filamentos e distância entre filamentos de: (a) 3,5 mm, (b) 5 mm e (c) 4 e 5 mm.

### 3.5. Modelagem 3D com a adição de hidrocarbonetos na fase gasosa

Devido ao tempo gasto para a solução do problema, foram realizadas modelagens com a adição de hidrocarbonetos na fase gasosa somente para o caso com 1 filamento de 250  $\mu\text{m}$  de diâmetro sobre o substrato, 3 mm de distância entre o filamento e o substrato e variando a pressão interna do reator: 20, 50 e 100 Torr.

Na Figura 3.33 temos a fração molar das espécies presentes no ambiente do reator para a modelagem onde pressão de trabalho é de 20 Torr, Figura 3.34 temos a fração molar das espécies para a modelagem onde pressão de trabalho é de 50 Torr e Figura 3.35 onde pressão de trabalho é de 100 Torr.

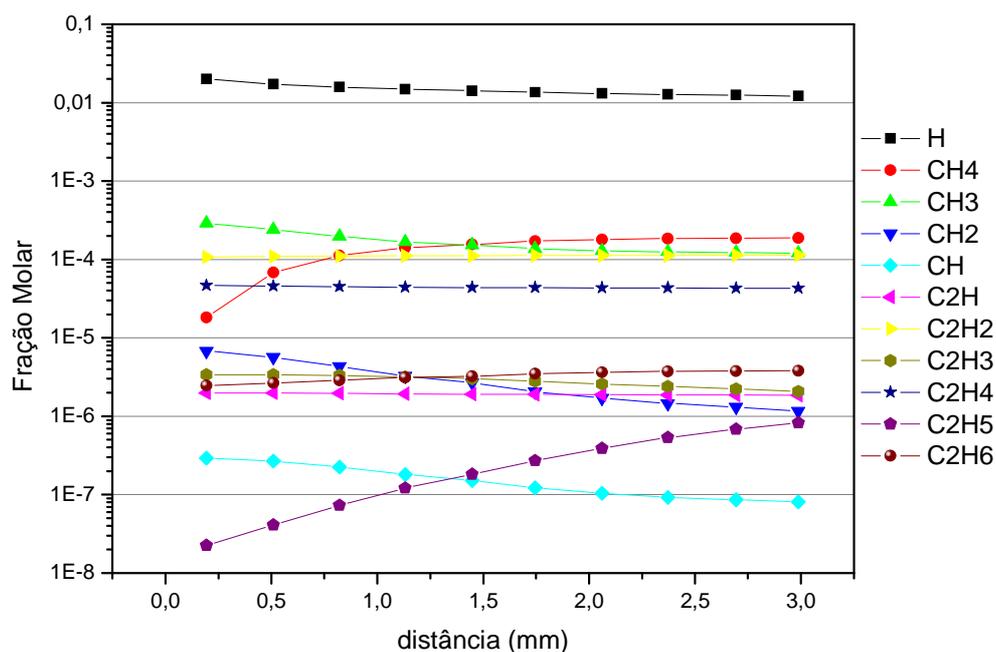


Figura 3.33 – Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 20 Torr.

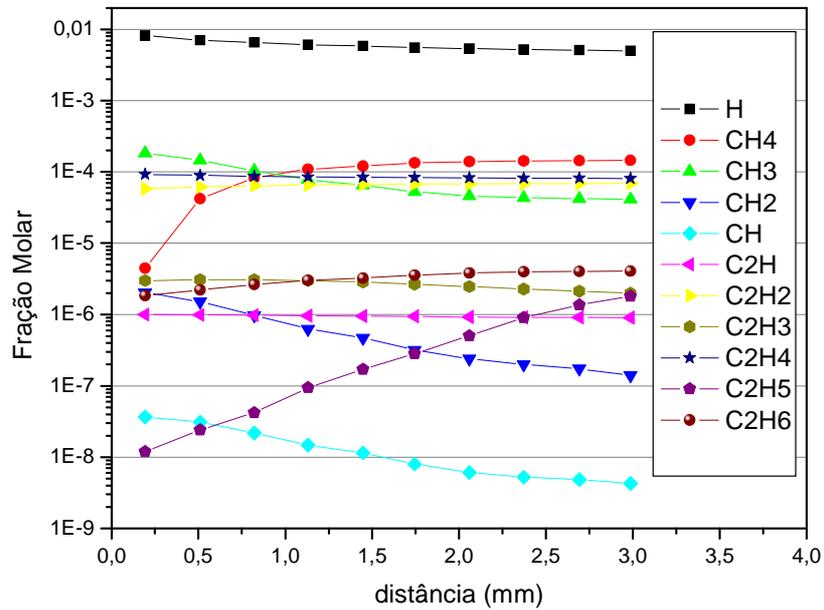


Figura 3.34 – Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 50 Torr.

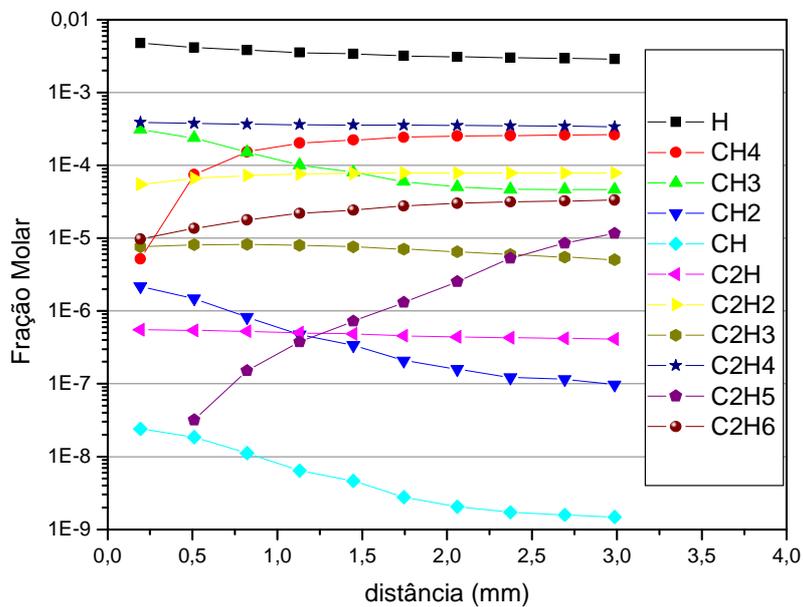


Figura 3.35 – Perfil de concentração molar de espécies na região entre o filamento e o substrato e pressão interna 100 Torr.

Uma importante informação que conseguimos retirar dessa modelagem é a quantidade de hidrogênio atômico na superfície de crescimento para o caso com reações somente de hidrogênio molecular e atômico e com a modelagem de toda a química da fase gasosa do processo. Colocando a química toda, e os gases de entrada 1% de CH<sub>4</sub> em H<sub>2</sub>, podemos notar que pouco mais de um terço da quantidade de hidrogênio atômico desapareceu quando comparamos com a modelagem utilizando somente com hidrogênio. Para o caso de 1 filamento e pressão de 20 Torr, somente com hidrogênio temos [H] = 3,06·10<sup>-3</sup> mol·m<sup>-3</sup>, enquanto com a química toda temos [H] = 2,13·10<sup>-3</sup> mol·m<sup>-3</sup>. Com a adição de apenas 1% de CH<sub>4</sub> obtivemos um decréscimo significativo da quantidade de hidrogênio no substrato. Modelagens variando a quantidade de metano na entrada do reator podem ser realizadas, a fim de analisar com mais propriedade este aspecto.

Na Tabela 3.1 temos, de maneira sucinta, os resultados da eficiência energética do filamento quente e da concentração molar de hidrogênio atômico e radical metila na região do substrato para as três modelagens realizadas. Analisando a tabela verificamos que os resultados das três modelagens são muito próximos. O erro numérico estimado é de ± 4 %. Desta maneira, não é possível identificar uma tendência para identificar a melhor configuração de pressão a ser utilizada. Com esses resultados podemos obter a taxa de crescimento de filmes de diamante através da seguinte expressão, descrita por Goodwin em 1993:

$$G = 1,8 \cdot 10^{11} \frac{[CH_3][H]}{5,0 \cdot 10^{-9} + [H]} \quad (\mu m/h) \quad (3.1)$$

onde [CH<sub>3</sub>] e [H] é a concentração molar de radical metila e hidrogênio atômico em mol/cm<sup>3</sup>.

Tabela 3.1 – Resultados da modelagem com a adição de hidrocarbonetos na fase gasosa

Pressão (Torr)	Eficiência	[H] <sub>substrato</sub> (mol m <sup>-3</sup> )	[CH <sub>3</sub> ] <sub>substrato</sub> (mol m <sup>-3</sup> )
20	0,0585	2,13·10 <sup>-03</sup>	2,31·10 <sup>-05</sup>
50	0,0581	2,10·10 <sup>-03</sup>	2,67·10 <sup>-05</sup>
100	0,0565	2,06·10 <sup>-03</sup>	2,84·10 <sup>-05</sup>

Na Figura 3.36 temos os valores da taxa de crescimento versus a pressão interna do reator. Pela figura conseguimos visualizar que, com o aumento da pressão, há um pequeno aumento na taxa de crescimento do filme. Ainda na figura verificamos a razão da taxa de crescimento e da potência total no filamento. Essa razão tem a mesma tendência que a taxa de crescimento, o que nos leva a pensar que para obter um filme com uma maior taxa de crescimento e uma melhor eficiência energética no filamento quente, o ideal é aumentar a pressão de trabalho. Porém, com apenas esses dados, não podemos expressar a melhor tendência a ser utilizada. Outras modelagens e análises devem ser realizadas para identificar a melhor configuração de reator a ser utilizada.

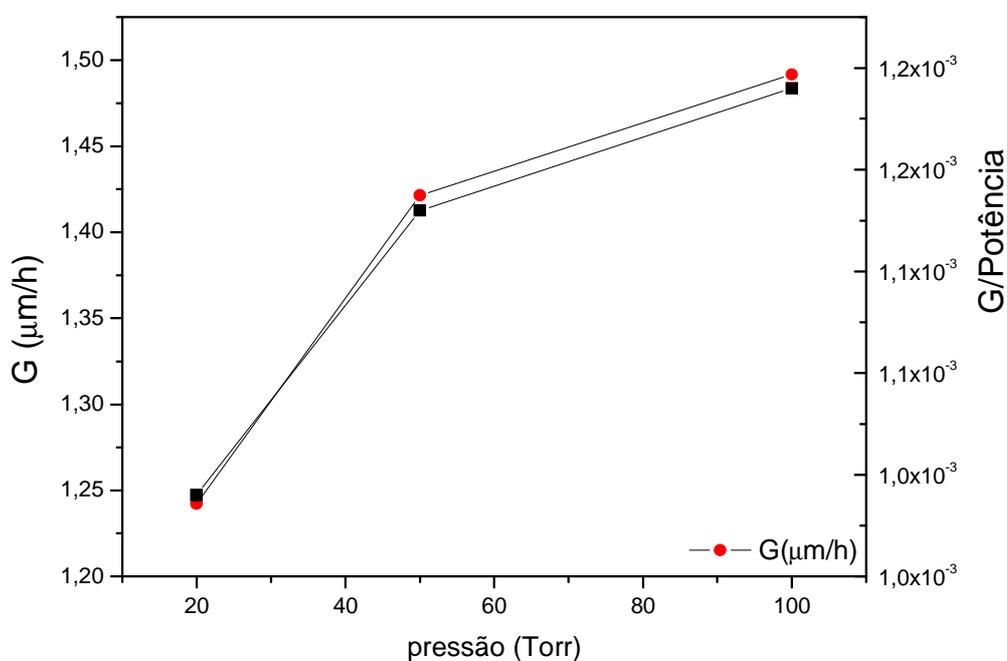


Figura 3.36 – Taxa de crescimento versus a pressão e a razão da taxa de crescimento e da potência total no filamento versus a pressão do reator.



#### 4. CONCLUSÕES

Neste trabalho foram realizadas modelagens tridimensionais de um reator HFCVD. Por essas modelagens conseguimos determinar perfis de velocidade, pressão, temperatura e concentração de espécies químicas. Nossas análises focaram esforços para estudar a potência dissipada no filamento quente a fim de determinar eficiência energética do filamento. Também, foram analisadas as concentrações de hidrogênio atômico na região do filamento quente e da superfície de crescimento.

Com a discussão e análise dos resultados dessas modelagens podemos afirmar que temos um ponto de partida para identificar a melhor configuração de reator HFCVD para crescimento de filmes de diamante, resumidos na Tabela 4.1. De maneira sucinta, listaremos as melhores tendências verificadas e analisadas no Capítulo 3. É importante ressaltar que estes são os melhores parâmetros de acordo com as considerações realizadas nas modelagens. Outros estudos devem ser realizados a fim de complementar essas análises.

	<b>n° de filamentos</b>	<b>diâmetro fil</b>	<b>distância fil_sub</b>	<b>distância fil_fil</b>	<b>pressão</b>
<b>Eficiência</b>	5	1 mm	7 mm	3,5 mm	-
<b>[H] filamento</b>	5	1 mm	3 mm	3,5 mm	20, 50 Torr
<b>[H] substrato</b>	5	1 mm	3 mm	3,5 mm	20, 50 Torr
<b>Toda química</b>	1	250 µm	3 mm	-	100 Torr

Tabela 4.1 - Resumo da melhor configuração de reator.

Nesta tabela temos que **[H] filamento** é a concentração de hidrogênio atômico na região do filamento quente para modelagens somente com hidrogênio; **[H] substrato** é a concentração de hidrogênio atômico na região do substrato para modelagens somente com hidrogênio; **Toda química** está relacionada com as modelagens onde toda química

de fase gasosa foi considerada, na entrada 1% de  $\text{CH}_4$  em  $\text{H}_2$ ; **diâmetro fil** é o diâmetro do filamento quente; **distância fil\_sub** é a distância entre filamento e substrato e **distância fil\_fil** é a distância entre filamentos.

Para obter a máxima eficiência energética no filamento quente, é ideal utilizar vários filamentos paralelos ao substrato. Filamentos mais grossos também são mais eficientes que filamentos mais finos. Entre as distâncias do filamento e substrato modelados, a distância de 7 mm apresentou o resultado mais favorável. A melhor distância entre os filamentos foi determinada na seção 3.4, onde pelas análises, ficou claro que 3,5 mm de distância entre os filamentos é ideal para obter a melhor eficiência energética no filamento. O único parâmetro que não apresentou a melhor tendência de configuração a ser utilizada foi a pressão de trabalho do reator.

Analisando, agora, a concentração de hidrogênio atômico na região do filamento quente. É ideal utilizar reatores com a seguinte configuração: vários filamentos paralelos ao substrato, porém com a menor distância entre o filamento e o substrato 3 mm, nestes casos modelados. Distâncias menores entre filamentos também promovem o aumento da produção dos átomos de hidrogênio. Filamentos mais grossos produzem mais hidrogênio atômico que filamentos mais finos. E por fim, não conseguimos identificar a pressão ideal do reator somente com as modelagens realizadas. Porém utilizar a pressão interna de 100 Torr não é aconselhável, pois, das três modelagens realizadas, essa pressão retorna a menor quantidade de hidrogênio atômico na região do filamento.

Para a concentração de hidrogênio atômico na superfície de crescimento é ideal utilizar filamentos mais grossos, como para o caso da concentração de hidrogênio atômico na região do filamento quente e da eficiência energética do filamento. Vários filamentos posicionados paralelamente ao substrato e com uma distância de 3,5 mm entre si também proporcionam a maior quantidade de hidrogênio atômico no substrato. Menores distâncias entre filamento e substrato também proporcionam esse aumento na quantidade de hidrogênio. Porém a pressão de trabalho não apresentou, explicitamente, uma melhor tendência, mas a pressão interna de 100 Torr não é aconselhável, pois apresenta a menor concentração de hidrogênio atômico na região

É importante ressaltar que quando utilizamos mais filamentos, aumentamos a quantidade de hidrogênio atômico, mas aumentamos consideravelmente a potência total dissipada nos filamentos. Pela razão da concentração do hidrogênio atômico no substrato pela potência total dissipada verificamos que, o caso com melhor eficiência é utilizar somente um filamento quente.

E, por fim, quando toda química de fase gasosa é inserida nas análises verificamos um aumento da taxa de crescimento com o aumento da pressão. Como o fluxo de gases na entrada do reator foi considerado constante para essa análise (100 sccm), variando a pressão temos um aumento significativo da taxa de crescimento. Modelagens com fluxo de entrada variável serão de grande valia para o estudo da taxa de crescimento de diamante.

É importante ressaltar vários aspectos desse trabalho. Primeiro, a realização de modelagens tridimensionais de reatores. Modelagens tridimensionais do transporte de calor são encontradas na literatura, como discutida no Capítulo 1. Ressaltamos assim um aspecto novo realizado neste trabalho, o estudo do comportamento do gás, da transferência de calor e de massa devido à formação do hidrogênio atômico. Como o hidrogênio atômico é parte primordial no processo de crescimento de diamante, analisando a distribuição de temperaturas e a concentração de hidrogênio atômico no reator, conseguimos identificar melhores configurações para o crescimento.

O segundo aspecto novo que ressaltamos é a realização de modelagens variando parâmetros do reator. Modelagens utilizando diferentes diâmetros de filamento, vários filamentos sobre o substrato, várias distâncias entre filamentos e entre filamento e substrato e diferentes pressões de trabalho de reator foram realizadas pela primeira vez neste trabalho.

O estudo da eficiência energética do filamento quente é o terceiro aspecto novo deste trabalho. Através deste estudo verificamos que filamentos mais grossos, 1 mm de diâmetro, são mais eficientes na produção de hidrogênio atômico.

Identificamos como o quarto aspecto a distribuição de hidrogênio atômico sobre a superfície de crescimento. Verificamos que para modelagens considerando vários filamentos sobre o substrato, a maior concentração de hidrogênio está nas bordas do substrato, devido ao hidrogênio não conseguir se difundir mais facilmente nas regiões centrais do substrato.

E o quinto aspecto novo é a modelagem tridimensional de toda química de fase gasosa para três pressões de reator. Verificamos que aumentando a pressão de trabalho, identificamos um aumento na taxa de crescimento do filme de diamante.

Para idealizar a melhor configuração de reator é necessário continuar o estudo e análise das modelagens tridimensionais do reator. Sugerimos, assim, como trabalhos futuros a realização de modelagens modificando a geometria do filamento; e seu posicionamento sobre o substrato. Modificações na geometria do substrato também podem ser analisadas. A temperatura do filamento e do substrato podem ser considerados parâmetros variáveis, a fim de verificar a melhor tendência para esses parâmetros. Outra consideração é o fluxo de entrada de gases e sua concentração. Variar o fluxo de entrada a fim de verificar a melhor tendência para a maior taxa de crescimento, bem como variar a concentração de metano na entrada dos gases. E, por fim, inserir um modelo de crescimento na superfície do substrato para assim determinar com mais propriedade a melhor configuração de reator.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ANSYS, Inc. **ANSYS CFX, Release 11.0**. Europe, 2007.

ANSYS, Inc. **ANSYS CFX 11.0**. Europe, 2007. Disponível em:  
<http://www.ansys.com/products/cfx.asp>. Acesso em 22 jan 2007.

ANTHONY, T. R. Cylindrically symmetric diamond parts by hot-filament CVD. **Diamond and Related Materials**, v. 6, p. 1707-1715, Apr. 1997.

ATKINS, P. **Físico-química**. Rio de Janeiro: LTC, 2004.

AYRTON, W. E.; KILGOUR, H. The thermal emissivity of thin wires in air. **Philosophical Transactions of the Royal Society of London A**, v. 183, p. 371-405, 1892.

BARRAT, S.; PIGEAT, P.; BAUER-GROSSE, E. Three-dimensional simulation of CVD diamond film growth. **Diamond and Related Materials**, v.5, p. 276-280 , 1996.

BIRD, R. B.; STEWART, W. E.; LIGHTFOOT, E. N. **Transport phenomena**. New York: John Wiley & Sons, 1960. 780p.

BARBOSA, D. C.; VILLA-NOVA, H. F.; BALDAN, M. R. Numerical simulation of HFCVD process used for diamond growth. **Brazilian Journal of Physics**, v. 36, n. 2a, p. 313-316, 2006.

CHENEVIER, M. ET AL. Measurement of atomic hydrogen in a hot filament reactor by two-photon laser-induced fluorescence. **Diamond and Related Materials**, v. 3, p. 587-592, 1994.

CHILDS, M. A. et al. Atomic and radical densities in a hot filament diamond deposition system. **J. Chem. Phys.** v. 104, n. 22, Jun. 1996.

CHU, C. J. et al. Mechanism of diamond growth by chemical vapor-deposition on diamond (100), (111), and (110) surfaces: carbon-13 studies. **Journal of Applied Physics**, v. 70, n. 3, p. 1695-1705, Aug. 1991

DENBIGH, K. **The principles of chemical equilibrium**. London: Cambridge University Press, 1971. 494p.

FORTUNA, A. O. **Técnicas computacionais para dinâmica dos fluidos**. São Paulo: EDUSP, 2000. 426p.

FRENKLACH, M. The role of hydrogen in vapor deposition of diamond. **Journal of Applied of Physics**, v. 65, n. 12, p. 5142-5149, Jun. 1989.

FRENKLACH, M.; SPEAR, K. E. Growth-mechanism of vapor-deposited diamond. **Journal of Materials Research**, v. 3, n. 1, p. 133-140, Jan. 1988.

GOODWIN, D. G. Scaling laws for diamond chemical-vapor deposition. I. Diamond surface chemistry. **Journal of Applied of Physics**, v. 74, n.11, p. 6888-6906, Dez. 1993.

GOODWIN, D. G. Scaling laws for diamond chemical-vapor deposition. II. Atomic hydrogen transport. **Journal of Applied of Physics**, v. 74, n.11, p. 6895-6894, Dez. 1993.

GOODWIN, D. G.; GAVILLET, G. G. Numerical modeling of the filament-assisted diamond growth environment. **Journal of Applied Physics**, v. 68, n. 12, p. 6393-6400, Dec. 1990.

GOZELOTO, M.; TRAVA-AIROLDI, V. J.; CORAT, E. J.; MORO, J. R. Brocas anelares de diamante CVD. **Revista Brasileira de Aplicações de Vácuo**, v.21, n.1/2, p.4-7, 2003.

HARRIS, S. J. Gas-phase kinetics during diamond growth: CH<sub>4</sub> as-growth species. **Journal of Applied of Physics**, v. 65, n. 8, p. 3044-3048, Abril 1989.

HARRIS, S. J. Mechanism for diamond growth from methyl radicals. **Applied Physics Letters**, v. 56, n. 23, p. 2298-2300, June 1990.

HARRIS, S. J.; MARTIN, L. R. Methyl versus acetylene as diamond growth species. **Journal of Materials Research**, v. 5, n. 11, p. 2313-2319, Nov. 1990.

HARRIS, S. J.; WEINER, A. M. Reaction kinetics on diamond: Measurement of H atom destruction rates. **Journal of Applied Physics**, v. 74, n. 2, Julho 1993.

INCROPERA, F. P.; DEWITT, D. P. **Transferência de calor e massa**. Rio de Janeiro: LTC, 2002. 698p.

JANSEN, F.; CHEN, I.; MANCHONKIN, M. A. On the thermal dissociation of hydrogen. **Journal of Applied Physics**, v. 66, n. 12, p. 5749-5755, Dec. 1989.

KUO, K. K. **Principles of Combustion**. New York: John Wiley & Sons, 1986. 810p.

LANGMUIR, I. The dissociation of hydrogen into atoms. **J.A.C.S.**, 34, p. 860-877, Maio 1912.

LEE, S. T.; ZHANGDA, L.; JIANG, X. CVD diamond films: nucleation and growth. **Materials Science and Engineering**, v. 25, p. 123-154, Jun. 1999.

MALISKA, C.R. **Transferência de calor e mecânica dos fluídos computacional: fundamentos e coordenadas generalizadas**. Rio de Janeiro: LTC, 1995. 424 p.

MANKELEVICH, Y.A.; RAKHIMOV, A.T.; SUETIN, N.V. Three-dimensional simulation of a HFCVD reactor. **Diamond and Related Materials**, v. 7, p. 1133-1137, Jan. 1998.

MARTIN, L. R.; HILL, M. W. A flow-tube study of diamond film growth – methane versus acetylene. **Journal of Materials Science Letters**, v. 9, n. 6, p. 621-623, June 1990.

QI, X.; CHEN, Z.; WANG, G. Formation and Transport of Atomic Hydrogen in Hot-Filament Chemical Vapor Deposition Reactors. **Journal of Materials Science and Technology**, v. 19, n. 3, p. 235-239, Jun. 2003.

PIERSON, H. O. **Handbook of Carbon, Graphite, Diamond and Fullerenes: properties, processing and applications**. New Jersey: Noyes Publications, 1993. 399p.

PIERSON, H. O. **Handbook of Chemical Vapor Deposition: Principles, Technology, and Applications**. New Jersey: Noyes Publications, 1999. 506p.

SILVA, L. L. G. **Eletrodos em diamante CVD para estudos eletroquímicos**. Tese (Doutorado em Engenharia de Materiais), Instituto Tecnológico de Aeronáutica, São Jose dos Campos, 2001.

SIQUEIRA, V. R. **Estudo da formação do hidrogênio atômico no filamento do reator HFCVD**. Dissertação (Mestrado em Engenharia e Tecnologia Espaciais), Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São Jose dos Campos, 2005.

SPEAR, K. E.; DISMUKES, J. P. **Synthetic Diamond: Emerging CVD Science and Technology**. New York: John Wiley and Sons, 1994. 663p.

TANKALA, K.; DEBROY, T. Modeling of the role of atomic hydrogen in heat transfer during hot filament assisted deposition of diamond. **Journal of Applied of Physics**, v. 72, n. 2, p. 712-718, Julho 1992.

TSUDA, M.; NAKAJIMA, M.; OIKAWA, S. Epitaxial-growth mechanism of diamond crystal in CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub> plasma. **Journal of the American Chemical Society**, v. 108, n. 19, p. 5780-5783, Sept. 1986.

WILLIAMS, F. A. **Combustion Theory**. London: Addison-Wesley, 1965. 447p.

WOLDEN, C.; GLEASON, K. K. Heterogeneous Formation of atomic hydrogen in hot filament diamond deposition. **Applied Physics Letter**, v. 62, n. 19, p. 2329-2331, Fev. 1993.

ZUMBACH, V. ET AL. Experimental investigation and computational modeling of hot filament diamond chemical vapor deposition. **Journal of Chemical Physics**, v. 107, n. 15, p. 5918-5928, Out. 1997.



## APÊNDICE A. RESULTADOS DA MODELAGEM 3D DO REATOR HFCVD

Neste apêndice apresentamos os resultados obtidos através da modelagem tridimensional do reator HFCVD utilizando o software ANSYS CFX 11.0 para os casos com 1, 3 e 5 filamentos e pressão interna do reator igual a 20, 50 e 100 Torr.

### A.1. Modelagem 3D: 1 filamento e pressão de 20 Torr

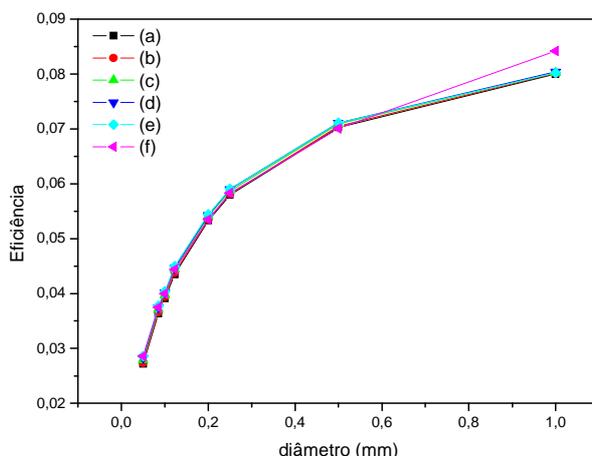


Figura 1 - Gráfico da eficiência energética do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 15, (b) 13, (c) 10, (d) 7, (e) 5 e (f) 3 mm.

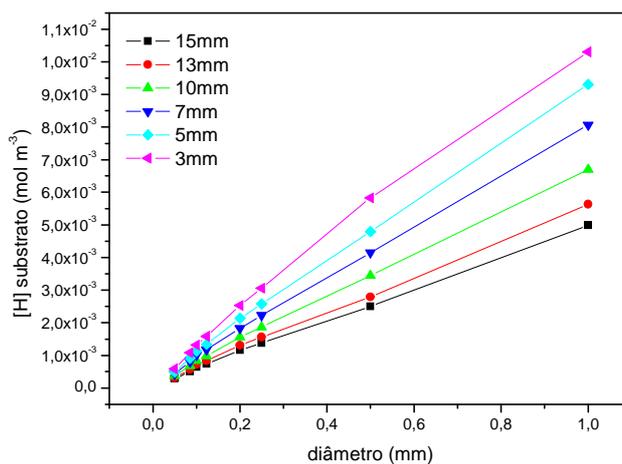


Figura 2 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 15, (b) 13, (c) 10, (d) 7, (e) 5 e (f) 3 mm.

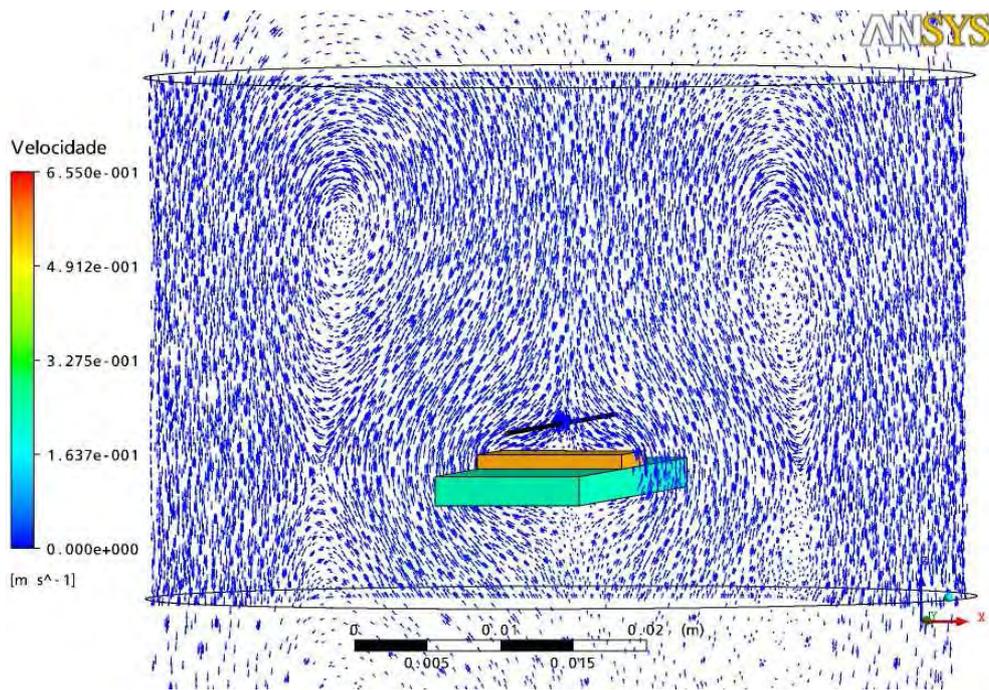


Figura 3 – Perfil de velocidades para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

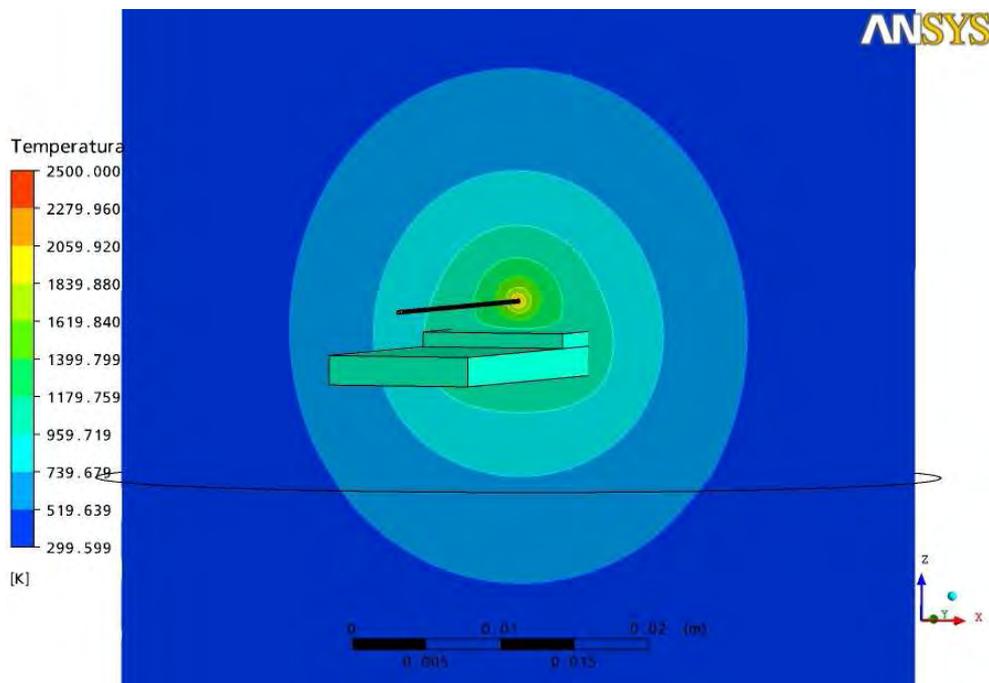


Figura 4 – Perfil de temperaturas para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

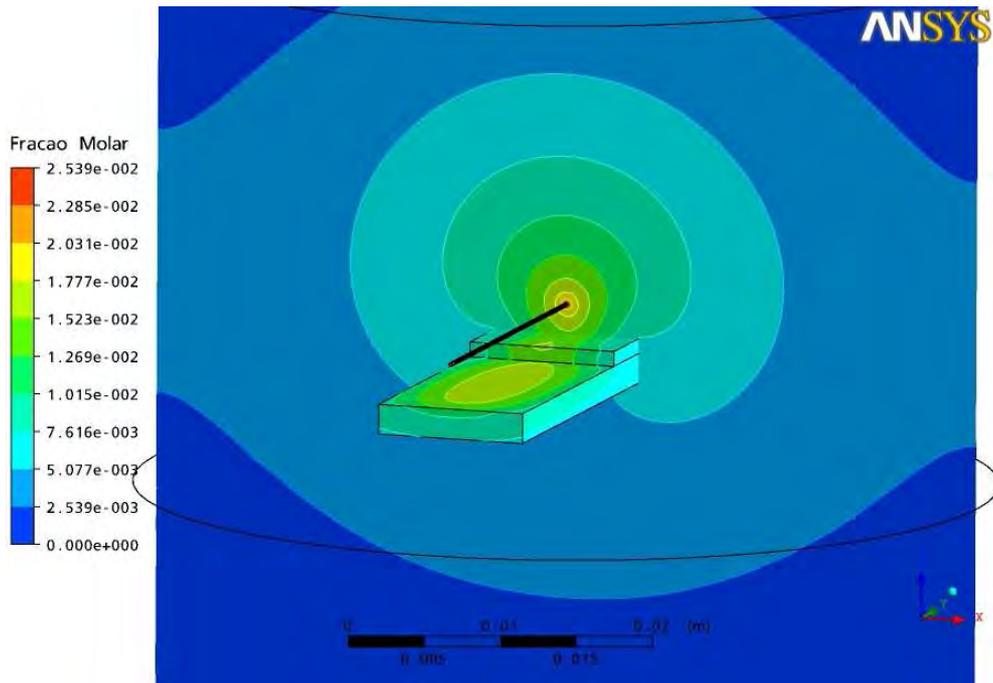


Figura 5 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

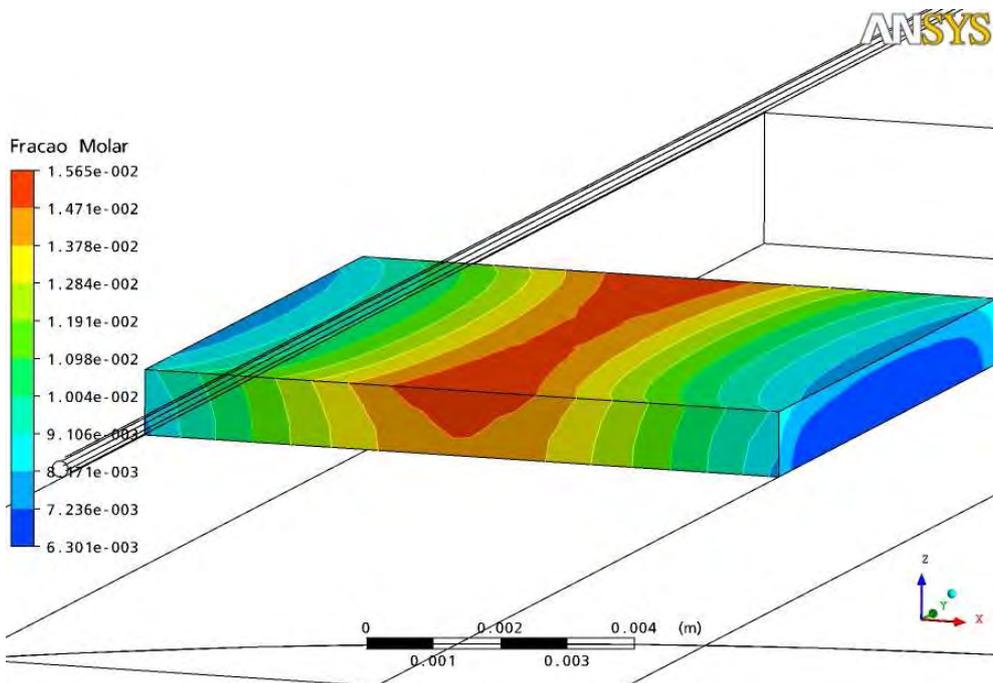


Figura 6 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

## A.2. Modelagem 3D: 1 filamento e pressão de 50 Torr

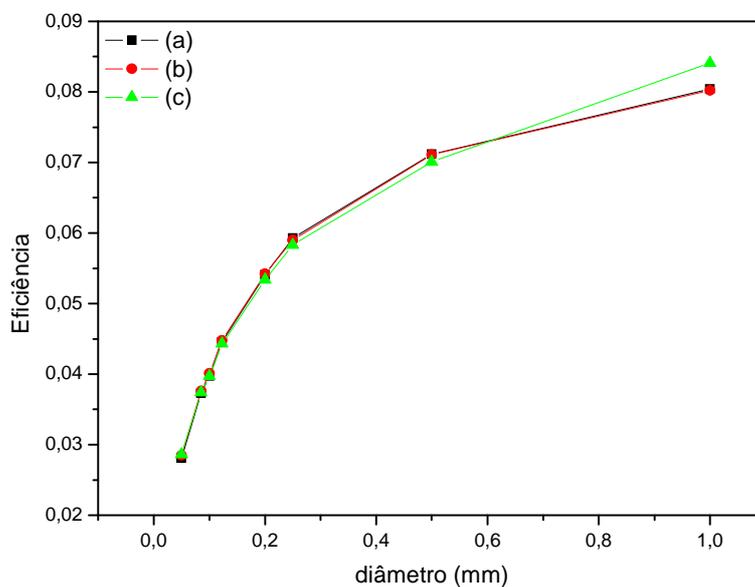


Figura 7 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

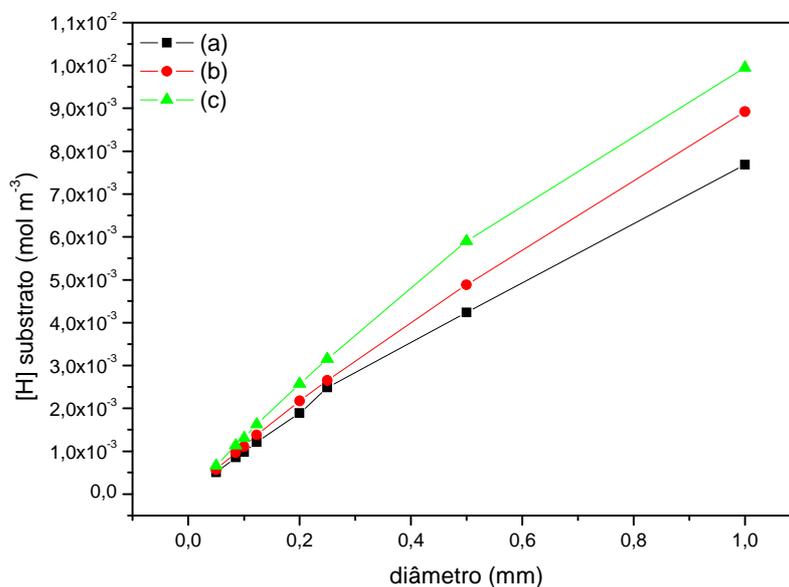


Figura 8 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

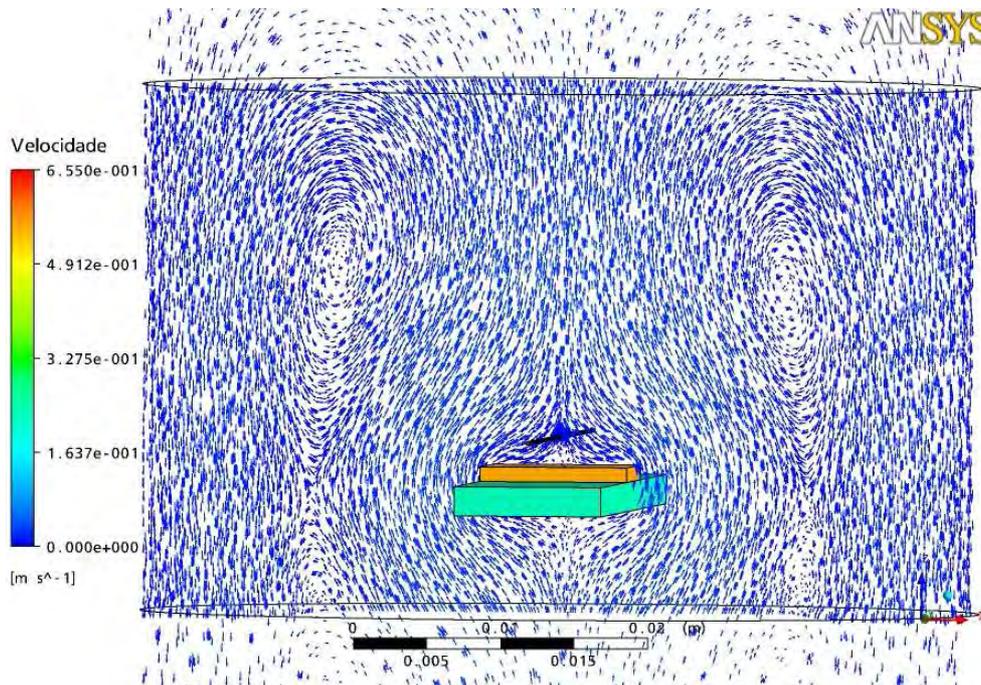


Figura 9 – Perfil de velocidades para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

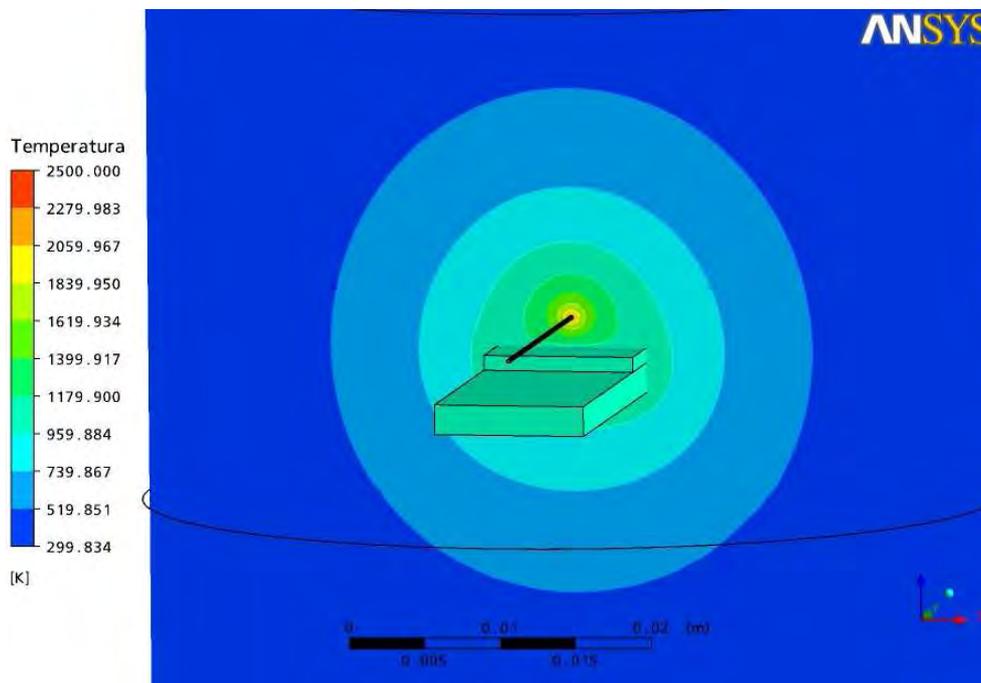


Figura 10 – Perfil de temperaturas para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

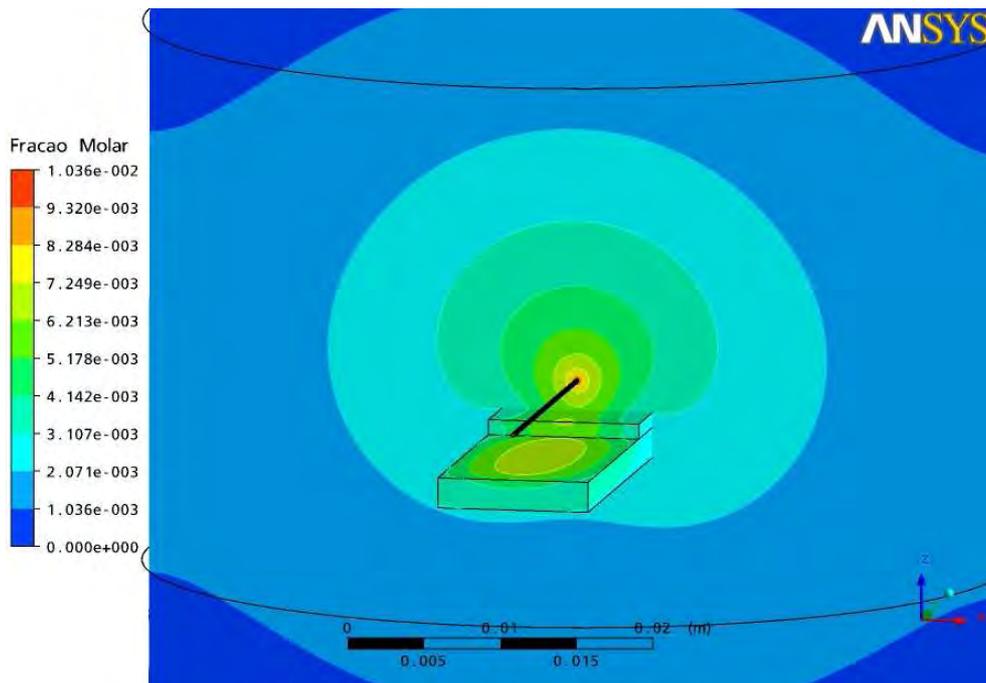


Figura 11 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

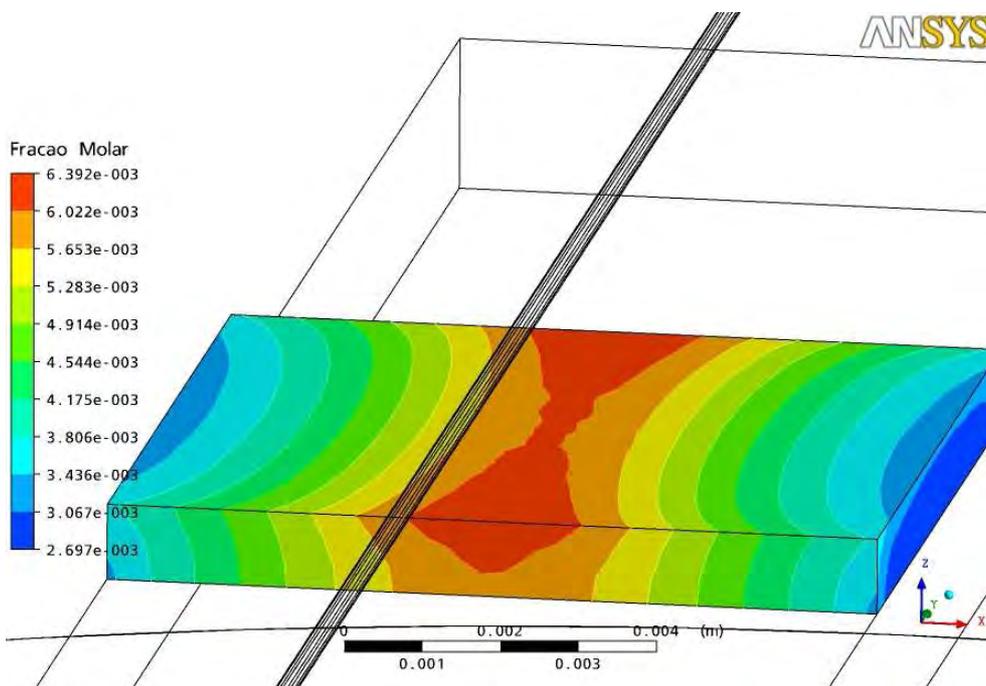


Figura 12 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

### A.3. Modelagem 3D: 1 filamento e pressão de 100 Torr

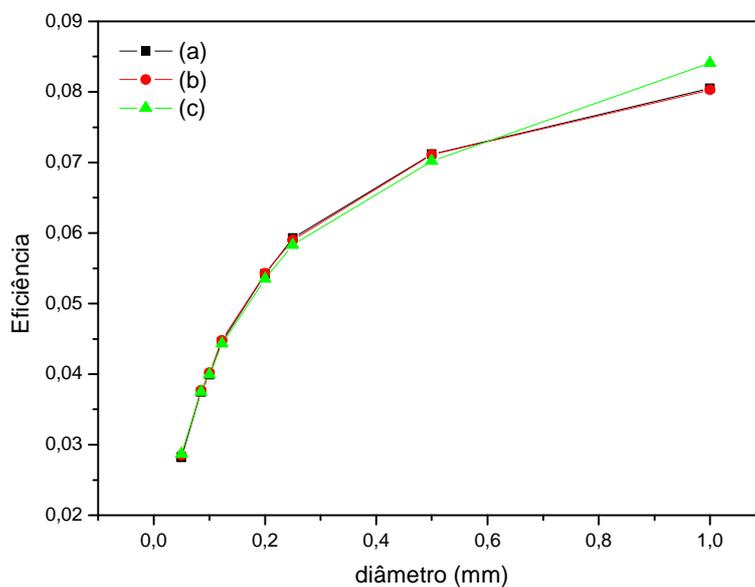


Figura 13 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

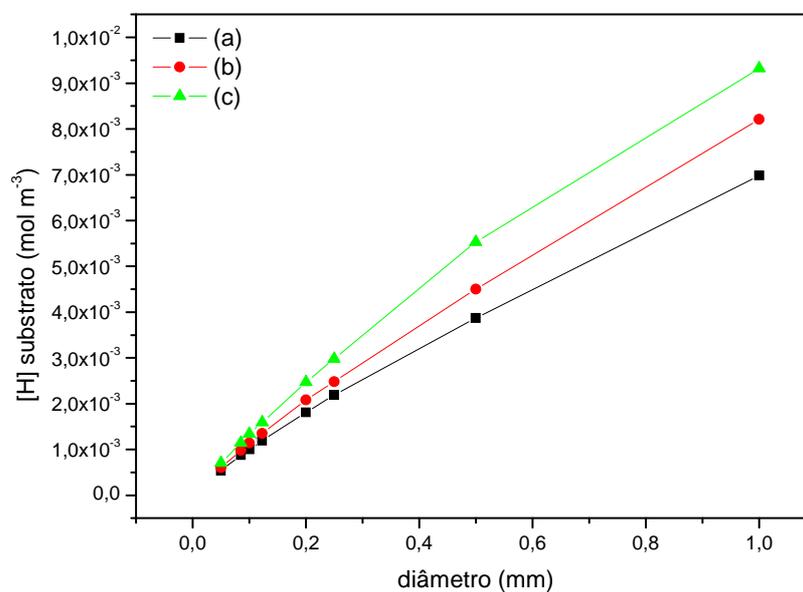


Figura 14 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

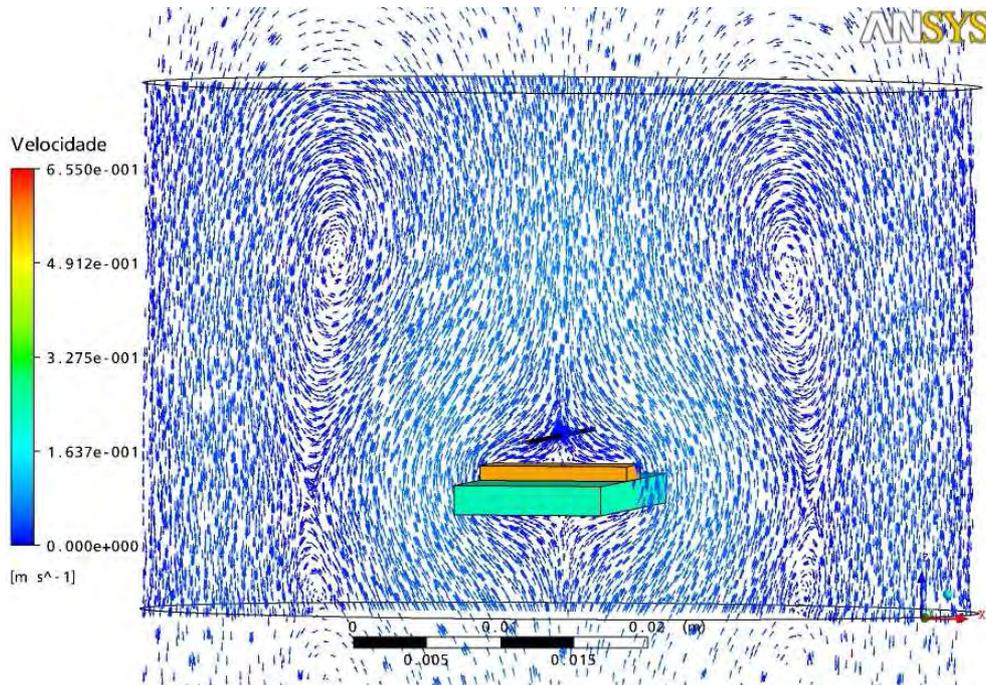


Figura 15 – Perfil de velocidades para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm..

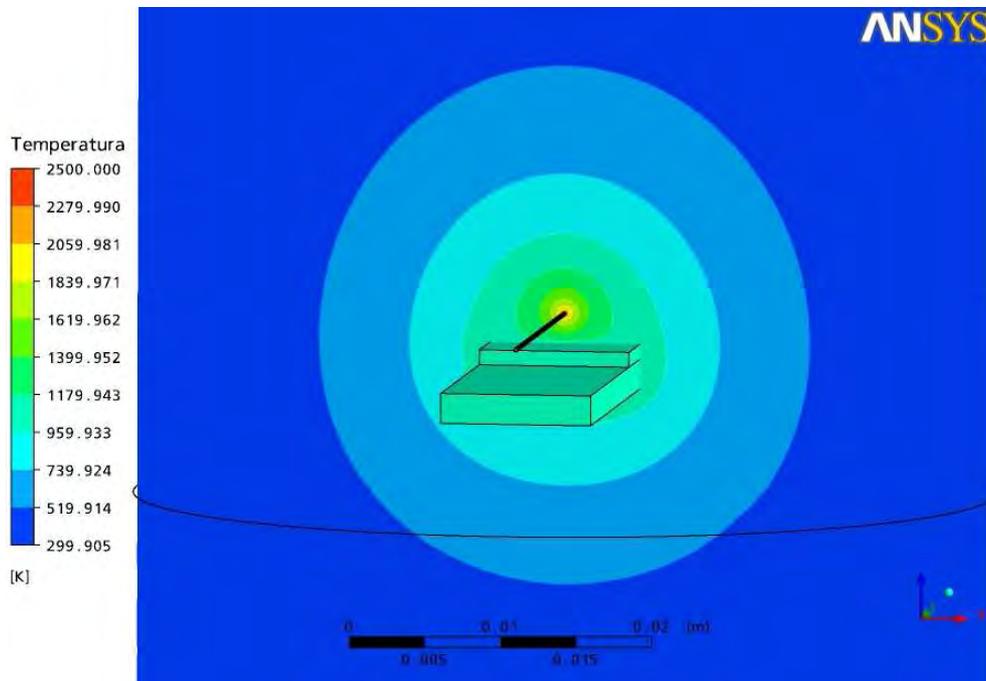


Figura 16 – Perfil de temperaturas para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

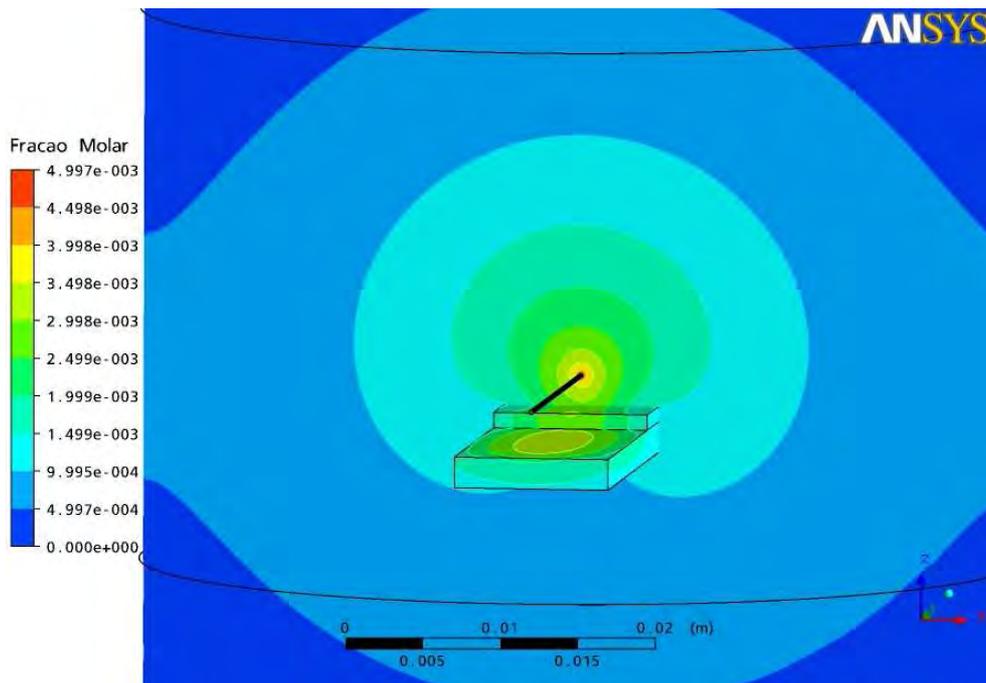


Figura 17 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

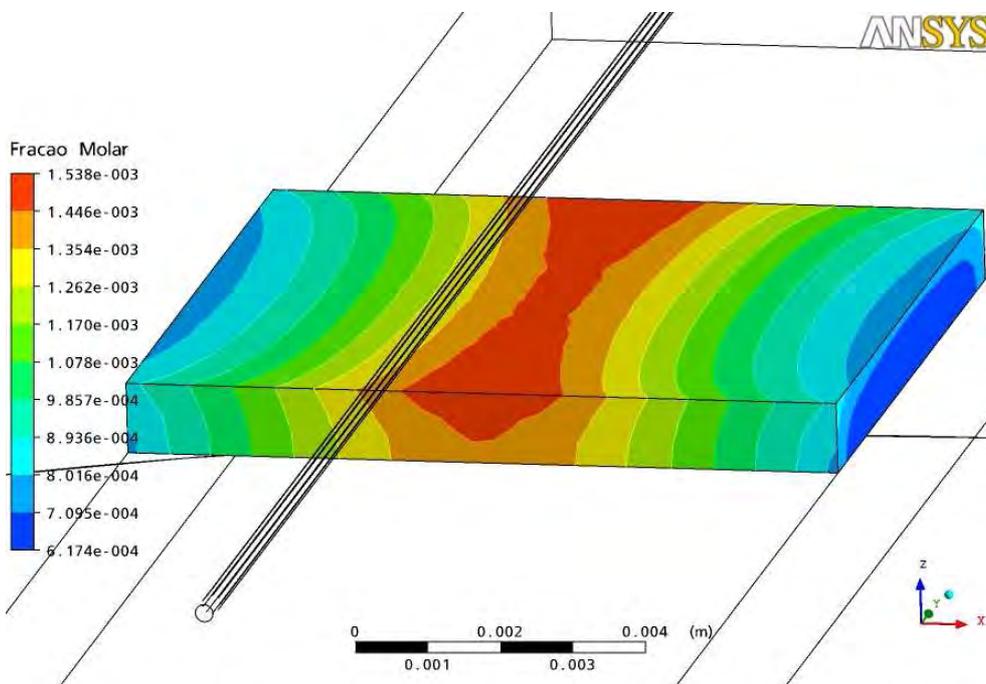


Figura 18 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato para diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e distância entre filamento e substrato de 3 mm.

#### A.4. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 20 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos

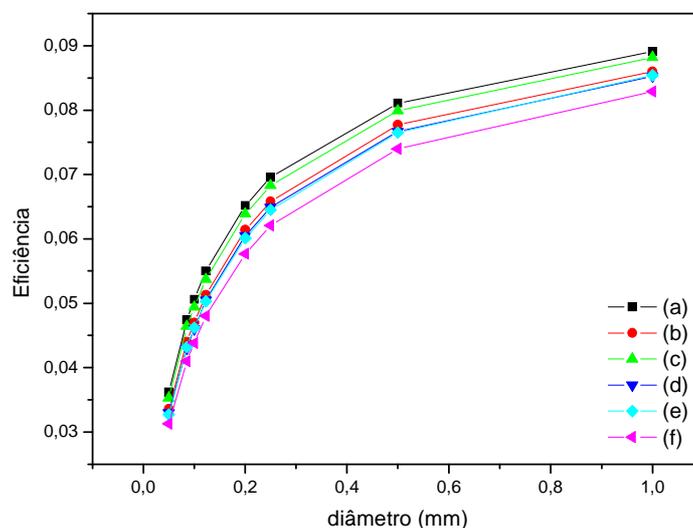


Figura 19 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

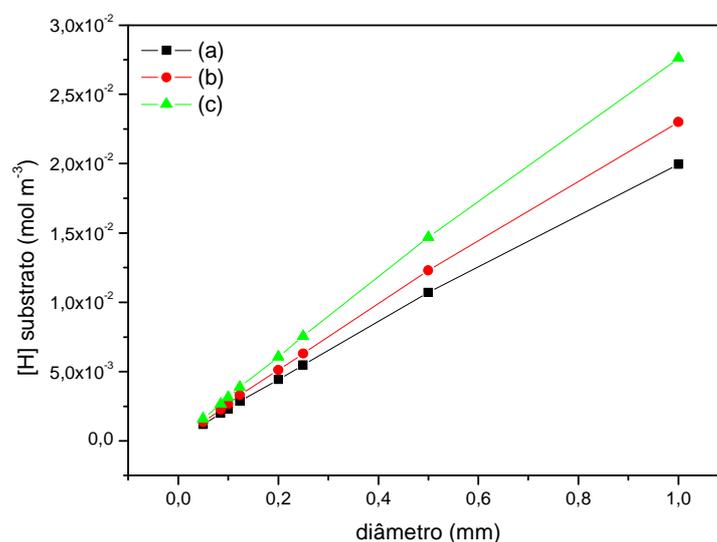


Figura 20 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

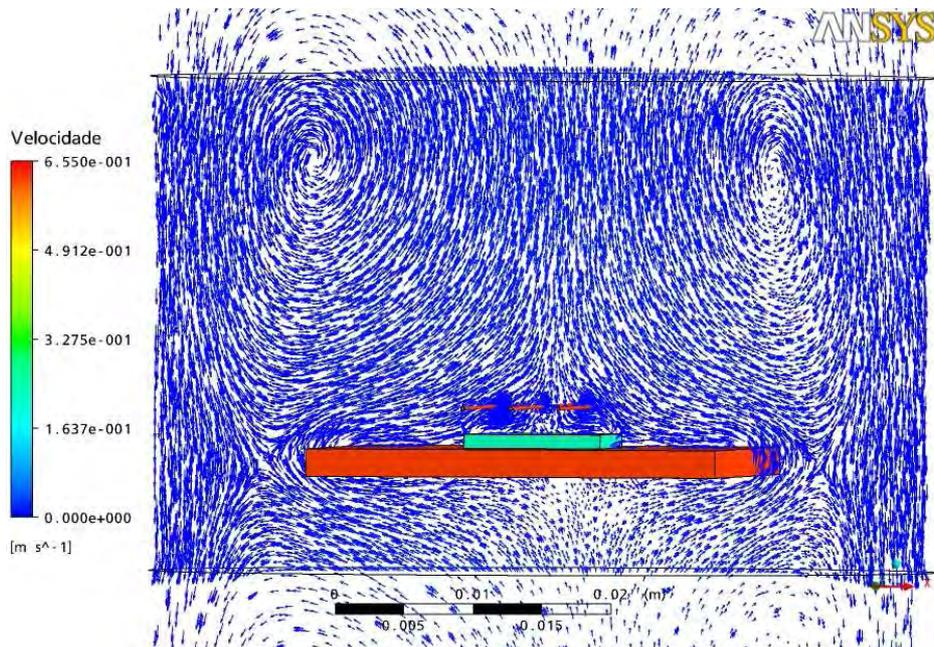


Figura 21 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

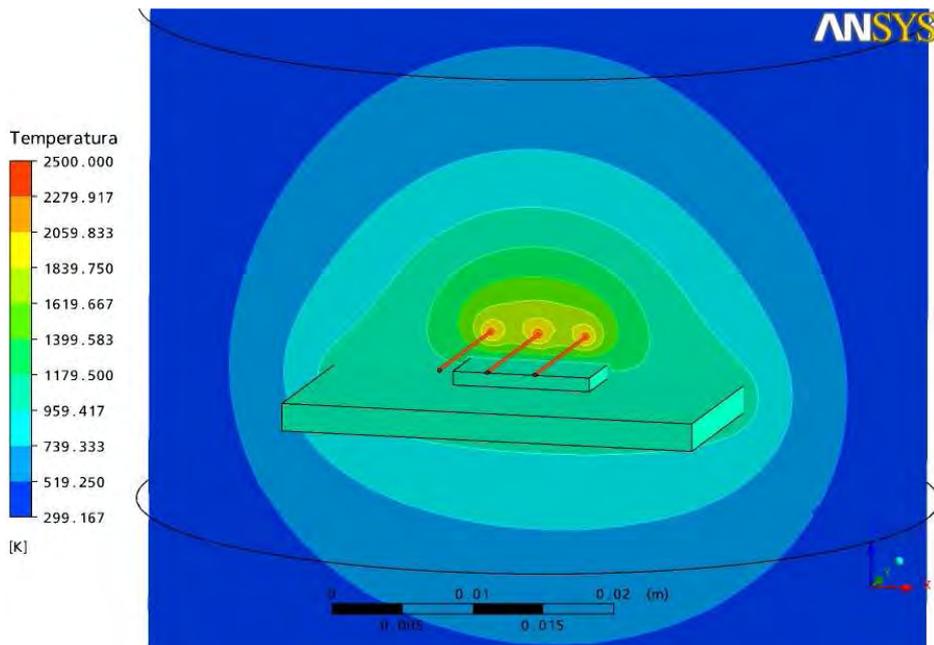


Figura 22 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

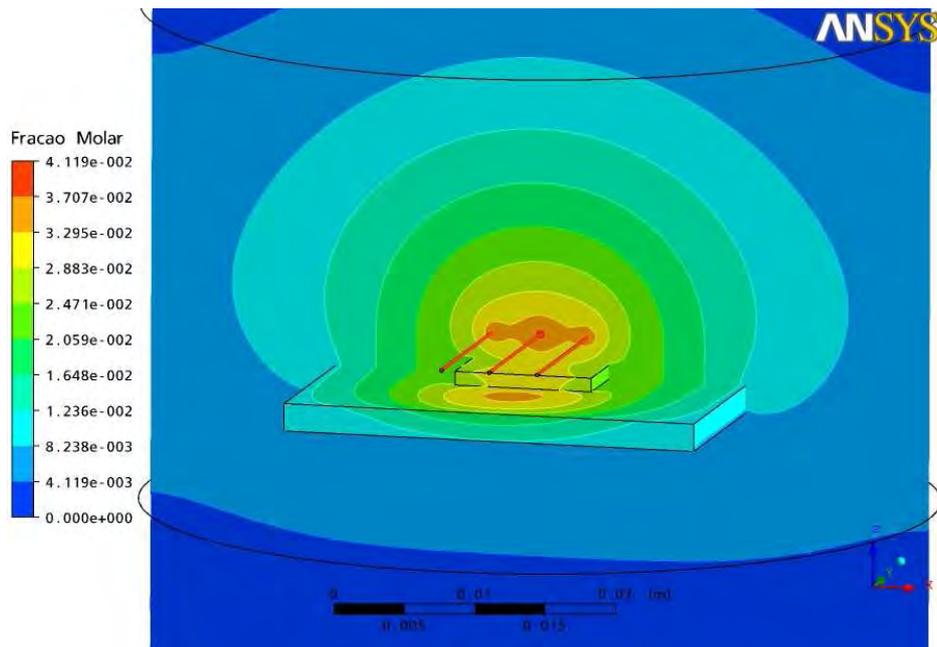


Figura 23 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

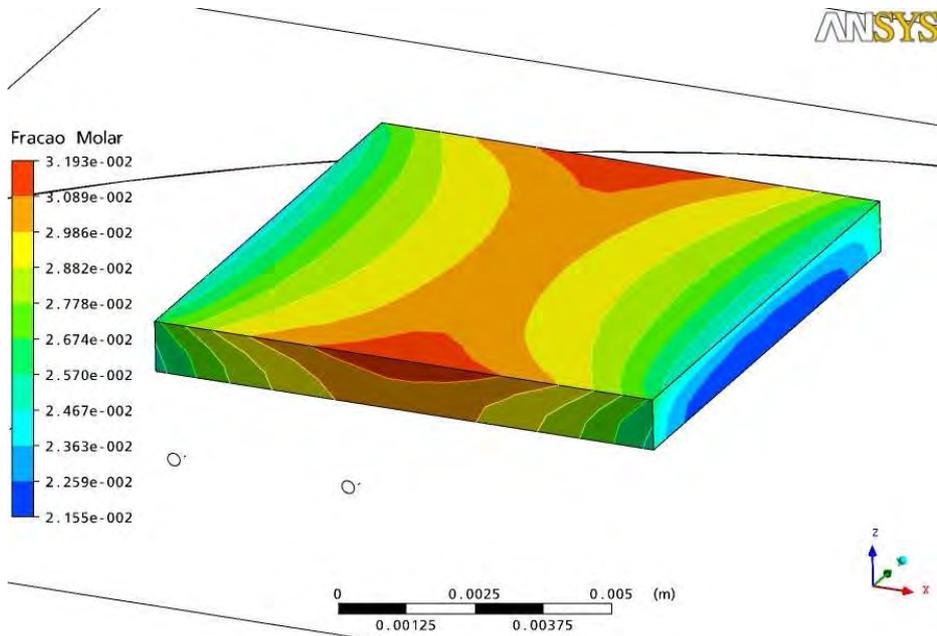


Figura 24 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

### A.5. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 20 Torr e distância de 5 mm entre filamentos

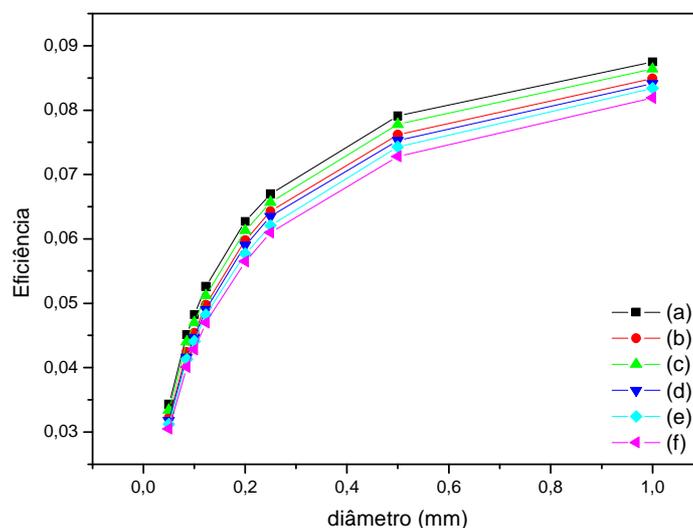


Figura 25 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

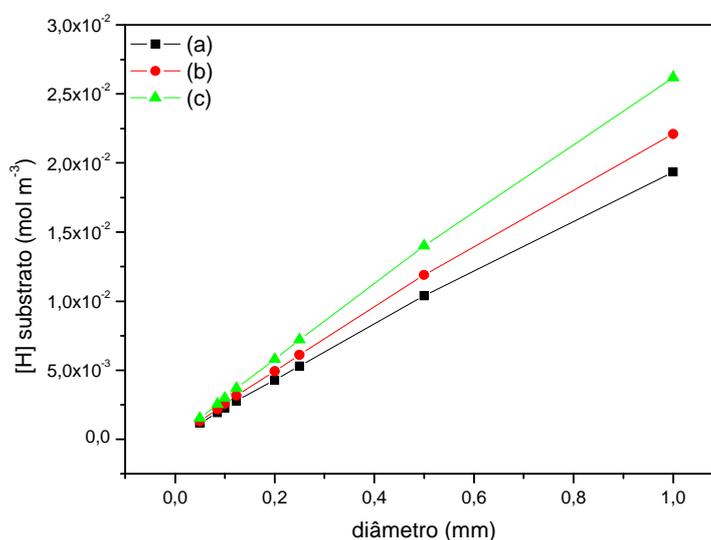


Figura 26 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

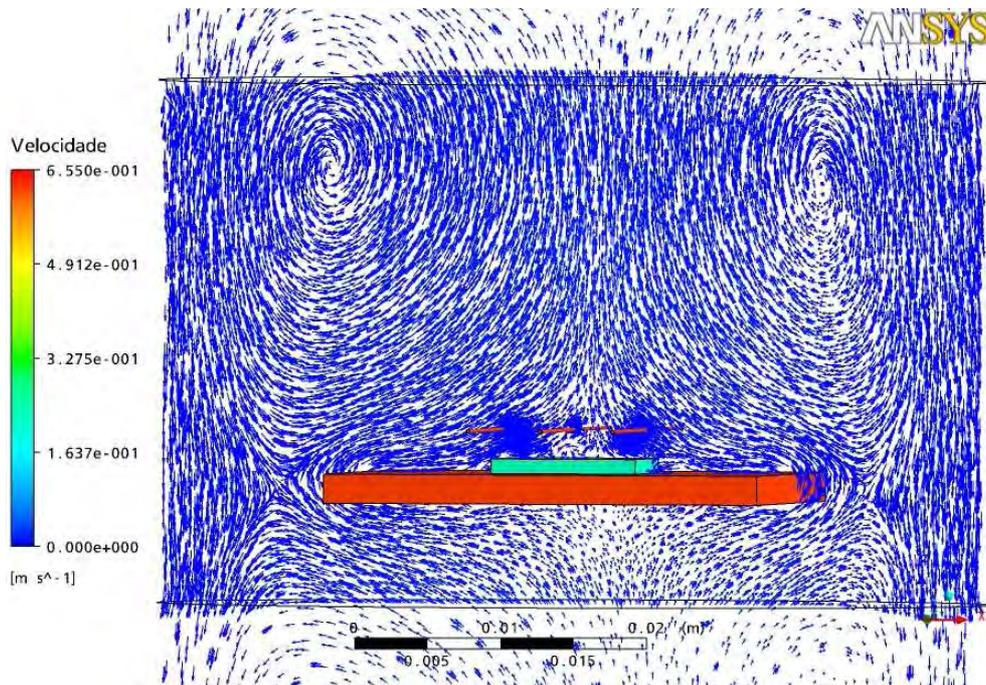


Figura 27 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

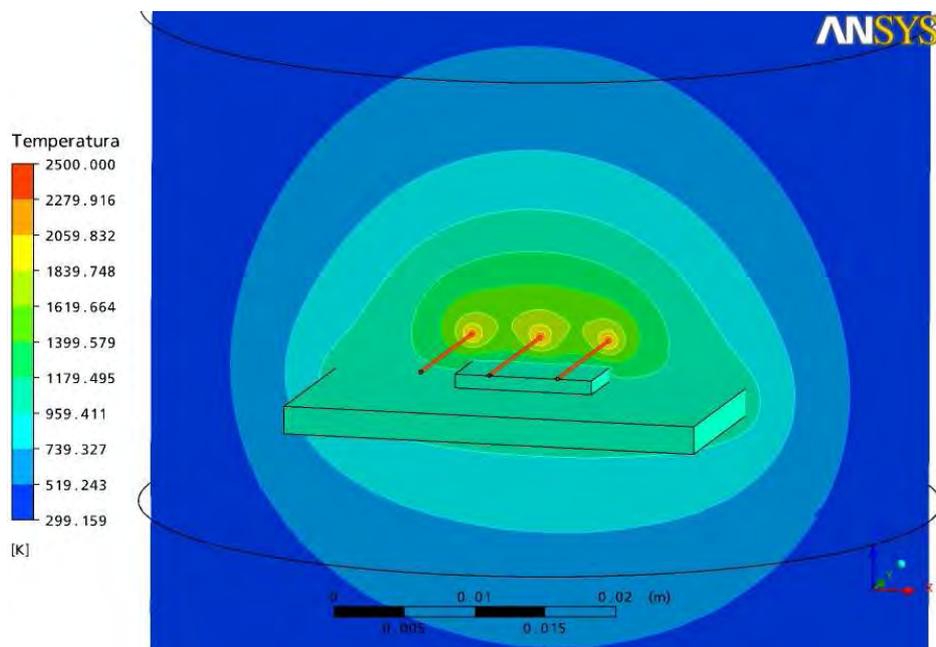


Figura 28 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

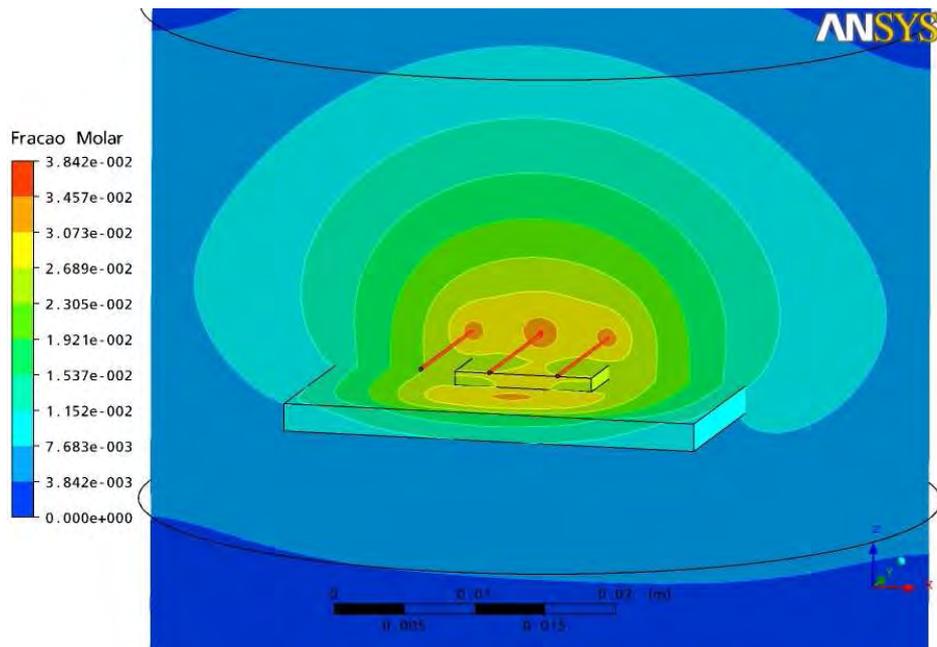


Figura 29 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

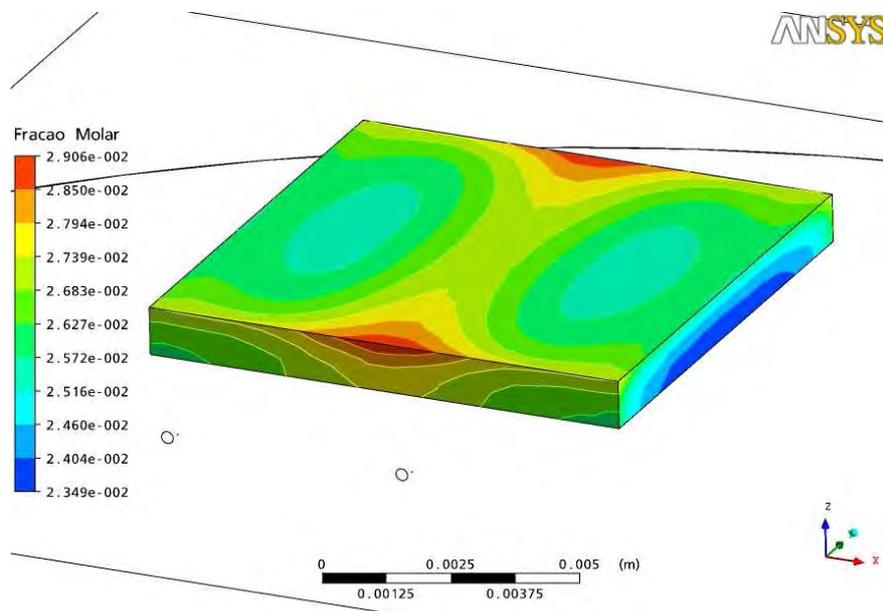


Figura 30 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.6. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 50 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos**

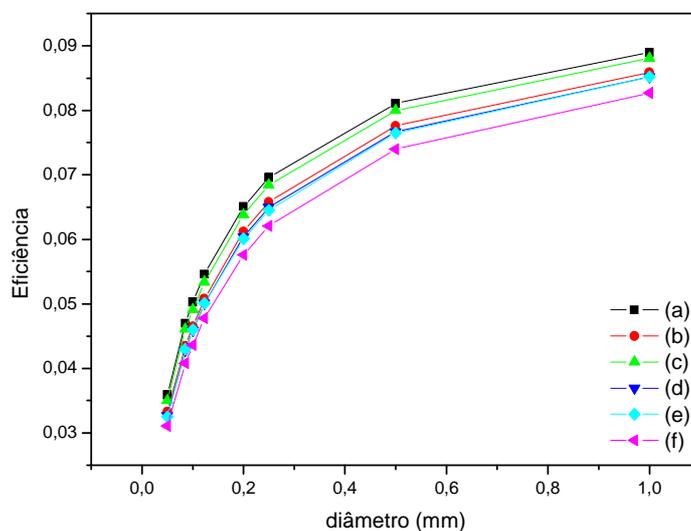


Figura 31 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

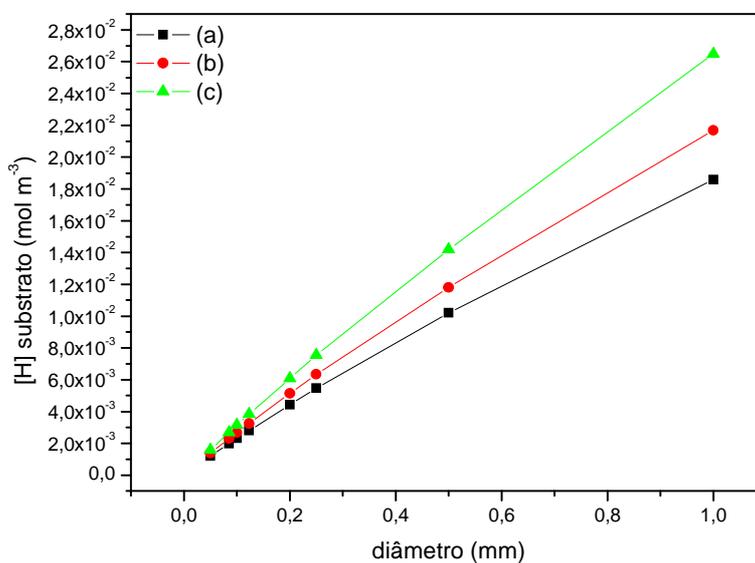


Figura 32 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

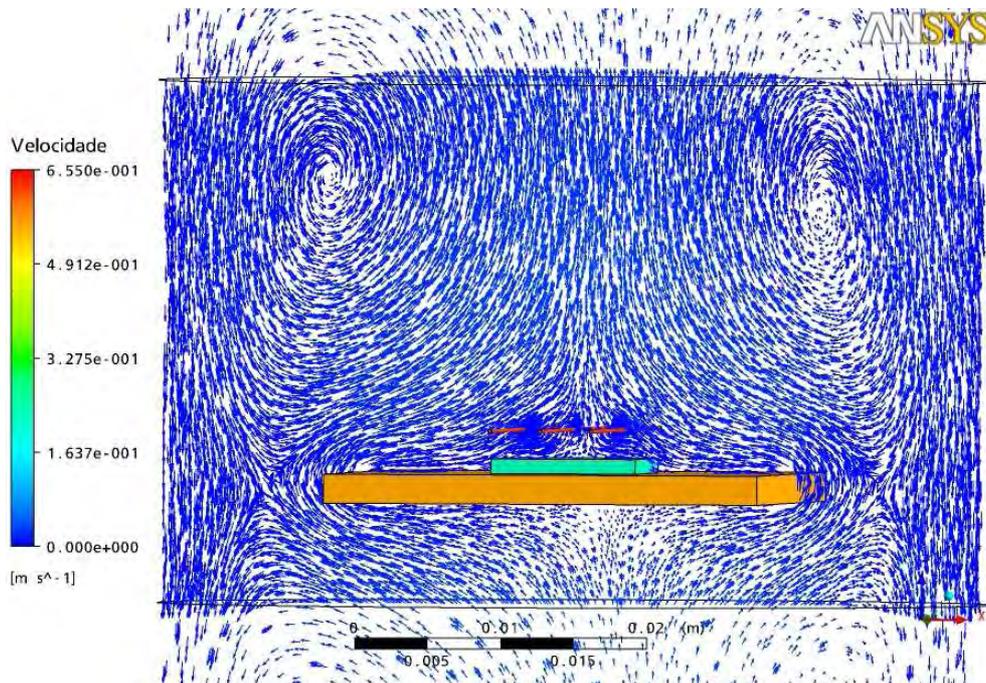


Figura 33 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

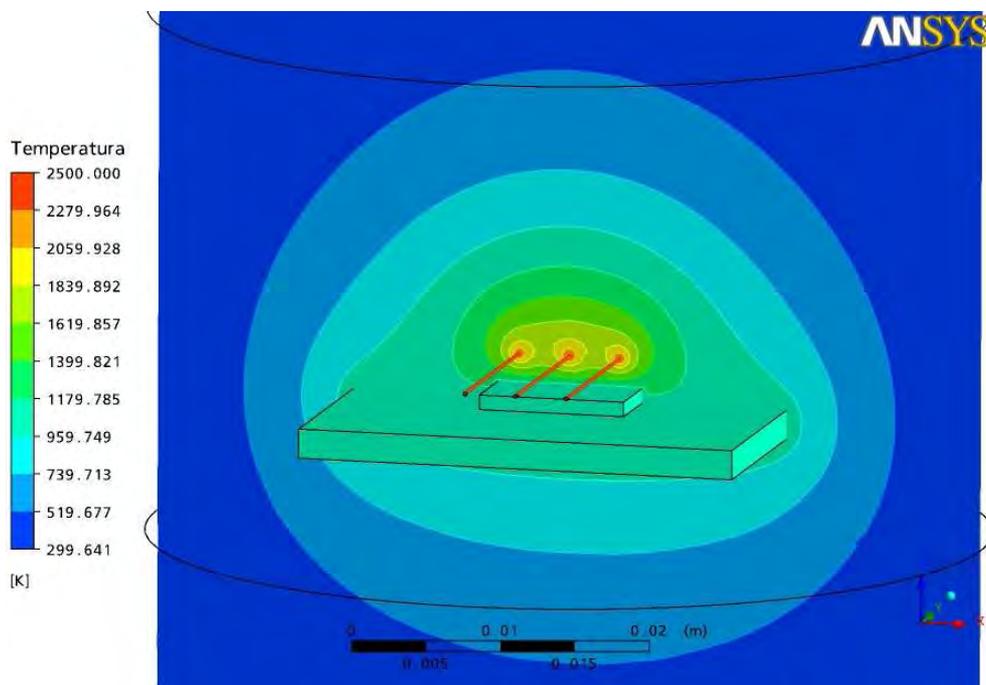


Figura 34 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

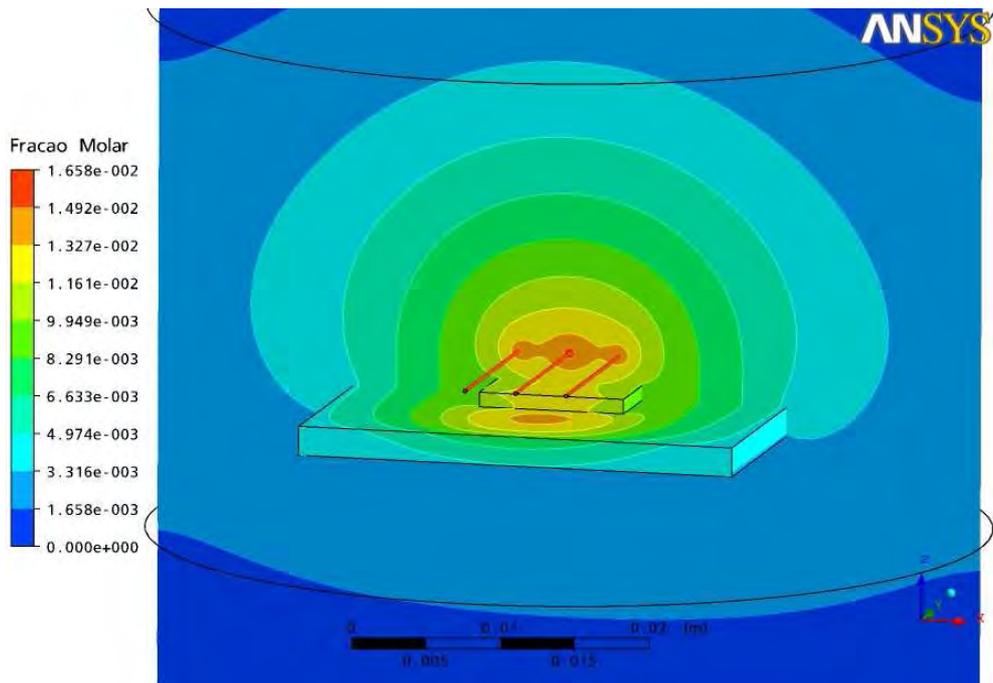


Figura 35 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

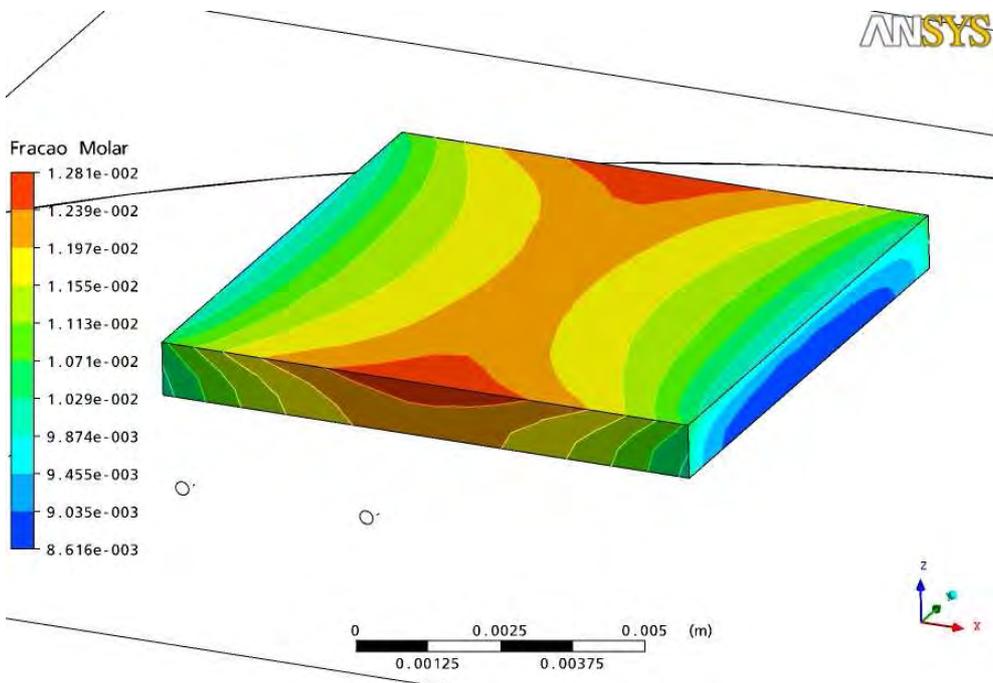


Figura 36 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm..

### A.7. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 50 Torr e distância de 5 mm entre filamentos

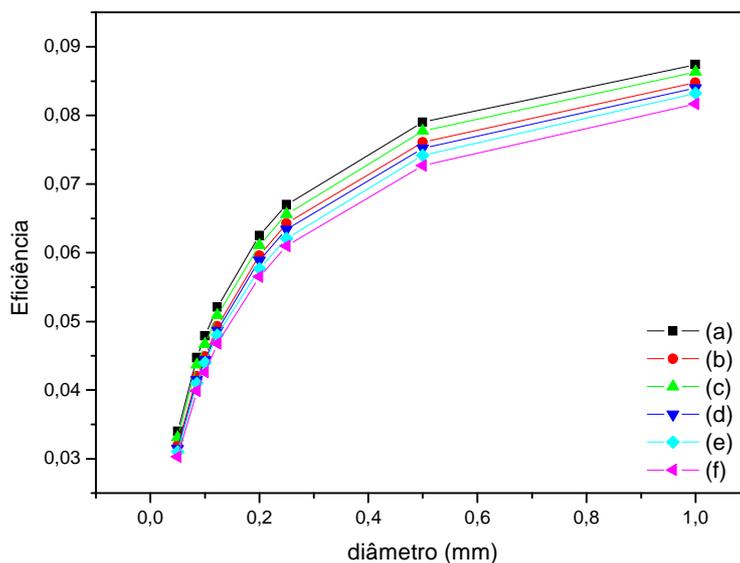


Figura 37 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

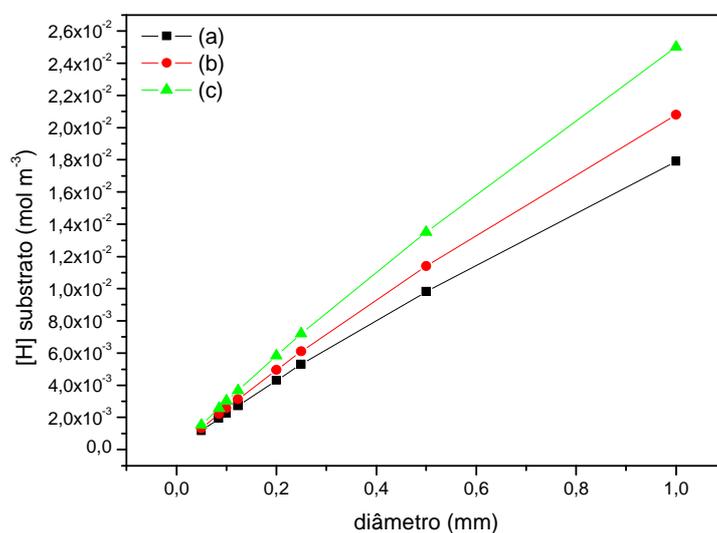


Figura 38 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

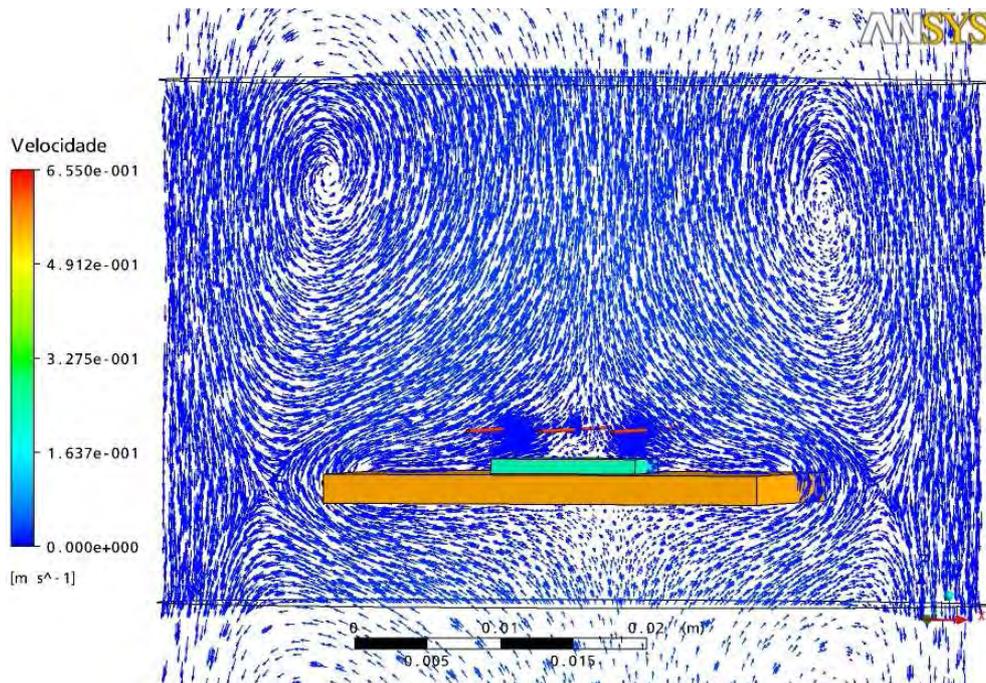


Figura 39 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

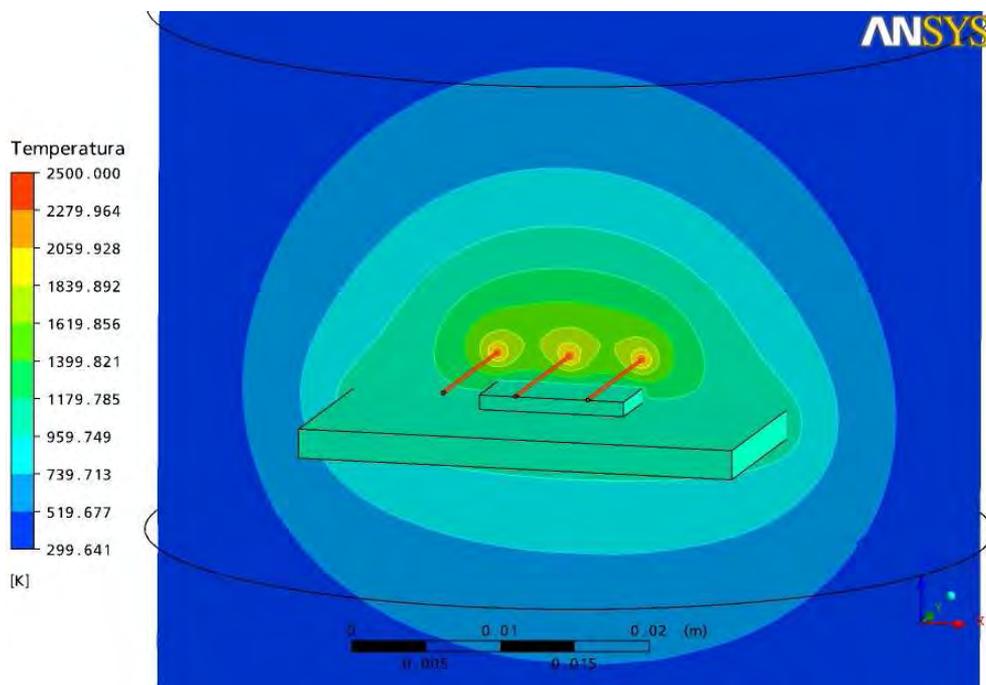


Figura 40 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

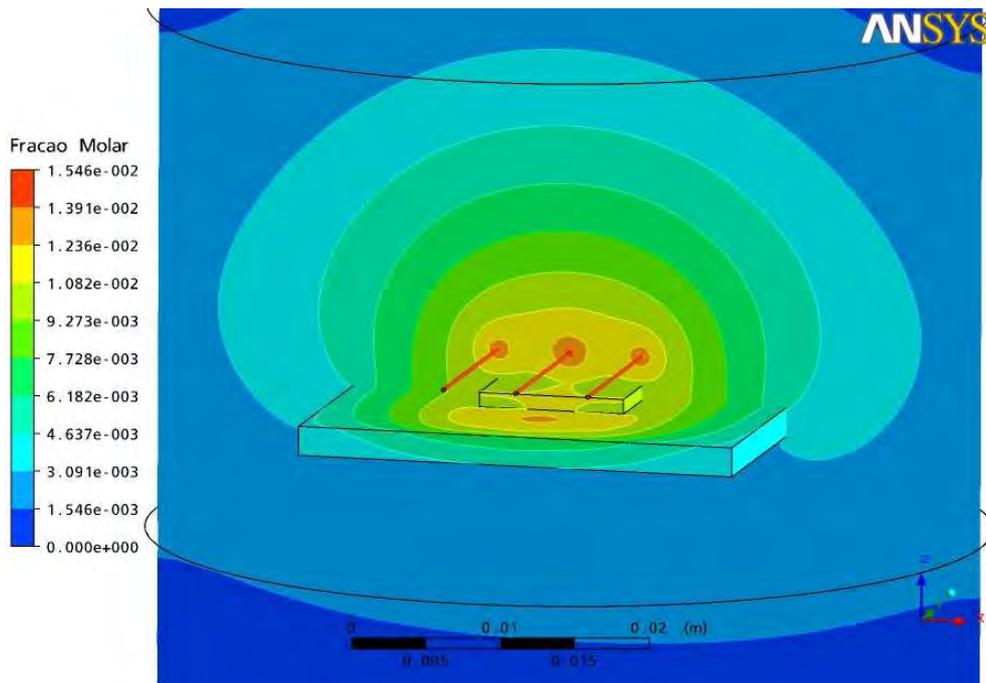


Figura 41 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

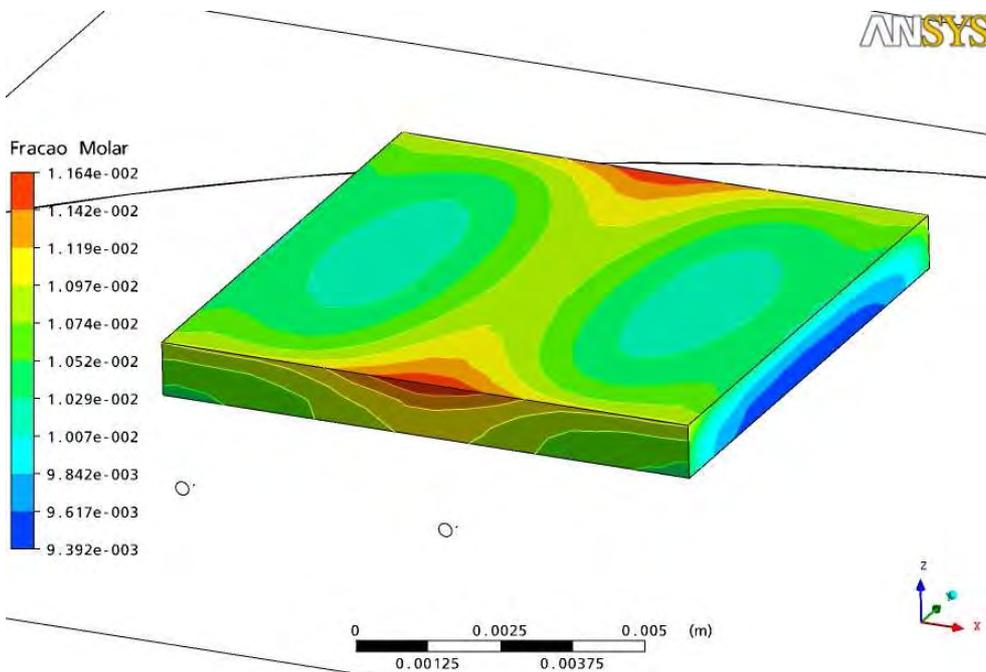


Figura 42 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento = 250  $\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm..

**A.8. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 100 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos**

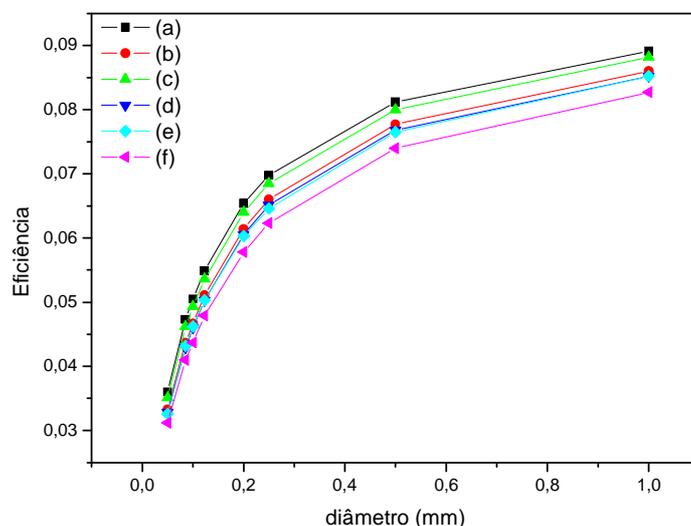


Figura 43 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

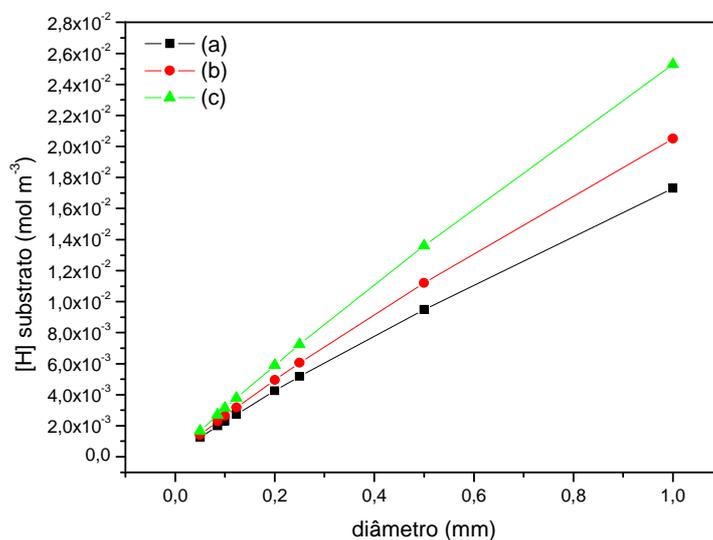


Figura 44 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

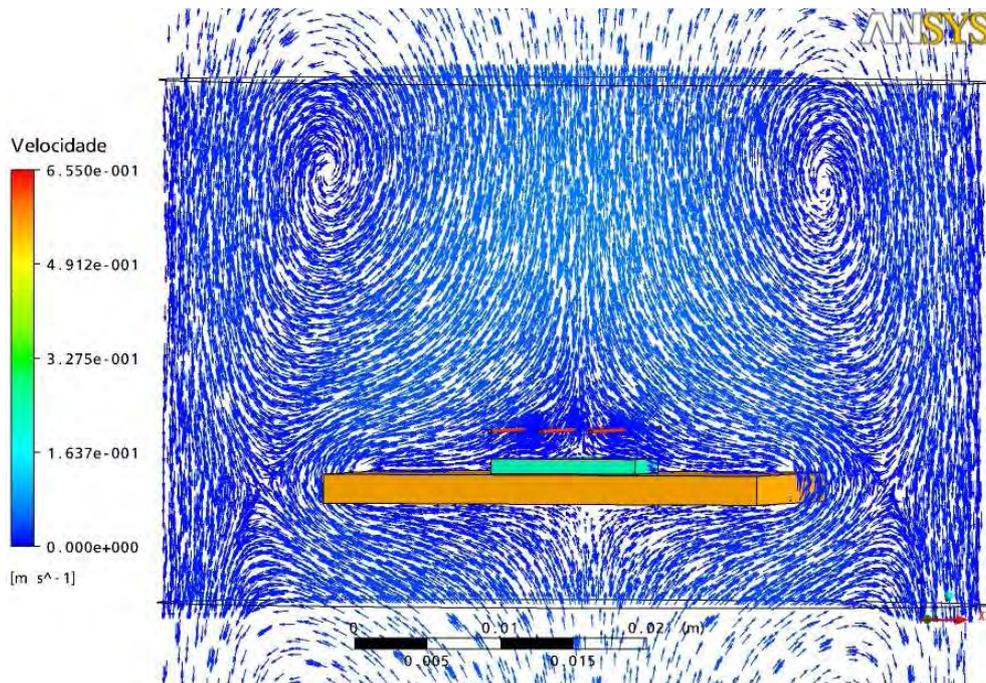


Figura 45 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

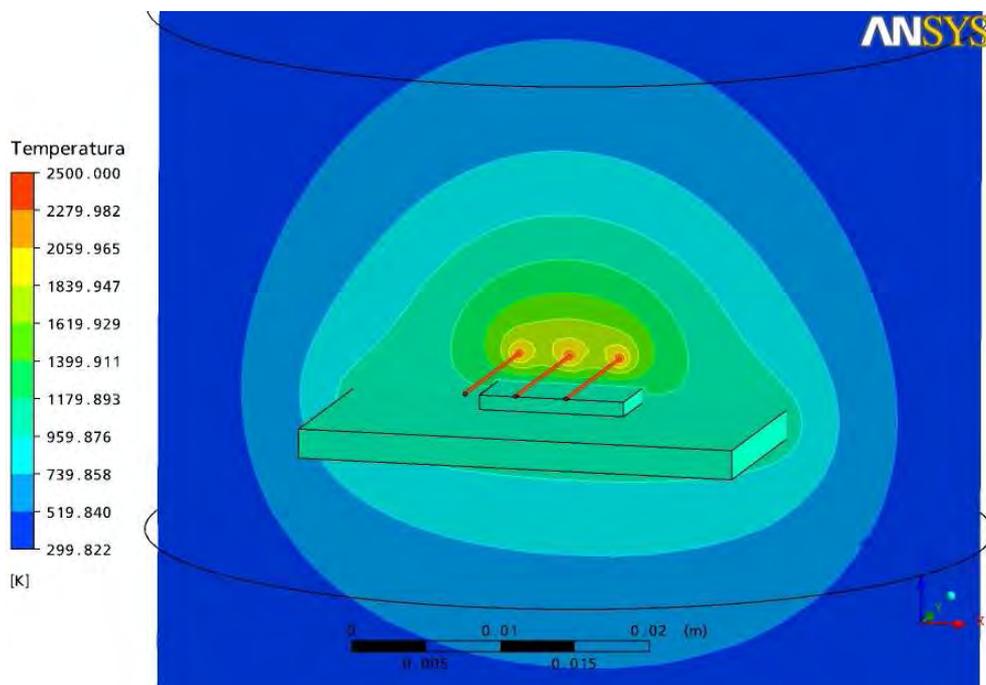


Figura 46 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

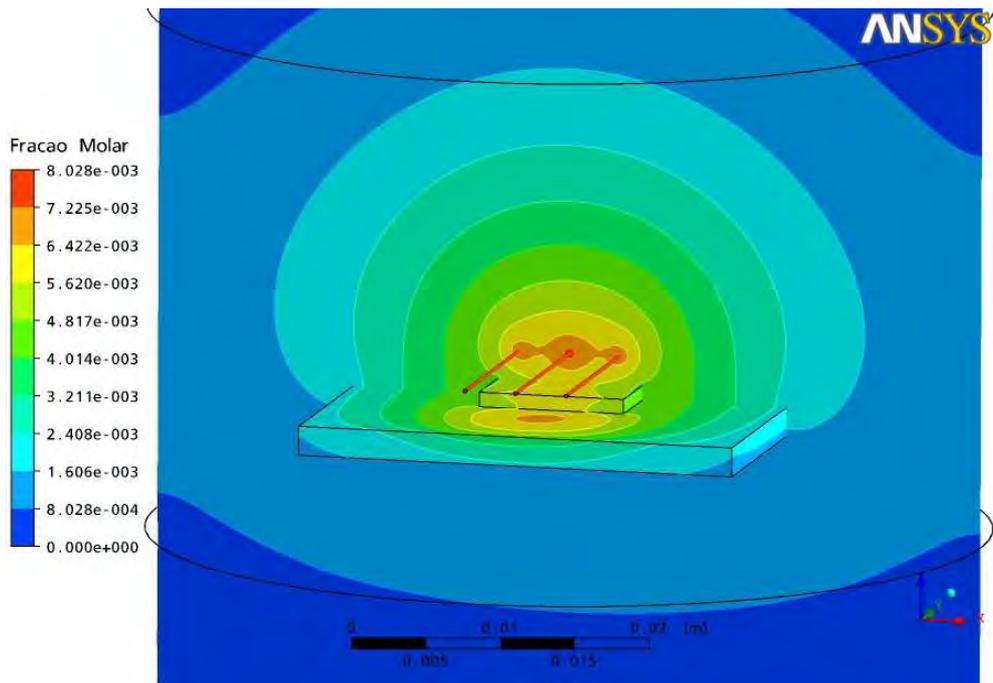


Figura 47 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

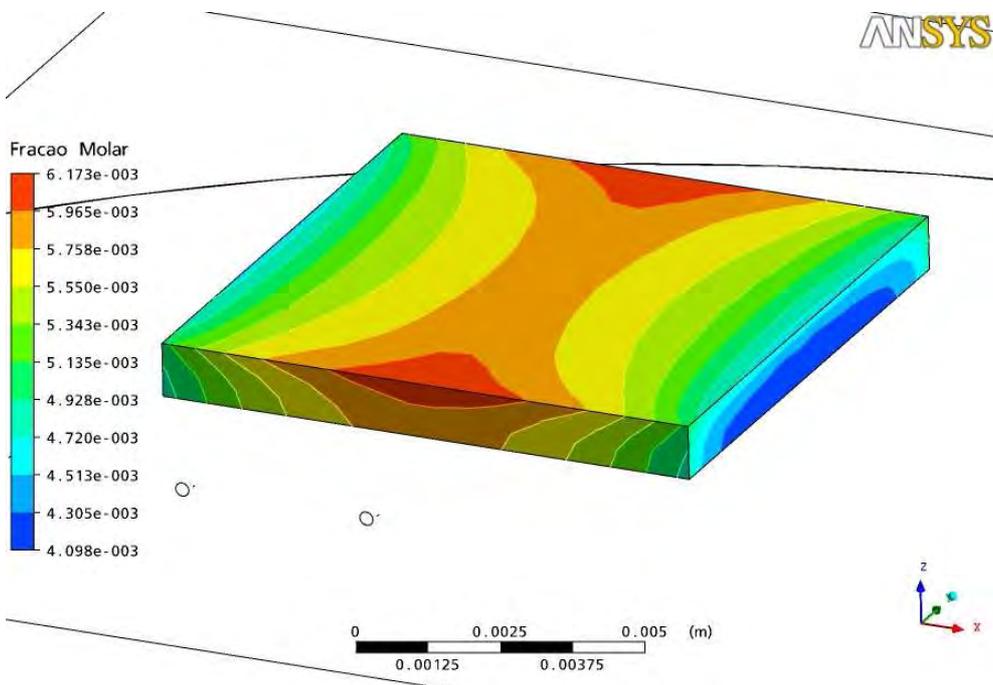


Figura 48 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

### A.9. Modelagem 3D: 3 filamentos, pressão de 100 Torr e distância de 5 mm entre filamentos

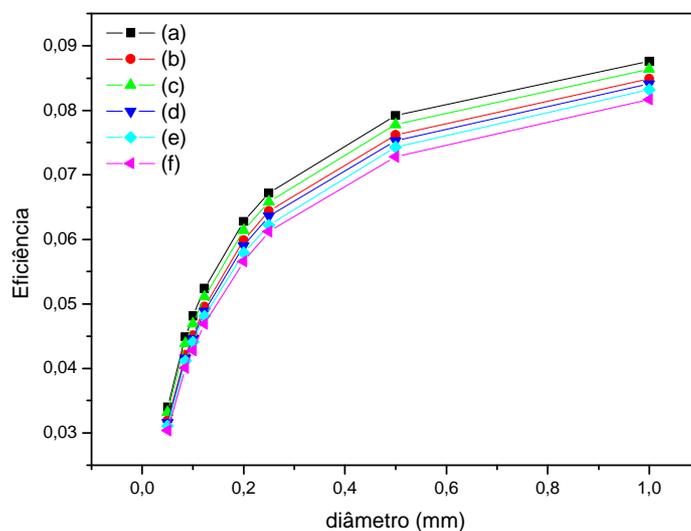


Figura 49 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral, (c) 5 mm filamento central, (d) 5 mm filamento lateral, (e) 3 mm filamento central e (f) 3 mm filamento lateral.

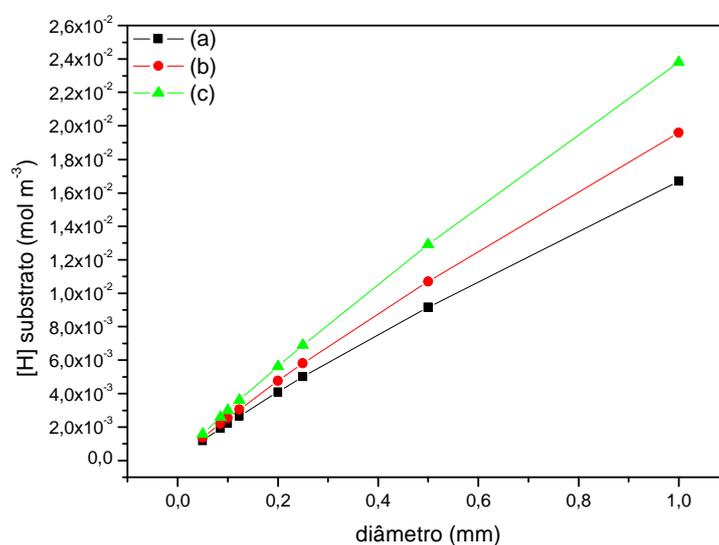


Figura 50 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

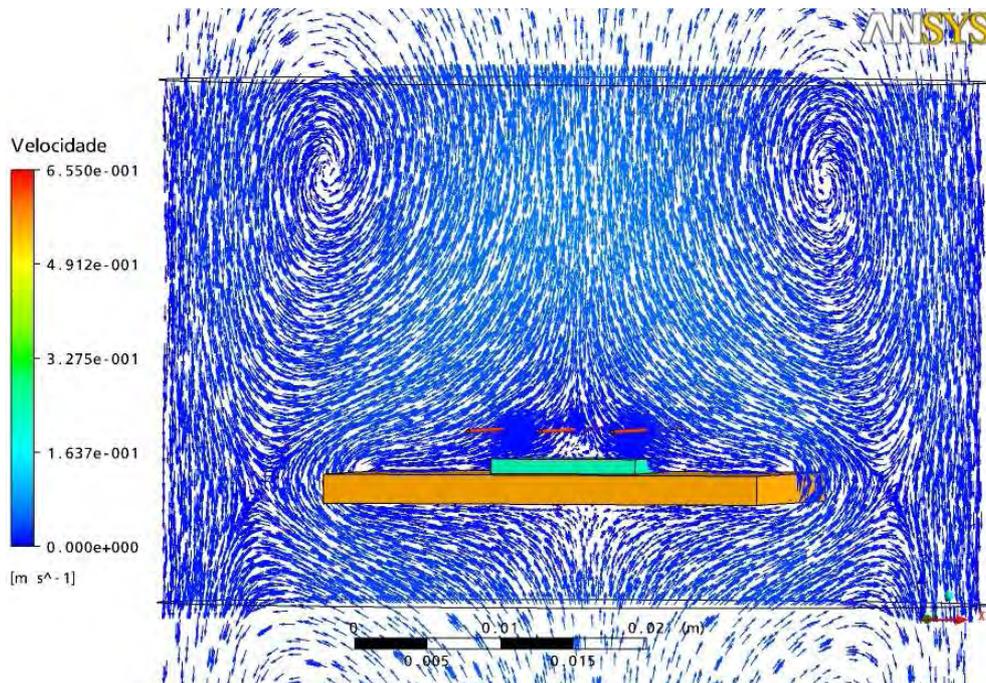


Figura 51 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

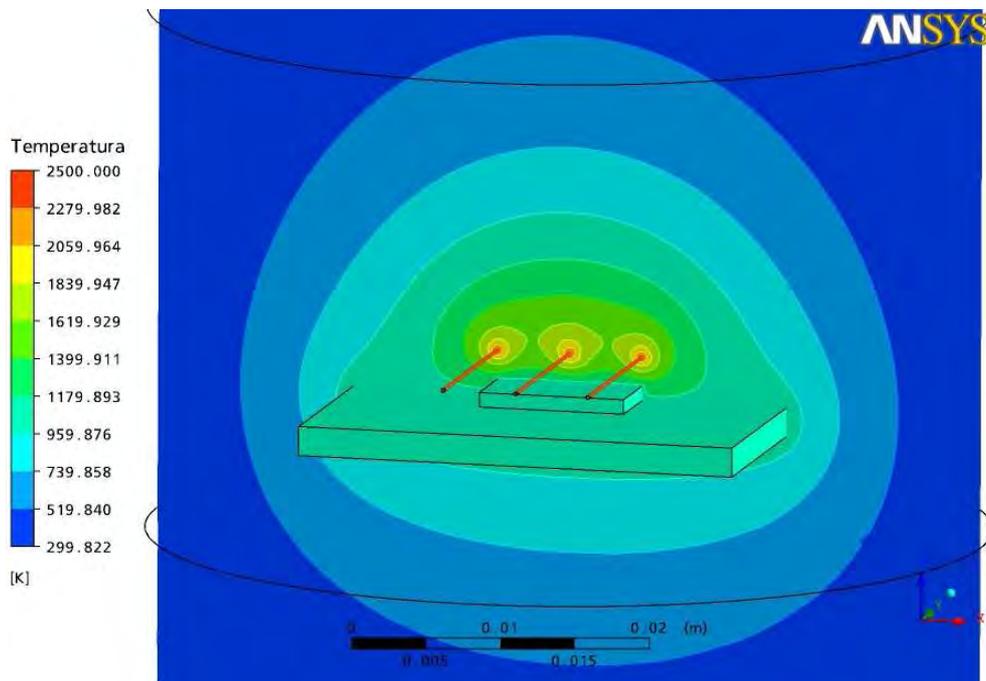


Figura 52 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

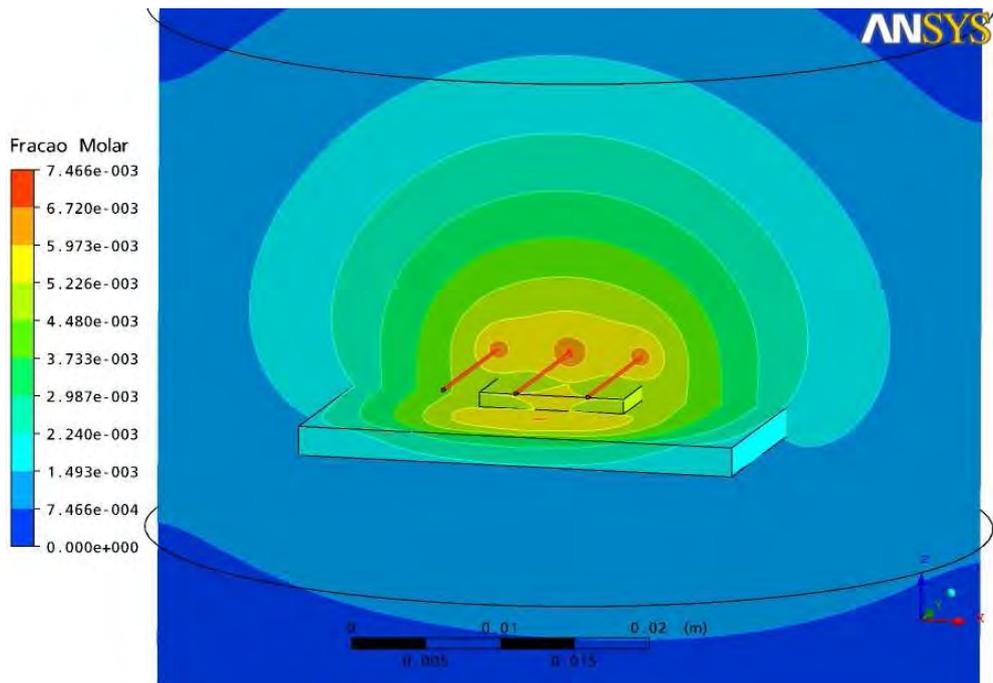


Figura 53 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

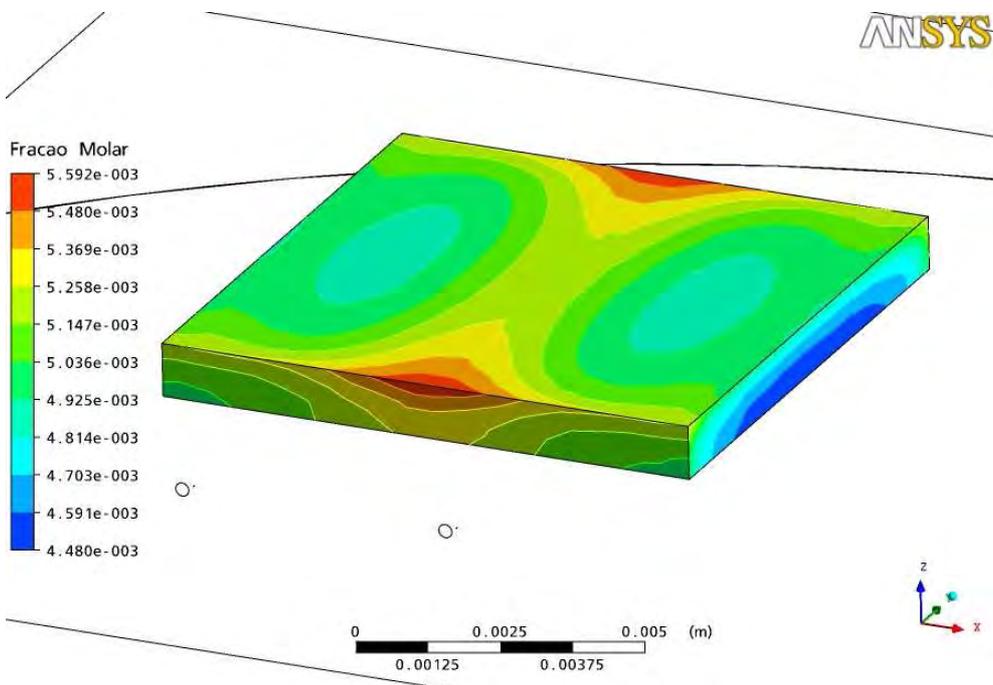


Figura 54 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.10. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 20 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos**

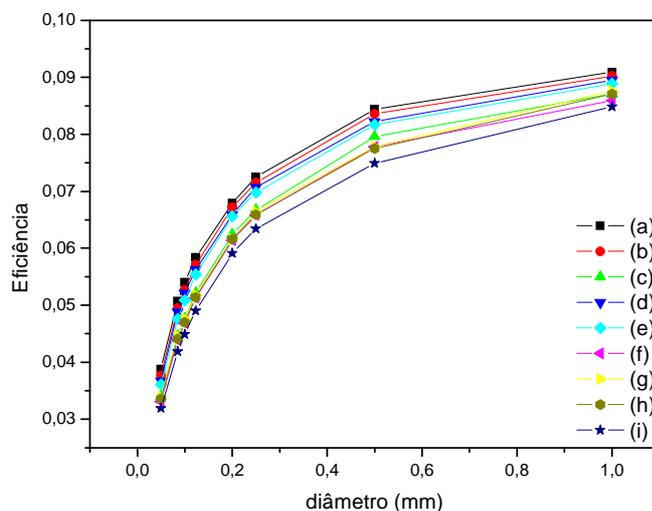


Figura 55 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

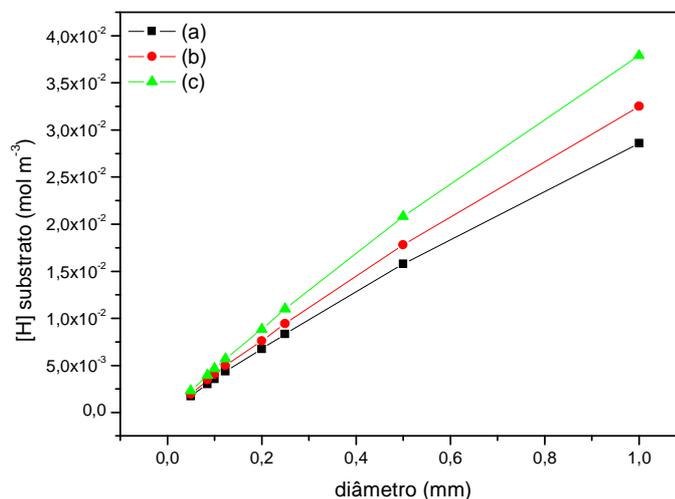


Figura 56 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

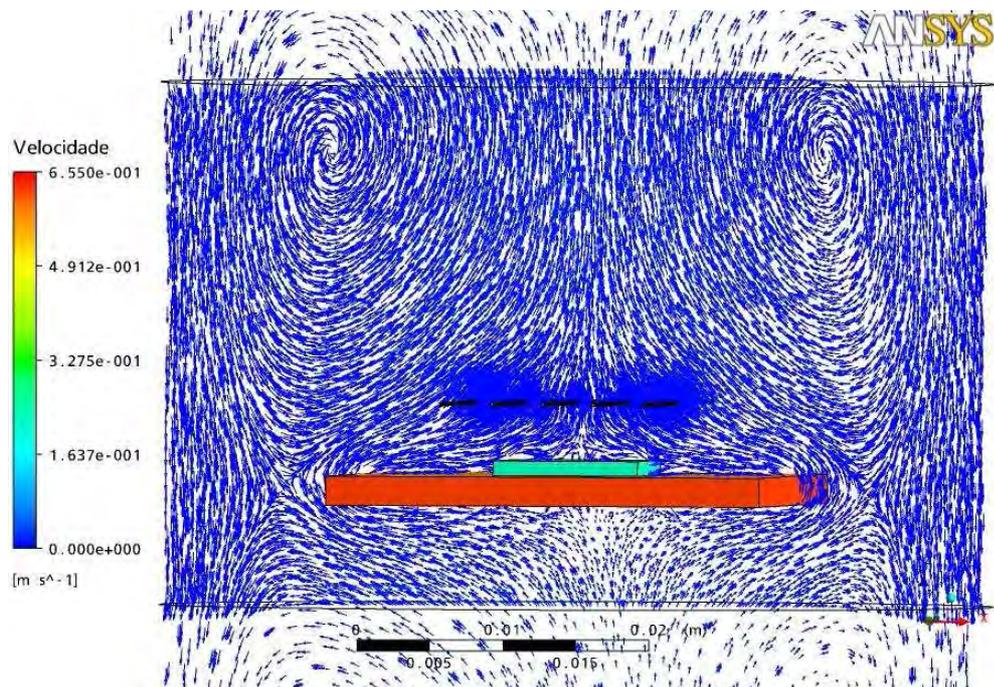


Figura 57 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

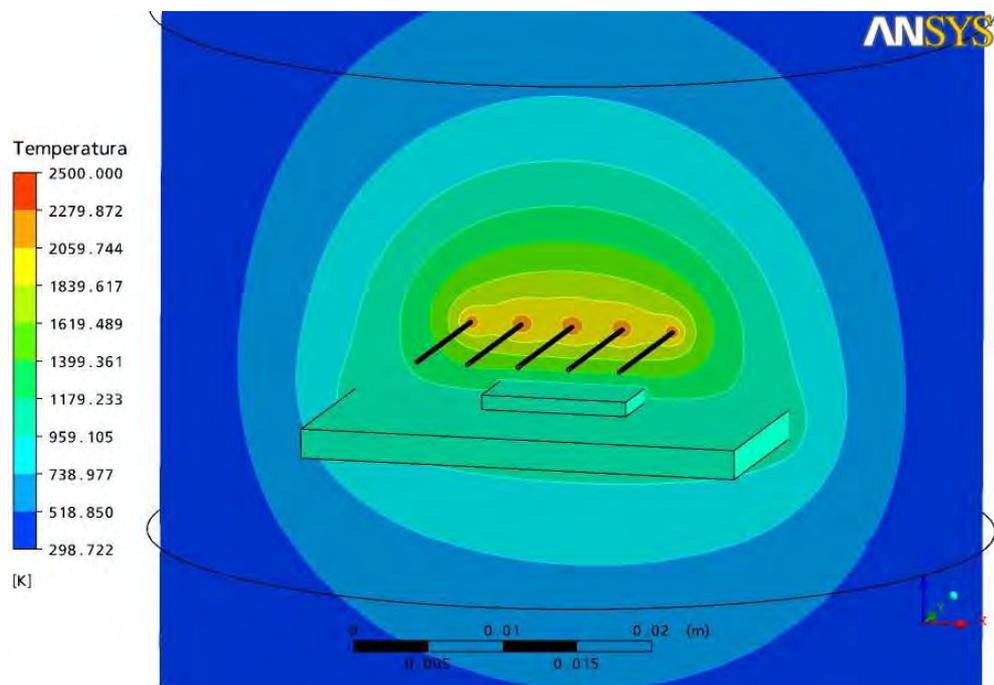


Figura 58 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

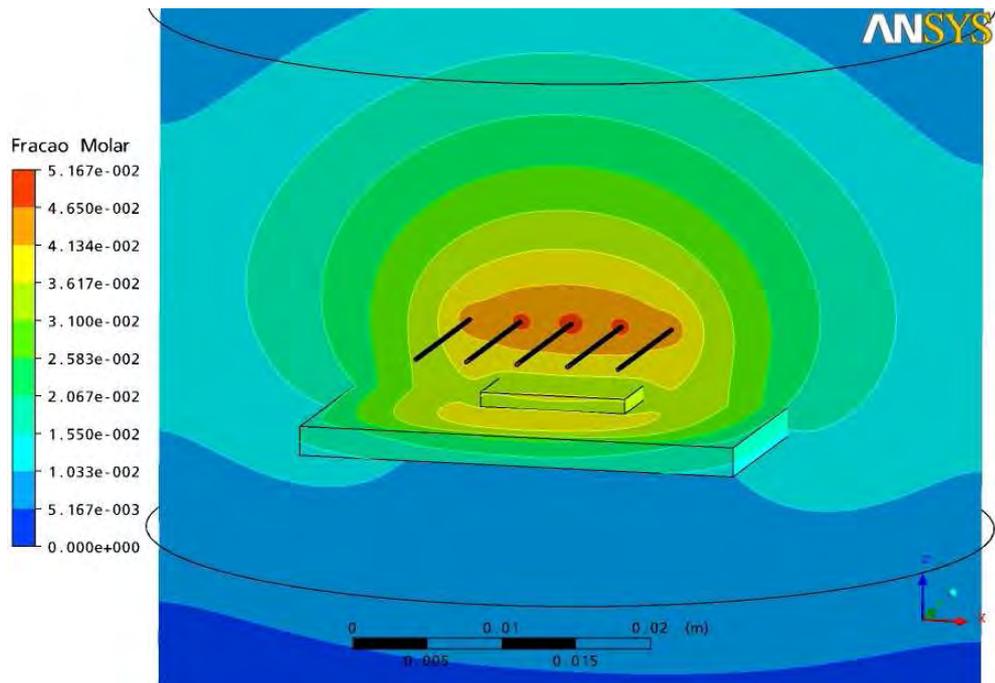


Figura 59 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

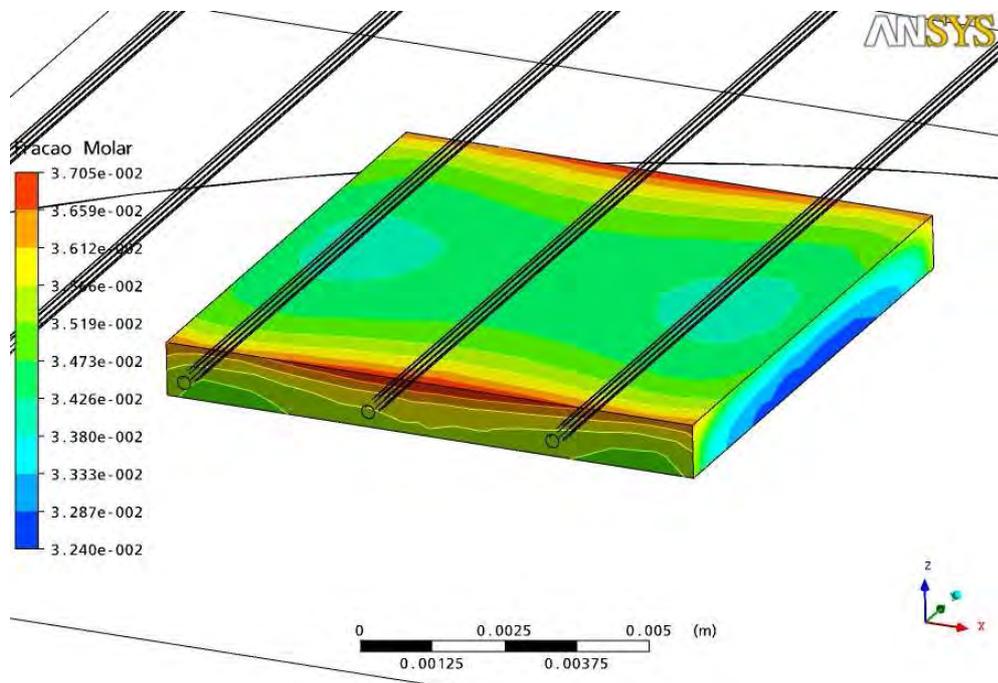


Figura 60 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.11. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 20 Torr e distância de 5 mm entre filamentos**

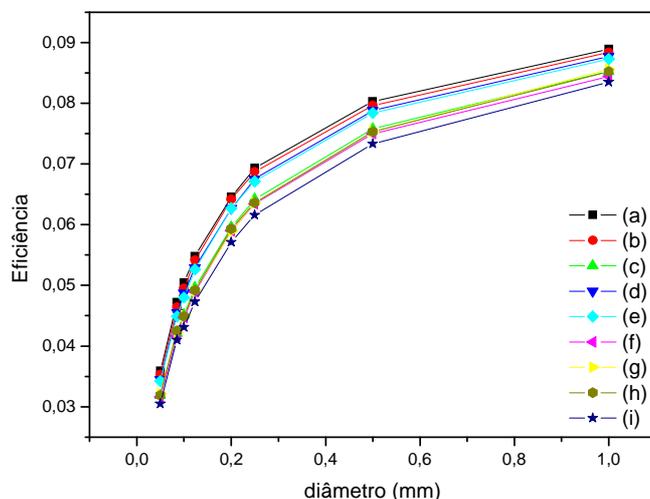


Figura 61 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

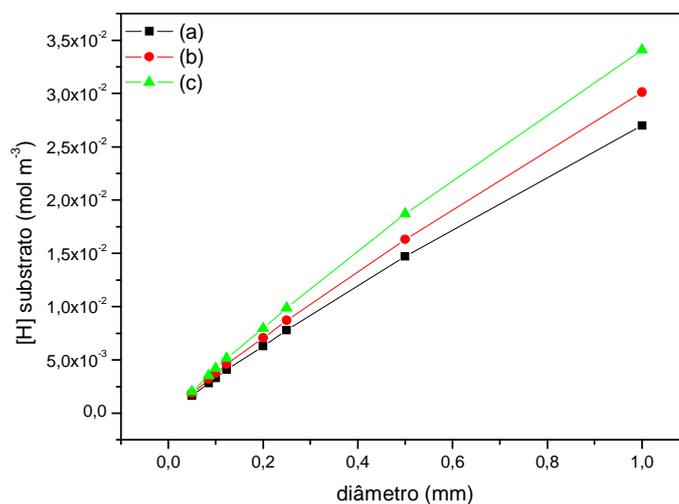


Figura 62 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

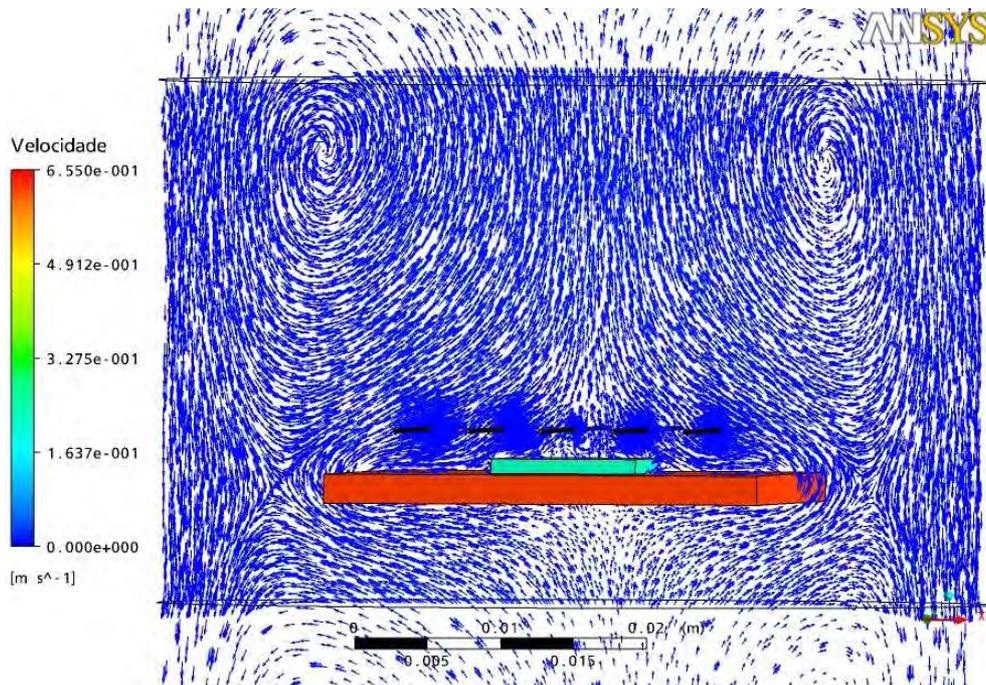


Figura 63 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

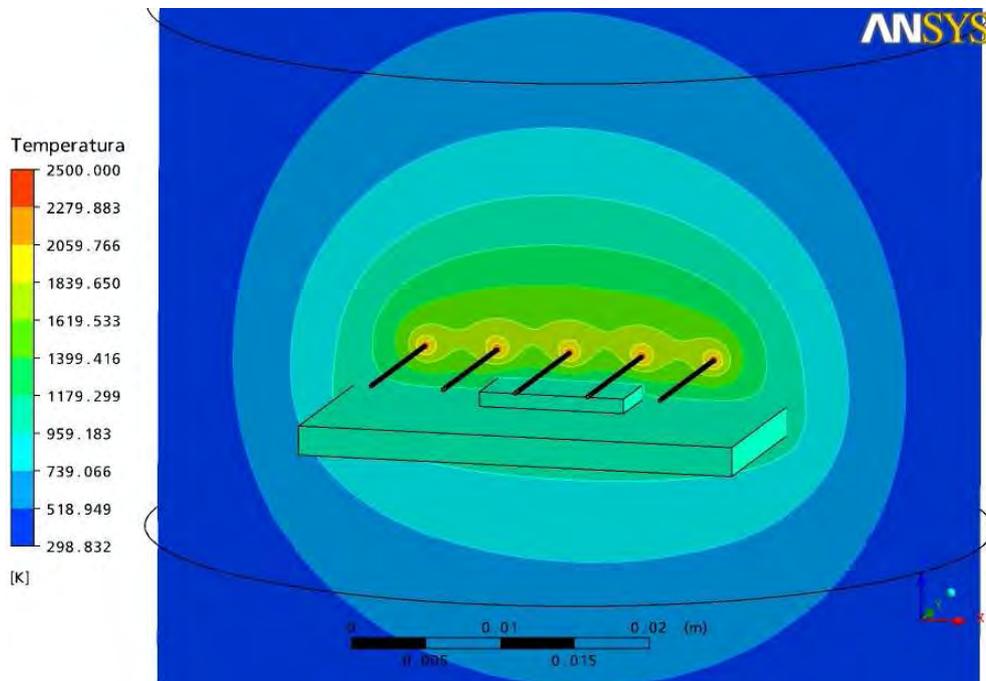


Figura 64 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

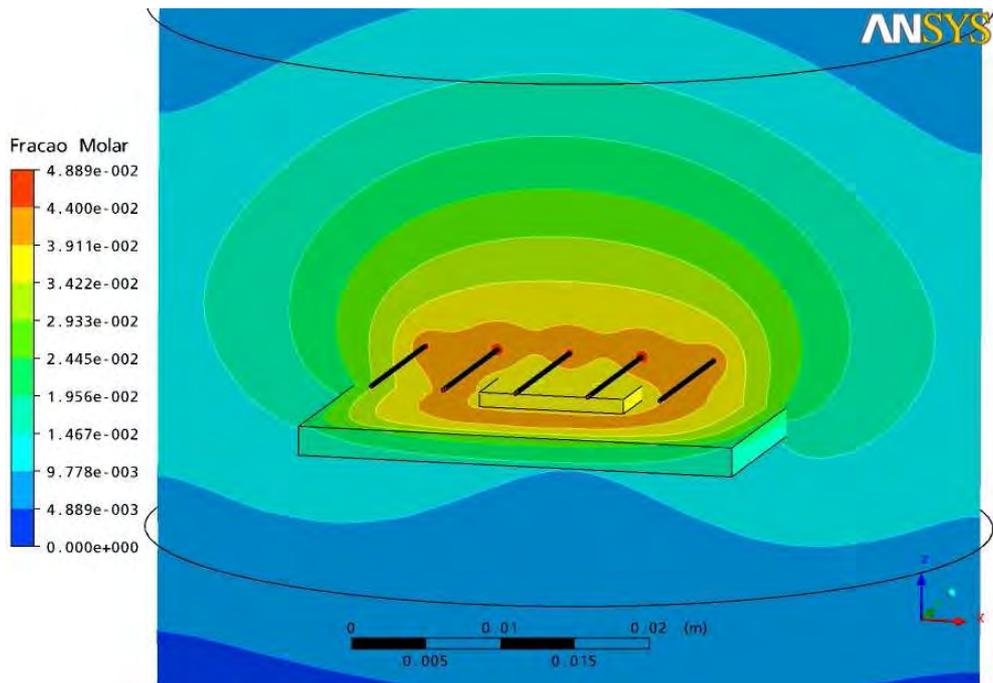


Figura 65 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

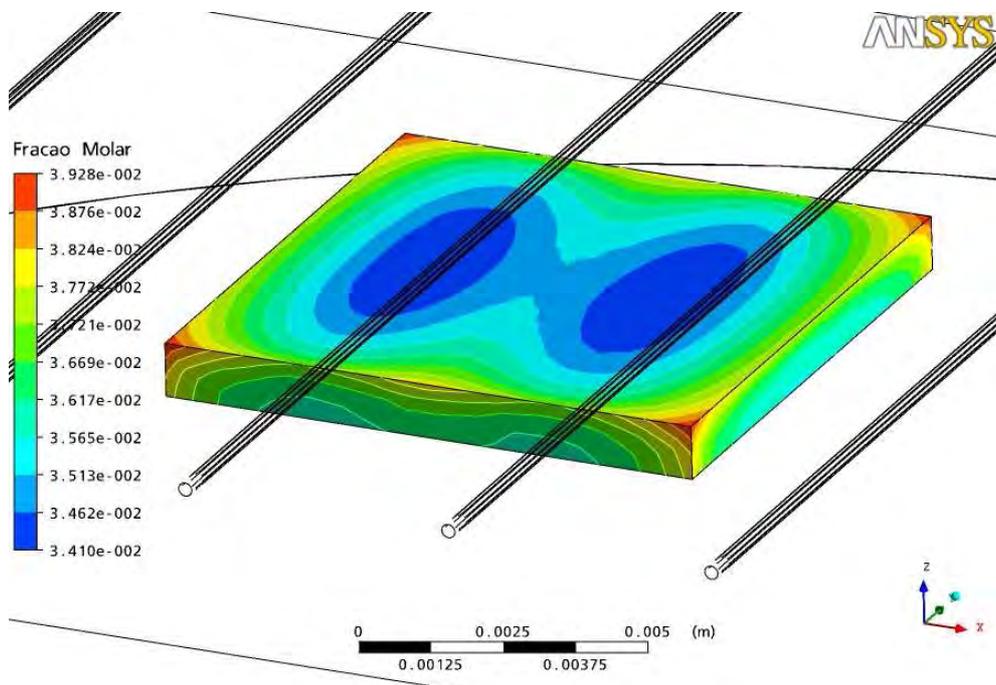


Figura 66 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.12. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 50 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos**

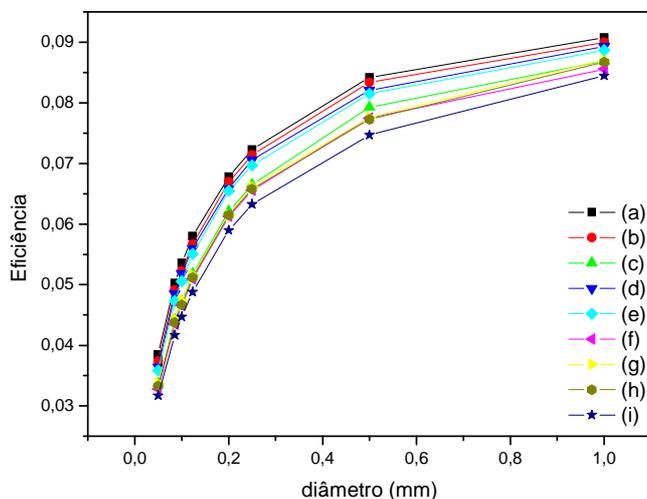


Figura 67 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

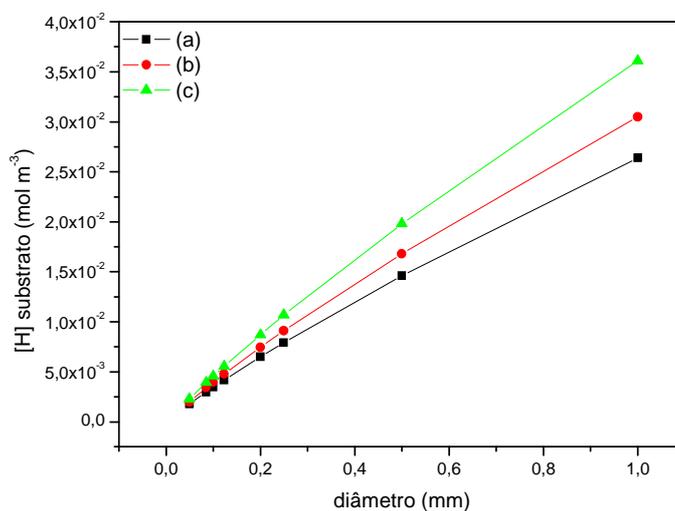


Figura 68 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

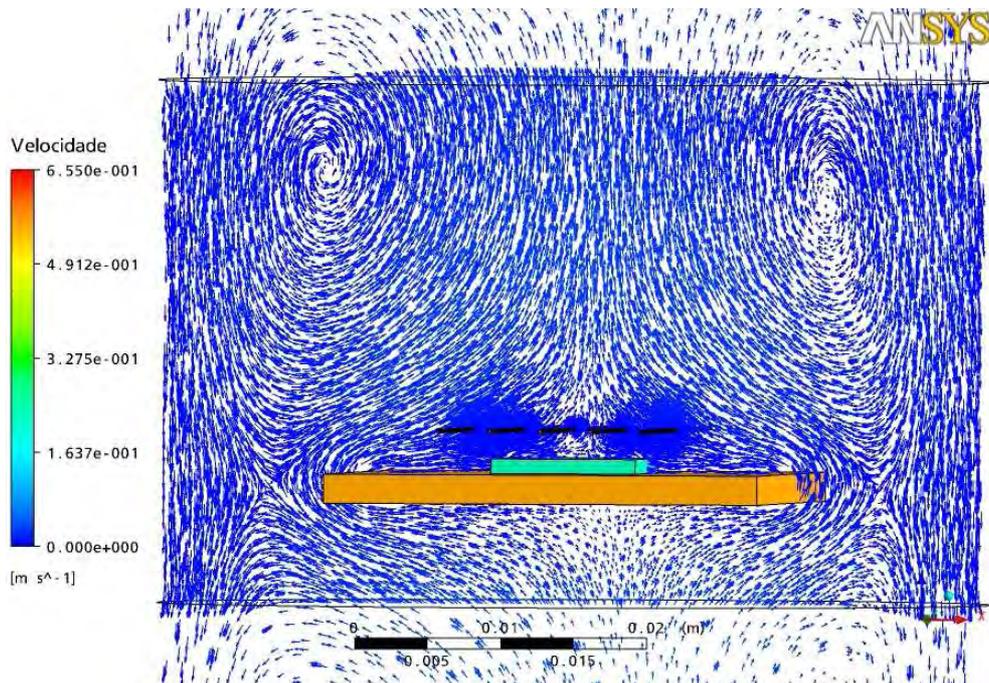


Figura 69 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de  $3$  mm.

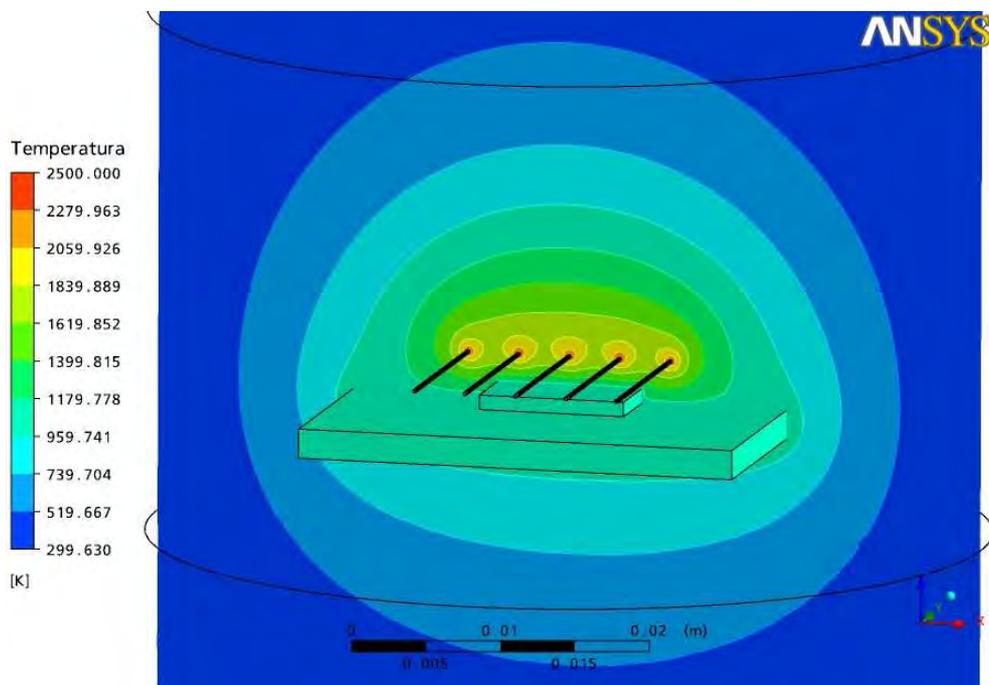


Figura 70 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de  $3$  mm.

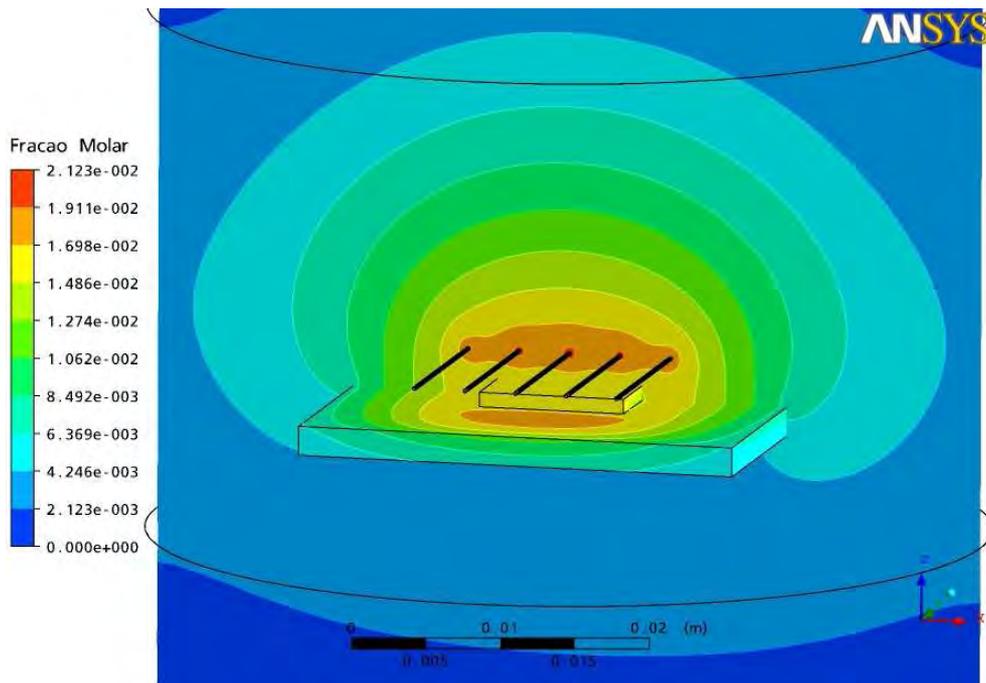


Figura 71 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

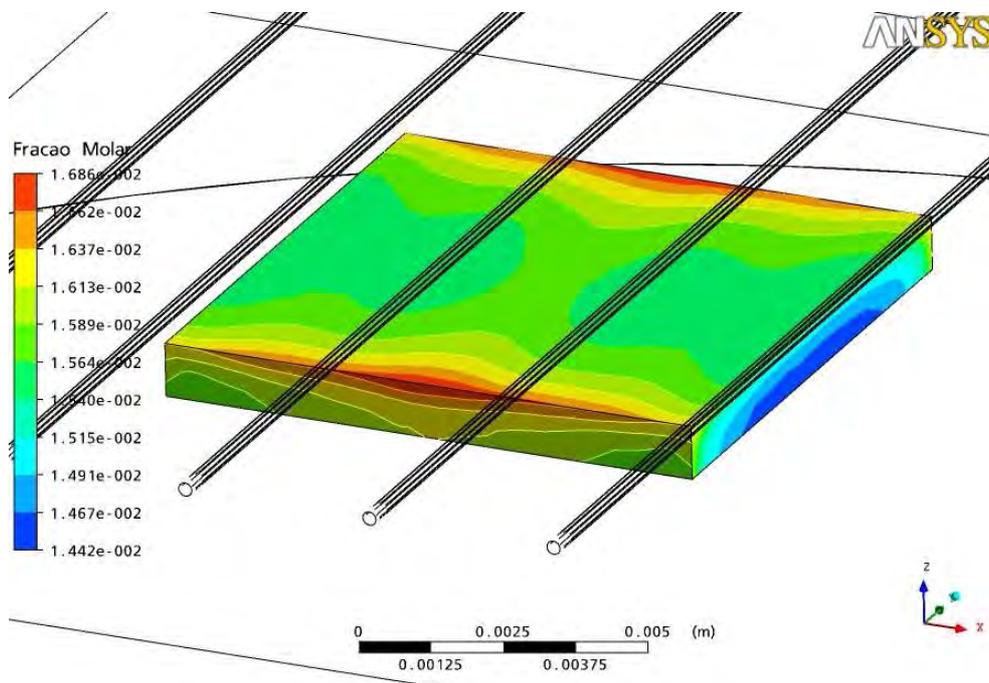


Figura 72 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.13. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 50 Torr e distância de 5 mm entre filamentos**

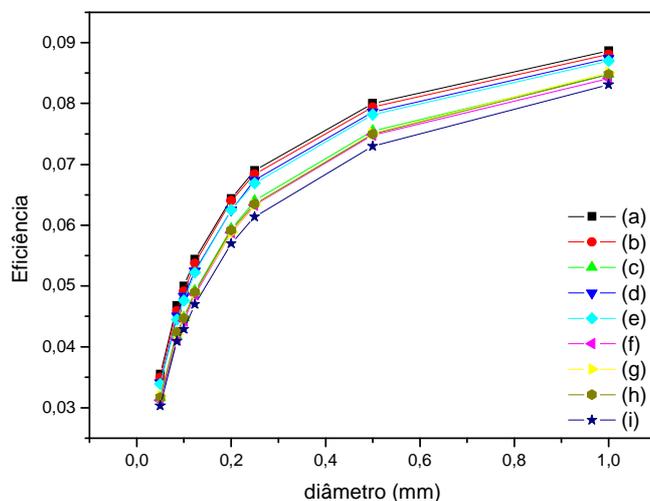


Figura 73 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

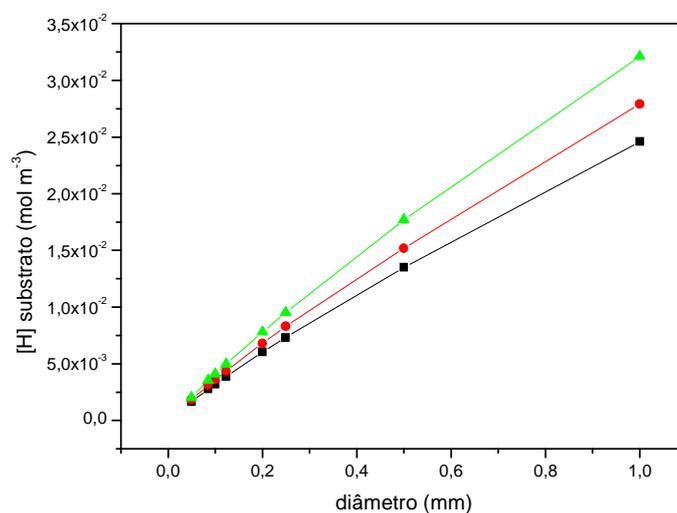


Figura 74 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

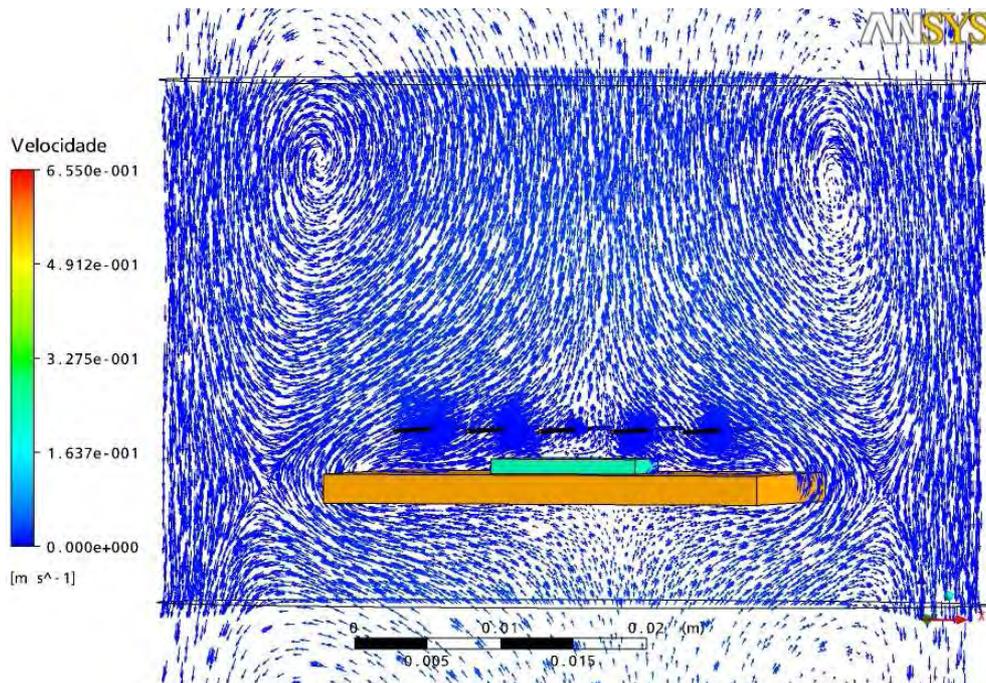


Figura 75 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

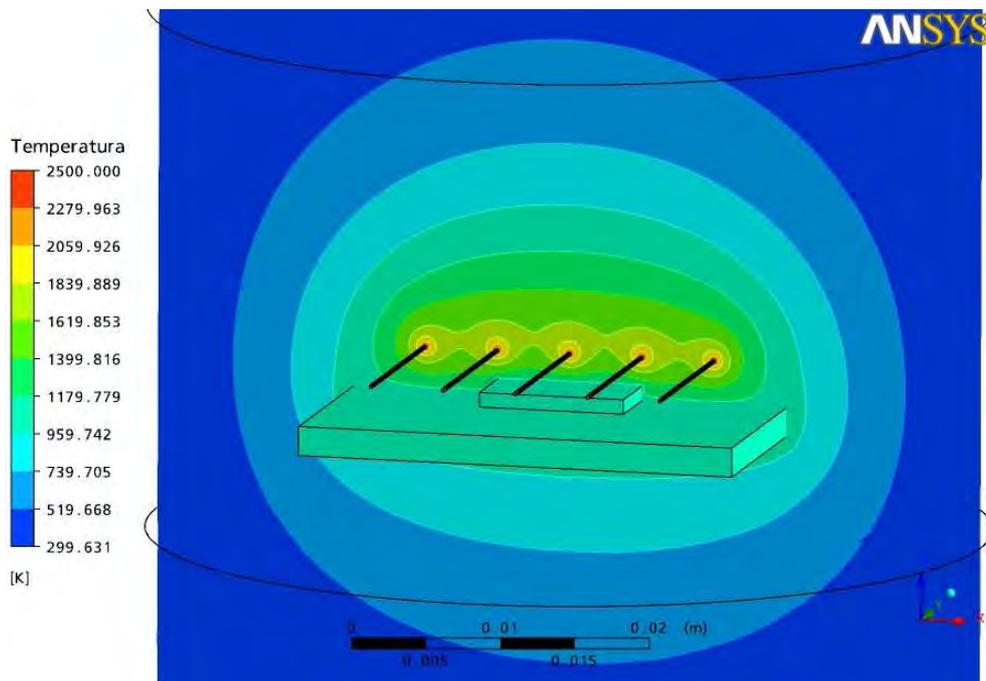


Figura 76 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

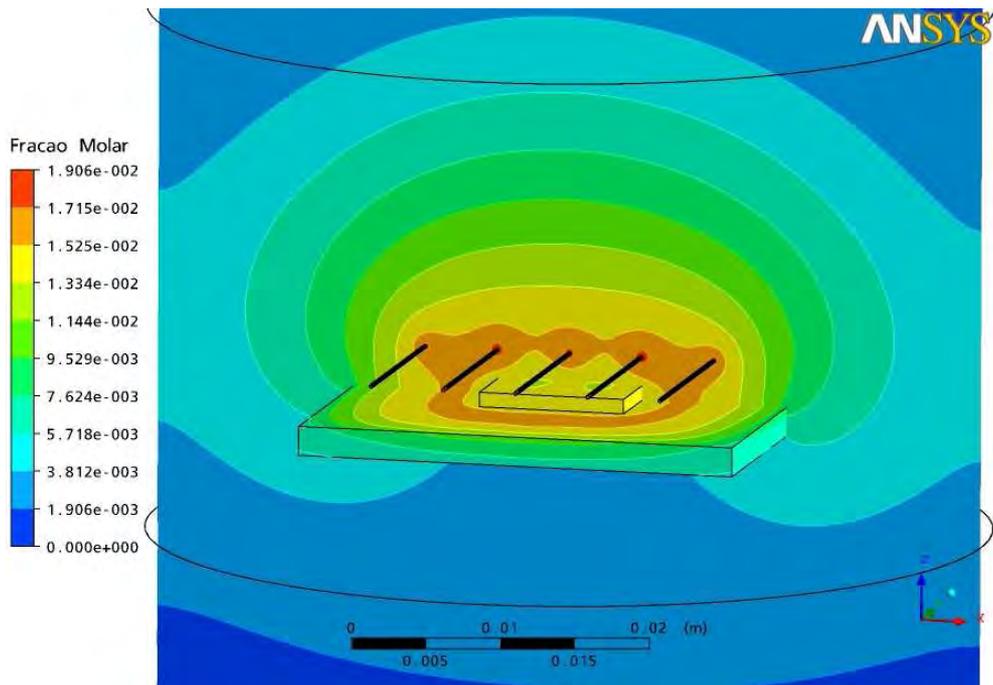


Figura 77 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

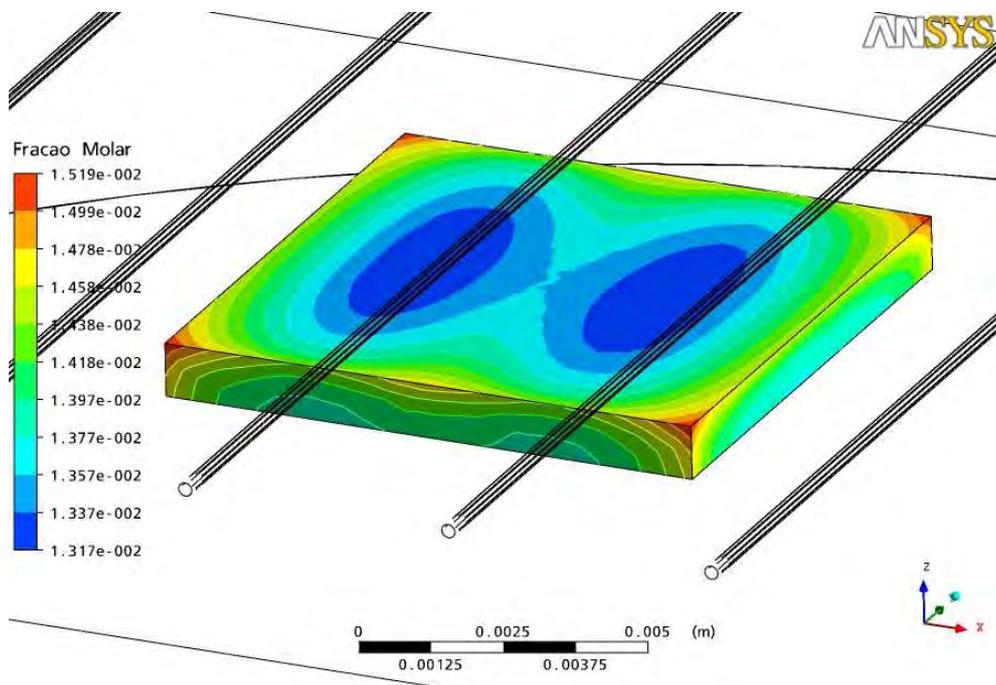


Figura 78 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.14. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 100 Torr e distância de 3,5 mm entre filamentos**

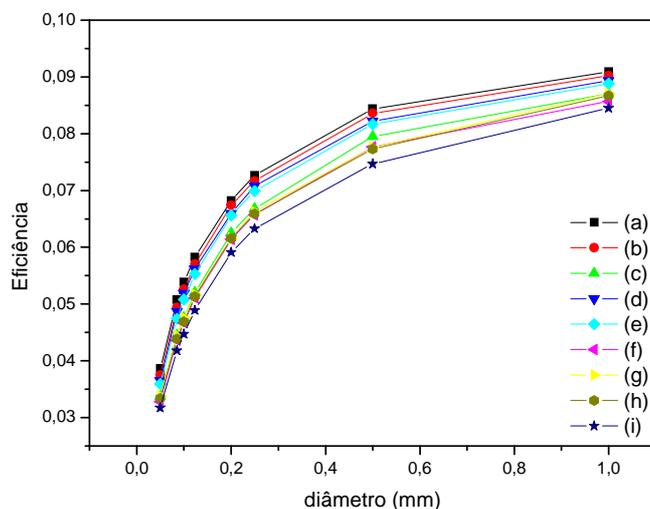


Figura 79 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

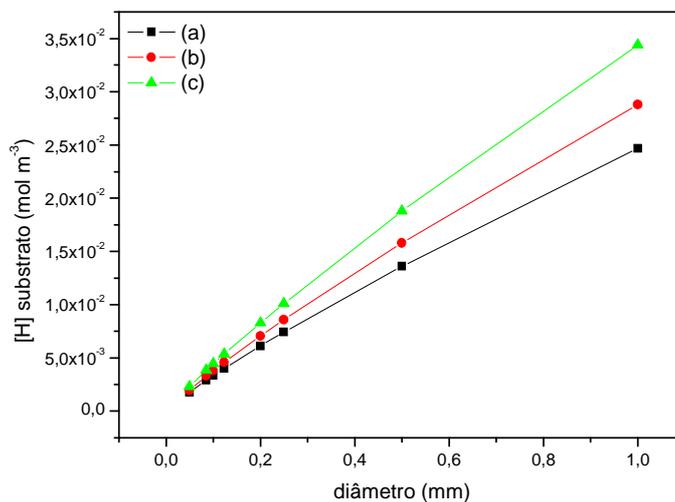


Figura 80 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

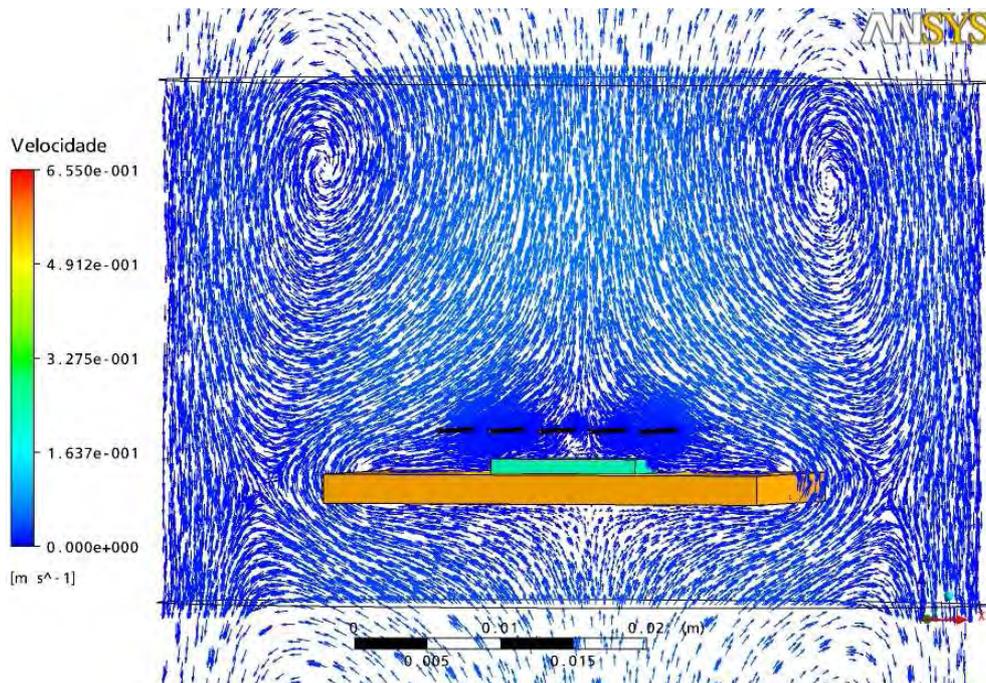


Figura 81 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

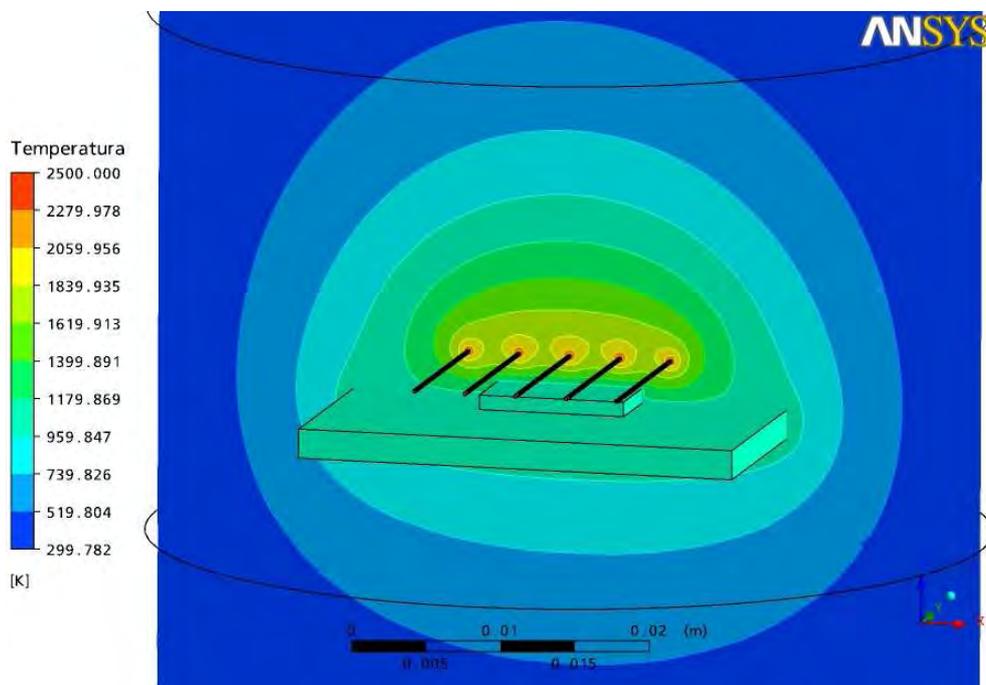


Figura 82 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

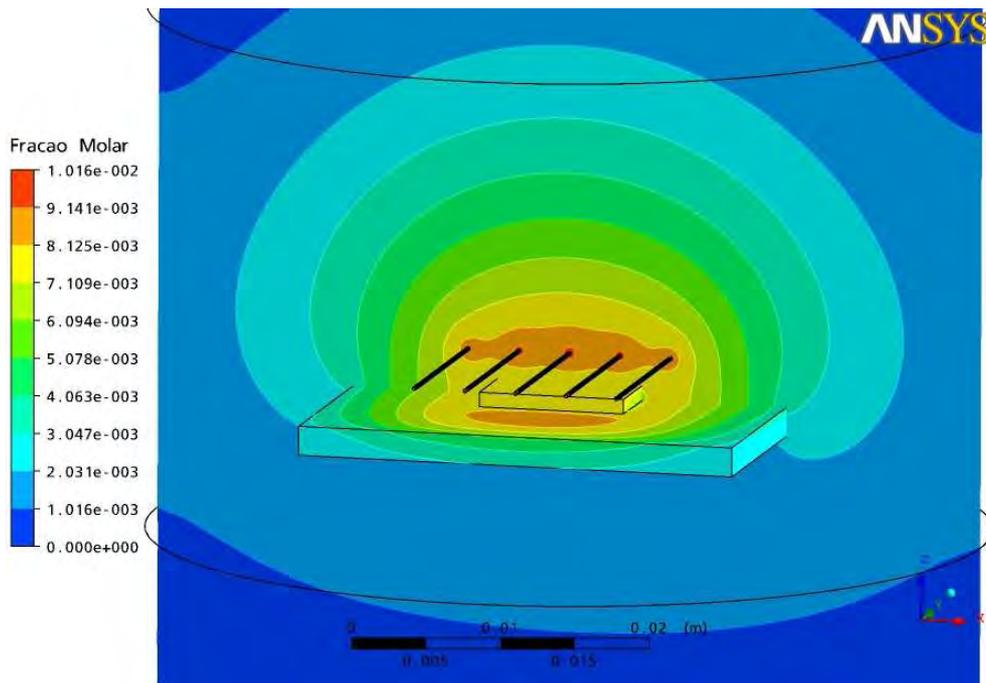


Figura 83 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

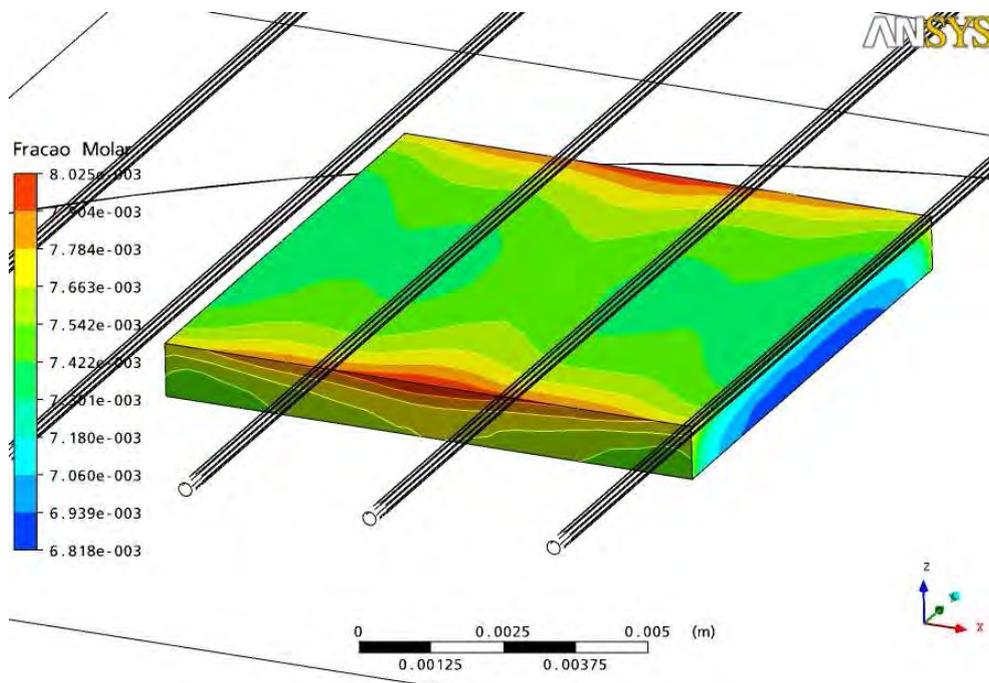


Figura 84 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

**A.15. Modelagem 3D: 5 filamentos, pressão de 100 Torr e distância de 5 mm entre filamentos**

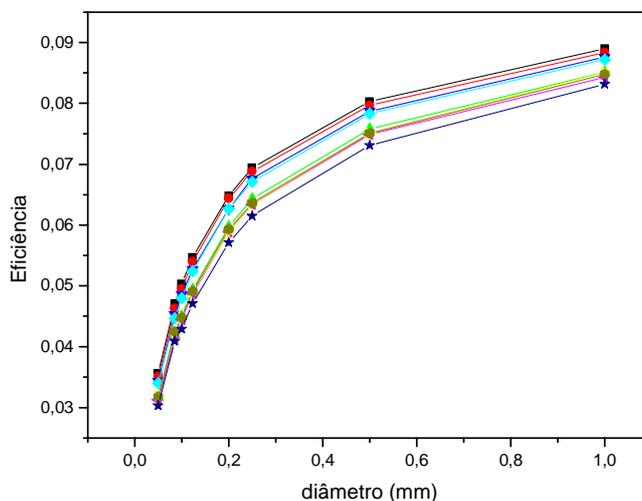


Figura 85 - Gráfico da eficiência energética do filamento versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm filamento central, (b) 7 mm filamento lateral interno, (c) 7 mm filamento lateral externo, (d) 5 mm filamento central, (e) 5 mm filamento lateral interno, (f) 5 mm filamento lateral externo, (g) 3 mm filamento central, (h) 3 mm filamento lateral interno e (i) 3 mm filamento lateral externo.

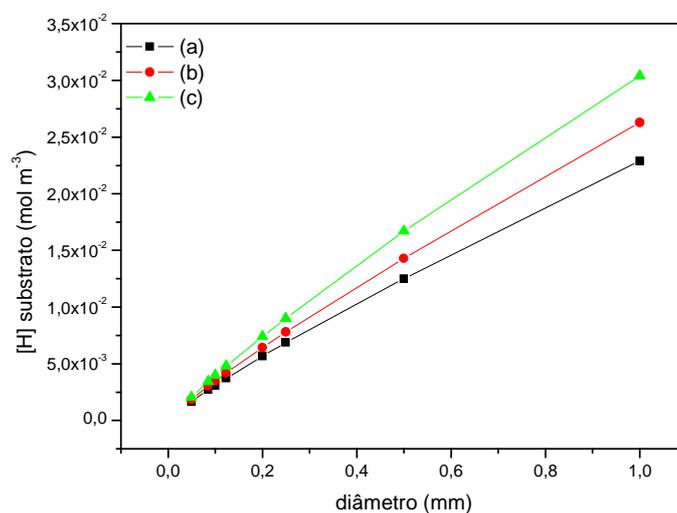


Figura 86 - Gráfico da concentração molar do hidrogênio atômico na região do substrato versus o diâmetro do filamento para várias distâncias entre filamento e substrato: (a) 7 mm, (b) 5 mm e (c) 3 mm.

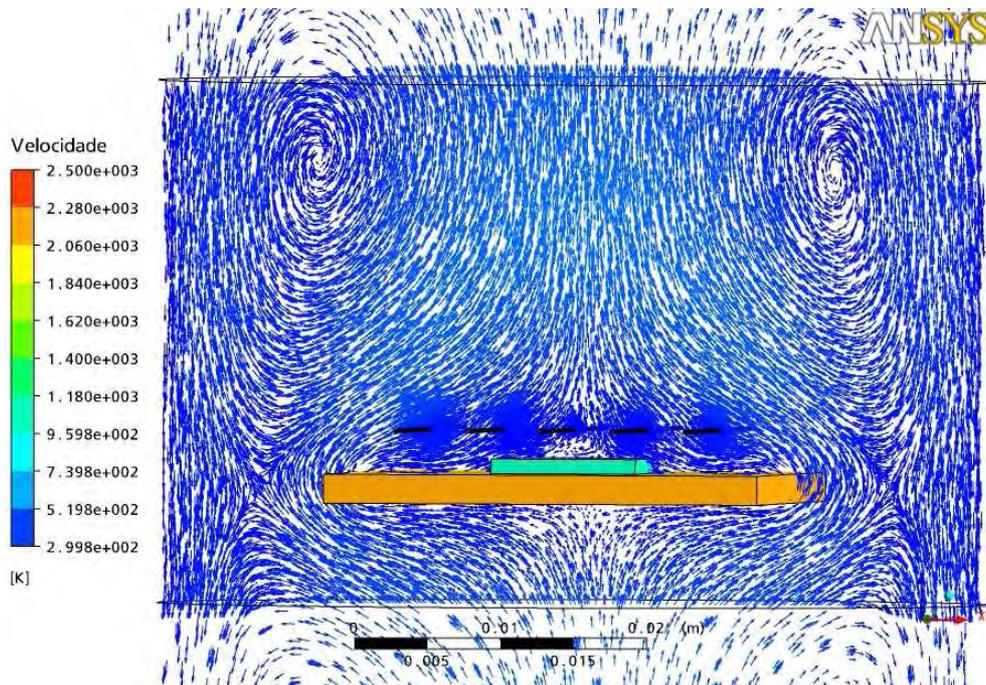


Figura 87 – Perfil de velocidades onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

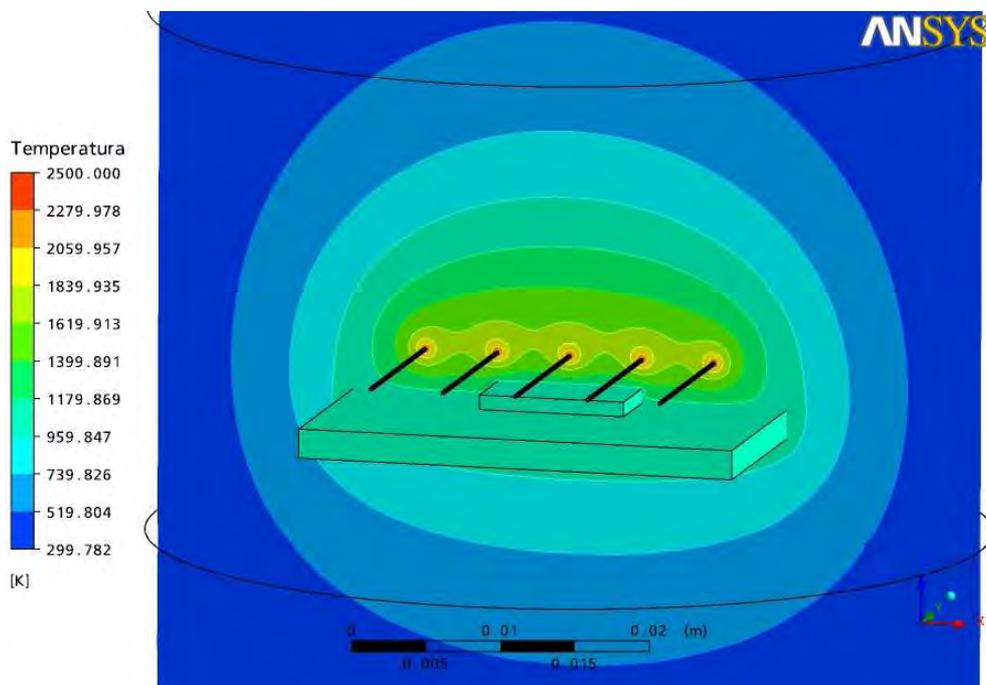


Figura 88 – Perfil de temperaturas onde o diâmetro do filamento = 250 $\mu$ m e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

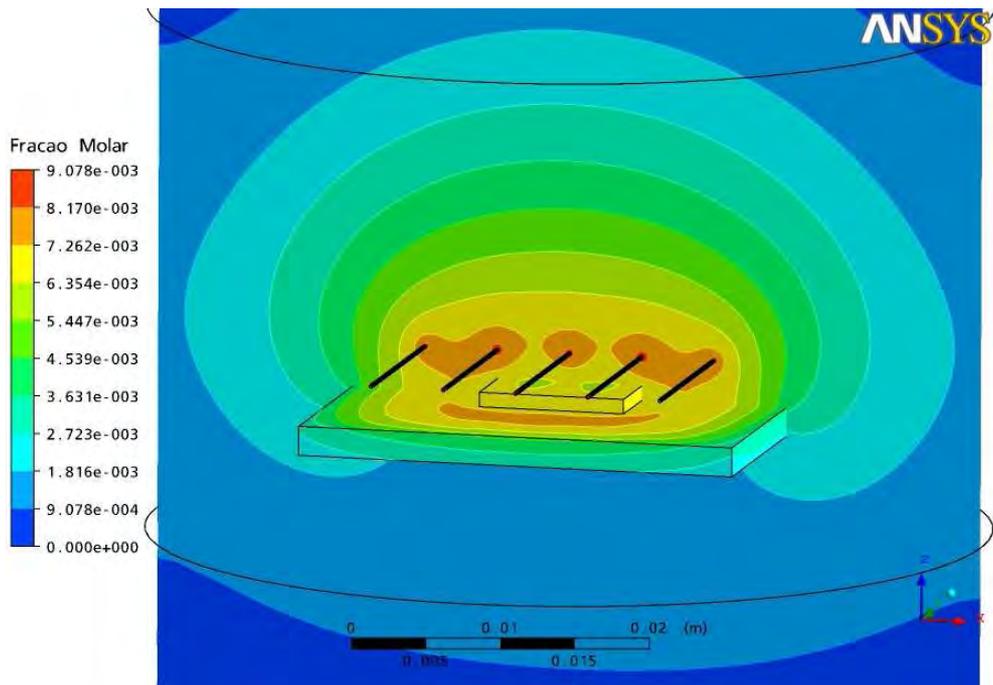


Figura 89 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico na região entre o filamento e o substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

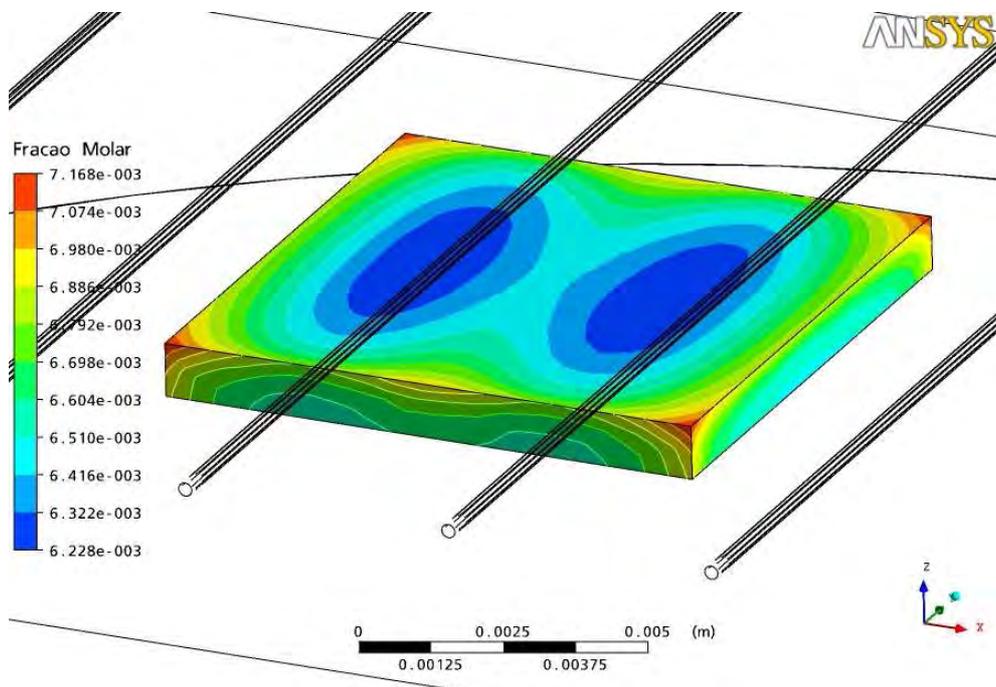


Figura 90 – Perfil de fração molar do hidrogênio atômico no substrato, onde o diâmetro do filamento =  $250\mu\text{m}$  e a distância entre filamento e substrato é de 3 mm.

