

УДК 532.5.013.4:536.25:548.512

© 1994 г. В. А. БРАЙЛОВСКАЯ, В. В. ЗИЛЬБЕРБЕРГ, Л. В. ФЕОКТИСТОВА

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ НЕВЕСОМОСТИ НА КОНВЕКЦИЮ И МАССООБМЕН ПРИ РОСТЕ КРИСТАЛЛОВ ИЗ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ

Приводятся описание процесса и сравнение результатов моделирования в земных условиях и невесомости, исследуется влияние уменьшения гравитации на однородность приграничного к поверхности растущего кристалла слоя. Показано, как, используя результаты моделирования для случая невесомости, выполнить оценки параметров, характерных для оптимизации гидромеханики раствора в земных условиях.

Гидромеханика в условиях микрогравитации находит приложение в усовершенствовании технологии скоростного выращивания водорастворимых кристаллов типа KDP (KH_2PO_4) для лазерной оптики. Существенным элементом технологии получения этих кристаллов в земных условиях является интенсивная подача раствора к поверхности кристалла [1, 2]. Одно из требований к динамике раствора — создание однородного концентрационного пограничного слоя на границе раствор — кристалл, что является в отличие от роста полупроводниковых кристаллов из расплавов гидродинамическим критерием качества.

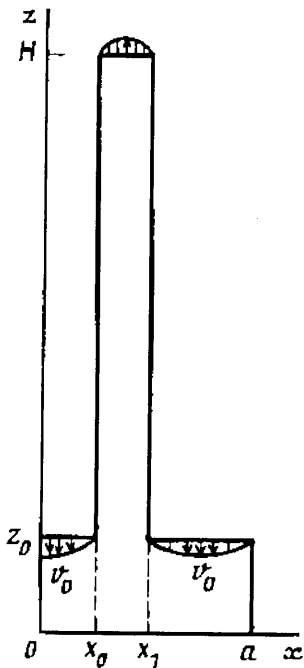
В наземных условиях свободная конвекция (концентрационный и тепловой механизмы) создает существенную неоднородность поля концентрации вблизи поверхности кристалла, которая может быть устранена с уменьшением гравитации. Поэтому качество кристалла, выращенного в условиях, близких к невесомости, может быть значительно выше. Исследованию этих закономерностей посвящены работы [3, 4].

Существенное значение в анализе этих процессов имеет метод математического моделирования [5, 6]. Использование метода математического моделирования наряду с возможностью визуализации полей течения позволяет выявить влияние отдельных гидродинамических факторов.

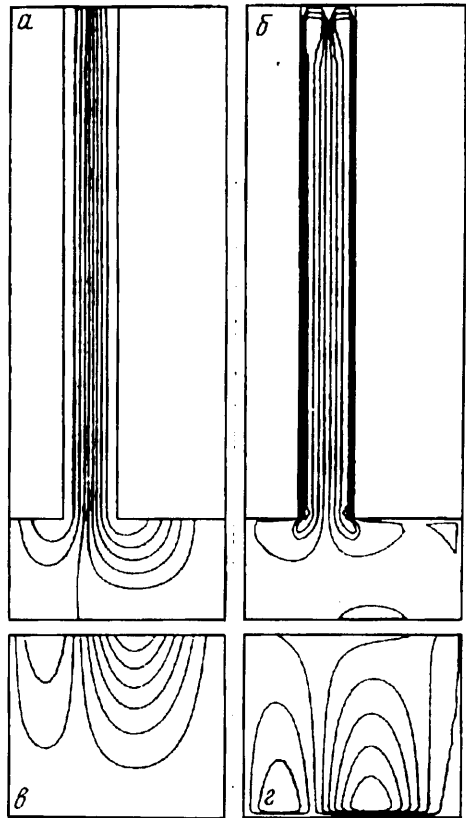
В земных условиях естественная конвекция подавляется вынужденной. При этом для переохлаждений раствора $\Delta T \sim 5^\circ \text{C}$, характерных для скоростного роста кристаллов, значения скоростей потока раствора, необходимые для подавления естественной конвекции, оказываются $> 10^{-1}$ м/с [5]. Численное моделирование таких высокоскоростных течений с параметрами $\text{Re} = 10^4$, $\text{Ra} = 10^{11}$ требует высокоэффективной вычислительной техники. Это существенно отличает моделирование течения при росте кристаллов из водных растворов от аналогичных задач по росту кристаллов из расплавов [7]. В этой связи неопределимое значение приобретает моделирование в условиях пониженной гравитации, так как позволяет исследовать все особенности взаимодействия естественной и вынужденной конвекции при существовании более низких значениях скорости раствора.

1. Постановка задачи. Существует класс задач о росте кристаллов, описываемых двумерной моделью течения раствора. Например, проблемы выращивания кристаллов в прямоугольных контейнерах, один из размеров которых (по y) существенно превышает два других (по x , z). В этом случае достаточно рассматривать движение лишь в xz -плоскости.

Рассматривается двумерное течение изотермического пересыщенного раствора, поступающего из трехфазового питателя к поверхности растущего кристалла



Фиг. 1



Фиг. 2

(фиг. 1). Область симметрична относительно оси z . Жидкость поступает в камеру через сечение $z = z_0$, $0 < x < x_0$, $x_1 < x < a$, а вытекает из камеры через $z = H$, $x_0 < x < x_1$.

Состояние раствора описывается в переменных $\psi(x, z)$ — функция тока, $\omega(x, z)$ — завихренность, $c(x, z)$ — концентрация соли в растворе следующими уравнениями [8]:

$$\omega_t + u\omega_x + v\omega_z = \omega_{xx} + \omega_{zz} + F \quad (1.1)$$

$$\omega = \psi_{xx} + \psi_{zz} \quad (1.2)$$

$$c_t + uc_x + vc_z = \frac{1}{Sc} (c_{xx} + c_{zz}) \quad (1.3)$$

$$F = -Gr_D c_x, \quad u = \psi_z, \quad v = -\psi_x, \quad Sc = \frac{\nu}{D}, \quad Gr_D = \frac{g\beta_c [c^*(T_2) - c^*(T_1)] H^3}{\nu^2}$$

$$c = \frac{c_p - c^*(T_1)}{c^*(T_2) - c^*(T_1)}$$

В уравнениях (1.1)–(1.3) за единицу длины выбрана высота кристаллизационной камеры H , c_p — «размерная» концентрация (кг соли / кг раствора), $c^*(T)$ — «размерная» концентрация соли в растворе, насыщенном при температуре T , T_1 — температура раствора в кристаллизаторе, T_2 — температура насыщенного раствора, Sc — число Шмидта, Gr_D — диффузионное число Грасгофа,

ν — коэффициент вязкости, D — коэффициент диффузии, β_c — коэффициент концентрационного расширения.

На твердых границах области выполняются условия прилипания и непротекания раствора, на оси z — условия симметрии, при $z = z_0$ и $z = 1$ во входных и выходных отверстиях задаются профили скорости

$$\psi(x, 0) = \psi(0, z) = \psi(a, z) = 0, \psi_z(x, 0) = \psi_z(x, 1) = \psi_x(a, z) = 0, \omega(0, z) = 0$$

$$\psi(x, z) = \frac{\nu_0}{2x_0} \begin{cases} x^2 - \nu_0 x, & 0 \leq x \leq x_0 \\ 2x_0^2 - (x - x_1)^2, & x_1 \leq x \leq 0,5(x_1 + a) \\ (x - a)^2, & 0,5(x_1 + a) \leq x \leq a \end{cases}$$

$$\psi_z(x, z_0) = 0$$

$$\psi(x, 1) = \begin{cases} 3\nu_0'(x_0 - x)^2 - 0,5\nu_0 x_0, & x_0 \leq x \leq 0,5(x_0 + x_1) \\ -3\nu_0'(x - x_1)^2 + \nu_0 x_0, & 0,5(x_0 + x_1) \leq x \leq x_1 \end{cases}$$

$$\nu_0' = x_0 \nu_0 / (a - 3x_0)^2, \psi_z(x, 1) = 0$$

где ν_0 — максимальное значение скорости втекания раствора.

Граничные условия для концентрации $c(x, z)$

$$c_z(0, z) = c_x(x_0, z) = c_x(x_1, z) = c_x(a, z) = 0$$

$$c_z(x, 0) = \text{const}, c(x_c, 0) = \sqrt{RG/\beta} \quad (1.4)$$

$$RG = \frac{2D}{a} \frac{\rho_{H_2O}}{\rho_{cr}} \int_0^a \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{c_p}{1 - c_p} \right) \Big|_{z=0} dx \quad (1.5)$$

Здесь x_c — координата центра роста (в дальнейшем полагаем $x_c = 0$), RG — нормальная скорость роста, β — константа, зависящая от температуры, характеризует мощность центра роста на поверхности кристалла.

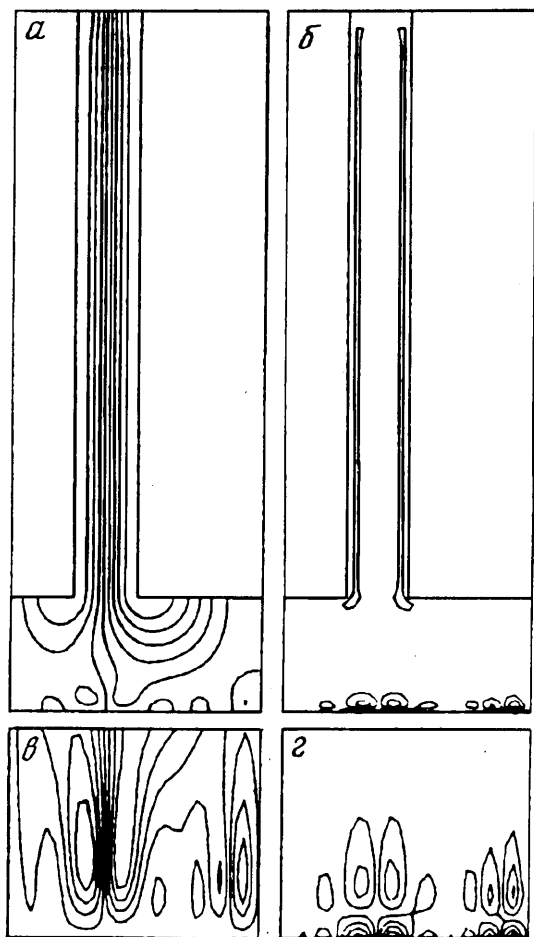
Система (1.1)–(1.3) решалась методом конечных разностей по схеме переменных направлений с расщеплением на динамическую часть (1.1)–(1.2) и уравнение концентрации (1.3). Использовались монотонные аппроксимации пространственных производных с последовательной компенсацией возникающей схемной вязкости [9]. Уравнение Пуассона (1.2) решалось прямым методом быстрого преобразования Фурье. Аппроксимация граничных условий на твердых стенках осуществлялась по методу [10], на свободных границах — по формуле Вудса [11].

Набор физических параметров, характерных для растворов типа KDP, в частности ($Pr = 1$, $Pr_D = 1000$), налагает жесткое требование на величину пространственного шага по нормали к поверхности кристалла для разрешения тонкого диффузионного пограничного слоя. В связи с этим использовались неоднородные по вертикали сетки с существенным сгущением на границе раствор—кристалл.

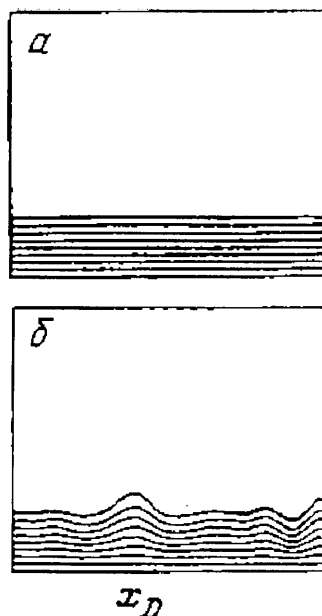
Для сокращения объема вычислений и, следовательно, ускорения счета применялся метод последовательности сеток [12], т. е. предварительные расчеты велись на относительно грубых, за исключением области погранслоя, сетках 33×37 , затем результаты интерполировались на более мелкую сетку 33×75 и далее, вблизи квазистационара на 65×75 . Это позволило повысить точность расчетов при ограниченных возможностях ЭВМ.

Процесс установления квазистационарного состояния раствора контролировался по поведению во времени полной кинетической энергии в области течения. На границе раздела кристалл — раствор параметр RG вычислялся методом последовательных приближений из выражений (1.4)–(1.5) (методика расчета RG подробно изложена в [5]).

2. Результаты исследования. Результаты численного исследования, выполненные при значениях физических параметров, характерных для растворов KDP ($\nu = 10^{-6}$ м²/с, $D = 10^{-9}$ м²/с), представлены на фиг. 2, 3 в виде изолиний функции тока (а) и завихренности (б) во всей области, а также изолиний



Фиг. 3



Фиг. 4

функции тока (ψ), завихренности (ω) в пограничном слое толщиной $0,05$ полной высоты. Фигура 2 соответствует условиям невесомости ($g=0$, $v \sim 10^{-1}$ м/с, $t = 96$ с), когда движение установилось. Для сравнения на фиг. 3 — вариант $g = 9,8$ м/с, $\Delta T = T_2 - T_1 = 0,3^\circ$, $v = 10$ м/с, который, как было показано в [4] для модели односоплового питателя, соответствует случаю доминирования естественной конвекции над вынужденной.

На фиг. 4 представлены изолинии концентраций в пограничном слое ($0,05 H$) для условий, представленных на фиг. 2 и 3 (соответственно a и $б$).

Как видно на фиг. 2, 4, a , вынужденная конвекция такой интенсивности не приводит к существенной неоднородности диффузионного погранслоя. В то же время (фиг. 3, 4, $б$) ее вполне достаточно для фиксации положения на границе (точка x_D) раствор — кристалл, где развивается естественно-конвекционная неустойчивость. Возникающая вблизи поверхности кристалла пара противоположно направленных вихрей (левый вращается против часовой стрелки) создает горизонтальный градиент концентрации, способствующий дальнейшему увеличению интенсивности этих вихрей. Это приводит к резкому обеднению раствора в окрестности точки x_D над поверхностью кристалла.

Важным результатом этой работы является оценка времени развития неустой-

чивости (порядка 40—50 с). За это время при указанных нормальных скоростях роста и характерных углах отклонения поверхности растущего кристалла от естественной грани элементарная ступень на ростовой поверхности проходит расстояние ~ 1 мкм (~ 10 периодов решетки), а этого достаточно дл. образования дефекта в кристалле.

Сравнение скоростей движения раствора в погранслое (благодаря естественной конвекции $U \sim 5 \cdot 10^{-7}$ м/с) со скоростями в погранслое, создаваемыми вынужденной динамикой ($U \sim 10^{-9}$ м/с), позволяет оценить интенсивность вынужденной динамики, необходимой для подавления естественной. Получаемое таким образом $U \sim 5 \cdot 10^{-3}$ м/с совпадает по порядку величины со значением v_0 , полученным в [5] для случая другой геометрии (однослового питателя) нормального падения раствора на поверхность растущего кристалла.

Показано, что концентрационная конвекция в земных условиях приводит к появлению локальных вторичных структур, которые являются потенциальной причиной образования дефектов при низкотемпературном росте водорастворимых кристаллов. Эти структуры подавляются с помощью удачной организации гидродинамики вблизи растущей поверхности.

На основе сравнения результатов численного моделирования гидродинамики для земного и космического случаев продемонстрирована возможность оценки интенсивности динамики раствора, необходимой для гомогенизации концентрационного погранслоя с целью получения высококачественных оптических кристаллов в земных условиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Беспалов Н. И. Некоторые проблемы скоростного выращивания монокристаллов типа КДР//Рост кристаллов. М.: Наука, 1988. Т. 17. С. 150—164.
2. Yoreo J. J., de Britten J., Vital R. et al. Development of large aperture KDP crystal//LLNL ICF A Quarterly Report 3. 1993. № 3.
3. Authier A., Benz K. W., Robert M. C. et al. Crystal growth from solutions//Fluid Sci. Mater. Sci. in Space/Ed. Walter H. U. Springer-Verlag, 1987. P. 405—449.
4. Chen W. C., Mai Z. H., Ma W. Y. et al. Growth of α -LiJO₃ crystal under microgravity conditions//J. Cryst. Growth. 1990. V. 99. Pt. 2. P. 1273—1275.
5. Brailovskaya V. A., Zilberberg V. V., Feoktistova L. V. Mixed solutal convection above the growing crystal surface//Proc. Europ. Seminar 30, Orsay, France, 1992. P. 167—168.
6. Brailovskaya V. A., Zilberberg V. V., Feoktistova L. V. Numerical simulation of convection above the surface of growing crystal at varying gravity//Proc. First Symp. on Hydrodynamics and Heat/Transfer in Microgravity. Corden Briath Sci. Paris, 1991. P. 467—473.
7. Полежаев В. И. Математическое моделирование: Получение монокристаллов и полупроводниковых структур. М.: Наука, 1986. 198 с.
8. Полежаев В. И. Гидродинамика, тепло- и массообмен при росте кристаллов//Итоги науки и техники. Механика жидкости и газа. М.: ВИНТИ, 1984. Т. 18. С. 198—269.
9. Самарский А. А. Теория разностных схем. М.: Наука, 1977. 656 с.
10. Полежаев В. И., Грязнов В. Л. Метод расчета граничных условий для уравнений Навье — Стокса в переменных «вихрь, функция тока»//Докл. АН СССР. 1974. Т. 219. № 2. С. 301—304.
11. Пасконов В. М., Полежаев В. И., Чудов Л. А. Численное моделирование процессов тепло- и массообмена. М.: Наука, 1984. 285 с.
12. Тарушин Е. Л. Метод последовательности сеток для задач свободной конвекции//Журн. вычисл. математики и мат. физики. 1975. Т. 15. № 2. С. 436—445.