

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ОРДЕНА ЛЕНИНА ИНСТИТУТ ПРИКЛАДНОЙ МАТЕМАТИКИ
имени М.В.КЕЛДЫША**

В.В.Колмычков, О.С.Мажорова, Ю.П.Попов

Математическое моделирование
конвективного массопереноса в
пространственно трёхмерном случае.
Часть 1. Подкритическая конвекция.

Москва

2003

Аннотация

Работа посвящена численному исследованию процесса эпитаксиального выращивания тонких монокристаллических структур из тройного расплава. Образующийся в ходе роста градиент плотности является неустойчивым и приводит к возникновению естественной конвекции. В работе содержится обзор известных аналитических результатов по теории гидродинамической устойчивости для задач, близких к исследуемой; проведена серия трехмерных расчетов, целью которых являлось определение значения числа Рэлея, при котором происходит потеря устойчивости состояния покоя, и формы соответствующего движения. Результаты расчетов хорошо согласуются с данными теоретических исследований.

Abstract

The paper deals with numerical study for epitaxial growth of thin ternary monocrystal layers. Epitaxy produces unstable density gradient that gives rise to natural convection. The review of relevant previously known theoretical results for hydrodynamic instability is given. Three-dimensional calculations have been done to determine the Rayleigh number producing the onset of convection and corresponding flow pattern. Found results are in good agreement with analytical research data.

Содержание

1	Введение	4
2	Основные предположения	5
3	Математическая модель	7
4	Вычислительный алгоритм	9
5	Модельная задача	10
6	Некоторые дополнительные теоретические и экспериментальные данные	17
7	Численное исследование возникновения подкритической конвекции	18
8	Выводы	21

1 Введение

В настоящее время хорошо известно, что гидродинамические процессы, и в первую очередь конвективный массоперенос, играют определяющую роль в формировании условий кристаллизации многокомпонентных растворов [1]. Поэтому изучение этих процессов и их математическое моделирование, применительно к различным задачам технологии, постоянно находится в центре внимания специалистов. Данная работа является продолжением цикла исследований [2, 3, 4], посвященных математическому моделированию процесса получения полупроводниковых материалов методом жидкофазовой эпитаксии (ЖФЭ). В [2, 3, 4] на основе двухмерных расчетов были найдены технологические режимы наиболее предпочтительные для получения материалов с заданными свойствами. Вместе с тем, учет трехмерности может существенно повлиять на результаты. Анализ условий возникновения и развития конвективного движения, его структуры и влияния на рост эпитаксиальных слоев (ЭС) в рамках трехмерной постановки посвящена настоящая работа, которая состоит из двух частей.

В первой части содержится математическая постановка задачи, обзор результатов линейной и конечноамплитудной теорий устойчивости, имеющих непосредственное отношение к рассматриваемой задаче, и описание результатов численного исследования конвективного движения в подкритической области.

Часть вторая посвящена анализу структуры течения при различных значениях числа Рэлея, и сравнению данных, полученных в двухмерных и трехмерных расчетах.

2 Основные предположения

Рассмотрим процесс выращивания тройных эпитаксиальных соединений $A_xB_{1-x}C$ из раствора компонентов **A** и **B** в расплаве компонента **C**. Пусть ростовая камера, имеющая форму прямоугольного параллелепипеда (рис.1), заполнена раствором-расплавом. На дно ее помещена подложка $A_xB_{1-x}C$. Вся система находится в поле силы тяжести. В начальный момент времени расплав и подложка имеют одинаковую температуру (T_0) и находятся в квазиравновесии, т.е. концентрация растворенных компонентов и состав твердой фазы удовлетворяют фазовой диаграмме системы. Затем температура всей системы понижается по заданному закону. С понижением температуры падает растворимость компонентов **A** и **B** в расплаве **C**, раствор становится пересыщенным и начинается процесс его кристаллизации на подложке.

При построении математической модели процесса будем предполагать, что эпитаксиальный рост происходит в квазиравновесном режиме, т.е. концентрация растворенных компонентов на фронте кристаллизации и состав растущего слоя удовлетворяют фазовой диаграмме системы. Кинетические явления на границе раздела фаз не учитываются. В частности, это означает, что скорость роста эпитаксиального слоя определяется скоростью поступления растворенных веществ к фронту кристаллизации и не лимитируется процессами, протекающими на межфазовой границе. Перенос растворенных в расплаве компонентов осуществляется механизмами диффузии и естественной конвекции.

Возможность возникновения в расплаве конвекции связана с зависимостью плотности жидкой фазы от ее состава, температуры и давления. Однако зависимость плотности расплава от температуры в данном случае не существенна. В рассматриваемых системах коэффициент температуропроводности λ на 3-4 порядка больше коэффициентов диффузии. Характерный масштаб времени, связанный с процессом теплопроводности

сти $t_\lambda = H^2/\lambda \approx 10^{-1}$ сек, что на два порядка меньше, чем характерный масштаб времени вязкой диссипации $t_\nu = H^2/\nu$ и на четыре порядка меньше характерного времени диффузии $t_D = H^2/D$, где H - высота области, ν - коэффициент кинематической вязкости, D - коэффициент диффузии. В результате пространственная неоднородность температуры, обусловленная охлаждением стенок ростовой камеры мала и не оказывает заметного влияния на величину подъемной силы. Таким образом, при "невысоких" скоростях охлаждения температуру расплава можно считать однородной по пространству и изменяющейся во времени по заданному закону $T = T(t)$.

Зависимость плотности расплава от давления также не учитывается, поскольку вертикальные размеры области достаточно малы.

Таким образом, основной причиной возникновения конвекции является зависимость плотности от состава. Рост эпитаксиального слоя приводит к обеднению жидкой фазы вблизи растущего слоя по компонентам А и В. В результате формируется вертикальный градиент плотности, который является устойчивым, если плотность жидкости вблизи подложки больше, чем в верхней части расплава, и неустойчивым в противном случае.

В данной работе рассматривается процесс эпитаксиального роста из расплава, плотность которого падает с уменьшением концентрации растворенных компонентов. Так как рост осуществляется на подложку, расположенную на дне ростовой камеры, то формирующийся в процессе эпитаксии градиент плотности является неустойчивым и приводит к возникновению конвективного движения. Жидкость предполагается несжимаемой и гидродинамические процессы рассматриваются в приближении Буссинеска [5].

В реальных экспериментах толщина выросшего ЭС не превосходит 1-2% от толщины жидкой фазы, поэтому будем считать что движение расплава изучается в области, форма которой во времени не изменяется.

3 Математическая модель

Используя сделанные предположения, запишем уравнения концентрационной конвекции в безразмерной форме следующим образом [6, 2]:

$$\partial_t V + (V \nabla) V = -\nabla p + \Delta V + \sum_{i=1}^2 Gr_i C_i e_z \quad (3.1)$$

$$\nabla V = 0 \quad (3.2)$$

$$\partial_t C_i + (V \nabla) C_i = \frac{1}{Sc_i} \Delta C_i \quad (3.3)$$

Задача решается в декартовой системе координат (x, y, z) в области $\Omega = [0, L_1] \otimes [0, L_2] \otimes [0, H]$. При записи системы уравнений (3.1)-(3.3) использовались следующие обозначения: $\partial_\xi \equiv \frac{\partial}{\partial \xi}$, $V = (V_x, V_y, V_z)$ - скорость движения жидкости, $\nabla = (\partial_x, \partial_y, \partial_z)$, p - давление, $\Delta = \nabla^2 = \partial_{xx}^2 + \partial_{yy}^2 + \partial_{zz}^2$, C_i - объемная концентрация i -го растворенного компонента, $Gr_i = g\beta_i H^3 \delta C_i / \nu^2$ - диффузионное число Грасгофа, $Sc_i = \nu / D_i$ - число Шмидта, e_z - вектор $(0, 0, -1)$; g - модуль ускорения силы тяжести, D_i - коэффициент диффузии, $\beta_i = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial C_i}$ - коэффициент концентрационного расширения, ρ - плотность расплава, δC_i - характерный пространственный перепад концентрации соответствующего растворенного компонента, являющийся масштабом обезразмеривания. В качестве характерного масштаба длины выбрана толщина жидкой фазы $H_0 = 1mm$, масштаб измерения времени $t_\nu = H_0^2 / \nu$.

Отношение величины подъемной силы, вызванной неоднородностью распределения i -го компонента, к величине вязких сил, характеризуется значением концентрационного числа Рэля $Ra_i = Gr_i Sc_i$.

Скорость на границе области удовлетворяет условиям прилипания и непротекания: $V = 0$.

На границе раздела фаз выполняется закон сохранения массы. Пренебрегая диффузией в твердой фазе, его можно записать в виде:

$$V_{gr} = \frac{\partial_n C_1}{S_{C_1}(C_1^s - C_1)} = \frac{\partial_n C_2}{S_{C_2}(C_2^s - C_2)}. \quad (3.4)$$

Здесь V_{gr} - скорость роста эпитаксиального слоя, C_i^s - объемная концентрация i -го компонента в твердой фазе, n - внутренняя нормаль к границе.

На остальной части границы:

$$\partial_n C_i = 0. \quad (3.5)$$

Не делая никаких предположений о принадлежности твердой и жидкой фаз к какому либо классу растворов, запишем диаграмму состояния системы следующим образом [2]:

$$\begin{cases} 1 - x^s = 4\gamma_{AУAУC} \exp\left(\frac{\Delta H_{AC}^{melt}}{RT_{AC}^{melt}} \cdot \frac{T_{AC}^{melt} - T}{T}\right) \\ x^s = 4\gamma_{BУBУC} \exp\left(\frac{\Delta H_{BC}^{melt}}{RT_{BC}^{melt}} \cdot \frac{T_{BC}^{melt} - T}{T}\right) \end{cases} \quad (3.6)$$

Для большей наглядности здесь используется буквенная индексация $i = A, B, C$ вместо цифровой $i = 1, 2, 3$.

x^s - молярная доля соединения AC в твердой фазе, y_i - атомная доля соответствующего компонента в жидкой фазе, T - температура, R - универсальная газовая постоянная; T_{AC}^{melt} , T_{BC}^{melt} - температура плавления, ΔH_{AC}^{melt} , ΔH_{BC}^{melt} - энтальпия плавления соединений AC и BC, γ_i - является функцией температуры и состава твердой фазы и имеет вид [2]:

$$\gamma_i = \alpha_1^{(i)} + \alpha_2^{(i)} T^{-1} + \alpha_3^{(i)} (x^s)^{-1} + \alpha_4^{(i)} x^s T + \alpha_5^{(i)} T + \alpha_6^{(i)} x^s \quad (3.7)$$

Значения коэффициентов $\alpha_j^{(i)}$ определяются для конкретных веществ. Исключая из уравнений (3.6) x^s получим уравнение ликвидуса системы:

$$y_A + x_{УВ} = \frac{\theta}{1 - y_A - y_B} \quad (3.8)$$

$$\varkappa = \frac{\gamma_B \exp\left(\frac{\Delta H_{BC}^{melt}}{RT_{BC}^{melt}} \cdot \frac{T_{BC}^{melt} - T}{T}\right)}{\gamma_A \exp\left(\frac{\Delta H_{AC}^{melt}}{RT_{AC}^{melt}} \cdot \frac{T_{AC}^{melt} - T}{T}\right)}$$

$$\theta = \frac{1}{4\gamma_A \exp\left(\frac{\Delta H_{AC}^{melt}}{RT_{AC}^{melt}} \cdot \frac{T_{AC}^{melt} - T}{T}\right)}$$

Таким образом, уравнения массопереноса (3.3) решаются с граничными условиями (3.4),(3.5),(3.8). Для вычисления состава твердой фазы используются уравнения (3.6). Скорость роста ЭС определяется из уравнения баланса массы (3.4). Толщина выросшего слоя $d(x, y, t) = \int_0^t V_{gr} dt$.

В начальный момент подложка приводится в контакт с расплавом, температура T которого равна температуре подложки T_0 . Состав расплава является равновесным составу подложки, т.е. удовлетворяет фазовой диаграмме (3.6) при $T = T_0$.

4 Вычислительный алгоритм

Основу метода численного решения системы уравнений (3.1)-(3.3) составляет неявная консервативная разностная схема типа предиктор-корректор для уравнений Навье-Стокса. Схема построена на разнесенной сетке и сохраняет кинетическую энергию ([7, 8]). Использованный в данной работе метод решения уравнений Навье-Стокса описан в [9], и имеет второй порядок аппроксимации на равномерной сетке.

На каждом временном слое уравнения движения расплава и уравнения конвективного массопереноса решаются последовательно. Вычисления на слое начинаются с определения поля скоростей, при этом значения концентрации в правых частях уравнений берутся с предыдущего временного слоя. Затем по найденному полю скоростей из уравнений (3.3) определяется распределение растворенных в жидкой фазе веществ.

В разностных уравнениях для концентраций искомые функции отно-

сятся к узлам разностной сетки, а поле скоростей переинтерполировано на основную сетку с сохранением свойства соленоидальности. Построенная с помощью интегро-интерполяционного метода разностная аппроксимация уравнения (3.3) имеет второй порядок. С точки зрения устойчивости разностной задачи, целесообразно использовать неявную разностную схему, удовлетворяющую законам сохранения, справедливым для дифференциальной задачи.

На границе области требования устойчивости накладывают ограничения на способ аппроксимации граничных условий (3.4), (3.8). Как подробно исследовано в [10, 11, 12], абсолютную устойчивость вычислительной процедуры для любых комбинаций термодинамических параметров системы гарантирует неявная аппроксимация с последующим совместным решением уравнений массопереноса. Разностную производную на границе области записываем со вторым порядком точности. В граничных условиях (3.4), (3.8) значение концентрации в твердой фазе возьмем с предыдущего временного слоя, поскольку состав твердой фазы в интересующей нас задаче медленно изменяется во времени. Значение C_i^s на следующем временном слое определяется из фазовой диаграммы (3.6) по уже известным к этому моменту значениям C_i .

В силу нелинейности краевых условий (3.8) для определения концентрации использовался метод Ньютона.

Возникающие на каждом временном слое и в итерациях по Ньютону системы линейных алгебраических уравнений решались методом сопряженных градиентов с неполным LU разложением матрицы в качестве оператора предобуславливания [13].

5 Модельная задача

Сделаем ряд дополнительных предположений, позволяющих использовать хорошо известные результаты теории гидродинамической устойчи-

ности для качественного анализа процесса возникновения и развития конвективного движения в растворе-расплаве при жидкофазовой эпитаксии.

Считая фазовую диаграмму системы А–В–С линейной и не учитывая в явном виде взаимное влияние компонентов на растворимость, запишем концентрацию C_i , $i = \text{A, B}$ на фазовой границе $z = 0$ в виде $C_i|_{z=0} = C_i^{(0)} + \tilde{\alpha}_i T$, $\tilde{\alpha}_i > 0$. Температура расплава изменяется по закону $T = T_0 - \alpha t$. Она однородна по пространству и влияет только на значение равновесной концентрации на фронте кристаллизации, т.е.

$$C_i|_{z=0} = C_i^{(0)} + \eta_i t, \quad \eta_i = -\tilde{\alpha}_i \alpha = \partial_T C_i \partial_t T \quad (5.1)$$

Поскольку значения коэффициента концентрационного расширения $\beta_i = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial C_i}$ для компонентов А и В имеют одинаковый знак, пренебрежем в уравнении (3.1) в членах связанных с подъемной силой влиянием компонента с меньшим значения числа Рэлея.

Как было отмечено выше, единственной причиной, вызывающей конвекцию, является зависимость плотности раствора-расплава от его состава. Поэтому рассматриваемый случай аналогичен обычной тепловой конвекции. Роль температуры здесь играет концентрация растворенного компонента с большим значением числа Рэлея. Активную переменную, связанную с возникновением подъемной силы, в дальнейшем будем обозначать через Q . В рамках сделанных предположений система уравнений (3.1)-(3.3) принимает вид:

$$\partial_t V + (V \nabla) V = -\nabla p + \Delta V + Gr Q e_z \quad (5.2)$$

$$\nabla V = 0 \quad (5.3)$$

$$\partial_t Q + (V \nabla) Q = \frac{1}{P} \Delta Q \quad (5.4)$$

Здесь P имеет смысл числа Шмидта или Прандтля.

В состоянии механического равновесия ($V = 0$) переменная Q удовле-

творяет уравнению

$$\partial_t Q = \frac{1}{P} \partial_{zz}^2 Q \quad (5.5)$$

с граничными условиями

$$Q|_{z=0} = Q^{(0)} + \eta t \quad (5.6)$$

$$\partial_z Q|_{z=H} = 0 \quad (5.7)$$

Задача (5.5)-(5.7) имеет решение

$$\tilde{Q}(t, z) = Q^{(0)} + \eta t + \frac{\eta P}{2} z(z - 2H), \quad (5.8)$$

которое описывает устанавливающееся в жидкости распределение концентрации (температуры).

С точки зрения теории гидродинамической устойчивости задача (5.2)-(5.4), (5.6)-(5.7) близка к задаче о возникновении и развитии конвекции в бесконечном горизонтальном слое жидкости ($0 < z < H$) с нелинейным невозмущенным профилем температуры [14, 15]. В работе [15] теоретически исследуется возникновение тепловой конвекции, когда профиль температуры, аналогичный (5.8), формируется в результате охлаждения (нагрева) верхней и нижней границы области при фиксированном значении числа Ra .

$$\begin{aligned} Q_{bot} &= +\frac{1}{2} \delta Q + \eta t & z = 0 \\ Q_{top} &= -\frac{1}{2} \delta Q + \eta t & z = H \end{aligned} \quad (5.9)$$

Невозмущенный профиль температуры, удовлетворяющий граничным условиям (5.9), имеет вид:

$$\tilde{Q}(t, z) = Q^{(0)} + \eta t - \frac{\delta Q}{H} \left(z - \frac{1}{2} H \right) + \frac{\eta P}{2} z(z - H) \quad (5.10)$$

В [15] анализ влияния нелинейности невозмущенного профиля температуры на форму движения и его устойчивость проводится методом малого параметра [5, 16, 17]. Схема применения этого метода в данном случае состоит в следующем. В области малой надкритичности ($Ra > R_c$,

где R_c - критическое значение числа Рэлея [5, 6]) стационарное распределение скорости представляется в виде

$$V = \sum_{n=1, m=0}^{\infty} \varepsilon^n \eta^m V^{(n,m)}(x, y, z) \quad (5.11)$$

Предполагая, что справедливо представление $Q(t, x, y, z) = \tilde{Q}(t, z) + \theta(x, y, z)$, не зависящее от времени слагаемое $\theta(x, y, z)$ записывается аналогично (5.11)

$$\theta(x, y, z) = \sum_{n=1, m=0}^{\infty} \varepsilon^n \eta^m \theta^{(n,m)} \quad (5.12)$$

Таким образом, стационарное решение ищется в виде разложения по степеням двух параметров. Один из них – ε - амплитудный параметр [17, 5], второй – η - связан с кривизной невозмущенного профиля температуры (5.10).

Вместе с V и θ число Рэлея также представляется в виде ряда:

$$Ra = \sum_{n=0, m=0}^{\infty} \varepsilon^n \eta^m R^{(n,m)} \quad (5.13)$$

С помощью развитой в работах [16, 17] техники для определения $V^{(n,m)}$ и $\theta^{(n,m)}$ строится бесконечная система линейных дифференциальных уравнений, из условий разрешимости которой вычисляются коэффициенты $R^{(n,m)}$ в разложении (5.13).

Младшие члены в разложении (5.11)-(5.13) определяются в результате решения линейной задачи устойчивости, соответствующей линейному невозмущенному профилю температуры. $R^{(0,0)}$ - минимальное собственное значение этой задачи, $V^{(1,0)}$, $\theta^{(1,0)}$ отвечающие ему собственные функции. $R^{(0,0)}$ определяет критическое значение числа Рэлея R_c в случае $\eta = 0$. $V^{(1,0)}$, $\theta^{(1,0)}$ описывают стационарные движения с амплитудой $|\varepsilon| \sim \sqrt{Ra - R_c}$ [5, 15]. Вертикальная компонента скорости имеет вид:

$$V_z^{(1,0)} = f(z)w(x, y), \quad w(x, y) = \sum_{n=-N}^N A_n e^{i(k_1^{(n)}x + k_2^{(n)}y)} \quad (5.14)$$

Здесь функция планформы $w(x, y)$ задает пространственно-периодическую структуру течения, $k^{(n)} = (k_1^{(n)}, k_2^{(n)})$ - волновой вектор. Для случая двух жестких границ $R^{(0,0)} = 1707.8$ и отвечающее ему значение $|k^{(n)}| = 3.117$.

Выполненные в [15] вычисления следующих членов разложения (5.13) показывают, что линейные по ε и η поправки к $R^{(0,0)}$ отсутствуют: $R^{(1,0)} = R^{(0,1)} = 0$. В квадратичных членах $R^{(0,2)} < 0$, $R^{(2,0)} > 0$. Для функции $w(x, y)$, описывающей шестиугольные ячейки, $R^{(1,1)} > 0$. Для всех остальных функций планформы $R^{(1,1)} = 0$. Таким образом, с точностью до членов второго порядка

$$Ra = R^{(0,0)} + \eta^2 R^{(0,2)} + \varepsilon \eta R^{(1,1)} + \varepsilon^2 R^{(2,0)} \quad (5.15)$$

Пренебрегая в (5.15) членами более высокого порядка малости, чем ε , получим, что нелинейный невозмущенный профиль температуры, который формируется в жидкости за счет изменения граничных значений со скоростью η , вызывает уменьшение критического значения числа Рэлея по сравнению со случаем $\eta = 0$, когда профиль температуры в состоянии механического равновесия является линейным. Например, безразмерной скорости изменения температуры $\eta = \frac{H^2}{D\delta T} \frac{\partial T}{\partial t} = 8$ соответствует значение $R_c = R^{(0,0)} + \eta^2 R^{(0,2)} = 1537.5$ [15]. Также из (5.15) видно, что для любой функции планформы, кроме правильных шестиугольников, $Ra - R_c = \varepsilon^2 R^{(2,0)} > 0$ и $|\varepsilon| \sim \sqrt{Ra - R_c}$ (рис.2). Следовательно при $Ra < R_c$ стационарное движение с любой планформой, кроме правильных шестиугольников, невозможно.

В случае шестиугольной планформы движение с конечной амплитудой существует при значениях числа Рэлея меньших, чем предсказывает линейный по ε анализ устойчивости ($Ra < R_c$). Для определения амплитудного параметра используется равенство (5.15):

$$\varepsilon = -\frac{\eta R^{(1,1)}}{2R^{(2,0)}} \pm \sqrt{\left(\frac{\eta R^{(1,1)}}{2R^{(2,0)}}\right)^2 + \frac{Ra - R_c}{R^{(2,0)}}} \quad (5.16)$$

Отсюда минимальное значение числа Рэлея, при котором такое ε су-

ществует,

$$R_{min} = R_c - \frac{(\eta R^{(1,1)})^2}{4R^{(2,0)}} \quad (5.17)$$

Соответствующее R_{min} значение амплитудного параметра

$$\varepsilon_{min} = -\frac{\eta R^{(1,1)}}{2R^{(2,0)}} \quad (5.18)$$

Здесь имеет место, так называемый, "жесткий" режим возбуждения конвекции, когда покоящаяся жидкость устойчива относительно бесконечно малых возмущений, но неустойчива относительно возмущений конечной амплитуды [6, 18](рис.2).

Из (5.18) видно, что знак ε_{min} и тем самым направление движения в шестиугольных ячейках определяется знаком скорости изменения температуры на границе. В ячейках g-типа (gas) вещество опускается в центральных частях ячеек и поднимается по краям, в ячейках l-типа (liquid) наоборот.

Для того чтобы реализовываться в эксперименте, стационарное конечно-амплитудное движение должно быть устойчивым относительно малых возмущений. В [15] с помощью техники, развитой в [17], исследована устойчивость решений, полученных в результате конечно-амплитудного анализа. Полученная диаграмма устойчивости качественно приведена на рис.3 и совпадает с полученной Буссе для случая переменных свойств жидкости [19]. Проведенный анализ показал, что при $R_{min} < Ra < R_c$ устойчивы шестиугольные ячейки. Также была найдена область $R_c < Ra < R_h$, в которой шестиугольники сохраняют устойчивость и появляются неустойчивые валиковые решения. В области $R_h < Ra < R_r$ устойчивы течения обоих типов, при $R_r < Ra$ валы устойчивы, а шестиугольники - нет (рис.2) [19].

Экспериментальные исследования [20] подтвердили полученные теоретические результаты. В прямоугольном параллелепипеде с отношением сторон 15:15:1 наблюдалась подкритическая конвекция ($Ra < Ra^{(0,0)}$)

в форме шестиугольных ячеек, направление циркуляции жидкости в которых совпадало с предсказываемым теорией. $|\eta|$ изменялся в диапазоне $4 \div 10$. При линейном невозмущенном профиле температуры ($\eta = 0$) или его слабой кривизне ($|\eta| \leq 0.1$) наблюдавшееся вблизи критического значения числа Рэлея движения имело форму двухмерных валов.

Теоретические и экспериментальные исследования [19, 20, 21] показали, что конечноамплитудная конвекция устанавливается в форме шестиугольных ячеек ($Ra=R_{min}$). Увеличение значения числа Рэлея в диапазоне $R_{min} < Ra < R_r$ не оказывает влияния на структуру течения, при $Ra > R_r$ шестиугольная планформа становится неустойчивой и ячейки превращаются в валы (рис.2, кривая I). При уменьшении числа Рэлея переход от валов к шестиугольникам происходит для значения $Ra=R_h$, конвекция затухает в области $Ra < R_{min}$ (рис.2, кривая II). Таким образом в диапазоне $R_h < Ra < R_r$ структура течения зависит от того, каким образом указанное значение было достигнуто, т.е. при переходе от шестиугольных ячеек к валам и наоборот наблюдался гистерезис.

В работе [22] нелинейный невозмущенный профиль температуры формируется в жидкости благодаря действию внутренних источников тепла постоянной мощности q . Число Рэлея определяется как $Ra = \frac{g\beta q H^5}{\nu D}$. Было найдено, что решениями линеаризованной задачи являются валы и шестиугольники, критическое число Рэлея при этом $Ra_{cr} = 1386$. Линейное исследование предпочтительности одной формы течения над другой показало, что при значении числа Рэлея близком к критическому устойчивыми являются двухмерные валы. С увеличением значения числа Рэлея валы сменяются правильными шестиугольниками, направление циркуляции в них обратно предсказанному в [15]. Уравнения, применяемые для исследования конвективной неустойчивости в работе [22], допускают подкритическую ($Ra \leq R_c$) конвекцию, как и в работе [15]. Однако такая конвекция исследована не была, т.к. она возможна только для шестиугольной планформы, которая при значениях числа Рэлея близких к

критическому неустойчива относительно возмущений в форме валов, и реализуется только для значений числа Рэля в несколько раз больших критического.

6 Некоторые дополнительные теоретические и экспериментальные данные

Линейный анализ конвективной устойчивости жидкости с линейным невозмущенным градиентом температуры в неограниченной горизонтальной области с твердыми верхней и нижней границами показывает, что возникающее критическое движение представляет собой совокупность двухмерных горизонтальных валов одинаковой частоты, ориентированных вдоль произвольных направлений, а значение критического числа Рэля составляет $Ra_{cr}^{\infty} = R^{(0,0)} = 1708$. Конечные размеры области приводят к увеличению значения критического числа Рэля. Согласно [23] для области с отношением сторон 1:2:1 $Ra_{cr} \approx 3Ra_{cr}^{\infty}$.

В резервуаре с прямоугольным дном, как показал линейный анализ, проведенный в работе [24], значение критического числа Рэля меньше для тех валов, которые параллельны более короткой стороне прямоугольника. Это подтверждается в экспериментальных работах [23, 25], где показано, что структура течения в прямоугольном резервуаре в большинстве случаев представляет собой систему валов параллельных короткой стороне. В резервуаре, близком к квадратному, вблизи порога устойчивости могут возникать системы взаимно перпендикулярных валов [26].

По мере увеличения горизонтальных размеров области, значение критического числа Рэля быстро уменьшается и стремится к значению Ra_{cr}^{∞} [23]. Для соотношения длины к глубине области равного 6-ти, критическое значение числа Рэля близко к Ra_{cr}^{∞} . Экспериментальные исследования структуры конвективного движения в областях с большим

аспектным отношением в широком диапазоне значения числа Рэлея проведено в работах [25, 27], где, в частности, отмечено свойство конвективных валов выстраиваться вблизи вертикальных стенок перпендикулярно им. Это свойство является сейчас широко известным экспериментальным фактом и подтверждено аналитически в работе [28].

Дальнейшие исследования структуры течения показали, что при $Ra > 1.8Ra_{cr}^\infty$, $P > 1.2$, возможно устойчивое движение в виде шестиугольных и квадратных ячеек одновременно l и g типа [29]. Экспериментально шестиугольные ячейки наблюдались в работе [30].

7 Численное исследование возникновения подкритической конвекции

Приведем результаты численного исследования процесса развития конвективного движения и его структуры для задачи (3.1)-(3.3) при различных значениях параметров технологического процесса. Поскольку в рассматриваемой задаче значение числа Рэлея не является заданной величиной, то необходимо определить его реальное значение на каждый момент времени по полученному решению: $Ra_{i,act} = \frac{g\beta_i H^3 \delta C_{i,av}}{\nu D_i}$, где $\delta C_{i,av} = C_{i,av}|_{z=H} - C_{i,av}|_{z=0}$, $C_{i,av}(z_0) = \|C_i(x, y, z_0)\|_{L_2^h(x,y)} / L_1 L_2$ - среднее значение концентрации i -го компонента в плоскости $z=z_0$. Для рассматриваемых веществ $Ra_{1,act} \ll Ra_{2,act}$, поэтому в дальнейшем при анализе течения будем использовать значение $Ra = Ra_{2,act}$.

Пусть в начальный момент времени при температуре $T_0 = 788^0 K$ подложка $A_x B_{1-x} C$, $x = 0.22$ приводится в контакт с равновесным ей раствором $A - B - C$. Затем температура системы понижается со скоростью $\alpha = 0.25 \frac{grad}{min}$. В этой серии расчетов подложка имеет размеры $L_1 = L_2 = 25 mm$, толщина жидкой фазы варьируется в диапазоне $H = 0.5 \div 1.2 mm$. Параметры области соответствуют используемым в реальных экспериментам

условиям [3].

Отметим, что аспектное отношение $a=L_1/H$ в данном случае достаточно велико: $a \approx 50 \div 21$. При таком соотношении длин сторон критическое значение числа Рэлея для ограниченной области должно быть близко к его значению в бесконечном горизонтальном слое. При $a=6$ значения критического числа Рэлея в конечной и бесконечной областях отличаются примерно на 5.8% [23].

Расчеты проводились на сетке $50 \times 50 \times 15$, с шагом по времени $\tau=0.5t_D$.

В двухмерной постановке задача численно исследовалась в работах [2, 3]. Минимальная толщина жидкой фазы, при которой наблюдалось сформировавшееся конвективное движение, равна $H = 1.2$. На развитой стадии течение представляло собой устойчивую систему валов. Значение числа Рэлея, вычисленное по наблюдавшемуся в расчетах перепадам концентрации, составляет $Ra_{cr}=1545$. Это число неожиданно хорошо совпадает со значением критического числа Рэлея $R_c=1537.5$ полученного в работе [15], исходя из линейного анализа. В соответствии с линейной теорией стационарное движение вблизи R_c должно иметь форму двухмерных валов. Необходимо однако подчеркнуть, что в [15] изучалась устойчивость жидкости, распределение температуры в которой сформировалось в результате охлаждения горизонтальных границ области со скоростью $\eta = 8$, а значение Ra_{cr} получено в результате расчета нестационарной задачи, в которой среднее значение введенного в (5.6) параметра $\eta \approx 4 \div 5$.

В трехмерной постановке, при величине зазора $H \leq 1$ массоперенос в жидкой фазе осуществляется только механизмом диффузии, и жидкость находится в состоянии покоя. Возникновение и развитие конвективного движения наблюдалось в расчетах при $H = 1.1$. Конвективное движение начинает медленно формироваться с момента времени $t_0 \simeq 8.5min$, что составляет $2.1t_D$, где t_D - диффузионное время, и постепенно приобретает форму квадратных ячеек. Как видно из рис.4, где изображена зависи-

мость средней кинетической энергии $E_{kin}^{av} = \|V^2\|_{L_2^h(x,y,z)} / L_1 L_2 H$ от времени, на отрезке времени $12min < t < 17min$ интенсивность конвективного движения резко возрастает, достигая к моменту $t_1 \simeq 17min(4.2t_D)$ своего максимального значения. Затем E_{kin}^{av} убывает, и после прохождения локального минимума в момент времени $t \simeq 21min$ начинает медленно возрастать. После прохождения кинетической энергией своего максимального значения, начинается постепенное изменение структуры течения, в результате которого квадратные ячейки объединяются, образуя изогнутые валы. К моменту времени $t \simeq 50min$ процесс формирования валов практически заканчивается и ячейковая структура течения сохраняется только вблизи границ области. Распределение концентрации на верхней границе области на момент времени $t \simeq 50min$ изображено на рис.5. Светлые участки соответствуют максимальным значениям концентрации, темные - минимальным. В светлых областях жидкость движется вниз, в темных - вверх. С течением времени валы превращаются в шестиугольные ячейки I-типа, формирование которых заканчивается примерно при $t_2 \simeq 150min(37t_D)$ (рис.6). Ячейковая структура устойчива и в расчетах наблюдалась до $t = 390min(96t_D)$. Реальное значение числа Рэлея при этом изменяется в диапазоне от 1263 до 1000 (рис.7), что примерно на 40% меньше, чем значение критического числа Рэлея $Ra=1708$ для бесконечного слоя с твердыми стенками в случае линейного профиля температуры, и на 30% меньше чем Ra_{cr} зафиксированное в двухмерном случае [3]. Эти данные хорошо согласуются с результатами теоретического анализа [15], приведенными в п.5.

В описанном выше трехмерном расчете конвективное движение возникает при значениях числа Рэлея меньших, чем предсказывает линейная теория устойчивости. Время формирования структуры течения весьма велико, что является известным свойством подкритической конвекции [21]. Такое движение соответствует описываемому конечно-амплитудной теорией устойчивости жесткому режиму возбуждения конвекции [5, с.

141], [14, с. 29].

Возникновение в процессе эволюции течения валиковых структур, объясняется с одной стороны наличием гистерезиса (приближение к критическому значению числа Рэлея после возбуждения конвекции осуществляется из области больших значений Ra , см. рис.7), с другой - увеличением с течением времени крутизны профиля концентрации (рис.8), что на качественном уровне соответствует увеличению значения параметра η в задаче (5.5)-(5.7) и способствует смещению из области устойчивости валов в область устойчивости шестиугольников (рис.3). Наблюдаемый в расчете средний профиль концентрации близок к диффузионному (рис.8).

8 Выводы

При численном исследовании процесса выращивания трехкомпонентных полупроводниковых соединений из жидкой фазы в расчетах наблюдалось возникновение и развитие конвективного движения при значениях числа Рэлея меньших, чем предсказывает линейная теория устойчивости, т.е. имела место подкритическая конвекция. На больших временах, порядка $30t_D$, соответствующее движение приобретало форму шестиугольных ячеек I-типа. Полученные данные хорошо согласуются с результатами конечно-амплитудного анализа устойчивости.

Список литературы

- [1] *Дмитриева Л.А., Мажорова О.С., Попов Ю.П., Твилова Э.А., Шленский А.А.* О численном исследовании процесса конвективного массопереноса при получении структур полупроводниковых материалов методом жидкофазовой эпитаксии. – В сб. Математическое моделирование. Получение монокристаллов и полупроводниковых

структур. Под ред. А.А.Самарского, Ю.П.Попова, О.С.Мажоровой. М.: Наука 1986, с. 84 – 100.

- [2] *И.А. Денисов, В.М. Лакеенков, О.С. Мажорова, Ю.П. Попов* Математическое моделирование эпитаксиального выращивания твердых растворов $Cd_xHg_{1-x}Te$ из жидкой фазы. Препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН, 1992, N65
- [3] *I.A. Denisov, V.M. Lakeenkov, O.S. Mazhorova, Yu.P. Popov* Numerical study for liquid phase epitaxy of $Cd_xHg_{1-x}Te$ solid solution. J.Crystal Growth (2002), vol. 245, pp. 21-30
- [4] *I.A. Denisov, V.M. Lakeenkov, O.S. Mazhorova, N.A. Smirnova* Proc. SPIE 4340 (2000) p.223
- [5] *Г.З. Гершуни, Е.М. Жуховицкий* Конвективная устойчивость несжимаемой жидкости. М.: Наука, 1972, 392 с.
- [6] *Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц* Теоретическая физика, VI - Гидродинамика, М.: Наука, 1986
- [7] *О.М. Белоцерковский* Численное моделирование в механике сплошных сред М. Наука 1984
- [8] *П.Н. Вабищевич, А.Н. Павлов, А.Г. Чурбанов.* Методы расчета нестационарных несжимаемых течений в естественных переменных на неразнесенных сетках. Мат. мод. (1996), Т8, N7
- [9] *В.В. Колмычков, О.С. Мажорова, Ю.П. Попов* К расчету уравнений Навье-Стокса в естественных переменных. Препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН, 2001, N60, 39 стр.
- [10] *О.С. Мажорова, Ю.П. Попов, В.И. Похилко* О численном решении уравнений параболического типа с нелинейными граничными условиями, препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН. М. 1985

- [11] *О.С. Мажорова, Ю.П. Попов, В.И. Похилко* Исследования алгоритмов численного решения систем параболических уравнений с нелинейными краевыми условиями Дифференц. уравн. (1987), т.23, N7, с.1240-1250.
- [12] *О.С. Мажорова, Ю.П. Попов, А.С.Сахарчук* Об одной краевой задаче для системы параболических уравнений, препринт Института Прикладной Математики им М.В. Келдыша РАН. 1996, №107, 36 с.
- [13] *А. Джордж, Дж. Лю* Численное решение больших разреженных систем уравнений. М.: Мир, 1984.
- [14] *А.В. Гетлинг* Конвекция Рэлея-Бенара, М.: Эдиториал УРСС, 1999, 248 с.
- [15] *R.Krishnamurti* Finite amplitude convection with changing mean temperature. Part 1. Theory. J. Fluid Mech. (1968), vol. 33, part 3, pp. 457-463
- [16] *В.С. Сорокин* О стационарных движениях жидкости, подогреваемой снизу. Прикл. Мат. Мех. (1954), vol. 18, N2, pp. 197-204
- [17] *A. Schlüter, D. Lortz, F. Busse* On the stability of steady finite amplitude convection. J. Fluid Mech. (1965), vol. 23, N1, pp. 129-144
- [18] *Д. Джозеф* Устойчивость движений жидкости, М.: Мир, 1981, 638 с.
- [19] *F.H. Busse* The stability of finite amplitude cellular convection and its relation to an extremum principle J.Fluid Mech. (1967), vol. 30, N4, p. 625
- [20] *R.Krishnamurti* Finite amplitude convection with changing mean temperature. Part 2. An experimental test of the theory. J. Fluid Mech. (1968), vol. 33, part 3, pp. 445-455

- [21] *David B. White* The planforms and onset of convection with a temperature-dependent viscosity J. Fluid Mech. (1988), vol. 191, part 3, pp. 247-286
- [22] *P.H. Roberts* Convection in horizontal layers with internal heat generation. Theory. J. Fluid Mech. (1967), vol. 30, part 1, pp. 33-50
- [23] *K.Stork, U.Müller* Convection in boxes: experiments J. Fluid Mech. (1972), vol. 54, part 4, pp. 599-611
- [24] *S.H. Davis* Convection in a box: linear theory. J. Fluid Mech. (1967), vol. 30, part.3, pp. 465-478
- [25] *R.Krishnamurti* Further studies on transition to turbulent convection J. Fluid Mech. (1974), vol. 60, part 2, pp. 285-304
- [26] *B.F. Edwards* Crossed rolls at onset of convection in a rigid box J. Fluid Mech. (1988), vol. 191, part 4, pp. 583-597
- [27] *J.P. Gollub, A.R. McCarriar, J.F.Steinman* Convective pattern evolution and secondary instabilities J. Fluid Mech. (1982), vol. 125, pp. 259-281
- [28] *S.Zaleski, Y.Pomeau, A.Pumir* Optimal merging of rolls near a plane boundary Phys. Rev. A29(1984), part 1, pp 366-370
- [29] *R.M. Clever, F.H. Busse* Hexagonal convection cells under condions of vertical symmetry Phys. Rev. E53 (3), R2037-R2040 (1996)
- [30] *M. Assenheimer, V. Steinberg* Observations of coexisting up- and down-flow hexagons in Boussinesq Rayleight-Bénard convection. Phys. Rev. Lett. 76, 756 (1996)

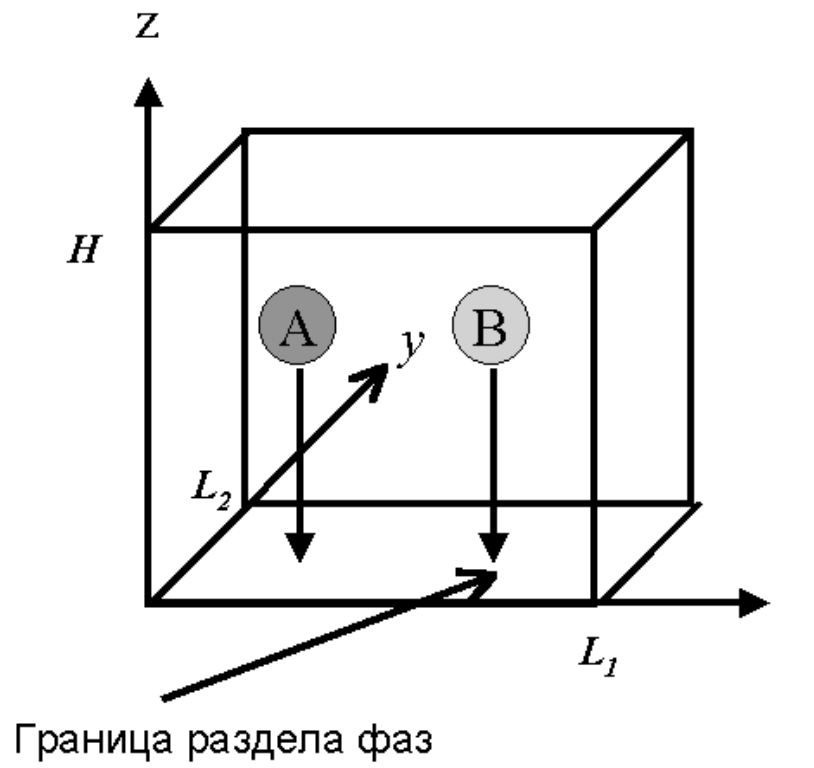


Рис. 1: Схема ростовой камеры

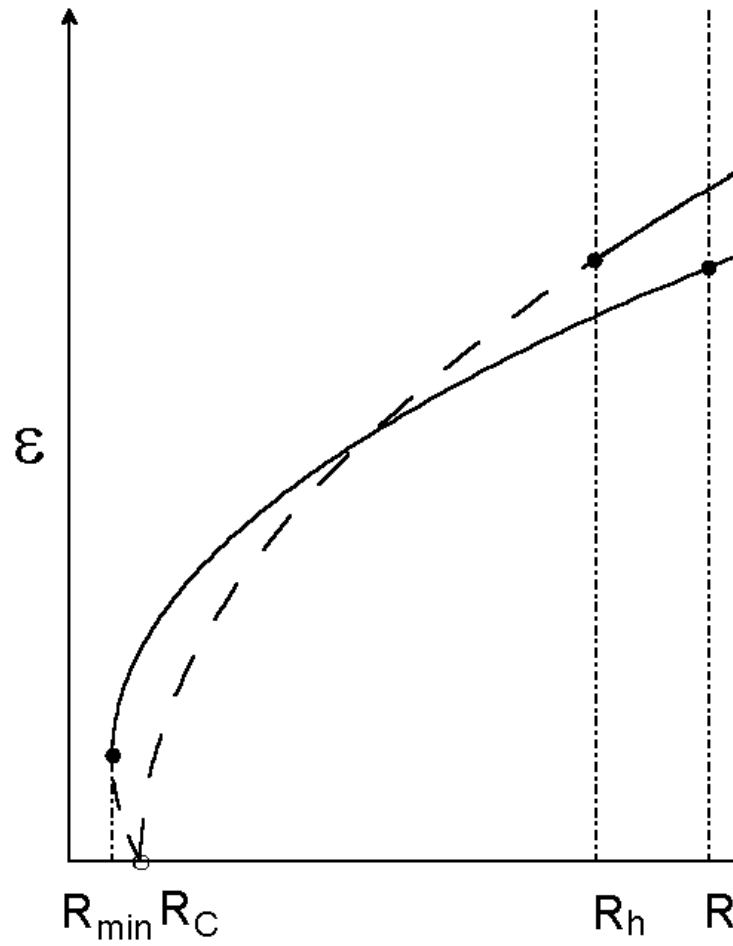


Рис. 2: Зависимость амплитуд валов и шестиугольных ячеек от значения числа Рэлея. I - соответствует валам, II - шестиугольникам. Пунктиром обозначены области неустойчивости соответствующих планформ.

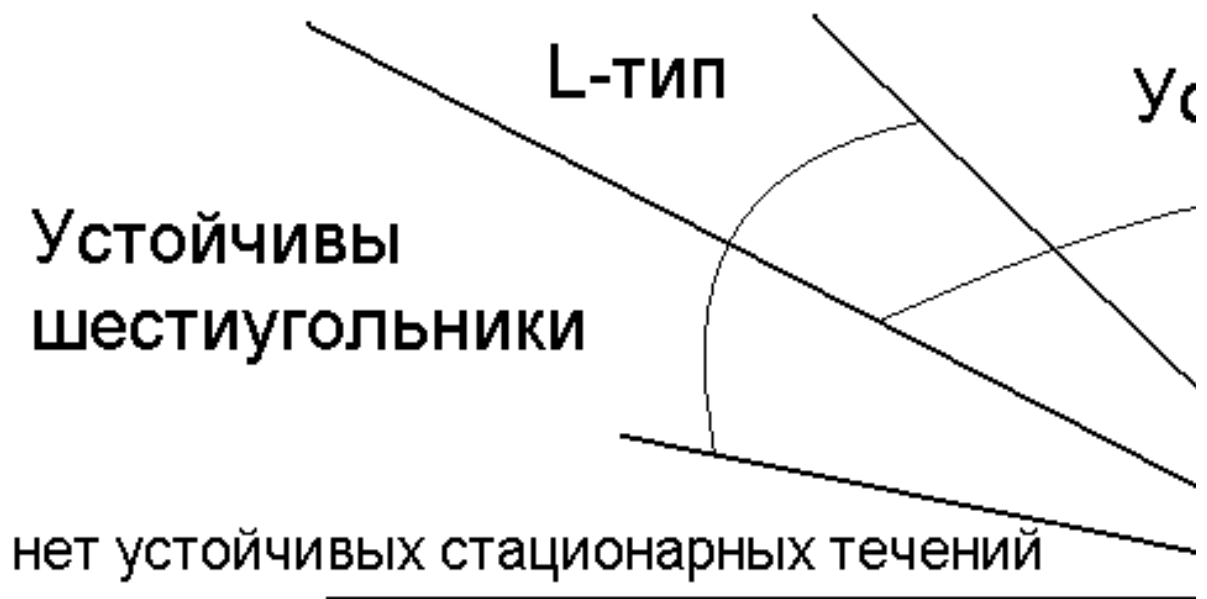


Рис. 3: Диаграмма устойчивости.

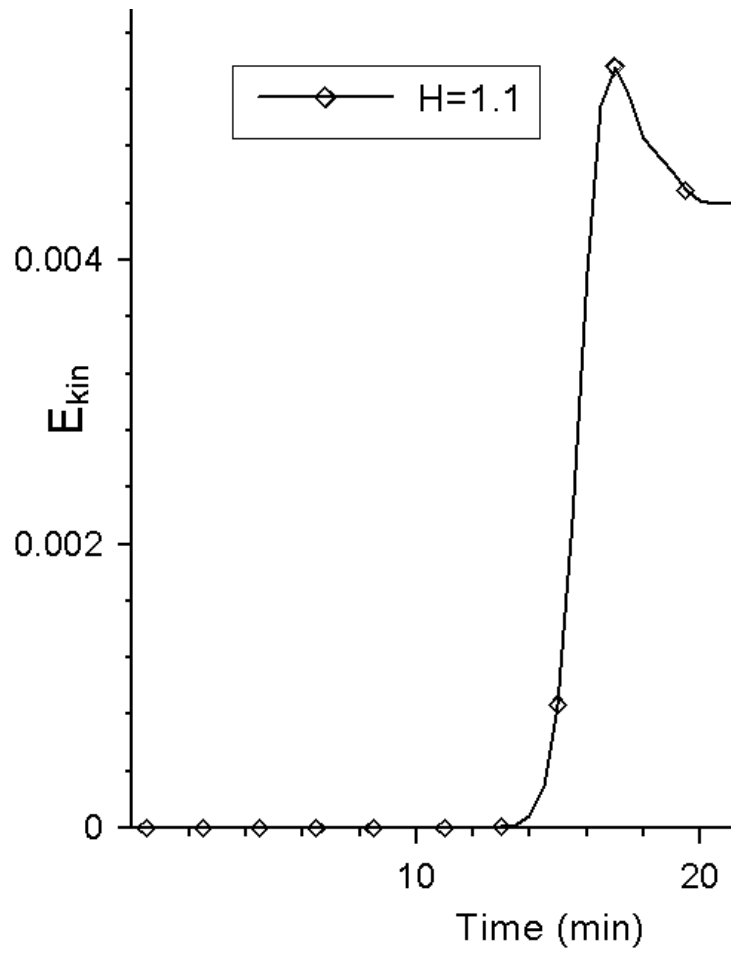


Рис. 4: Изменение средней по области величины кинетической энергии E_{kin} во времени.

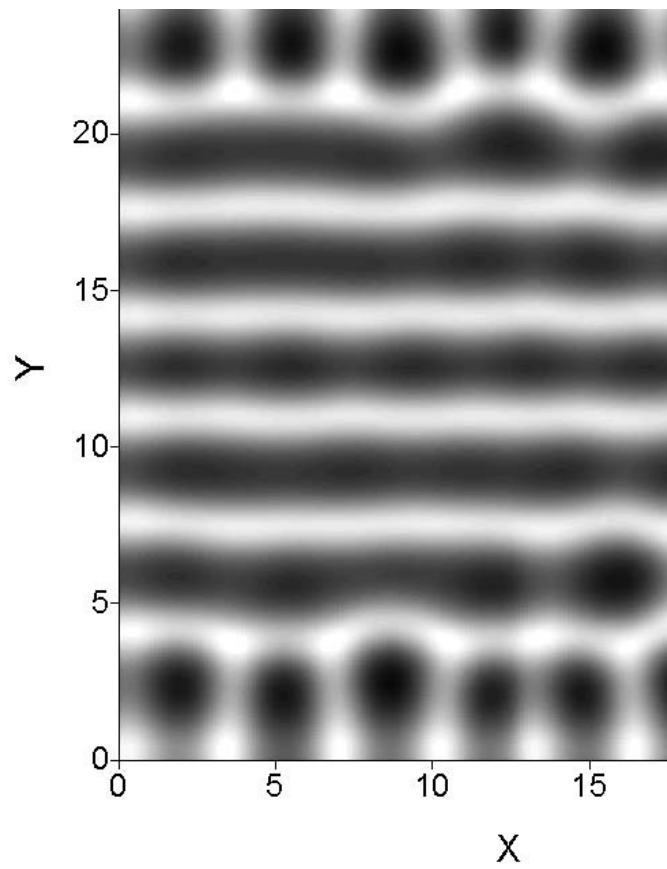


Рис. 5: Распределение концентрации на верхней границе области на момент времени $t = 50min(12.3t_D)$.

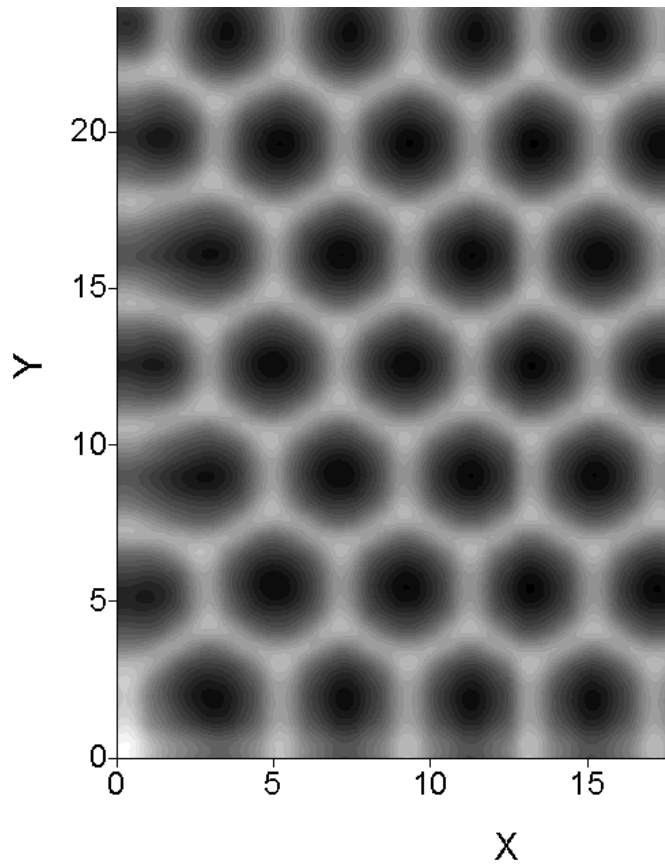


Рис. 6: Распределение концентрации на верхней границе области на момент времени $t = 150min(37t_D)$.

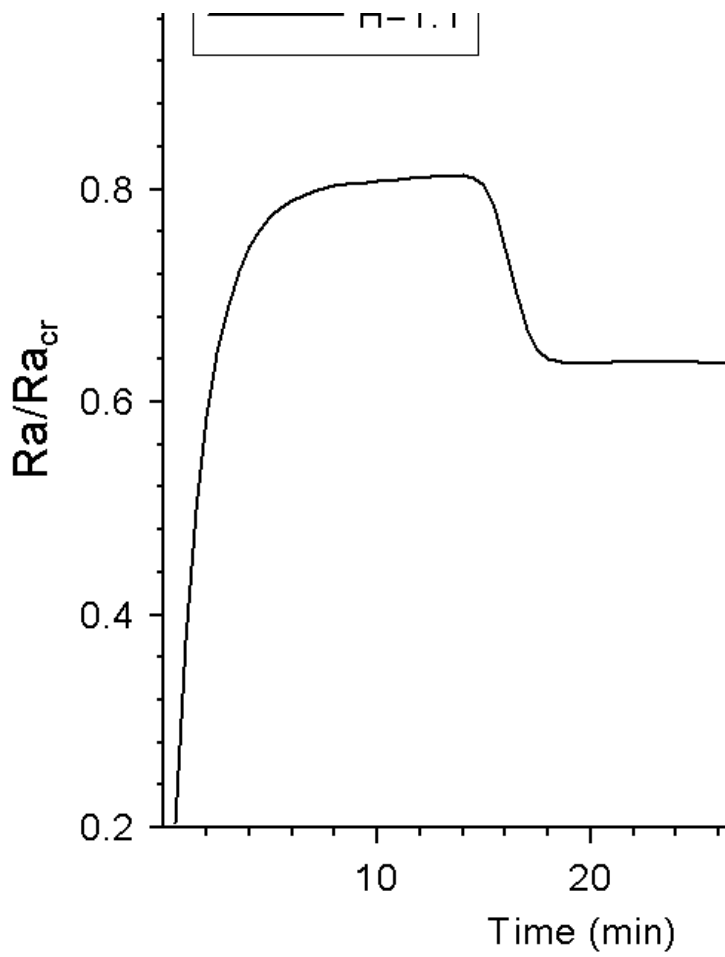


Рис. 7: Зависимость отношения реального значения числа Рэля к критическому от времени.

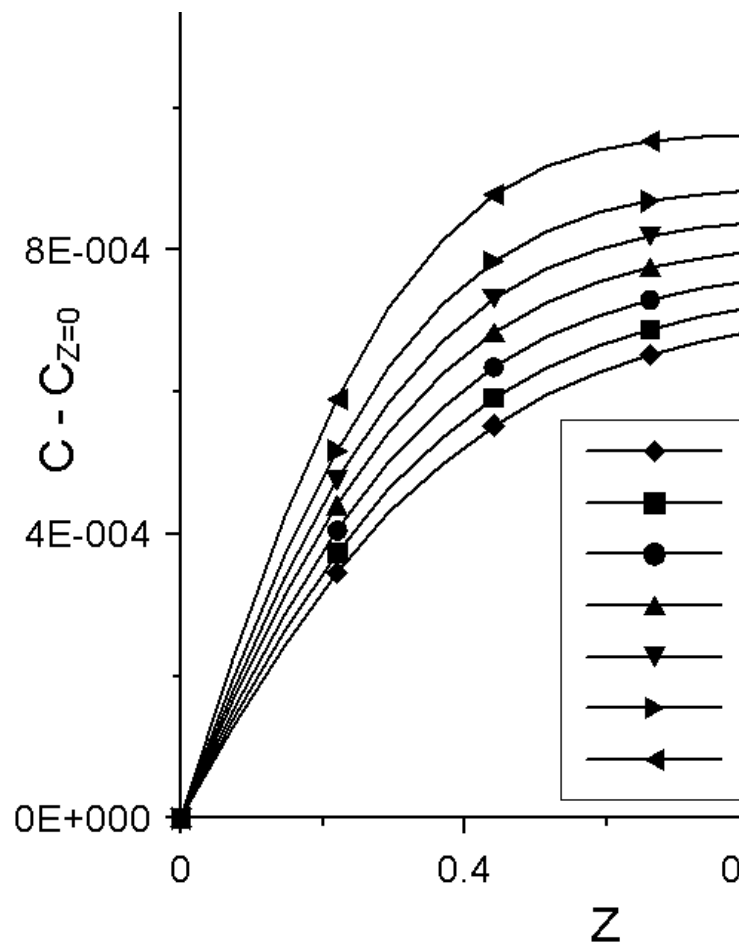


Рис. 8: Средний профиль концентрации на различные моменты времени.